

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年6月11日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2007～2011

課題番号：19104008

研究課題名（和文） 遷移金属酸化物の電界誘起相変化

研究課題名（英文） Electric Field Induced Phase Changes in Transition Metal Oxides

研究代表者

高木 英典 (HIDENORI TAKAGI)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号：40187935

研究成果の概要（和文）：本研究は酸化物デバイスの学理構築、および電界誘起物性の開拓を目指した。SrTiO<sub>3</sub> トランジスタを構築し、界面二次元電子系での絶縁体—超伝導転移を実現した。二元系遷移金属酸化物の抵抗スイッチング現象について、母体酸化物の還元で生じる伝導フィラメントの可視化に成功した。電界効果とスピン軌道相互作用をキーワードとして重い5d遷移金属酸化物に着目し、イリジウム酸化物の新奇スピン軌道誘起電子相を開拓した。

研究成果の概要（英文）：We aimed at understanding the basic physics behind oxide electronics and exploiting novel electric-field induced phenomena. An insulator to superconductor transition was achieved in two-dimensional electron system formed at the channel of SrTiO<sub>3</sub> transistor. We also succeeded in visualizing conductive filaments, which were produced by reduction of base oxides, in resistive memories composed of binary transition-metal oxides. In heavy 5d Ir oxides with strong spin-orbit coupling, we discovered novel electronic phases such as spin-orbital Mott insulator.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	31,600,000	9,480,000	41,080,000
2008年度	26,100,000	7,830,000	33,930,000
2009年度	11,700,000	3,510,000	15,210,000
2010年度	7,900,000	2,370,000	10,270,000
2011年度	7,500,000	2,250,000	9,750,000
総計	84,800,000	25,440,000	110,240,000

研究分野：固体物理

科研費の分科・細目：物理学、物性II

キーワード：酸化物トランジスタ、超伝導、抵抗変化メモリ、スピン軌道相互作用

## 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3]。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. 研究成果

#### (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 4]

このトランジスタ構築技術を他の物質群にも展開した。層状化合物 MoS<sub>2</sub> においてパリレンを絶縁膜としたトランジスタを構築し、電界誘起絶縁体-金属転移を実現した。さらにイオン液体を用いた MoS<sub>2</sub> トランジスタでは、 $T_c = 9.4$  K の超伝導転移が観測された。これはバルクに対するキャリアドーピングによって実現する  $T_c$  より高い。臨界磁場の異方性から超伝導状態は二次元性が高いことが確認された。

#### (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  $1\mu\text{m}$  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 7]

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 6] 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. Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> のスピン軌道モット絶縁体状態 [発表論文 5]

$5d$  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 Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> 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  $J_{eff} = 1/2$  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。

#### 2. 新規 Ir 酸化物 Ir<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の発見 [発表論文 2]

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 IrO<sub>2</sub> 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。

#### 3. SrIrO<sub>3</sub> のスピン軌道誘起半金属状態

斜方晶ペロブスカイト SrIrO<sub>3</sub> は Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> と異なり金属的伝導を示す。輸送特性の測定から、この物質はバンド絶縁体に近い、半金属であることがわかった。この半金属性は縮退したバンドが強いスピン軌道相互作用によって分裂したために実現したと推察される。

#### 4. スピン軌道モット絶縁体の量子磁性

スピン軌道モット絶縁体では  $J_{eff} = 1/2$  状態が磁性を担う。一般に磁性体ではスピン軌道相互作用は異方性の起源となるが、Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> ではこれに反し  $J_{eff} = 1/2$  の極限において等方的な二次元 Heisenberg 系として振る舞う

と理論的に指摘された。共鳴X線磁気散乱実験からスピン揺らぎによる散漫散乱を見出し、その解析から  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  が Heisenberg 反強磁性として振る舞うことを確認した。

一方層状ハニカム格子を持つ  $\text{Li}_2\text{IrO}_3$  では、 $J_{\text{eff}} = 1/2$  波動関数の量子位相効果によりキタエフ型の強磁性的相互作用が存在することが確認された。

## 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 33 件)

① K. Ishii, I. Jarrige, M. Yoshida, K. Ikeuchi, J. Mizuki, K. Ohashi, T. Takayama, J. Matsuno, and H. Takagi, Physical Review B **83**, 115120 (2011).

DOI:10.1103/PhysRevB.83.115121

② 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, **96**, 182103 (2010).

DOI:10.1063/1.3374449

③ H. Takagi & H. Y. Hwang, “An Emergent Change of Phase for Electronics”, Science **327**, 1601 (2010).

DOI:10.1126/science.1182541

④ 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/ $\text{SrTiO}_3$  Interface by Electric Field”, Journal of the Physical Society of Japan **78**, 083713-1-4 (2009)

DOI:10.1143/JPSJ.78.083713

⑤ 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)

DOI:10.1126/science.1167106

⑥ 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)

DOI:10.1143/APEX.2.081401

⑦ 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)

DOI: 101143/JJAP.47.6266

[学会発表] (計 61 件)

① H. Takagi, “Spin-orbit Coupling, Electron Correlations and Exotic Magnetism in 5d Complex Ir Oxides”, APS March Meeting 2012, 2012 年 2 月 27 日、Boston(USA).

② H. Takagi, “Quantum Magnetism in Ir4+-based Oxide Magnets”, MEXT/CIFAR Program on Frustrated Magnetic and Other Systems, 2011 年 5 月 30 日、Vancouver(Canada).

③ H. Takagi, “Novel Electronic Phases in Complex 5d Ir Oxides Produced by Strong Spin-orbit Coupling”, International Conference on Strongly Correlated Electronic Systems, 2010 年 6 月 29 日、Santa Fe(USA).

④ H. Takagi, “Frustrated Magnetism in 5d Transition Metal Oxides”, Workshop on Perspective in Highly Frustrated Magnetism, 2010 年 4 月 15 日、Dresden(Germany).

⑤ H. Takagi, “Ir Oxides - A Quantum Spin Liquid to a Possible Topological Insulator”, APCTP-MPIPES Workshop on Topological Order, 2009 年 7 月 15 日、Dresden(Germany).

⑥ H. Takagi, “Physics of 5d Ir Oxides”, Miniworkshop on Strongly Correlated Materials and Atom Traps, 2008 年 8 月 4 日、Trieste(Italy).

⑦ H. Takagi, “Resistance Switching and Filament Formation in Binary Transition Metal Oxides”, 2007 MRS Spring Meeting, 2007 年 4 月 13 日、San Francisco Marriott(USA).

[その他]

ホームページ

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

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

高木 英典 (HIDENORI TAKAGI)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号：40187935

### (2) 研究分担者

高山 知弘 (TOMOHIRO TAKAYAMA)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・  
助教

研究者番号：40435657

(3)連携研究者

ファン ハロルド (HAROLD HWANG)

スタンフォード大学・応用物理学科・教授

研究者番号：30361611

花栗 哲郎 (TETSUO HANAGURI)

独立行政法人理化学研究所・高木磁性研究  
室・専任研究員

研究者番号：40251326

松野 丈夫 (JOBU MATSUNO)

独立行政法人理化学研究所・高木磁性研究  
室・専任研究員

研究者番号：00443028

井上 公 (ISAO INOUE)

独立行政法人産業技術総合研究所・エレクトロニクス部門・主任研究員

研究者番号：00356502