

令和 2 年 6 月 8 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K14121

研究課題名（和文）層状酸化物のデバイス化による新奇電子輸送現象の探索

研究課題名（英文）Electrical transport in devices based on layered oxides

研究代表者

原田 尚之（Harada, Takayuki）

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：90609942

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：層状酸化物PdCoO₂は平面的に広がったPdとCoO₂の層が交互に積層された構造を持つ。茶碗と同じ酸化物に属するにも関わらず、金と同程度の高い電気伝導性を有する物質である。この高い電気伝導性は平面的なPd層が担っており、Pd層の平面性（2次元性）に由来する特殊な電気伝導性が現れると期待される。本研究では、PdCoO₂やその類縁物質をデバイス構造にすることで、電子の波動性や層状の結晶構造に由来する新しい電気伝導特性を探索した。同時に、電子デバイスへの応用に向けた研究を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

層状酸化物PdCoO₂の高い電気伝導性は電子デバイス応用に適している。本研究では、PdCoO₂の物性を利用したデバイス開発を行った。PdCoO₂の微細構造を低温に冷却することで、電子の干渉に由来する電気伝導特性を観測した。今後、PdCoO₂薄膜の結晶品質を向上することで量子デバイスへの応用が期待される。一方で、PdCoO₂は耐熱性に優れており、高温用途のデバイスにも有用である。例えば、本研究で開発したPdCoO₂とGa₂O₃の接合からなるダイオードは、PdCoO₂のイオン性層状構造に由来する界面分極により、350 の高温でも動作できることが明らかになった。

研究成果の概要（英文）：The layered oxide PdCoO₂ has a crystal structure consisting of alternating Pd and CoO₂ layers. The remarkable feature of PdCoO₂ is its very high electrical conductivity that is comparable with that of gold. The high electrical conductivity is provided by the planar (or two-dimensional) Pd layers. This two dimensionality could give rise to exotic electrical transport properties in device structures. In this research, we studied on new electrical transport phenomena derived from the wave nature of electrons and the layered crystal structure of PdCoO₂ in mesoscopic devices and heterointerfaces, to find applications in electronic devices.

研究分野：応用物理学

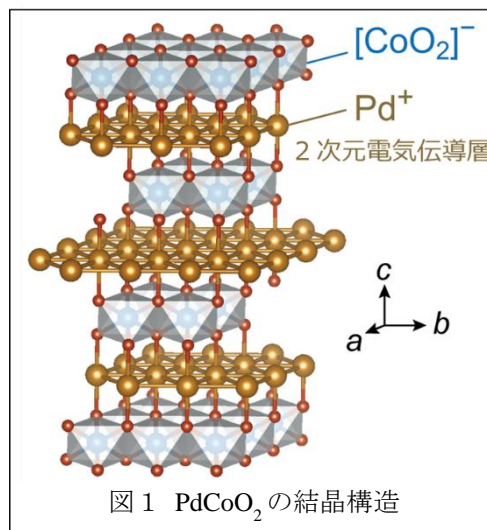
キーワード：電子デバイス 薄膜 酸化物

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高移動度で2次元的な伝導層を持つ金属において、電子の集合体が粘性流体のように振舞うことがごく最近明らかになってきた [P.J.W. Moll *et al*, *Science* 2016; R. K. Kumar *et al*, *Nat Phys* 2017]。この特異な状況では、電子系の運動は水の流れと同じように流体力学に従う。高移動度の金属を薄膜デバイス化することで、新しい電子輸送現象やデバイス機能の創出が可能と考えられる。

本研究で着目するデラフォサイト型層状金属 PdCoO₂ の結晶構造を図1に示す。Pd による2次元伝導層と、CoO₆ 酸素八面体の作る絶縁体的な3角格子が交互に積層された特徴的な構造を有する。バルク単結晶では Pd の2次元伝導層による 20 μm を超える長い平均自由行程が得られる [A.P. Mackenzie *Rep Prog Phys* 2017]。本研究では、PdCoO₂ の薄膜化と電気伝導性を利用したデバイス開発に取り組んだ。



2. 研究の目的

本研究では、高移動度層状金属である PdCoO₂ の薄膜をデバイス化することにより、新しい電子輸送現象やデバイス機能の創出を目的とした。

3. 研究の方法

酸化物薄膜結晶成長に適したパルスレーザー堆積法を用いて、高品質な PdCoO₂ 薄膜 (膜厚 $d = 2-20$ nm) を作製した。Pd の2次元伝導層が面内方向に広がる c 軸配向した薄膜を成長するため、Al₂O₃ (0001)基板およびβ-Ga₂O₃ (-201)基板を用いた。作製した薄膜を電子線リソグラフィやフォトリソグラフィを用いて微細化した。室温および低温での電気輸送特性を評価した。

4. 研究成果

(1) PdCoO₂ 薄膜の量子伝導観測

電子線リソグラフィにより線幅 90 nm の PdCoO₂ の細線を作製した。低温で電子波動関数の干渉による伝導度揺らぎを観測し、PdCoO₂ 薄膜において初めて量子輸送現象を実証した。現状の電子のコヒーレンス長は 100 nm 程度であり、PdCoO₂ 薄膜のドメイン境界によって非弾性散乱が起きていることを明らかにした。今後、量子デバイス応用に向けて、ドメイン境界密度の低減が重要と考えられる。[論文投稿予定]

(2) PdCoO₂ の表面磁性の研究

PdCoO₂ の表面ではイオン性層状構造の作る分極によって、Pd 由来の伝導バンドがシフトする。Pd 由来の伝導バンドはフェルミ準位より低結合エネルギー側に平坦バンドを持っている。表面分極による電子再構成で平坦バンドがフェルミ準位付近に移動すると、フェルミ準位上の状態密度の増大によりストーナー型の強磁性が発現すると、理論・

電子分光で示唆されていた。しかしながら、バルク単結晶では薄膜表面の微小なシグナルはバルクのシグナルに埋もれてしまい、磁性シグナルの直接検出は難しかった。

膜厚を変えた PdCoO₂ 極薄膜を作製することで、系統的に PdCoO₂ 表面由来のシグナルを検出することに成功した。異常ホール効果、磁気特性評価、分光学的手法により表面磁性の素性を明らかにした。観測した異常ホール効果には、面直磁化の寄与のみでは説明できない成分がある。表面での反転対称性が破れにより特異な磁気秩序が生じている可能性を示す結果を得た。

[論文発表] [T. Harada et al](#), *Physical Review Research* **2**, 013282 (2020).

(3) PdCoO₂/β-Ga₂O₃ ショットキーダイオードの開発

PdCoO₂ の層状構造が作る分極は、表面に限らず界面にも生じうる。本研究では、PdCoO₂ と β-Ga₂O₃ 界面において、PdCoO₂ のイオン性層状構造に由来して、界面に分極が生じることを明らかにした。この界面の分極が有効に働き 1.8 eV の大きなショットキー障壁高さが得られることを発見した。これは、単体金属/Ga₂O₃ 接合の上限である 1.4 eV を大幅に超える値である。大きなショットキー障壁が熱励起された電子による漏れ電流を抑制し 350°C の高温でも動作可能なショットキーダイオードとして働くことを明らかにした。この大きな障壁高さ、PdCoO₂ の高い耐熱性により、350°C の高温でも 7 桁以上のオン/オフ比で電流を整流できることを明らかにした。

[論文発表] [T. Harada et al](#), *Science Advances* **5**, eaax5733 (2019)

[論文発表] [T. Harada et al](#), *APL Materials* **8**, 041109 (2020)

[論文発表] [T. Harada et al](#), *Applied Physics Letters*, *in press*.

[メディア掲載] Yahoo!ニュース、矢野経済研究所 Yano E-plus 3 月号 (2020)、PC Watch、ライブドアニュース、財経新聞、日経電子版ほか

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 4件）

| | |
|---|------------------------|
| 1. 著者名 T. Harada, A. Tsukazaki | 4. 巻 - |
| 2. 論文標題 Dynamic characteristics of PdCoO ₂ /b-Ga ₂ O ₃ Schottky junctions | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Applied Physics Letters | 6. 最初と最後の頁 - |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし | 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 - |
| 1. 著者名 T. Harada, A. Tsukazaki | 4. 巻 8 |
| 2. 論文標題 Control of Schottky barrier height in metal/ -Ga ₂ O ₃ junctions by insertion of PdCoO ₂ layers | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 APL Materials | 6. 最初と最後の頁 41109 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1063/1.5145117 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |
| 1. 著者名 T. Harada, K. Sugawara, K. Fujiwara, M. Kitamura, S. Ito, T. Nojima, K. Horiba, H. Kumigashira, T. Takahashi, T. Sato, A. Tsukazaki | 4. 巻 2 |
| 2. 論文標題 Anomalous Hall effect at the spontaneously electron-doped polar surface of PdCoO ₂ ultrathin films | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review Research | 6. 最初と最後の頁 13282 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.2.013282 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |
| 1. 著者名 T. Harada, S. Ito, A. Tsukazaki | 4. 巻 5 |
| 2. 論文標題 Electric dipole effect in PdCoO ₂ /b-Ga ₂ O ₃ Schottky diodes for high temperature operation | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Science Advances | 6. 最初と最後の頁 eaax5733 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1126/sciadv.aax5733 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である） | 国際共著 - |

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 T. Harada, K. Fujiwara, and A. Tsukazaki | 4. 巻 6 |
| 2. 論文標題 Highly conductive PdCoO ₂ ultrathin films for transparent electrodes | 5. 発行年 2018年 |
| 3. 雑誌名 APL Materials | 6. 最初と最後の頁 046107 ~ 046107 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1063/1.5027579 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計9件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 5件)

| |
|---|
| 1. 発表者名 原田尚之, 伊藤俊, 塚崎敦 |
| 2. 発表標題 PdCoO ₂ / -Ga ₂ O ₃ エピタキシャルショットキー接合 |
| 3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Harada |
| 2. 発表標題 PdCoO ₂ thin film growth toward quantum electronics |
| 3. 学会等名 2nd International Workshop on Nanoelectronics (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Harada and A. Tsukazaki |
| 2. 発表標題 Thin-film growth of PdCoO ₂ : a layered oxide as conductive as gold |
| 3. 学会等名 19th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy (ICCGE-19) (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 原田尚之 |
| 2. 発表標題 剥離・転写技術の新展開とデバイス作製への応用例 |
| 3. 学会等名 電気学会フレキシブルセラミックスコーティング技術調査専門委員会研究会（招待講演） |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 原田 尚之, 菅原 克明 , 宮川 智樹, 中村 剛慶, 追沼 暉 , 高橋 隆, 佐藤 宇史, 藤原 宏平, 塚崎 敦 |
| 2. 発表標題 デラフォサイト型層状酸化物 PdCoO ₂ の極薄膜化と物性 |
| 3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 原田尚之, 伊藤俊, 塚崎敦 |
| 2. 発表標題 PdCoO ₂ / -Ga ₂ O ₃ エピタキシャルショットキー接合 |
| 3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 T. Harada, K. Sugawara, T. Miyakawa, T. Nakamura, H. Oinuma, T. Takahashi, T. Sato, K. Fujiwara, and A. Tsukazaki |
| 2. 発表標題 Nonlinear Hall effect originated from the surface of PdCoO ₂ ultrathin films |
| 3. 学会等名 25th International Workshop on Oxide Electronics (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 T. Harada, K. Sugawara, T. Miyakawa, T. Nakamura, H. Oinuma, T. Takahashi, T. Sato, K. Fujiwara, and A. Tsukazaki |
| 2. 発表標題 An oxide as conductive as gold: PdCoO ₂ with graphene-like 2D Pd sheets |
| 3. 学会等名 Summit of Materials Science 2018 (国際学会) |
| 4. 発表年 2018年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Harada, K. Sugawara, T. Miyakawa, T. Nakamura, H. Oinuma, T. Takahashi, T. Sato, T. Nojima, K. Fujiwara, and A. Tsukazaki |
| 2. 発表標題 A layered oxide PdCoO ₂ with conductivity comparable with Au: a thin-film approach |
| 3. 学会等名 The 2nd Symposium for World Leading Research Centers - Materials Science and Spintronics - (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
| | | | |