

# 走査トンネル顕微鏡による遷移金属酸化物薄膜の電子状態イメージング

東北大学 原子分子材料科学高等研究機構  
(AIMR)  
岡田佳憲

2015年 7月 29日

15:30-16:10

@ 岐阜

## ①自己紹介

★(ザックリ)どんなことをしてきたか？

## ②STMを用いた物性研究の面白さ。何が出来るのか？

★原子を観るだけではない。色々なアプローチ。

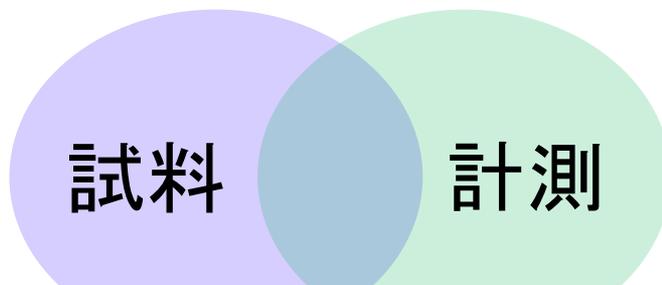
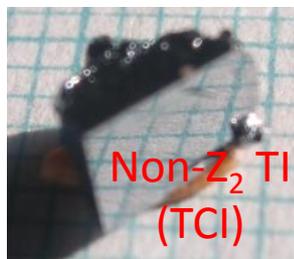
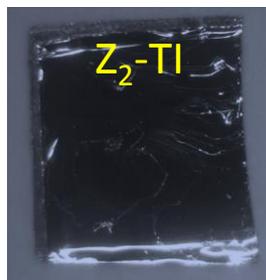
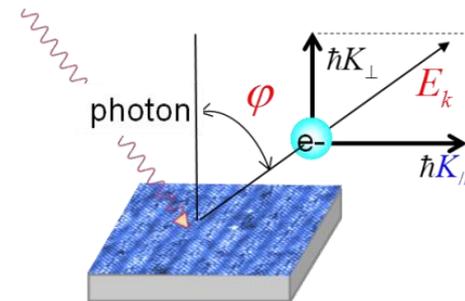
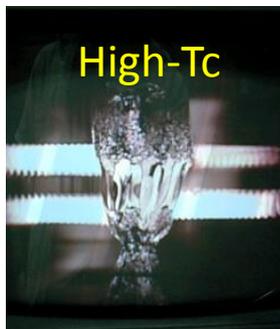
★物性研究の強力なツール。

## ③最近の試み。in-situ PLD + STM/STS

薄膜表面を原子レベルでデザインし、  
電子状態をその場で観る

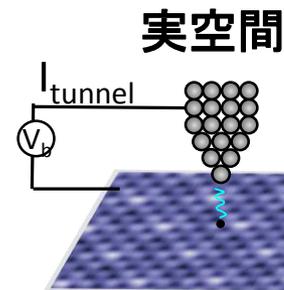
# 物性研究のアプローチ

ARPES (@ISSP 幸lab.)



なるべく若いうちに色々な実験を経験しようと心がけてきた。

走査トンネル顕微鏡  
STM



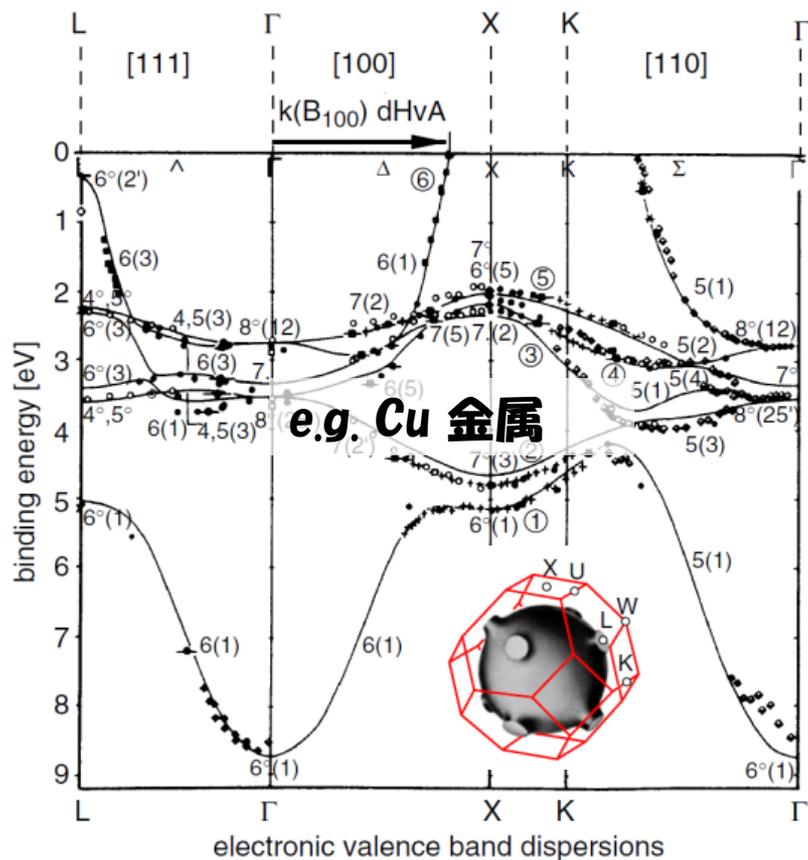
アプローチ:  
★自ら試料を作る  
★電子状態を直接的に観る(分光)



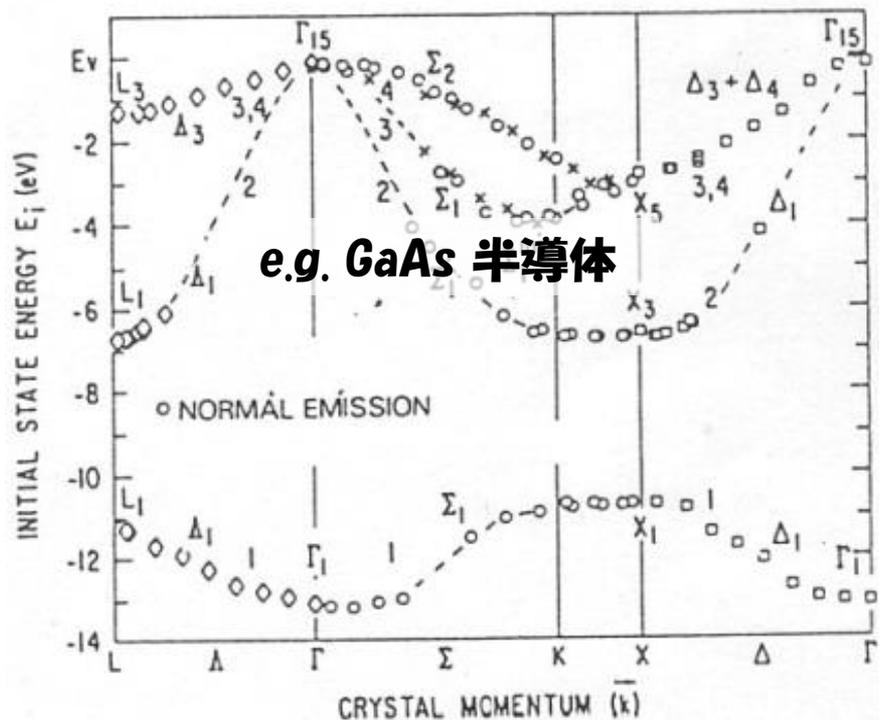
# 電子状態計測による(金属)物性研究

key information

⇒ **バンド構造・フェルミ面**

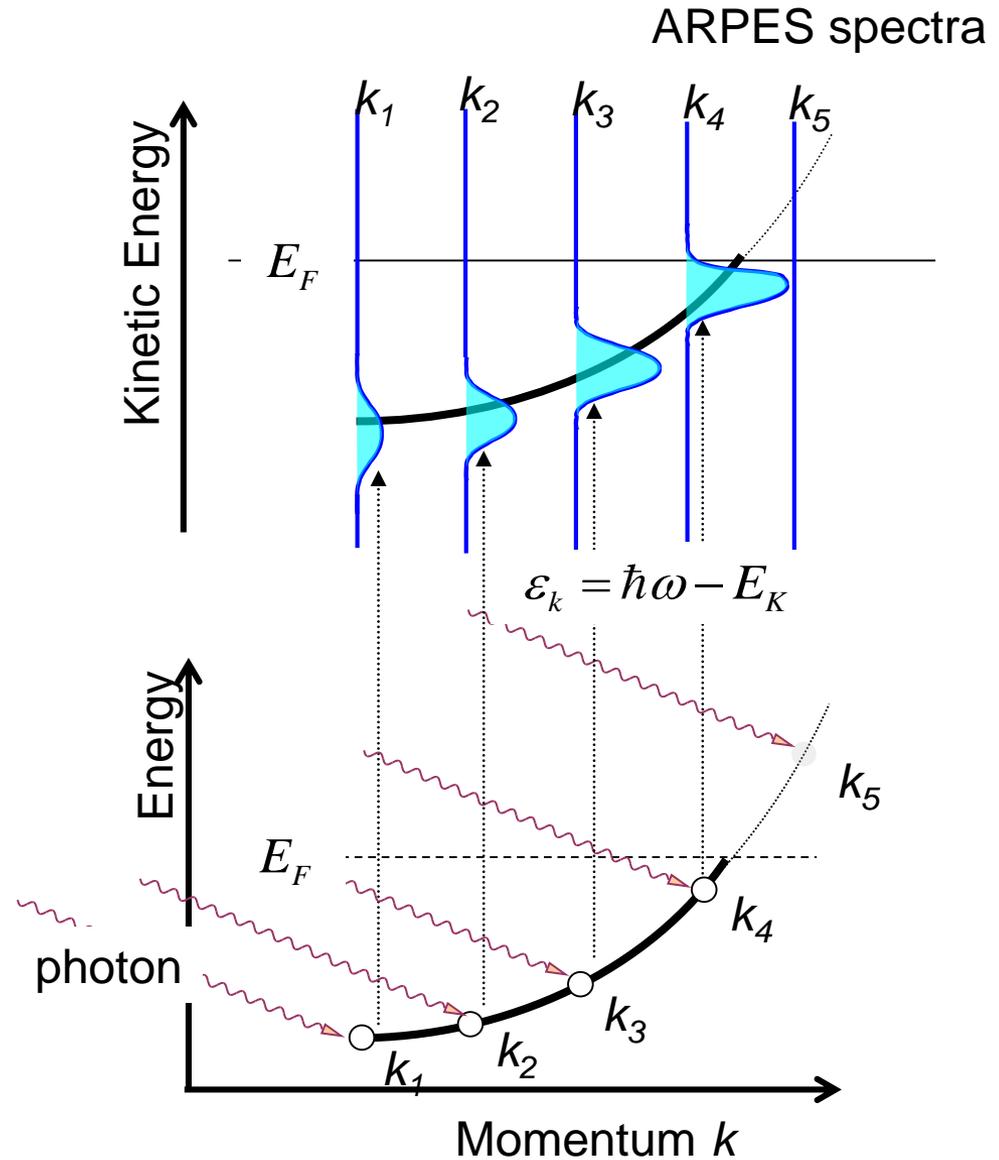
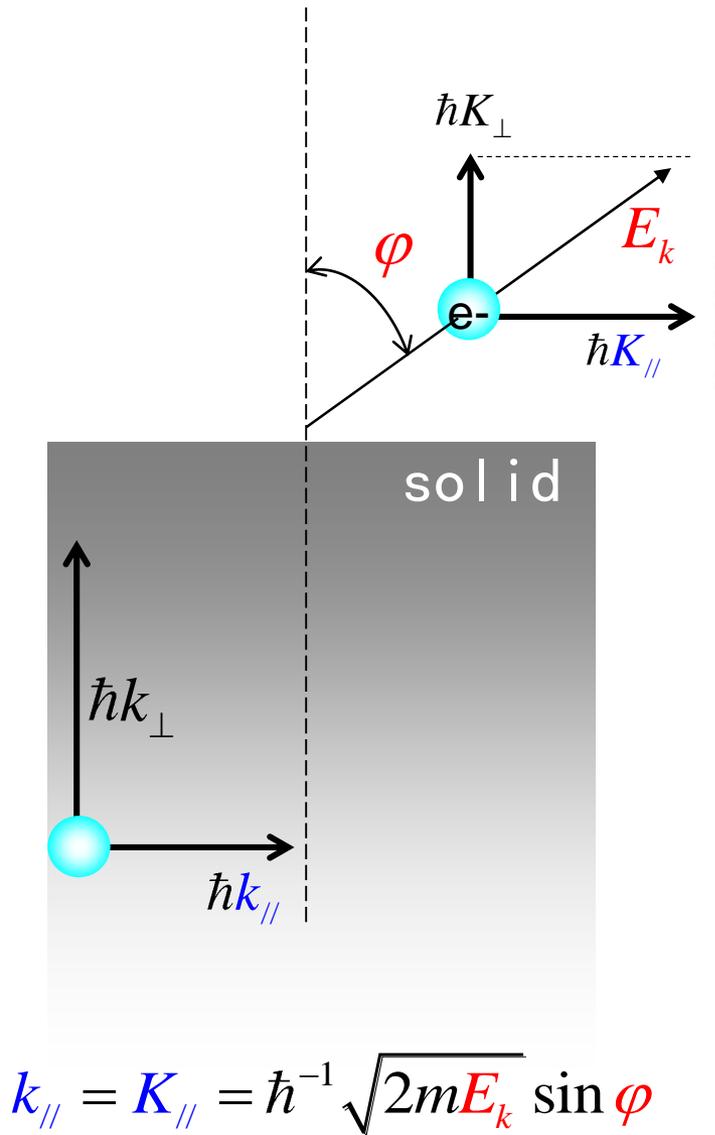


A. B. Pippard (1960)



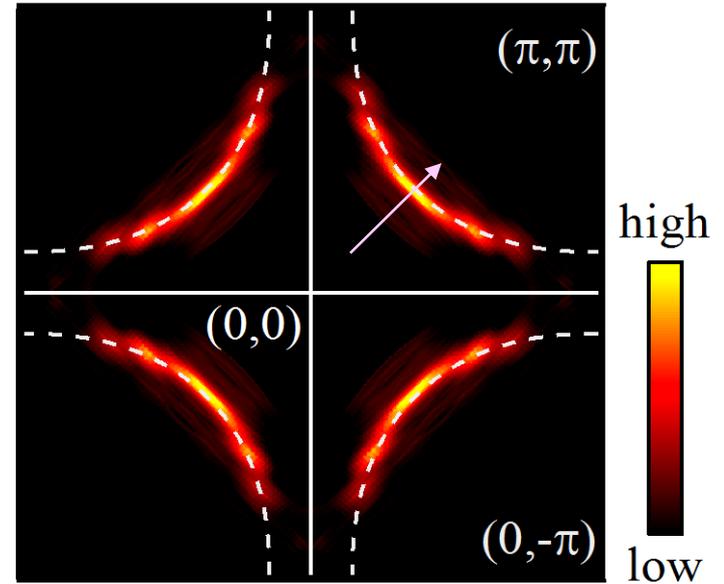
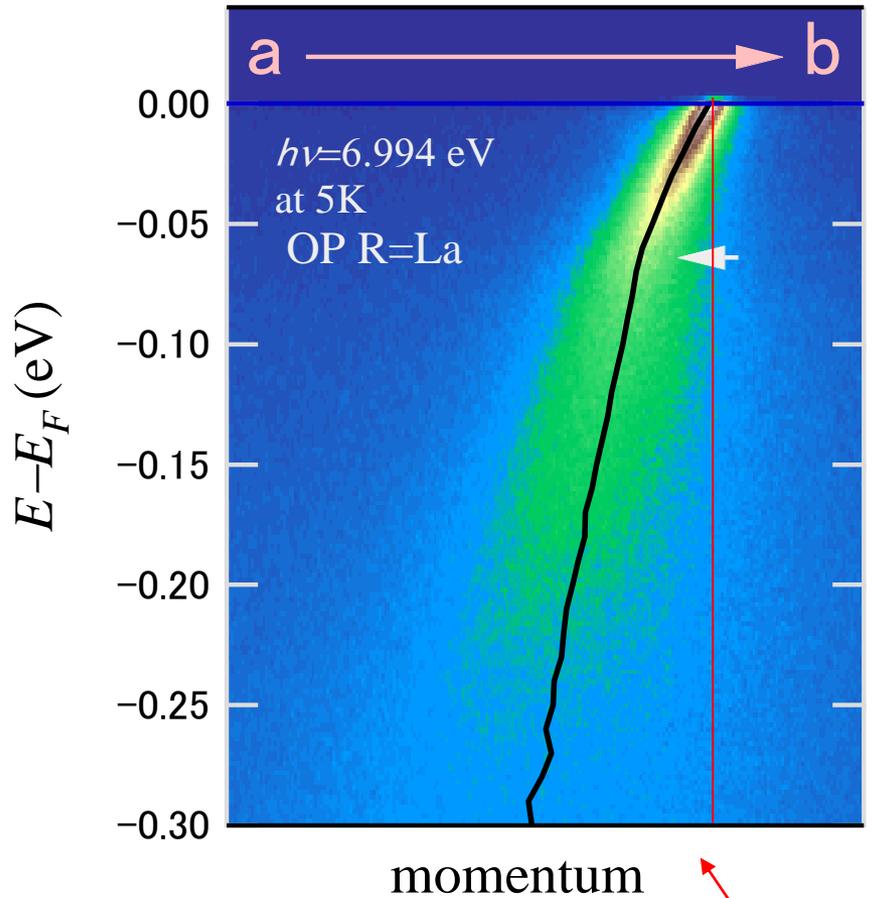
T.-C. Chiang *et al.* PRB (1980)

# 角度分解光電子分光(ARPES)によるバンド構造の直接観測



# 角度分解光電子分光(ARPES)によるバンド構造の直接観測

## Bi-based cuprates



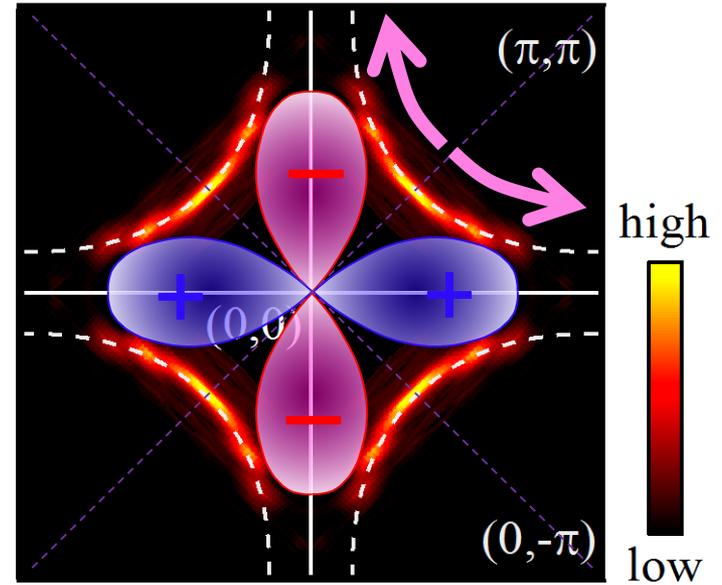
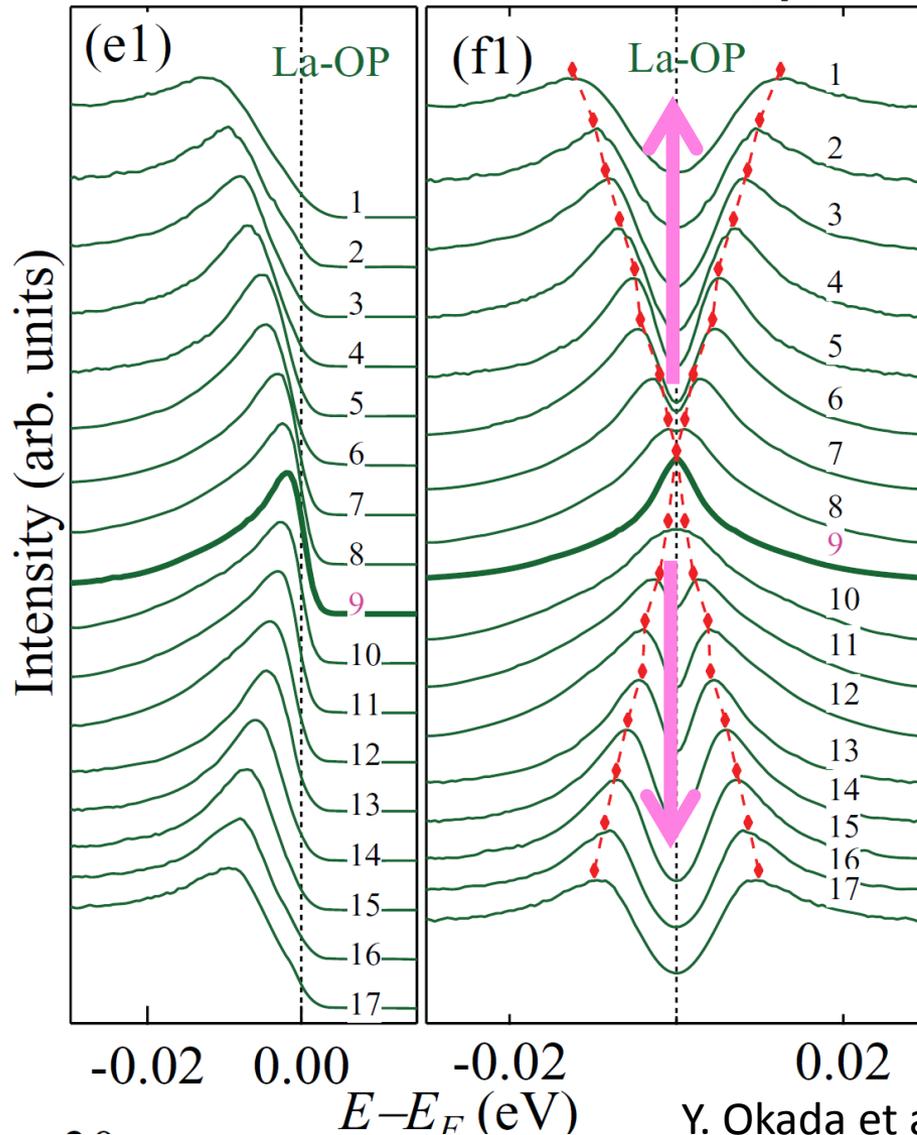
運動方向に依存した  
電子の振る舞いの違いが明確。

Y. Okada et al., PRB (2011)

レーザーARPES @ 辛研(ISSP)

# 角度分解光電子分光(ARPES)によるバンド構造の直接観測

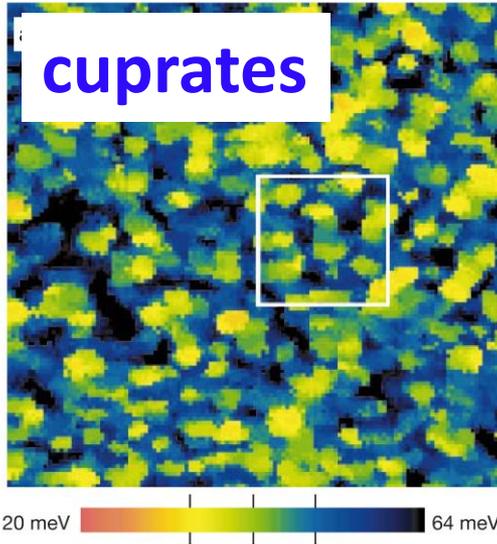
## Bi系 cuprates



運動方向に依存した  
電子の振る舞いの違いが明確。

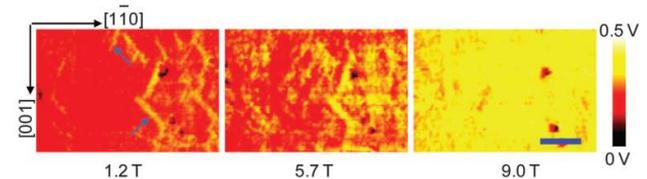
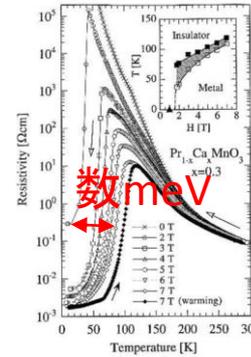
# 様々な先端材料⇒実空間から観る意義が高まっている

S. H. Pan *et al.* Nature (2002)



**巨大応答を示す  
量子材料**

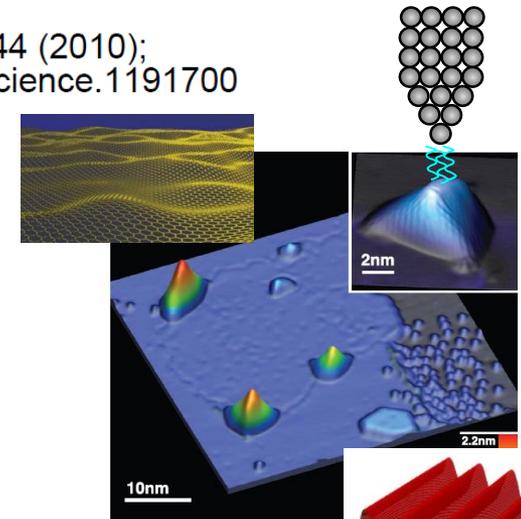
**manganite**  
Keiji Lai *et al.* Science(2010)



**小さなinput(数meV)で、  
劇的なoutput(~5桁のΔR)**

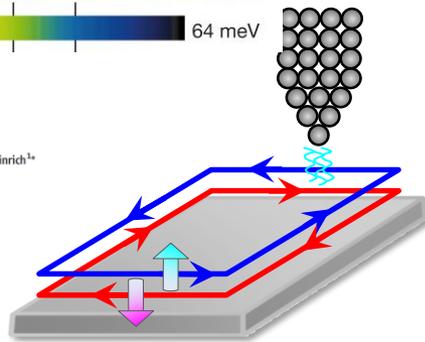
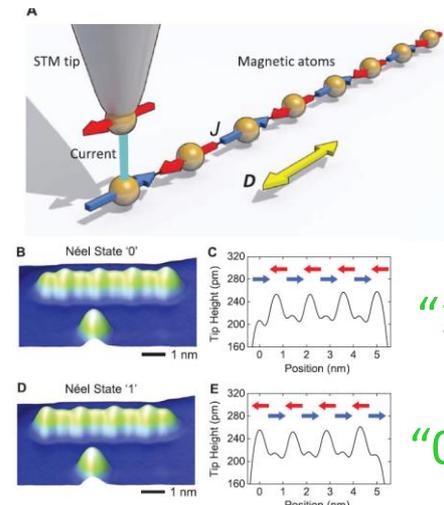
**Strain-Induced Pseudo Magnetic Fields Greater Than 300 Tesla in Graphene Nanobubbles**

N. Levy, *et al.*  
*Science* **329**, 544 (2010);  
DOI: 10.1126/science.1191700



**Bistability in Atomic-Scale Antiferromagnets**

Sebastian Loth,<sup>1,2\*</sup> Susanne Baumann,<sup>1,3</sup> Christopher P. Lutz,<sup>1</sup> D. M. Eigler,<sup>1</sup> Andreas J. Heinrich<sup>1\*</sup>



“1”

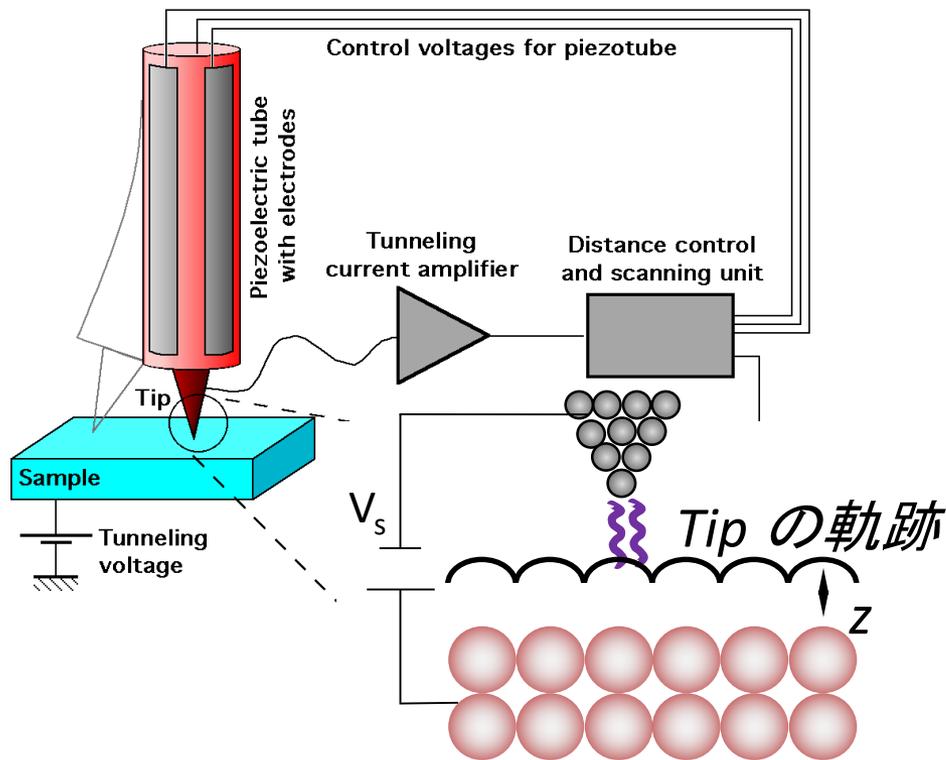
“0”

8原子で1ビット  
Science 335 196 (2012)

# Spectroscopic mapping/imaging STM

$$I(r, z, V) \propto \exp(-z) \int_0^{eV} \rho_{sample}(r, E) dE$$

トポグラフィ像(凹凸)

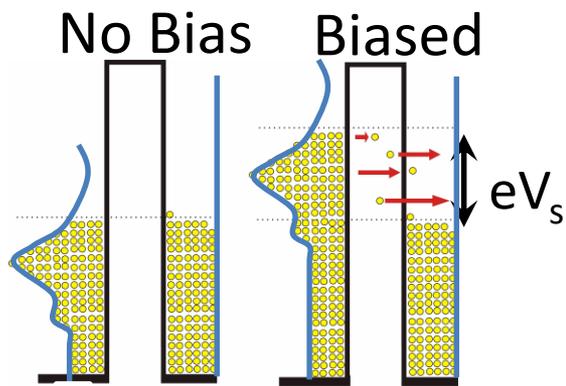


$$I_t(r, z) \propto \exp(-z)$$

$z$ が1 Å変化すると、 $I_t$ が1桁変わる

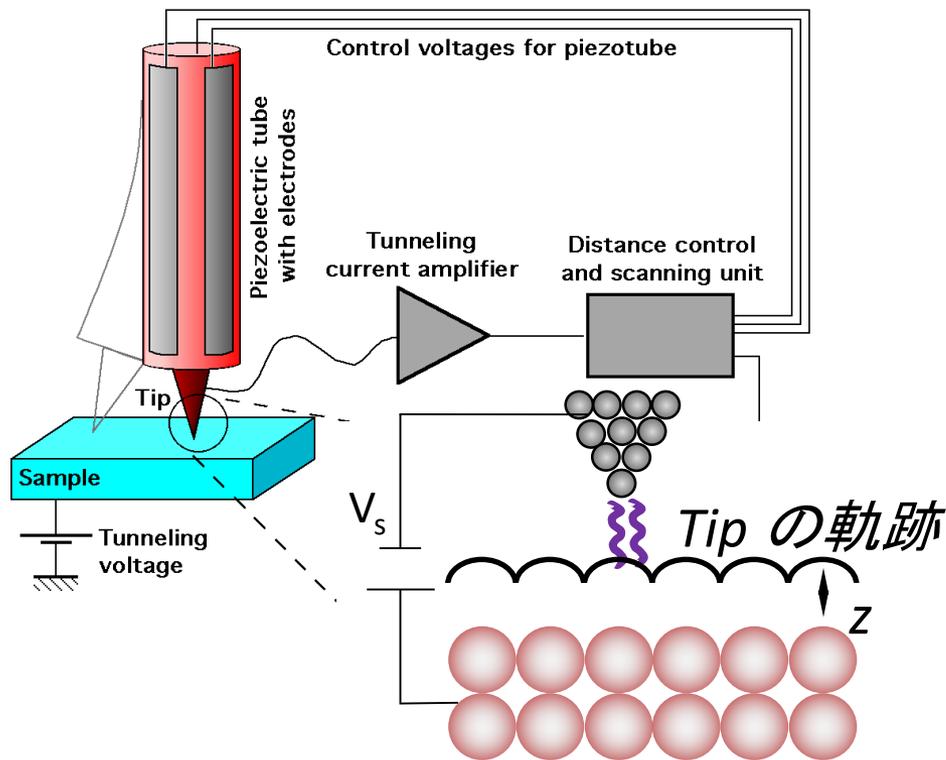
局所状態密度

$$\frac{dI}{dV}(r, V) \propto LDOS_{sample}(r, V)$$

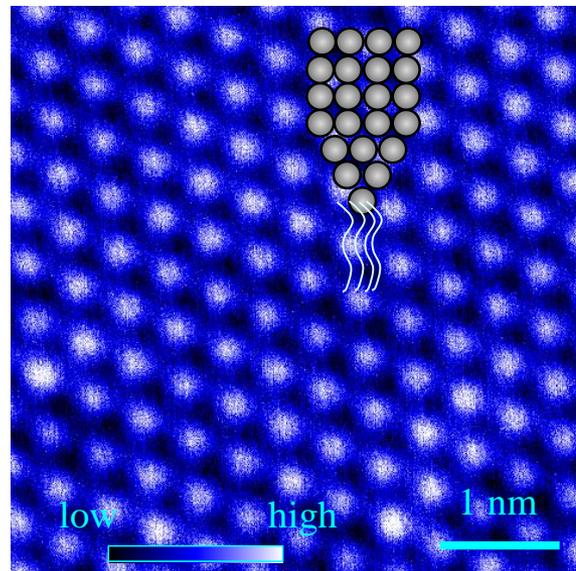


# Spectroscopic mapping/imaging STM

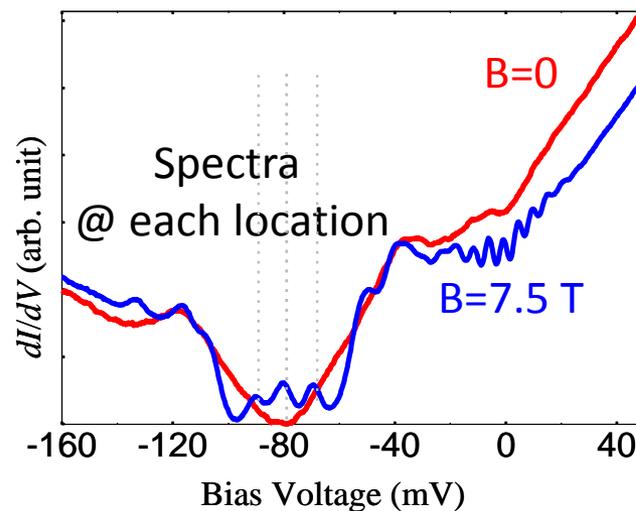
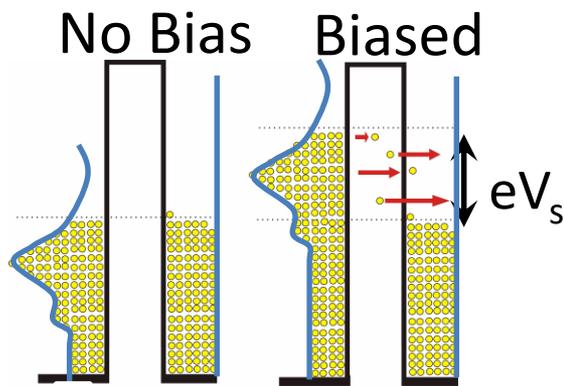
$$I(r, z, V) \propto \exp(-z) \int_0^{eV} \rho_{sample}(r, E) dE$$



トポグラフィ像(凹凸)



局所状態密度

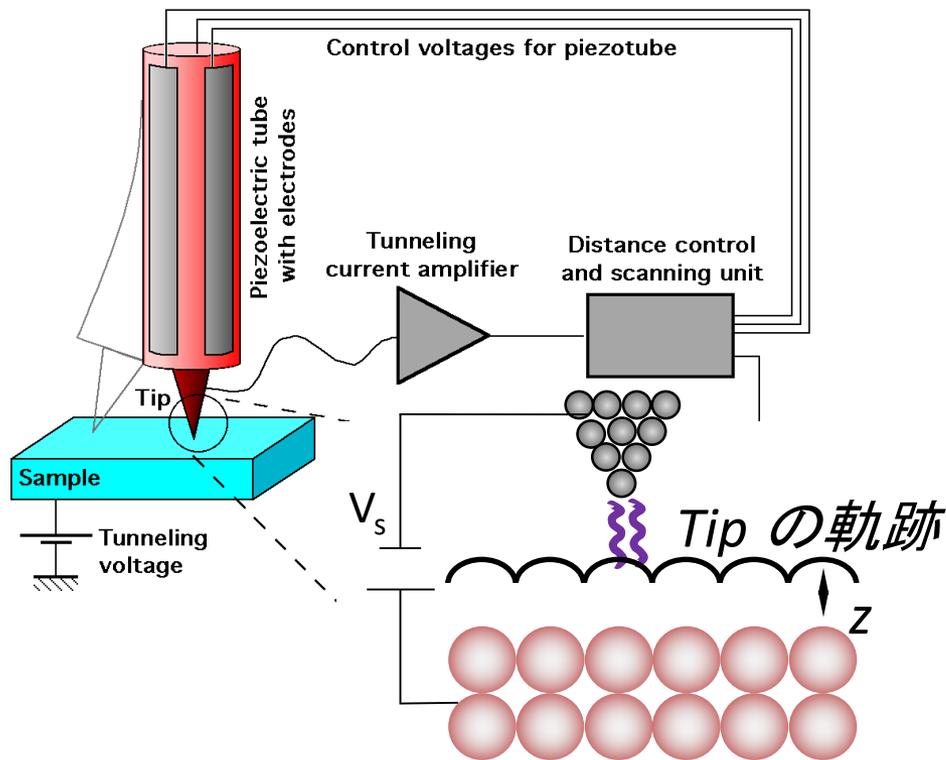


# Spectroscopic mapping/imaging STM

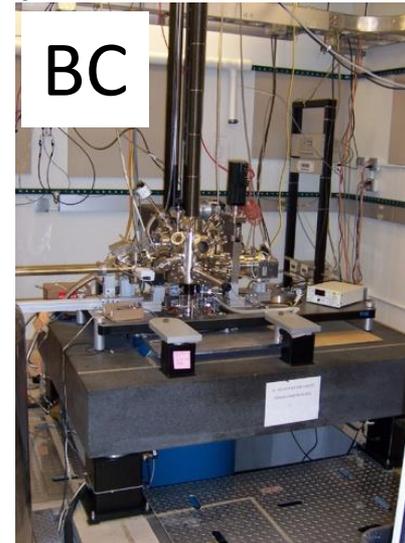
$$I(r, z, V) \propto \exp(-z) \int_0^{eV} \rho_{sample}(r, E) dE$$

**安定性が重要**

1 sec. /spec  
with 512\*512pix.  
⇒ ~3 days



卓上STM



AIMR

Spectroscopic  
mapping/imaging  
STM



# Spectroscopic imaging/mapping Scanning Tunneling Microscope (STM/STS)

## STMを用いた物性研究

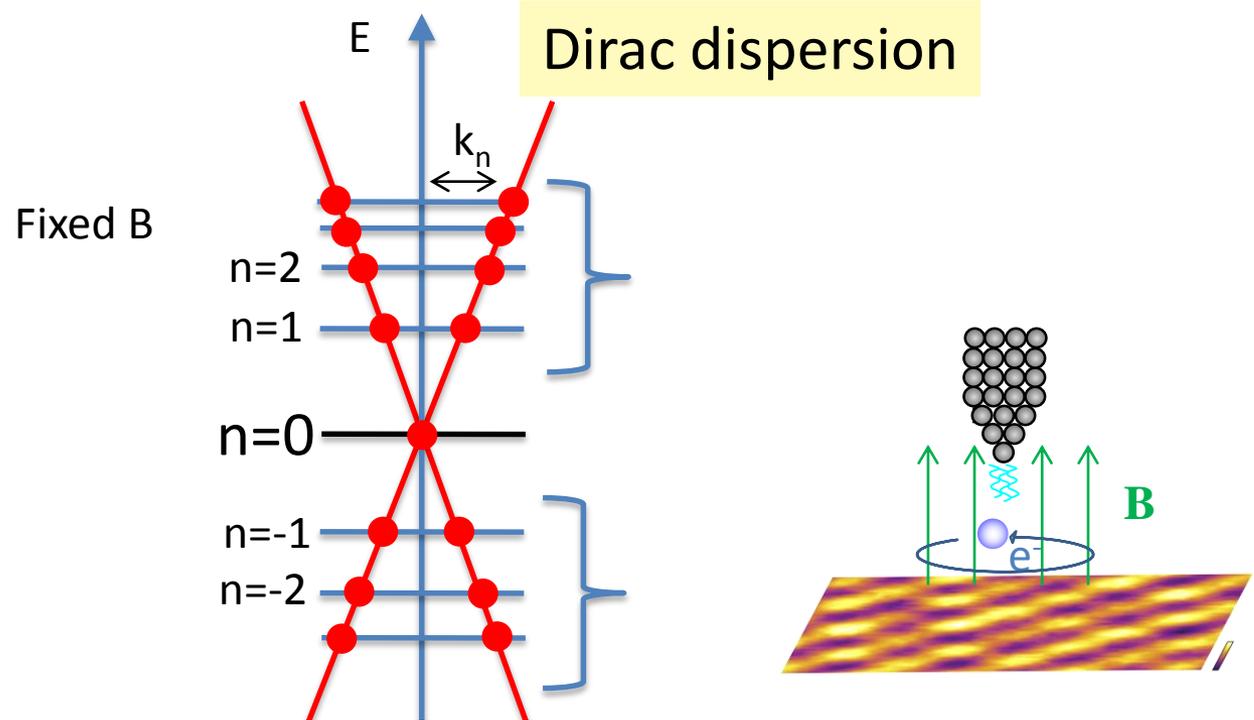
~数 Å  
ミクロスコピック  
(原子配列、欠陥)

数nm ~ μm  
★バンド  
★相分離・ドメイン  
など

電子物性発現機構を  
様々な階層構造で横断的に調べれる

- ① 電子定在波の解析。
- ② ランダウレベルの解析。

# Landau level Spectroscopy



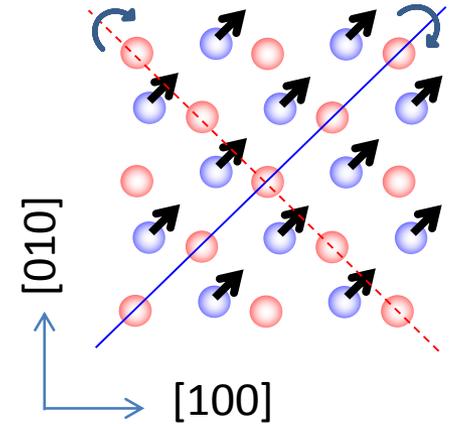
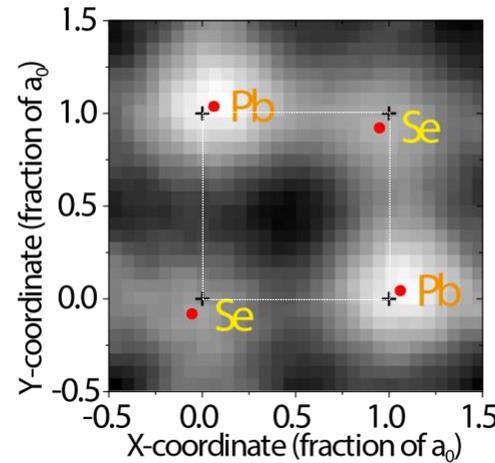
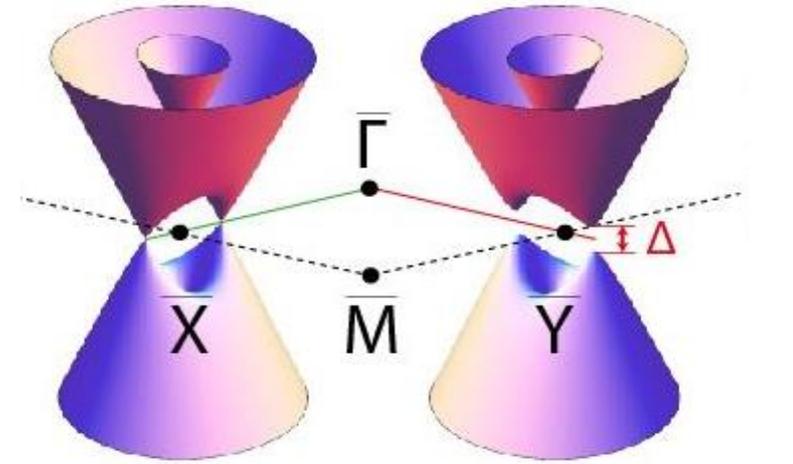
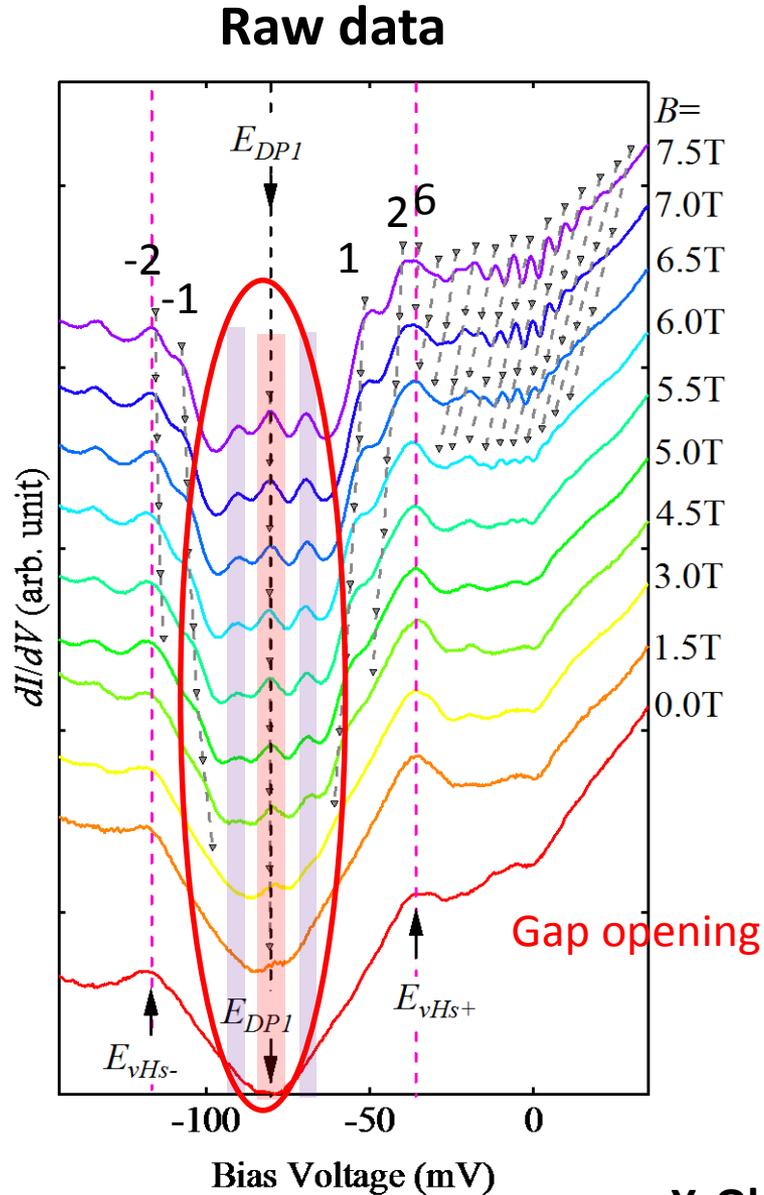
$S_n \Rightarrow$  area of constant energy contour ( $k$ -space)

$$k_n^2 \pi = S_n = \frac{2\pi e}{\hbar} nB \quad k_n = \sqrt{\frac{2e}{\hbar}} \cdot \sqrt{nB}$$

$$E_n \text{ vs. } \sqrt{\frac{2e}{\hbar}} \cdot \sqrt{nB}$$

がバンド分散を与えてくれる

# LL spectroscopy in novel topological insulator (Pb,Sn)Se



STMならではの  
原子分解能を活かしたストーリー展開

Y. Okada *et al.*, Science (2013)

I. Zeljkovic and Y. Okada *et al.*, Nature Materials (2015)

# Spectroscopic imaging/mapping Scanning Tunneling Microscope (STM/STS)

## STMを用いた物性研究

~数 Å  
ミクロスコピック  
(原子配列、欠陥)

数nm ~ μm  
★バンド  
★相分離・ドメイン  
など

電子物性発現機構を  
様々な階層構造で横断的に調べれる

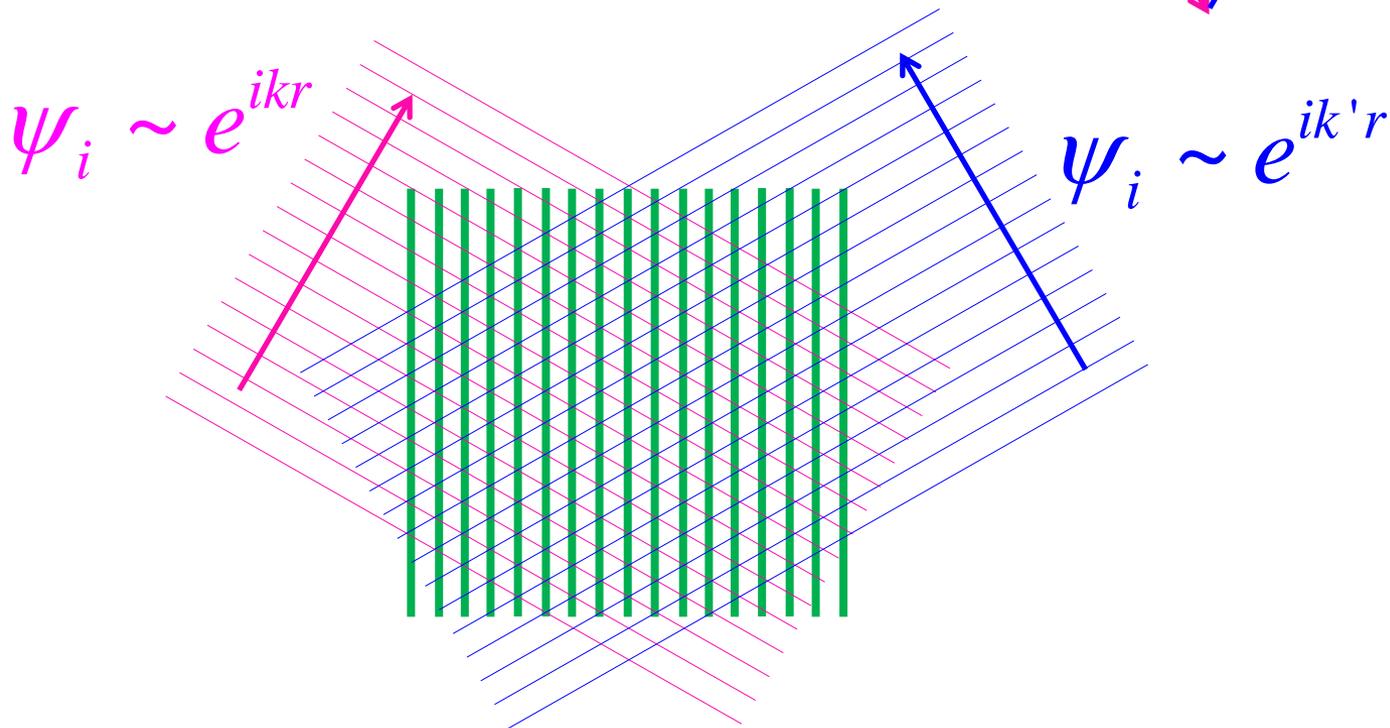
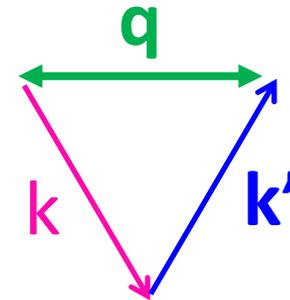
- ① 電子定在波の解析。
- ② ランダウレベルの解析。

# Electronic interference (standing wave)

Scattering from  $k$  to  $k'$

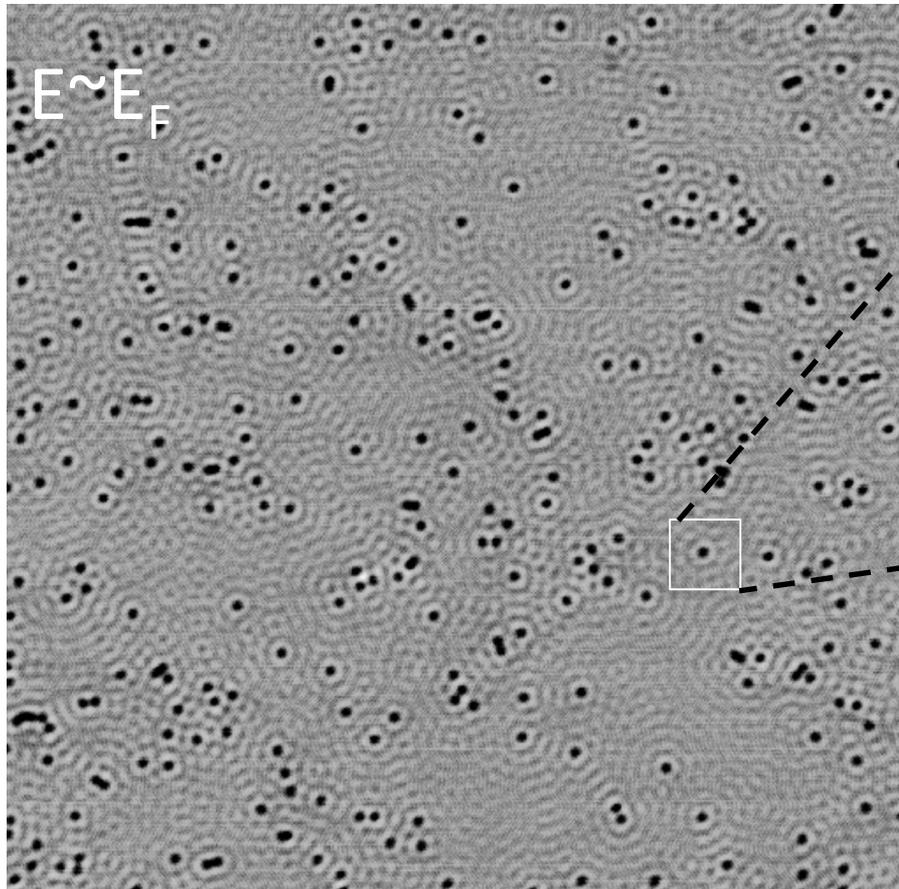
$$\vec{q} = \vec{k}' - \vec{k}$$

creates standing waves ( $\lambda = 2\pi/q$ )

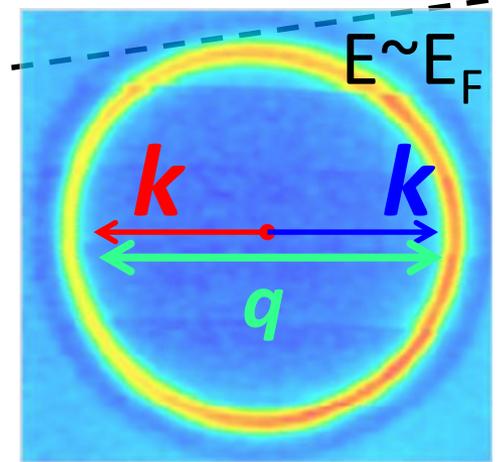
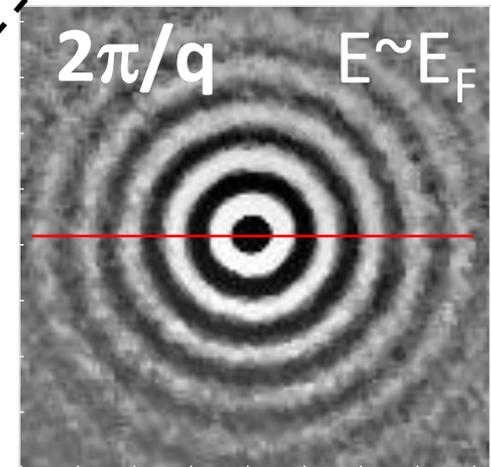


# Analysis: Fourier Transformation

dI/dV image (r-space)



band (k-space)



low  high

20 nm

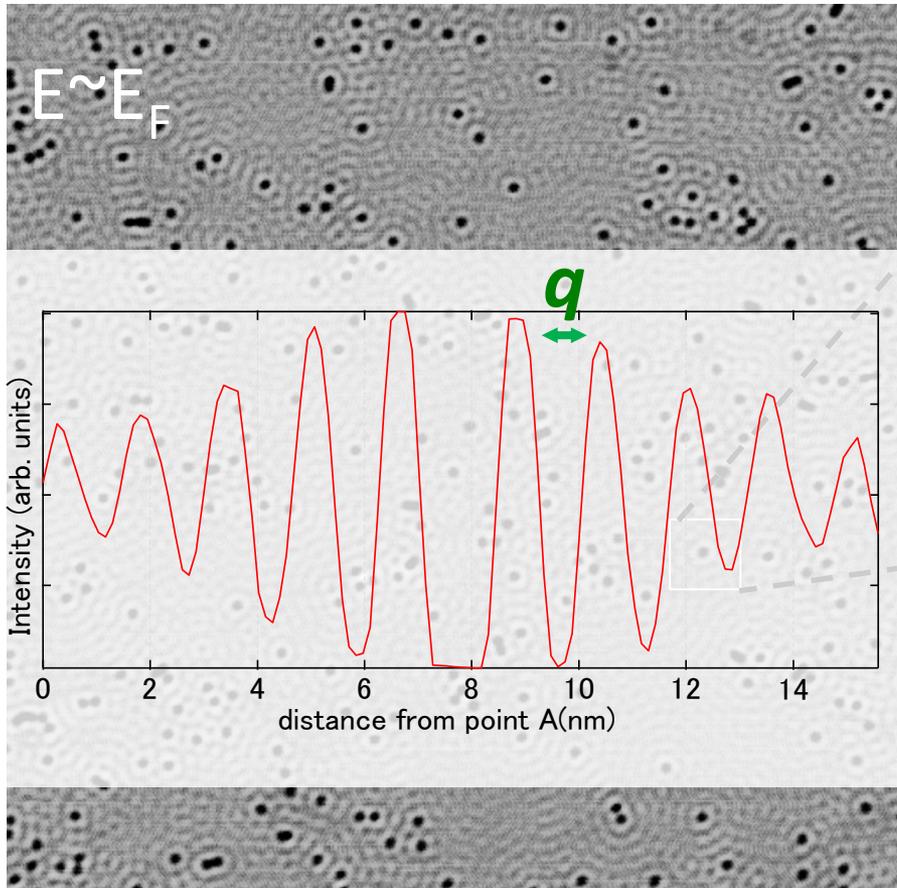


$$k(E) = q(E)/2$$

Huffner et al.

# Analysis: Fourier Transformation

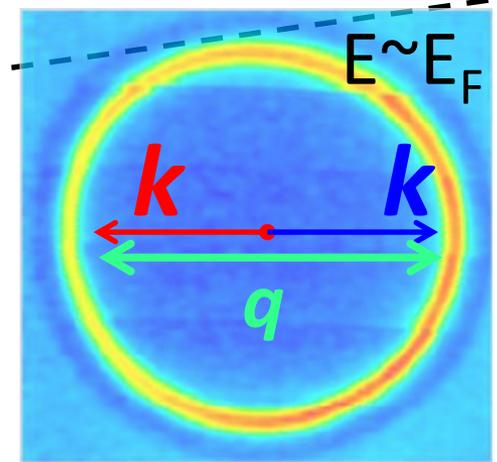
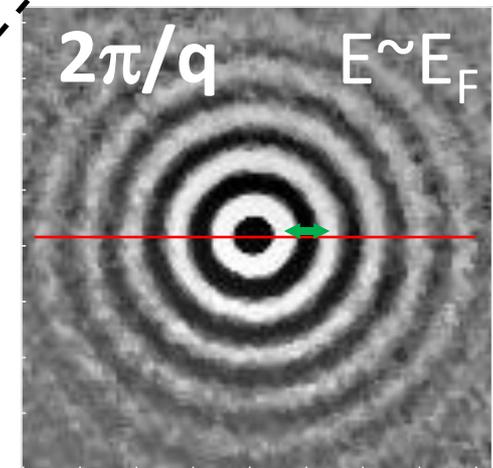
dI/dV image (r-space)



low  high

20 nm

band (k-space)

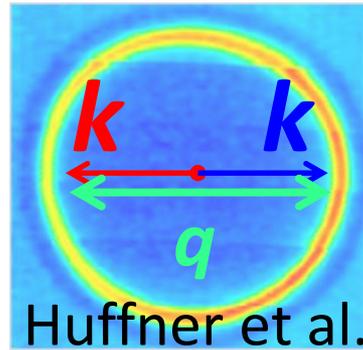


Huffner et al.

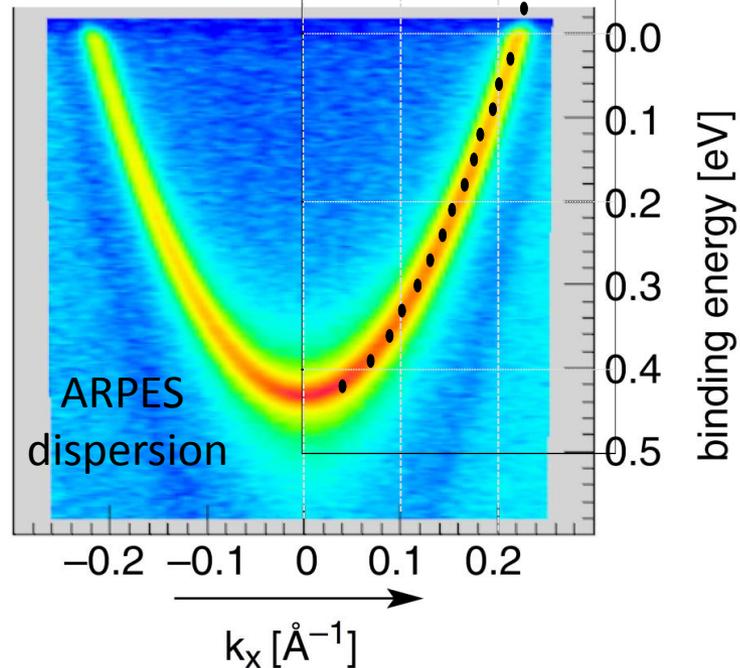
$$k(E) = q(E)/2$$

# Analysis: Fourier Transformation

band (k-space)

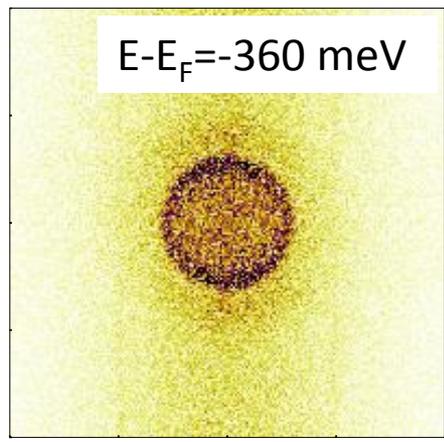
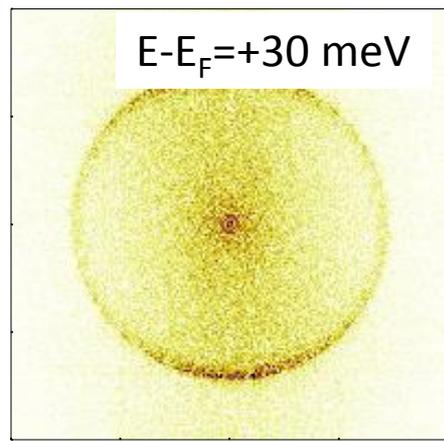
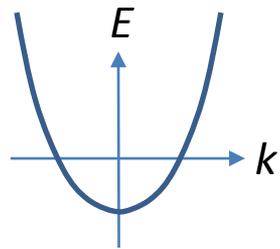


Band from STM  
 $k(E) = q(E)/2$

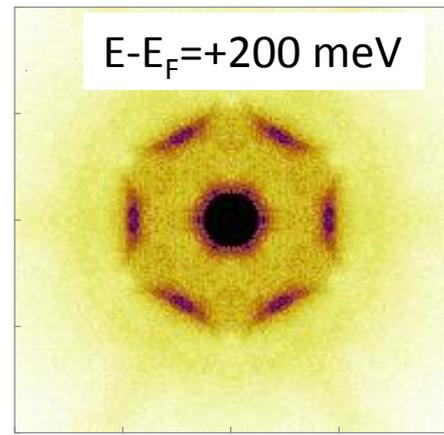
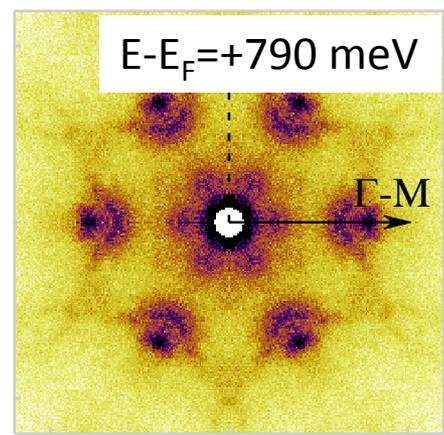
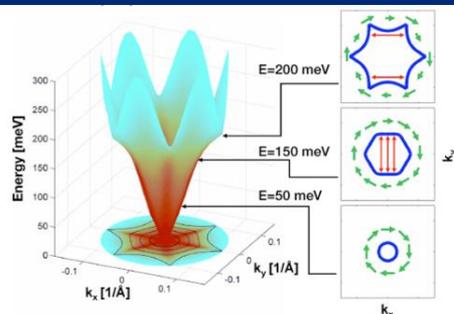


# interference pattern on various 2D state

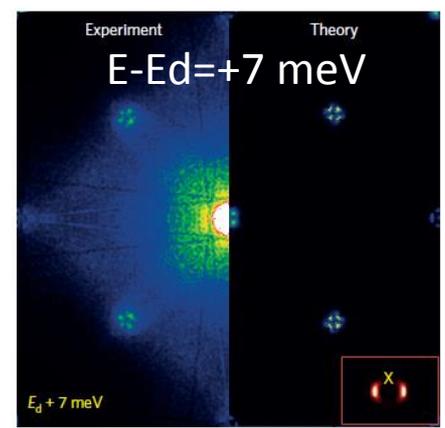
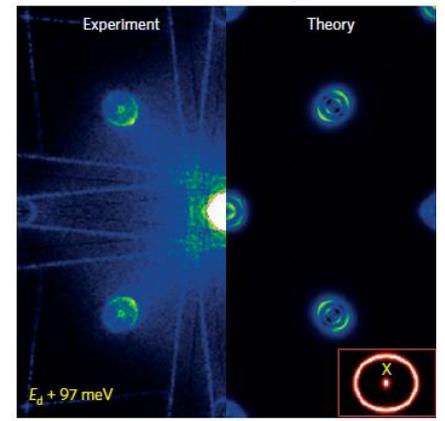
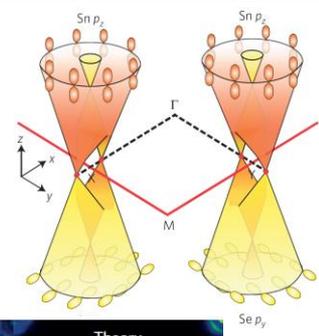
Cu(111)



TI  
 $\text{Bi}_2\text{Te}_3$



New TI  
(Pb,Sn)Se



Y. Okada PRL (2011)  
Y. Okada Nat. Commn. (2012)

I. Zeljkovic, Y. Okada et al.  
Nature Physics (2014)

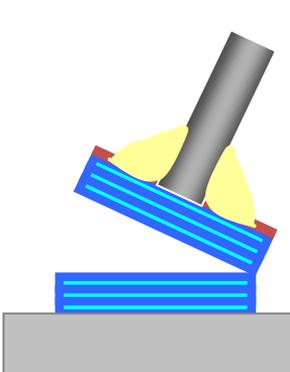
STM/STSを用いることで  
様々な物性研究が出来る。

しかし、  
測定対象に出来る  
sampleはごくわずかか。

# Limitation!!!

へキ開でアクセスできる表面

へキ開でアクセスできない表面



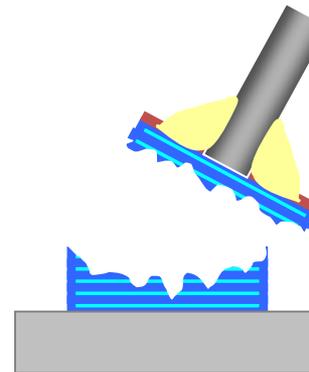
結晶自体が層状構造を有する

e.g.

- ★黒鉛
- ★Bi系 cuprates
- ★カルコゲン

FeSe, Bi<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>, MoS<sub>2</sub>..

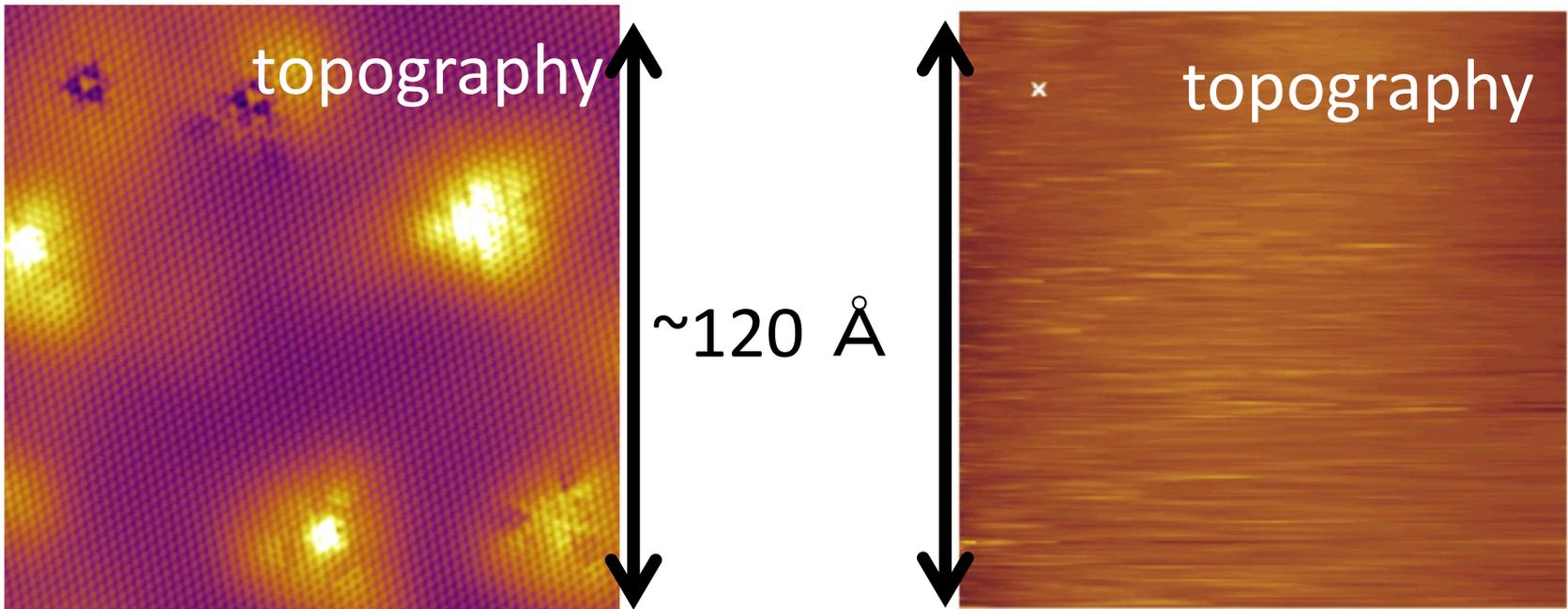
Detailed description: A schematic diagram showing a layered crystal structure being cleaved. On the left, a grey probe tip is shown in contact with a blue layered crystal on a grey substrate. On the right, a 3D model of the crystal structure shows alternating layers of green and orange spheres, with pink spheres interspersed.



e.g.

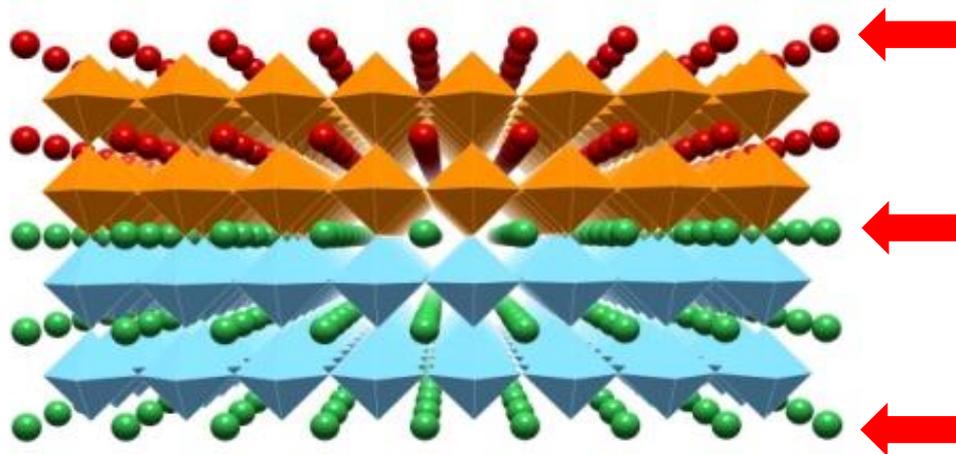
- ★ペロブスカイト ABO<sub>3</sub>
- ★スピネル
- ★パイロクロア
- ★ホイスラー

Diagram illustrating a crystal structure that is not cleavable. The structure is shown as a 3D lattice of blue and green spheres. A coordinate system is shown with axes labeled 'c' (vertical) and 'a, b' (horizontal).



# エピタキシャル薄膜技術を駆使した ペロブスカイト酸化物ベースの2次元電子系

人工格子、  
膜厚制御、  
配向制御



← 予期せぬ現象に出くわす

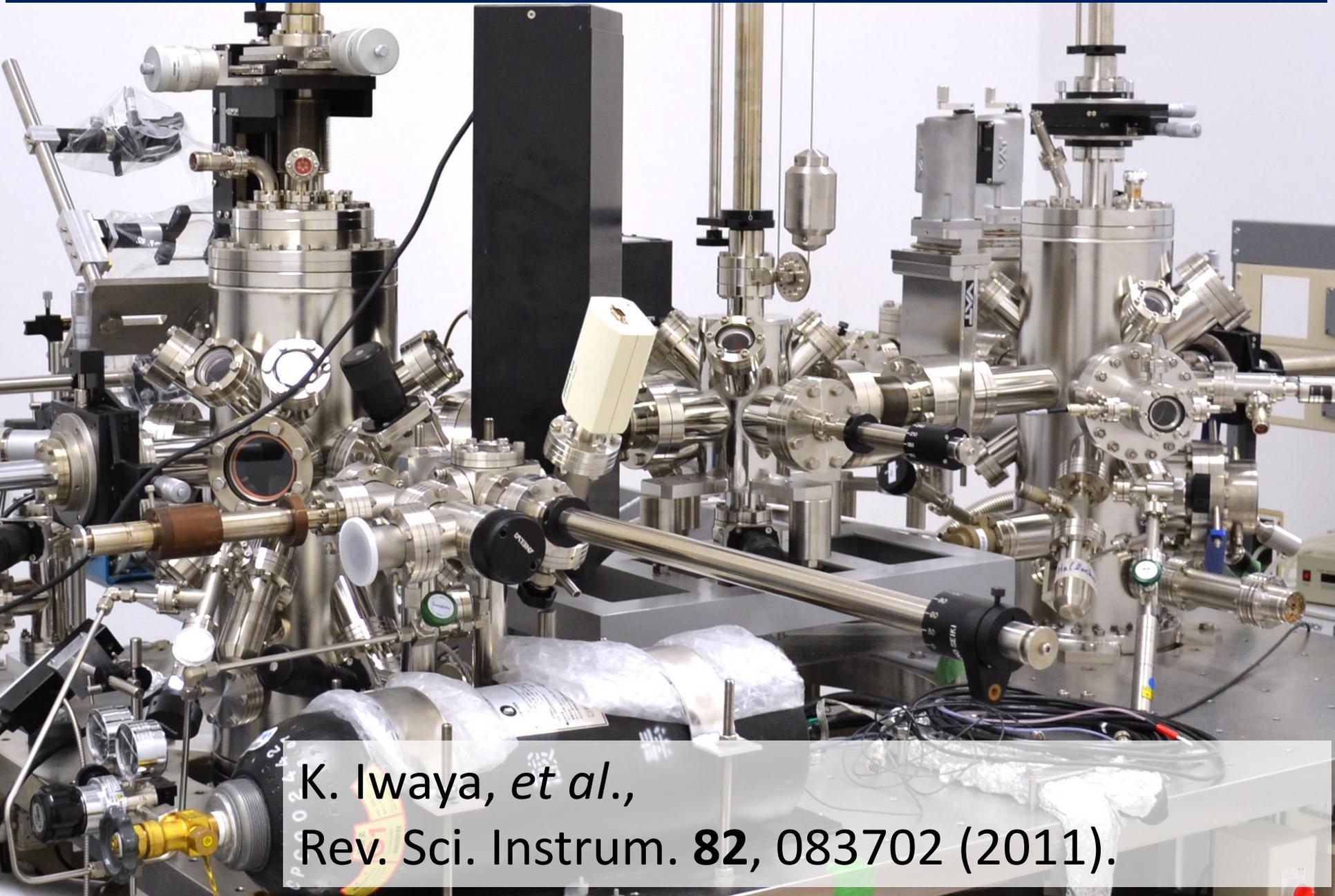
- ★高温超伝導
- ★強磁性超伝導
- ★高移動度
- ★磁気抵抗
- ★高ゼーベック効果

独自の薄膜表面を原子レベルでデザイン(へき開では  
得られない物質人工電子系)

⇒STM/STSで、電子状態をその場で観る。

酸化物薄膜技術とSTM/STS技術の融合

# *PLD connected with low-T STM*



K. Iwaya, *et al.*,

Rev. Sci. Instrum. **82**, 083702 (2011).

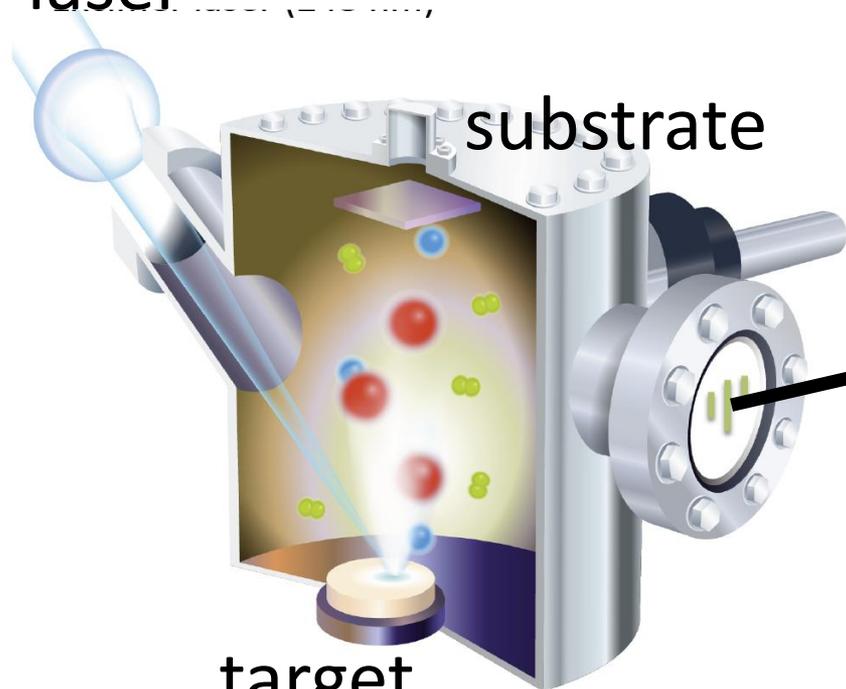
# Pulsed Laser Deposition (PLD)

ターゲット表面の温度が上昇  
⇒プラズマ上になり、基板上に到達  
(基本的に)ターゲットの組成が  
そのまま薄膜の組成になる

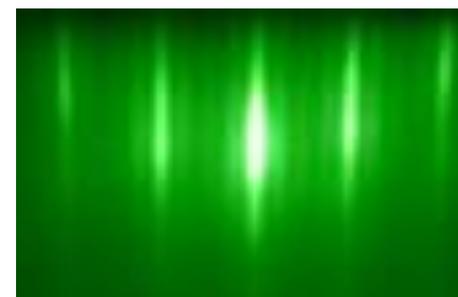
laser

substrate

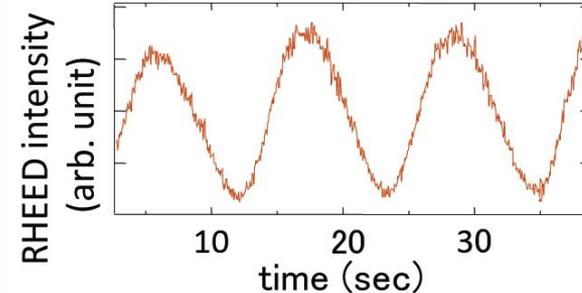
target



反射高速電子線(RHEED)

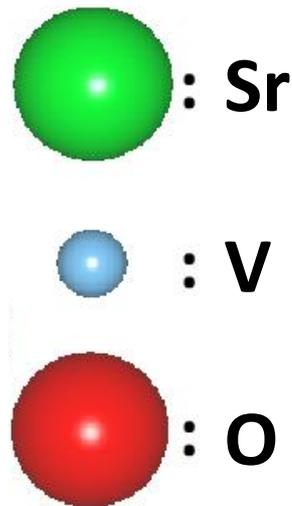
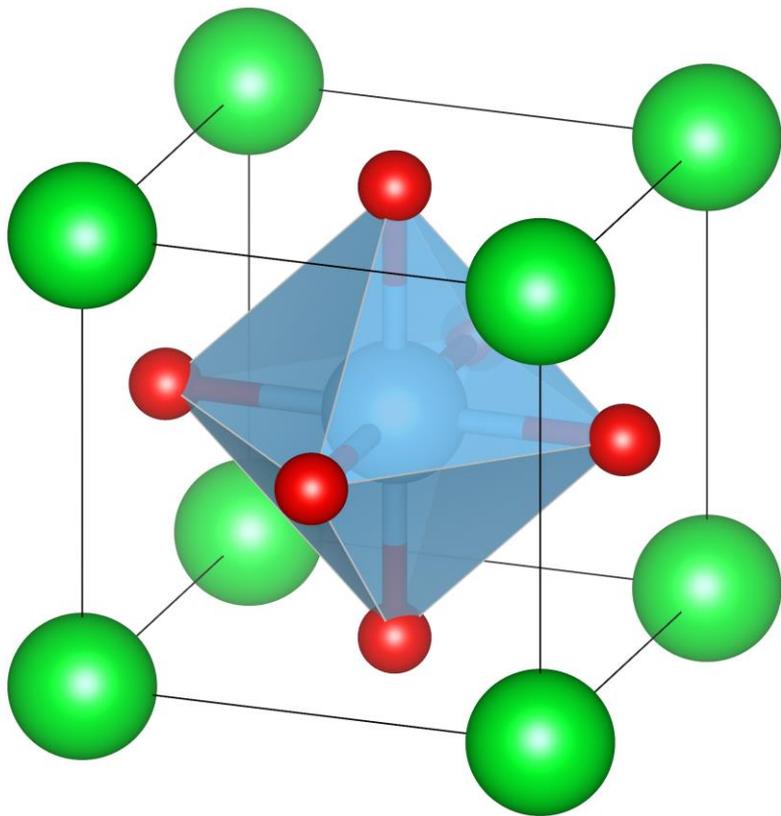


layer-by-layer growth

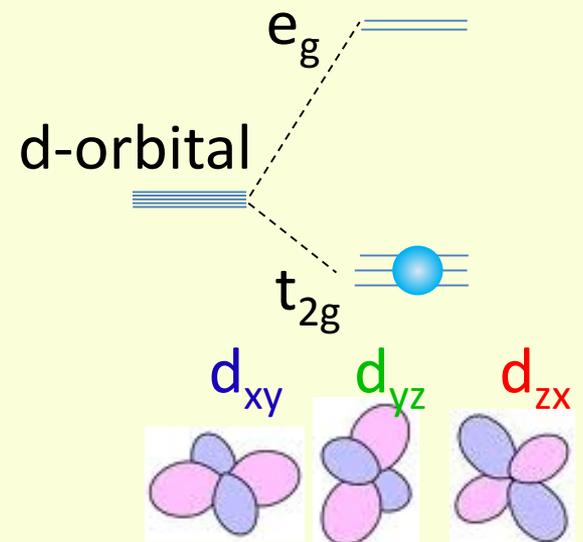


# 2D electronic state on $\text{SrVO}_3(001)$ surface

How can cubic perovskite ( $\text{ABO}_3$ ) realize 2D state on surface/interface?



Bulk  
cubic  $3d^1$  system

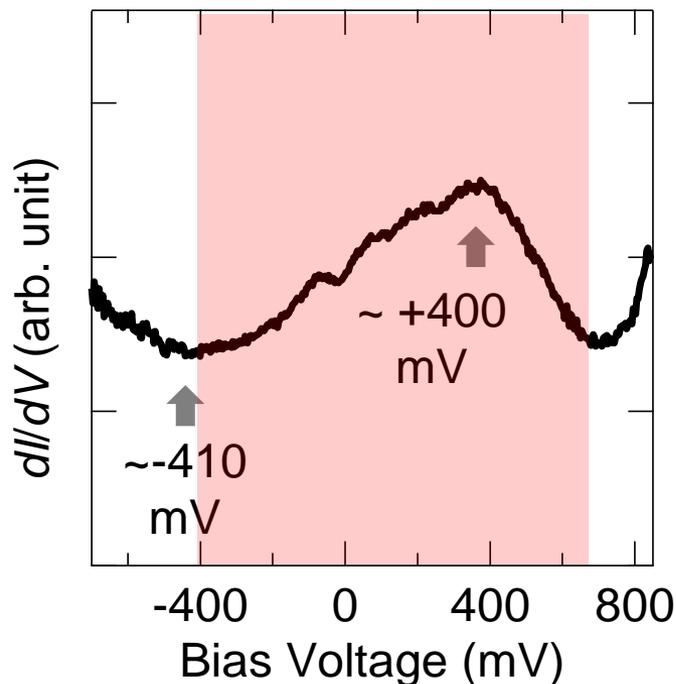


# 2D electronic state on SrVO<sub>3</sub>(001) surface

How can cubic perovskite (ABO<sub>3</sub>) realize 2D state on surface/interface?

実験結果

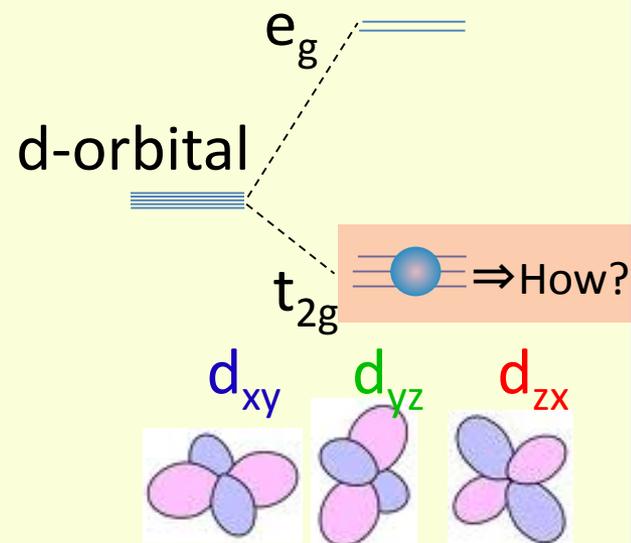
SrVO<sub>3</sub>(001)表面のDOS



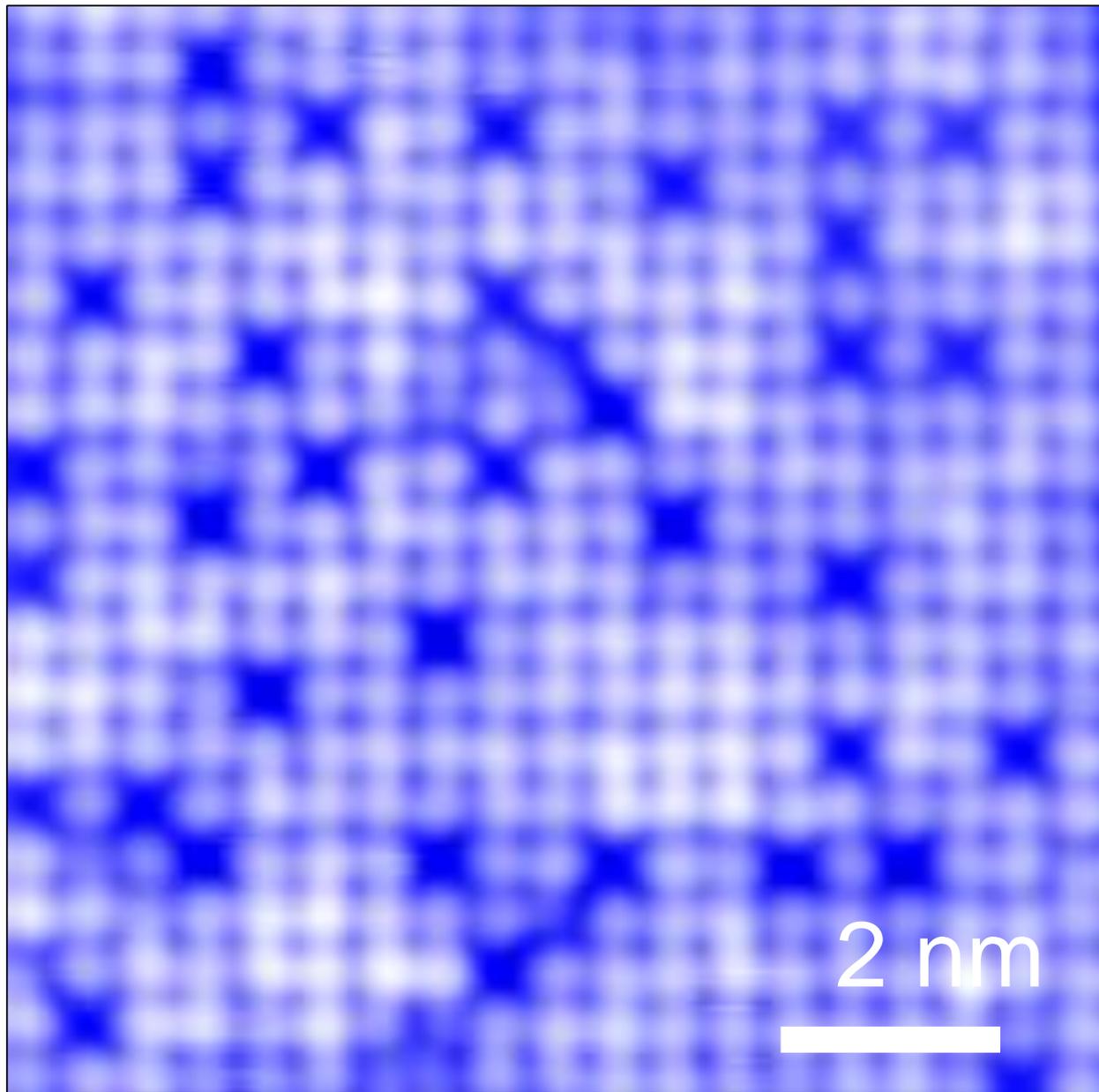
Key point:

どのように縮退が解け、  
どのような電子状態が表面で実現するか？

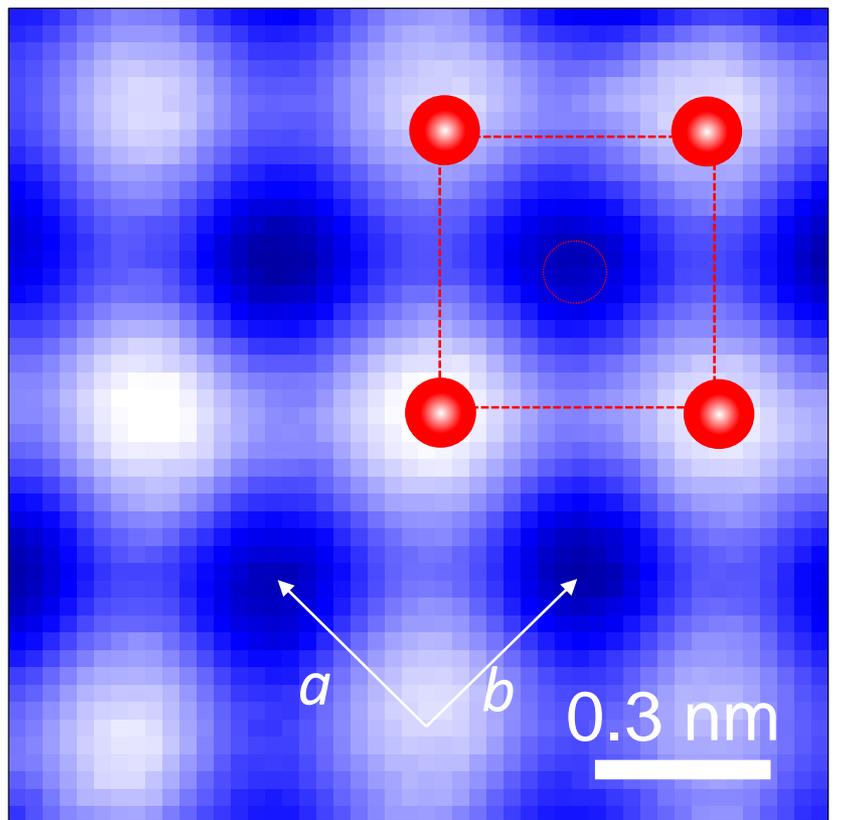
Bulk  
cubic 3d<sup>1</sup> system



*Typical topographic image SrVO<sub>3</sub>(001)*



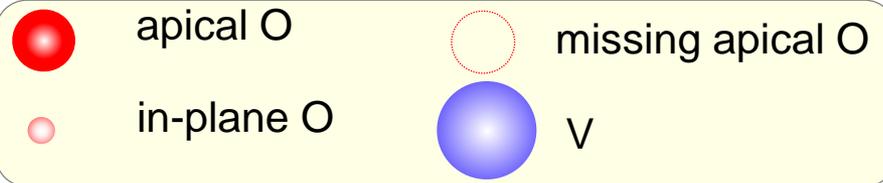
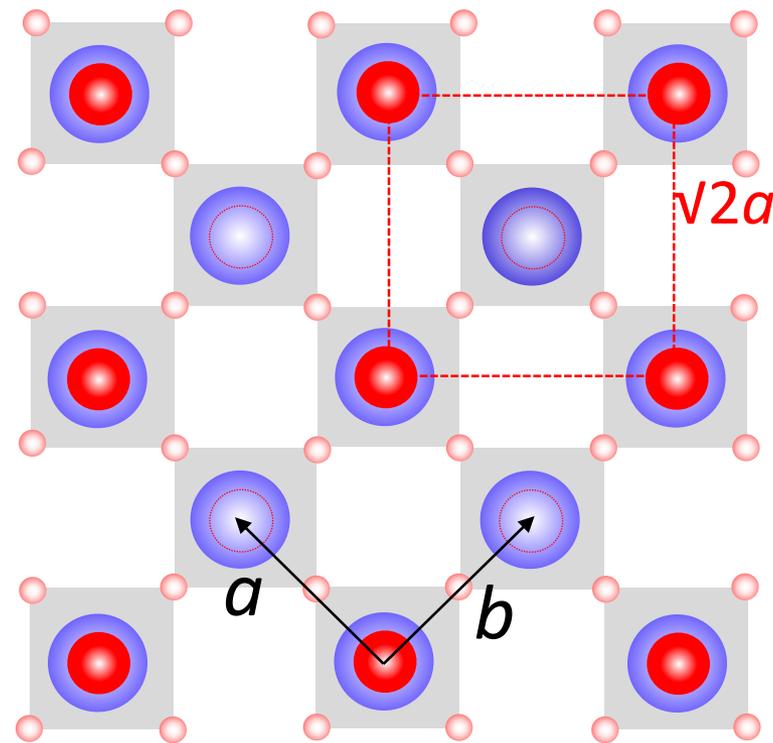
# Apical oxygen reconstruction



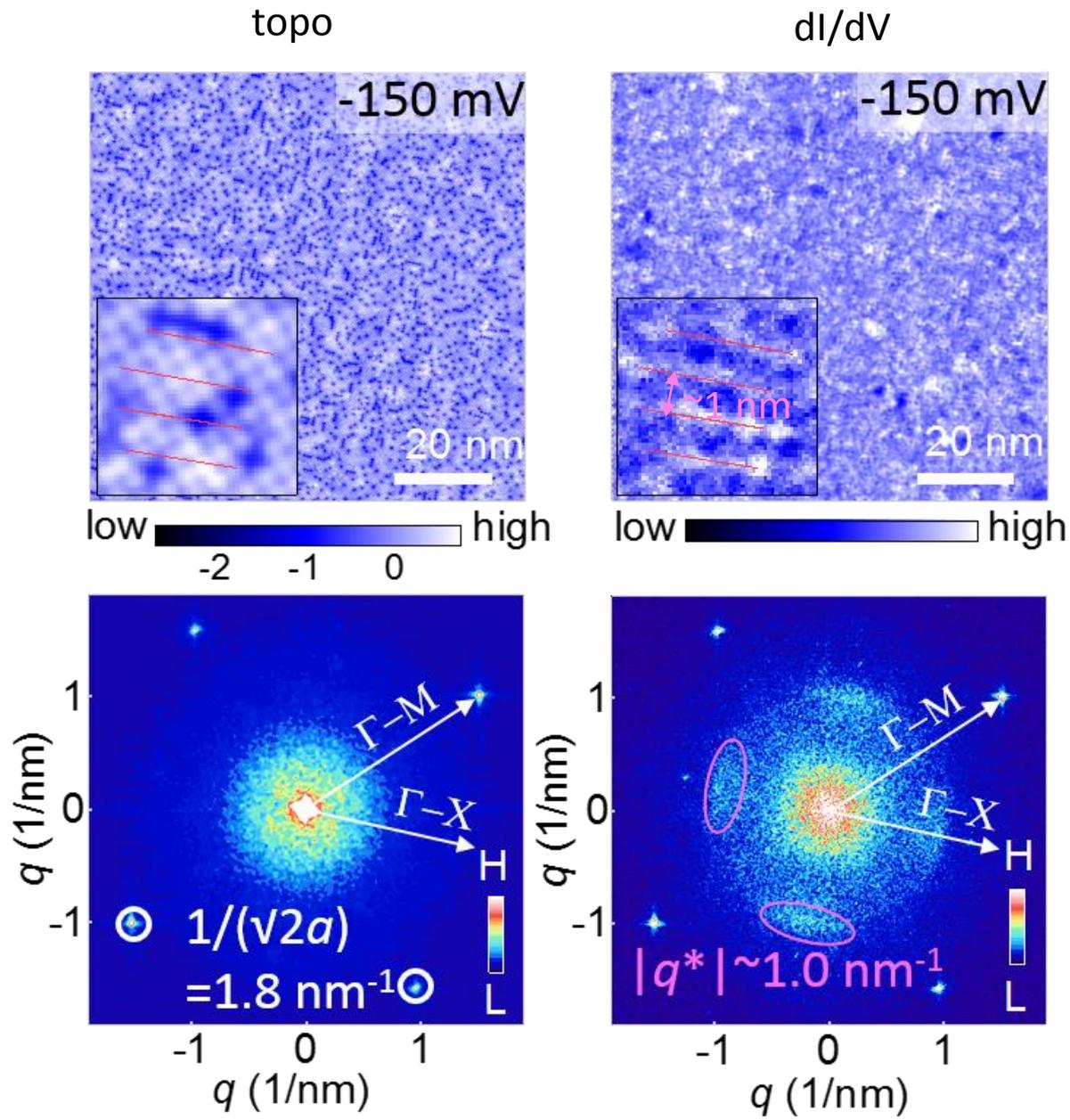
low



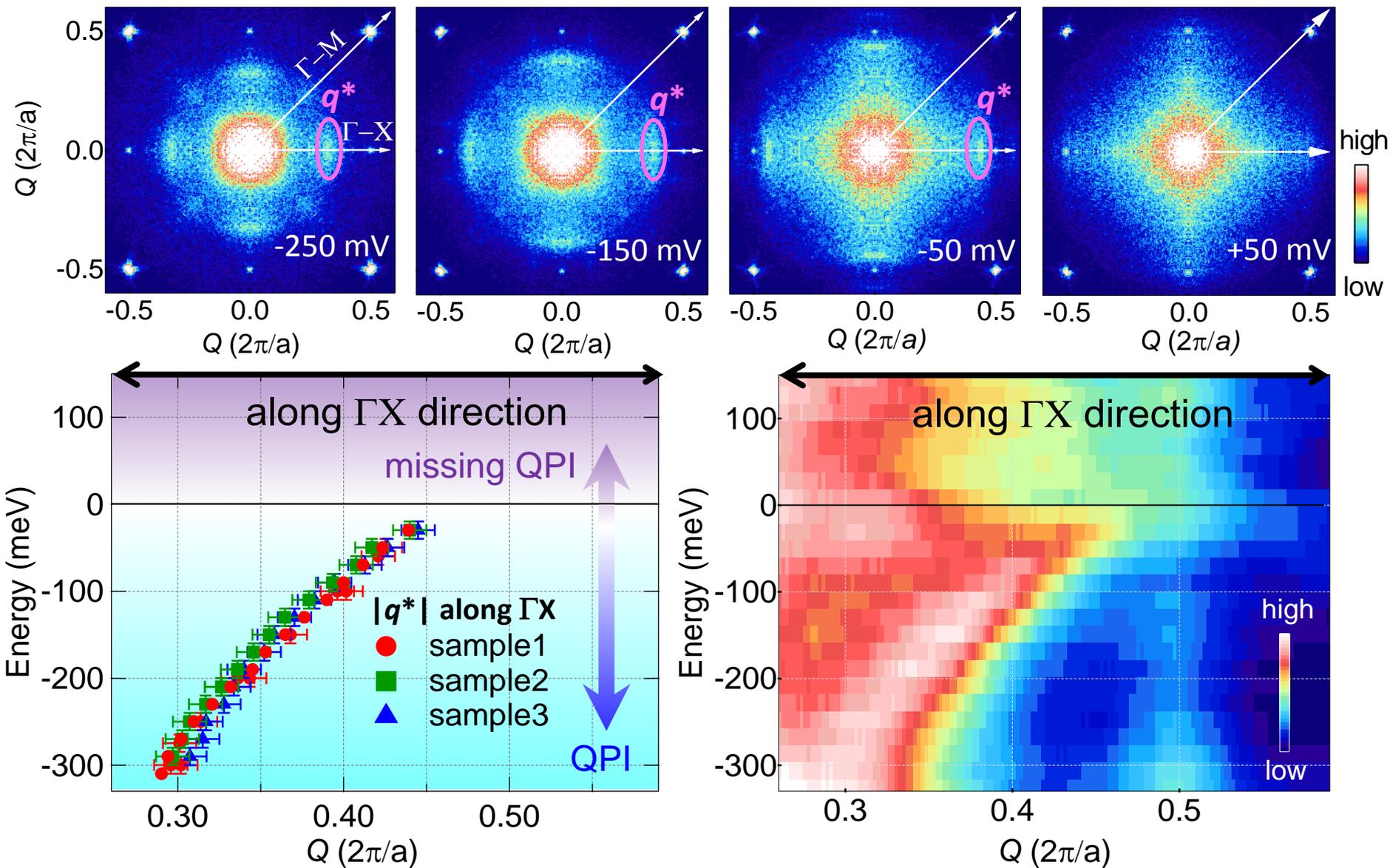
high



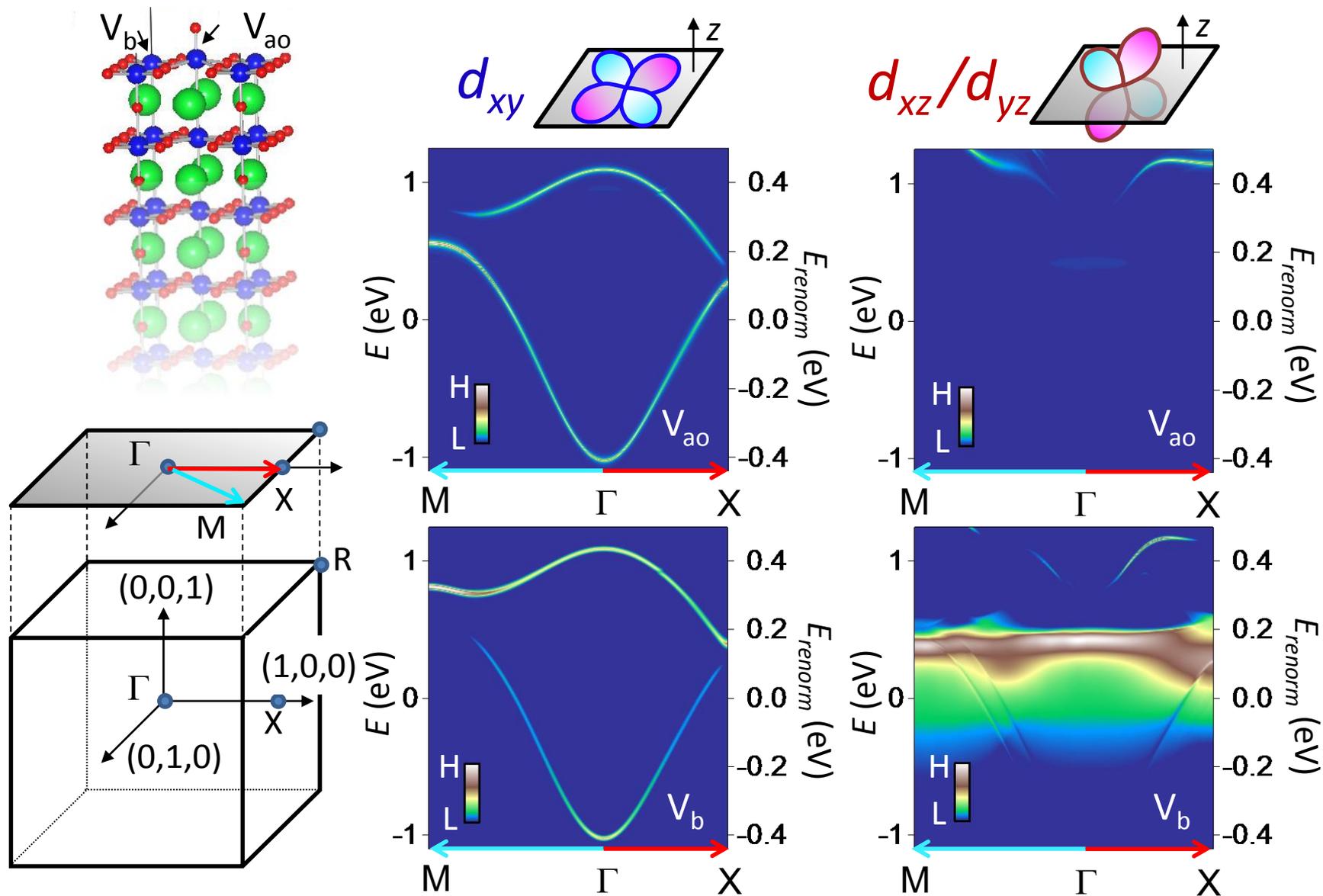
# 2D electronic state on SrVO<sub>3</sub>(001) surface



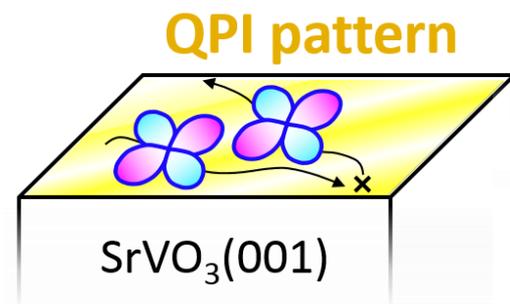
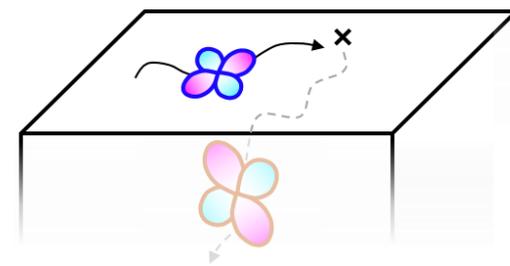
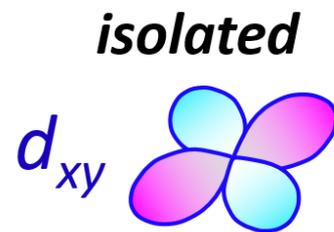
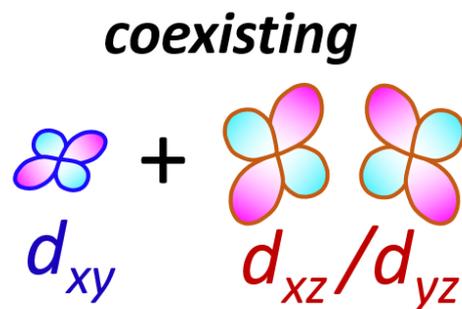
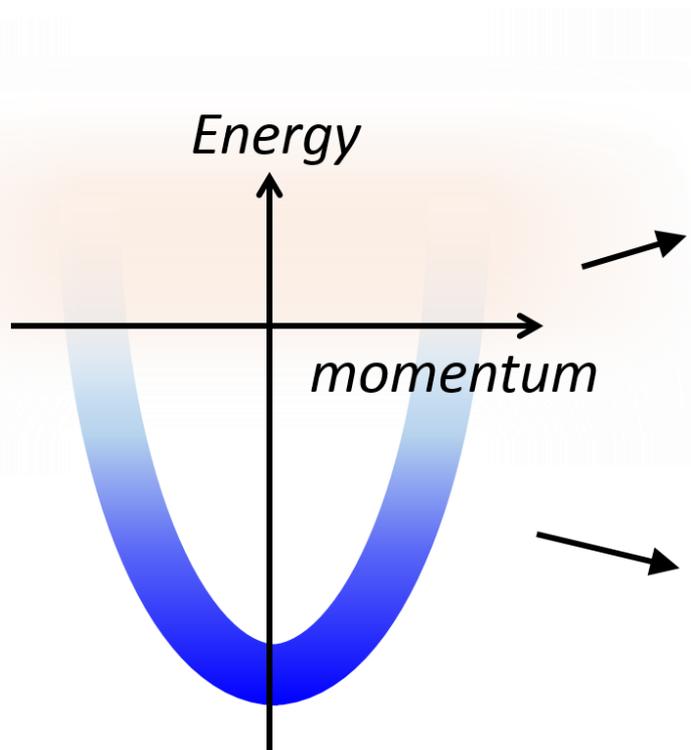
# 2D electronic state on $\text{SrVO}_3(001)$ surface



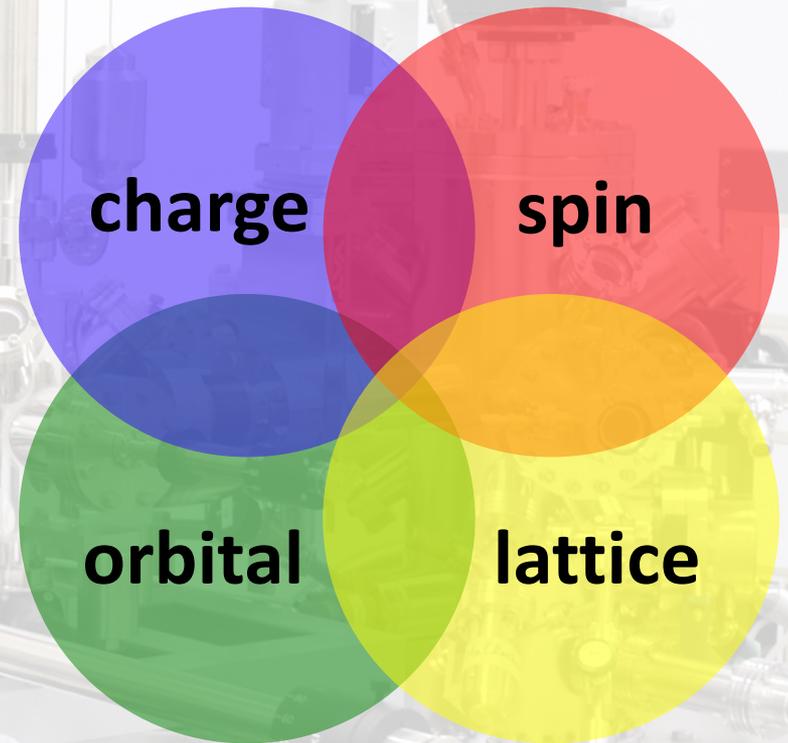
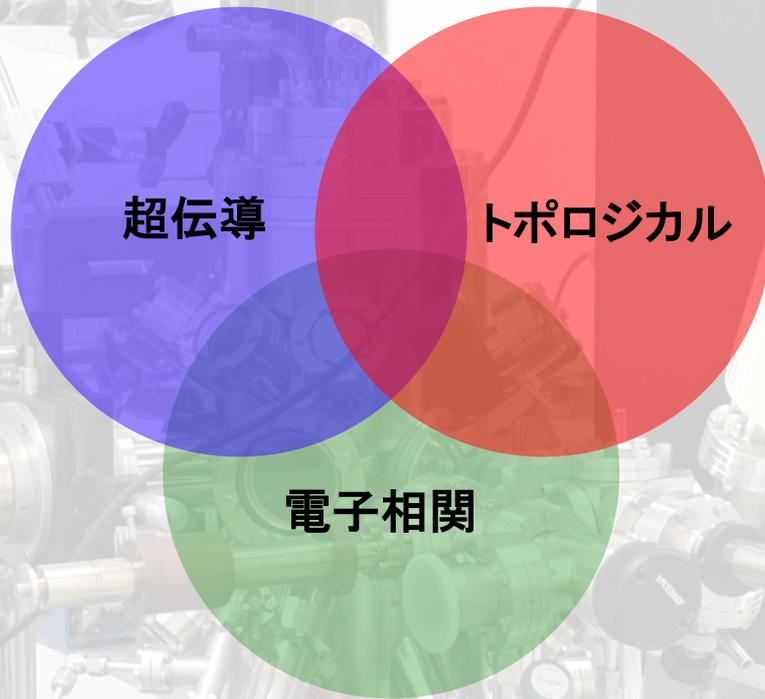
# Mechanism for the emergence of QPI



# Mechanism for the emergence of QPI



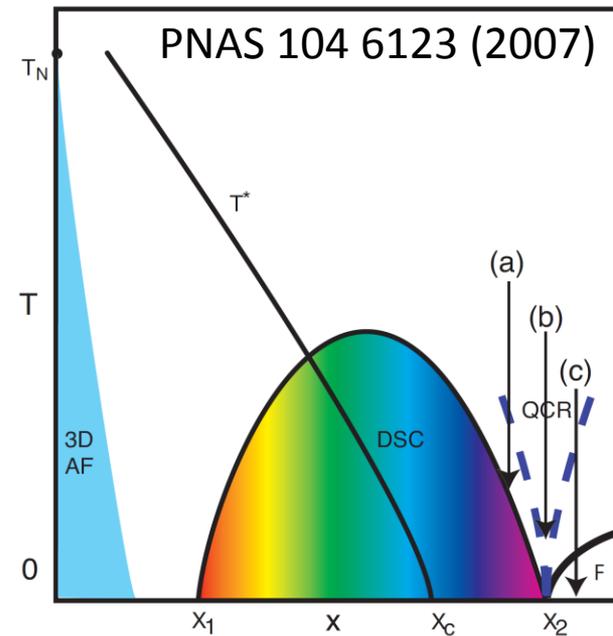
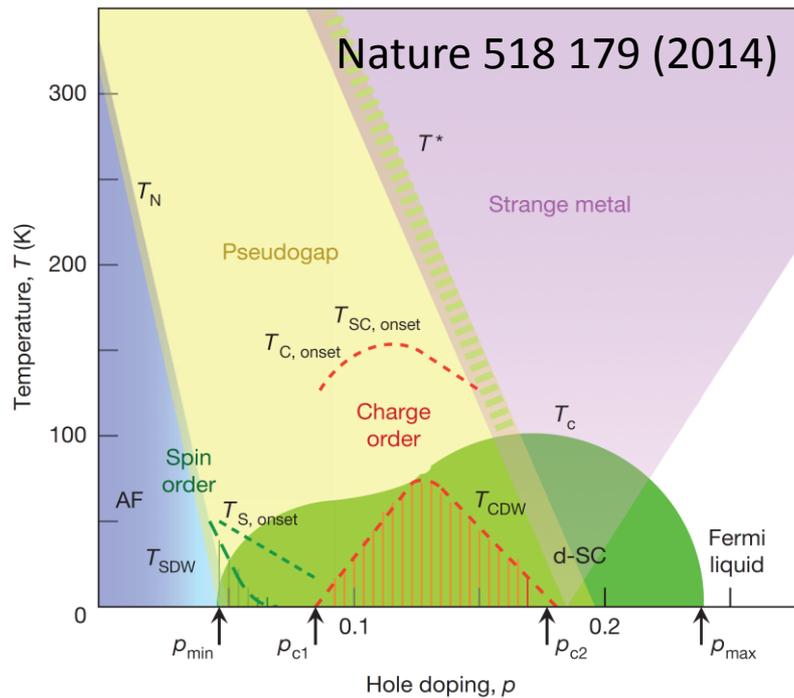
まとめと展望



特に、酸化物薄膜+STM/STSは  
未開拓の研究領域

# 例えば、(古くても)まだまだ面白い銅酸化物

## 薄膜 + STM/STSでアプローチする



e.g.

p-type :  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ,  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$

n-type:  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$ ,

## STMを用いた超伝導の研究

*“Scanning tunneling spectroscopy of high-temperature superconductors”*

Øystein Fischer, et al., *Rev. Mod. Phys.* **79**, 353 (2007)

## SPMを用いた物性研究(全般)

D. A. Bonnell, et al. *Rev. Mod. Phys.* **84**, 1343 (2012)

M.L. Cummings, *et al.*, *Ultramicroscopy* **112**, 22 (2012)

## 酸化物薄膜関連 全般

Emergent phenomena at oxide interfaces

H. Y. Hwang, *et al.*, *Nature Materials* **11**, 103 (2012)

## 高温超伝導体 (最近のreview)

*From quantum matter to high-temperature superconductivity in copper oxides*

B. Keimer, et al., *Nature* **518** 179 (2014)

## トポロジカル絶縁体

*“The birth of topological insulators”*

Joel E. Moore, *Nature* **464** 194 (2010)

Z. Hasan, C. L. Kane, *Rev. of Modern phys.*, **82** 3045 (2010)

Yoichi Ando, Liang Fu, *Annual Review of Condensed Matter Physics* **6** 361 (2015)