

# 共鳴軟 X 線散乱で見る Mn 酸化物薄膜の電荷/軌道/スピン秩序

和達 大樹

東京大学大学院工学系研究科附属 量子相エレクトロニクス研究センター

Charge/orbital/spin ordering in Mn-oxide thin films revealed  
by resonant soft x-ray scattering

Hiroki Wadati

Department of Applied Physics and Quantum-Phase Electronics Center, University of Tokyo

ペロブスカイト型の結晶構造を持つ Mn 酸化物  $R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$  ( $R$  = 希土類イオン、 $A$  = アルカリ金属イオン)は、 $x = 0.5$  付近の組成で電荷整列が起きる点で多くの興味を集めてきた。電荷整列は格子歪みを伴うため、格子定数が基板のものに固定される薄膜試料では実現が難しいと思われてきたが、最近 LSAT(011)基板(LSAT:  $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}-(\text{SrAl}_{0.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_3)_{0.7}$ ) を用いること、 $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$  薄膜がバルクと似た電荷整列を示すことが報告された[1]。また、 $x = 0.5$  であるが強磁性金属を示す  $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$  との積層構造による超格子試料も作成された[2]。一次元(薄膜の面直方向)の相分離状態が実現し、大きな温度ヒステリシスなど単一の  $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3$  では見られない現象が観測されている。

我々はこれらの薄膜試料について、その電荷軌道/スピン秩序の状態を共鳴軟X線散乱により研究を行った。薄膜試料は試料体積が小さいため、バルク試料で用いられてきた測定手法が適用できないことも多いが、共鳴軟X線散乱では Mn  $2p \rightarrow 3d$  の大きな共鳴増大を用いることができるため、薄膜試料にうってつけである。測定に用いた放射光は、BESSY II (ドイツ) UE46-PGM1、CLS (カナダ) BL-10ID2 (REIXS)、SLS (スイス) X11MA SIM、Photon Factory BL-16A である。

図1は  $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3/\text{LSAT}(011)$  薄膜の  $(1/4, 1/4, 0)$  ピーク強度のp偏光でのエネルギー依存性とその温度変化を示す。 $(1/4, 1/4, 0)$  ピークは 200 K 付近から現れるが、エネルギー依存性は 150 K 付近をはさんで大きく変化する。この温度付近からp偏光とs偏光の結果が異なり始めることより、これは反強磁性転移であると考えられる。s偏光の場合は 75 K 付近で同様の現象が見られ、これもスピンに関係する転移であると思われる。 $(1/4, 1/4, 0)$  ピークに反強磁性の効果が見れるということは、面間がバルク試料と異なり、完全に反強磁性ではなく、スピンキャンティングがあることを示す。また、昇温、降温サイクルによるヒステリシスは見られなかった。

$[\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3/\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3]$  超格子の結果は  $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3/\text{LSAT}(011)$  薄膜の結果といくつかの点で大きく異なっていた。まず、ピーク強度、位置、幅が昇温、降温サイクルで大きなヒステリシスを示した。また、 $(1/4, 1/4, 0)$  ピークに反強磁性の効果は現れなかった。このことはスピンキャンティングが存在しないことを示す。

得られた励起光エネルギー依存のスペクトルは、多重項クラスターモデル(CI)計算により解析を進めている。電荷/軌道整列状態に関してはスペクトルが CI 計算でよく再現できる一方、磁気秩序が加わると一致が見られない。当日はこれらの解析も含め、共鳴軟X線散乱によりMn酸化物薄膜の秩序状態をどこまで理解できるかを議論する。

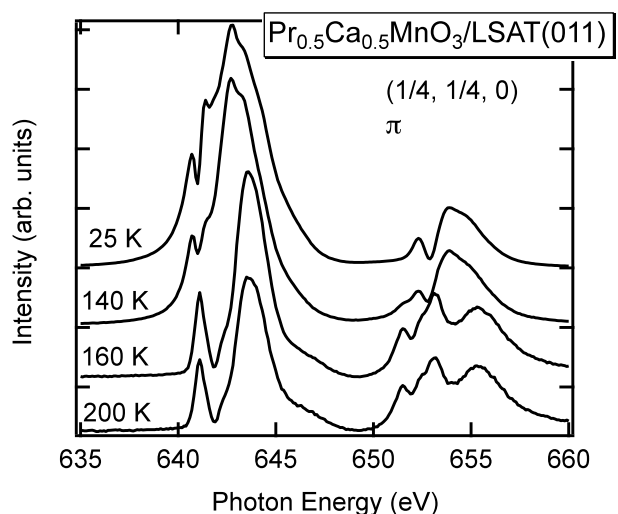


図1 :  $\text{Pr}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{MnO}_3/\text{LSAT}(011)$  薄膜の  $(1/4, 1/4, 0)$  ピーク強度のエネルギー依存性とその温度変化。(π偏光)