

放射光 X 線回折を利用した酸化物ヘテロ構造中の酸素八面体傾斜の評価

Evaluation of oxygen octahedral tilts in oxide heterostructures

by synchrotron X-ray diffractions

京大化研¹, 阪大基礎工², JASRI/SPRING-8³, JST-CREST⁴菅 大介¹, 若林 裕助², 田尻 寛男³, 島川 祐一^{1,4}ICR, Kyoto Univ.¹, Osaka Univ.², JASRI/SPRING-8³, JST-CREST⁴D. Kan¹, Y. Wakabayashi², H. Tajiri³ and Y. Shimakawa^{1,4}

E-mail: dkan@scl.kyoto-u.ac.jp

ヘテロ構造化したペロブスカイト酸化物 ABO_3 における BO_6 酸素八面体の変形や傾斜は、電気的および磁気的特性に強い影響を及ぼす。そのため、酸化物薄膜の物性を理解には、界面を含めた薄膜中の酸素八面体の歪みを明らかにすることが重要となる。我々は、八面体歪みの評価に必須となる酸素原子位置の同定には、走査型透過電子顕微鏡における環状明視野法(ABF-STEM)による酸素原子の直接観察が有効であることを報告してきた[1]。しかし STEM 観察では、三次元空間における酸素八面体のある結晶面に投影して、歪みを検出しているという問題があった。

そこで本研究では、放射光 X 線 CTR(Crystal truncation rod)散乱法を利用してヘテロ構造中の酸素八面体歪みの評価を行った。この方法では CTR 散乱を逆空間の広い範囲で測定し、測定結果を再現するように構造モデルを構築することで、ヘテロ構造中の全構成原子の三次元座標を決定できる。実際の CTR 散乱の測定は SPRING-8 BL13XU にて、計 39 本の逆格子ロッドに沿って行った。測定試料には、 $(110)_{\text{ortho}}\text{GdScO}_3$ (GSO)基板上にエピタキシャル成長させた SrRuO_3 (SRO)薄膜(膜厚 9nm)を用いた。

CTR 散乱の測定結果から、八面体傾斜に由来する酸素原子の変位により生じる超反射 $1/2(HKL)$ は、(1) H, K および L の全てが奇数で $K \neq L$ 、(2) H と L が奇数で $H \neq L$ かつ K が偶数 (3) H, K および L の全てが奇数で $H \neq K$ の場合に観測されることがわかった。このことは図 1 の $(1/2 \ 3/2 \ L/2)$ 、 $(-1/2 \ 3/2 \ L/2)$ および $(-1/2 \ 1 \ L/2)$ ロッドにおける測定結果からも確認できる。(指数は $a_{\text{pc}} \times a_{\text{pc}} \times a_{\text{pc}}$ のユニットセルを基にしている。) これらの結果は SRO 薄膜中の RuO_6 八面体は、 $[100]_{\text{pc}}$ および $[001]_{\text{pc}}$ 方向に沿って out-of-phase で、 $[010]_{\text{pc}}$ 方向に沿っては in-phase で傾斜していることを示している。また $[100]_{\text{pc}}$ および $[001]_{\text{pc}}$ 方向の傾斜角度が同じ場合($\alpha = \gamma$)には禁制となる $(-1/2 \ 3/2 \ 1/2)$ 反射が観測されていることから、SRO 薄膜は ab^+c の八面体傾斜パターンを有していることがわかる。これは、バルク SRO の ab^+a 八面体傾斜が基板からのストレインによって変調された結果であると理解できる。当日はモデル計算の結果を含めて発表を行う。[1] R. Aso, D. Kan, Y. Shimakawa and H. Kurata, Sci. Rep. 3, 2214 (2013).

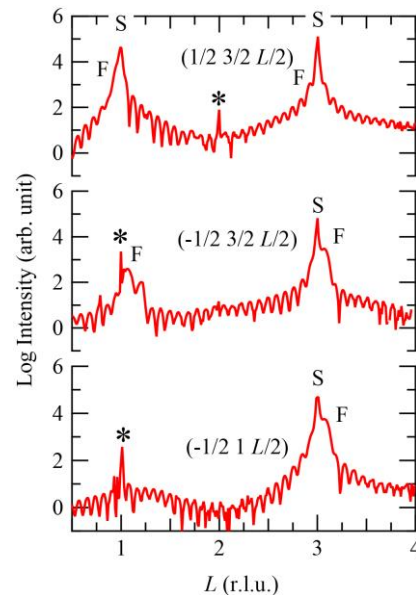


図 1: 上から $(13L)$ ($-13L$) および $(12L)$ ロッドにおける測定結果。S および F は GSO 基板および SRO 薄膜からの反射を示す。* のピークは基板の多重散乱によるものであり、禁制反射である。