

共鳴軟 X 線散乱による薄膜電子状態の研究

岡本 淳

物質構造科学研究所 構造物性研究センター Photon Factory

共鳴軟 X 線散乱は、入射光のエネルギーを選択することで特定の電子状態が構成する電荷・スピン・軌道の秩序構造を解明することができる実験手法である。特に、共鳴軟 X 線散乱は強相関電子系化合物の物性に関わる d 電子状態、 f 電子状態を遷移先に選択できるので、物性とくに微細な磁気構造を観測する有力な手法として近年着目されている[1]。

Fe ペロブスカイト $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ は Fe サイトが平均価数 $\text{Fe}^{11/3+}$ から Fe^{3+} と Fe^{5+} へ 2:1 に分かれて電荷が[111]方向へ 3 倍周期で揃うと同時に、スピン密度波が同じ方向へ 6 倍周期で揃う電荷不均化転移を示す[2,3]。この電荷不均化構造は、酸素を介して隣あう Fe イオンの交換相互作用で安定化されることが知られているが[4,5]、Fe $3d$ 電子の磁気構造が電荷不均化転移でどのように発達し、電荷秩序構造と関係しているのかは明らかにはなっていない。

Fe L_3 吸収端での共鳴軟 X 線磁気散乱を用いて、 $\text{SrTiO}_3(111)$ 基板に成長した $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3(111)$ 薄膜の電荷不均化転移における Fe $3d$ 電子の磁気秩序構造: $q = (1/6, 1/6, 1/6)$ の温度変化を測定した。磁気秩序構造のスペクトルは q_{111} scan では温度が下がるにつれてピークが徐々に細くなり、 q_{1-10} scan では、188 K 以下で、非常に細い成分(A) とかなり広い成分(B)を含むことが明らかになった。磁気秩序構造の $1/\text{HWHM}$ で定義した相関長 ξ の変化を比較したところ、ドメイン A が(111)面内に異方性の大きな擬 2 次元的な磁気秩序を取ること、ドメイン B が 3 次元等方的な磁気秩序を取ることが明らかになった。B の散乱強度は低温で A の 10 倍になっており、低温ではドメイン B が支配的であることを示している。これは、 $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3(111)$ の電荷不均化転移では、単に常磁性電荷均一相から反強磁性電荷不均化相への転移するのではなく、ネール点での 3 次元等方的磁気秩序に先んじて、 $\text{Fe}^{3+}-\text{O}-\text{Fe}^{5+}-\text{O}-\text{Fe}^{3+}$ と交換相互作用によって強磁性的に電荷不均化した 3 層の(111)面からなる強磁性的擬 2 次元相が成長していることを示唆している。

[1]: for example, S. W. Lovesey and S. P. Collins, X Ray Scattering and Absorption by Magnetic Materials (Clarendon Press, Oxford, 1996).

[2]: M. Takano *et al.*, J. Solid State Chem. 39, 75 (1981).

[3]: P. D. Battle *et al.*, J. Solid State Chem. 84, 271 (1990).

[4]: R. J. McQueeney *et al.*, Phys. Rev. Lett. 98, 126402 (2007).

[5]: J. Matsuno *et al.*, Phys. Rev. B 60, 4605 (1999).