

## 遷移金属酸化物の電界誘起相変化

### Electric Field Induced Phase Changes in Transition Metal Oxides

高木 英典 (TAKAGI HIDENORI)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授



#### 研究の概要

遷移金属酸化物中に出現する多彩な電子相は微妙なバランスで競合し、外的刺激、たとえば電界により劇的な電子相変化を起こす。これを用いた電界効果トランジスタや抵抗変化メモリなどのデバイスは、次世代エレクトロニクスの要素技術として期待されている。本研究はこれらのデバイスの学理を構築すると同時に物理的に興味深い電界誘起物性の開拓を目指す。

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：強相関系

#### 1. 研究開始当初の背景

遷移金属酸化物の示す多彩な電子相・相変化に基づいたデバイスは次世代エレクトロニクスの担い手として囑望されている。[発表論文2]その代表例が酸化物電界効果トランジスタと抵抗変化メモリである。最近の進展により、酸化物のトランジスタは動作するのが当然となってきた。抵抗変化メモリはシンプルな構造のため次世代の不揮発性メモリデバイスとして開発が進められている。これらのデバイス構造を用いて新しい物理を展開すると同時にエレクトロニクス展開の基盤となる学理の構築が求められている。

#### 2. 研究の目的

上記を鑑み、酸化物デバイス構造を用いた電界誘起物性を探索する。同時に、デバイスの学理、特に抵抗変化メモリの動作原理を解明する。

#### 3. 研究の方法

遷移金属酸化物トランジスタは、まずはデバイスの歩留まり向上を目指す。移動度の大きな試料は極低温実験に持ち込み、超伝導や量子輸送現象の開拓を目指す。

抵抗変化メモリはプレーナ型デバイスを作製し、動作領域の可視化を実現する。相変化の前後の化学結合や電子状態の実空間解

像を行い、デバイス動作の長さスケールや動作の微視的イメージを構築する。

#### 4. これまでの成果

##### (1) 遷移金属酸化物トランジスタの構築

パリレンをゲート絶縁膜とする SrTiO<sub>3</sub> トランジスタを構築した。デバイス作製条件を最適化することによって、極低温で動作する移動度の大きいデバイス作製に成功した。これにより界面二次元電子系の超伝導-絶縁体転移を実現した。[発表論文3]

同時に、トランジスタ構築技術を他の物質群にも展開している。これまでに MoS<sub>2</sub> や WSe<sub>2</sub> などの層状遷移金属カルコゲナイドの金属-絶縁体転移を実現した。

##### (2) 抵抗変化メモリの物理的機構解明

二元系遷移金属酸化物の抵抗スイッチング現象は高電圧印加による伝導フィラメント構造の生成が起源であるとの指摘があった。この伝導フィラメントモデルの妥当性を検証するために、プレーナ型素子構造を独自に考案し抵抗変化領域の SEM による直接観察を行った。その結果、幅 1 μm 程度の伝導フィラメントの可視化に成功した。この伝導フィラメントの起源を明らかにするべく放射光を用いた分光イメージングを行った。伝導

フィラメントは母体の酸化物が還元して生じた金属（または金属的伝導酸化物）であることを明らかにした。[発表論文 6]

さらに電極構造を工夫することで、伝導フィラメント構造の位置制御とナノスケールへのダウンサイジングに成功した。[発表論文 5] 微細化に伴い、動作電力が大幅に小さくなることも確認した。デバイスの微細化・省電力化が可能となり、実際のデバイス開発に貢献する成果といえる。

### (3) Ir 酸化物の巨大スピン軌道誘起相互作用と誘起物性

スピン軌道相互作用は今日の物性物理の重要なキーワードの一つであり、界面、電界下において、その効果は顕著になる。デバイス構造を用いた電界誘起物性の探索の舞台として、相対論効果が顕著な重い 5d 遷移金属イリジウムの酸化物を選択し、スピン軌道相互作用が支配的な新奇電子相を探索した。

#### 1. $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ のスピン軌道モット絶縁体状態 [発表論文 4]

5d 遷移金属酸化物は空間的に広がった 5d 電子軌道のために金属的な伝導が予測される。ところが、層状 Ir 酸化物  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  はこれに反し、磁性絶縁体となる。放射光を用いた共鳴 X 線磁気散乱実験の結果、この物質の 5d 電子の波動関数が複素位相を含む  $J_{\text{eff}} = 1/2$  状態で記述できることを見出した。これは Ir の強いスピン軌道相互作用によって誘起されたモット絶縁体状態にあることを意味する。電界効果の実験を進めている。

#### 2. 新規 Ir 酸化物 $\text{Ir}_2\text{O}_4$ の発見 [発表論文 1]

この物質は A サイトが欠損したスピネル構造を形成する。同じ化学組成をもつルチル型  $\text{IrO}_2$  とは異なり、この物質は絶縁体的挙動を示した。Ir の強いスピン軌道相互作用とパイロクロア格子上の幾何学的フラストレーションとの協奏効果により、特異な磁性やトポロジカル絶縁体状態が期待されている。

### 5. 今後の計画

電界効果トランジスタでは、4d、5d 遷移金属化合物の界面電子相におけるスピン軌道相互作用の問題へと展開する。強いラッシュバ型スピン軌道相互作用の下で金属-絶縁体転移、量子輸送現象や超伝導がどのように修正されるのか明らかとし、界面電子相の学理構築に貢献する。

抵抗変化メモリでは伝導フィラメント領域での TEM 断面観察、時間分解局所構造解析などを通して局所酸化還元モデルの決定的な証拠を掴む。

イリジウム酸化物については、これまでの新奇電子相開拓・新物質開発を継続しつつ、そのデバイス開発にも取り組んでいく。Ir 酸化物トランジスタやスピンホール素子を作製し、強いスピン軌道相互作用を活用した酸化物スピントロニクスデバイスの創成を推進する。

### 6. これまでの発表論文等

1. H. Kuriyama, J. Matsuno, S. Niitaka, M. Uchida, D. Hashizume, A. Nakao, K. Sugimoto, H. Ohsumi, M. Takata and H. Takagi, "Epitaxially Stabilized Iridium Spinel Oxide without Cations in the Tetrahedral-Site", Applied Physics Letters, in press
2. H. Takagi & H. Y. Hwang, "An Emergent Change of Phase for Electronics", Science **327**, 1601 (2010).
3. H. Nakamura, H. Tomita, H. Akimoto, R. Matsumura, I. H. Inoue, T. Hasegawa, K. Kono, Y. Tokura and H. Takagi, "Tuning of Metal-Insulator Transition of Quasi Two Dimensional Electrons at Parylene/SrTiO<sub>3</sub> Interface by Electric Field", Journal of the Physical Society of Japan **78**, 083713-1-4 (2009)
4. B. J. Kim, H. Ohsumi, T. Komesu, S. Sakai, T. Morita, H. Takagi and T. Arima, "Phase-Sensitive Observation of a Spin-Orbit Mott State in  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ ", Science **323**, 1329-1332 (2009)
5. K. Fujiwara, T. Yajima, Y. Nakamura, M. J. Rosenberg and H. Takagi, "Electrode-Geometry Control of the Formation of a Conductive Bridge in Oxide Resistance Switching Devices", Applied Physics Express **2**, 081401-1-4 (2009)
6. K. Fujiwara, T. Nemoto, M. J. Rosenberg, Y. Nakamura and H. Takagi, "Resistance Switching and Formation of a Conductive Bridge in Metal/Binary Oxide/Metal Structure for Memory Devices", Japanese Journal of Applied Physics **47**, 6266-6271 (2008)
7. 本多フロンティア賞 2009 年 5 月受賞 高木英典

ホームページ等

[http://park.itc.u-tokyo.ac.jp/takagi\\_lab/](http://park.itc.u-tokyo.ac.jp/takagi_lab/)