

令和 5 年 6 月 14 日現在

機関番号：15301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H01853

研究課題名(和文)バルク敏感・高分解能スピン分解光電子分光によるハーフメタルにおける多体効果の研究

研究課題名(英文) Many-body effects in half-metals studied by bulk sensitive high-resolution spin-resolved photoemission spectroscopy

研究代表者

横谷 尚睦 (Yokoya, Takayoshi)

岡山大学・異分野基礎科学研究所・教授

研究者番号：90311646

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 8,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、ハーフメタルの特異な多体効果の解明を目指して、ハーフメタルおよびハーフメタル候補物質のスピン分解電子状態を実験的に明らかにすることを研究目的として、高分解能スピン分解光電子分光研究をおこなった。高品質CoS₂単結晶のスピン分解角度分解光電子分光実験から電子相関効果がスピン状態ごとに大きく異なる事を見出し、理論との対応からハーフメタルの特異な電子構造がその主要原因であることを結論した。CrO₂試料について真空紫外線を用いた高分解能角度分解光電子分光実験から、フェルミ面の観測に成功するとともに、バンド分散に多体相互作用に起因したキンク構造が現れることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ハーフメタルは完全偏極電子源としての応用が期待され、電子の電荷だけではなくスピンも利用した物性制御技術であるスピントロニクス的重要物質の一つと考えられています。しかしながら、その物性を左右する電子状態についてはまだよくわかっていない部分がありました。本研究から、電子の持つスピン状態に依存して電子間の相互作用の強さが大きく異なることが世界で初めて実験的に示されました。この結果は、物性物理学におけるハーフメタルの理解に貢献するとともに、スピントロニクスにおけるデバイス開発においてスピンに依存した電子相関効果を考慮することの重要性を示しています。

研究成果の概要(英文)：In this research project, with the aim of clarifying the peculiar many-body effects of half metals using high-resolution(HR) spin-resolved(SR) photoemission spectroscopic(PES). HR and SR angle-resolved photoemission spectroscopy(ARPES) experiments on high-quality CoS₂ single crystals revealed that the electron correlation effect varies greatly depending on the spin state. From the correspondence with the theory, we concluded that the peculiar electronic structure of the half-metal is the main cause. From HR-ARPES experiments using vacuum ultraviolet light on CrO₂ samples, we succeeded in observing the Fermi surface and a kink structure due to many-body interactions in the band dispersion.

研究分野：物性物理学

キーワード：ハーフメタル 電子状態 多体相互作用 スピン分解光電子分光

1. 研究開始当初の背景

金属強磁性体の輸送特性には、伝導電子とスピン揺らぎの多体相互作用が本質的に重要な役割を演じる。ハーフメタル強磁性体は、一方のスピン状態を持つ電子バンドのみがフェルミ準位 (E_F) を横切る金属である (図 1) [1]。このような特異な電子状態に起因して、強磁性体において重要な役割を果たす電子-マグノン多体相互作用は、電子状態に特異な影響を与えないのだろうか？ 通常、ハーフメタルの特徴的な電子状態では、スピン状態を反転させるスピンフリップ散乱が禁止されるため、散乱チャンネルが減少すると考える。しかし理論的には、ハーフメタルにおける電子-マグノン相互作用が Non-QuasiParticle (NQP) 状態というインコヒーレントな状態を E_F 近傍に形成することが予測されている (図 2)。ランダウのフェルミ流体論では、金属における多体相互作用はバンド形状をリノーマライズするものの、バンドの存在は変わらない。これに対して、NQP 状態はフェルミ流体論では記述できないハーフメタル特有の多体電子状態である。ハーフメタルにおける NQP 状態は、温度上昇による偏極率の急激な減少の起源の一つとして提案されてきたが、その存在をスピン分解電子状態として検証する研究は行われてこなかった。NQP 状態のエネルギースケール (数十 meV 程度) が、スピン分解電子構造を直接的に観測できるスピン分解光電子分光 (Spin-Resolved Photoemission Spectroscopy: SRPES) のエネルギー分解能 (~ 0.2 eV) よりも小さかったからである。

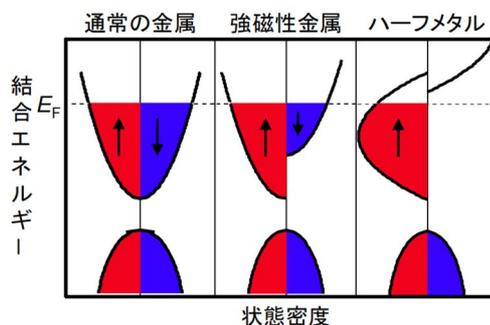


図 1 通常金属、強磁性金属、ハーフメタルの電子状態

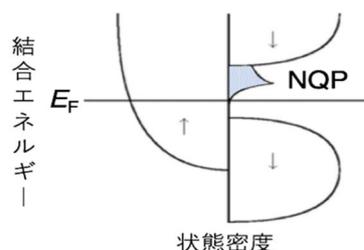


図 2 ハーフメタルに対して予想される電子状態

しかしながら、ここ十年程度の間に、革新的なスピン検出器の出現と高強度レーザーの組み合わせにより SRPES 装置のエネルギー分解能が meV のスケールに達した。我々のグループは、高分解能 SRPES 装置 (HR-SRPES) を共同利用することにより、極最近ハーフメタル CrO_2 において NQP 状態の存在を直接的に示すことに成功した [2]。スピン分解電子状態として NQP 状態を検証した初めての例である。SRPES 実験技術の進展により、これまで難しかったハーフメタルにおける特異な多体効果の理解を格段に深めることのできる時を迎えている。

2. 研究の目的

本課題では、我々が世界に先駆けて成功したハーフメタルにおける多体効果の観測の研究をさらに推し進め、バルク敏感 HR-SRPES を主たる研究手法とした電子状態の直接観測により、ハーフメタルにおける多体効果が電子状態に与える影響を実験的に明らかにすることを目的として研究を行なった。具体的には、(1) CrO_2 における NQP 状態の運動量依存性の観測、(2) CoS_2 におけるハーフメタル性の検証およびスピン依存電子相関効果の観測を行うとともに、(3) 他のハーフメタル (候補物質) にも測定対象を拡大し、ハーフメタル性の検証と NQP 状態の探索/直接観測を行う。

3. 研究の方法

- (1) CrO_2 における NQP 状態の運動量依存性の観測を行うために、広島大学放射光科学研究センター (HiSOR)、BL1 の角度分解光電子分光 (ARPES) 装置を用いて、放射光 HR-ARPES 実験を行った。 CrO_2 単結晶膜は岡山大学の当研究室で閉鎖系化学気相成長法により合成した。試料を大気に暴露することなく HiSOR の実験装置に導入するために、試料移送用の小型真空槽を利用した。試料の磁化は真空中でネオジム磁石により行なった。温度上昇により E_F より下の占有側に染み出してくることが期待される NQP 状態とマイノリティスピン伝導帯バンドとの関連を調べるため、 E_F 近傍の ARPES スペクトルの温度依存性および運動量依存性を詳細に測定した。
- (2) CoS_2 におけるハーフメタル性の検証とスピン依存電子相関効果を調べるために、 CoS_2 高品質単結晶に対して東京大学物性研究所 (ISSP) のバルク敏感 HR-SRPES 実験により得られた E_F 近傍のスピン分解バンド構造の解析を進めた。3次元波数空間におけるバンド構造およびフェルミ面形状について調べるために高エネルギー研究所のフォトンファクトリー-BL28a の ARPES 装置で測定したデータの解析を進めた。比較のためのバンド計算および動的平均場近似の計算は、協力研究者により提供を受けた。
- (3) 他のハーフメタル (候補物質) にも測定対象を拡大し、ハーフメタル性の検証と NQP 状態の探索/直接観測を行うために、PLD で作製した $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 膜 ($x \sim 0.3$ 、キュリー温度 $T_C \sim 340$ K)

を ISSP のバルク敏感 HR-SRPES 装置で測定した。試料表面の汚れや酸素欠損、デッドレーヤーを取り除くために測定前に酸素雰囲気下でアニーリングを行なった。試料の磁化は真空中でネオジム磁石により行なった。

4. 研究成果

(1) 化学気相成長法により作製した CrO_2 膜を大気に曝すことなく光電子分光装置に導入し、真空紫外線 ARPES によりフェルミ面とバンド構造を直接観測することに成功した。得られたバンド構造およびフェルミ面形状は軟 X 線 ARPES の結果と一致しており、軟 X 線よりもバルク感性には劣るもののより高いエネルギー分解能での測定の可能な真空紫外 ARPES でも CrO_2 のバルク電子状態を研究できることを示した。温度依存 ARPES スペクトルの解析から、測定した波数点の全てにおいて温度上昇に伴い E_F より上の非占有側のスペクトル強度が増加することを見出した。このことは、HR-SRPES により観測された NQP 状態の振る舞いと対応がよい。この結果は、非占有側のスペクトル強度の増加が NQP 状態を観測しているとする、NQP 状態は運動量空間全体にわたって形成されることを意味する。当初の予測を超えた結果として、真空紫外 ARPES で観測したバンド分散には、多体相互作用を反映するキंक構造が観測されることを見出した。キंक構造のエネルギースケールは 100meV 程度であり、フォノン状態密度の構造のエネルギースケールとは対応しないこともわかった。今後の研究により、 CrO_2 の多体相互作用の詳細が明らかになると期待される。

(2) 高品質 CoS_2 単結晶を用いた高分解能スピン分解・角度分解光電子分光 (HR-SRARPES) により、 CoS_2 ではマイノリティスピンバンドがわずかに E_F 準位を横切っており、正真正銘のハーフメタルではないことが我々の研究から示された。ハーフメタルに近い電子状態をもちながら光電子分光でマジョリティスピンバンドとマイノリティスピンバンドの両方を直接観測できることを利用して、HR-SRARPES および放射光 ARPES により、スピンに依存した電子相関効果を実験的に調べた (図 3)。図 3(a) で観測されているマジョリティスピンバンド (γ , δ , β , α) のバンド幅は、(b) のバンド計算結果とよく合うのに対して、図 3(c) のマイノリティスピンバンド (γ , δ) の幅は、実験結果が計算結果に比べて顕著に狭くなっていることがわかった。その起源を調べるために動的平均場理論の計算結果と比較し、 E_F 上に一方のスピン電子状態が支配的に存在することが、スピン状態に依存した電子相関効果をもたらす主要な原因であると結論した。この結果は、スピントロニクス材料として重要なハーフメタルの物性を考える上で、スピン状態に依存した電子相関効果を考慮することの必要性を示す。

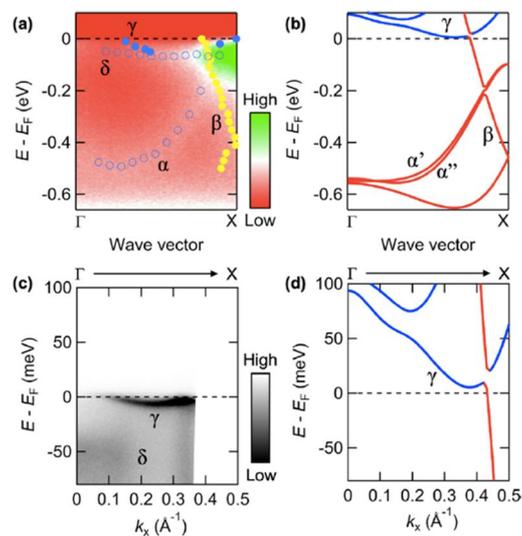


図 3 放射光 ARPES および SRARPES により得られたバンド分散 (左列) と計算 (右列) との比較

(3) $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 膜 ($x \sim 0.3$ 、キュリー温度 $T_C \sim 340\text{K}$) のバルク敏感 HR-SRPES を行い、 E_F 近傍においてスピンアップとスピンドアウンスペクトル、およびスピン偏極率の温度依存性を測定することに成功した。低温において E_F 近傍のスピン偏極率は 100% に近く、測定試料表面が高品質であることを保証すると同時に、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 膜の低温におけるハーフメタル性を確認した。温度上昇とともにスピンアップおよびスピンドアウンスペクトル強度は共に減少するものの、 E_F 付近の電子状態全体のスピン偏極率には $0.5T_C$ 付近までは顕著な減少は見られなかった。この結果は、表面敏感 SRPES から得られたスピン偏極率の温度依存性とは異なるが、SQUID の結果とは似ており、実験結果がバルクのスピン電子状態をより反映していることを示す。一方 E_F 極近傍のスピン偏極率の減少は測定誤差の範囲内で観測されなかった。この結果は、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 膜では NQP 状態が顕著には生成されない可能性を示唆する。

参考文献

- [1] M. I. Katsnelson *et al.*, Rev. Mod. Phys. **80**, 315-378 (2008).
- [2] H. Fujiwara *et al.*, Phys. Rev. Lett. **121**, 257201 (2018).
- [3] H. Fujiwara *et al.*, Phys. Rev. B **106**, 085114 (2022).

1. 発表者名 T. Setoguchi, N. Kataoka, S. Kumar, S. Ideta, K. Shimada, T. Wakita, Y. Muraoka, T. Yokoya
2. 発表標題 Electronic structure of Half-metallic ferromagnet CrO ₂ studied by VUV-ARPES
3. 学会等名 The 26th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤原弘和, 寺嶋健成, 脇田高德, 矢野佑幸, 細田渉, 片岡範行, 照屋淳志, 垣花将司, 辺土正人, 仲間隆男, 大貫惇睦, 矢治光一郎, 原沢あゆみ, 黒田健太, 辛埴, 堀場弘司, 組頭広志, 大槻純也, 竹森那由多, H.O. Jeschke, 村岡祐治, 横谷尚睦
2. 発表標題 ハーフメタル候補物質CoS ₂ のスピン分解電子構造
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会 (2021年)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hirokazu Fujiwara, Kensei Terashima, Masanori Sunagawa, Yuko Yano, Takanobu Nagayama, Tetsushi Fukura, Fumiya Yoshii, Yuka Matsuura, Makoto Ogata, Takanori Wakita, Koichiro Yaji, Ayumi Harasawa, Kenta Kuroda, Shik Shin, Koji Horiba, Hiroshi Kumigashira, Yuji Muraoka, Takayoshi Yokoya
2. 発表標題 Origins of Thermal Spin Depolarization in Half-Metallic Ferromagnet CrO ₂
3. 学会等名 The 25th Hiroshima International Symposium on Synchrotron Radiation (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	藤原 弘和 (Fujiwara Hirokazu)	 (12601)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	脇田 高德 (Wakita Takanori)	 (15301)	
研究協力者	村岡 祐治 (Muraoka Yuji)	 (15301)	
研究協力者	大槻 純也 (Otsuki Junya)	 (15301)	
研究協力者	イエシケ ハラルド (Jeschke Harald O.)	 (15301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------