

イリジウム酸化物薄膜におけるスピン軌道相互作用と電子構造制御

Control of Electronic Structure in Iridium Oxide Thin Films with Spin-Orbit Coupling

物質系専攻 47-096007 井原 康太

指導教員：高木 英典（教授）

キーワード：スピン軌道相互作用、Mott 絶縁体、半金属、超格子薄膜

【背景】

近年、 $5d$ 遷移金属酸化物は強いスピン軌道相互作用によって多彩な電子物性が現れる系として注目されている。Ruddlesden-Popper シリーズ $\text{Sr}_{m+1}\text{Ir}_m\text{O}_{3m+1}$ (図 1) はその代表例であり、二次元性の強い Sr_2IrO_4 ($m=1$) はスピン軌道相互作用と電子相関の協奏によって生じる新たなタイプの Mott 絶縁体である^[1]。一方、三次元的な SrIrO_3 ($m=\infty$) では格子歪みとスピン軌道相互作用のカップリングの引き起こす半金属状態が提唱されている。これらは、本質的にスピン軌道相互作用が異なる対称性を有するバンドの

作る縮退をスピンの自由度も含めて分裂させることに由来している。よってバンド構造の違い、つまり結晶構造の違いがスピン軌道相互作用による分裂の仕方を変化させ、異なる電子構造を与えていると考えられる。すなわち、 $5d$ 遷移金属酸化物において結晶学的な洞察に基づき系統的な物性開拓を進めることは、スピン軌道相互作用の学理を構築する上で重要である。

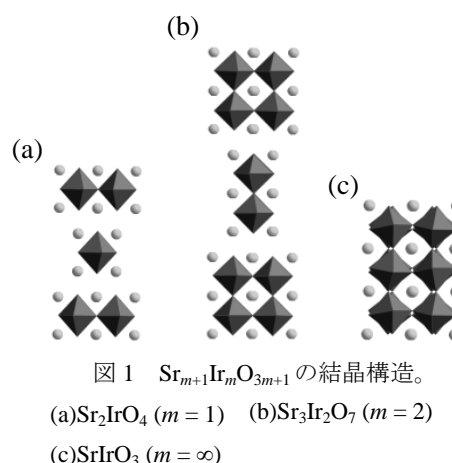
【目的】

本研究では、Mott 絶縁体と半金属を含む電子相図の全体像を理解し、スピン軌道相互作用が物性に与える影響の統一的理解を得ることを目的とする。

パルスレーザー堆積法(PLD)を用いて、ペロブスカイト構造の SrIrO_3 と SrTiO_3 からなる超格子薄膜 $[(\text{SrIrO}_3)_m, \text{SrTiO}_3]$ を $\text{SrTiO}_3(001)$ 基板上に作製し、 m を変化させることで次元性を制御する。これは、擬似的に Ruddlesden-Popper シリーズを作製することに対応する。Ruddlesden-Popper シリーズのバルク合成では多層 ($m=3, 4, \dots$) の物質を単相で得るのは困難であるが、人工超格子では m を自由に制御できる。そのため、次元性を制御パラメータとして、スピン軌道相互作用の強い系の電子相図を幅広く探索することが可能である。

【実験】

固相反応法と放電プラズマ焼結(SPS)を用いてターゲットを作製後、PLD によって単結晶超格子薄膜を得た。全ての試料は反射高速電子線回折(RHEED)や X 線回折(XRD)で評価後、磁化を Quantum Design 社の MPMS により、また電気抵抗率、Hall 係数を同社の PPMS により測定した。

図 1 $\text{Sr}_{m+1}\text{Ir}_m\text{O}_{3m+1}$ の結晶構造。(a) Sr_2IrO_4 ($m=1$) (b) $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ ($m=2$)(c) SrIrO_3 ($m=\infty$)

【結果・考察】

構造評価

SrIrO₃、SrTiO₃を各々1層積むために必要なレーザーのパルス数の最適化を行った結果、SrIrO₃ : 19.5 pulses/unit、SrTiO₃ : 32.0 pulses/unit となった。これを基に試料を作製したところ、X線回折パターンには明瞭な超格子ピークが観測され(図2)、 $m=1, 2, 3, 4, \infty$ の超格子薄膜が得られた。図3に示すようにRHEED像にはラウエスポットが確認でき、良質な結晶性と平坦性を持っている。

さらに、指数(1 1 4)において逆格子マッピングを測定した。 $m=1$ とSrTiO₃基板の面内の格子定数は3.905 Åで一致しており(図4)、SrTiO₃基板に対しコヒーレントにエピタキシャル成長していることが分かった。逆側の末端である $m=\infty$ (SrIrO₃)でもコヒーレンス性は確認できているため、間の全ての m においてコヒーレントに成長していると考えられる。

物性評価

図5に各試料における磁化、ホール係数、抵抗率の温度依存性のグラフを示す。 $m=1$ の試料は面内に0.02 $\mu_B/\text{Ir mol}$ 程度の弱い磁化を持ち、抵抗率は絶縁体の振る舞いをしている。Sr₂IrO₄では反強磁性に秩序化したモーメントが面内に傾くことでIrO₂層に0.07 $\mu_B/\text{Ir mol}$ のネットモーメントが生じることが知られており、 $m=1$ においても同様のMott絶縁体の実現していることを示している。これは、バルクのSrIrO₃はパウリ常磁性の半金属を示すにもかかわらず、IrO₂層を薄くするだけで電子が局在化し、磁気秩序を持つということを表している。

また、 $m=\infty$ (SrIrO₃)においてはパウリ常磁性、ホール係数の大きな温度依存性を持ち、バルクのSrIrO₃と同様に半金属となっていることが分かる。バルクのSrIrO₃の半金属の性質はGdFeO₃タイプと呼ばれる、IrO₆八面体が傾くことによる歪んだ斜方晶ペロブスカイト構造とスピン軌道相互作用のカップリングに由来するとされている。そのため、 $m=\infty$ (SrIrO₃)の試料が歪みのないSrTiO₃基板上でどのような構造しているか逆格子マッピングの測定を用いて調べたところ、GdFeO₃タイプの対称性を満たす時のみに生じる(5/2 -1 2)の位置でピークを確認することができた。つまり、 $m=\infty$ (SrIrO₃)の半金属状態もバルクと同様、結晶構造に由来したものであることが示された。

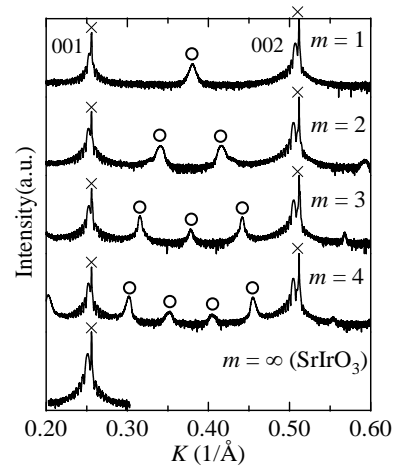


図2 [(SrIrO₃)_m, SrTiO₃]のXRDパターン。

× : SrTiO₃ 基板 ○ : 超格子ピーク

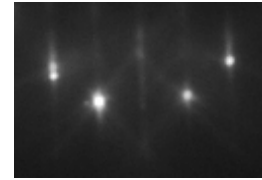


図3 $m=1$ のRHEED像。

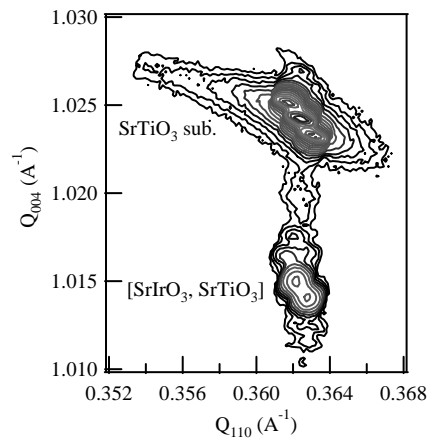


図4 $m=1$ の(1 1 4)の逆格子マッピング。

これらを合わせると、 $m = 1$ で Mott 絶縁体、 $m = \infty$ で半金属と、次元性を制御することによって大きく電子構造を変化させることに成功したといえる。

m を増加させると、磁気転移温度は低下し、 $m = 4$ においては磁気転移が観測されなかったことから、次元性制御による Mott 絶縁体相の消失が示唆される。ホール係数と比較してみると、 $m = 1, 2$ において磁気転移温度以下では急激にキャリア数が低下していることが分かる。これは反強磁性秩序が生じることによってスピンの局在化がより局在化し、バンドギャップが開いたことを意味する。 $m = 4$ においてはホール係数、抵抗率ともに SrIrO₃ と同様に電子とホールの両方をキャリアに持つ半金属の振る舞いをしている。すなわち、 $m = 2$ から $m = 4$ のへと次元性が高まるにつれて Mott 絶縁体から半金属へと、スピン軌道相互作用の電子構造に与える影響が変化していることを示している。 $m = 3$ では、わずかに磁化が存在するもののホール係数の絶対値は非常に小さく、これはフェルミ面の大きい金属、もしくは 2 キャリアの寄与がほぼ等しい半金属の可能性を示している。磁気秩序を色濃く残した半金属状態が実現されている可能性もあり、これらの物性の詳細を明らかにすることは今後の研究課題となる。

【総括】

SrIrO₃ と SrTiO₃ で超格子を形成することで、スピン軌道相互作用誘起の Mott 絶縁体相を作り出すことに成功した。さらに、SrIrO₃ と SrTiO₃ の層数の比、すなわち次元性を制御することによって Mott 絶縁体と半金属の間の電子構造制御を行うことが出来た。本研究によって、結晶構造を制御することがスピン軌道相互作用の強い系に特有の電子構造の発見に繋がりを示した。

【参考文献】

[1] B. J. Kim *et al.*, Science **323**, 1329 (2009).

【学会発表】

2011年春季 第58回 応用物理学関係連合講演会 「[(SrIrO₃)_m, SrTiO₃]超格子薄膜における次元性制御と電子相図」

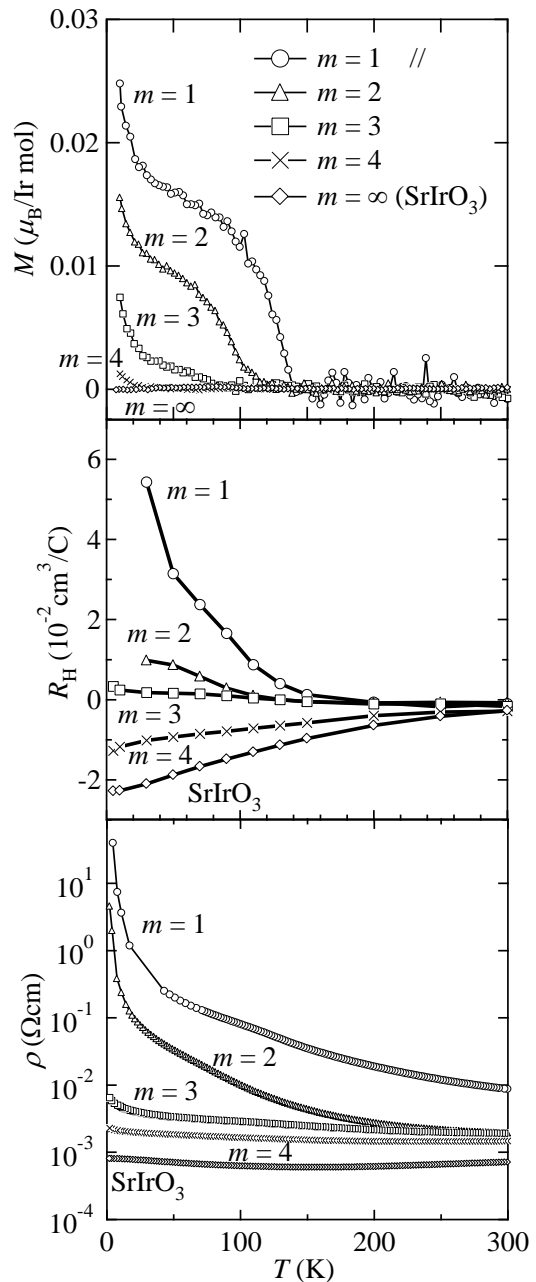


図5 [(SrIrO₃)_m, SrTiO₃]の磁化、ホール係数、抵抗率の温度依存性。