

# 研究報告書

## 「酸化物界面への電氣的・磁氣的機能性の付加と制御」

研究期間：平成20年10月～平成24年3月

研究者：塚崎 敦

### 1.研究のねらい

本研究では、酸化物を対象に原子レベルで急峻な界面を作製して、電氣的・磁氣的機能性を制御することを目的としている。酸化物は多様な構造と物性を有する物質群であり、近年では界面での高移動度 2 次元電子ガスや界面磁性などの研究が注目されている。特に、ウルツ鉱構造を持つ物質には結晶中に自発分極が形成され、それらの物質で構成される界面にはバルクにない電気伝導性が発現する。本研究では、薄膜技術を活用したウルツ鉱型結晶界面の形成と電氣的・磁氣的機能性の探索を行った。

### 2.研究成果

#### 1, 電気伝導性制御 –MgZnO/ZnO 界面における分数量子ホール効果の観測–

酸化亜鉛 (ZnO) は、ウルツ鉱型の結晶構造で直接遷移型のバンド構造を持ち、励起子に関する光学的研究と電流注入型の発光ダイオードを目的とする研究が古くから行われてきた物質である。本研究では、マグネシウムを添加した MgZnO と ZnO との界面を形成して、自発分極差を利用した高移動度電子系の制御を実現した。具体的には、分子線エピタキシー法を駆使して作製された急峻な界面に、さらにゲート絶縁体を組み合わせた電界効果素子 (図1) を作製した。界面品質の指標となる電子移動度は、現在までに 0.3K で  $100,000\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  を超える値に到達し、この値は  $\text{SiO}_2/\text{Si}$  界面を凌駕して、酸化物界面中最高値である。本試料を用いて電気伝導の電界制御を行ったところ、調整した電子濃度で図2に示す分数量子ホール効果が観測された。温度依存性などの詳細な評価を行い、各分数量準位の活性化エネルギーを見積もった。 $\nu=8/3$  や  $7/3$  といった高次の分数量準位が、従来から精力的に研究されてきた GaAs/AlGaAs 系の最高品質試料 (移動度  $1000\text{万}\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ ) と、同じ程度の大きさの活性化エネルギーを持っていることがわかった。

研究期間中、界面品質の向上を目指して成長条件の最適化に継続して取り組んだ。作製した試料を上記の電界効果トランジスタ構造に加工し、低温における電子移動度を評価したところ、不純物散乱が支配的な散乱要因であると結論づけた。成長速度が重要なパラメータであることを見出し、実際に  $600\text{nm/h}$  にて最高値の移動度  $180000\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  を得

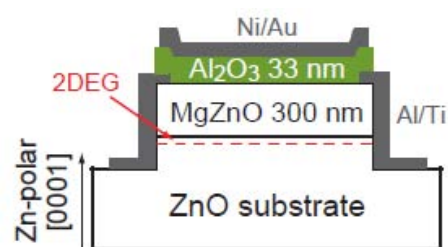


図1 電界効果素子の断面図

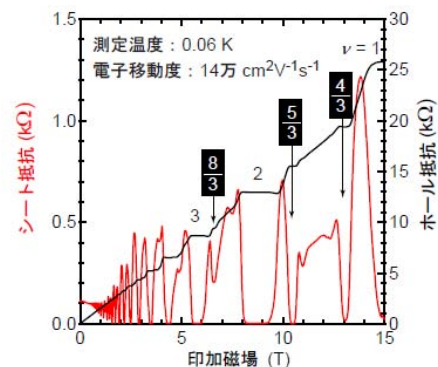


図2 磁場中での伝導特性

た。したがって、成長速度を速めることで結晶中の不純物濃度を低減でき、移動度の向上によって高純度化を確認できた。界面品質を散乱時間の観点でGaAs/AlGaAs系と比較すると、現状の試料は、GaAs系の試料水準で約  $100 \text{ 万 cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  に匹敵する。

## 2. 磁氣的性質の付加

ヘテロ構造に磁氣的性質を付加することを目的に、3d 遷移金属を含む薄膜へと研究対象を広げた。特に、Co, Mg と酸素のみの供給で薄膜作製を試みたところ、基板に含まれる Zn との相互拡散が生じていたが、上部界面においては、欠陥のない急峻なウルツ鉱型結晶界面が形成されることを見出した(図3参照)。東京大学柴田先生との共同研究を行い、薄膜ヘテロ界面を高分解能STEMで観察したところ、転移のないコヒーレント界面であることがわかった。さらに、界面の組成分析でCo濃度を評価した結果、既報の固溶限界濃度を越えて添加されていたため、界面での電氣的不安定性が拡散を助長した可能性がある。

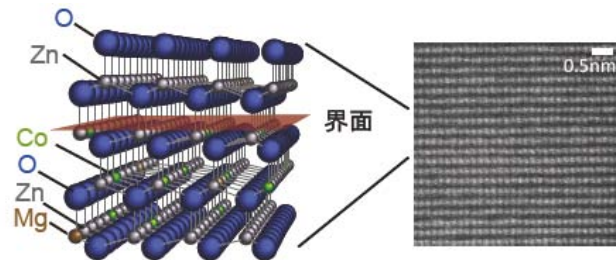


図3 界面結晶構造と高分解能電子顕微鏡像 (測定は東京大学柴田先生)

Co 添加層の作製においては、岩塩

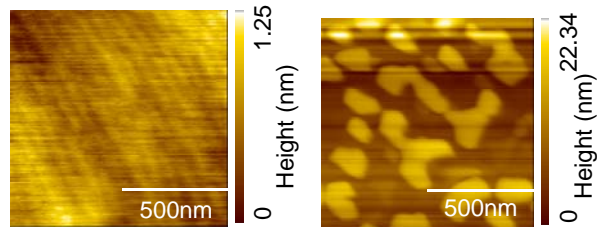


図4 Co 添加薄膜のAFM像 臨界膜厚以下(左)と臨界膜厚以上(右)

構造のCoO層が析出する可能性がある。そこで、成長中に反射高速電子線回折を測定して、表面構造の変化に注目した。実際に、臨界膜厚(約50nm)を過ぎると、電子線回折パターンが3次元表面構造となることを確認した。この臨界膜厚を超えた界面では、多数の転移が観測されるとともに、グレイン形状が見られた。図4に示す原子間力顕微鏡(AFM)像においても、試料表面が島状の形状となっている。界面の伝導特性評価では、コヒーレント界面の試料において形成された電子系が高移動度を保持している上、さらに異常ホール効果を示した。この結果は、高移動度電子系に  $p-d$  交換相互作用による磁氣的性質が付加されたことを示唆している。

## 3. 今後の展開

本研究課題では、分子線エピタキシー法を駆使することで、急峻な酸化物ヘテロ界面の作製を行った。酸化物界面においても純度や作製条件を調整することで、従来の半導体素子に十分比肩する水準の界面形成が可能であることを示した。特に、3d 遷移金属酸化物を用いた界面においても、原子レベルで平坦な界面形成が可能であることは、技術水準の拡張を示す成果と言える。物性制御においては、酸化物界面における2次元電子系の電界制御を可能にし、金属絶縁体転移現象や電子相関の影響を観測した。さらに、磁氣的性質の関連する輸送特性の評価と電界制御に注力している。

これらの成果は、今後、多様な性質を持つ強相関物質群の界面形成が飛躍的に改善されることを示唆している。界面制御技術の向上を継続して行き、次世代エレクトロニクスに活用できる機能性界面を探索する。

#### 4. 自己評価

電氣的性質と磁氣的性質に関する2つの当初目標に対して、電気伝導性制御は大きく進展した。実際に、酸化物界面における分数量子ホール効果の観測と電子移動度の向上を実現した。また、磁氣的性質の付加を目指した3d遷移金属との界面形成においては、Coに集中して研究を展開した。界面構造の評価において、Coを多量に含む場合にも、ウルツ鉱構造を保ってコヒーレントな界面が形成できたことは大きな進捗と考えている。また、ホール効果測定において、従来までの非磁性界面にはない異常ホール効果の観測に成功したことは、本提案の当初目標を一定の水準で到達できたと考えている。しかしながら、上記2つの界面(MgZnO/ZnOとCoZnO/ZnO)を高品質に形成するための条件探索と輸送特性評価に集中し過ぎたことで、超格子化や他の3d遷移金属元素への展開など、計画に行き届かなかった内容もある。今後、物質系を拡張して、磁氣的性質に関する研究を一層精力的に展開していく必要がある。

#### 5. 研究総括の見解

分子線エピタキシー法を用いてMgZnOとZnOの急峻な酸化物界面を形成し、 $100,000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ を超える大きな移動度を実現し、分数量子ホール効果などの高移動度系に特有な量子現象を観測した。さらにCoを添加した薄膜との界面で興味深い磁気抵抗現象を見出しており、急峻で高移動度を実現する酸化物界面相形成法を確立した研究で、高く評価できる。

#### 6. 主な研究成果リスト

##### (1) 論文(原著論文)発表

###### 1) Observation of the fractional quantum Hall effect in an oxide

A. Tsukazaki, S. Akasaka, K. Nakahara, Y. Ohno, H. Ohno, D. Maryenko, A. Ohtomo, M. Kawasaki

Nature Materials **9**, 889 (2010).

###### 2) Improvement of electron mobility above $100,000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ in $\text{Mg}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}/\text{ZnO}$ heterostructures

S. Akasaka, A. Tsukazaki, K. Nakahara, A. Ohtomo, M. Kawasaki

Japanese Journal of Applied Physics **50**, 080215 (2011).

その他 15 件

##### (2) 特許出願

特許出願 1 件 (出願中)

###### 1, 「結晶および積層体」

発明者：塚崎敦

出願人：科学技術振興機構

出願番号：特願 2011-222161 (2011.10.6)

##### (3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物等)

国際会議招待講演 6 件

###### 1) Quantum Hall effect in MgZnO/ZnO heterostructures

- 4<sup>th</sup> International Workshop on Emergent Phenomena in Quantum Hall Systems (EPQHS), Beijing, China, June 23-26, 2011.
- 2) Fractional quantum Hall effect at the MgZnO/ZnO heterointerfaces  
38<sup>th</sup> International symposium on Compound Semiconductors (ISCS), Berlin, Germany, May 22-26, 2011.
  - 3) Emergence of fractional quantum Hall states in well-regulated MgZnO/ZnO heterostructures  
Materials Research Society (MRS) spring meeting, 2011 San Francisco, USA, April 27, 2011.
  - 4) Fractional Quantum Hall effect in MgZnO/ZnO heterostructures  
The 2010 WPI-AIMR Annual Workshop, Sendai, March 25-27, 2010.
  - 5) Observation of fractional quantum Hall effect in MgZnO/ZnO based heterostructures  
APS March meeting, Portland, USA, March 15, 2010.
  - 6) 2D electron transport in Mg<sub>x</sub>Zn<sub>1-x</sub>O based heterostructures  
JSPS Core program meeting, Korea, Oct. 24, 2009.

国内会議招待講演 4 件

- 1) ZnO 系酸化物界面における移動度向上と量子ホール効果  
第 58 回春季応用物理学会 神奈川工科大, 厚木, 3 月 25 日, 2011.
- 2) 酸化物界面への電氣的・磁氣的機能性の付加と制御  
さきがけ領域「革新的次世代デバイスを目指す材料とプロセス」会議, 大阪, 1 月 12 日, 2011.
- 3) MgZnO/ZnO 界面における量子輸送特性の進展  
第 118 回東北大学金属材料研究所講演会, 仙台, 11 月 27 日, 2009.
- 4) 透明酸化物伝導体 酸化亜鉛界面の量子伝導とデバイス展開  
第 1 回機能性酸化物エレクトロニクス研究会, 大阪, 10 月 23 日, 2008.

解説記事 2 件

- 1) 酸化物界面に閉じ込めた二次元電子の超伝導と量子ホール効果  
川崎雅司、塚崎敦、上野和紀  
物理学会誌 3 月号 (2011).
- 2) 酸化亜鉛系分極不整合界面の 2 次元伝導と導電性高分子を用いた伝導性制御  
塚崎敦、中野匡規、大友明、上野和紀、赤坂俊輔、湯地洋行、中原健、福村知昭、川崎雅司  
まてりあ 7 月号 312-313 (2010).