

## ルチル型遷移金属酸化物の角度分解光電子分光測定 ARPES study of rutile-type transition metal oxides

村岡祐治<sup>1,\*</sup>, 長尾浩樹<sup>1</sup>, 脇田高德<sup>1</sup>, 小野寛太<sup>2</sup>

<sup>1</sup>岡山大学院自然科学, 〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1

<sup>2</sup>放射光科学研究施設, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

Yuji Muraoka<sup>1,\*</sup>, Hiroki Nagao<sup>1</sup>, Takanori Wakita<sup>1</sup>, Kanta Ono<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Okayama University, 3-1-1 Tsushimanaka, Kita-ku, Okayama 700-8530, Japan

<sup>2</sup>Photon Factory, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

### 1 はじめに

VO<sub>2</sub>の示す金属絶縁体転移(転移温度 340K)は、その起源に長く興味もたれている。この転移の起源を電子状態の立場から解明しようと、単結晶を用いた角度分解光電子分光(ARPES)測定が試みられてきた。しかし3次元物質であるVO<sub>2</sub>はへき開面が化学的に安定ではなく、また、転移の際に体積が大きく変化し結晶が割れやすい問題も加わり、ARPES測定は困難を極めていた。ところが最近、パルスレーザー堆積法によりTiO<sub>2</sub>基板上に堆積したVO<sub>2</sub>エピタキシャル成長膜を用いると上記のような単結晶での問題が生じず、光電子分光(PES)測定ができることが報告された。VO<sub>2</sub>エピタキシャル成長薄膜が光電子分光測定に有効であることがわかる。そこで我々はVO<sub>2</sub>エピタキシャル成長膜を用いてARPES測定を行うことによりVO<sub>2</sub>のバンド分散の観測を目指した。本研究では金属相 $\Gamma$ -X方向を測定対象とした。この方向には、フェルミ準位を横切る複数のバンドの存在が理論計算より予想されている。また、この方向を含む金属相 $\Gamma$ XRZフェルミ面にはネステイングベクトルの存在が予想されている。金属相 $\Gamma$ -Xにおけるバンド分散の観測は、パイエルズ転移説の検証につながる。

### 2 実験

VO<sub>2</sub>薄膜はKrFエキシマレーザー(波長248 nm)を用いたパルスレーザー堆積法(PLD法)によりTiO<sub>2</sub>基板(001)面上に作製した。作製したVO<sub>2</sub>薄膜の物性評価は低速電子線回折観測(LEED)と光電子分光測定により行った。

金属相 $\Gamma$ -Z方向のARPES測定は、KEK PFBL28Aの軟X線角度分解光電子分光装置により行った。測定時の試料温度は350K(金属相)で、入射光のエネルギーは150eV~230eVまで変化させながら測定した。全エネルギー分解能は100 meVであった。

### 3 結果および考察

図1に入射光エネルギー155 eVで測定した光電子スペクトルのフェルミ準位近傍の強度変化を示す。

また、各結合エネルギーにおけるMDCもあわせて示した。なお、このエネルギーは、フェルミ面における第4ブリルアンゾーンの $\Gamma$ 点を与える。 $E_B = 0.2 \sim 0.4$  eVの構造はV 3dバンドによるものである。 $E_F$ 上のMDCをみると、その形状はブロードであった。この3組のピーク対を仮定してフィティングすると、実験スペクトルをよく再現した。現在、他の結合エネルギーのMDCについても同様な解析を行っている。得られる結果は、 $\Gamma$ -X方向のバンド構造を理解する一歩となるだろう。

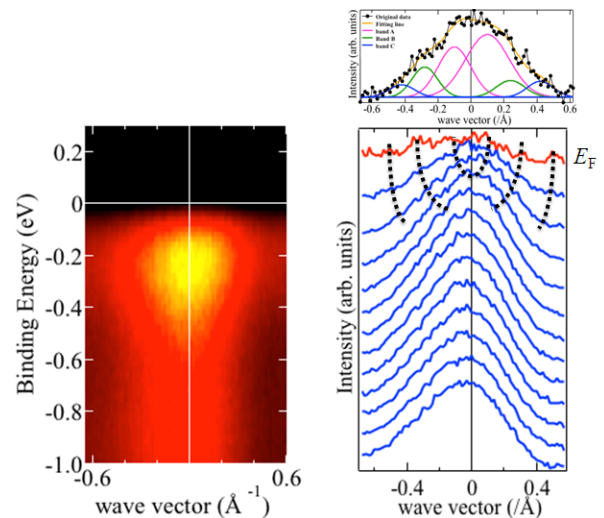


図1:  $\Gamma$ -X方向のE-kマップ(左)とそのMDC(右)

今回の実験で、VO<sub>2</sub>薄膜の活用がARPES測定にある程度有効であることがわかった。しかし、課題も見つかった。今回得られたMDCはブロードであり、明瞭なピーク構造は観測できなかった。ピーク構造の判定が困難な理由は、 $k_x = 0$ 付近にピークを持つ、ブロードなバックグラウンドのためである。ピーク構造を観測するには、このバックグラウンドの起源解明とその軽減への対処が必要である。バックグラウンドの起源として、表面構造の乱れが考えられる。実験では、一度大気暴露した試料を用いている。こ

のため試料表面には水などが吸着している。アニールにより表面清浄化を図ってはいるものの、汚れを十分に取りきれていないのかもしれない。このような吸着物が表面の汚染、構造の乱れを引き起こし、結果として高いバックグラウンドを生み出している可能性がある。これには、アニール条件を最適化することで対処が可能になる。また、バルク敏感な測定をすれば、状況が改善すると期待される。

#### 4 まとめ

VO<sub>2</sub> 薄膜を用いて金属相Γ-X 方向の ARPES 測定を行った。現在得られたスペクトルの MDC を解析している最中である。

今回の実験で VO<sub>2</sub> 薄膜の ARPES 測定への有効性がある程度確認できた。しかし、課題も見つかった。ARPES スペクトルのバックグラウンドをできるだけ低く抑えることである。今後、バックグラウンド発生の原因を究明し、適切な対処をすることが、VO<sub>2</sub> 薄膜における APRES 測定への成功の鍵となる。

#### 成果

学会発表（国内）2 件

##### 1. VO<sub>2</sub> 単結晶薄膜の金属相における角度分解光電子分光

長尾浩樹・村岡祐治・石賀敏彦・坪田幸士・脇田高德・小野寛太・組頭広志・横谷尚睦  
日本物理学会 2012 年秋季大会  
横浜国立大学常盤台キャンパス（神奈川）口頭発表

##### 2. Angle-resolved photoemission spectroscopy measurements for metallic VO<sub>2</sub> thin films

H. Nagao, Y. Muraoka, T. Ishiga, K. Tubota, T. Wakita, T. Yokoya, K. Ono, H. Kumigashira  
International Symposium on Physics and Chemistry of Novel Superconductors and Related Materials  
Faculty of Science, Okayama University,  
(Okayama, Japan) Poster

\*ymuraoka@cc.okayama-u.ac.jp