

研究概要

放射光角度分解光電子分光による酸化チタン薄膜の金属絶縁体転移に関する研究

理学研究科化学専攻 博士課程後期3年 長谷川直人

代表的な d 電子系金属酸化物である三酸化二チタン (Ti_2O_3) は、約 450 K で温度幅の広い金属-絶縁体転移 (MIT) を示す。この特徴的な MIT は、強相関物質に典型的な Mott 転移とは大きく異なるため、盛んに研究が行われてきた。この MIT は、格子変形、特に c/a 比の変化に伴って、フェルミ準位 (E_F) 近傍の $\text{Ti } 3d$ バンドの重なりが変化することで生じると現象論的に説明されてきた。しかしながら、 c/a 比を変えたバンド計算では Ti_2O_3 の絶縁体状態を再現できない問題があり、MIT の起源は未だよく分かっていない。この現状を打破するためには、 Ti_2O_3 のバンド構造・フェルミ面に関する実験的知見が必要不可欠である。本研究では、平坦かつ清浄な単結晶表面を有する Ti_2O_3 薄膜を合成し、角度分解光電子分光 (ARPES) を用いてバンド構造を直接決定することで、MIT の発現機構を明らかにすることを目的として、下記の項目について実験を行った。

1. Ti_2O_3 薄膜におけるバンド構造の実験的決定

パルスレーザー堆積 (PLD) 法で作製した、清浄かつ結晶性の高い単結晶表面を用いることで、明瞭な分散を示す $\text{Ti } 3d$ 軌道由来のバンドを E_F 近傍に観測し、 Ti_2O_3 単結晶薄膜のフェルミ面・バンド構造の実験的決定に初めて成功した。得られたフェルミ面・バンド構造から、薄膜への微量なホールドーピングを反映したホール面の形成を明らかにした。実験結果とバンド計算の比較から、 U を導入した DFT + U バンド計算が Ti_2O_3 の電子状態をよく再現していることが分かり、 Ti_2O_3 の電子構造に電子相関が重要な役割を果たしていることと結論づけた[1,2]。

2. Ti_2O_3 薄膜における金属-絶縁体転移前後のフェルミ面決定

MIT に伴う Ti_2O_3 の電子状態変化を明らかにする目的で、MIT 前後におけるフェルミ面・バンド構造の温度変化について詳細な解析を行った。MIT 転移温度付近から、昇温に伴ってフェルミ面のトポロジーを保ちながらホール面が徐々に拡大する特徴的なフェルミ面変化を観測した。さらに、このフェルミ面の温度変化は、Hall キャリア密度および c/a 比変化とよい一致を示すことが明らかになった。これらの結果から、 Ti_2O_3 の電子状態変化は格子変形に伴うフェルミ面の変化が起源であることを特定した。

さらに、本研究で見出した MIT 前後でのフェルミ面変化を Ti_2O_3 の諸物性と比較・検討することで、 Ti_2O_3 の「MIT」は、Mott 転移ではなく、格子変形に伴うフェルミ面の変化によって生じる半金属から半導体へのクロスオーバーであると結論づけた。今後、本研究で得られた知見にもとに、基板応力や化学ドーピングを活用した Ti_2O_3 における MIT 制御が実現することで、酸化チタンにおける物性研究の進展が期待できる。

[1] [N. Hasegawa, K. Yoshimatsu, D. Shiga, T. Kanda, S. Miyazaki, M. Kitamura, K. Horiba, and H. Kumigashira, Phys. Rev. B **105**, 235137 \(2022\).](#)

[2] [K. Yoshimatsu, S. Miyazaki, N. Hasegawa, and H. Kumigashira, Phys. Rev. B **106**, L081110 \(2022\).](#)