

令和元年6月3日現在

機関番号：82118

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14325

研究課題名(和文)遷移金属酸化物における2次元電子系に働く多体間相互作用の解明

研究課題名(英文) Many-body interactions on two-dimensional electronic states formed in transition-metal oxides

研究代表者

湯川 龍 (Yukawa, Ryu)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・特任助教

研究者番号：40759479

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、遷移金属酸化物表面への安定した電子ドーピング手法を確立し、角度分解光電子分光(ARPES)から得られる電子状態と電気伝導特性の両観点から、遷移金属酸化物表面における2次元電子状態に働く多体間相互作用の起源を明らかにした。具体的な研究成果は以下の通りである。
(1) アルカリ金属蒸着システムの開発により、遷移金属酸化物表面への電子ドーピング量精密制御手法を確立した。(2) アナターゼ型酸化チタン表面に形成される2次元電子状態に働く多体間相互作用の起源を明らかにした。(3) アナターゼ型酸化チタンにおける電子格子相互作用が表面とバルク間で異なることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

遷移金属酸化物においては電子輸送特性に対する多体間相互作用の寄与が大きいため、酸化物物質設計・物性制御においてキャリア密度に応じた詳細な多体間相互作用の解明が必要不可欠である。特に電子デバイスの微細化に伴う低次元系の研究において、表面・極薄膜での電子的振る舞いを理解する事が必要不可欠である。そのため、低次元系での電子の多体間相互作用を明らかにした本成果は高い重要性と発展性を持つものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：In this study, stable electron doping method on transition-metal oxide surfaces has been established, and many-body interactions in two-dimensional electronic states (2DES) formed in a transition-metal oxide have been elucidated both by angle-resolved photoemission spectroscopy and by electronic conductivity. The main results are as follows.
(1) We have developed an alkali-metal deposition system which enables a precise control of the electron doping on transition metal oxide surfaces. (2) The origin of many-body interactions in 2DES formed at an anatase TiO₂ surface has been clarified. (3) We found the difference in electron-phonon interactions between at the anatase TiO₂ surface and in the bulk.

研究分野：低次元電子物性

キーワード：角度分解光電子分光 酸化物 バンド構造 電子状態 多体間相互作用 表面

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

d 軌道を由来とする電子が物性を支配する遷移金属酸化物では、電子の局在性が強いいため多体間相互作用が顕著に現れる。そのため、遷移金属酸化物表面ではキャリア密度に依存した2次元電子液体-ガス転移や次元性に依存した金属-絶縁体転移が報告され、国内外に於いて精力的に研究が進められている。こうした電子状態を決定する上で角度分解光電子分光法 (ARPES) は非常に強力な実験手法であり、申請者はTi酸化物表面の多体間相互作用や金属-絶縁体転移、さらに軌道選択的量子化現象を明らかにしてきた。これまでの研究によって、代表的な遷移金属酸化物であるSrTiO₃表面において2次元電子の多体間相互作用がキャリア密度に大きく依存することが分かってきた。

一方近年、アナターゼ型酸化チタン (*a*-TiO₂) の表面において光照射による酸素欠陥に起因した2次元電子状態が形成されることが報告され、新たな量子物性探索の場として注目が集まっている。しかしながら、光照射では酸素欠陥(電子ドナー)の分布が一意に決まらないため、2次元電子状態由来の現象を特定することが難しいという問題がある。このような不確定性を回避し2次元電子状態の多体間相互作用を明らかにするためには、酸素欠陥に起因しない別の2次元電子状態形成手法が必要不可欠である。

2. 研究の目的

上記の背景から、新たな表面への電子ドーピング手法として、*a*-TiO₂表面へのポタシウム(K)吸着を行う。K吸着により*a*-TiO₂(001)表面に擬似的な電界効果型トランジスタ(FET)構造を形成させることで、よく定義された電子ドーピングを行い、表面に誘起された2次元電子状態をARPESより明らかにする。さらに、ARPESから、遷移金属酸化物表面における2次元電子状態に働く多体間相互作用の起源を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究を遂行するためには高品質酸化物試料の清浄面に対して安定した電子ドーピングを行う必要がある。そのため、実験は高エネルギー加速器研究機構(KEK)放射光実験施設(Photon Factory)の表面・界面解析ビームライン BL-2A MUSASHI ビームラインに設置した *in situ* 角度分解光電子分光-レーザー-MBE 複合装置を用いて行った。高品質 *a*-TiO₂ 薄膜をパルスレーザー堆積法によりLaAlO₃(001)上に作製し、電気伝導測定、X線回折測定、原子間力顕微鏡測定を用いて作製した試料の評価を行った。作製した試料表面に超高真空中でKを吸着させた。K吸着量は膜厚計を用いて精密制御した。K吸着前後で光電子分光測定を行い、表面キャリアドーピングに伴う電子状態の変化を捉えた。

4. 研究成果

(1) K吸着による*a*-TiO₂表面へ電子ドーピングと2次元的な金属状態の形成

軟X線を用いた内殻準位の光電子分光測定により、Kが*a*-TiO₂(001)表面一様に吸着されていることを確認した。図1(a)に真空紫外光を用いて測定されたK吸着前後の*a*-TiO₂表面のARPES結果を示す。Fermi準位近傍にはコヒーレントな金属状態が形成されている。K吸着によりFermi波数が増大することから、K吸着により*a*-TiO₂表面へ伝導電子として電子がドーピングされることが確認された。また、この金属状態では明確な量子化準位の形成が見取れる。これらのことから、K吸着により2次元的な金属状態が形成され、その2次元キャリア密度(n_{2D})を制御可能であることが分かった。さらに、詳細な解析の結果、この2次元的な金属状態は*a*-TiO₂表面から2nm以下の表面極近傍に閉じ込められており、擬2次元的な金属状態が形成されていることが明らかになった。

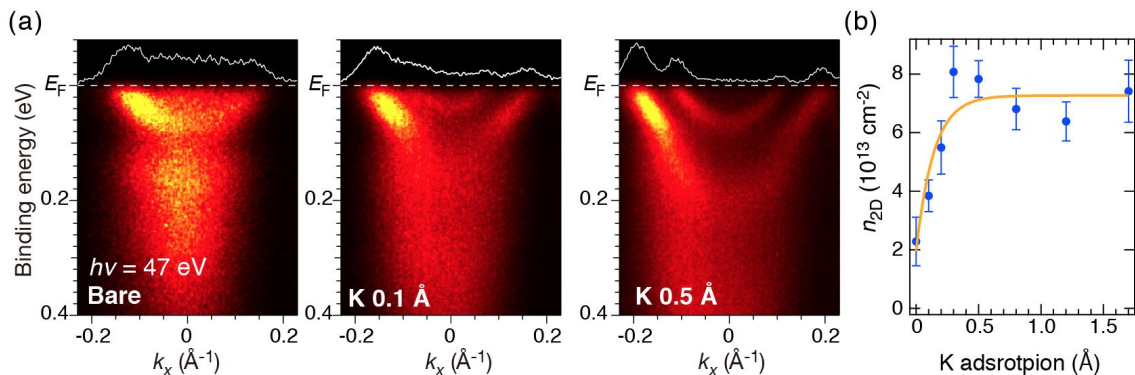


図1 (a) K吸着における*a*-TiO₂(001)表面のARPESイメージと(b)2次元キャリア密度の変化。

(2) 電子ドーピングに伴う電子格子相互作用の変化

図 1 (a) に示すようにコヒーレントな金属状態の高結合エネルギー側には電子格子相互作用に起因したサテライト構造が見られる。このサテライト構造の強度は電子ドーピングに伴い弱まることが確認された。このことから、電子ドーピングに伴い電子格子相互作用が遮蔽され、2次元電子状態がポーラン状態から Fermi 液体状態へとクロスオーバーすることが明らかになった。電子ドーピングによる電子格子相互作用の変化をより詳細に捉えるため、第一量子化準位が強く観測される条件で測定された ARPES イメージを図 2 に示す。どの K 吸着量においても、運動量分布曲線(MDC)のピーク位置が黒の曲線で示した2次関数的な bare バンドに対して、 $E_B = 80$ meV 近傍で明らかに折れ曲がっていることが確認された。この折れ曲がりのエネルギー位置から、電子と LO フォノンの相互作用が折れ曲がりに起因していることが分かった。詳細な解析の結果、この2次元電子状態において観測される折れ曲がりのエネルギー位置がバルクにおいて観測される折れ曲がりのエネルギー位置と異なることが明らかになった。この結果は、表面とバルク間で電子とフォノンの相互作用が異なることを示唆している。

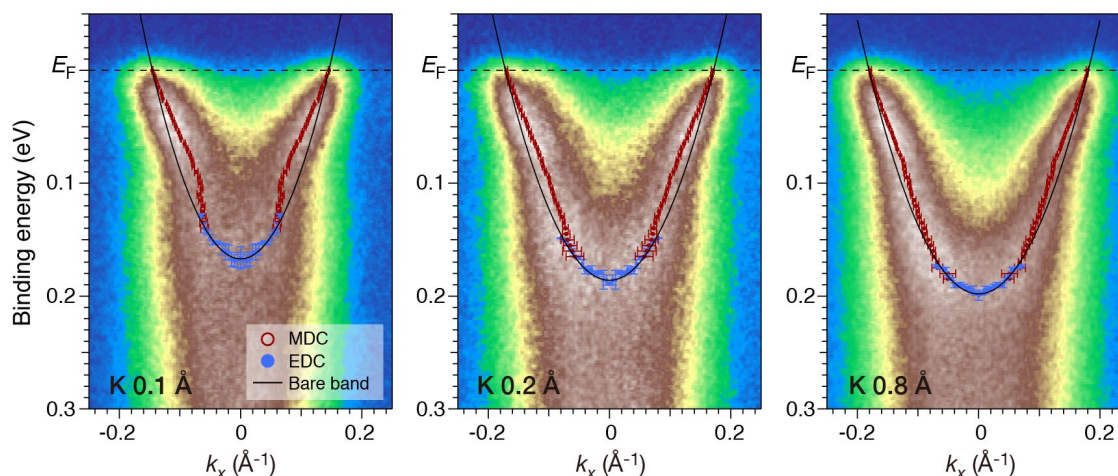


図 2 異なる K 吸着量における a-TiO₂ (001) 表面の ARPES イメージ。MDC のピーク位置とエネルギー分布曲線(EDC)のピーク位置をそれぞれ赤丸と青丸で示す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 6 件)

D. Shiga, M. Minohara, M. Kitamura, R. Yukawa, K. Horiba, and H. Kumigashira, “Emergence of metallic monoclinic states of VO₂ films induced by K deposition”, Phys. Rev. B **99**, 125120[1-7] (2019).

DOI: 10.1103/PhysRevB.99.125120 査読有

R. Yukawa, M. Minohara, D. Shiga, M. Kitamura, T. Mitsuhashi, M. Kobayashi, K. Horiba, and H. Kumigashira, “Control of two-dimensional electronic states at anatase TiO₂ (001) surface by K adsorption”, Phys. Rev. B **97**, 165428[1-8] (2018).

DOI: 10.1103/PhysRevB.97.165428 査読有

T. C. Rödel, J. Dai, F. Fortuna, E. Frantzeskakis, P. Le Fèvre, F. Bertran, M. Kobayashi, R. Yukawa, T. Mitsuhashi, M. Kitamura, K. Horiba, H. Kumigashira, and A. F. Santander-Syro, “High-density two-dimensional electron system induced by oxygen vacancies in ZnO”, Phys. Rev. Mater. **2**, 051601(R)[1-7] (2018).

DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.051601 査読有

K. -W. Chen, N. Aryal, J. Dai, D. Graf, S. Zhang, S. Das, P. Le Fèvre, F. Bertran, R. Yukawa, K. Horiba, H. Kumigashira, E. Frantzeskakis, F. Fortuna, L. Balicas, A. F. Santander-Syro, E. Manousakis, R. E. Baumbach, “Converting topological

insulators into topological metals within the tetradymite family” , Phys. Rev. B **97**, 165112[1-9] (2018).

DOI: 10.1103/PhysRevB.97.165112 査読有

Y. Ohtsubo, K. Hagiwara, C. Wang, R. Yukawa, K. Horiba, H. Kumigashira, W. Hirano, F. Iga, and S.-i. Kimura, “ Surface electronic structure of $\text{SmB}_6(111)$ ” , Phys. B Condens. Matter **536**, 75-77 (2018).

DOI: 10.1016/j.physb.2017.09.033 査読有

M. Kobayashi, K. Yoshimatsu, T. Mitsuhashi, M. Kitamura, E. Sakai, R. Yukawa, M. Minohara, A. Fujimori, K. Horiba, and H. Kumigashira, “ Emergence of Quantum Critical Behavior in Metallic Quantum-Well States of Strongly Correlated Oxides ” , Scientific Reports **7**, 16621[1-7] (2017).

DOI: 10.1038/s41598-017-16666-x 査読有

〔学会発表〕（計5件）

R. Yukawa et al., In-situ Angle-Resolved Photoemission Studies of the Quasi-Two-Dimensional Electron Liquid States Formed at Anatase TiO_2 (001) Surface by K Adsorption, ACSIN-14 & ICSPM26, 2018

湯川龍他、K吸着による Anatase TiO_2 (001)表面の2次元電子状態制御、表面・界面スペクトロスコープ2018、2018

湯川龍他、K吸着による Anatase TiO_2 (001)表面の2次元電子状態制御、2017年度量子ビームサイエンスフェスタ、2018

湯川龍他、光触媒作用をもつアナターゼ型 TiO_2 表面に誘起される機能解析:電子状態と表面構造、第3回 元素戦略<研究拠点形成型>・大型研究施設携シンポジウム、2018

R. Yukawa et al. Two-dimensional electron liquid states at the K-adsorbed anatase- TiO_2 (001) surface, International Workshop on Oxide Electronics (iWOE-24), 2017

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

出願状況（計0件）

取得状況（計0件）

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究分担者

該当者なし

(2)研究協力者

該当者なし

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。