

学位論文題名

Growth, structure and surface magnetism of epitaxial Fe films studied by scanning probe microscopy

(走査型プローブ顕微鏡による Fe 薄膜の結晶成長ならびに
構造と表面磁性に関する研究)

学位論文内容の要旨

現在、磁気記録の急速な高密度化に伴って高い分解能を持つ表面磁化状態評価技術の開発が求められている。従来の表面磁化状態の評価法としては、磁気力顕微鏡(MFM)、スピン走査型電子顕微鏡(スピンSEM)などがある。MFMは数10 nmオーダの分解能を持っているが原理的にはこれ以上の分解能を得ることは困難である。また、スピンSEMも同じく数10 nmオーダの分解能を持っているが、nmオーダへの分解能の向上は原理的に可能だが、現在開発途上にある。原子スケール(0.1 nmオーダ)の表面磁化状態を評価できる手法としてスピン偏極走査型トンネル顕微鏡(スピン偏極STM)が注目され、研究開発が盛んに行われるようになってきた。スピン偏極STMが実現されれば、磁気記録技術の高密度化、電子スピン状態の制御を目指したスピンドバイスの実現が可能にするばかりではなく、磁性物理分野の新概念の誕生にも一役買えるものと期待される。

スピン偏極STMは走査型トンネル顕微鏡(STM)を応用したもので、スピン偏極した電子のトンネル現象をSTMにより観測し、表面電子状態のスピン偏極状態、つまり電子スピン偏極を評価する方法である。スピン偏極STMには、スピン偏極したトンネル電流の検出可能な探針、つまりスピンプローブが必要である。このスピンプローブには磁性体探針、GaAsなどのIII-V族化合物半導体探針の利用が考えられる。半導体探針は磁性体探針と比べて磁気交換相互作用および漏れ磁場による磁性体試料への影響を与えないのでスピンプローブとして望ましい。このGaAsにエネルギーギャップ相当の波長を持った円偏光を照射すると、光学的遷移則により、スピン偏極したキャリアを伝導帯に励起できることがよく知られている。

本研究では、原子分解能スピン偏極STMの実現を目指し、GaAsを探針化して探針の先端に円偏光を照射したときスピン偏極STMのスピンプローブとして有効に稼働するかどうか、またスピン偏極STMの動作原理であるスピン偏極したキャリアのトンネル過程を明確にすることを目的とした。これらを調べるために、①GaAs探針の作製法および評価、②原子分解能での表面磁性測定に最適な磁性体試料の選択・作製条件の確立および磁気特性の評価、③磁性体試料と円偏光励起したGaAs探針間のトンネル過程の究明、この三点を中心に研究を行った。磁性体試料としてはMgO(001)基板の上にエピタキシャル成長させたbcc-Fe(001)表面を使用した。原子スケールで平坦な表面を得るために、その成長過程についての検討を行った。また、原子構造と磁気特性の関係を明らかにした。面内スピン偏極成分と垂直成分の測定が可能にした劈開薄膜GaAs探針を検討して作製し、この探針を用いてFe薄膜表面のスピン偏極状態の観察に成功し、スピン偏極STMの可能性を明らかにした。

本論文は8章で構成される。第1章は序論であり、背景と目的および表面磁性研究におけるスピン偏極STMの位置付けと概要について述べている。第2章は、MgO(001)基板の上にエピタキシャ

ル成長させたbcc-Fe(001)薄膜について述べ、成長過程および磁気特性に関するこれまでの研究の進展を詳細に述べている。また、スピン偏極STMの標準試料として選択したbcc-Fe(001)表面のスピン偏極状態についても述べている。

第3章は、良質なエピタキシャル成長したFe薄膜の作製に適した表面を持つMgO(001)基板の作製について検討し、反射高速電子線回析 (RHEED)、低速電子線回析 (LEED) および原子間力顕微鏡 (AFM) 観察により評価した結果についてまとめた。機械研磨した基板は、機械研磨によってダメージを受けてステップ-テラス構造を持たないことがわかった。酸素または大気中で、1000℃以上の高温アニーリングすることによって、ステップ-テラス構造の表面に改善されることが報告されているが、主な不純物であるCaがバルクから表面に析出する。ステップ-テラスの形成、表面再構成の出現およびFe薄膜の成長に対しての析出したCaの影響を検討してその過程を明らかにした。これによりCa析出の影響が少ないアニーリング条件を見出した。

第4章では、平坦なFe薄膜の作製を目的とし、Fe薄膜の成長モードおよび表面構造の成膜温度依存性をSTMで観察して成長過程を明らかにしている。また、機械研磨した基板、アニーリング処理した基板および劈開した基板上での厚さ35 ÅのFe薄膜の成長モードを調べ、その基板の依存性をも詳細に述べている。不規則なステップ-テラス構造を有する劈開基板では、Fe薄膜はステップ-テラス構造に依存して不規則に成長し、また、10 nm~30 nm の高いステップにより高温で成長させたFe薄膜は不連続膜になり、平坦な薄膜の作製が困難であることを明らかにした。機械研磨した基板上では、Fe薄膜は一様に成長するが、短時間でアニーリングした基板上ではより平坦な薄膜が得られることも明らかにした。成長温度220℃以下ではFe薄膜は平坦ではなく、220℃以上ではステップ-テラス構造を示して平坦な薄膜を形成することがわかった。さらに、膜厚を75 Åまで厚くすると、層状成長からスパイラル成長の成長機構変化を発見した。

第5章では、RHEED、LEEDおよびSTM法によるFe薄膜表面の原子構造の解析を述べている。スピン偏極STMによる原子分解能のスピン成分を得るためには、STMによる磁性体試料の原子構造を明らかにすることが重要である。成長させながら結晶構造をRHEED観察することにより、220℃以上で成長させた薄膜は再構成構造を示し、この再構成構造をLEED観察によりc(2×2)再構成構造であることを明らかにした。また、この構造の実空間の原子分解能をSTMによる観察に成功した。このような試料はスピン偏極STM実験に最適であると考えられる。

第6章では、Fe薄膜の磁気特性について述べている。磁気特性の評価は、SQUID磁気測定法を用いた。磁気特性は、Fe薄膜が連続膜である限り成長温度に依存せず強磁性を示し、容易軸はバルクと同様で<100>方向にあり、また保磁力は8 Oe程度の低保磁力を示す。さらに、異方性は2軸異方性になっていることも明らかにした。

第7章は、劈開薄膜GaAs探針の作製法と評価およびスピン偏極STMによるスピン偏極状態の検出・実験方法と結果のまとめである。劈開薄膜GaAs探針は、50 nm厚さの薄膜GaAsを分子線エピタキシー法で作製し、バルクの部分を選択エッチング法で除去してから薄膜部分を先端になるように劈開して作製した。Si(111)7×7再構成表面およびCu(001)薄膜表面を観察し、探針は安定で、かつ原子像が得られたことから、STMの探針として有効に働くことを明らかにした。Fe薄膜を試料とし、GaAs探針の先端に依存した電流を測定し、画像化したところFe薄膜表面のトポグラフィ(凹凸)像と異なったコントラストを持つ像が得られた。このコントラストが表面の凹凸に依存しないことおよび励起円偏光に正確に依存することから、得られた像がFe薄膜の表面のスピン偏極状態を表しているものだと考えられ、その分解能は約10 nmであることがわかった。原子分解能までは得られないが、光励起したGaAs探針を用いることにより磁性体試料の表面電子スピン偏極の観測が可能であることを示したことになる。

第8章は結論であり、本研究で得られた主な知見と成果をまとめている。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 武 笠 幸 一
副 査 教 授 池 田 正 幸
副 査 教 授 岡 田 亜 紀 良
副 査 助 教 授 末 岡 和 久

学 位 論 文 題 名

Growth, structure and surface magnetism of epitaxial Fe films studied by scanning probe microscopy

(走査型プローブ顕微鏡による Fe 薄膜の結晶成長ならびに構造と表面磁性に関する研究)

現在、磁気記録の急速な高密度化に伴い高い分解能を持つ表面磁化状態評価技術の開発が求められている。原子スケール (0.1 nmオーダー) の表面磁化状態を評価できる手法としてスピン偏極走査型トンネル顕微鏡 (スピン偏極STM) が考えられ、研究開発が行われている。スピン偏極STMが実現できれば、磁気記録技術の高密度化、電子スピン状態の制御によるスピンドバイスの実現が可能となるばかりでなく、磁性物分野の新概念の誕生にも貢献できるものと期待される。

本研究では、原子分解能スピン偏極STMの実現を目指し、円偏光を照射したGaAsがスピン偏極STMに対して有効に稼働するかどうか、またスピン偏極したキャリアのトンネル過程を明確にすることを目的として、①GaAs探針の作製法および評価、②原子分解能での表面磁性測定に最適な磁性体試料の選択・作製条件の確立および磁気特性の評価、③磁性体試料と円偏光励起したGaAs探針間のトンネル過程について検討を行なった。磁性体試料としてはMgO(001)基板上にエピタキシャル成長させたbcc-Fe(001)表面を使用し、原子スケールで平坦な表面を得るために、その成長過程についての検討を行った。面内スピン偏極成分と垂直成分の測定の可能な劈開薄膜GaAs探針を作製し、Fe薄膜表面のスピン偏極状態の観察に成功し、スピン偏極STMの可能性を明らかにした。

研究成果を要約すると、

- (1) 良質なエピタキシャル成長したFe薄膜の作製に適した表面を持つMgO(001)基板の作製について検討し、機械研磨基板では、機械研磨によってダメージを受けステップ-テラス構造を持たないことがわかった。酸素または大気中で、1000℃以上の高温アニールすることによって、ステップ-テラス構造を持つ表面に改善されるが、ステップ-テラスの形成、表面再構成の出現およびFe薄膜の成長に対しての析出した不純物Caの影響を検討してその過程を明らかにした。これによりCa析出の影響が少ないアニール条件を見出した。
- (2) 平坦なFe薄膜の作製を目指し、Fe薄膜の成長様式および表面構造の成膜温度依存性をSTMで観察して成長過程を明らかにした。機械研磨した基板上では、Fe薄膜は一様に成長す

るが、短時間でアニーリングした基板ではより平坦な薄膜が得られることも明らかにした。膜厚を75 Åまで厚くすると、層状成長からスパイラル成長の成長機構へと変化することを見出した。220℃以上で成長させた薄膜は $c(2\times 2)$ 再構成構造を示すことを明らかにした。

- (3) Fe薄膜を試料とし、スピン偏極像が得られた。このコントラストが表面の凹凸に依存しないことおよび励起円偏光に正確に依存することから、得られた像がFe薄膜表面のスピン偏極状態を表しているものと考えられ、その分解能は約10 nmであることがわかった。

本論文は光励起したGaAs探針を用いることにより磁性体試料の表面電子スピン偏極の観測が可能であることを示したもので有益な多くの知見を得ており、計測工学、表面科学ならびにナノ磁性に貢献するところ大なものがある。よって著者は北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。