

審査の結果の要旨

氏名 吉松 公平

本論文は、強相関酸化物量子井戸構造の作製と、放射光光電子分光による低次元電子状態の観測に関して述べられたものである。強相関電子の2次元閉じ込めが実現している層状酸化物においては、銅酸化物の高温超伝導に代表される特異な物性が報告されている。しかしながら、バルク合成の困難さから層状酸化物の伝導層の厚さは制限されている。そのため、構造の自由度が高い人工構造を用いた強相関電子の量子閉じ込めが注目されているが、未だに酸化物人工構造による強相関電子の2次元閉じ込めは実現していない。本研究では、 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ および SrVO_3 を用いた酸化物薄膜人工構造による強相関電子の2次元閉じ込めを試み、その低次元電子状態の観測を行っている。強相関金属 SrVO_3 を極薄膜化した量子井戸構造を作製することで、強相関電子の2次元閉じ込めを実現し、その量子化状態の観測に初めて成功している。さらに観測された量子井戸状態から、 $3d$ 軌道の異方性を反映した軌道選択的量子化やサブバンドに依存した有効質量の増大といったこれまでの量子井戸状態では観測されていない、強相関金属量子井戸状態に特有の現象を見いだしている。

第1章では、本研究の背景が述べられている。強相関酸化物を用いた量子閉じ込めの現状と酸化物ヘテロ界面で発現する特異現象を例示し、強相関量子井戸構造の創製と強相関低次元電子状態観測の重要性が述べられている。

第2章では、本研究で用いた実験手法ならびにその原理について述べられている。特に本研究において重要な実験装置であ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について述べられている。

第3章では、 LaAlO_3 (LAO) / SrTiO_3 (STO) 構造の電子状態について述べられている。LAO と STO の界面では、 n 型界面で金属層の発現が報告されており、その起源として極性/非極性接合による電荷移動が提唱されている。この LAO/STO 構造の *in situ* 光電子分光を行うことで界面電子状態を明らかにした。 n 型界面の価電子帯および $\text{Ti } 2p \rightarrow 3d$ 共鳴スペクトルからは、電荷移動により期待される $\text{Ti } 3d$ 状態密度が観測されず、理想的な電荷移動が起こっていないことを明らかにした。一方 $\text{Ti } 2p$ 内殻スペクトルのシフトから、 n 型界面にのみ STO のバンドにノッチ構造が形成していることを見だし、このノッチ構造にキャリアが蓄積することで金属層が発現していると結論づけた。

第4章では、 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ (LSMO) を用いた多層構造の電子状態が述べられている。LSMOはその表面・界面で特性の劣化する dead layer が形成されることが知られている。この dead layer 形成に関して界面 Mn イオンの価数変調の影響を明らかにするため、界面の A サイト終端を揃えることで電荷不整合を制御した STO/LSMO/STO 構造の電子状態を、Ruddlesden-Popper(RP)型界面を作製することで B サイト間の界面電荷移動を制御した $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{FeO}_3$ (LSFO) /LSMO 構造の電子状態を明らかにした。STO/LSMO/STO 構造では、dead layer の臨界膜厚には界面終端による違いが見られないことから、電荷不整合は LSMO の dead layer の主たる起源ではないと結論づけた。LSFO/LSMO 界面では、Mn $2p \rightarrow 3d$ 共鳴光電子分光より RP 型界面を持つ LSFO/LSMO 構造では LSMO から LSFO への電荷移動が起こっていないことを明らかにした。以上から、RP 型界面は B サイト間の界面電荷移動の制御に有効であると結論づけた。

第5章では、角度積分光電子分光による SrVO_3 (SVO) 薄膜の電子状態の膜厚依存性について述べている。SVO 薄膜では、臨界膜厚が 2-3 ML の膜厚依存金属絶縁体転移が発現することを明らかにした。理論計算との比較から、この金属絶縁体転移は SVO 薄膜の極薄膜化に伴い、薄膜の次元性が 3 次元から 2 次元に低下することでバンド幅 W が減少することが起源であると結論づけた。この結果は、絶縁体の 2 次元状態と金属の 3 次元状態の中間に擬 2 次元的な金属状態が存在することを示唆している。

第6章では、角度分解光電子分光 (ARPES) による SVO 極薄膜の金属量子井戸状態について述べられている。SVO 極薄膜の ARPES スペクトルで SVO 膜厚に依存するピークが観測された。このピークの膜厚依存性が位相シフト量子化則による計算と良く一致したことから、観測されたピークは金属量子井戸状態に由来すると結論づけた。また STO キャップの有無で SVO 量子井戸状態を比較することで、STO と真空由来の位相シフトを分離し、STO が真空と比べて良い障壁となっていることを明らかにした。さらに、SVO の量子化状態を詳細に観測することで、強相関金属量子井戸特有の現象を見いだした。サブバンドの面内分散からは、量子化方向に対し $3d$ 軌道が異方性的であることを起源とした軌道選択的な量子化現象や、表面・界面でのバンド幅の減少を反映したサブバンドに依存して有効質量の増大といった現象を明らかにした。

第7章では、本論文のまとめおよび今後の展開が述べられている。

本論文は、強相関酸化物量子井戸構造を作製し、放射光光電子分光測定によりその低次元電子状態を明らかにしたものである。特に、酸化物超薄膜を用いて強相関電子の二次元閉じ込めを実現したことは、強相関酸化物においても量子井戸という人工構造を用いた物性制御が可能になったことを意味しており新奇量子物性の創製に繋がっていく画期的な成果であるといえる。

よって本論文は博士 (工学) の学位請求論文として合格と認められる。