学位論文題名

Structural and electronic properties of
 $c(2 \times 2)$ Fe thin film surfaces studied by
scanning tunneling microscopy and spectroscopy(走査型トンネル顕微鏡/分光法による
 $c(2 \times 2)$ Fe 薄膜表面の構造と電子状態に関する研究)

学位論文内容の要旨

近年、半導体デバイスの微細化や磁気記録の高密度化が一段と進むにつれて、材料の様々な特性、例えば電気特性や磁気特性、結晶構造など、を数十 nm のオーダーで測定し制御することが求められてきている。また、微細化に伴う次元の低下により、物質表面や界面の特性がデバイスの特性に大きく効いてくるため、表面の物性を明らかにすることが重要な課題になってきている。

このような測定において、高い空間分解能を持つ走査型トンネル顕微鏡(Scanning Tunneling Microscopy: STM)やトンネル分光法(Scanning Tunneling Spectroscopy: STS)は有用性が高い。また、リソグラフィなどを用いて、大きなものを小さくして nm スケールへ近づくとという従来からあるトップダウン法だけでなく、原子や分子を一個ずつ操り nm スケールの材料を作るというボトムアップ法の可能性も示してきた。いまや「ナノテクノロジー」の分野において欠くことの出来ないツールである。

そういった中、量子干渉といった、表面において新しい現象が、Cu(111)や Ag(111)などにおいて、STM を用いて発見されている。この量子干渉は、表面特有に存在する準位が 2 次元的な広がりを持つため、表面ステップや欠陥によって反射され定在波ができるために起こる。一方、bcc-Fe(001)や V(001)のような、bcc 遷移金属(001)では、上述の準位とは違い、原子サイトに局在した d_z^2 -like な表面準位が発見されている。一様に広がらず局在する性質を使って、原子レベルでの元素同定が実現されている。更に、bcc-Fe(001)や Cr(001)など磁性金属表面が持つ表面準位はスピン偏極するため、~nm の磁性現象を解明する鍵にもなりうる。故に、磁性金属表面は、磁気メモリ(MRAM)、究極的には原子スピンメモリなどへの応用という観点だけでなく、基礎物理現象を解明するという観点からも注目されている。

本研究は、STM/STS を用いて、MgO(001)基板上にエピタキシャル成長させた bcc-Fe(001)の表面構造と電子状態を原子レベルで調べた結果をまとめたものである。加工などの応用への容易さから、バルク単結晶ではなく、薄膜表面を選択した。表面準位は規則正しく原子配列された表面において発現するため、原子レベルで構造が制御された表面が必要になる。そこで、10~30nm の原子レベルで平坦な表面が得られる条件で bcc-Fe(001)薄膜を作製した。しかし、その薄膜表面は(1x1)構造ではなく、 $c(2 \times 2)$ 再構成構造を持つことがわかった。また、局所的に存在する 1 次元ナノ構造 'ラインライクパターン' を発見し、この構造内部では(1x1)構造を持つことがわかった。

また、STS 測定から、 $c(2 \times 2)$ 再構成構造上ではフェルミレベルの上+0.43eV 付近に、一方ラインライクパターン上では+0.2eV 付近に表面準位が存在することを明らかにした。この表面準位のエネルギー位置の違いは、表面原子構造の違いから来ていると考えている。

第一章では、本研究の背景が書かれている。半導体デバイスの微細化や磁気記録の高密度化により、nm スケールにおける物性制御の重要性が高まり、「ナノテクノロジー」という分野が生まれ、注目されてきた経緯をまとめた。また、その中で表面物性の重要性と、STM を含む走査型プローブ顕微鏡 (Scanning Probe Microscopy: SPM) がどのような役割を果たしているのか、その研究状況をまとめ、本研究の目的を書いた。

第二章では、本研究で大きな役割を果たす STM と表面準位について記述する。量子トンネル効果からトンネル電流とトンネルバリアの関係を導き、STM の動作原理、STS で得られる物理量について、簡単な理論的考察から説明する。また、表面準位を利用した実験結果について詳細にまとめ、STM/STS によってどのように検出されるのかを説明することにより、本研究の位置づけをより明確にした。

第三章では、本研究で使用した装置の概要を記述する。実験は一つの超高真空システム内で全て行われる。そのシステムに取り付けられた測定装置だけでなく、真空を維持するためのポンプ類に至まで、各真空チャンバーのスペックについて説明した。

第四章では、bcc-Fe(001)薄膜の作製手順についてまとめる。MgO 基板の洗浄法から、STM 測定のための Au 電極の作製、真空中での清浄化法について記述する。その後、MgO(001)基板上の Fe(001)薄膜の作製条件について、文献報告を概観することにより検討する。そして、成長温度 573K、成長レート 1nm/min.、膜厚 10nm でエピタキシャル成長させた Fe(001)薄膜の反射高速電子線回折と X 線光電子分光の結果から、成長中の膜質の変化と表面組成について議論した。

第五章では、第四章で作製した Fe(001)薄膜の表面構造について STM の結果を記す。Fe 薄膜は MgO 基板上にアイランド成長し、そのアイランドは約 10~30nm 幅の原子レベルで平坦なテラスを持つことがわかった。原子分解能 STM により、最表面は $c(2 \times 2)$ 再構成構造を持つことが示された。また、テラス上に特異な 1 次元ナノ構造を発見し、「ラインライクパターン」と名付けた。その構造内部では再構成を起こしていない (1×1) 構造を持つことが明らかにされた。

第六章では、低速電子線回折 (Low-Energy Electron Diffraction: LEED) の結果から表面原子構造について議論されている。STM は物理的な原子位置を測定しているわけではなく、電子状態の空間分布を観ているため、STM 像だけから結晶構造を決定することは難しい。そこで、LEED パターンの各スポットの Intensity-Voltage カーブを測定した。モデル構造からの I-V カーブを計算し、実験データと比較することにより、結晶構造を決定した。

第七章では、 $c(2 \times 2)$ 構造とラインライクパターンの電子状態について STM/STS の結果が書かれている。 $c(2 \times 2)$ 構造上で測定した dI/dV スペクトルでは、+0.43V 付近に表面準位の存在を示すピークが観察された。原子分解能 STM/STS から $c(2 \times 2)$ 構造の STM 像における top サイトと hollow サイトでは、異なる電子状態を持つことが分かった。一方、ラインライクパターン上では dI/dV スペクトルにおいて、+0.2V 付近に表面準位に対応すると考えられるショルダーを観察した。表面準位が観察されたエネルギー位置の違いは、原子配列の違いに起因していると考えられる。また、ラインライクパターンの出現は、表面準位により引き起こされるトンネルコンダクタンスの増加が、 $c(2 \times 2)$ 構造と (1×1) 構造を持つラインライクパターン上では、異なるエネルギー位置で起こるからであるということを明らかにした。

第八章では、本論文全体をまとめ、更なる興味について書かれている。 (1×1) bcc-Fe(001)上に存在する表面準位はスピン偏極しているため、スピン偏極 STM を用いることにより、nm 領域におけるスピンの依存した電子状態に関する知見が得られるものと期待される。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 武 笠 幸 一
副 査 教 授 山 本 眞 史
副 査 教 授 岡 田 亜 紀 良
副 査 助 教 授 末 岡 和 久

学 位 論 文 題 名

Structural and electronic properties of $c(2 \times 2)$ Fe thin film surfaces studied by scanning tunneling microscopy and spectroscopy

(走査型トンネル顕微鏡／分光法による

$c(2 \times 2)$ Fe 薄膜表面の構造と電子状態に関する研究)

近年、走査型プローブ顕微鏡は原子分解を有する計測装置として様々な表面物性計測への応用に関する研究が盛んに行われている。特に、磁性材料、磁性ナノ構造表面における磁性をナノスケールの精度で観察・制御することを可能にするための研究を推進することが望まれており、磁気ランダムアクセスメモリなど磁性材料を活用した新しいデバイス開発を進め上では急務の課題となっている。

本論文は、このような現状を踏まえ、走査型トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscopy: STM) や走査トンネル分光 (Scanning Tunneling Spectroscopy: STS) を用い、強磁性体薄膜表面の構造とそのスピンに依存した電子状態について、MgO(001) 基板上にエピタキシャル成長した Fe 薄膜を研究対象としてその詳細を明らかにしたものである。具体的には、平坦な表面が得られる条件で bcc-Fe(001) 薄膜を作製したところ、その薄膜表面が (1x1) 構造ではなく、 $c(2 \times 2)$ 再構成構造を持つことを示した。また、局所的に存在する 1 次元ナノ構造 ‘ラインライクパターン’ を発見し、この構造内部では (1x1) 構造を持つことを明らかにした。更に、STS 測定から、 $c(2 \times 2)$ 再構成構造上ではフェルミレベルより +0.43 eV 非占有準位側の近傍に、一方ラインライクパターン上では +0.2 eV 付近に表面準位が存在することを示し、それらの違いが表面原子構造の違いに由来していることを示した。さらにこの表面準位を利用したスピン状態測定方法についてその基礎的な実験結果について述べている。

第一章では、本研究に関わる背景について論じた。「ナノテクノロジー」という研究分野が注目されてきた経緯をまとめ、当該研究分野における表面物性の重要性と、STM を含む走査型プローブ顕微鏡 (Scanning Probe Microscopy: SPM) がどのような役割を果たしているのか、その現状状況をまとめ、本研究の目的を導いている。

第二章では、STMの測定原理と表面準位について述べた。また、STSで得られる物理量について、簡単な理論的考察を踏まえて解説した。

第三章では、表面準位を利用した実験結果について、これまでの研究経緯についてまとめ、STM/STSによる研究が表面電子状態の何を明らかにしてきたかについて解説し、本研究の位置づけを明確にした。

第四章では、本研究で使用した真空一貫表面分析装置の概要について述べた。

第五章では、bcc-Fe(001)薄膜の作製手順について論じた。MgO基板の洗浄法、STM測定のためのAu電極の作製、真空中での清浄化法について、実験条件などその詳細についてまとめた。

第六章では、作製したFe(001)薄膜の表面構造についてSTM測定を行った結果について議論した。Fe薄膜はMgO基板上にアイランド成長し、そのアイランドは約10~30nm幅の原子レベルで平坦なテラスを持つことがわかった。原子分解能STMにより、最表面は $c(2 \times 2)$ 再構成構造を持つことが示された。さらに、テラス上に特異な1次元ナノ構造を発見し、‘ラインライクパターン’と名付けた。その構造内部では (1×1) 構造を持つことが明らかにされた。

第七章では、CITS測定およびSTS測定により得られた表面電子状態について、STM測定で明らかになった表面原子構造との関連について、実験結果を基に考察した。特に表面準位として測定されるSTSスペクトルのピーク位置が高エネルギー側にシフトしている原因について、表面吸着原子による量子閉じこめ効果の可能性を指摘し、現象論的解析から実験で得られたピークシフトを説明することに成功した。

第八章では、STM/STS測定の結果におよび考察について総括した。

第九章では、スピン偏極STMの動作原理とその有用性について論述した。

第十章では、半導体探針を用いたスピン偏極STMの動作原理について述べ、本論文で作製したFe(001)薄膜表面を用いたスピン偏極STM実験の概念について論述し、提案した実験装置の詳細について述べた。

第十一章では、光励起GaAs探針を持ち手Fe(001)薄膜表面を測定した結果についてまとめ、半導体探針から強磁性体のスピン偏極した表面準位へのスピン注入ができたことを示した。

第十二章では、本論文を総括し、本論文が明らかにした事柄が今後の研究・開発へ展開されるべきなのかその展望について論述した。

これを要するに、著者は、bcc-Fe(001)薄膜表面における表面結晶構造と表面電子状態について原子分解能STM/STS測定により新しい知見を得たものであり、表面物理学、磁気工学、ナノテクノロジーの分野に対して貢献するところ大なるものがある。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。