

平成 22 年 4 月 21 日現在

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（TAKAGI HIDENORI）  
東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授  
研究者番号：40187935

研究代表者の専門分野：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. 研究計画の概要

遷移金属酸化物中に出現する多彩な電子相は微妙なバランスで競合し、外的刺激、例えば電界により劇的な電子相変化を起こす。これを用いた電界効果トランジスタや抵抗変化メモリなどのデバイスは、次世代エレクトロニクスの要素技術として期待されている。本研究はこれらのデバイスの学理を構築すると同時に物理的に興味深い電界誘起物性の開拓を目指す。

### 2. 研究の進捗状況

#### (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で、極低温で動作するデバイスの作製に成功した。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。

このトランジスタ技術を他の物質にも展開することで、MoS<sub>2</sub> や WSe<sub>2</sub> などの層状遷移金属カルコゲナイドの金属 - 絶縁体転移を観測した。

#### (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界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指摘されていた。プレーナ型素子を構築し抵抗変化領域の SEM による直接観察を行った結果、この伝導フィラメントの可視化に成功した。放射光分光イメージングから、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（伝導酸化物）であることを明らかにした。

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。同時に動作電力が大幅に減少することも確認した。

#### (3) Ir 酸化物の巨大スピン軌道相互作用とその誘起物性

Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> のスピン軌道誘起モット絶縁体状態

層状 Ir 酸化物 Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> は 5d 遷移金属酸化物でありながら磁性絶縁体となる。この絶縁性の起源が Ir の強いスピン軌道相互作用にあることを放射光を用いた共鳴 X 線磁気回折から明らかとした。

#### 新規 Ir 酸化物 Ir<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の発見

新物質 Ir<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の合成に成功した。A サイトが完全に欠損したスピネル構造を形成する。特異な磁性やトポロジカル絶縁体状態が期待される。

### 3. 現在までの達成度

当初の計画以上に進展している。

（理由）

遷移金属酸化物トランジスタの研究は当初の最低限の目標であった SrTiO<sub>3</sub> FET の超伝導発現まで達成した。これを受けて、予定より早く他の物質系（層状遷移金属カルコゲナイド）に展開しており、既に SrTiO<sub>3</sub> デバイスと同程度の歩留まりを実現している。

抵抗変化メモリに関しては、第一目標の伝導フィラメントの可視化にはユニークなデ

デバイス構造の構築により初期の段階で実現した。その後も放射光分光イメージングなど独自の実験を展開し、抵抗スイッチング現象のメカニズムがナノスケール酸化還元現象と提唱するに至った。これら一連の成果は、抵抗変化メモリの教科書的な位置づけになりつつある。

さらに、当初の計画には考慮されていなかったデバイスの微細化・省電力化にも成功している。期待以上の成果があったと言えるだろう。

以上の研究に加えて、当初予想していなかった展開としてイリジウム酸化物のスピントラッキング誘起新奇電子相が挙げられる。スピントラッキング誘起モット絶縁相の解明や新物質開発は今後の酸化物デバイス開発に資する重要な成果である。本研究を契機として重い遷移金属酸化物のスピントラッキング誘起物性という新しい分野が創成されつつある。基盤研究(S)に相応しい高い波及効果のある成果と考えられる。

#### 4. 今後の研究の推進方策

##### (1) 電界誘起物性の探索

これまで金属-絶縁体転移を実現したトランジスタの中で、スピントラッキング相互作用が強いと思われるものに注目する。界面の強いスピントラッキング相互作用に伴う異常磁気輸送現象を詳細に調べる。さらに超伝導とスピントラッキング相互作用という切り口で新超伝導体を発見する努力を継続する。

##### (2) 抵抗スイッチングの機構解明

伝導フィラメント(ブリッジ)の内部にありセット・リセットを支配すると考えられるナノ伝導フィラメントを電子顕微鏡により直接観測する。併行して放射光ナノビームを用いて電界を印加しながらのナノフィラメントのその場観察を試みる。これらを通してスイッチング機構をめぐる論争に終止符を打ちたい。

##### (3) スピントラッキング相互作用が誘起する特異な電子相

これまで発見したスピントラッキング誘起モット絶縁体状態( $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ ,  $\text{Ir}_2\text{O}_4$ )に電界ドーピングを試みる。スピントラッキングモット状態は、スピントラッキングバンド絶縁体や半金属といった状態と競合する。ドーピングにより金属化した状態がどのような基底状態が現われるか、明らかとしたい。

またこれらの試料を活用して、期待される量子スピントラッキング効果や巨大スピントラッキング効果の検出に注力する。

#### 5. 代表的な研究成果

(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18件)

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, in press 査読有り

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/SrTiO<sub>3</sub> Interface by Electric Field", Journal of the Physical Society of Japan 78, 083713-1-4 (2009) 査読有り

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 Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub>", Science 323, 1329-1332 (2009) 査読有り

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) 査読有り

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) 査読有り

##### [学会発表](計40件)

H. Takagi, "Novel Electronic States Produced by Spin-Orbit Coupling in 5d Ir Oxides", KITP conference on Materials by Design, (2010/2/12, Santa Barbara, USA)

H. Takagi, "Resistance Switching and Filament Formation in Binary Transition Metal Oxides", 2007 MRS Spring Meeting (2007/4/11, San Francisco, USA)

##### [その他]

高木英典, 本多フロンティア賞受賞 2009年5月9日