

角度分解光電子分光による SrVO₃ 極薄膜の電子状態
Electronic states of SrVO₃ ultrathin films
studied by angle-resolved photoemission spectroscopy

吉松公平^{1,2,*}, 坂井延寿¹, 小林正起¹, 堀場弘司¹, 吉田鉄平², 藤森淳², 尾嶋正治^{3,4}, 組頭広志^{1,5}

¹放射光科学研究施設, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

²東京大学大学院理学系研究科, 〒113-0033 東京都文京区本郷 7-3-1

³東京大学大学院工学系研究科, 〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

⁴東京大学放射光連携機構, 〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

⁵JST さきがけ, 〒332-0012 埼玉県川口市本町 4-1-8

Kohei Yoshimatsu^{1,2,*}, Enju Sakai¹, Masaki Kobayashi¹, Koji Horiba¹, Teppei Yoshida¹,
Atsushi Fujimori¹, Masaharu Oshima^{3,4}, and Hiroshi Kumigashira^{1,5}

¹KEK-PF, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

²Department of Physics, University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Tokyo, 113-0033, Japan

³Department of Applied Chemistry, University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Tokyo, 113-8656, Japan

⁴Synchrotron Radiation Research Organization, University of Tokyo, Hongo, Tokyo, 113-8656, Japan

⁵JST-PRESTO, 4-1-8 Honchou, Kawaguchi, 332-0012, Japan

1 はじめに

強相関酸化物薄膜では、その膜厚を薄くしていくとバルクとは異なる物性を取ることが多数報告されている。その1つが膜厚依存の金属絶縁体転移 (MIT) である。この MIT は各々の臨界膜厚にばらつきはあるものの、伝導性強相関酸化物薄膜では例外なく観測されている。その起源として薄膜の低次元化に伴う量子化が提唱されている[1]が、未だ統一的に理解されていない。そこで本研究では、典型的な強相関伝導性酸化物である SrVO₃ (SVO) を用いて、極薄膜の電子状態を観測することで次元性の低下が系に与える影響を明らかにするとともに膜厚依存 MIT の起源解明を目的とした。

2 実験

実験は BL28A で、我々が建設改良を行っているレーザー分子線エピタキシー & *in-situ* 光電子分光複合装置[2]を用いて行った。2-5 ML の SVO 極薄膜はパルスレーザー堆積法により基板温度 950°C、真空度 $\sim 10^{-8}$ Torr の条件で Nb-SrTiO₃ (001) 基板上に作製した。SVO 薄膜の膜厚は高速電子線回折による回折スポットの強度振動により制御した。角度分解光電子 (ARPRS) 測定は直線偏光を用いて $h\nu = 88$ eV、測定温度 20 K で行った。スペクトルの全エネルギー分解能はおよそ 30 meV に設定した。

3 結果および考察

図 1 に (2-5 ML) の SVO 極薄膜の垂直放出方向の ARPES スペクトルを示す。SVO 膜厚が薄くなると、フェルミ準位 (E_F) 上の状態密度が減少し 2ML で完全に消失している様子が見て取れる。これは 2-3ML で SVO 極薄膜が金属絶縁体転移を起こしてい

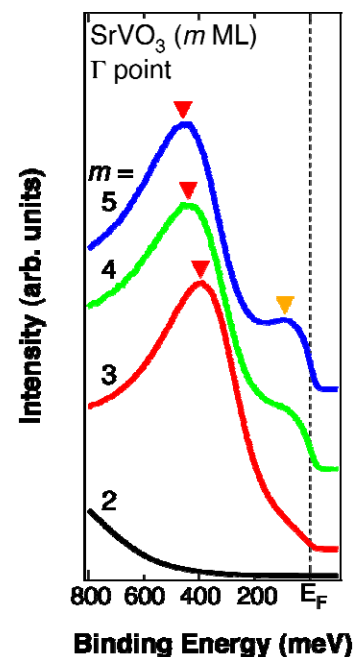


図 1 : 2-5 ML の SVO 極薄膜の垂直放出方向の角度分解光電子スペクトル。観測されたピークの位置を色付き三角形で示す。

ることを意味しており、過去の角度積分光電子分光による結果と一致する[3]。一方で、SVO 薄膜の膜厚が 3 ML 以上ではスペクトル上にピーク構造があることが見て取れる。これら観測されたピークの起源を明らかにするため、SVO 薄膜の膜厚が 5 ML 以上で量子化状態由来の構造が観測されていること[4]を考慮して、2-5 ML の SVO においても位相シフ

ト量子化則によるピーク位置のシミュレーションを行った。その結果を図 2 に示す。4 ML と 5 ML の SVO では ARPES スペクトルで観測されたピーク位置が位相シフト量子化則によるシミュレーションで再現できていることから、SVO 極薄膜の膜厚が 4 ML 以上では量子井戸による電子状態の記述が適当であると考えられる。一方で、3 ML 以下はピーク位置が再現できていない。これは、3 ML の SVO ではその膜厚が薄すぎるため定在波が立たず、量子井戸状態は成り立たないことを示唆している。そこでこの電子状態の起源を明らかにするため、より強い局在状態を仮定した単純 Hückel 法を応用した電子状態シミュレーションを行った。ここでは V 3d 電子が二次元の SVO 層内はバルクと同様に動き、層間は移動積分 t_z でホッピングすると仮定した。得られた局在状態のピーク位置を図 2 に示す。Hückel 法によるシミュレーション結果は、3 ML の SVO のピーク位置を良く再現している。これは V 3d 電子の局在が非常に強くなっていることを意味しており、図 1(a)の E_F 上の状態密度の減少も同様に理解できる。

以上の結果を元に、膜厚依存 MIT の起源を考察すると以下ようになる。金属絶縁体転移の臨界膜厚である 3 ML において、その電子状態は量子井戸ではなく、Hückel 法の範疇で記述できる局在状態であることから、金属絶縁体転移は軌道選択的な量子化に伴うモット絶縁化[4]ではなく、次元性の低下による V 3d 電子の局在化によるものと考えられる。

4 まとめ

典型的な強相関伝導性酸化物である SVO を用いて ARPES により極薄膜の電子状態を観測し、次元性の低下が系に与える影響を調べた。その結果、4 ML 以上の SVO 極薄膜ではその電子状態は位相シフト量子化則で記述できる量子化状態であった。しかしながら、膜厚依存 MIT の臨界膜厚である 3 ML においては、量子井戸による電子状態の描像は破綻しており、Hückel 法で記述できる局在状態が電子状態を支配している。以上から、SVO における膜厚依存 MIT は次元性の低下による V 3d 電子の局在化によるものと考えられる。

参考文献

- [1] J. Liu *et al.*, Phys. Rev. B **83**, 161102(R) (2011).
- [2] K. Horiba *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **74**, 3406 (2003).
- [3] K. Yoshimatsu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 147601 (2011).
- [4] K. Yoshimatsu *et al.*, Science **333**, 319 (2011).

* k-yoshi@apc.titech.ac.jp

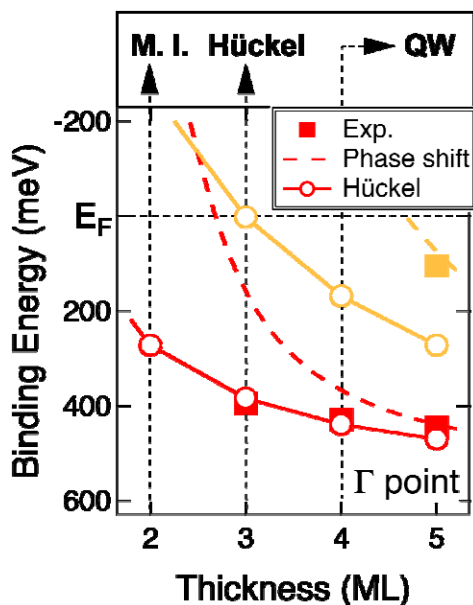


図 2 : 2-5 ML の SVO 極薄膜の Structure plot。図 1 の ARPES によるピーク位置と位相シフト量子化則および Hückel 法によるシミュレーション結果がプロットされている。