

Fe₄N エピタキシャル薄膜の窒素原子占有度の評価

伊藤啓太^{1,2,3}, 具志俊希¹, 東小菌創真¹, 竹田幸治⁴, 斎藤祐児⁴, 都甲薫¹, 柳原英人¹,
角田匡清², 小口多美夫⁵, 木村昭夫⁶, 喜多英治¹, 末益崇¹

(¹筑波大, ²東北大, ³日本学術振興会 PD, ⁴日本原子力研究開発機構, ⁵大阪大, ⁶広島大)

Characterization of occupancy of nitrogen atoms in epitaxially grown Fe₄N films

K. Ito^{1,2,3}, T. Gushi¹, S. Higashikozono¹, Y. Takeda⁴, Y. Saitoh⁴, K. Toko¹, H. Yanagihara¹,
M. Tsunoda², T. Oguchi⁵, A. Kimura⁶, E. Kita¹, and T. Suemasu¹

(¹Univ. of Tsukuba, ²Tohoku Univ., ³JSPS, ⁴JAEA, ⁵Osaka Univ., ⁶Hiroshima Univ.)

はじめに

逆ペロブスカイト型遷移金属強磁性窒化物(Fig. 1)は近年スピントロニクス応用材料として注目を浴びている。特に Fe₄N は、スピン依存電気伝導度計算から大きな負のスピン分極率($P_{\sigma} = -1.0$)が予想されている¹⁾。我々はこれまでに分子線エピタキシー(MBE)法により、SrTiO₃(STO)(001)基板上へのエピタキシャル膜の作製に成功している²⁾。一方、N 原子の占有度はスピン分極率に影響すると考えられ、それを調べる事は応用上の観点からも重要である。

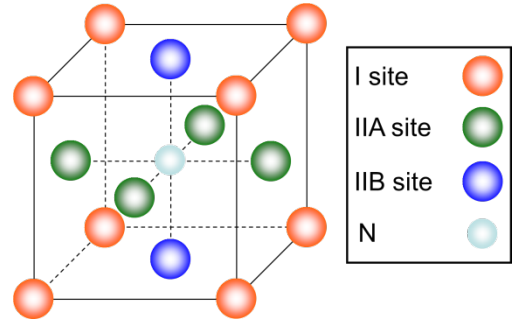


Fig. 1 Lattice of anti-perovskite nitride.

これまで X 線回折(XRD)法を用いた評価結果が報告されているが³⁾、平均的な情報を取り扱うため、詳細な情報は得られていなかった。そこで本研究では、MBE 法により Fe₄N 薄膜をエピタキシャル成長し、内部転換電子メスバウアー(CEMS)測定、X 線吸収分光(XAS)、X 線磁気円二色性(XMCD)測定を行い、XRD 法ではわからない局所的な情報が得られる、新たな Fe₄N 中の N 原子の占有度評価手法の提案を試みた。

実験方法

固体 Fe と高周波プラズマ N₂ の同時供給による MBE 法により、STO(001)基板上に Fe₄N(20 nm)をエピタキシャル成長し、300 K にて CEMS 測定を行った。Fe 原料は ⁵⁷Fe の割合を 20%程度にエンリッチした特殊原料を用いた。XAS および XMCD 測定には Au(3 nm)/Fe₄N(10 nm)を用いた。300 K にて試料の面直方向に ±3 T の磁場を印加し、飽和状態で測定した。全電子 FLAPW 法に基づく第一原理電子状態計算の結果とフェルミの黄金則を用いて XAS および XMCD スペクトルを計算し、実験結果と比較した。

実験結果

理想的には各 Fe site の占有比率は Fe I:Fe II = 1:3 だが、CEMS スペクトルの解析結果は Fe I:Fe II = 0.53:3 となった。理想と異なり N 原子が隣り合う 2 つの Fe I site 間に侵入した場合、Fe I site が Fe II site と等価になる。よって、N 原子の過剰侵入または不規則占有に起因して、Fe I site の見かけの占有比率が小さくなったと考えられる⁴⁾。XAS および XMCD スペクトルの Fe L_{2,3} 吸収端には肩構造が現れ、理論計算からも再現された。この肩構造は、Fe II site の Fe 3d 軌道と N 2p 軌道との混成に起因した局所的な電子状態を反映したものであり⁵⁾、N 原子の侵入量や規則度との関連性が高いといえる。

謝辞

本研究は JSPS 科研費(No. 26249037)、特別研究員奨励費(No. 14J01804)の支援を受けた。CEMS 測定は、筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門にて行った。XAS および XMCD 測定は、ナノネット支援課題(Nos. 2010A3877 and 2010B3876)のもと、SPring-8 BL23SU にて行った。

参考文献

1) S. Kokado *et al.*, Phys. Rev. B **73**, 172410 (2006). 2) K. Ito *et al.*, J. Cryst. Growth **322**, 63 (2011). 3) K. Kabara *et al.*, Appl. Phys. Express, **7**, 063003 (2014). 4) K. Ito *et al.*, J. Appl. Phys. **117**, 17B717 (2015). 5) K. Ito *et al.*, J. Appl. Phys. **117**, 183906 (2015).