

多自由度放射光X線二色性分光による強相関系界面新規

電子相の研究

Novel electronic phases at interfaces
of strongly correlated materials studied by soft
x-ray dichroism with multi-degrees of freedom

藤森 淳 (FUJIMORI ATSUSHI)

東京大学・大学院理学系研究科・教授



研究の概要

酸化物界面・極薄膜に出現する新しい電子相におけるスピン・軌道・電荷整列・電子状態に大きな関心が集まっている。本研究では、これらの研究に最も適した手法であるX線磁気円二色性、線二色性等を用いて電子状態を解明する。このため、磁場方向と偏光方向を独立に制御できる多自由度X線二色性分光測定系を高エネ研フoton・ファクトリーと協力して開発する。

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：遷移金属酸化物、界面、軟X線磁気円二色性、光電子分光、線二色性

1. 研究開始当初の背景

酸化物界面・極薄膜に出現する新しい電子相におけるスピン・軌道・電荷整列の可能性やスピン-軌道相互作用の重要性が近年盛んに議論されている。また、異種の基底状態間の界面の新規電子状態に大きな関心が集まっている。

2. 研究の目的

界面電子状態の測定に最も適した手法であるX線磁気円二色性(XMCD)、X線磁気線二色性(XMLD)等を用いて、上記の新規電子状態を解明する。このため、磁場方向と偏光方向を独立に制御できる多自由度XMCD、XMLD測定系を高エネルギー研フotonファクトリー(KEK-PF)と協力して開発する。

3. 研究の方法

ベクトル型マグネットを用いて磁場方向を、偏光可変アンジュレータを用いて偏光方向をそれぞれ独立に制御できる多自由度X線二色性測定系を開発する。高速偏光スイッチングと組み合わせた高感度測定を行う。スピン-軌道相互作用の重要さが指摘されている系については、XMCD総和則を用いて軌道磁気モーメントを定量的に評価する。元素選択性を利用した界面双方での磁性の評価を行う。基板圧力下の極薄膜とその界面におけるスピン・軌道状態も、上記の測定系を用いて解明する。X線二色性ととも、角度分解光電子分光の測定も行なう。

4. これまでの成果

磁場方向と偏光方向を独立に制御できる多自由度XMCD、XMLD測定装置を開発・作製し、高エネ研フotonファクトリーに設置し、本格的な実験を開始した。ベクトル型超伝導磁石を用いることによって磁場方向を自由に制御でき、薄膜試料面に対して垂直から平行まで任意の角度に磁場を印加してXMCD実験を行えるようになった[1]。また、既存のXMCD測定装置、光電子分光測定装置も使い、酸化物薄膜・ヘテロ構造の研究を進めた。

○ 多自由度X線二色性測定装置を用いた研究：

XMCDの角度依存性の測定から、従来のXMCD測定では得られない全く新しい情報が得られることを実証した。SrTiO₃基板圧力下でのLa_{1-x}Sr_xMnO₃薄膜におけるスピン分布の異方性を、スピンと電荷分布の相関を表す量である「スピン双極子演算子」の期待値として実験的に求められることを示した。

○ SrVO₃量子井戸構造の作製と量子化準位の観測：

様々な膜厚のSrVO₃量子井戸構造についてin-situ角度分解光電子分光(ARPES)を行い、酸化物ヘテロ構造において初めて量子化準位の観測に成功した。結果は、従来の量子井戸の概念で理解できる現象の他に、電子相関と異方的d電子状態を反映した「軌道選択的量子化」、「サブバンドに依存した有効質量増大」を観測した。膜厚をさらに薄くして絶縁体に転移する近傍でも測定を行った[6]。

○ エピタキシャル薄膜を用いた SrVO₃ の広エネルギー範囲での自己エネルギーの決定：典型的な強相関金属である SrVO₃ の ARPES を、高品質エピタキシャル薄膜試料を用いて精密に測定し、電子-格子相互作用、電子間相互作用による伝導電子の自己エネルギー（伝導電子の感じる動的なポテンシャル）を広いエネルギー範囲で求めることに成功した。自己エネルギーの形状は、高温超伝導体における超伝導機構の解明と密接に関連しており議論となってきたが、本研究で正しい解析法が提示された [5]。

○ LaNiO₃ (LNO) 超薄膜における電子状態の膜厚・基板圧力依存性：

LNO/LaAlO₃ の超構造において高温超伝導体と類似した電子状態が出現することが理論的に予想され、精力的に研究されている。我々は LNO 超薄膜について、その電子状態の膜厚・基板依存性を測定した。その結果、理論的予測とは異なり、膜厚約 3-5 ML で金属から絶縁体に転移してしまうことが明らかになった。さらに、X 線吸収の線二色性測定を行った結果、この絶縁体状態においてはバルクの RNiO₃ (R=Pr, Nd, Sm, …) で見られるような電荷不均化状態ではないことがわかり、LNO の極薄膜領域においては新規な絶縁状態が発現していると結論した [2]。

○ W をドープした VO₂ 薄膜の新しい絶縁層：VO₂ で見られる有名な温度誘起金属-絶縁体転移は、V イオンの二量体化によるパイエルズ転移と強相関効果が協奏的に働いた結果であると考えられている。W をドープすることで生じる新しい絶縁体相の電子状態を光電子分光と X 線吸収線二色性を用いて調べた。その結果、W ドープ量が低い領域では二量体化によるパイエルズ誘起金属-絶縁体転移が、高い領域においては構造歪みによるモット転移が支配的であることを明らかにした。

○ ホイスラー合金/MgO 界面における元素選択的磁性：

ハーフメタルであるホイスラー合金 Co₂MnGe は MgO をトンネル障壁として磁気トンネル結合を形成するが、その磁気抵抗比は Co と Mn の組成比に大きく左右される。我々は組成比を制御した Co₂MnGe の MgO 界面における Co と Mn の磁性を XMCD を用いて測定し、過剰 Co がスピン磁気モーメントを増大させる一方でフェルミ準位でのスピン偏極度を減少させるというシナリオを支持する結果を得た [3]。

○ Ca_{1-x}Ce_xMnO₃ 薄膜の磁気磁気異方性と磁気相図の決定：

Mn 酸化物薄膜は基板からのエピタキシャル応力で様々な磁性と軌道秩序を示すが、強い磁性を持つ基板上では磁気測定が不可能になる。我々は、強い常磁性を示す NdAlO₃ 基板上に成長した Ca_{1-x}Ce_xMnO₃ の磁気異方性を Mn 内殻 XMCD の磁場方向依存性の測定し、Ca_{1-x}Ce_xMnO₃ 薄膜の相図を調べた。

5. 今後の計画

多自由度 X 線二色性測定装置と高速偏光スイッチングを組み合わせた、従来より遥かに高い S/N 比での XMCD、XML 測定を実現し、以下の問題に挑戦する：

- ・スピン分極により誘起された軌道変形の観測し、スピン-軌道相互作用の働きを調べる。
- ・量子井戸構造における量子化状態の面方位依存性、軌道選択的量子化を明らかにする。
- ・酸化物ヘテロ構造における交換バイアス効果の評価。
- ・強磁性薄膜の磁気異方性。
- ・界面強磁性の検出。
- ・超伝導-強磁性界面。
- ・強相関層状化合物の磁気異方性。

6. これまでの発表論文等

[1] 藤平潤一、内田公、藤平誠一、古瀬充穂、岡野眞、淵野修一郎、門野利治、藤森淳、小出常晴：超高真空 3 軸ボア付伝導冷却型 YBCO ベクトルマグネット装置の開発、低温工学 48 4、5 号 (2013) 出版予定。

[2] E. Sakai, M. Tamamitsu, K. Yoshimatsu, S. Okamoto, K. Horiba, M. Oshima, and H. Kumigashira, Gradual localization of Ni 3d states in LaNiO₃ ultrathin films induced by dimensional crossover, Phys. Rev. B 87, 075132--1-8 (2013).

[3] V. R. Singh, V. K. Verma, K. Ishigami, G. Shibata, T. Kadono, A. Fujimori, D. Asakura, T. Koide, Y. Miura, M. Shirai, G.-f. Li, T. Taira, and M. Yamamoto, Effects of off-stoichiometry on the spin polarization at the Co₂Mn_pGe_{0.38}/MgO interfaces: X-ray magnetic circular dichroism study, Phys. Rev. B 86, 144412--1-6 (2012),

[4] 古瀬充穂、岡野眞、淵野修一郎、藤森淳、門野利治、藤平潤一、藤平誠一、内野公、藤平秀幸、磁場発生装置および磁気分光測定装置、特願 2012-41922 平成 24 年 2 月 28 日。

[5] S. Aizaki, T. Yoshida, K. Yoshimatsu, M. Takizawa, M. Minohara, S. Ideta, A. Fujimori, K. Gupta, P. Mahadevan, K. Horiba, H. Kumigashira, and M. Oshima, Self-energy on the low- to high-energy electronic structure of correlated metal SrVO₃, Phys. Rev. Lett. 109, 056401--1-5 (2012).

[6] K. Yoshimatsu, K. Horiba, H. Kumigashira, T. Yoshida, A. Fujimori, and M. Oshima, Metallic quantum well states in artificial structures of strongly correlated oxide, Science 333, 319-322 (2011).

ホームページ等

<http://wyvern.phys.s.u-tokyo.ac.jp/f/Research/xmcd/xmcd.htm>