

令和 3 年 6 月 20 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01865

研究課題名(和文)モノカルコゲナイド物質における極薄膜物性探索

研究課題名(英文)Exploration of physical properties of monochalcogenide in ultra-thin film form

研究代表者

塩貝 純一 (Shiogai, Junichi)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：30734066

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,900,000円

研究成果の概要(和文)：層状の結晶構造を持つモノカルコゲナイド物質では、単層化によってバルクとは全く異なる物性が発現すると期待される。その実証のため、鉄系超伝導体FeSeと半導体InSeを例に、バルクから単層までの膜厚依存した物性に着目した。FeSeはバルク体で8Kの超伝導転移温度を示すが、単層状態で転移温度が40Kまで向上する。この高温超伝導の機構解明のため、トンネル素子を作製し、FeSe単層における超伝導ギャップ測定の手法を確立した。その結果、超伝導転移温度と超伝導ギャップの比較が可能となった。InSe薄膜研究では、光学バンドギャップがバルク値1.2eVから単層状態で3.2eVまで増大することを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究のFeSe薄膜のトンネル分光測定技術により、抵抗測定による超伝導転移温度と超伝導ギャップを直接比較することが可能となった。これまで報告されている単層FeSeの超伝導転移温度は40Kである。一方、分光学的手法によるギャップ測定では65Kの転移温度に相当する超伝導ギャップが測定されている。しかし、これらは同一試料・条件で行われていないため、超伝導発現機構が未解明である。本手法を用いることで、単層高温超伝導相の物理的描像の理解が進むと期待される。また、InSeにおいては、1.2eVから3.2eVまで広い範囲でバンドギャップを制御することができるため、広帯域の光電子素子としての利用が期待される。

研究成果の概要(英文)：To study the impact of the reducing the thickness on the physical properties of monochalcogenides, we applied thin-film growth technique to iron-based superconductor FeSe and semiconductor InSe. While a bulk FeSe exhibits a superconducting transition temperature (T_c) at 8 K, T_c is greatly improved to 40 K for a monolayer FeSe. We established tunneling spectroscopy device based on FeSe by using InSe as a tunneling barrier, which allows a direct comparison between resistive T_c and superconducting gap. For InSe thin films, we found that a optical bandgap of InSe is increased from 1.2 eV for bulk to 3.2 eV for monolayer.

研究分野：薄膜物性

キーワード：モノカルコゲナイド 超伝導 半導体 薄膜

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

2010年のノーベル物理学賞でも知られるグラフェンの発見以来、スコッチテープによる剥離法で得られた層状化合物の薄片における物性研究が爆発的に展開している。とりわけ、遷移金属ダイカルコゲナイドやトポロジカル絶縁体は、特有の電子状態由来の様々な新奇量子現象の発現の場として注目されている。層状化合物の特異な物性の一例として、層状のモノカルコゲナイド物質のひとつである鉄系超伝導体 FeSe の超伝導転移温度は、バルク体で 8 K であるが、酸化物基板上の単層状態では 40 K まで向上する。従って、モノカルコゲナイド物質群の膜厚依存性を調べることで、バルク体では得られない新奇な物性の発現が期待される。

(1) 本研究課題開始以前に、我々はモノカルコゲナイド物質のひとつである、鉄系超伝導体 FeSe をチャンネルとした電気二重層トランジスタにおいて、静電場印加によるキャリアドーピングと電気化学エッチングによる膜厚制御を同時に実現し、単層状態の 40 K 級の転移温度を抵抗測定により実現した。また、転移温度の厚膜から単層までの膜厚依存性の評価に初めて成功し、FeSe 単層における 40 K 級の高温超伝導の起源を解明した。一方で、独立した実験である分光測定では、転移温度 65 K に相当する超伝導ギャップが報告されており、単層状態の本質的な転移温度についてはまだ明らかにされていない。従って、同一試料において抵抗測定と分光測定による超伝導転移温度の同時評価が重要となる。

(2) モノカルコゲナイド物質のひとつである InSe は、電子の軽い有効質量のために比較的高い移動度を示す半導体であり、バルク単結晶から剥離した小片試料において強磁場印加で量子ホール効果が観測されている。また、理論計算から、InSe 層の層数が減少すると光学バンドギャップがバルク値の 1.2 eV から増大することが予想されている。従って、薄膜合成技術を使って本物質の大面积薄膜を実現することで、膜厚に依存した光電子機能素子への応用が期待される。

2. 研究の目的

以上の背景により、本研究では、これらモノカルコゲナイド物質の薄膜化とデバイス作製によって膜厚に依存した物性を明らかにすることを目的とする。

(1) FeSe の電気二重層トランジスタ構造において、トンネル分光用の接合を作製し、抵抗測定と分光測定を同一素子で行うことで、単層状態の超伝導ギャップと転移温度の相関を明らかにする。

(2) 酸化物基板上堆積された InSe 薄膜において、電気抵抗特性及び光学特性を評価し、膜厚に依存したデバイス機能を実験的に明らかにする。

3. 研究の方法

パルスレーザー堆積法を用いて FeSe 及び InSe 薄膜の合成を行う。

(1) ホールバー形状に加工した FeSe 薄膜に対して、電子線リソグラフィを用いてトンネル分光用の微小電極を形成した後、ホールバーに対して電気抵抗測定用の電極を貼り付ける。その後、イオン液体を誘電体として搭載した電気二重層トランジスタ構造に加工する。厚膜状態と単層状態における抵抗測定による超伝導転移温度の評価をしながら、温度変化でギャップ構造がどのように変化するかを明らかにする。

(2) InSe 薄膜の堆積レートを算出し、堆積時間を制御することで異なる膜厚の試料を作製する。基板には InP(111)と Al₂O₃(0001)を使用する。Al₂O₃(0001)基板を使用する理由は、光学バンドギャップを透過率測定から求めるため、InSe よりも大きなバンドギャップを有する物質を基板として用いる必要があるためである。電気抵抗と光学バンドギャップの膜厚依存性を明らかにし、光電子デバイスとしての機能性を明らかにする。

4. 研究成果

(1) トンネル分光用の電極を搭載した FeSe 電気二重層トランジスタ構造において、電気化学エッチングを行った結果、電極部分が剥がれてしまい、分光測定まで進むことができなかった。一方、様々な物質をトンネル障壁として分光測定を行い、電流電圧特性や FeSe 薄膜の抵抗測定の結果から、FeSe 薄膜上に堆積されたアモルファスの InSe が良好なトンネル障壁としてはたらくことを明らかにした。これにより、トンネル分光による FeSe の超伝導ギャップの直接測定のための最適構造を決定できた。

(2) パルスレーザー堆積法による InSe 単結晶薄膜の合成に成功した。InSe 薄膜の光学バンドギャップの膜厚依存性を評価した結果、バルクに相当する厚膜試料のバンドギャップが 1.2 eV であるのに対して、1 nm の極薄膜では 3.2 eV まで拡張されていることを明らかにした。これは理

論予測と矛盾のない結果である。また、電気伝導特性から、 $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$ 基板上に成長した InSe が、絶縁体的な振る舞いを示した。一方、InP(111)基板上に成長した InSe 薄膜は $800 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ 程度の高い電子移動度を示した。シートキャリア濃度が InSe 薄膜の膜厚に依存しなかったことから、高移動度の伝導は InSe 薄膜と InP 基板間の界面伝導由来であることを明らかにした。高移動度を示す界面伝導と膜厚に依存した光学バンドギャップを明らかにした本研究成果によって、InSe が新しい光電子機能素子の基盤材料として高いポテンシャルを有していることを示すことができた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Dingheng Zheng, Junichi Shiogai, Kohei Fujiwara, and Atsushi Tsukazaki	4. 巻 113
2. 論文標題 Pulsed-laser deposition of InSe thin films for the detection of thickness-dependent bandgap modification	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Appl. Phys. Lett.	6. 最初と最後の頁 253501
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5064736	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 D. Zheng, J. Shiogai, K. Fujiwara, A. Tsukazaki
2. 発表標題 Thickness-Dependent Optical Bandgap and Electrical Transport Properties in InSe Thin Films Grown by Pulsed-Laser Deposition
3. 学会等名 2019 MRS Fall Meeting (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 D. Zheng, J. Shiogai, K. Fujiwara, and A. Tsukazaki
2. 発表標題 Thickness-dependent Optical Bandgap and Electrical Transport Properties in Layered InSe Thin Films Grown by Pulsed-laser Deposition
3. 学会等名 MRM 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 D. Zheng, J. Shiogai, K. Fujiwara, and A. Tsukazaki
2. 発表標題 Pulsed-laser deposition of layered InSe thin films for investigation of thickness-dependent bandgap modification
3. 学会等名 Summit of Materials Science 2018 in Sendai, Japan (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 塩貝 純一 , 野島 勉 , 塚崎 敦	4. 発行年 2020年
2. 出版社 ポストグラフェン材料の創製と用途開発最前線、株式会社エヌ・ティー・エス	5. 総ページ数 11
3. 書名 「 FeSe電気二重層トランジスタの開発」 ポストグラフェン材料の創製と用途開発最前線	

〔産業財産権〕

〔その他〕

http://mu.imr.tohoku.ac.jp/memberlist_shiogai.html

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------