

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 浅川 寛太

本論文は「Electronic States and Magnetic structure of Fe_3O_4 (111) Surfaces (Fe_3O_4 (111)表面の電子状態と磁気構造)」と題し、論文提出者が行った研究の成果をまとめたものである。

論文は4章から成っている。

第1章は序論であり、 Fe_3O_4 のバルクとしての性質について述べたのち、その表面の特徴と先行研究をまとめている。バルクで見られる金属-絶縁体転移が、表面では抑制されている可能性に言及し、表面ではFeイオンの電荷が変調されている可能性を指摘している。それに基づき、本研究の第一の目的である表面電子状態の解明と制御の必要性について述べている。一方、 Fe_3O_4 はフェリ磁性体であるが、ナノ粒子では飽和磁化が小さく、表面で特異な磁性を持つ可能性を述べ、本研究の第2の目的である表面磁気構造観測の重要性を指摘している。これらの研究背景を踏まえて研究の具体的な課題設定を行っている。

第2章では、本研究で用いた実験手法の原理と実験装置について述べている。表面の構造と電子状態を調べるための低速電子線回折と光電子分光、磁性を調べるための内部転換電子メスバウアー分光 (CEMS) と核共鳴散乱 (NRS) について詳述している。特に、CEMSとNRSの手法では、入射光の偏光を考慮することで表面近傍の磁化方向を決定することができることを述べている。また提出者が本研究で新たに開発したマイクロ4端子電気伝導測定装置についても述べられている。

第3章は、実験結果と考察である。

3.1節では、 Fe_3O_4 (111)表面の電子構造を光電子分光で調べた研究結果をまとめている。 Fe_3O_4 (111)は、構造的に2種類のFeサイト (AとB) を持つため、(111)表面には6種類の終端構造がありうることを指摘し、先行研究も参考にして2種類の表面を準備して実験を行っている。1つは真空加熱を行ったものであり最表面にFe(A)イオンが存在すると考えられるもの、もう一つは酸素中で加熱し最表面が酸素で覆われていると考えられる表面である。 Fe_3O_4 表面の光電子スペクトルには、金属伝導を担うFe(B)の軌道がフェルミ面近傍に観測される。2種類の表面における荷電状態変調を目的として、水素吸着前後の電子状態を調べている。前者の表面では、水素吸着に伴い仕事関数は0.4 eV減少するが、フェルミ面近傍の電子密度は変化しないことを見出している。これに対して、後者の表面への水素吸着効果を調べると、仕事関数が0.58 eV減少するとともに、フェルミ面近傍の電子密度が増大することを見出した。これらの実験結果に基づき、Fe(A)終端表面では水素は電荷移動を起こさないのに対して、O終端表面では電荷移動を起こしFe(B)サイトに電子ドープすると考察し、これらの結果を結合様式の違いに基づき議論している。3.2節では、電気伝導測定の結果を、3.3節では低速電子線回折の結果を述べている。3.4節は、表面の磁性に関する研

究結果をまとめている。CEMSとNRSがFeの同位体である ^{57}Fe にのみ感度があることに着目し、試料として ^{57}Fe を用いて表面に4 nm厚さの Fe_3O_4 を成長させることで、表面敏感な測定をできるように工夫している。この試料について、まずNRSの時間スペクトルを全反射角近傍の条件で種々の方位角について測定し、ゼーマン分裂した ^{57}Fe の核共鳴散乱に起因する量子ビートを観測している。スペクトルの周波数解析を行い、2種類のFeサイトについてそれぞれ2種類の量子ビートが存在することを見出し、それらの方位角依存性を評価している。この実験結果から、単結晶表面では面内方向に磁化の偏りがないと結論している。さらに、NRS時間スペクトルの温度依存性を測定し、500 Kでは文献で報告されているバルクの値に比較して内部磁場が大きくなることを示している。続いて同様の試料について測定したCEMSの結果を述べている。スペクトルの強度比を解析することで、表面近傍の磁化方向を決定し、Fe(A)サイトの磁化は容易磁化軸である 109.5° に近い方向を向くものに対して、Fe(B)サイトの磁化は容易磁化軸から 6° 程度表面平行方向に傾いていることを見出している。さらに、いずれのFeイオンも表面垂直方向の磁化は持たないことを示し、この表面が還流磁区に覆われているためであると議論するとともに、表面近傍ではバルク中では反平行のFe(A)のスピンのFe(B)スピンの配置を取ると結論している。これらの結果に基づき、表面磁気構造の安定性を結晶磁気異方性、交換相互作用、双極子相互作用の観点から考察している。

第4章は、本研究の結論であり、本論文の研究結果をまとめている。

以上を要約すると、本研究は、 $\text{Fe}_3\text{O}_4(111)$ 表面の電子状態と磁性に関する研究を、実験手法の開発を踏まえて進めたものであり、表面物理学の進展に大きな寄与があったと評価でき、物理工学としての貢献が大きい。よって、本論文は博士（工学）の学位申請論文として合格と認められる。