

機関番号：11301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23686008

研究課題名(和文)酸化亜鉛系強相関2次元電子系の輸送特性評価と新奇量子相探索に関する研究

研究課題名(英文)Exploration for quantum transport properties of strongly correlated two-dimensional electron gas in ZnO related heterostructures

研究代表者

塚崎 敦(TSUKAZAKI, ATSUSHI)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：50400396

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 21,800,000円、(間接経費) 6,540,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、酸化物薄膜界面で唯一、量子ホール効果の観測可能な超高移動度2次元電子系を形成できる酸化亜鉛系ヘテロ構造を用いて、電子相関の発現する2次元電子量子輸送特性を評価した。試料は分子線エピタキシー法によって作製し、電子移動度を80万 $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 近くまで上昇させることに成功した。また、輸送特性評価に加えて、サイクロトロン共鳴を行い、電子相関の寄与を明らかにした。低濃度領域での金属的伝導現象をさらに誘起するために、試料表面の接触しない電界効果素子の作製に成功し、実際に低濃度領域の評価可能範囲を拡張できた。

研究成果の概要(英文)：In this research, electron-electron interaction in two-dimensional electron gas in MgZnO/ZnO heterostructures was investigated with applying field-effect gating technique. The heterostructures were grown by molecular-beam epitaxy, whose mobility is now reaching to $800,000\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$. With using cyclotron resonance method, we conclude that the enhancement of the effective mass and g-factor of 2D electrons originates from electron-electron interaction. In addition, a new gating technique with air-gapped structure was applied to MgZnO/ZnO samples, enabling us to reduce 2DEG density with keeping high electron mobility.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・薄膜・表面界面物性

キーワード：界面 量子輸送現象

1. 研究開始当初の背景

本研究の開始時点では、酸化亜鉛系 2 次元電子の電子濃度制御手法として、試料構造における Mg 濃度の調整と固体ゲート絶縁膜を用いた電界効果制御が可能であった。高移動度実現のための作製条件最適化に合わせて、これらの技術を適用することで、整数量子ホール効果と分数量子ホール効果を観測し、それら磁場中での輸送現象を理解する上で欠かせない、電子有効質量や g 因子の電子濃度依存性を詳細に調べてきた。酸化亜鉛系 2 次元電子の輸送現象の特徴として挙げられるのは、従来の化合物半導体 2 次元電子系と比較して、有効質量が大きく、g 因子が 1.9 という物質パラメータを持つ点である。この場合、ランダウ量子化とゼーマン効果に由来する分裂エネルギー比が大きく変化し、特異な量子状態を発現する可能性が期待される。特に、化合物半導体の 2 次元電子系や近年のグラフェンにおける物性評価においては、最高品質の試料での研究推進が新しい現象観測に至る最短経路となっており、酸化亜鉛系の量子構造作製および電界効果技術開発によって特異な量子状態観測を見出すことが重要な位置づけとなっている。

2. 研究の目的

上記背景において、本研究では、低濃度領域の精緻な物性評価を可能にするための試料構造作製とデバイス作製技術開発を行った。また、精密な輸送特性評価を行うことで、2 次元電子系輸送現象における強い電子相関の寄与を見出すことを目的とした。これまでも、g 因子の増大や分数量子準位の安定性変化など、酸化亜鉛系で生じる特異性に着目した研究を行ってきたが、これまでの問題点を解決しつつ、新しい量子準位形成に向けた実験手法の開発も本研究の目的の一つである。

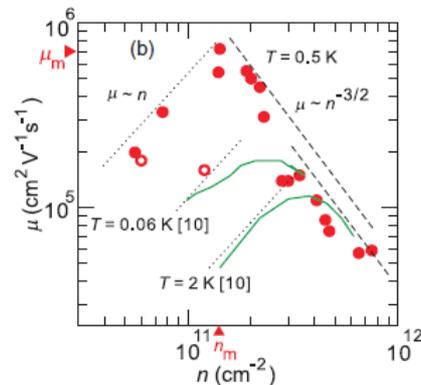
3. 研究の方法

本研究で実施した実験について、下記のとおり 4 つに分類して、まずは実験方法について記載する。

(1) 移動度の向上に向けた作製条件最適化

分子線エピタキシー法を用いて、マグネシウム添加酸化亜鉛 (MgZnO) と酸化亜鉛 (ZnO) の積層構造を作製した。酸素供給源にオゾンを使用し、試料に混入する不純物濃度を極限まで低減した。特に、従来用いていた酸素プラズマ源の移動度結果と比較することで、電子移動度を抑制している散乱要因について検討するために、移動度の電子濃度依存性を評価した。

また、世界最高移動度の試料作製を実現できたため、これまでに観測できなかった低濃度領域での分数量子ホール効果の測定も行った。



移動度と電子濃度の相関。赤丸が 80 万 $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ に到達した結果。

APEX 4, 091101 (2011). Fig. 2(b)より抜粋。

(2) サイクロトロン共鳴による評価

2 次元電子系の輸送現象においては、低温磁場中での電気伝導を評価することになる。その場合、電子相関の寄与が電子有効質量や g 因子に変化をもたらす。しかしながら、サイクロトロン共鳴などの手法においては、電子 格子相互作用のみが電子有効質量の変化に寄与することが知られている。したがって、電気的な特性評価に合わせて、サイクロトロン共鳴を評価することで、電子 電子相互作用と電子 格子作用を分けて議論することが可能となる。

(3) 新しい電界効果技術の開発

作製した MgZnO/ZnO 積層膜を van der Pauw 法で評価しつつ、電界効果を適用することで電子濃度変調を可能とする真空ゲート構造の作製を行った。積層膜とは別に、電極部分のみ積層膜と接地する、ゲート電界印加用試料ステージを設計して、ガラス基板上にエッチングと電極蒸着を行った。試料固定の方法も検討し、低温輸送測定に用いる各種機器の試料ステージに合わせてうまく固定できる治具の設計およびテストを行った。この試料ステージと積層膜、固定具を用いて、0.5K で磁場中の輸送特性評価を行った。

(4) 低電子濃度領域における輸送特性評価

試料内の Mg 濃度を調整し、印加磁場 14T でランダウ準位 1/2 の評価が可能になるような試料を準備した。Van der Pauw 法を用いて、4 端子での低温、磁場中輸送特性評価を行った。ここでは、通常フェルミ金属として知られる、ランダウ準位 1/2 の輸送現象とシュブニコフドハース振動の温度依存性から有効質量について見積もった。

4. 研究成果

上記3の実験方法で分類した4つについて研究成果を以下に記載する。

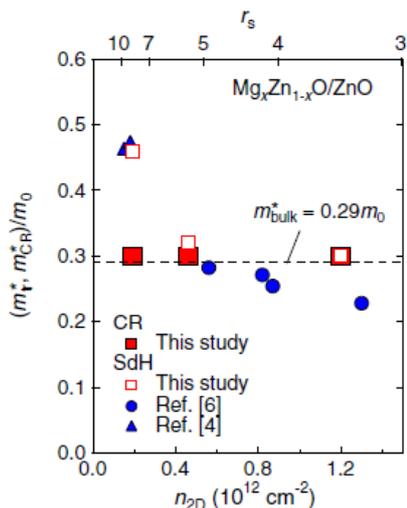
(1) 移動度の向上に向けた作製条件最適化

分子線エピタキシー法における成長条件において、成長速度や Zn/O 供給比を検討することで、薄膜中の残留不純物濃度を低減することに成功し、移動度の向上を達成した。また、オゾンガスによる酸素供給を行うことで、最高移動度が $80 \text{万 cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ に達した。この試料品質の改善により、分数量子準位の $1/3$ まで明瞭に観測できるようになった。この結果は、明瞭に不純物濃度低減効果を見出すことができ、今後さらなる移動度向上に向けての指針となっている。

最高品質の酸化物界面を実現するためには、さらなる高純度化が最重要課題と言える。

(2) サイクロトロン共鳴による評価

本研究では、電子濃度の異なる3つの試料を準備し、低温輸送特性評価とサイクロトロン共鳴(CR)を評価した。シュブニコフドハース振動の温度依存性から見積もられる電子有効質量は、電子-電子相互作用の寄与により、バルク状態の有効質量に比べて約1.6倍大きくなることをすでに見出しており、これは低濃度領域($4 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 以下)で顕著な現象で強い電子相関の効果と言える。同じ試料でのサイクロトロン共鳴の結果では、電子有効質量に変化が観測されず、一定の値であった。この結果は、輸送特性評価において観測された電子有効質量の増大が電子-格子相互作用の寄与ではなく、電子-電子相互作用に起因することを明確に示している。また、比較的電子濃度の高い($4 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 以上)では、電子-電

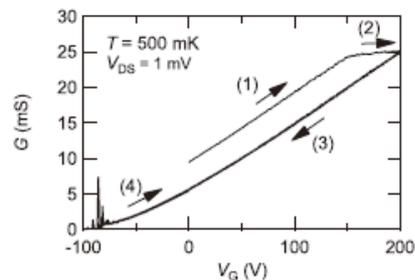


電子有効質量の電子濃度依存性。CR測定では電子濃度に依存しない。Phys. Rev. Lett. 109, 246401 (2012).Fig.4より抜粋。

子相互作用によって小さい電子有効質量となることも見出された。境界となっている電子濃度は、ウィグナー-ザイツパラメータ ($r_s = a_B^* \times 1 / (\pi n)^{1/2}$, a_B^* :物質中の有効ボア半径, n :2次元電子濃度)が5となる値に対応する。この結果から推察されるのは、現状の試料水準のMgZnO/ZnO系2次元電子では、 $4 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ を境に、圧縮性液体と非圧縮性液体としての振る舞いが変化するということである。このような大きな電子相関の発現する状況下での量子準位安定性研究は、従来の化合物半導体を用いても容易に実現できるものではないため、ZnO系2次元電子の大変興味深い研究領域と言える。

(3) 新しい電界効果技術の開発

本研究を開始する当初、原子層堆積法を使った AlO_x ゲート絶縁膜での素子構造を活用して、電子濃度依存性の評価を行っていた。しかしながら、低電子濃度領域において、顕著な移動度低減が観測されており、表面近傍もしくはそれに由来する界面での散乱増大を低減する必要があった。本研究では、作製したMgZnO/ZnO試料の表面が固体材料に触れない、真空をゲート絶縁物として利用する電界効果素子構造の検討を進めた。この技術は有機物単結晶トランジスタに利用されており、柔らかい物質では比較的容易に適用されている。しかしながら、無機固体である薄膜素子の場合には、均一に電界を印加するための試料ステージを新規に設計して、上手く電気的接触を取ることが求められた。ガラス基板にフォトリソグラフィと電極蒸着を行い、接触する電極部分の段差高さについて検討した。最初は数ミクロンの高さでテストを行い、結果として5ミクロンギャップ幅に200V印加することで 10^{11}cm^{-2} オーダーの電子濃度制御が可能となった。低濃度領域での金属絶縁体転移現象の観測に向けて、従来のZnO系で知られる臨界濃度 $2 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 以下での領域に注目して、輸送特性評価を行ったが、まだ金属的な挙動であった。このことから、清浄表面の効果が現れていると結論できる。



ゲート掃引による伝導度の変化。投稿中論文から抜粋。

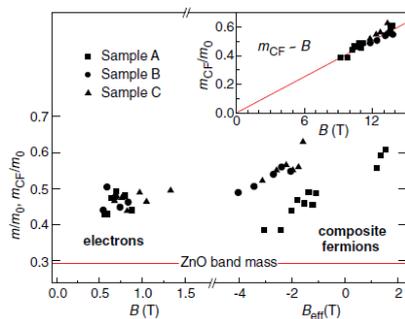
さらに、試料表面を清浄に保ったまま、低濃

度領域の低温磁場中測定へと適用できるため、磁場中での分数量子準位の制御を確認した。

この手法は、薄膜試料をプロセスせずに van der Pauw 法のまま電界を印加できるため、様々な試料へ適用可能な技術であり、今後無機系物質群に対しておおいに活用されると期待される。

(4) 低電子濃度領域における輸送特性評価

低電子濃度領域の試料を低温磁場中で評価することによって、ランダウ準位 $1/2$ の抵抗温度依存性から、単純な金属状態でない、電子相関の寄与を見出した。さらに、シュブニコフドハース振動の温度依存性から電子と複合フェルミオンの有効質量を見積もったところ、ともにバルク値である $0.3m_0$ から $0.5m_0$ 程度に増大していることを見出した。複合フェルミオンの有効質量は磁場に線形に依存しており、ゼロ磁場でゼロになる振る舞いを見せたが、要因は現時点までにはわかっていない。本研究に用いた試料は $2 \times 10^{11} \text{cm}^{-2}$ 以下の試料群であるが、この電子濃度以上では主に g 因子の増大が観測されており、電子有効質量の増大は観測されていなかった。したがって、この電子濃度を境界として電子相関の寄与がもたらす物性への変化の兆しを捉えている可能性がある。この電子濃度はウィグナーザイツパラメータが 10 を越える値に対応しており、強い電子相関の寄与について今後も引き続き、評価を進めていく予定である。



電子と複合フェルミオンの有効質量を磁場依存性としてプロット。

Phys. Rev. Lett. 108, 186803 (2012). Fig. 2 から抜粋。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 9 件)

塚崎敦、小塚裕介、川崎雅司、
ZnO ヘテロ構造を用いた光・電子素子応用へ

の展望

電子情報通信学会誌 3 月号、査読有、97, 227-232 (2014).

A. Tsukazaki, A. Ohtomo, M. Kawasaki, Surface and interface engineering of ZnO based heterostructures fabricated by pulsed-laser deposition, Journal of Physics D: Applied Physics、査読有、47, 034003, pp.1-19 (2014).

Y. Kozuka, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, Challenges and opportunities of ZnO-related single crystalline heterostructures, Applied Physical Review、査読有、1, 011303, pp.1-18 (2014).

Y. Kozuka, S. Teraoka, J. Falson, A. Oiwa, A. Tsukazaki, S. Tarucha, M. Kawasaki, Rashba spin-orbit interactions in a $\text{Mg}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}/\text{ZnO}$ two-dimensional electron gas studied by electrically-detected electron spin resonance, Physical Review B、査読有、87, 205411, pp.1-5 (2013).

T. Makino, Y. Segawa, A. Tsukazaki, R. Shen, S. Takeyama, H. Yuji, Y. Nishimoto, S. Akasaka, D. Takamizu, K. Nakahara, T. Tanabe, A. Kamisawa, M. Kawasaki, Magneto-photoluminescence of charged excitons from $\text{Mg}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}/\text{ZnO}$ heterojunctions, Physical Review B、査読有、87, 085312, pp.1-7 (2013).

D. Maryenko, J. Falson, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, M. Onoda, H. Aoki, M. Kawasaki, Temperature-dependent magnetotransport around $\nu=1/2$ in ZnO heterostructures. Physical Review Letters、査読有、108, 186803, pp.1-5 (2012).

Y. Kasahara, Y. Oshima, J. Falson, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, Y. Iwasa, Correlation enhanced effective mass of two-dimensional electrons in $\text{Mg}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}/\text{ZnO}$ heterostructures. Physical Review Letters、査読有、109, 246401, pp.1-5 (2012).

Y. Kozuka, A. Tsukazaki, D. Maryenko, J. Falson, C. Bell, M. Kim, Y. Hikita, H. Y. Hwang, M. Kawasaki, Single-valley quantum Hall ferromagnet in a dilute

Mg_xZn_{1-x}O/ZnO strongly correlated two-dimensional electron system. Physical Review B、査読有、85, 075302, pp.1-5 (2012).

Y. Kozuka, A. Tsukazaki, D. Maryenko, J. Falson, S. Akasaka, K. Nakahara, S. Nakamura, S. Awaji, K. Ueno, M. Kawasaki, Insulating phase of a two-dimensional electron gas in Mg_xZn_{1-x}O/ZnO heterostructures below $\nu = 1/3$, Physical Review B、査読有、84, 033304, pp.1-4 (2011).

〔学会発表〕(計 13 件)

A. Tsukazaki, High mobility 2D transport in well-regulated ZnO based wurtzite heterostructures
MRS Fall meeting, 2013年12月4日, Boston, USA

塚崎 敦, 酸化物薄膜研究の自由度について
酸化物研究の新機軸に向けた学術討論会
2013年11月8日, 宮城県仙台市

A. Tsukazaki, MgZnO/ZnO 界面 2次元電子系の量子ホール物理,
極限強磁場科学, 2013年11月1日, 千葉県柏市

A. Tsukazaki, Polar discontinuity effect in wurtzite ZnO based heterostructures
JSAP-MRS symposia, 2013年9月19日, 京都府京田辺市

A. Tsukazaki, Interface engineering for high mobility 2DEG on polar-oxide semiconductors
The 40th international symposium on compound semiconductors,
2013年5月23日, 兵庫県神戸市

塚崎 敦, 高品質 ZnO 薄膜の作製と酸化物エレクトロニクスへの応用,
第6回物性科学領域横断研究会, 2012年11月27日, 東京都文京区

塚崎 敦, 酸化物界面における量子ホール効果研究の現状と将来展望,
強磁場コラボレーターが拓く次世代の強磁場サイエンスの展望, 2012年11月26日, 宮城県仙台市

塚崎 敦, 酸化物半導体 ZnO の魅力,
第5回物質科学セミナー in 柏,
2012年11月16日, 千葉県柏市

塚崎 敦, 酸化物ヘテロ界面における 2DEG 生成と量子ホール効果,
東邦大学物理学科コロキウム, 2012年6月20日, 千葉県船橋市

塚崎 敦, ZnO 系ヘテロ構造における電界効果
電界効果ワークショップ, 2012年3月30日, 宮城県仙台市

塚崎 敦, 小塚 裕介, ジョセフファルソン, デニスマリエンコ, 川崎 雅司
MgZnO/ZnO 界面における高移動度 2次元電子ガスの電界制御と量子輸送現象,
結晶成長の科学と技術第161委員会 第75回研究会, ワイドギャップ半導体光・電子デバイス第162委員会 第78回研究会
2012年3月2日, 東京都千代田区

A. Tsukazaki, Quantum Hall effect in MgZnO/ZnO heterostructures.
4th International Workshop on Emergent Phenomena in Quantum Hall Systems (EPQHS),
June 25, 2011, Beijing, China

A. Tsukazaki, Fractional quantum Hall effect at the MgZnO/ZnO heterointerfaces.
38th International symposium on Compound Semiconductors (ISCS), May 25, 2011, Berlin, Germany

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

塚崎 敦 (TSUKAZAKI, ATSUSHI)
東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号：50400396

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：