

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 7 日現在

機関番号：82110  
研究種目：挑戦的萌芽研究  
研究期間：2011～2012  
課題番号：23654126  
研究課題名（和文）  
量子ビームを用いた隠れた空間・時間反転対称性の破れの直接観測手法の確立  
研究課題名（英文）  
Observation of spatial and time reversal breaking by quantum beam  
研究代表者  
久保田 正人 (KUBOTA MASATO)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹  
研究者番号：10370074

## 研究成果の概要（和文）：

物質内での空間・時間反転対称性の破れの出現や 2 次元的に閉じ込められた状況下における局所的な物性を理解するために、磁性と誘電性を合わせ持つマルチフェロイック（三角格子面が積層した結晶構造を持つマルチフェロイック鉄酸化物LuFe2O4）や酸化物ナノ磁性材料の一つであるLaMnO3とSrMnO3の超格子薄膜におけるバルク材料と異なる磁性に関する研究を行った。

## 研究成果の概要（英文）：

LuFe2O4 is a typical multiferroic material, which exhibits the coexisting state of magnetic and ferroelectric orderings. Reflecting on frustration of charge ordering in a triangular lattice, the incommensurability of the ordering period changes. Besides, we performed the resonant soft x-ray scattering measurements on manganite superlattice. It is recognized that a ferromagnetism originates from the LaMnO<sub>3</sub> layers, although bulky samples of LaMnO<sub>3</sub> and SrMnO<sub>3</sub> originally shows antiferromagnetic structure.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,900,000	870,000	3,770,000

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：超格子

## 1. 研究開始当初の背景

複数の強的秩序を示す多重強秩序系材料では、電場で強磁性体の磁気秩序を制御したり、逆に磁場で強誘電体の電気秩序を制御するといった交差相関的な外場と物理応答の関係が着目されている。特に、磁化と電気分極の結合が強い場合に巨大応答が期待され、応用面からも盛んに研究が行われている。マルチフェロイック材料では、電気磁気効果、非線形磁気光学効果など興味深い新規現象も多く報告されている。そのような性質を利用した電気磁気変換素子や、従来のメモリーより多くの情報量を持つマルチフェロイックメモリーなど様々なアプリケーションへの応用が期待されている。

磁化と電気分極の結合について詳細に理解するためには、空間反転対称性を破ったサイトにおける磁性や電子状態を解明する必要がある。

また、最近、磁気・電子デバイスは薄膜化や微細化が行われ、そのデバイスの機能特性の向上には、界面における磁性や電子状態の理解が非常に重要である。例えば、スピントロニクス材料であるトンネル磁気抵抗薄膜は、強磁性層/絶縁体層が基本構造になっている。理論予想よりもトンネル磁気抵抗効果が劣化する原因として、dead layer の存在により界面における強磁性が弱まってしまっている可能性が指摘されている。

この様に、新規機能性のメカニズムの解明や機能特性向上には、(従来の単なる磁性ではなく)界面などの局所的な磁性の理解が重要になってきている。

## 2. 研究の目的

多重強秩序系材料や磁性超格子薄膜などの新規機能性のメカニズムの解明や機能向上、並びにデバイス化へ向けた取り組みのために、局所的な(表面や界面など)における磁性の理解が重要になってきている。本研究では、量子ビームを用いて磁性超格子薄膜や多重強秩序系材料における局所的な磁性の理解を目指す。

特に、量子ビームが持つ偏光特性や元素選択性を活用して、金属薄膜材料や酸化物磁性材料における磁性情報の抽出を行うことにより、物性の理解を行う。

## 3. 研究の方法

マルチフェロイック鉄酸化物 LuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> における局所的な電荷相関やマンガン酸化物超格子薄膜における磁性の解明を目指した。

実験では、軟 X 線～硬 X 線を用いることに

より、空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れたサイトや埋もれた界面における磁性・電子状態を直接的に捉える研究を進めた。

実験に用いたサンプルは、マルチフェロイック研究では、フローティングゾーン法で作製した LuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の単結晶試料を用いた。また、マンガン酸化物超格子薄膜に関する研究では、Pulsed Laser Deposition (PLD) 法により作製した超格子薄膜を活用した。

## 4. 研究成果

三角格子面が積層した結晶構造を持つ鉄酸化物のユニットセル内には、2枚の鉄イオン三角格子面を1組とした W-layer が c 軸方向に3組存在している。三角格子面には、Fe<sup>2+</sup> と Fe<sup>3+</sup> サイトが存在し、Fe<sup>2+</sup> サイトには、軌道の自由度が存在している。しかも、低温では鉄スピンの秩序化し、マルチフェロイック的な振る舞いを示すといった多彩な電子自由度が内在している。Fe<sup>2+</sup> サイトと Fe<sup>3+</sup> サイトは、隣接することがエネルギー的に安定であり、電荷秩序が出現する。従来のイオン変位型強誘電体の発現機構と異なり、W-layer 内に Fe<sup>2+</sup> と Fe<sup>3+</sup> の電荷秩序状態が電気分極を発現し、新規な電子強誘電体として振舞っていることが示唆されている。

磁性や電子状態に大きな影響を与える中心サイトにある遷移金属元素がマルチフェロイック特性を発現する際の役割に関する研究を進めた。鉄元素の K 吸収端近傍のエネルギーを用いて、3倍周期の電荷秩序に伴うサテライトピークのプロファイル測定を行った結果、積層方向には反強的な相関が存在し、3次元的な電荷秩序が発達していることが確認された。これに対して、面内方向でサテライトピークのインコメンシュラビリティーの変化が観測された。また、積層方向の反強的な相関が弱まり、2次元的な相関に変化していることが明らかになった。

人工超格子薄膜においては、電子状態が2次元的閉じ込め効果により、バルク材料における時間反転対称性の破れ方とは異なる可能性がある。今回、薄膜における局所的な時間反転対称性の破れに関する情報を捉えるために、酸化物ナノ磁性材料の一つである LaMnO<sub>3</sub> と SrMnO<sub>3</sub> の超格子薄膜を用いて、量子ビーム実験を行った。(LaMnO<sub>3</sub>)<sub>m</sub> / (SrMnO<sub>3</sub>)<sub>n</sub> では、積層枚数 (m, n) により、多彩な磁気相関を示す。特徴として、m=n において強磁性絶縁体状態であることや m=n=2 の超格子薄膜において、低温で巨大な磁気抵抗効果を示すことが挙げられる。これらの振る舞いを理解する上で、

薄膜内の界面における磁性の理解が重要である。超格子薄膜の界面付近における磁性を明らかにするためには、特に、軟X線を用いた測定は有用な点が多い。MnのL吸収端近傍での $2p \rightarrow 3d$ 遷移による軟X線を用いた実験では、機能を発現するMnの電子状態を直接的に捉えられることや、磁気散乱強度も100-1000倍強度が大きく、界面における磁性材料研究に適している。

積層枚数が $(m, n) = (5, 5)$ である超格子薄膜を用いた、共鳴軟X線散乱による実験を行った。 $[(\text{LaMnO}_3)_5/(\text{SrMnO}_3)_5]$ をユニットセルとした場合、散乱ベクトル $Q = (0, 0, L)$ 付近の超格子反射は、マンガンのLII, LIII吸収端近傍で特徴的なスペクトルを示した。L=1付近では、超格子反射強度は、 $T_c \sim 160\text{K}$ 付近でシグナルが出現し、温度降下と共に、強度が増加していく振る舞いを示した。一方、L=2付近のシグナルは、顕著な温度変化を示さなかった。これらは、観測したシグナルが超格子薄膜における強磁性シグナルであることを意味している。モデル計算とエネルギースペクトルのQ依存性を比較することにより、強磁性が主に、 $\text{LaMnO}_3$ 層側で生じている事が明らかになった。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計6件)

(1)

Current status of a new polarized neutron reflectometer at the intense pulsed neutron source of the

Materials and Life Science Experimental Facility (MLF) of J-PARC

Takeda Masayasu, Yamazaki Dai, Soyama

Kazuhiko, Maruyama Ryuji, Hayashida

Hiroto, Asaoka Hidehito, Yamazaki

Tatsuya, Kubota Masato, et al.

Chinese Journal of Physics, 50 (2012) 161-170

(2)

Angle-resolved photoemission spectroscopy study of  $\text{PrFeAsO}_{0.7}$ : Comparison with  $\text{LaFePO}$

I. Nishi, M. Ishikado, S. Ideta, W. Malaeb, T. Yoshida, A. Fujimori, Y. Kotani, M. Kubota, K. Ono, M. Yi, D. H. Lu, R. Moore, Z.-X. Shen, A. Iyo, K. Kihou, H. Kito, H.

Eisaki, S. Shamoto, and R. Arita  
Phys. Rev. B 84, 014504 (2011) (5 pages)  
10.1103/PhysRevB.84.014504

(3)

Two-Dimensional and Three-Dimensional Fermi Surfaces of Superconducting  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{Px})_2$  and Their Nesting Properties Revealed by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy

T. Yoshida, I. Nishi, S. Ideta, A. Fujimori, M. Kubota, K. Ono, S. Kasahara, T. Shibauchi, T. Terashima, Y. Matsuda, H. Ikeda, and R. Arita

Phys. Rev. Lett. 106 117001 (2011) (4 pages)

10.1103/PhysRevLett.106.117001

(4)

Cu-dependent phase transition in polycrystalline  $\text{CuGaSe}_2$  thin films grown by three-stage process M. M. Islam, A. Yamada, T. Sakurai, M. Kubota, S. Ishizuka, K. Matsubara, S. Niki, and K. Akimoto, Journal of Applied Physics, 110 (2011) 014903 10.1063/1.3603022

(5)

Resonant soft X-ray magnetic scattering study of magnetic structures in  $\text{La}_{1.5}\text{Ca}_{0.5}\text{CoO}_4$ ,

J. Okamoto, K. Horigane, H. Nakao, K. Amemiya, M. Kubota, Y. Murakami, K. Yamada,

Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 184 (2011) 224-226, 10.1016/j.elspec.2010.12.037

(6)

Structural control of organic solar cells based on nonplanar metallophthalocyanine/C60

heterojunctions using organic buffer layer,

T. Sakurai, T. Ohashi, H. Kitazume,

M. Kubota, T. Suemasu,

K. Akimoto, Organic Electronics, 12 (2011) 966-973, 10.1016/j.orgel.2011.03.016

[学会発表] (計4件)

(1)

久保田 正人

J-PARC 偏極中性子反射率計(写楽)の現状と多層膜研究の展開, 応用物理学会(招待講演) 2012年3月15日・東京

(2)

久保田 正人

Current Status of newly developed  
Polarized Neutron Reflectometer (Sharaku)  
at beamline BL 17 of J-PARC,  
日韓中性子研究会, 2013年2月3日～2013  
年2月5日・琉球大学(沖縄)

(3)

久保田 正人

マンガン酸化物超格子薄膜の磁性研究  
中性子科学会  
2012年12月9日～2012年12月11日・  
京都大学(京都)

(4)

久保田正人

量子ビームを用いたマンガン酸化物超格子  
薄膜の磁性研究

MLFシンポジウム2012年10月10日～2012  
年10月11日・日本科学未来館(東京)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

久保田 正人 (KUBOTA MASATO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構

量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号: 10370074