

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 15 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26610093

研究課題名(和文)原子分解能で見る酸化物薄膜のバックゲート誘起による強相関・トポロジカル量子相転移

研究課題名(英文)Atomic scale visualization of phase transitions driven by back-gating

研究代表者

岡田 佳憲 (Okada, Yoshinori)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教

研究者番号：00707656

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：走査トンネル顕微鏡を用いたトンネル分光(STM/STS)とバックゲートによる電子状態制御を融合することで、相転移に伴う多様な物理現象をミクロとマクロから統一的に理解できる。このようなアプローチを電子同士が強く相関した遷移金属酸化物へ適用することには大きな意義があるが、そのためには高度な薄膜表面の作製技術が要求される。本研究では、波として振舞う電子を反映した“干渉パターン”を示す高品質な遷移金属酸化物薄膜SrVO<sub>3</sub>(001)の表面を作製することに成功した。今後、バックゲート誘起の相転移を、STM/STS計測で捉えるための高品質な薄膜表面を作製する基盤を着実に構築することが出来た。

研究成果の概要(英文)：Combining spectroscopic imaging scanning tunneling microscopy (STM/STS) with back-gating technique will provide us a great opportunity to visualize electronic evolution across phase transitions at the atomic scale. Particularly interesting system is correlated transition metal oxides, in which rich nanoscale electronic heterogeneity exists. However, the high quality epitaxial thin film surfaces of transition metal oxides are demonstrated little at the atomic level. In this study, we have succeeded to prepare SrVO<sub>3</sub>(001) film surfaces, on which we clearly see quantum mechanically interfering electronic states. This advancement is the essential step for further development of STM/STS combined with back-gating approach.

研究分野：物性物理

キーワード：量子物性 薄膜 走査トンネル顕微鏡

## 1. 研究開始当初の背景

### (1) バックゲートによる物性制御

ゲート電極による外部電場の印加で、材料のキャリアドーピングレベルを変調することができ、これによって多様な電子相転移を操ることが可能である。さらに、バックゲートによる外部電場の印加で、一般的な絶縁体からトポロジカル絶縁体への相転移(トポロジカル相転移)も誘起できる可能性もある。

本研究で重要視する着眼点は、相転移に伴う電子状態の変化を原子レベルで観測することである。例えば、多くの強相関遷移金属酸化物ではナノスケールでの相分離状態の理解の重要性が指摘されている。さらに、2次元トポロジカル絶縁体でのトポロジカル相転移では、エッジに局在した1次元金属状態の観測が重要な意義を持つ。電子状態の空間分布を詳細に調べることが出来る最も強力な手法が走査トンネル顕微鏡を用いたトンネル分光(STM/STS)である。

### (2) STM/STS 計測とバックゲートによる物性制御の融合

ゲート電極を用いた電界効果による物性制御と、STM/STS による原子レベル電子状態イメージングを高度に融合できれば、複雑な相転移に伴う物理現象を、原子レベルに及ぶミクロな観点から詳細に理解することが出来る。今まで、STM/STS 計測と、バックゲートによるドーピング変調を融合する試みはグラフェンやカルコゲン系化合物で報告されている。このようなアプローチを、強相関遷移金属酸化物で実現することには大きな意義があり、物性科学における研究の裾が広がる。

バックゲートによる電界効果の影響を、STM/STS 計測でプローブする試料表面にまで十分に及ばせるため、試料は薄膜である必要がある。つまり、高度な遷移金属酸化物薄膜の作製技術が要求される。特に、STM/STS 計測によるインパクトを最大化させるという観点では、波として振舞う電子の情報(波数  $k$ )を捕らえることができる高品質な薄膜表面が必要になる。波として振舞う結晶表面の電子は“干渉効果パターン”を作り出し、そのパターンを解析することで波数  $k$  の情報を

得ることが出来る。

## 2. 研究の目的

研究を開始する当初、本研究の構想に耐える高品質な遷移金属薄膜表面の実証が皆無に近かった。例えば、STM/STS 計測によって遷移金属酸化物薄膜表面の“干渉効果パターン”を観測した報告は存在しない状況であった。実際、遷移金属酸化物薄膜表面における“干渉効果パターン”の実現とその観測の困難さは、研究を進める過程でも痛感するところであった。腰を据えた地道な研究の展開によって、課題を一つずつ着実に解決していく必要があると判断した。そこで、以下の2点の条件

① 明瞭な原子像が得られること

② 干渉パターンが観測できること

を満たす酸化物薄膜表面を作成することを期間中の目的に設定した。なお、最終的には、バックゲートで誘起した相転移をSTM/STSで調べることが念頭にあるため、誘電率が極めて高いSrTiO<sub>3</sub>を基板とし、その上にエピタキシャル薄膜を成長させることを出発点とした。

## 3. 研究の方法

### (1) 着眼する薄膜: SrVO<sub>3</sub>(001)

成膜を行う物質として、SrVO<sub>3</sub>(001)に着眼した。SrVO<sub>3</sub>(001) エピタキシャル薄膜表面に対する角度分解光電子分光(ARPES)スペクトルでは、他のペロブスカイト酸化物では類の見ない極めてシャープな準粒子ピークが観測されている。

### (2) SrVO<sub>3</sub>(001) 薄膜の作製方法

SrVO<sub>3</sub>(001)エピタキシャル薄膜をパルスレーザー堆積法(PLD)で作製した(基板温度 800°C、真空度  $5 \times 10^{-8}$  Torr)。なお、最終的にはノンドープの SrTiO<sub>3</sub>(001)基板を使用するが、上記の目的を効率的に達成するために、STM/STS 計測が比較的容易に行えるNbをドープした SrTiO<sub>3</sub>(001)基板を使用した。

### (3) 電子状態イメージング

STM/STS 計測を行うチャンバーと成膜チャンバーは超高真空で連結された実験装置を使用した。これによって、作製した薄膜の表面を大気暴露することなく STM/STS 計測できた。

トポグラフ像と共に、局所状態密度(LDOS)の空間分布をSTM/STS計測で調べた。なお、測定は液体He温度で行った。

#### 4. 研究成果

##### (1) ステップ・テラス構造と原子像

成膜中の基板温度や酸素分圧など、最適条件を割り出すことで反射低速電子線回折(RHEED)パターンの振動を伴う薄膜成長を実現した(図1a, b)。表面のトポグラフ像にはステップ・テラス構造が観測でき、高空間分解能の測定では原子像を反映したコントラストを明確に観測した(図1c, d)。この構造は、第一原理計算との比較検討から、50%の頂点酸素サイトが占有されている構造であることがわかった(図1e)。

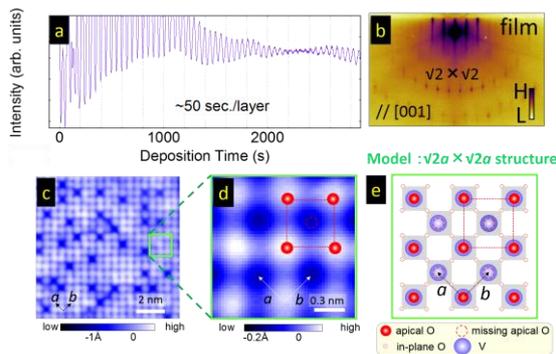


図1 : SrVO<sub>3</sub>(001)の初期成長過程の(a) 反射低速電子線回折(RHEED)振動と、(b)成膜後のRHEEDパターン。走査トンネル顕微鏡(STM)によるトポグラフ像(c, d)とそのモデル(e)。

##### (2) 準粒子干渉パターンの観測

最も重要な点は、SrVO<sub>3</sub>(001)表面において、電子の量子力学的な干渉パターンを観測することに成功したことである(図2)。干渉効果は、まさに波として振舞う電子の性質を反映したものであり、干渉パターンの可視化は単純ペロブスカイト酸化物(ABO<sub>3</sub>)表面では初めての成果となった。

##### (3) 理論的考察

正方晶であるSrVO<sub>3</sub>の表面で、干渉効果が発現するメカニズムを理論的に考察した。表面ではt<sub>2g</sub>軌道の縮退が解け、d<sub>xy</sub>軌道が安定化することが電子の干渉パターンを実現させている理由であることを明らかにした。

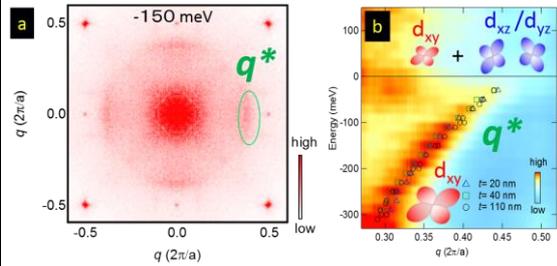


図2 : サンプルバイアス  $V_s = -150\text{mV}$  で得られたコンダクタスマッピング  $dI/dV(r)$  のフーリエ変換画像(a)。干渉パターンのエネルギー依存性(b)。

##### (4) 膜厚依存性

バックゲートによる相転移という観点から、SrVO<sub>3</sub>の超薄膜に興味を持たれる。超薄膜のSrVO<sub>3</sub>は、Mott絶縁体になることが理論的に予想されている。さらに、このMott絶縁体状態はゲート電極による電解効果で金属化できると考えられている。本研究でも10ユニットセル以下の膜厚で、成膜を行った。膜厚を薄くするに伴い、厚い膜の場合(図3bの青線)と比較するとE<sub>F</sub>近傍の状態密度が強く抑制されたスペクトルが観測できた(図3bの赤線)。ここで、表面の構造は厚い膜で観測されている $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$ 構造(図1c-e)とは異なり、 $\sqrt{5} \times \sqrt{5}$ 構造が観測された(図3a)。今後、バックゲート誘起のMott転移を原子レベルでイメージングすることを目指し、更なる超薄膜化と共に、 $\sqrt{5} \times \sqrt{5}$ 構造の起源も含めて研究を進める必要がある。

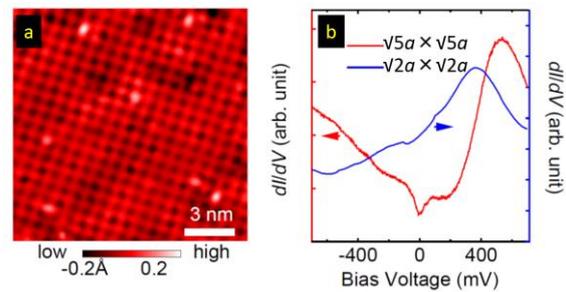


図3 : (a)約10ユニットセル以下の厚さのSrVO<sub>3</sub>(001)表面で観測される $\sqrt{5} \times \sqrt{5}$ 構造を示すトポグラフ像。(b) $\sqrt{5} \times \sqrt{5}$ 構造上でのスペクトルと、準粒子干渉が観測されている20nm以上の厚さで観測される $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$ 構造のスペクトルの比較。

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)

[学会発表] (計7件)

(1)

学会名: Special symposium for American Vacuum Society (AVS) Taiwan Chapter focusing on 2D materials and topological insulators

(Jan., 25-27, 2016, National Sun Yat-sen University, Kaohsiung, Taiwan)

タイトル: Visualization of quasiparticle interference on cubic perovskite oxide surface

Yoshinori Okada

(2)

学会名: ICMAT2015 - the 8th Biennial International Conference on Materials for Advanced Technologies Symposium, "Functional Spin-Orbit Coupling Materials"

6月

(28 June to 3 July, 2015 in Singapore)

タイトル: Visualization of Quasiparticle Interference on the Surface of SrVO<sub>3</sub> Film

Yoshinori Okada

(3)

学会名: 日本物理学会 2015年春期  
早稲田大学(東京都)

タイトル: 走査トンネル顕微鏡を用いた SrVO<sub>3</sub> 薄膜の電子状態研究(III)

岡田佳憲, T. R. Chang, 清水亮太, G. Chang, H. T. Jeng, 白木将, H. Lin, 一杉太郎

(4)

学会名: American Physical Society (March 2-6, 2015; San Antonio, Texas)

タイトル: Visualization of quasiparticle interference on the surface of SrVO<sub>3</sub> film

Yoshinori Okada, T. R. Chang, R. Shimizu, G. Chang, H. T. Jeng, S. Shiraki, H. Lin, T. Hitosugi

(5)

学会名: SPIE Photonics West OPTO 2015  
(Feb. 7-12, 2015, in California, US)

タイトル: Direct visualization of atomic and electronic structure on perovskite oxide film surface

Yoshinori Okada

(6)

学会名: 日本物理学会 2014年秋期  
中部大学(春日井市・愛知県)

タイトル: 走査トンネル顕微鏡を用いた SrVO<sub>3</sub> 薄膜の電子状態研究(II)

岡田佳憲, T. R. Chang, 清水亮太, G. Chang, H. T. Jeng, 白木将, H. Lin, 一杉太郎

(7)

学会名: 日本物理学会 2014年春期  
東海大学(湘南・神奈川)

タイトル: 走査トンネル顕微鏡を用いた SrVO<sub>3</sub> 薄膜の電子状態研究(I)

岡田佳憲, 清水亮太, 白木将, 一杉太郎

6. 研究組織

(1)研究代表者

岡田 佳憲 (Yoshinori Okada)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教

研究者番号: 00707656