物構研シンポジウム: 放射光・中性子・ミュオンを用いた表面・界面科学の最前線

共鳴軟X線散乱による 薄膜電子状態の研究

2009.11.17 つくば国際会議場



共同研究者

共鳴軟x線散乱および硬x線散乱測定

D. J. Huang C.-H. Hsu C. T. Chen (NSRRC, Taiwan)

K. S. Chao S. W. Huang (Nati

(National Chaio Tung University)

試料作製:La_{1/3}Sr_{2/3}FeO₃(111)/SrTiO₃(111)

增野敦信 (京大化研)

寺嶋孝仁 (京大低温物質科学研究センター)

高野幹夫 (iCeMS, 京大)

議論

藤森淳 (東大理)





0

Outline of this talk

- ◆ 共鳴軟X線散乱
- ◆ 共鳴軟X線磁気散乱によるLa_{1/3}Sr_{2/3}FeO₃薄膜の 研究



物性を特徴づける秩序構造





散乱手法を用いた秩序構造の研究

Lattice structure: Symmetry and position of atoms X-ray Neutron



Charge ordering: spatial localization of the charge carriers on certain sites *X-ray Electron* 2+ • • • • 3+ • • • •

Spin ordering: long range ordering of local magnetic moments

X-ray Neutron

Orbital ordering: periodic arrangement of specific electron orbitals *X-ray*



Spectroscopy Structures and orderings Electronic structures

X-ray scattering is a powerful tool in studying super-lattice structures and orderings, and their relation with the electronic structures.









共鳴軟X線磁気散乱

非共鳴条件での磁気散乱と電荷散乱の断面積の比較

$$\frac{\sigma_{mag}}{\sigma_{charg\,e}} \sim \left(\frac{\hbar\omega}{m\,c^2}\right)^2 \sim 10^{-6} \quad \text{for } \hbar\omega \sim 600 \text{ eV}$$

M. Blume, J. Appl. Phys. 57, 3615 (1985).





共鳴軟X線散乱の注意点

- 長波長 軟X線領域(3d TM: 500 eV ~ 1 K eV) ⇔ 12.5 ~ 25 Å Bragg condition (2d sinθ = 1) 対象とする秩序構造は限られる.(周期長 ≥ 10 Å)
- 2. 短い侵入長:~1000-2000 Å
 → 硬X線散乱・中性子散乱に比べ、表面敏感

清浄な試料表面を準備

- (1) 真空中でのへき開
- (2) 散乱面の切り出し、様々な表面処理
- ⇔表面研磨後に酸素雰囲気(or大気中)でアニール、エッチング (3) 非常に薄いキャップ層

薄膜試料の共鳴軟X線散乱に向いた特徴

- 1. 積層構造の作成: ヘテロ構造、界面
 ⇔長周期構造の作成
- 2. 基盤による調整⇔ 歪みの調整、成長面の調整

La_{1/3}Sr_{2/3}FeO₃(111) ・磁気秩序構造 q = (1/6,1/6,1/6), 周期長~13.6 Å ・SrTiO₃(111)上に成長 ⇔ 散乱面 = (111)面



Outline of this talk

- ◆共鳴軟X線散乱
- ◆ 共鳴軟X線磁気散乱によるLa_{1/3}Sr_{2/3}FeO₃薄膜の 研究









Experimental

BL-5 EPU beamline at NSRRC, Taiwan 4-m 楕円偏光undulatorビームライン





NSRRC, Taiwan 1.5 GeV ring



Hsinchu

超高真空用二軸回折計

- Base pressure : 5×10^{-9} torr
- Lowest Temperature : 8 K by flowing *liq*. He
- 20 limit : 173°
- • $\Delta q \sim 0.0005 \text{ Å}^{-1}$

検出器

- Photodiode
- Channeltron













磁気秩序構造の相関長: q111, q1-10 scan



磁気秩序相関長と積分強度の温度依存性





測定結果に基づく議論と考察

195 K: (111) 面内に相関の強い擬2次元電荷・磁気秩序構造が生じる 188 K: 相関長の短い3次元等方的電荷・磁気秩序構造が生じ、主体に

1. Fe³⁺-O-Fe⁵⁺ J_F が Fe³⁺-O-Fe³⁺J_{AF}より非常に強い 2. O 2pバンドからの電荷移動でFe⁵⁺ はFe³⁺L² (d⁵L²).

Fe⁵⁺の周りにO 2pホールが隣接して Fe³⁺-O-Fe⁵⁺-O-Fe³⁺の三重層が強磁性的に結合し 長距離擬2次元磁気秩序構造を作る

電荷不均化転移でのO2pホール

均一に分布していたO 2pホール層

2層の高ホール濃度層と1層の低ホール濃度層が 交互に並ぶ

長距離擬2次元磁気秩序構造は[111]方向へ反強磁性的に並び成長する

La_{1/3}Sr_{2/3}FeO₃のrhombohedralな歪みが[111]方向で安定する ⇔長距離擬2次元的秩序は格子によってかなり安定する

188 K以下の3次元的秩序の相関長は短い
 ⇔ 歪んでいるものの、FeO₆八面体のFe-Oボンド長は全て等しい
 P. B. Battle *et al.*, J. Solid State Chem. 84, 271 (1990).



<u> 共鳴軟X線散乱によるLa_{1/3}Sr_{2/3}Fe0₃薄膜の研究まとめ</u>

電荷不均化転移を示す $La_{1/3}Sr_{2/3}FeO_3$ 薄膜の磁気秩序を Fe $L_{2,3}$ 端での共鳴軟x線磁気散乱で測定した。

電荷不均化転移は、単純な電荷均一常磁性相から反強磁性電荷不均化相への転移でないことが明らかになった。

強磁性的なFe³⁺-O-Fe⁵⁺O-Fe³⁺三重層が酸素ホールの分布変化 によって安定化し、擬2次元的長距離秩序を示す。

温度を下げると、3次元等方的な磁気秩序構造が生じ、低温 では支配的になる。



PF BL-16A 軟x線散乱測定装置

BL-16A: 可変偏光X線分光ステーション 偏光モード: 左右円偏光、水平・垂直直線偏光 エネルギー分解能: ~ 0.1 eV (500 eV - 1500 eV) 測定可能波長領域: 250-1800eV ビームサイズ: 縦50 μ m、横100-200 μ m

軟X線用 2軸回折計

2Θ可動範囲: 0-170° 真空度: < 1x10⁻⁵ Pa 検出器: PD, MCP

Heフロークライオ: 試料位置12-350K

PF 久保田正人





軟x線散乱測定装置改修概要

精度が高く、かつ、快適な 共鳴軟X線散乱実験を目指して 改修項目

- 4象限スリット設置 迷光、background cut
- 後出機構のz駆動 擬似的χ駆動
- 3 架台 光軸微調整
- ④ xyz stageモーター駆動 試料位置合わせ
- ⑤ パルスカウント検出器S/N向上

(4)5 放射光 水平散乱面 散乱光 3

研究計画

Mn L₃端、O K端での共鳴軟X線散乱 → (LaMnO₃)_m/(SrMnO₃)_n薄膜の界面電子構造研究

Thank you for attention !