

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 10 月 19 日現在

機関番号：14403

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390080

研究課題名(和文) 4d遷移金属超薄膜・ナノ粒子のスピン偏極表面準位と強磁性発現機構の解明

研究課題名(英文) Spin-polarized surface states and elucidation of the mechanism of appearance of ferromagnetism in 4d transition metal ultrathin films and nano-particles

研究代表者

川越 毅 (KAWAGOE, Takeshi)

大阪教育大学・教育学部・教授

研究者番号：20346224

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、Pd超薄膜の強磁性発現機構の実験的検証を目指してPd(001)薄膜の「表面ナノ構造・局所状態密度・磁性」の関連を走査型トンネル顕微鏡/分光法(STM/STS)・低速電子線回折(LEED)などによって調べた。現有の超高真空STM/MBE装置を用い、Au(001)表面上に原子レベルで平坦なテラスを有する高品位なエピタキシャルPd(001)薄膜を作成することができた。STSによってPd(001)表面の表面準位に対応すると考えられる明瞭なピークを観察した。LEED像から求めた格子定数のPd膜厚依存性を詳細に調べた結果、格子拡張していることを確認した。

研究成果の概要(英文)：In this research, we studied surface nanostructure, local density of states, and magnetism of ultrathin Pd films by scanning tunneling microscope/spectroscopy (STM/STS), low energy low-energy electron diffraction (LEED) to verify experimentally the origin of the appearance of ferromagnetism in ultrathin Pd films. High quality epitaxial Pd(001) films, consisting of atomically flat terraces, were successfully grown by using the UHV system equipped with MBE and STM. The dI/dV spectra of the 4ML thick of Pd(001) film shows a distinct peak at +250 mV, which may correspond to the spin-polarized surface states of Pd(001) surface. We have studied the Pd thickness dependence of lattice constants by the LEED patterns, and they turns out that the Pd(001) films show lattice expiations.

研究分野：表面磁性、表面・界面物性、スピントロニクス、磁性物理

キーワード：走査型トンネル顕微鏡 Pd薄膜 強磁性発現機構 表面準位

1. 研究開始当初の背景

4d 遷移金属 Pd は強磁性寸前の金属であることは古くから知られており、ある状況下で状態密度を増大することで、強磁性が発現すると考えられている。たとえば Pd ナノ粒子は局所的に強磁性が発現することが報告されているが、その詳細は未だ多くの点が未解決である。また第一原理計算によって特定の Pd 層厚で強磁性を示すことが報告されている。最近 Pd(001)超薄膜が強磁性を示すことが物理学会で報告された。Pd ナノ構造と局所状態密度の関連が強磁性発現の重要な要因と考えられるが、その両者の関連を示す実験的検証例は現在までに報告されていない。そこで本研究ではスピン偏極 STM の手法を用いて Pd 超薄膜の「表面ナノ構造・スピン偏極表面準位・磁性」との関連を直接的に観察し、強磁性発現機構を明らかにする

2. 研究の目的

本研究は、4d 遷移金属 Pd 超薄膜の強磁性発現機構の主要因と考えられる「表面ナノ構造・スピン依存局所状態密度・磁性」の関連を走査型トンネル顕微鏡/分光法 (STM/STS)、スピン偏極 STM、低速電子線回折 (LEED)、磁気光学効果を用いてナノ領域及び実空間で直接的に観察する。実験結果から Pd 薄膜の表面磁性・磁気物理の基礎的知見とスピントロニクスへの応用の可能性を探る。本手法は従来の手法と比べると Pd ナノ粒子・超薄膜の強磁性発現機構を微視的な観点から直接的にとらえることが可能である。具体的には以下の点を明らかにすることである。

- 1) MBE 法による高品質な Pd(001)超薄膜の作製と表面ナノ構造・スピン偏極表面準位の検証
- 2) 磁気光学効果による強磁性の実験的な検証
- 3) スピン偏極 STM を用いた表面スピン偏極電子状態のナノ領域・実空間観察と強磁性発現機構

3. 研究の方法

1) MBE 法による高品質な Pd(001)超薄膜の作製と表面ナノ構造・スピン偏極表面準位の検証
 実験には、現有の試料成長室・STM 観察室を備えた超高真空 STM/MBE 装置 (図 1) を用いた。到達真空度は試料成長室・STM 観察室でそれぞれ 4×10^{-11} , 2×10^{-11} Torr 以下である。試料成長室には、K セル、電子ビーム蒸着源 $\times 3$ 機口加熱ステージ、低速電子線回折/オージェ電子分光装置 (LEED/AES) が設置されている。STM 観察室にはオミクロン社マイクロ STM・探針加熱機構などが設置されている。試料清浄表面作製とその評価、探針の清浄化、強磁性探針作成、STM 観察が室温・超高真空下で可能である。

Au(001)表面上に高品質な Pd(001)超薄膜

(1-20ML) をエピタキシャル成長法によって作製した。具体的には基盤には MgO(001)を用い、MBE 法によって Au(001)-(5 \times 28) 清浄表面を作成し、Au(001)清浄表面上に Pd(1-4ML) を a)室温蒸着・b) 室温蒸着後 200 度熱処理した超薄膜について LEED と STM を用いて表面ナノ構造の評価を行った。STM 観察は W 探針を用いて室温・超高真空下で行った。微分コンダクタンス (dI/dV) はバイアス電圧に微小交流電圧を重畳したときのトンネル電流をロックイン検出することによって測定した。

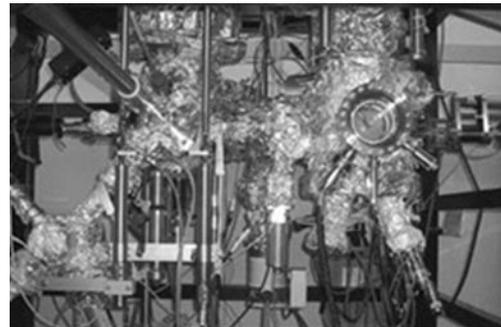


図 1 超高真空 STM/MBE 装置

2) 磁気光学効果による強磁性の実験的な検証

現有の超高真空 STM/MBE 装置を用いて 1-20ML まで膜厚の異なる Pd(001)薄膜を複数作成した。磁気光学効果は室温・大気中で行った。光源には He-Ne レーザーを用い、光弾性変調器を用いた円偏光変調法によって、極カー配置で行った。印加磁場 $\pm 15kOe$ である。

4. 研究成果

- 1) MBE 法による高品質な Pd(001)超薄膜の作製と表面ナノ構造・スピン偏極表面準位の検証

Au(001)上 Pd 薄膜 (1-4 ML) の成長と表面準位

Au(001)清浄表面上に Pd (1-4ML) を a)室温蒸着・b) 室温蒸着後 200 度熱処理した超薄膜について LEED と STM を用いて表面ナノ構造の評価を行った。

室温蒸着および熱処理後の Pd 薄膜の LEED 像は 4 回対象の $p(1 \times 1)$ 構造を示し、fcc Pd(001)薄膜が Au(001)表面に対してエピタキシャル成長していることが分かった。

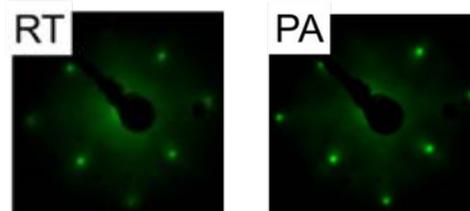


図 2 Pd 薄膜 (1ML) の LEED 像

観測されたLEED像からPd(001)表面の格子定数を求めた結果、その値はAu(001)の格子定数とほぼ等しくPd(001)薄膜は tensile ストレスを受け、格子が約4%引き伸ばされていることがわかった。
 室温蒸着および熱処理後のPd薄膜の表面モフォロジーをSTMで観察した結果、両者に大きな差が観測された。
 室温蒸着の場合、Pdは島状成長し、長手方向を<110>方向とする細長い島が数多く観測された。(図3)

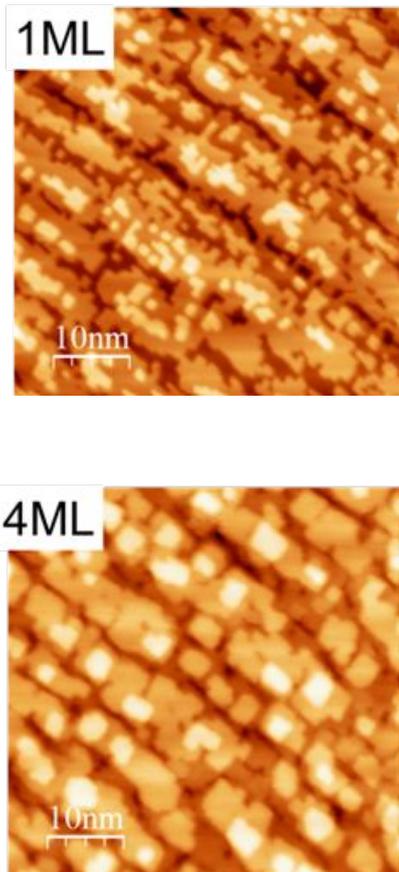


図3：Pd薄膜のSTM像：室温蒸着（蒸着量 上：Pd 1ML、下：Pd4 ML）

しかし室温蒸着後200度で熱処理した試料では、原子レベルで平坦なテラスが形成される。典型的テラス幅は50nm以上あり、ステップの方位も<110>方向である。(図4)すなわち室温蒸着後200度の熱処理によって原子レベルで平坦なテラスを有する高品位なエピタキシャルPd(001)薄膜が形成されることが分かった。

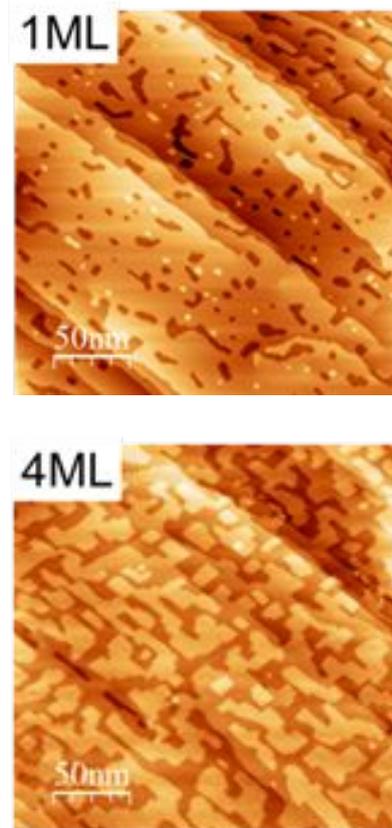


図4：Pd薄膜のSTM像：室温蒸着後200度熱処理（蒸着量 上：Pd 1ML、下：Pd4 ML）

これらの試料について室温でSTS(dI/dV スペクトル)測定を行った結果、室温蒸着の試料には特徴は観測されないが、熱処理後Pd4MLの dI/dV スペクトルでは0.25eVに明瞭なピークを観察した。(図5)これらPd(001)表面の表面準位に対応すると考えられる。

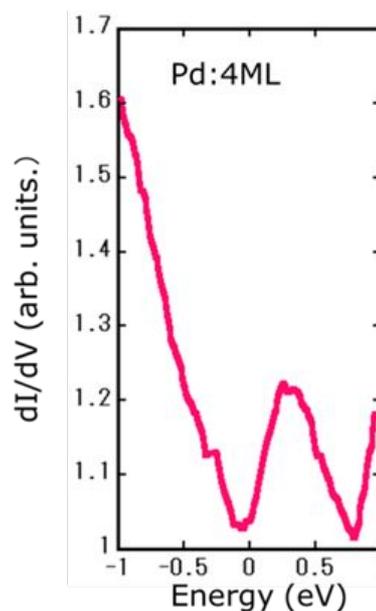


図5 Pd薄膜4MLの dI/dV スペクトル

Pd(001)薄膜 (4-20ML) の格子緩和とナノ構造
 さらに詳細な膜厚依存性を調べるため Pd(001) 薄膜 (4-20ML) の表面ナノ構造を LEED, STM によって調べた。具体的には Au(001) 清浄表面に特有な (5 × 28) 再配列構造を確認後、4 ML まで Pd を室温蒸着し、その後は基板温度 200 度で Pd を蒸着した試料について観察を行った。STM 観察は W 探針を用いて室温で行った。LEED 観察の結果、明瞭な 4 回対称の p(1 × 1) 構造が確認され、Pd 薄膜は Au(001) 上に良好にエピタキシャル成長していることがわかる。また LEED 像から求めた格子定数の Pd 膜厚依存性を詳細に調べた結果、格子拡張していることを確認した。(4 ML で 4%、12 ML で 3% 格子拡張する。) Pd 膜厚 8 ML までは原子レベルで平坦なテラスを形成されるが、膜厚によってテラス幅が異なることがわかった。また膜厚 12 ML 以上では格子緩和に伴うナノ構造も観察した。

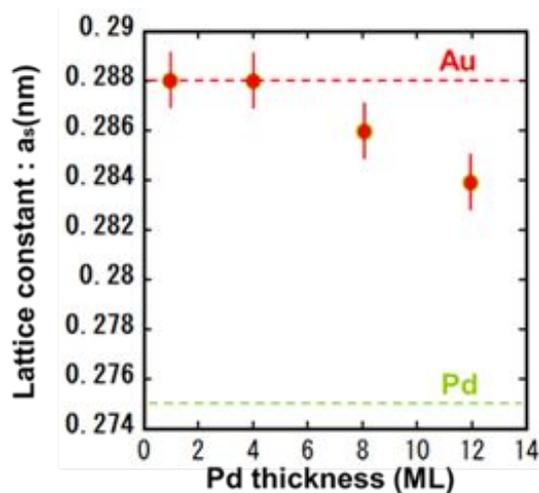


図 6 Pd(001) 表面の格子定数の膜厚依存性

2) 磁気光学効果による強磁性の実験的な検証

これまでの実験で Pd(001) 薄膜が強磁性を示す可能性があるため、1-20ML までの Pd(001) 薄膜を作成し、室温・大気中での極カ-効果の測定を行った。しかし、現在までのところ強磁性を示す実験的な証拠を得ることはできなかった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 1 件)

T. Miyamachi, T. Kawagoe, S. Imada, M. Tsunekawa, H. Fujiwara, M. Geshi, A. Sekiyama, K. Fukumoto, F. H. Chang, H. J. Lin, F. Kronast, H. Durr, C. T. Chen, and S. Suga,
 “Spin reorientation and large magnetic

anisotropy of metastable bcc Co islands on Au(001)”,
 Phys. Rev. B 90 (2014) 174410/1-7.
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.174410>

〔学会発表〕(計 5 件)

川越 毅、芳本 祐樹、嘉本 未奈
 “Au(001)上 Pd(001)超薄膜の STM/STS 観察”、日本物理学会 2013 年秋季大会、徳島大学、平成 24 年 9 月

T. Kawagoe, Y. Yoshimoto, M. Kamoto, N. Kondoh, and N. Kutsuzawa
 “STM/STS study of ultrathin Pd(001) films on Au(001)”, SP-STM5 2014 International Conference, Sawmill Creek Resort, Huron, Ohio USA, July 15-19, 2014.

川越 毅、沓澤直人、近藤賢治
 “Au(001)上 Pd(001)薄膜の表面ナノ構造と磁性”、日本物理学会 2014 年秋季大会、中部大学、平成 26 年 9 月 7 日

T. Kawagoe, N. Kutsuzawa, and K. Kondoh
 “Surface nanostructure and magnetism of ultrathin Pd(001) films on Au(001)”, The 20th International Conference on Magnetism, Barcelona, Spain, July 5-10, 2015.

川越 毅、岡 亮成
 “Au(001)上 Cr(001)超薄膜の表面磁性と構造-スピン STM による観察”
 日本物理学会第 71 回年次大会、東北学院大学、平成 28 年 3 月 19 日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川越 毅 (KAWAGOE TAKESHI)
 大阪教育大学・教育学部・教授
 研究者番号：20346224

(2) 研究分担者

該当なし

(3) 連携研究者

該当なし