

## 新博士紹介

1. 氏名 岡本 淳 (東京大学)
2. 論文提出大学 東京大学
3. 学位種類 博士 (理学)
4. 取得年月日 2000年3月
5. 題目 Ru 酸化物の光電子分光及び磁気円二色性による研究

### 6. 要旨

[序]

電子相関は Hartree-Fock 近似に取り込まれていない効果で、強相関電子系の物性において重要な役割を担っている。3d 遷移金属酸化物は典型的な強相関電子系であり、その電子状態はここ20年以上にわたって活発に研究されてきた。一方、4d 遷移金属酸化物については、その電子構造は 3d 遷移金属ほどには研究されては来なかった。4d 軌道が 3d 軌道より広がって Coulomb 斥力の影響もより弱いことから、一電子描像のバンド理論の範囲内でその電子状態はかなり説明できると思われていたためである。しかし、近年、4d 遷移金属酸化物、とくに Ru 酸化物において *p* 波超伝導体や金属-半導体転移、反強磁性 Mott 絶縁体といった興味深い物性を示すことが報告され、4d 電子間の電子相関がどのように多彩な物性と関連しているのか研究することが、電気的・磁氣的性質のメカニズムを考える上でも重要な問題となっている。特に RuO<sub>6</sub> 八面体を構造単位とした Ru 酸化物では Ru 4d *t*<sub>2g</sub> バンドが Fermi 準位近傍にあることから、Ru 4d *t*<sub>2g</sub> バンドの軌道の縮退と強いスピン軌道相互作用の物性との関わりに関心もたれている。

本研究では主として強磁性金属 SrRuO<sub>3</sub> (*T*<sub>C</sub>~160 K) を対象とする。光電子分光スペクトルとバンド計算から求めた状態密度との比較を通して、SrRuO<sub>3</sub> の電子構造における電子相関の影響を考察し、磁気円二色性を用いて各元素での磁気モーメントの情報を得て磁氣的性質と電子構造の関係について研究を進めることを目的とする。

### [SrRuO<sub>3</sub> の光電子分光, 逆光電子分光]

SrRuO<sub>3</sub> の電子状態を高分解能紫外線光電子分光 (UPS) と逆光電子分光 (BIS) を用いて測定した結果を Fig. 1 に示す。Fermi 準位の上下で観察された Ru 4d 伝導バンドは局所スピン密度近似で得られたバンド計算結果と比較してエネルギー幅が広がっており、また Fermi 準位近傍の強度が減少していたことから、SrRuO<sub>3</sub> の Ru 4d *t*<sub>2g</sub> バンドにおいて電子相関の寄与が無視できないことが示された。電子相関の寄与を評価するため、バンド状態密度を Fermi 流体論に基づいて現象論的に導入した自己エネルギーを用いて補正し、スペクトル状態密度を求め、測定スペクトルと比較した。その際、測定で得られた電子比熱係数  $\gamma$  の示す有効質量比~4.4を満たすように補正した。得られた質量増強因子のエネルギー及び波数依存項を 3d 遷移

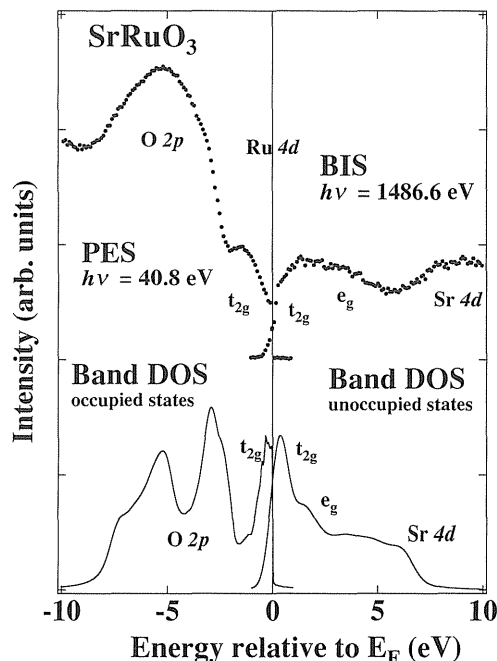


Figure 1. UPS and BIS spectra of SrRuO<sub>3</sub> compared with the broadened band DOS in the ferromagnetic state obtained from the local (spin-)density approximation calculation (calculated by I. Hase).

金属酸化物の値と比較し、ほぼ近い結果を得た。また、強磁性転移温度での電気抵抗の異常を調べるため、*T*<sub>C</sub> の上下の温度での電子状態を光電子分光と逆光電子分光を用いて測定したが、有意な変化は見られなかった。

### [SrRuO<sub>3</sub> の光電子放出磁気円二色性]

SrRuO<sub>3</sub> の光電子放出磁気円二色性を、真空紫外線領域の円偏光放射光を用いて測定し、SrRuO<sub>3</sub> の占有状態における磁氣的性質と電子状態の関連を調べた。

磁気円二色性の構造は主として Fermi 準位近傍の Ru 4d バンドで見られた (Fig. 2)。このことから、Ru 4d 軌道内の強いスピン軌道相互作用のため、Ru 4d の軌道角運動量の分布に偏りが生じていることが示された。

得られた磁気円二色性スペクトルを非制限 Hartree-Fock 法で計算した理論曲線と比較した結果、よい一致が得られた (Fig. 3)。理論計算から求められた Ru 4d 状態のスピン、軌道磁気モーメントは、各々 1.058  $\mu_B$ , 0.058  $\mu_B$  である。

### [SrRuO<sub>3</sub> の X 線吸収磁気円二色性]

SrRuO<sub>3</sub> の Ru 3*p* 内殻準位に対し、X 線吸収磁気円二色性 (MCXD) の測定を行った (Fig. 4)。Ru 3*p* 内殻 MCXD スペクトルを磁気光学総和則<sup>1,2)</sup>を用いて解析し、Ru 4d 状態の軌道磁気モーメント  $M_{orb}$  及びスピン磁気モーメント  $M_{spin}$  を各々  $<|0.05| \mu_B$ ,  $0.65 \pm 0.10 \mu_B$  と見積った。 $|M_{orb}|/M_{spin}$  は~0.07 と非常に小さく、Ru 4d の軌道角運動量が非常に小さいことを示した。上記の磁気モーメントは同試料の磁化測定から得た値 ( $1.05 \pm 0.04 \mu_B/\text{Ru}$ )

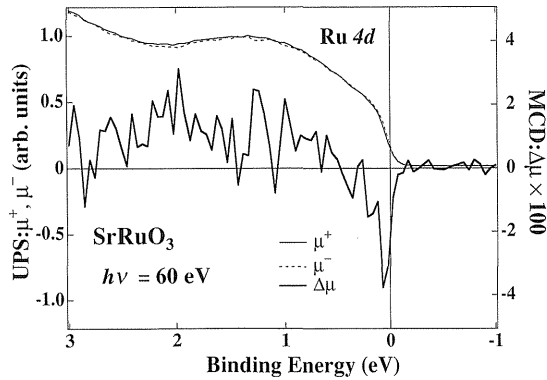


Figure 2. Valence-band UPS spectra  $\mu^+$  and  $\mu^-$  and MCD spectrum of  $\text{SrRuO}_3$ . The average first peak has been normalized to 1. Correction for  $P_C$  has been made.

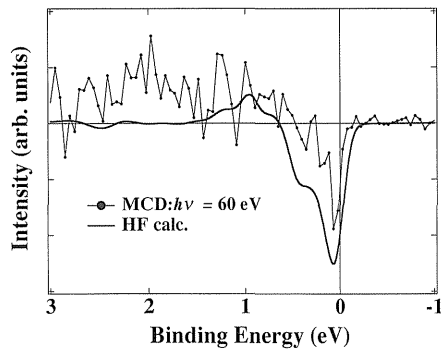


Figure 3. Comparison between the MCD in the valence-band photoemission spectrum of  $\text{SrRuO}_3$  and the unrestricted Hartree-Fock calculation.

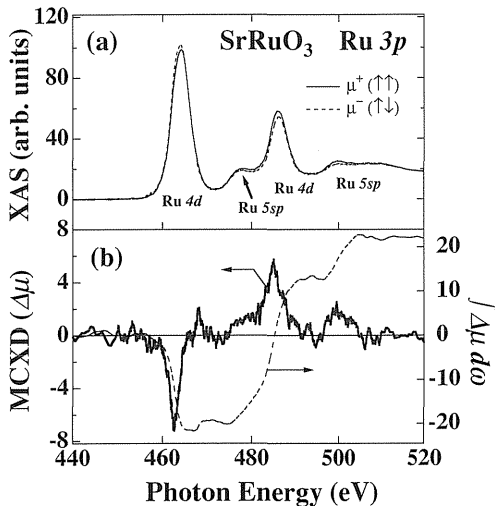


Figure 4. (a)  $\text{Ru } 3p$  XAS spectra  $\mu^+$  and  $\mu^-$  of  $\text{SrRuO}_3$ . The average  $\text{Ru } 3p_{3/2}$  peak height has been normalized to 100. (b)  $\text{Ru } 3p$  MCD spectrum and its energy integral. Correction for  $P_C$  has been made.

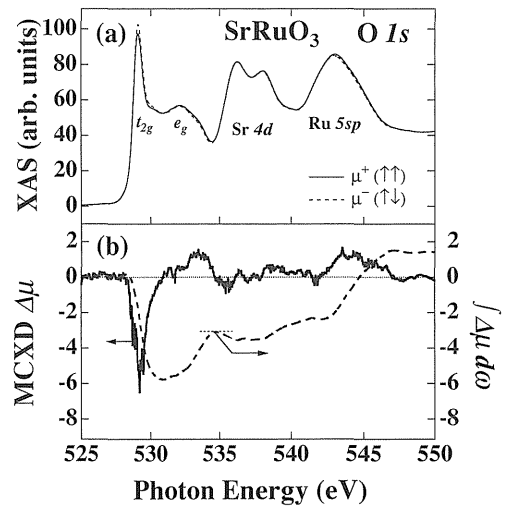


Figure 5. (a)  $\text{O } 1s$  XAS spectra  $\mu^+$  and  $\mu^-$  of  $\text{SrRuO}_3$ . The average first height has been normalized to 100. (b)  $\text{O } 1s$  MCD spectrum and its energy integral. Correction for  $P_C$  has been made.

に比べて小さく、スピン総和則の補正 ( $\sim 1/0.9$ )<sup>3)</sup>を考慮しても有意な差が生じる。原因としては  $\text{Ru } 4d$  軌道との混成によって配位子の  $\text{O } 2p$  軌道との間に電荷移動が起こり、酸素に磁気モーメントが誘起されたことが考えられる。

$\text{O } 1s$  内殻準位に対しても、X線吸収磁気円二色性の測定を行った。Figure 5に示されるように、 $\text{Ru } 4d t_{2g}, e_g$  状態と混成している領域において有意の磁気円二色性を得た。

この結果は、上記の  $\text{Ru } 4d$  軌道との混成を通じ電荷移動によって酸素位置にも磁気モーメントが誘起されていることを支持する。軌道総和則を  $\text{O } 1s$  内殻 MCD スペクトルに適用することで  $\text{O } 2p$  軌道での軌道磁気モーメントが  $\text{Ru } 4d$  軌道のスピン磁気モーメントと平行であることが示された。

[結論]

$4d$  遷移金属酸化物においても電子相関の影響は、 $3d$  遷移金属酸化物に匹敵するほど大きいことがわかった。ただし、 $4d$  軌道が  $3d$  軌道と比較して広がっていることから、配位子の  $\text{O } 2p$  軌道を介した  $\text{Ru } 4d$  軌道の重なりが大きいために、電氣的・磁氣的性質を考える上で、配位子  $\text{O } 2p$  軌道からの電荷移動による影響をより正確に考慮する必要がある。

#### 参考文献

- 1) B. T. Thole *et al.*: Phys. Rev. Lett. **68**, 1943 (1992).
- 2) P. Carra *et al.*: Phys. Rev. Lett. **70**, 694 (1993).
- 3) Y. Teramura *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 1053 (1996).

(受付番号00052)