

## 2013年度（高圧物理学研究室）

私達のグループでは、銅酸化物における高温超伝導の発現機構に関する知見を得ることを目的として、幾つかの研究機関・グループと共同で以下に記す1~3の実験を行い、銅酸化物高温超伝導体の電子物性について詳しく調べている。今年度から吉田助教が新たなスタッフ（テニュアトラック教員）として加わり、 $\text{Ag}_2\text{CrO}_2$ 等の酸化物における強相関電子物性の研究を行った。また、本学工学研究院トポロジエ工学研究室と共同で擬2次元電子系物質 $\text{Fe}_{1+x}\text{Te}$ および $1\text{T-VSe}_2$ の電荷秩序に関する研究を行った。

1.  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{(8+\delta)}$  (Bi2212) と  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{(6+\delta)}$  (Bi2201) における走査トンネル顕微鏡 (STM) を用いたトンネル分光 (STS) 実験 (室蘭工業大学との共同研究)
2.  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (La214) における中性子散乱実験および角度分解光電子分光 (ARPES) 実験 (スイス連邦工科大学ポールシェラー研究所等との共同研究)
3. Bi2212におけるポンプ・プローブ分光実験 (本学工学研究院応用物理学部門・戸田研究室およびスロベニア・ヨゼフステファン研究所ミハイロヴィチ・グループとの共同研究)
4. 古典三角格子反強磁性体 $\text{Ag}_2\text{CrO}_2$ の磁性に関する研究 (吉田助教とNIMS、オークリッジ国立研究所、大阪大学極限量子科学研究センターとの共同研究)
5. 擬2次元電子系物質 $\text{Fe}_{1+x}\text{Te}$ および $1\text{T-VSe}_2$ の電荷秩序に関するSTM/STS実験 (本学工学研究院トポロジエ工学研究室との共同研究)

これらの研究の中から銅酸化物高温超伝導体Bi2201のSTM/STSに関する研究 (1) と古典三角格子反強磁性体 $\text{Ag}_2\text{CrO}_2$ の磁性に関する研究 (4) について、その概要を以下に記す。

### 1 STM/STSで見たBi2201系におけるCu-O面の電子状態に対する面間ディスオーダーの効果

銅酸化物高温超伝導体では、擬ギャップと呼ばれるギャップ様構造が超伝導転移温度 $T_c$ より高温からフェルミ面上のゾーン境界点 (アンタインード) を中心に発達する。また、擬ギャップがナノメータのスケールで空間的に不均一となる試料では、超伝導を担うCu-O面に2次元的な電荷秩序が形成される。これらは銅酸化物高温超伝導体に特有の現象であり、高温超伝導の発現機構との関係から大きな注目を集めている。また、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CuO}_{(6+\delta)}$  (Bi2201) の $\text{Sr}^{2+}$ イオンを3価の希土類イオンで置換した $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{R}_x\text{CuO}_{(6+\delta)}$  (Ln-Bi2201, Ln = La & Eu) 系では、 $\text{La}^{3+}$ の方が $\text{Sr}^{2+}$ に比べてイオン半径が小さいためにSr-O面 (Cu-O面間) にディスオーダーが導入されるが、その程度は半径のより小さい希土類イオンでより大きくなることが知られている。興味深いことに、面間ディスオーダーはCu-O面で起こる超伝導の $T_c$ を大きく抑制する (オブティマル・ホール濃度 ( $p \sim 0.17$ ) のBi2201に30%のLaとEuを添加したLa-Bi2201とEu-Bi2201の $T_c$ は、それぞれ、35Kと20Kである)。今年度の研究では、擬ギャップ・電荷秩序と超伝導との関係についての知見を得るために、Ln-Bi2201 (Ln = La & Eu) 系でSTM/STS実験を行い、面間ディスオーダーがCu-O面における擬ギャップ、電荷秩序および超伝導に対して、どのような影響を与えるかを詳しく調べた。得られた結果を以下に記す。1) La-Bi2201に比べて、面間ディスオーダーがより強いEu-Bi2201では、フェルミ面上のアンタインード領域に形成される擬ギャップの大きさ (エネルギー・サイズ:  $\Delta^*$ ) が2倍程度にまで大きくなり、一方、ノード付近に形成される実行的超伝導ギャップの大きさ $\Delta_{sc}$ が $T_c$ の低下の割合と同程度にまで小さくなる。また、アンタインード付近での超伝導ギャップ (ペアリング・ギャップ) の大きさ $\Delta_0$ は、面間ディスオーダーの強さ

に依らず、両者でほぼ一致する。さらに、オプティマル ( $p \sim 0.17$ ) のEu-Bi2201における $T_c$ および $\Delta^*$ 、 $\Delta_0$ 、 $\Delta_{sc}$ は、それぞれLa-Bi2201における $p \sim 0.09$ での値と同程度である。ARPES実験から、面間ディスオーダーは、擬ギャップが開くアンタイノード領域を拡大させ、実行的超伝導ギャップが開くノード領域を縮小させることが報告されている。我々のSTM/STS実験で得られた各種ギャップの大きさに関する結果は、このようなARPESで指摘されたCu-O面の電子系に対する面間ディスオーダーの効果で定性的に説明できる。2) オプティマル (OP;  $p \sim 0.17$ ) のEu-Bi2201における電荷秩序の周期は、面間ディスオーダーの強さに依らず、同じホール濃度のLa-Bi2201とほぼ一致し、Cu-O結合方向の格子定数 $a$ の $\sim 5$ 倍 ( $\sim 5a \times 5a$ ) であることが分かった。STM/STSとARPESの結果を併せると、OP-Eu-Bi2201の擬ギャップと電荷秩序に關与するアンタイノード領域は、面間ディスオーダーの影響により、 $p \sim 0.09$ のLa-Bi2201程度にまで広がっていると考えられる。しかし、OP-Eu-Bi2201の電荷秩序の周期はLa-Bi2201のOPと同じ $\sim 5a \times 5a$ であり、 $p \sim 0.09$ における $\sim 4a \times 4a$ とは一致しない。これらの結果は、Cu-O面内にドーピングされたホールの濃度が、その電荷秩序の周期を決める本質的要因の一つとなっている可能性を示唆するものである。

---

## 2 古典三角格子反強磁性体 $Ag_2CrO_2$ の磁性に関する研究 (吉田助教)

---

幾何学的フラストレーションを有する古典三角格子反強磁性体の性質はスピンの異方性に強く依存する事が知られており、Isingスピン系の無秩序状態や、連続対称性を有するXY、Heisenbergスピン系におけるKT転移、hierarchy秩序等のエキゾチックな現象が生じると理論的に期待されている。しかし、これまでに実在する多くの三角格子反強磁性体には相互作用の三次元性や構造的乱れ等の要因が存在するため、実験的な理解はあまり進んでいなかった。我々は、高温高圧合成を行うことでこれまでに三角格子反強磁性体 $Ag_2CrO_2$ の合成に成功した。 $Ag_2CrO_2$ は三角格子を形成する $Cr^{3+}O_2$ 層と $(Ag_2)^+$ 層が交互に積層し、前者が三角格子上の局在スピンによる磁性を担い、後者は金属的伝導を担う。従って、本物質はフラストレーションの観点に加え、磁性と伝導の相関という点からも興味深い。磁性を担う $CrO_2$ 層間の $Ag_2$ 層は非磁性であるため高い二次元性を有し、また、イオンの乱れがない事から良い二次元三角格子反強磁性体のモデル物質となる。 $Ag_2CrO_2$ は $\Theta_W = -97$  Kの強い反強磁性相互作用を有する $S = 3/2$ の三角格子反強磁性体である。磁化測定及びOak Ridge National Laboratoryとの共同研究で行った中性子回折実験の結果、 $T_N = 24$  Kで結晶構造の自発的歪み (trigonal $\rightarrow$ monoclinic) を伴った長距離磁気秩序が生じる事を見出した。また、 $T_N$ 以下では理論的に予想されていた5副格子を有する部分無秩序相が形成される事が明らかとなった。更に、大阪大学極限量子科学研究センターとの共同研究で55 Tまでの強磁場下で磁化過程の測定を行った。その結果、7 ~ 30 Tと35 T以上の磁場領域に二つの磁化プラトーが一次転移 ( $H \sim 33$  T) を介して存在する事を明らかにした。次なるステップとして、7 Tの磁場下での中性子回折実験による、磁化プラトーにおける磁気構造の解明に取り組んでいる。

### 2013年度 (強相関電子磁性II研究室)

---

#### 1 磁化変調方式スピン偏極走査トンネル顕微鏡による磁気記録媒体の観察

---

スピン偏極走査トンネル顕微鏡 (SP-STM) はナノメートルオーダーの磁性体のスピン分布を評価するために用いられるが、従来の装置では原子レベルで平坦な試料表面が必要であるために単結晶磁性体の観察のみが行われてきた。そこで我々はSP-STMの応用範囲を多くの試料に広げるため、磁化変調方式SP-STMの開発を進めている。これまでFIBで微細加工したCoアモルファス磁性チップと磁気記録ヘッドを組み合わせた磁化変調探針を開

発し、凹凸のある多結晶NiFe試料で初めてスピン信号の検出に成功したが、そのSN比は不十分であり、また磁性探針の中には磁化反転が不安定なものもあった。そこで新たにCoアモルファス磁性探針の代わりにMo探針上にNiFe磁性薄膜を成膜した新たな磁性探針を開発し、スピン信号のSN比の向上を図った。NiFeは簡便に保磁力の小さな磁性膜を成膜できるので、探針の磁化方向の制御性が高くなる事が期待できる。スピン像観察には記録媒体にNiFeを約10 nm蒸着したものを用意した。記録媒体は全面にランダム書き込みがされており、記録層からの漏れ磁場によりNiFe層にビットが転写されることを期待した。また、この媒体はトラック幅は250 nm程度であり、最小記録ビット長は30 nmのものであることを磁気力顕微鏡 (MFM) で確認した。試料はAr+スパッターで清浄化ののち、SP-STM測定を10<sup>-11</sup> Torr台の超高真空中で行った。図1にNiFe/記録媒体の凹凸像(a)、及びスピン像(b)を示す。(a)では数nmの結晶粒を観察することができる。(b)では(a)の結晶粒とは独立な白黒のスピンコントラストが現れており、複数個の結晶粒が磁化方向の揃ったクラスターを形成していることを示唆している。ただし、記録ビット像の観察を期待したが、一連の観察ではビット像はまだ得られていない。

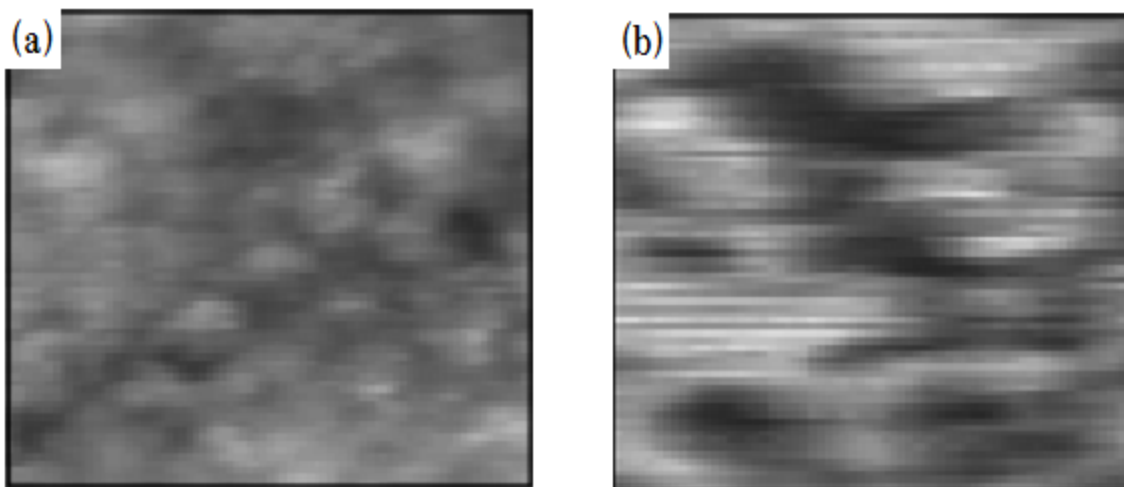


図1 NiFe(10nm)/medium, (a)topography, (b)spin image (35×35 nm<sup>2</sup>)

## 2 極低温磁化変調方式スピン偏極走査トンネル顕微鏡の開発

ユニソク製極低温STMをベースに極低温SP-STMの開発を行った。これには、高密度磁気ヘッドを用いた磁性探針の開発、ヘッド駆動用のリード線の導入と専用探針カセットの作製、およびSTM本体の改造、磁性探針と試料間の浮遊容量に起因するクロストーク信号をキャンセルする自作電子回路の製作等が必要となる。これまでの磁気記録ヘッドは低記録密度HDD (片面~350 MB) 用のもので、残数が少なく、今後入手が困難なため、新たに高容量の片面80 GB のHDDに使われている磁気ヘッドで磁性探針を開発する必要があった。そのマイクロ電磁石のポールピース寸法は、ギャップ長、トラック幅とも0.2μm以下であり、トラック幅は以前のものとは比べ、約1/30以下である。このポールピース上に長さ10μm以上の磁性探針を形成し、その先端磁化を反転する必要がある。これまでの知見をもとに、様々な形状、磁性体 (Coアモルファス、NiFe薄膜) 等を試した結果、5×15×10 μmのMo材料にNiFe薄膜を100 nm形成したものとした。Mo材は収束イオンビーム (FIB) 加工装置で微細加工し、磁気ヘッドのポールピース上にタングステンを析出することで固定し、その後NiFe薄膜を蒸着法にてMo上に形成した。探針先端の磁性評価はμ-MOKEで行った。磁気ヘッドを正弦波電流(±14 mA)で駆動したときのKerr回転角はほぼ飽和し、探針先端の磁化はヘッド磁場方向に向いていると判断した。また、磁性探針用に専用カセットを作製し、さらにこのカセットに適合するようにSTM本体の改造を行い、ヘッド駆動電流の導入を可能とした。さらにヘッド駆動時発生するクロストーク信号をキャンセルする電子回路の自作した。スピン像観察試料には、全面にランダム書き込みを行った記録媒体にNiFeを約10 nm蒸着したものを準備した。これは記録状態がNiFe薄膜に転写されることを期待してのものである。試料および磁性探針はAr+スパッタで清浄化したのち

オージェ電子分光法で試料表面を分析し、液体窒素をSTMに導入し、SP-STM観察を $10^{-11}$  Torr台の超高真空中で行った。ただし、試料のクリーニング等が完全ではないため、まだスピン像の取得まではしていない。