

平成 22 年 6 月 3 日現在

研究種目：基盤研究（A）
研究期間：2007-2009
課題番号：19204037
研究課題名（和文）遷移金属酸化物界面における新規強相関電子状態の放射光分光と探索
研究課題名（英文）Synchrotron radiation spectroscopy and search for novel correlated electronic states at transition-metal oxide interfaces
研究代表者 藤森 淳
（東京大学大学院理学系研究科・教授）
研究者番号：10209108

研究成果の概要（和文）：パルス・レーザー衝撃（PLD）法で作製した薄膜単結晶試料に対する光電子分光実験により、ペロブスカイト型遷移金属酸化物のバンド構造、基板圧力の効果、界面の電子状態を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：By using single-crystal thin films prepared by pulsed laser deposition (PLD) method, we have studied the energy band structure, the epitaxial strain effect on their electronic structure, and the interfacial electronic structure of the perovskite-type transition-metal oxides.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
19年度	21,500,000	6,450,000	27,950,000
20年度	11,100,000	3,330,000	14,430,000
21年度	5,400,000	1,620,000	7,020,000
年度			
年度			
総計	38,000,000	11,400,000	49,400,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：遷移金属酸化物、超薄膜、パルス堆積法、光電子分光、界面

1. 研究開始当初の背景

巨大磁気抵抗、スピン・電荷・軌道秩序、金属-絶縁体転移など強相関電子物性の舞台となっているペロブスカイト型遷移金属酸化物の詳細な電子状態の研究のため、我々はパルス・レーザー衝撃（PLD）法で作製した薄膜単結晶試料をその場測定できる光電子分光実験を立ち上げ、以下の測定が可能になっていた。

(1)原子レベルで平坦な面を得ることによって、へき開性のない物質で ARPES によるバンドマッピングを行なう。

(2)基板からの一軸性圧力下での電子状態研究を行なう。

また、異種の酸化物がつくる界面の光電子分光による観測をおこない、界面における新しい物理の展開を示唆する結果を得ていた。

2. 研究の目的

PLD 法で作製した酸化物が光電子分光法の試料として非常に優れていることを利用して、ペロブスカイト型遷移金属酸化物をはじめとする強相関電子系の電子構造を明らかにする。基板の選択による正負一軸性"圧力

"下での電子構造変化も調べる。

具体的な目標とテーマは以下の通りである。

- (1) 圧力で誘起された電荷整列，軌道整列，異方的金属状態の電子構造の研究。
- (2) 圧力下でのフェルミ面，ギャップ，擬ギャップの研究。
- (3) "キャップ層"により表面成分を排除したバルク電子状態の研究。
- (4) 表面の安定性を利用した，金属-絶縁体転移の詳細な研究。
- (5) 界面に特有な強相関電子系の研究．界面磁性，の電子的再構成など。

3. 研究の方法

PLD 法で作製した酸化物薄膜単結晶試料について，角度分解光電子分光 (ARPES) を含む紫外線光電子分光，軟 X 線光電子分光，内殻軟 X 線吸収 (XAS) 線二色性の測定をおこなう．スペクトルの解析と，一軸性圧力下での軌道分極や磁性の変化の理解のために，バンド計算，クラスター計算を行う．

4. 研究成果

(1) 原子レベルで制御された表面をもつ酸化物薄膜 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ， $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ， $\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ のその場合角度分解光電子分光を行った． $\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ については，バルク結晶で電荷秩序形成のために抑制されていた化学ポテンシャルシフトが復活することを見出した． $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ， $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ に見られていた Mn 3d バンドの分散は，電子の局在のために消滅した．

(2) $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO) /Nb ドープ SrTiO_3 (Nb:STO) のヘテロ界面において生じる界面電気双極子の起源を明らかにするために LSMO/Nb:STO のバンドダイアグラムを光電子分光法により決定した．その結果，界面ダイポールの大きさは $x=0.4$ で最大値をとり， $x=1.0$ の $\text{SrMnO}_3/\text{Nb:STO}$ 界面では界面ダイポールの値が 0 になることを見出した．この結果は，界面電気双極子の起源として極性不連続が重要であることを示している．

(3) 金属・絶縁体転移 (MIT) の新しいアプローチとして，酸化量子井戸構造を用いた次元性制御による MIT を実現した． SrVO_3 (SVO) 超薄膜を SrTiO_3 (STO) 基板上に作製し，その膜厚を原子レベルで制御してその場合光電子分光を行った結果，これまで報告されていなかった d^1 電子配置をもつペロブスカイト V 酸化物の MIT を観測した (図 1)．理論計算とも比較した．

(4) 極性発散を用いて，絶縁体同士の界面に電子ばかりでなくホールをドーブできることを，バンド絶縁体 LaAlO_3 (LAO) とモット

絶縁体 LVO_3 (LVO) の界面について示した．LAO 層が薄くなるに従って，界面の V 原子の価数が V^{3+} から V^{3+} と V^{4+} の混合原子価に変化することが内殻光電子分光により示された (図 2)．

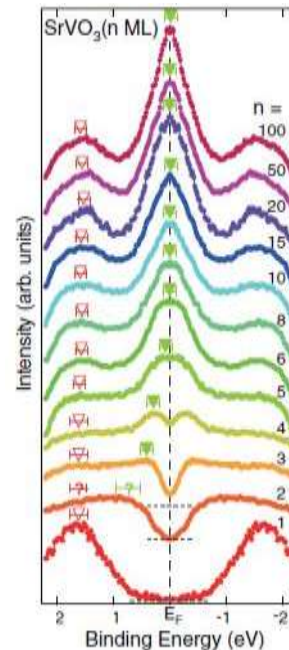


図 1 SrVO_3 (SVO) 超薄膜の光電子スペクトル．n は膜厚 (層数)．

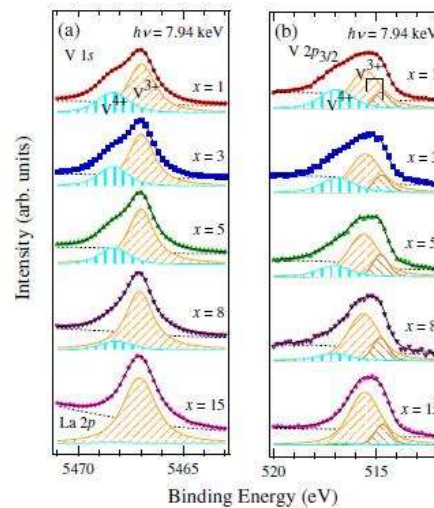


図 2 $\text{LaAlO}_3/\text{LVO}_3$ 界面の内殻光電子スペクトル．x は LaAlO_3 の膜厚 (層数)．

(5) 界面金属伝導が発現することから話題を呼んでいるバンド絶縁体 LaAlO_3 ， SrTiO_3 間のヘテロ界面について光電子分光測定を行った．その結果，極性 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 界面の極性不連続による電位発散を防ぐために SrTiO_3 の酸素欠損により生じたキャリアが界面に蓄積されることがその起源であることを

見出した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

1) K. Yoshimatsu, T. Okabe, H. Kumigashira, S. Okamoto, S. Aizaki, A. Fujimori and M. Oshima: Dimensional-crossover-driven metal-insulator transition in SrVO₃ ultrathin films, Phys. Rev. Lett. 104 (2010) 147601--1-4.

2) M. Takizawa, Y. Hotta, T. Susaki, Y. Ishida, H. Wadati, Y. Takata, K. Horiba, M. Matsunami, S. Shin, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, T. Ishikawa, A. Fujimori and H. Y. Hwang: Remote hole-doping of Mott insulators on the nanometer scale, Phys. Rev. Lett. 102 (2009) 236401--1-4

3) M. Takizawa, K. Maekawa, H. Wadati, T. Yoshida, A. Fujimori, H. Kumigashira and M. Oshima: Effects of electron-phonon coupling in angle-resolved photoemission spectra of Nb-doped SrTiO₃, Phys. Rev. B 79 (2009) 113103--1-4

4) K. Horiba, A. Maniwa, A. Chikamatsu, K. Yoshimatsu, H. Kumigashira, H. Wadati, A. Fujimori, S. Ueda, H. Yoshikawa, E. Ikenaga, J. J. Kim, K. Kobayashi, and M. Oshima: Pressure-induced change in the electronic structure of epitaxially strained La_{1-x}Sr_xMnO₃ thin films, Phys. Rev. B 80 (2009) 132406--1-4.

5) M. Minohara, Y. Furukawa, R. Yasuhara, H. Kumigashira, and M. Oshima: orientation dependence of the Schottky barrier height for La_{0.6}Sr_{0.4}MnO₃/SrTiO₃ heterojunctions, Appl. Phys. Lett. 94 (2009) 242106--1-3.

6) K. Yoshimatsu, K. Horiba, H. Kumigashira, E. Ikenaga, and M. Oshima: Thickness dependent electronic structure of La_{0.6}Sr_{0.4}MnO₃ layer in SrTiO₃/La_{0.6}Sr_{0.4}MnO₃/SrTiO₃ heterostructures studied by hard x-ray photoemission spectroscopy, Appl. Phys. Lett. 94 (2009) 01--1-3

7) H. Wadati, A. Maniwa, A. Chikamatsu, I. Ohkubo, H. Kumigashira, M. Oshima, A. Fujimori, M. Lippmaa, M. Kawasaki and H.

Koinuma: *In-situ* photoemission study of Pr_{1-x}Ca_xMnO₃ epitaxial thin films with suppressed charge fluctuations, Phys. Rev. Lett. 100 (2008) 026402--1-4

8) H. Kumigashira, M. Minohara, M. Takizawa, A. Fujimori, D. Toyota, I. Ohkubo, M. Oshima, M. Lippmaa and M. Kawasaki: Interfacial electronic structure of SrTiO₃/SrRuO₃ heterojunctions studied by *in situ* photoemissionspectroscopy, Appl. Phys. Lett. 92 (2008) 122105--1-3.

9) K. Yoshimatsu, R. Yasuhara, H. Kumigashira, and M. Oshima: Origin of metallic states at heterointerface between band insulators LaAlO₃ and SrTiO₃; Phys. Rev. Lett. 101 (2008) 026802--1-4

10) A. Chikamatsu, H. Wadati, H. Kumigashira, M. Oshima, A. Fujimori, M. Lippmaa, K. Ono, M. Kawasaki and H. Koinuma: Gradual disappearance of the Fermi surface near the metal-insulator transition in La_{1-x}Sr_xMnO₃, Phys. Rev. B 76 (2007) 201103(R)--1-4

[学会発表] (計 6 件)

1) H. Kumigashira: *In-situ* photoemission studies on oxide heterostructures, *11-th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure (ICES-11)*, (Nara, October 8 2009)

2) H. Kumigashira: *In-situ* Photoemission Studies on Oxide Heterostructures, *2009 Villa Conference on Complex Oxide Heterostructures (VC-COH)* (Ritz Carlton - St. Thomas, September 2009)

3) A. Fujimori: Photoemission spectroscopy of oxide multilayers and nano-particles, *Villa Conference on Complex Oxide Heterostructures (ViC-COH)*, (Orlando, November 2008).

4) A. Fujimori: Photoemission spectroscopy of complex oxide interfaces, *35th Conference on the Physics and Chemistry of Semiconductor Interfaces*, (Santa Fe, USA, January 2008).

5) A. Fujimori: Photoemission spectroscopy of interfaces in oxide multilayers, *2007 CERC International Symposium - Highlights and Perspectives of Correlated Electron Systems* (Akihabara, May 2007).

6)A. Fujimori: Photoemission spectroscopy of oxide interfaces, *Materials Research Society 2007 Spring Meeting* (San Fransisco, April 2007).

[その他]

ホームページ

<http://wyvern.phys.s.u-tokyo.ac.jp/f/Research/interface/interface.htm>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤森 淳 (大学院理学系研究科・教授)

研究者番号 : 10209108

(2) 研究分担者

組頭 広志 (大学院工学系研究科・准教授)

研究者番号 : 00345092