

論文審査の結果の要旨

氏名 高橋文雄

本論文は 6 章からなる。第 1 章は序論であり、背景および目的が述べられている。第 2 章では本研究で使われた実験手法がまとめられており、X 線吸収、XMCD および STM に関して説明されている。第 3 章は実験装置についての記述であり、STM、分子研の UVSOR、そして試料作成について述べられている。第 4 章では、Cu(001)面に積層させた単原子層 Fe₂N で観測された軌道選択的なトンネリング過程について述べられている。第 5 章では、Cu(001)面に積層させた単原子層 Fe₂N において原子欠損が強磁性に及ぼす影響が述べられている。第 6 章では、Cu(001)面に積層させた γ' -Fe₄N について電子状態および磁性の原子層数依存性が述べられている。

本論文では、全編において Cu(001)面に積層させた γ' -Fe₄N を対象として研究が行われている。第 4 章および第 5 章では単原子層の Fe₂N を対象とした研究結果が述べられているが、これは γ' -Fe₄N を単原子層として積層させた結果、現れる原子層の最表面層が Fe₂N を形成しているからであり、原子層を二層、三層と増加した場合に現れる表面層も同じ構造となる様子が第 6 章で述べられている。

まず第 4 章では、Cu(001)面に積層させた単原子層 Fe₂N の表面電子状態についての研究を行っている。単原子層 Fe₂N は、Fe 原子が正方形のコーナーを占め、正方形の中心に N 原子が位置する構造である。この表面構造を STM によって調べたところ、その形状像が、探針の表面からの距離によって変化することが分かった。探針が表面に近いときは、Fe 原子直上に形状像が結像しており、Fe 原子対がダイマー化している様子も像として確認出来る。一方、探針と表面の距離が増すと、Fe ダイマーの midpoint に結像がシフトする事が明らかになった。この現象は、局所電子状態密度が表面からの距離に大きく依存しているためであり、表面では d 軌道が、遠方では s 軌道もしくは p 軌道が局所電子状態密度の主成分となっていることが第一原理計算などによって明らかになった。この研究は、表面状態の真空側への減衰が軌道に大きく依存することを STM 実験によって初めて実証した成果である。

次に、第 5 章は、Cu(001)面に積層させた単原子層 Fe₂N の原子欠損と磁性の関係についての研究である。試料作成時のアニール温度によって単原子層 Fe₂N の原子欠損発生率が異なり、アニール温度が低い場合には原子欠損が増え、ス

ピン磁気モーメントが大幅に低下することが本研究により判明した。スピン磁気モーメントは、原子欠損の割合に対し非線形な関係で低下しており、わずかな欠損によりモーメントが大幅に低下する事が分かった。本研究では、STSにより表面電子構造測定を行い、原子点欠陥が周囲の電子状態を広範に変調していることを実証した。これは、原子レベルの構造差が電子・磁気構造に大きな影響を与える現象として意義のある成果である。

第6章では、Cu(001)面に γ' -Fe₄N原子層を積層し、その層数により電子・磁気状態が変化する様子を調べている。 γ' -Fe₄N原子層が単原子層の場合はFe₂Nを形成することは第4章および第5章で述べられている通りであるが、さらに原子層を二層、三層と増やした場合、スピン磁気モーメントが増加することが明らかになった。第一原理計算による層別の局所電子状態密度を求め、この現象の理解に至った。本研究は、Fe原子とN原子との混成の有無による電子・磁気状態の原子サイト依存性および層数依存性を明らかにした初めての成果である。

以上のように、本研究はCu(001)基板上に積層させた γ' -Fe₄N原子層膜を対象として電子・磁気構造に関する詳細な研究を行い、鉄窒化物における原子レベルの構造と電子・磁気状態およびFe-N原子間状態混成の役割を初めて解明し、また、STMにおける探針-試料間距離というパラメータの重要性、そして巨視的な磁性を議論する際の原子レベルでの構造同定の必要性を示すことに成功した。これらの成果は、表面物理の研究の進展に大きく貢献したと考えられる。本論文の成果について議論した結果、審査員全員一致で本研究が博士(理学)の学位論文として合格であると判断した。

なお、本論文第4章は、指導教官である小森文夫氏の他、宮町俊生、家永紘一郎、河村紀一、Ernst Arthurの諸氏との共同研究の部分があるが、論文提出者が主体となって実験及び分析を行ったもので、論文の主要な成果について論文提出者が主たる寄与をなしたものであることが認められた。

したがって、博士(理学)の学位を授与できると認める。