

マグネタイト薄膜表面の磁気構造に関する研究

学位論文内容の要旨

本論文は、マグネタイト薄膜、薄膜作製時に導入される逆位相境界 (APB) の構造に注目し、スピン分解能を有する顕微鏡技術を用いて明らかにした局所的な結晶構造と磁気結合および巨視的な磁気構造の関係から、その磁気特性について研究を行ったものである。

Fe_3O_4 の組成式で表されるマグネタイトは逆スピネル構造をとり、フェリ磁性を示す。磁鉄鉱とも呼ばれるこの鉄酸化物は天然に存在する磁石として古くから人類の興味の対象であったが、近年においては、エピタキシャル成長した薄膜は安定であり、フェルミ準位で高いスピン偏極度が期待されるハーフメタルとしての性質を有することから、電子スピン状態を利用するスピンドバイスに応用できる材料として注目されている。しかしながら薄膜に導入される積層欠陥により薄膜に一樣な磁区を導入することが困難であると考えられている。またバルク結晶のマグネタイトは 120K 付近で Verwey 転移することが知られているが、薄膜では異なる転移温度を示し、表面では局所的な構造に依存した転移を示すことが予想されるが、その詳細は明らかになっていない。

本論文では、マグネタイトのエピタキシャル成長薄膜を $\text{MgO}(001)$ 基板上に成膜し、薄膜に導入される積層欠陥である APB の構造や APB を介した磁気結合、それらの結合の結果発現している磁区構造について、各種の磁気顕微鏡測定による結果より考察する。

第 1 章では、近年、従来の半導体デバイスの集積化限界を凌駕することや新機能の発現を期待して、電子が有する電荷に加えスピン量子状態を利用する電子デバイスに関する研究開発が進められているが、それらの研究と本研究と対象とするマグネタイト薄膜の関係、最近指摘された電流誘起相転移現象などマグネタイト薄膜に特有なスピン依存伝導現象などについてまとめ、本研究が背景とするところについて総括する。

第 2 章では、マグネタイト薄膜の結晶構造および APB の構造について議論し、APB において予想される磁気結合について論述した。 $\text{MgO}(001)$ 表面上にマグネタイト薄膜を成長すると、結晶対称性による 7 種類の積層欠陥が生じる可能性があり、これが APB となる。それぞれの位相境界では異なるドメイン間の磁気結合が生じることが予想されており、これらの予想から期待される磁気構造について議論する。

第 3 章では、マグネタイト薄膜を $\text{MgO}(001)$ 基板上に成膜し、APB を導入するとともに、その結晶構造と磁気構造を調べるための実験系について論述する。薄膜のエピタキシャル成長は超高真空中で行い、反射高速電子線回折装置を用いて薄膜成長過程をモニタし、表面結晶構造ならびに組成についてはそれぞれ走査型トンネル顕微鏡 (STM)、X 線光電子分光装置 (XPS) を用いて in-situ で行った。また、APB の構造については透過電子顕微鏡による測定を行っている。さらに巨視的な磁気構造については磁気力顕微鏡 (MFM) ならびにスピン偏極走査電子顕微鏡 (Spin-SEM) を用いた測定を行った。本章では、各種測定手法について本実験結果を理解するために必要な解説を行うとともに、

これらの実験を行うために必要となる試料やプローブの作製方法、結晶成長条件の最適化結果などについて説明する。

第4章では、STMによる表面結晶構造の観察結果についてまとめ、成長条件と表面結晶構造の関係およびAPB近傍での結晶構造について議論する。成長条件に依存した組成変化については、XPS測定の結果より議論する。また、巨視的な磁気構造測定を行うためには、装置構成の制約から、試料を一度大気に曝露するする必要があり、短時間の大気曝露および再度真空中で脱ガス処理を行った際の結晶表面構造への影響については、同様の実験から明らかにし、作製した薄膜は安定であり、脱ガス処理のみで表面を再生できることを確認した。

第5章では、巨視的な磁気構造について、MFMおよびSpin-SEMを用いて観察を行い、加熱処理に伴う垂直磁気異方性の発現について論述する。MFMは大気中測定であり、強磁性体プローブを用いることから、最表面の吸着層やプローブからの漏洩磁場による影響を無視することができないため、観察される磁気像の詳細について議論することが難しいのに対して、Spin-SEMは試料に対して磁場が印加されることもなく、また、観察される磁区における磁化方向および磁化の大きさの定量測定が可能である。しかしながら、本研究で用いたSpin-SEMは自作装置であり、MFMと比較して分解能が悪いため、それぞれの測定結果を相補的に利用することで、磁気構造の詳細について議論した。

第6章では、本研究で得られた成果を総括するとともに、マグネタイト薄膜の磁気構造の由来を明らかにし、この薄膜をスピンドバイス等に応用するために必要となるアイデアおよび本研究の成果の展開について述べる。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 末 岡 和 久
副 査 教 授 山 本 眞 史
副 査 教 授 高 橋 庸 夫

学 位 論 文 題 名

マグネタイト薄膜表面の磁気構造に関する研究

本論文は、マグネタイト薄膜、薄膜作製時に導入される逆位相境界 (APB) の構造に注目し、スピ分解能を有する顕微鏡技術等を用いて明らかにした局所的な結晶構造と磁気結合および巨視的な磁気構造の関係から、その磁気特性について研究を行ったものである。

Fe_3O_4 の組成式で表されるマグネタイトは逆スピネル構造をとり、フェリ磁性を示す。磁鉄鉱とも呼ばれるこの鉄酸化物は天然に存在する磁石として古くから人類の興味の対象であったが、近年においては、エピタキシャル成長した薄膜は安定であり、フェルミ準位で高いスピン偏極度が期待されるハーフメタルとしての性質を有することから、電子スピン状態を利用するスピデバイスに応用できる材料として注目されている。しかしながら薄膜に導入される積層欠陥により薄膜に一樣な磁区を導入することが困難であると考えられている。またバルク結晶のマグネタイトは 120K 付近で Verwey 転移することが知られているが、薄膜では異なる転移温度を示し、表面では局所的な構造に依存した転移を示すことが予想されるなど、その詳細は明らかになっていない。

本論文では、マグネタイトのエピタキシャル成長薄膜を $\text{MgO}(001)$ 基板上に成膜し、薄膜に導入される積層欠陥である APB の構造や APB を介した磁気結合、それらの結合の結果発現している磁区構造について、各種の磁気顕微鏡測定による観察結果より考察されている。

第 1 章では、従来の半導体デバイスの集積化限界を凌駕することや新機能の発現を期待して、電子が有する電荷に加えスピン量子状態を利用する電子デバイスに関する研究開発が進められているが、それらの研究と本研究と対象とするマグネタイト薄膜との関係などについてまとめ、本研究が背景とするところが総括されている。

第 2 章では、マグネタイト薄膜の結晶構造および APB の構造について議論し、APB において予想される磁気結合について論述されている。 $\text{MgO}(001)$ 表面上にマグネタイト薄膜を成長すると、結晶対称性による 7 種類の積層欠陥が生じる可能性があり、これが APB となる。それぞれの位相境界では異なるドメイン間の磁気結合が生じることが予想されており、これらの予想から期待される磁気構造についての議論がなされている。

第 3 章では、マグネタイト薄膜を $\text{MgO}(001)$ 基板上に成膜し、APB を導入するとともに、その結晶構造と磁気構造を調べるための実験系について論じられている。薄膜のエピタキシャル成長は超高真空で行い、反射高速電子線回折装置を用いて薄膜成長過程をモニタし、表面結晶構造ならびに組成についてはそれぞれ走査型トンネル顕微鏡 (STM)、X 線光電子分光装置 (XPS) を用いて in-situ で行われている。また、APB の構造については透過電子顕微鏡による測定が行われている。さらに巨視的

な磁気構造については磁気力顕微鏡 (MFM) ならびにスピン偏極走査電子顕微鏡 (Spin-SEM) を用いた測定が行われている。これらの実験を行うために必要となる試料やプローブの作製方法、結晶成長条件の最適化結果などについても解説がなされている。

第4章では、STM による表面結晶構造の観察結果についてまとめ、成長条件と表面結晶構造の関係および APB 近傍での結晶構造について議論されている。成長条件に依存した組成変化については、XPS 測定の結果について議論されている。また、短時間の大気曝露および再度真空中で脱ガス処理を行った際の結晶表面構造への影響については、同様の実験から明らかにし、作製した薄膜は安定であり、脱ガス処理のみで表面を再生できることが示されている。

第5章では、巨視的な磁気構造について、MFM および Spin-SEM を用いて観察を行い、加熱処理に伴う垂直磁気異方性の発現について論じている。

第6章では、本研究で得られた成果が総括されているとともに、マグネタイト薄膜欠陥が寄与する磁気構造についての知見がまとめられており、この薄膜をスピンドバイス等に応用するために必要となるアイデアおよび本研究の成果の展開について述べられている。

これを要するに、本論文は、マグネタイト薄膜に導入される積層欠陥である逆位相境界における原子配列を実験的に明らかにし、新たな欠陥構造を発見し、これらの欠陥構造が寄与することで形成されると予想される大きな磁気ドメインの出現についてスピン電子顕微鏡などを用いて検証するとともに、欠陥での酸素配位を変えることで欠陥での磁気結合が替わることを実験的に示しており、ここで得られた基礎的知見は磁気薄膜デバイスの研究に貢献するところ大である。

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者と認める。