

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成26年5月29日現在

機関番号：14401
研究種目：若手研究(S)
研究期間：2009～2013
課題番号：21676001
研究課題名(和文) 強相関酸化物ナノエレクトロニクス構築に関する研究
研究課題名(英文) Novel Nano-electronics based on Strongly Correlated Oxides
研究代表者
田中 秀和(TANAKA, Hidekazu)
大阪大学・産業科学研究所・教授
研究者番号：80294130
交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 75,800,000円、(間接経費) 22,740,000円

研究成果の概要(和文)：強い電子相関により、高温で強磁性、金属-絶縁体転移、超巨大磁気抵抗、高温超伝導など新奇な物性を示す遷移金属酸化物において、ヘテロ構造およびナノサイズ超構造を作製し、バイアス電圧により強相関相転移のスイッチングを実現する。Fe酸化物を用いた強誘電電界効果トランジスタ/ダイオードデバイスにおいて室温での強磁性・磁気抵抗の変調に成功し、V酸化物ナノ構造デバイスにおいてナノ構造増感効果を見出し、非常に巨大な抵抗変化スイッチングを創出し、強相関電子デバイスの一層の高度化を図る成果を得た。

研究成果の概要(英文)：Transition metal oxides, having strongly correlated electron systems, show unusually drastic phase transitions (Mott transitions), including ferromagnetism, metal-insulator transition, and others. If it were possible to effectively control their carrier by electric field as semiconductor industry, novel functional electronics could be created, I constructed Fe oxide based field effect transistor /diode devices and realized electric field modulation of ferromagnetism and magnetoresistance at room temperature. Moreover, I originally developed ultra-small 3D oxide nano-structures, and discovered nano-structure enhanced electronic phase change in V-oxides, leading to further development of strongly correlated nano-oxide electronics.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 ・ 応用物性・結晶工学

キーワード：新機能材料、強相関系、ヘテロ構造、ナノ構造、スピントロニクス

1. 研究開始当初の背景

遷移金属酸化物は強い電子相関を持ち電子スピンの強結合している強相関電子材料群であり、非常に高温で強磁性、超巨大磁気抵抗、超伝導などを発現し、僅かな磁場、温度、キャリア濃度変化で大きく物性が変化する。この優れた、しかし扱い難い物質群を半導体デバイスのように制御できれば魅力的な新規エレクトロニクスが出現すると期待できる。

2. 研究の目的

異なる機能を持つ酸化物を組み合わせる「ヘテロ構造」、格段に小さな「ナノヘテロ構造」により、バイアス電圧・光によるキャリア制御を通じ物性発現の源である電子相関を制御することを目的とする。それにより、外場による強相関物性のスイッチングを実現し『強相関酸化物ナノエレクトロニクス』の構築を目指す。

強相関エレクトロニクスデバイス

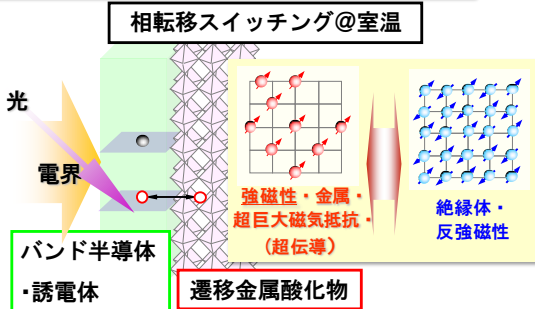


図1 強相関酸化物ナノエレクトロニクス概念図

3. 研究の方法

対象物質系には、最も強い電子相関を有し非常に高温まで強磁性を示す Fe 酸化物、室温付近で非常に巨大な金属-絶縁体転移を示す V 酸化物など多彩な物質が存在する。これらに対し、

- (1) レーザ分子線エピタキシー法を用いた原子レベル制御界面を有する遷移金属酸化物ヘテロ構造デバイス（電界効果トランジスタ、ダイオード）作製と強相関物性の電界・光制御
- (2) 高輝度放射光施設を用いた電子・スピン分光測定による動作メカニズム解明と学理構築
- (3) 独自の極限ナノ構造形成技術を用いたナノスケールヘテロ構造構築によるバルクを超えた新原理超巨大外場応答の創出

以上の手法により目的にアプローチする。

4. 研究成果

(1)高温強磁性 Fe 酸化物ヘテロ構造デバイス
室温より遥かに高い温度で強磁性を示す $\text{Fe}_{3-x}\text{Zn}_x\text{O}_4$ を舞台に、電子相関の巨大変調に

よって実現可能な次世代エレクトロニクス機能原理の構築に取り組んだ。

①強磁性電界効果トランジスタ: $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ 強誘電ゲート FET 構造を $\text{Fe}_{2.5}\text{Zn}_{0.5}\text{O}_4$ に展開し、当初目標に掲げた室温での FET 動作及び電界による保磁力変調を達成した (図2)。

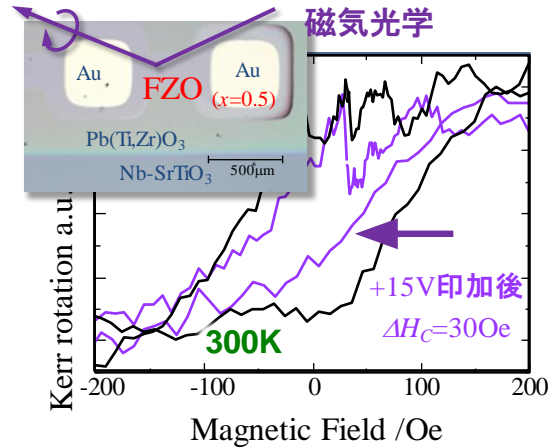


図2 強磁性 Fe 酸化物 FET における磁化の電界変調 (磁気光学検出)

②さらに、格子整合 MgO(001)基板上にエピタキシャル成長させた $\text{Fe}_{2.5}\text{Zn}_{0.5}\text{O}_4$ と有機ゲート絶縁膜パリレンを用いた FET 構造、および強力な電界を印加可能なイオン液体をゲートするイオン液体(IL)FET を新たに設計し、各々約 15 倍の電界効果移動度の向上および 2V 以下での酸化還元を利用した磁気抵抗効果の電界制御に成功した (図3)

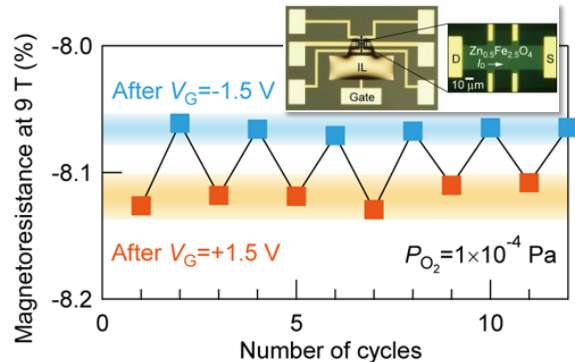


図3 強磁性 Fe 酸化物イオン液体ゲート FET における磁気抵抗効果の電界変調

③酸化物界面バンド工学と酸化物ナノ構造作製技術を駆使し、電界制御型素子として $\text{Fe}_{2.1}\text{Zn}_{0.9}\text{O}_4/\text{Nb}:\text{SrTiO}_3$ 強磁性ショットキダイオードを作製し、バイアス電界での磁気抵抗効果のコントロールに成功し、その原因が同物質の高いスピン分極率に起因することを初めて明らかにした。(図4)

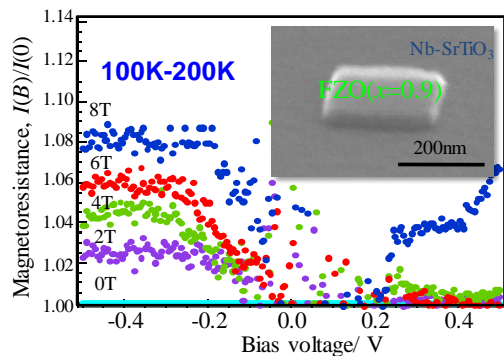


図4 強磁性Fe酸化物ショットキーダイオードにおける整流特性および磁磁気抵抗のバイアス制御

(2) 室温金属-絶縁体転移 VO₂ 薄膜デバイス

70°C 付近で、金属-絶縁体転移による数桁に及ぶ巨大な抵抗変化を示し、室温動作の超低消費電力・巨大スイッチングデバイスの有力候補である VO₂ においてエピタキシャル薄膜およびデバイス形成を以下を明らかにした。

①Genova 大学(伊)との共同研究により、フリースタンディング VO₂ 薄膜デバイス構造を形成し、超低電流バイアスによる強相関相転移の可逆メモリ動作のデモンストレーションに成功した(図5)。

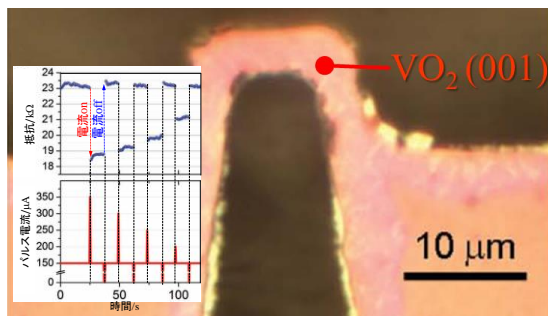


図5 VO₂ フリースタンディング構造デバイスと電流による抵抗スイッチング

②VO₂ エピタキシャル歪み薄膜を TiO₂(001) 基板上で作製することにより、従来報告されてきた薄膜材料と比較し、バイアス電圧による絶縁体-金属相転移スイッチングが 100 倍の変化率を有することを発見した(図6)。

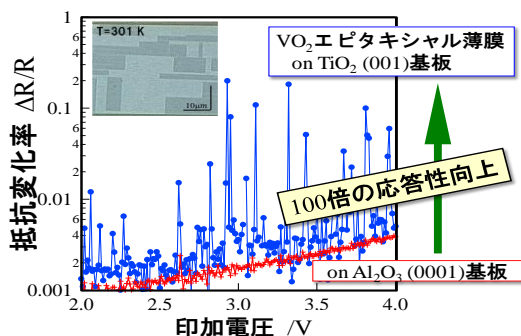


図6 TiO₂(001)基板上 VO₂ 薄膜の電流-電圧特性

加えてこの原因は、通常の 100 倍の大きさを有する金属相電子ドメインの発現により、マイクロスケールにも及ぶ空間協調的な相転移によるものであることを明らかにした。マイクロパターン VO₂ 薄膜作製により、ドメインを制限空間に閉じ込め急峻かつ巨大な抵抗変化を創出できる【ナノ構造増感効果】を見出した。(図7)

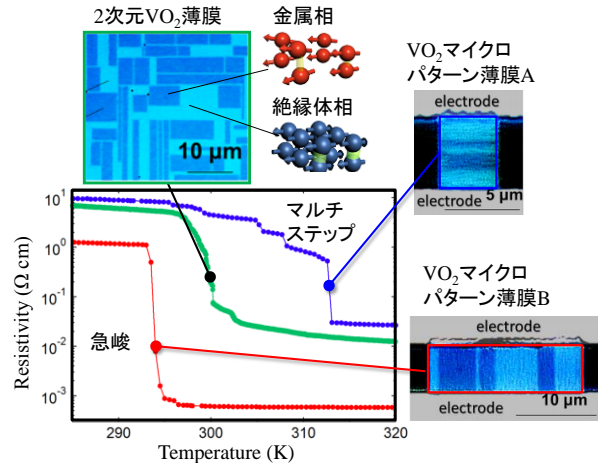


図7 マイクロパターン形状による VO₂ 薄膜の金属-絶縁体挙動制御

(3) 酸化物極限ナノ構造による強相関ナノデバイス作製

【ナノ構造増感効果】は、強相関酸化物デバイスの一層の巨大変化誘起、消費電力、動作速度など性能向上を実現する手段として有望であることが明らかとなった。この効果をデバイスに取り入れる為、機能性酸化物ナノ構造を形成する新手法を開発した。大面積に一括してナノ構造デバイスを作製できる酸化物直接ナノインプリント法/Mo リフトオフナノインプリント法を新たに開発し、極小サイズ(30nm)~数μm まで広範囲で系統的にサイズ制御された VO₂ ナノワイヤ(図8上)、最小径 60nm のエピタキシャル Fe_{2.5}Zn_{0.5}O₄ ナノドット構造(図8中)を形成することに成功した。更なる発展として、パルスレーザー蒸着法(PLD)でテンプレート側面へ薄膜結晶を成長させることにより従来の限界を超えた分子層レベルでのナノ構造サイズ制御を可能とする、“3D ナノテンプレート PLD 法”を新たに考案し 10~20nm サイズの極小酸化物デバイスの構築に成功した。(図8下)

①これら酸化物ナノ構造体作製技術を駆使し、極小 VO₂ ナノワイヤデバイスを形成した。通常の 2D 薄膜デバイスに比し、ナノ構造増感効果による非常に急峻な電界絶縁体→金属スイッチを実現した。デバイスの極小化およびスイッチングの急峻化により 1/1000 の省電力化を実証した(図9)。

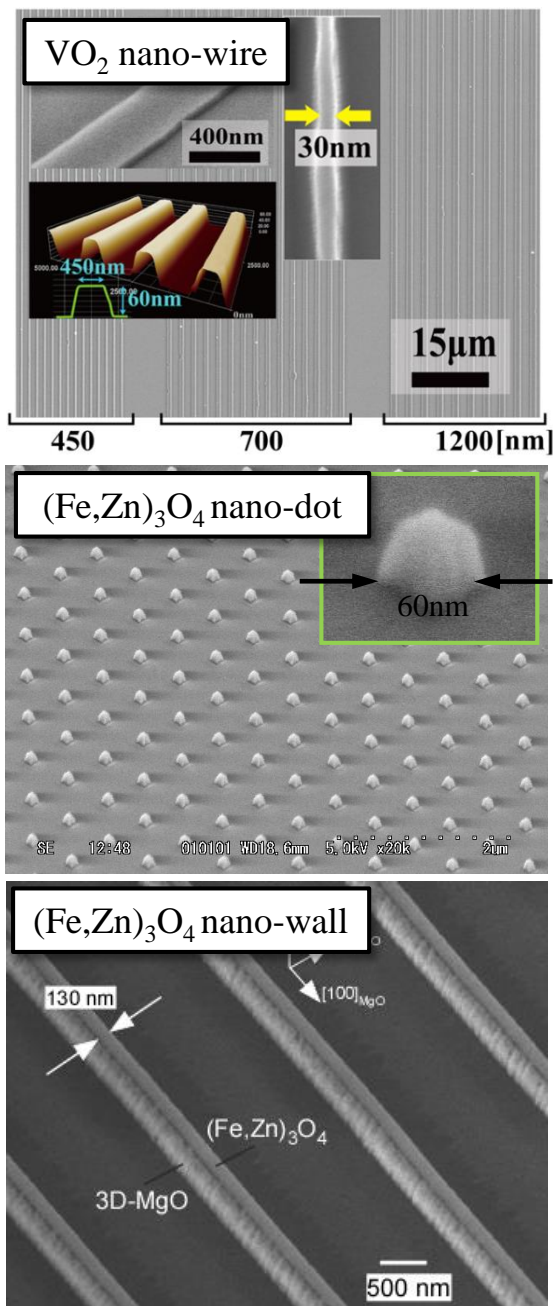


図8 (上) VO₂ ナノマイクロワイヤ (ナノインプリント法)、(中) (Fe,Zn)₃O₄ ナノドット (Moリフトオフナノインプリント法)、(下)(Fe,Zn)₃O₄ ナノウォール (3D-PLD法)

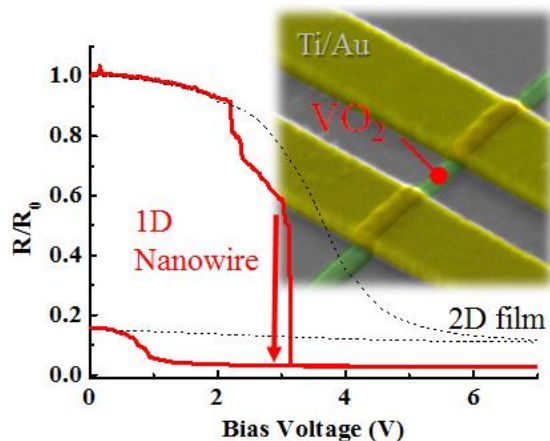


図9 VO₂ ナノワイヤ(幅 200nm)および通常薄膜の電流印加絶縁体-金属転移およびVO₂ ワイヤ走査型電子顕微鏡像

以上の「ヘテロ構造」デバイス、格段に小さな「ナノヘテロ構造」を通じ強相関物性のスイッチングを実証した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 36 件)

①H.Takami, T.Kanki, H.Tanaka, Multistep metal insulator transition in VO₂ nanowires on Al₂O₃ (0001) substrates, Appl. Phys. Lett., 査読有、104 (2014) 023104 DOI: 10.1063/1.4861720

②H.Tanaka, H.Takami, T.Kanki, A.N.Hattori, K. Fujiwara, Artificial Three Dimensional Oxide Nanostructures for High Performance Correlated Oxide Nanoelectronics, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有、53 (2014) 05FA10 (Invited Paper) DOI: 10.7567/JJAP.53.05FA10

③K.Fujiwara, T.Ichimura, H.Tanaka, Nonvolatile Transport States in Ferrite Thin Films Induced by a Field Effect Involving Redox Processed, Advanced Materials Interfaces, 査読有、(2014) In-press DOI: 10.1002/admi.201300108

④Manca, L. Pellegrino, T.Kanki, S.Yamasaki, H.Tanaka, A.S.Siri, D.Marre, Programmable mechanical resonances in MEMS by localized Joule heating of phase change materials, Advanced Materials, 査読有、25 (2013) 6430 DOI : 10.1002/adma.201302087

⑤H.Ueda, T.Kanki, H.Tanaka, Manipulation of metal-insulator transition characteristics in aspect ratio-controlled VO₂ micro-scale thin films on TiO₂ (001) substrates, Appl. Phys. Lett., 査読有、102 (2013) 153106 DOI:10.1063/1.4802207

⑥Y.Fujiwara, A.N.Hattori, K.Fujiwara, H.Tanaka, Nanowall shaped MgO substrate with flat (100) sidesurface: A new route to three-dimensional functional oxide nanostructured electronics, Jpn. J. Appl. Phys., 査読有、52 (2013) 015001 DOI: 10.7567/JJAP.52.015001

⑦H.Takami, K.Kawatani, H.Ueda, K.Fujiwara, T.Kanki, H.Tanaka, Tuning metal-insulator transition by one dimensional alignment of giant electronic domains in artificially size-controlled epitaxial VO₂ wires, Appl. Phys. Lett., 査読有、101 (2012) 263111 DOI: 10.1063/1.4773371

⑧T.Kanki, K.Kawatani, H.Takami, H.Tanaka, Direct observation of giant metallic domain evolution driven by electric bias in VO₂ thin films on TiO₂(001) substrate, Appl. Phys. Lett., 査読有、101 (2012) 243118 DOI:

10.1063/1.4772211

⑨A.N.Hattori, M.Ichimiya, M.Ashidai, H.Tanaka, ZnO nanobox luminescent source fabricated by three-dimensional nanotemplate pulsed-laser deposition、Appl. Phys. Exp.、査読有、5 (2012) 125203

DOI: 10.1143/APEX.5.125203

⑩T.Kushizaki, K.Fujiwara, A.N.Hattori, T.Kanki, H.Tanaka, Controlled fabrication of artificial ferromagnetic (Fe,Mn)₃O₄ nanowall-wires by a three-dimensional nanotemplate pulsed laser deposition method、Nanotechnology、査読有、23 (2012) 485308

DOI: 10.1088/0957-4484/23/48/485308

⑪S.Yamanaka, T.Kanki, T.Kawai, H.Tanaka, Enhancement of Spin Polarization in a Transition Metal Oxide Ferromagnetic Nanodot Diode、Nano Letters、査読有、11 (2011) 343 DOI: 10.1021/nl102601m

⑫J.Takaobushi, T.Kanki, T.Kawai, H.Tanaka, Preparation of Ferroelectric Field Effect Transistor based on sustainable stolonally correlated (Fe,Zn)₃O₄ oxide semiconductor and their electrical transport properties、Appl. Phys. Lett.、査読有、98 (2011) 102506

DOI: 10.1063/1.3564885

⑬N.-G Cha, T.Kanki, H.Tanaka, Extremely reduced hollow metal nanomasks for direct epitaxial growth of functional oxide nanostructures、Nanotechnology、査読有、22 (2011)185306

DOI: 10.1088/0957-4484/22/18/185306

⑭K.Goto, T.Kanki, T.Kawai, H.Tanaka, Giant Magnetoresistance Observed in (Fe,Mn)₃O₄ Artificial Nanoconstricted Structures at Room Temperature、Nano Letters、査読有、10 (2010) 2772

DOI:10.1021/nl102601m

〔学会発表〕(計 123 件うち招待・依頼講演 40 件)

①田中 秀和、3次元ナノ構造作製とその物性解析、第42回薄膜・表面物理基礎講座、2013年11月25日、東京工業大学(東京都目黒区)

② H.Tanaka, Correlated Nano-Oxides for Electronic Phase Change Electronics、224th ECS Meeting、2013.10.31、The Hilton San Francisco Hotel (San Francisco, USA) [invited]

③H.Tanaka, T.Kanki, A.N.Hattori, K.Fujiwarara, 3D Nanostructures for correlated oxide electronics、2013 JSAP-MRS Joint Symposia、2013.9.16、同志社大学(京都府京田辺市) [invited]

④田中秀和、Total Control of Oxide Nanostructures、2012年 秋季 第73回応用物理学会学術講演会、2012年9月13日、愛媛大学/松山大学(愛媛県松山市) [招待講演]

⑤H.Tanaka, Fabrication of Multi-dimensional Oxide Nanostructures and its Physical Properties、2012 Materials Research Society (MRS) Spring Meeting、2012.4.9、Moscone West Convention Center | Marriott Marquis (San Francisco, USA) [invited]

⑥田中秀和、酸化物ナノ構造スピントロニクス、2012年春季 第59回応用物理学関係連合講演会、2012年3月15日、早稲田大学(東京都新宿区) [招待講演]

⑦田中秀和、酸化物ナノ構造形成プロセス、2012年春季 第50回 応用物理学関係連合講演会、2012年3月15日、早稲田大学(東京都新宿区) [招待講演]

⑧H.Tanaka, Multi-dimensional Nanostructured Oxide Devices、2011 International Conference on Solid State Devices and Materials、2011.9.28、WINC AICHI (愛知県名古屋市) [invited]

⑨H.Tanaka, Nano-structuring Functional Oxides for Advanced Spintronic Materials and Devices、International Union of Materials Research Societies、2010.8.23、Korea International Exhibition Center (ソウル、韓国) [invited]

⑩田中秀和、機能性酸化物スピントロニクス、日本磁気学会 第28回スピニエレクトロニクス専門研究会、2010年1月12日、中央大学(東京都千代田区) [招待講演]

⑪田中秀和、酸化物を使った機能性デバイスの創製、未踏・ナノデバイステクノロジー第151委員会/ナノ材料分科会合同公開シンポジウム、2009年8月31日、早稲田大学(東京都新宿区) [招待講演]

〔図書〕(計1件)

①田中 秀和、服部 梓、岡田浩一、シーエムシー出版、3D Ultra-small Functional Oxide Nanoelectronics Devices Constructed Artificially Directed Nanostructures、2014、9

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/bis/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

田中 秀和 (TANAKA, Hidekazu)
大阪大学・産業科学研究所・教授
研究者番号：80294130

(2)研究分担者

該当なし

(3)連携研究者

該当なし