

令和 3 年 6 月 4 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01878

研究課題名(和文) ガスソース分子線エピタキシーによる強磁性二次元電子の量子伝導研究

研究課題名(英文) Quantum transport phenomena of ferromagnetic two dimensional electron system by gas source MBE films

研究代表者

高橋 圭 (Takahashi, Kei)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・上級研究員

研究者番号：90469932

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：EuTiO₃薄膜の高品質化により、磁性半導体の量子伝導と量子ホール効果の観察を目指した。

LSAT基板上的圧縮歪み薄膜において、磁化過程においてバンドのワイル・ノードがフェルミエネルギーを横切ることによって異常ホール効果が特異な振る舞いを示すことを発見した。

格子定数のミスマッチのないSrTiO₃基板上的高温成長によって、移動度がこの系で世界最高の3200cm²V⁻¹s⁻¹を示す薄膜の成長に成功した。明瞭なシュブニコフドハース振動の観察に成功し、第一原理計算の結果の比較により伝導電子が100%スピン偏極した2つのバンドを占有していることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁性半導体はスピントロニクス応用材料として期待されている。スピントロニクスは電子のスピン自由度をデバイスに応用するが、電子には量子効果、つまり電子の波の性質がある。この量子効果を使うことで電子に機能をさらに持たせることができる。通常、磁性半導体は磁性不純物をドーピングするためその不純物散乱により移動度が低下し、電子の波の性質を反映した量子干渉効果を観察することは困難であった。磁性半導体EuTiO₃が量子常誘電体であり電子ドーピングしたときの移動度が高いことに注目し、スピン偏極電子の量子伝導の観察に成功した本研究は、今後スピントロニクスに量子効果を取り入れた応用研究への貢献が期待できる。

研究成果の概要(英文)：By fabricating high quality films of EuTiO₃ using gas source molecular beam epitaxy, we tried to observe quantum transport phenomena and quantum Hall effect in the magnetic semiconductor.

Compressive strained films on LSAT substrate show peculiar anomalous Hall effect during the magnetization process from antiferromagnetic order to ferromagnetic one. The Weyl nodes path through the Fermi energy during the magnetization process. I found that such process causes the magnetic field dependence of anomalous Hall effect. On lattice matched substrate SrTiO₃, the mobility of La doped EuTiO₃ film reaches 3200 cm²V⁻¹s⁻¹ at 2 K, which is the record of this system. This is demonstrated by measuring the Shubnikov de Haas (SdH) oscillations in the ferromagnetic state. Using first-principles calculations, it is shown that the observed SdH oscillations originate genuinely from Ti 3d-t_{2g} states which are fully spin-polarized due to their energetical proximity to the in-gap Eu 4f bands.

研究分野：酸化物エレクトロニクス

キーワード：分子線エピタキシー 酸化物薄膜 量子伝導 強磁性 スピン偏極電子

1. 研究開始当初の背景

これまで二次元電子の量子伝導研究は、清浄なエピタキシー技術の発達したガリウムヒ素、シリコンなどの典型的半導体を用いる研究に限られてきた。しかし、最近のグラフェンやトポロジカル絶縁体の表面ディラック電子の研究によって、量子伝導研究物質の対象が大きく広がってきている。そのため、量子伝導研究に低温物性研究を越えた応用の可能性の期待が集まってきている。特に最近、強磁性トポロジカル絶縁体において強磁場を必要としない自発磁化による異常量子ホール効果が発見された。このゼロ磁場下での量子化は、エネルギーを消費せずに量子ホール効果の端電流が得られることを意味しており、非散逸流である量子ホール効果の端電流が省エネルギーデバイスの有力なキャリアになりうることが示唆された。量子ホール効果を利用した次世代の省電力デバイス実現に向けて、量子伝導現象のさらなる探求と理解が重要になると考える。

一方、酸化物薄膜成長技術の発展により、電子相関の強い酸化物を用いた高移動度二次元電子の研究が進展してきている。特に、最近実現した SrTiO_3 の二次元電子構造の量子ホール効果は、現在の酸化物薄膜成長技術の到達点として評価されている。本研究では、電子相関の強いチタンの $3d$ 電子を強磁性化し、スピン偏極電子による量子伝導・量子ホール効果の研究をおこなう。本研究課題の核心は、強磁性の二次元電子は強磁場中で量子化するのか？という基本的な問いである。常磁性の二次元電子が強磁場中でランダウ準位を形成し量子化するのに対し、強磁性二次元電子の場合は、自発磁化が飽和している状態でスピン偏極した伝導電子バンドが強磁場下でランダウ準位を形成し量子化すると考えられる。ランダウ準位 $0, 1, 2, \dots$ のエネルギーの低い半分は全て up スピンの準位が形成されることが予想される。このような強磁性二次元電子を実験的に実現したことはなく、電子相関が強く強磁性を作りやすい遷移金属酸化物で高移動度二次元構造の作製が可能になった今、初めて挑戦できるようになった研究である。

2. 研究の目的

ペロブスカイト酸化物で最も一般的な物質である SrTiO_3 の Sr を全て Eu に置換した EuTiO_3 に注目し、電子ドーピング EuTiO_3 の高移動度化による量子伝導観察と二次元化による量子ホール効果の実現を目的とする。スピン偏極した伝導電子での量子伝導研究は、古くから Mn ドーピング GaAs などの磁性半導体を用いて試みられていたが、磁性を発現しかつ高移動度になる物質がなかった。応募者が有するガスソース MBE による成長技術によって、 EuTiO_3 薄膜の移動度が劇的に向上することが分かってきた。この磁性半導体 EuTiO_3 は新しいスピン偏極量子伝導の舞台になると期待される。

EuTiO_3 は低温 (5.5 K) で Eu の $4f$ スピンが反強磁性に揃い、磁場印加によってスピンの傾くキャント反磁性、2–3 T (テスラ) で全てのスピンの揃う強磁性的スピン秩序になる。この強磁性的に揃った Eu の $4f$ 局在スピンと伝導電子バンドの Ti の $3d$ 電子の相互作用により伝導電子がスピン偏極する。この強磁性スピン状態で量子ホール状態が実現すると、量子化した電子が全て up スピンの特殊な量子ホール効果になると期待される。

3. 研究の方法

ガスソース MBE で La ドーピング EuTiO_3 の成長実験を進めた。まず、 EuTiO_3 より格子定数の小さな LSAT 基板上に成長した圧縮歪み薄膜の物性を調べた。さらに、La ドーピング EuTiO_3 薄膜で、移動度が高く量子振動が測定できる製膜条件を確立し、伝導電子 (三次元電子) が Ti の $3d$ 軌道のどの軌道バンド由来のものなのかという問題から実験的に検証した。量子ホール効果が観察可能な条件は、二次元キャリア密度が 10^{12} cm^{-2} 程度以下、移動度は数千 $\text{cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 以上が必要である。

二次元化のために La ドープ EuTiO_3 層の膜厚を 10 nm 以下にし、La 濃度をできるだけ少なくし移動度の高い二次元構造の作製と評価を行った。

4. 研究成果

(1) EuTiO_3 圧縮歪み薄膜の異常ホール効果

異常ホール効果の起源の一つに、ワイル・ノードと呼ばれるバンド交差が作る運動量空間の磁気単磁子がある。電子濃度を容易に制御できる磁性半導体は、この内因的な異常ホール効果を電氣的に制御可能になるため、応用の観点から注目されている。過去の研究では、圧縮歪みによる結晶場分裂でできるワイル・ノードに注目し、磁性半導体 EuTiO_3 薄膜の電子濃度を変化させてワイル・ノードとフェルミエネルギーの位置関係を逆転させると、異常ホール効果の符号が反転することを明らかにしていた。

今回、ガスソース MBE による薄膜成長を行い外因的な散乱の少ない EuTiO_3 圧縮歪み薄膜を作製すれば、磁化過程でゼーマン分裂が変化して生じるワイル・ノードの効果を、より敏感に異常ホール効果の大きな変調として検出できると考え、研究を進めた。移動度が一桁向上した高移動度薄膜において、これまでの移動度の小さな薄膜とは異なる振る舞いが見られた。磁気モーメントが反強磁性から強磁性の磁気秩序にそろった磁化過程 (0~3T) で、高移動度薄膜の異常ホール効果では磁化曲線から大きくずれる成分が発現した (図 1(1))。結晶場分裂した 2 種類のバンドにおいて (図 1(2)A) 磁場を加えると、縮退していた上向きスピンバンドと下向きスピンバンドがエネルギー的に上下に分裂 (ゼーマン分裂) する幅が大きくなっていき (B) 磁化が飽和する 3 T 以上では変化がなくなる (C)。この磁化過程中的ワイル・ノードとフェルミエネルギーの位置関係によって、異常ホール効果が、加えた磁場に対して非単調な (1) の実験結果を再現する曲線になる。つまり、磁化の変化によりゼーマン分裂がわずかに変化しただけで、ワイル・ノードが創発する磁気単極子のエネルギー位置が変わり、電子の軌道が変化したことが観測可能になった。このように電子移動度の大きな酸化物磁性半導体薄膜では、今後もバンド構造、ワイル・ノードに由来するさまざまな新現象の発見が期待できる。

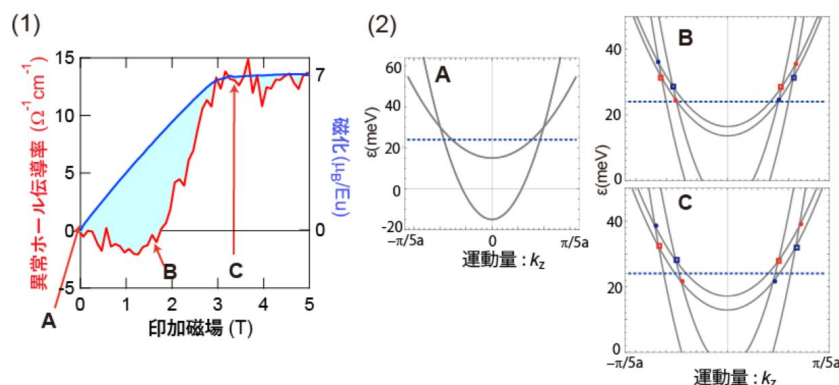


図 1 高移動度 EuTiO_3 薄膜の典型的な異常ホール効果の磁化過程中的振る舞い (1) とバンド構造 (2) の関係

(2) 高移動度 EuTiO_3 薄膜の量子伝導現象

磁性半導体はスピントロニクス応用材料として期待されている。多くの磁性半導体は磁性不純物をドープするため電子散乱により移動度が低く、伝導電子の量子干渉効果を観察することは困難であった。 EuTiO_3 は反強磁性体であると同時に不純物ポテンシャルを遮蔽する性質をもつ量子常誘電体であるため、キャリアドープしたときの伝導電子の散乱が非常に少なく高移動度磁性半導体の実現が期待できると考えた。

有機金属ガス源を用いた分子線エピタキシー法と高温レーザー基板加熱機構を組み合わせた、独自に開発したガスソース分子線エピタキシー装置を用いて、超高品質 EuTiO_3 薄膜成長に成功した。今回、 EuTiO_3 と格子定数がほぼ同じである SrTiO_3 基板上に高温成長したことにより、格子歪みのない高品質 La ドープ EuTiO_3 薄膜が得られた。2 K での最高移動度は $3200 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ に到達し、磁気抵抗量子振動を明瞭に観察した。図 2 に磁気抵抗の磁場依存性を示し、図 3 に振動をフーリエ変換して見積もった 2 つの振動周波数の印加磁場角度依存性から得たフェルミ面の形状を示した。これらの結果と第一原理計算の比較により、 EuTiO_3 は磁場下での強磁性状態で伝導電子が 100 % スピン偏極しており、その 3 つの $\text{Ti}3d$ バンドのうち 2 つのバンドが量子振動に寄与していることを発見した。 EuTiO_3 はスピン偏極電子の量子伝導現象を研究する理想的な物質であると考えられる。

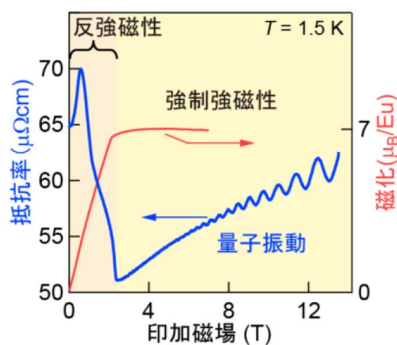


図 2 La ドープ EuTiO_3 薄膜の磁気抵抗曲線と磁化曲線。2 T 以上の強制強磁性状態で量子振動が明瞭に発現した。

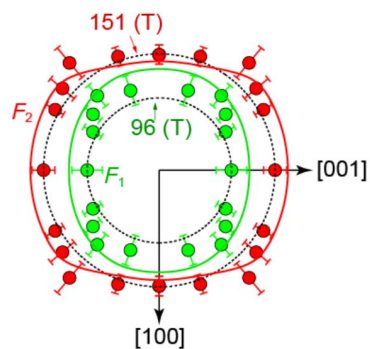


図 3 2 つのフェルミ面の断面積に対応した磁気抵抗量子振動の周波数の磁場方向依存性 (丸) と第一原理計算 (線) の結果をプロットした。

さらに、この La ドープ EuTiO_3 の膜厚を数 nm にした二次元構造で量子ホール効果の実現を狙った。しかし、シートキャリア密度 10^{13} cm^{-2} 台で移動度が低くなってしまい、量子ホール効果を観察可能な条件を満たすことができなかった。また、La ではなく Eu と同じスピン配置をとる Gd ドープ EuTiO_3 による高移動度化も試みたが、La ドープ EuTiO_3 薄膜より移動度が向上することはなかった。これは、低温での移動度がスピンの散乱ではなく置換イオンの散乱 (イオン半径に依存) で決まっていることを示唆する結果である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Takahashi Kei S., Ishizuka Hiroaki, Murata Tomoki, Wang Qing Y., Tokura Yoshinori, Nagaosa Naoto, Kawasaki Masashi	4. 巻 4
2. 論文標題 Anomalous Hall effect derived from multiple Weyl nodes in high-mobility EuTiO films 3	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eaar7880
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1126/sciadv.aar7880	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 Maruhashi Kazuki, Takahashi Kei S., Bahramy Mohammad Saeed, Shimizu Sunao, Kurihara Ryosuke, Miyake Atsushi, Tokunaga Masashi, Tokura Yoshinori, Kawasaki Masashi	4. 巻 32
2. 論文標題 Anisotropic Quantum Transport through a Single Spin Channel in the Magnetic Semiconductor EuTiO3 3	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 1908315 ~ 1908315
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/adma.201908315	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 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 3件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 高橋圭
2. 発表標題 Quantum transport in magnetic semiconductor EuTiO3 films
3. 学会等名 2019 MRS SPRING MEETING（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋圭
2. 発表標題 Quantum transport of spin polarized electrons in EuTiO3 films
3. 学会等名 OSS (Oxide Superspin) Workshop 2019（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋圭
2. 発表標題 Quantum transport in the films of a magnetic semiconductor EuTiO3
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 高橋圭
2. 発表標題 Quantum transport of spin polarized electrons in EuTiO3 films grown by gas source MBE
3. 学会等名 2021 APS March meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021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

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