

学位論文の要旨

Abstract of Thesis

研究科 School	自然科学研究科
専攻 Division	数理物理学専攻
学生番号 Student No.	51428104
氏名 Name	藤原 弘和

学位論文題目 Title of Thesis (学位論文題目が英語の場合は和訳を付記)

Studies on Strong Correlation Effects in Half-Metallic Ferromagnets based on Spin-Resolved Electronic Structure
(スピン分解電子構造に基づくハーフメタル強磁性体の強相関効果の研究)

学位論文の要旨 Abstract of Thesis

ハーフメタル強磁性体は基底状態において一方のスピンを持つバンドのみがフェルミ準位 (E_F) を横切る完全スピン偏極電子状態を持つ。しかし、トンネル磁気抵抗から見積もられる伝導電子のスピン偏極率は昇温に伴って急激に減少し、その温度依存性は巨視的な磁化の振る舞いからは理解できない。この急激なスピン脱偏極の起源の1つとしてハーフメタル特有の強相関効果によって生じる E_F 近傍の多体状態が提案されているが、その多体状態は未だ直接観測されておらず、ハーフメタル特有の強相関効果に関する実験的知見はほとんど得られていない。

本博士論文では、ハーフメタルのスピン偏極率の振る舞いを理解する上で重要だと指摘されてきたハーフメタル特有の多体状態を解明することを目的として、物質のスピン偏極電子構造を直接観測できるスピン角度分解光電子分光を用いてハーフメタル候補物質 CrO_2 及び CoS_2 の詳細な電子状態研究を報告する。

CrO_2 のバルク敏感スピン角度分解光電子分光 (SARPES)

ハーフメタル候補物質 CrO_2 はアンドレーエフ反射測定から低温で 90% 以上のスピン偏極率を再現性よく示す唯一の物質である。この特徴から、 CrO_2 はハーフメタル特有の強相関効果を探求するのに最適な物質である。一方、 CrO_2 表面は容易に Cr_2O_3 に変質することが知られており、 CrO_2 の本質的な電子状態を観測することが困難であった。本研究では、ハーフメタル特有の強相関効果を探求する前段階として、低エネルギーの Xe 放電管光源とモット検出器を備えたバルク敏感 SARPES 装置の建設及びそれを用いた CrO_2 の本質的なスピン偏極電子状態の解明に取り組んだ。

岡山大学に建設したバルク敏感 SARPES 装置のスピン分解能力を示す有効シャーマン関数 S_{eff} を決定するために、スピン偏極率がよく調べられた Bi 薄膜の SARPES 実験を行った。この実験のために薄膜作製・評価槽を本装置に建設し Si 基板上に Bi 薄膜を作製した。モット検出器の調整を経た後、Bi 薄膜の SARPES 測定から $S_{\text{eff}} = 0.1 \pm 0.06$ と決定し、本装置によるスピン偏極物質の物性探索を可能にした。

本装置を用いて CrO_2 エピタキシャル膜のバルク敏感 SARPES 測定を行なった。試料は独自の閉鎖系 CVD 法を用いて作製したもので、低速電子線回折及び光電子分光測定から表面不純物 Cr_2O_3 の少ない高品質試料であることを確認した。バルク敏感 SARPES 測定によって、40 K の低温においてハーフメタル電子状態の直接観測に成功した。さらに昇温実験によって、スピン偏極したエネルギー領域全体に渡るスピン偏極率の減少を観測した。このスピン偏極率の温度依存性は巨視的な磁化の温度依存性と対応するものであることから、このスピン脱偏極はスピン波励起によるものであることを解明した。この

結果はハーフメタルのスピンの偏極電子状態研究にバルク敏感 SARPES が極めて有用であることを示した世界初の成果である。

CrO₂の高分解能 SARPES

CrO₂における強相関効果による電子状態変化は占有状態において E_F 近傍の 10 -100 meV のエネルギースケールで起こることが動的平均場理論から予想されている。従来の低効率なモット検出器を用いた測定では十分な統計精度を得るために分解能を犠牲にせざるを得ず、こうした微細なスピンの偏極電子状態を観測するのは困難であった。しかし、本研究では高エネルギー分解能と低エネルギー光源によるバルク感度を両立した東京大学物性研究所のレーザー-SARPES 装置 (2015 年後期共同利用開始) を戦略的に用いることでハーフメタル特有の強相関効果に起因した微細な電子状態変化の直接観測を行い、強相関効果によって生じる多体状態の振る舞いを詳細に調査した。

20 K 以下の低温において少数スピン状態にギャップを観測し、CrO₂が低温でハーフメタルであることを再び示した。さらに、80 K において少数スピン状態が結合エネルギー $E_B = 10$ meV から E_F の微細なエネルギー領域に現れることを発見した。この少数スピン状態は 120 K まで同様のエネルギー領域で発達し、150 K 以上の温度でエネルギー幅が広がり $E_B = 80$ meV まで少数スピン状態がしみだすことを明らかにした。この少数スピン状態の温度依存性は動的平均場理論が予想するものとよく対応しており、この少数スピン状態がハーフメタル特有の強相関効果による多体状態であることが示唆された。この少数スピン状態数はスピンの偏極電子状態数全体に対して非常に少なく巨視的な磁化にはほとんど寄与しないが、 E_F 近傍の状態のため磁気輸送特性には支配的に寄与する。このことから、トンネル磁気抵抗に見られる巨視的な磁化からは理解できない急激なスピンの脱偏極の原因の一つがこの少数スピン状態の出現であることを解明した。本成果はハーフメタルに対してこれまでになく高いエネルギー分解能測定を行うことで得られたものであり、ハーフメタルなどのスピントロニクス材料の磁気輸送特性を理解する上で E_F 近傍の微細なスピンの偏極電子状態を直接観測することの重要性を強く示すものである。

CoS₂の放射光角度分解光電子分光 (ARPES) ・高分解能 SARPES

CoS₂は強磁性相において Co²⁺の低スピン状態の磁気モーメント $1\mu_B$ に近い飽和磁気モーメントを示すことから、完全にスピンの偏極した e_g バンドを持つハーフメタルであると考えられてきた。一方、いくつかの理論及び実験研究は、CoS₂がハーフメタルに近いバンド構造を持つが少数スピンバンドがわずかに (数 meV) 占有されていることを示唆しており、CoS₂のハーフメタル性に関して共通の理解は得られていない。さらに光電子分光の先行研究では、少数スピンバンドに対応する E_F 近傍のピーク構造が昇温に伴い急激にブロードニングを起こすことが示された。この特徴は CrO₂で観測された強相関効果とよく似ていると考え、本研究では放射光 ARPES 及び高分解能 SARPES を用いて CoS₂のスピンの分解バンド構造を決定しハーフメタル性の議論に終止符を打つとともに、 E_F 近傍のバンドが示す特徴的な温度変化と強相関効果との関連を明らかにする研究を行った。

この研究により、バンド計算とよく対応する多数スピンバンドに加えて、 E_F を横切る少数スピンバンドがブリュアンゾーン全体に渡って存在すること示した。これは CoS₂がハーフメタルに近い電子状態をもつ「ニアリハーフメタル」であることを示している。さらに、多数スピンバンドの幅はバンド計算とよく対応するのに対し、少数スピンバンドの幅はバンド計算が予想するものの 50% 以下であり、スピンの依存した強相関効果による mass renormalization が示唆された。この強相関効果のスピンの依存性は Ni 等の通常の強磁性金属よりも極めて大きく、ハーフメタル性発現とこの巨大スピン依存相関効果の関連が示唆された。さらに温度変化測定から、 E_F 近傍の電子状態変化は常磁性バンド構造への転移ではなく、強相関効果によるブロードニングであることを明らかにした。