

論文内容の要旨

論文題目 3d 遷移金属(鉄)薄膜の構造と磁性の研究

氏名 林 慶

本研究では、角度分解光電子分光 (ARPES)、スピン・角度分解光電子分光 (SARPES)、X 線光電子回折 (XPD)、軟 X 線吸収磁気円二色性 (XMCD)、磁気線二色性 (MLDAD) を用いて、Fe 薄膜の構造と磁性を微視的な観点から総合的に解明した。実験は高エネルギー加速器研究機構のフォトンファクトリーにある各ビームラインで行った。その結果、成長初期の構造は格子ミスフィットで説明できること、面内に歪みの存在する系は垂直方向の格子が逆に伸縮することがわかった。また、構造と磁性には密接な関係があり、層間距離がそれらを支配していることが明らかになった。さらに tetragonal 構造のバンド計算は、 c/a やバンド分散の実験結果を非常によく説明することがわかった。

3d 遷移金属薄膜の磁性の研究は古くから行われており、現在の物性物理学の重要な研究テーマの 1 つである。真空技術や MBE などの製膜技術の最近の発展にともない、原子層レベルで制御された金属多層膜や人工格子の作成とその物性評価が行わ

れるようになった。特に人工原子層に磁性金属を適用した磁性薄膜や磁性多層膜では、磁気記録メディアの開発をはじめとする磁気工学の応用面で重視されている。これらの系では格子定数を人工的に伸縮することで薄膜特有の構造と磁性が実現でき、低次元磁性や界面磁性が現れる点で物理的にも非常に興味深い。

Bulk Fe は常温・常圧では bcc 構造であるが、Cu(001)表面上の Fe 薄膜は fcc 構造になって成長する。これは Bulk fcc Fe と Cu の格子定数がほぼ等しく格子ミスフィットが小さいためで、Bulk bcc Fe との格子ミスフィットが小さい Au(001)や Ag(001)表面上では bcc 構造になる。このような基板に依存した構造に対して磁性を調べる研究が実験と計算の両面で数多くなされ、構造と磁性の関係が調べられてきた。

本研究では、格子ミスフィットが大きい系の構造と磁性の関係を解明することを目的とし、Rh(001)と Pd(001)表面上に室温で蒸着して成長させた Fe 薄膜について実験と計算を行った。格子ミスフィットは Rh では Bulk fcc Fe の方が、Pd では Bulk bcc Fe の方が小さくなる。これらの系で Fe 薄膜の構造を調べた研究はいくつかあるが、統一した見解は存在せず、磁性との関係を解明したものはない。低次元磁性と界面磁性にも注目して研究を行い、Fe 薄膜は単原子層でも強磁性を示すのか、また基板に磁化が誘起されるのか明らかにした。

(1)Fe/Rh(001)の構造と磁性

Fe 薄膜の構造と電子状態を ARPES、SARPES、XPD によって調べた。その結果、Fe 薄膜は面内では格子が広がっているが、表面垂直方向では縮んでいることがわかった。垂直方向と面内の格子定数の比 c/a は 4ML Fe 薄膜で 0.84 である。また、Fe 薄膜の表面構造が 6ML で fct(001)構造から distorted bcc(110)構造に変化することが明らかになった。層間距離が膜厚の増加にともなって徐々に大きくなり、6 原子層

(ML)以上で一定になることから、層間距離の変化が構造変化の原因であると考えられる。さらに XMCD の実験を行い磁気状態の膜厚依存性を調べたところ、Fe 薄膜は 2ML 以下では強磁性を示さないことがわかった。Rh には磁化が見られず、界面近傍で Fe は磁化していないと結論した。また、SARPES から T_c を見積もったところ、 T_c は膜厚が薄くなるにしたがって低くなり、2ML で 0K になることを明らかにした。薄い膜厚で強磁性にならないのは、Fe 薄膜の層間距離が界面に近いほど短くなっていて、界面近傍では Fe 1 原子当たりの体積が小さくなっているためである。

(2) Fe/Pd(001) の構造と磁性

Fe 薄膜の構造と電子状態を ARPES と XPD によって調べた。その結果、Fe 薄膜は面内では格子が縮んでいるが、垂直方向では伸びていることがわかった。 c/a は 6ML Fe 薄膜で 1.15 である。しかし Fe/Rh(001) と異なり層間距離に顕著な膜厚依存性は観測されず、表面構造は常に bct(001) 構造であることが明らかになった。さらに磁性を MLDAD によって調べたところ、膜厚が 1ML でも Fe 薄膜は強磁性を示すことがわかった。これは Fe 薄膜の層間距離がほぼ一定で、Fe 1 原子当たりの体積が常に強磁性を示す時の体積を越えているためである。また、MLDAD の結果は界面での軌道の混成により Pd に磁化が誘起されていることを示しているが、無偏光を用いた磁気二色性の実験を行って確認する必要がある。

(3) energetics による考察

Fe 薄膜の構造と磁性の安定性を調べるために FLAPW 法によって全エネルギーの計算を行った。Rh(001) と Pd(001) 表面上の Fe 薄膜の構造は tetragonal 構造なので、Bulk fct Fe あるいは bct Fe のバンド計算を行う必要がある。成長過程を考慮して面内の格子定数はそれぞれ Rh と Pd と同じ値にし、表面垂直方向の格子定数をパラ

メータとして計算した。その結果、どちらの構造でも垂直方向の格子定数によらず強磁性状態が安定であるという結果を得た。全エネルギーが最小になる時の c/a は fct 構造で 0.83、bct 構造で 1.12 であり、実験と非常によく一致することがわかった。また、実験で得られたバンド分散は tetragonal 構造のバンド計算で非常によく説明できることがわかった。一方、この計算結果は強磁性が常に安定であることを示しているため、Rh(001) 表面上で 1、2ML Fe 薄膜が強磁性を示さないことの説明ができない。これは薄膜極限では Bulk のバンド計算が適用できないため、1ML、2ML Fe/Rh(001) の計算を行って比較する必要がある。

Rh と Pd 表面上の Fe 薄膜は構造が異なるとともに磁性にも違いが現れた。2ML 以下では Rh 表面上で磁化しないことが明らかになった。このように膜厚が薄いときに強磁性を示さない系として Fe/Ru(0001) と Fe/V(001) がある。これらの系は構造の研究がほとんどなされておらず、磁化しない原因も明らかになっていない。これらを系統的に調べることで、強磁性にならない原因が明らかになり、薄膜における強磁性の発現機構を解明できると考えられる。

本研究では室温成長下の Fe 薄膜について実験を行ったが、Fe/Pd(001) は低温成長下で磁気異方性を示す興味深い系である。界面での軌道の混成が磁気異方性の原因として挙げられているものの、電子状態を調べてそのことを明らかにした研究はない。室温で成長させたときに Pd に磁化が誘起されたことは、この系で混成の効果が大きいことを示しており、基板温度を低温にしたときの界面電子状態を調べて原因を解明することも今後の課題である。