

PLD 法作製 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 薄膜の in-situ 光電子分光

東大院工、東大物性研^A、高工研^B、東北大金研^C、東工大応セラ研^D

組頭広志、堀場弘司、小林大介、大口裕之、谷内敏之、岡林潤、尾嶋正治、
中川直之^A、大西剛^A、Mikk Lippmaa^A、小野寛太^B、川崎雅司^C、鯉沼秀臣^D

銅酸化物における高温超伝導や Mn 酸化物における超巨大磁気抵抗効果等、強相関遷移金属酸化物は非常に興味深い物性を示す。近年、レーザー-MBE 製膜技術の急速な進歩によって、原子レベルで平坦な表面・界面を持つこれらの酸化物薄膜・人工格子の作成が可能となってきた。このレーザー-MBE 製膜技術と放射光光電子分光を組み合わせることにより、清浄かつ結晶性の良い酸化物単結晶表面を作製し、その角度分解光電子分光 (ARPES) が可能である。これにより、これまで劈開性を持たないが故に不可能であった 3 次元物質のバンド構造が実験的に決定できる。エピタキシャル応力の異なる基板上に薄膜を作製し、2 軸性圧力下での光電子分光測定が可能である。自然界には存在しない人工格子等の新規物質を作製し、その光電子分光測定が可能である。特に、ナノ・ドット (0 次元)、ナノ・ワイヤー (1 次元)、量子井戸 (2 次元) 構造を作製することにより、次元性が電子状態に与える影響を調べることができる。

これらを実現するために、現在我々は KEK-PF において、レーザー-MBE 装置と光電子分光装置を超高真空下で連結した「レーザー-MBE-光電子分光複合装置」の開発を行っている。図 1 に装置の模式図を示す。装置は、「レーザー-MBE」、「試料評価槽」、「光電子測定槽」の主に 3 つの部分からなる。レーザー-MBE により表面を原子レベルで制御した薄膜を作製し、試料評価槽において LEED および Auger で表面の結晶性および清浄性を評価した後、光電子測定槽に搬送する。光電子分光装置の現在の性能としては、エネルギー分解能 6meV、角度分解能 0.2° を達成している。さらに、ステップングモーター制御のマニピュレーターを用いることにより、自動角度・位置測定が可能である。また、レーザー-MBE では、マスクパターンとターゲット回転を組み合わせることにより、同一基板上に異なる薄膜を複数同時成長可能であり、これを上記のマニピュレータと組み合わせることによ

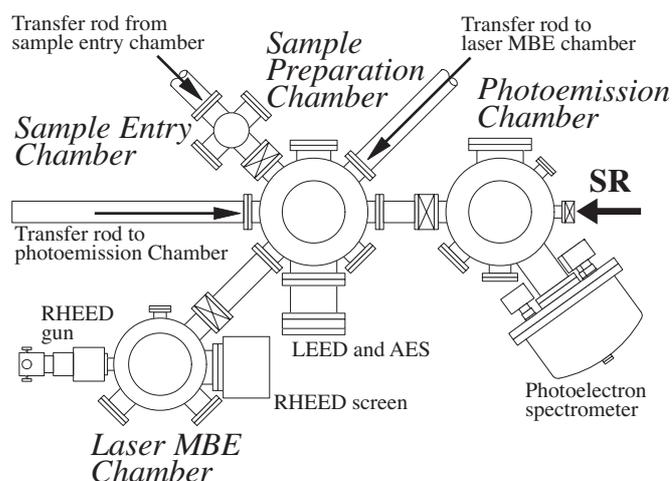


図 1. *in situ* レーザー-MBE-光電子分光装置の模式図

って、組成・バンド幅・次元性といった電子論的パラメーターの異なる薄膜試料の電子状態の一括マッピングが可能である。

図2に本装置を用いて測定した $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO; $x=0.4, 0.55$) 薄膜の LEED パターンと ARPES 測定の結果を示す。LSMO は超巨大磁気抵抗効果に代表される特異物性を示すことから精力的な研究が行われているが、清浄単結晶表面が劈開等の従来の手法では得られないため、これまで ARPES 測定の報告例はない。レーザー-MBE 法により $\text{SrTiO}_3(001)$ 基板の上にエピタキシャル成長させた $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 単結晶表面の LEED パターンには、明瞭な 1×1 構造と超格子構造が観測されることから、ARPES 測定に必要な清浄かつ結晶性のよい単結晶表面が得られていることがわかる。さらに、これらの清浄表面において得られた *in-situ* ARPES スペクトルに明確な励起光依存性が見られることから、本測定が角度分解測定になっていることが分かる。また、LSMO $x=0.4$ から $x=0.55$ にかけて、バンド分散が低結合エネルギー側へ Rigid に約 100meV シフトしている様子が明確に観測された。この結果は、LSMO 薄膜におけるホールドーピングによる電子構造の変化は、基本的に Rigid バンド描像で記述できることを示している。

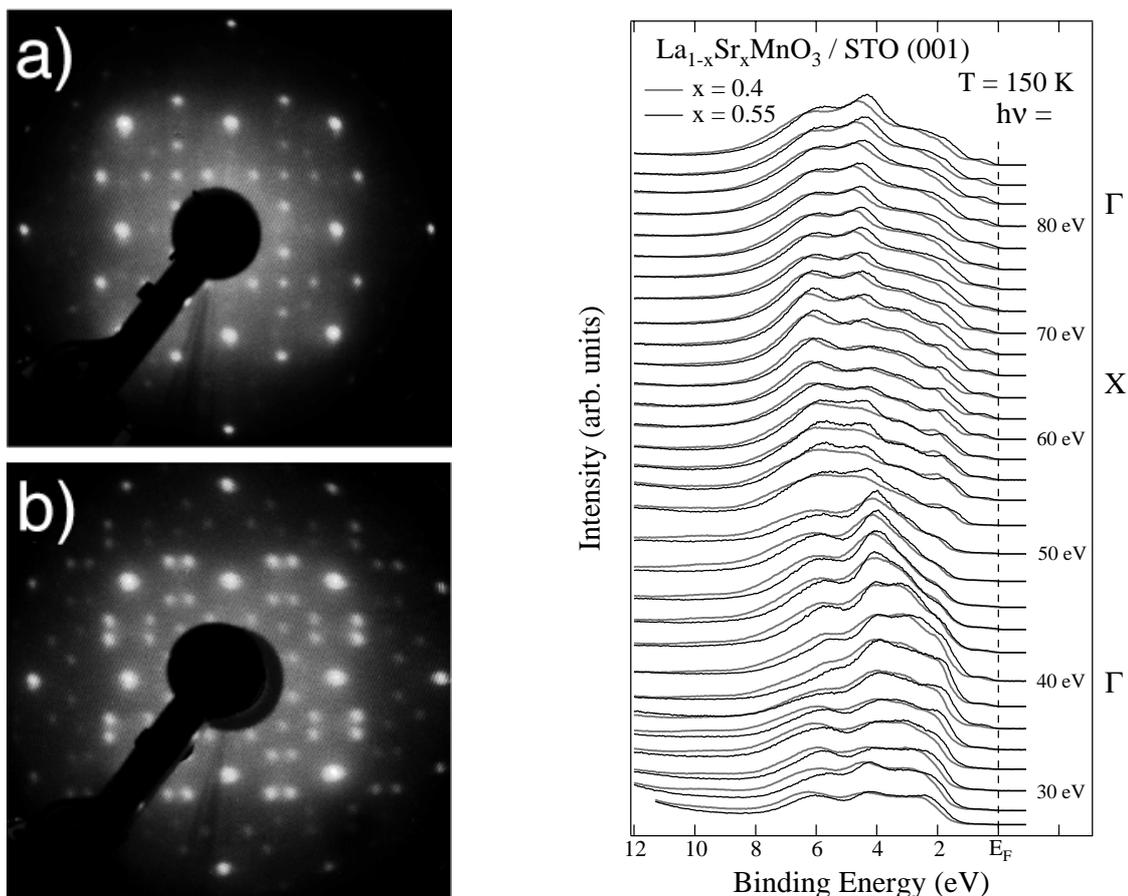


図2、(左図) $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 薄膜 (a: $x=0.4$, b: $x=0.55$) の LEED パターン
(右図) $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ($x=0.4, 0.55$) 薄膜の *in-situ* 角度分解光電子スペクトル