

整理番号	2019-J-105	報告者氏名	藤田 貴啓
------	------------	-------	-------

研究課題名「室温動作巨大磁気抵抗トランジスタの実現に向けたダブルペロブスカイト型マンガン酸化物の薄膜化」

<代表研究者> 機関名：東京大学・工学部・量子相エレクトロニクス研究センター  
職名：助教 氏名：藤田貴啓

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：  
機関名： 職名： 氏名：  
機関名： 職名： 氏名：  
機関名： 職名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

近年、バンド構造の幾何学的（トポロジカル）な特徴に着目した物質の分類が注目を集めている。とりわけ、トポロジカルに非自明なバンド構造をもった物質は、トポロジカル物質群と呼ばれ、種々の特徴的な物性を示すことで知られている。特に線形的な Dirac 分散は、有効質量ゼロの高移動度電子を生み出すほか、時間反転対称性を破ることでスピン縮退を解くことによって、Weyl 点と呼ばれるバンド構造を創り出すことができる。Weyl 点は Berry 位相と呼ばれる量子力学的位相と結びついており、Berry 位相を獲得した伝導電子は巨大な異常ホール効果をはじめとした、非散逸伝導現象を示すことから、将来の省エネルギーエレクトロニクス材料として注目されている。

本研究では反強磁性絶縁体  $\text{CaMnO}_3$  とトポロジカルモット半金属  $\text{CaIrO}_3$  のヘテロ界面における異常ホール効果の観測と、その電界効果による制御を行い、バンド構造に基づいた定性的な理解を与えることに成功した。これらはいずれも酸化物ヘテロ界面においては初めての成果であり、トポロジカル物質としての酸化物の応用可能性の端緒を開くものである。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

【口頭、ポスター】

なし

【誌上】

Ryutaro Nishino, Takahiro C. Fujita and Masashi Kawasaki, “Electric field control of anomalous Hall effect in  $\text{CaIO}_3/\text{CaMnO}_3$  heterostructure” (submitted)

<研究の目的、経過、結果、考察（5000 字程度、中間報告は 2000 字程度）>

### 【研究の目的】

本研究の当初の目的は、 $A$  サイト秩序型ダブルペロブスカイト  $LnBaMn_2O_6$  を (I) 薄膜化し、(II) トランジスタ構造を作製することで、(III) 電界効果による電子相制御を検証することであり、またそれによって、室温においても僅かな外部磁場・電場で駆動する高機能性モットトランジスタを構築することであった。そのための手段として、(I) パルスレーザー堆積法を用いた高品質薄膜化、(II) デバイス化・トランジスタ動作確認、(III) 電子相制御、という 3 段階での研究を進めることを計画していた。

### 【経過】

しかしながら、当初の計画に反し、 $LnBaMn_2O_6$  の高品質薄膜を得ることが困難であることが判明し、計画を変更する必要が生じた。当初作製を計画していた  $LnBaMn_2O_6$  は、 $LnMnO_3$  層と  $BaMnO_3$  層とが交互に積層した天然の超格子構造をとっている。そこで、酸化物薄膜作製技術を生かし、 $Mn$  を含むペロブスカイト型酸化物の人工のヘテロ界面構造を作製することで、ヘテロ界面における新規物性の発現と、その電界効果による制御を目指す方向に研究を進めた。

そのために注目したのが、近年目覚ましい発展を見せている「トポロジカル物質」と呼ばれる一連の物質群である。これらの物質群は、バンド構造の幾何学的(トポロジカル) な特異性に由来した、種々の物性を示すことで知られている。

とりわけ、Dirac 分散と呼ばれる線形的なバンド分散は、有効質量ゼロの高移動度電子を生み出すとともに、Weyl 点と呼ばれるバンドの交差点を創り出す。この Weyl 点は、Berry 位相と呼ばれる量子力学的な位相と結びついており、巨大な異常ホール効果などの非散逸電流を生じさせることから、将来の省エネルギーエレクトロニクス材料として期待されている。このようなトポロジカルなバンド構造の出現には、大きなスピン軌道相互作用の存在が鍵となる。実際に、ペロブスカイト型酸化物においても、イリジウム酸化物がそうしたトポロジカルな電子状態を持つことが報告されている。そこで本研究では、反強磁性絶縁体である  $CaMnO_3$  とトポロジカルモット半金属である  $CaIrO_3$  のヘテロ界面における創発物性の制御を目指した。

### 【結果】

#### ① $CaMnO_3/CaIrO_3$ ヘテロ界面の作製

パルスレーザー堆積法を用いて、基板温度  $600^\circ\text{C}$ 、酸素分圧  $40\text{ mTorr}$  の条件において、高品質な  $CaMnO_3/CaIrO_3$  ヘテロ界面構造を作製することに成功した。 $CaIrO_3$  は基板からのエピタキシャル歪の大きさに応じてそのバンド構造を変化させることが理論的に予測されており、その効果を検証するために、異なる格子定数を持つ 2 種類の酸化物単結晶基板 ( $SrTiO_3$  および  $LaAlO_3$ ) 上に成膜を

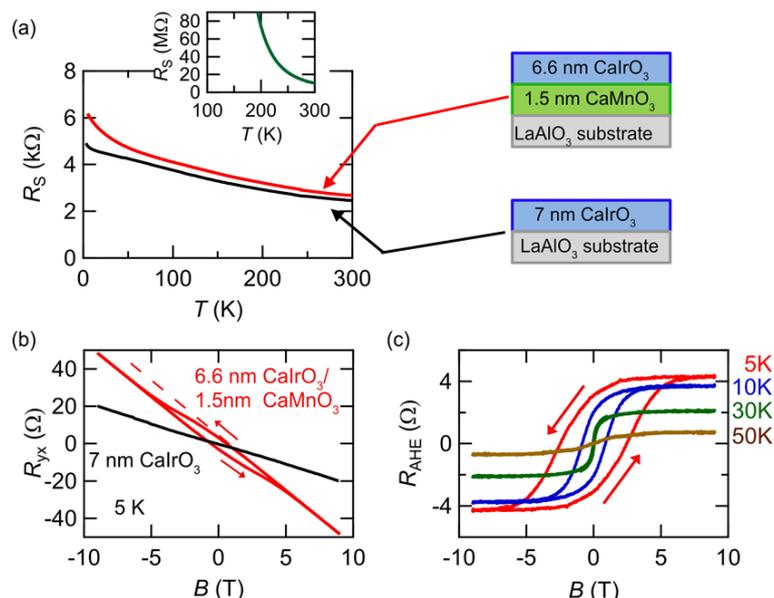


図1 (a)ヘテロ構造及び $CaIrO_3$ 単一薄膜のシート抵抗( $R_s$ )の温度( $T$ )依存性。内挿図は比較のための電子ドーパされた $CaMnO_3$ 薄膜のシート抵抗( $R_s$ )の温度依存性。(b)5 Kにおけるヘテロ構造及び $CaIrO_3$ 単一薄膜のホール抵抗( $R_{yx}$ )の磁場( $B$ )依存性。(c)(b)に示したヘテロ構造のデータから、磁場に線形な通常のホール抵抗成分を差し引いた異常ホール抵抗( $R_{AHE}$ )の磁場依存性。

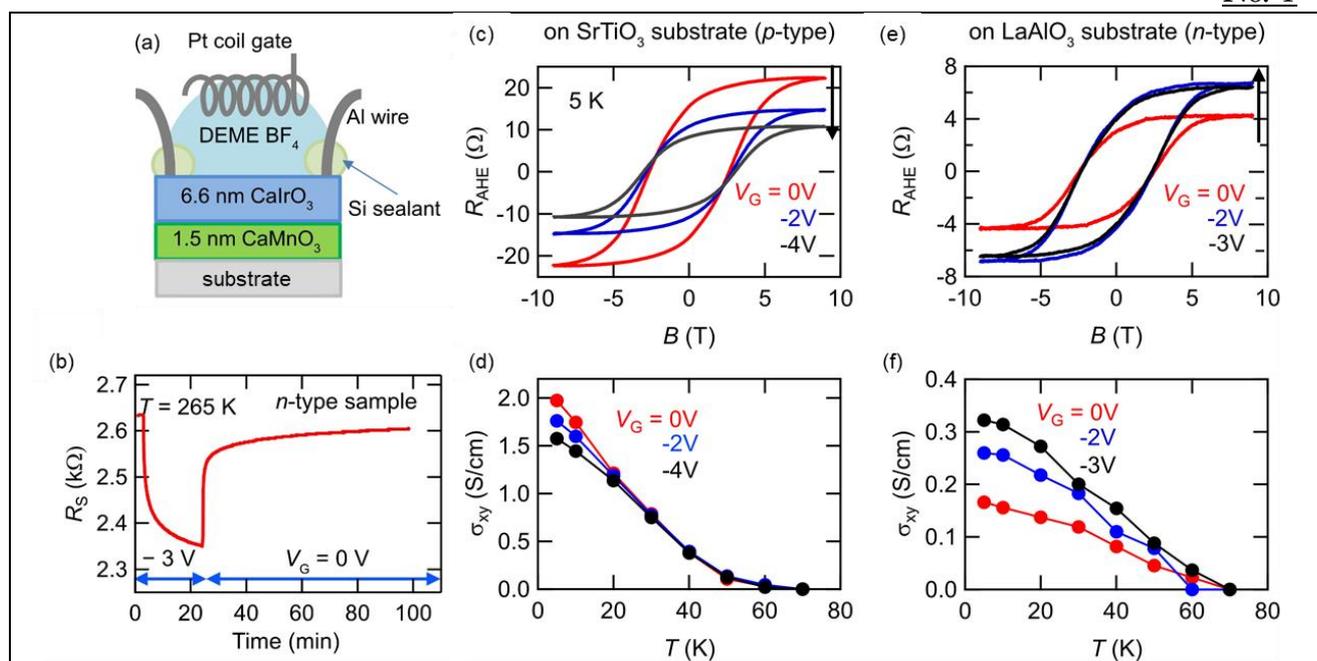


図2 (a)EDLTデバイス構造の模式図。(b)EDLTデバイスのゲート電圧( $V_G$ )・時間特性。(c)、(e) SrTiO<sub>3</sub>およびLaAlO<sub>3</sub>上に作製したヘテロ構造の5 Kにおける異常ホール抵抗( $R_{AHE}$ )の磁場( $B$ )・ゲート電圧依存性。(d)、(f) SrTiO<sub>3</sub>およびLaAlO<sub>3</sub>上に作製したヘテロ構造の異常ホール伝導度( $\sigma_{xy}$ )の温度( $T$ )・ゲート電圧依存性。

行った。X線回折測定ならびに、透過型電子顕微鏡による断面像観察および元素分析から、急峻なヘテロ界面が作製されていることを確認した。また、電子エネルギー損失分光法 (Electron Energy Loss Spectroscopy: EELS) によって、ヘテロ界面において Ir から Mn へ電子の移動が起こっていることを確認した。

## ② ヘテロ界面における異常ホール効果の観測

作製した CaMnO<sub>3</sub>/CaIrO<sub>3</sub>ヘテロ界面の電気磁気輸送特性を評価した。まず、CaIrO<sub>3</sub>単一の薄膜とヘテロ界面試料の電気抵抗の温度依存性を比較することで、CaIrO<sub>3</sub>層が主に電気伝導を担っていることを明らかにした (図 1(a))。また、約 50 K 以下の低温領域において、それぞれの物質では見られない、強磁性的なヒステリシスを伴う異常ホール効果の観測に成功した (図 1(b),(c))。加えて、SrTiO<sub>3</sub> および LaAlO<sub>3</sub> 上に作製したヘテロ界面構造は、それぞれ  $p$ 型および  $n$ 型の電気伝導特性を示し、エピタキシャル歪の効果によるバンド構造の変調が示唆された。

## ③ 電気二重層トランジスタ構造によるヘテロ界面由来の異常ホール効果の電界制御

電気二重層トランジスタ (Electric Double Layer Transistor: EDLT) と呼ばれる手法を用いることで、②において観測された異常ホール効果の電界制御を試みた。これは図 2(a)に示したように、ゲート絶縁膜の代わりにイオン液体 ( $N,N$ -diethyl- $N$ -(2-methoxyethyl)- $N$ -methylammonium tetrafluoroborate: DEME BF<sub>4</sub>) を用いたトランジスタ構造を取っており、通常の固体ゲート電界効果トランジスタよりも大きな電荷変調を行うことができる。酸化物に対する EDLT では、正バイアス (電子を蓄積する方向のゲート電圧) を印加すると、静電的な電子蓄積と同時に、酸素欠損を伴う不可逆な電気化学反応が生じることが知られている。これを防ぐために、本研究では負バイアス方向のみにゲート電圧を限定している。図 2(b)に示すように、ゲート電圧の印加に伴い抵抗値は減少するが、ゲート電圧の印加を止めることで初期状態に戻っており、静電的かつ可逆的な電荷変調が実現している。

図 2(c)、2(e)に SrTiO<sub>3</sub> および LaAlO<sub>3</sub> 上に作製したヘテロ構造の 5 K における異常ホール抵抗 ( $R_{AHE}$ ) の磁場及びゲート電圧依存性を示す。 $p$ 型である SrTiO<sub>3</sub> 上の試料はゲート電圧の印加によって異常ホール抵抗が減少したのに対し、 $n$ 型である LaAlO<sub>3</sub> 上の試料は、ゲート電圧の印加に伴い

異常ホール抵抗が増加するという、対照的な傾向が見られた。また、ホール抵抗を縦抵抗の値で規格化した値である異常ホール伝導度( $\sigma_{xy}$ )の温度及びゲート電圧依存性を図 2(d)、2(f)に示す。異常ホール伝導度においても同様のゲート電圧依存性が見られたことから、ゲート電圧は主に縦抵抗値の変化ではなく、ホール抵抗値の変化をもたらしていることがより明らかとなった。

### 【考察】

本研究で観測された  $\text{CaMnO}_3/\text{CaIrO}_3$  ヘテロ界面における異常ホール効果および、そのキャリアタイプに応じた対照的なゲート電圧依存性 (図 3(a)) は以下のように説明することができる。

#### ① $\text{CaIrO}_3$ から $\text{CaMnO}_3$ への電子移動と磁性の発現

EELS の結果から、ヘテロ界面近傍の Mn には Ir から電子がドープされていることが分かっている。 $\text{CaMnO}_3$  の基底状態は反強磁性の絶縁体であるが、電子がドープされることで傾角強磁性に近い振る舞いを示すことがバルク試料の先行研究で示されており、同様にヘテロ界面において強磁性が発現していることが予想される。

#### ② 近接効果による $\text{CaIrO}_3$ の時間反転対称性の破れと Weyl 点の出現

ヘテロ界面で生じた強磁性に起因して時間反転対称性が破れることで、 $\text{CaIrO}_3$  の Dirac 分散がスピン分裂し、Weyl 点が生じる (図 3(b))。異常ホール伝導度は一般的に久保公式によって、 $\sigma_{xy} = -\frac{e^2}{h} \sum_{n \neq n'} \int \frac{dk}{(2\pi)^d} f(\varepsilon_n(\mathbf{k})) b_n^z(\mathbf{k})$  と記述され、 $f(\varepsilon_n(\mathbf{k}))$  はフェルミ分布関数、 $b_n^z(\mathbf{k})$  は先述の Berry 位相を表している。この式に従えば、異常ホール伝導度は Berry 位相の源である Weyl 点にフェルミ準位が近づくほど大きくなることになる。従って、 $p$  型の場合はゲート電圧の印加に伴ってフェルミ準位が Weyl 点から遠ざかることで異常ホール伝導度が減少し、 $n$  型の場合は逆にゲート電圧の印加に伴ってフェルミ準位が Weyl 点に近づくことで異常ホール伝導度が増加したと考えられる (図 3(c))。

以上のように、本研究では反強磁性絶縁体  $\text{CaMnO}_3$  とトポロジカルモット半金属  $\text{CaIrO}_3$  のヘテロ界面における異常ホール効果の観測と、その電界効果による制御を行い、バンド構造に基づいた定性的な理解を与えることに成功した。磁性体とトポロジカル物質の界面における異常ホール効果は、金属間化合物を中心としたトポロジカル絶縁体において現在盛んに研究されている。一方で、酸化物においては、材料系が限られることや、イリジウム酸化物薄膜の高品質化の困難さに起因して、未だに研究が発展途上にある。今回の成果は、そうした酸化物ヘテロ界面における異常ホール効果の初めての電界制御として、大変意義深いものであると考えている。

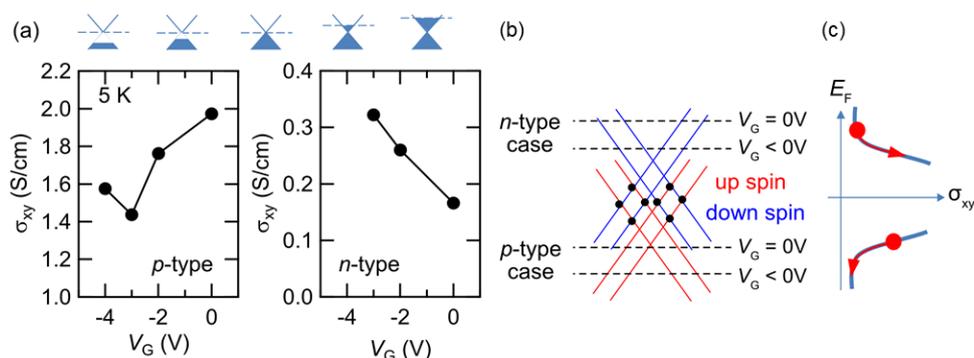


図3 (a)  $\text{SrTiO}_3$  ( $p$ -type)および $\text{LaAlO}_3$  ( $n$ -type)上に作製したヘテロ構造の5 Kにおける異常ホール伝導度( $\sigma_{xy}$ )のゲート電圧( $V_G$ )依存性。 $\text{CaIrO}_3$ のDirac分散に対するフェルミ準位のゲート電圧による変化の模式図をデータ上に示す。(b) Dirac点近傍のスピン分裂および、フェルミ準位のゲート電圧による変化の模式図。(c)フェルミ準位の変化に伴う異常ホール伝導度( $\sigma_{xy}$ )の変化の模式図。