

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 5月14日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2010～2011

課題番号：22840004

研究課題名（和文） 高移動度酸化亜鉛二次元界面における強相関希薄電子系の金属絶縁体転移

研究課題名（英文） Metal-insulator transition in strongly correlated diluted electron systems of high-mobility zinc oxide two-dimensional interfaces

研究代表者

小塚 裕介 (KOZUKA YUSUKE)

東京大学・大学院工学系研究科・助教

研究者番号：70580372

研究成果の概要（和文）：本研究の目的は電気抵抗を測定することで、酸化亜鉛における二次元電子の金属状態から絶縁体状態への転移を観測することである。極低温中において酸化亜鉛二次元電子に強磁場を印加することで、電気抵抗が急激に増大し、金属絶縁体転移が観測された。しかしながら、この抵抗増大の前後でキャリア濃度を反映するホール抵抗に異常は見られず、量子ホール絶縁体と呼ばれる、高移動度の低キャリア濃度系に特徴的な状態が実現されていることが明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：Our aim is to observe a metal-insulator transition in two-dimensional electrons in zinc oxide by measuring electrical resistance. At ultralow temperature, by applying high magnetic field, we observed an abrupt increase in the electrical resistance, suggesting a metal-insulator transition. However, Hall resistance, which reflects carrier density, remains normal across the resistance increase. Thus, we found that a characteristic state in high-mobility diluted carrier systems is realized, which is called quantum Hall insulator.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,250,000	375,000	1,625,000
2011年度	1,150,000	0	1,150,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,400,000	375,000	2,775,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I

キーワード：酸化亜鉛薄膜、金属絶縁体転移、量子ホール効果

1. 研究開始当初の背景

金属絶縁体転移は半導体のキャリアドーピング技術の向上とともに非常に注目されてきたトピックである。その理論的枠組みは繰り込み群の方法により「 $D > 2$ では、あるドーピング量で金属絶縁体転移が起こり、 $D \leq 2$ ではすべての系は絶縁体である(D :次元)」という結論で決着が付き、実験によっても実証されたと考えられていた。しかし、1990年代中ご

ろに非常に清浄な Si の表面反転層が作製され、電気抵抗測定により 100 mK 以下まで金属的伝導を示すことが観測された。その後、GaAs 系の二次元界面においても同様な現象が観測され、現在まで非常に盛んに研究されている。しかし、その理論的枠組みはまだ収束しておらず、各方面から様々なアプローチがとられている。

2. 研究の目的

そこで本研究では、(Mg,Zn)O/ZnO 界面の高移動度二次元電子系に注目し、金属絶縁体転移観測を目的とした。この二次元電子系は近年の作製技術向上により非常に高い移動度が達成されており、有効質量が大きいため電子相関が強く二次元金属絶縁体転移観測に最も適している。また、他の二次元系との比較により、二次元金属絶縁体転移の現象がどれほど普遍的であるか知ることができる。さらに、電子相関の強い高移動度二次元系における新規量子相発現が期待できる。

3. 研究の方法

(1) (Mg,Zn)O 薄膜は分子線エピタキシー法を用いて作製した。基板には格子整合のよい ZnO 基板を用い、清浄な表面を出すために酸でエッチングおよび真空チャンバー内で過熱処理をした。本研究の分子線エピタキシー法の特徴は、酸素源として、非常に酸化力が強く、不純物混入の少ない液化オゾンを用いる点である。また、純度 7N の Zn と 6N の Mg 高純度金属源を用い、高品質薄膜作製に重点を置く。

(2) 作製試料はフォトリソグラフィとイオンミリングを用いてメサパターンに加工し、電子ビーム蒸着装置を用いて Ti オーミック電極を形成した。また、ゲート絶縁膜として原子層堆積を用いて Al₂O₃ を堆積し、Ni/Au をゲート電極として形成した。

(3) 低温における電気測定は、予備測定として 9 T の超伝導マグネットを備えた減圧液体ヘリウム冷凍機および ³He 冷凍機を用い、0.5 K までの磁気輸送特性測定を行った。極低温輸送特性を測定するため、希釈冷凍機とハイブリッドマグネットを利用し、磁場 26 T、温度 40 mK までの強磁場、極低温において磁気輸送特性の測定を行った。また、スピン感受率測定は試料回転機構を備えた別の希釈冷凍機を用いて行った。いずれの測定においても 13Hz の交流電流を用いて、ロックインアンプにより高精度抵抗測定を行った。

4. 研究成果

(1) 本研究では初めに、酸化亜鉛薄膜の高品質化を行った。図 1 に MgZnO/ZnO 界面に形成された二次元電子ガスにおける移動度（散乱時間）の温度依存性を示す。2009 年までパルスレーザー堆積法 (PLD)、分子線エピタキシー法 (MBE) を用いて作製し、年々移動度を改善してきた。本研究は上述の 100%液化オゾン酸素源として用いた分子線エピタキシー法によって、ガスより混入する不純物を極限まで減らし、2009 年の値よりおよそ 4 倍の 700,000 cm² V⁻¹ s⁻¹ まで移動度を

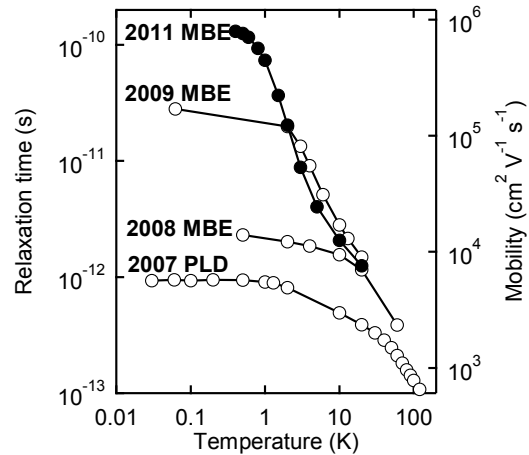


図 1. (Mg,Zn)O/ZnO 界面に形成された二次元電子における散乱時間（左軸）および対応する移動度（右軸）の温度依存性。年代ごとの向上を示してある。

高めることに成功した（図 1、2011 年のデータ）。この値は酸化亜鉛二次元電子ガスで現在報告されている中で最も高く、他の系と比較しても、GaAs/AlGaAs、Si/SiGe に続いて 3 番目に高い値である。（雑誌論文②）

(2) この薄膜成長方法を用いて作製された試料の電気特性を評価するために、極低温・強磁場における磁気輸送特性を測定した。測定はハイブリッド磁石中に置かれた希釈冷凍機を用い、40 mK の低温で 26 T までの強磁場を印可した。図 2 に示されるように、 $\nu = 2/3$, $2/5$ など多くの分数量子ホール状態とともに 25.5 T 付近で $\nu = 1/3$ 状態を観測した。この結果は非常に低キャリア濃度でも高い移動度を示す、高品質な (Mg,Zn)O/ZnO 界面が作製

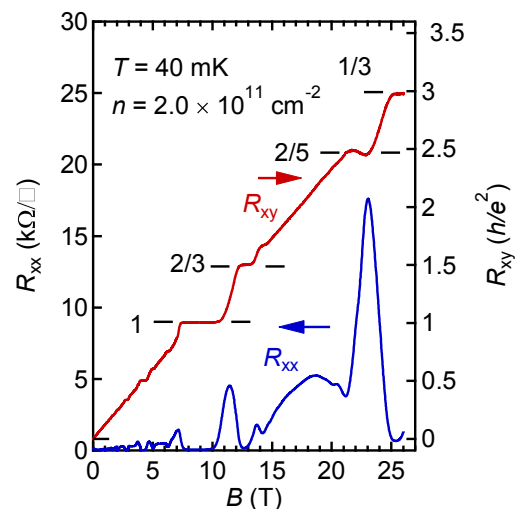


図 2. $T = 40$ mK における $B = 26$ T までの磁気輸送特性。用いた試料のキャリア濃度と移動度はそれぞれ $n = 2.0 \times 10^{11}$ cm⁻²、 $\mu = 300,000$ cm² V⁻¹ s⁻¹。

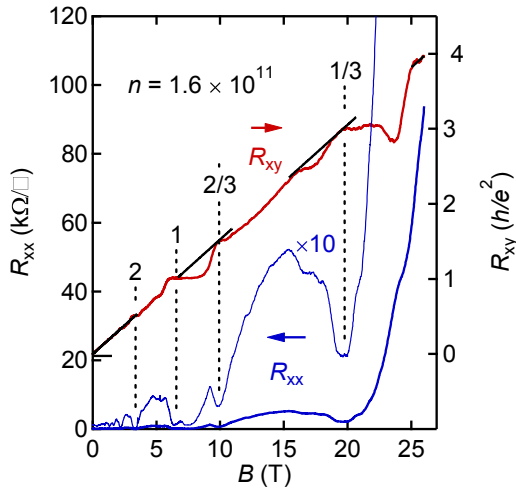


図3. $n = 1.6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ における磁気輸送特性。

されている証拠である。特に、 $\nu = 1/3$ の分数状態が観測されたのはGaAs, SiGe, グラフェンに続き4つ目の物質となる、非常に重要な結果である。(雑誌論文①)

(3) 以上の結果より(Mg,Zn)O/ZnO 界面において非常に高品質な二次元電子ガスが形成可能であることを実証してきた。このような高移動度系において低キャリア濃度領域における基底状態は非常に盛んに研究されている。それは低キャリア濃度領域においては相対的に電子間相互作用が強くなり、量子ホール状態とは異なる現象を発現する可能性があるからである。そこで我々は上述の(Mg,Zn)O/ZnO 二次元電子にゲート電圧を印加することで、キャリア濃度を減少させ強磁場下で輸送特性を測定した。図3にキャリア濃度 $1.6 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ におけるデータを示す。キャリア濃度の減少を反映し図2より低磁場($B = 20 \text{ T}$)に $\nu = 1/3$ の量子ホール状態が観測された。特質すべき点として、 $\nu = 1/3$ を超える磁場において非常に急峻な R_{xx} の増大を観測した。一方、 R_{xy} に異常は見られず、通常のホール抵抗(B/ne)から大きくはずれる傾向は示さなかった。これはGaAsで観測されてきた量子ホール絶縁体と呼ばれる状態と似ている。特に電子相関が強い場合は電子の結晶であるウィグナー結晶が実現されていると考えられる。

この絶縁体状態の詳細を調べるために図4(a)に示されるように、ゲート電圧を印加しキャリア濃度を減少させて、いくつかのフィリングファクターにおいて微分コンダクタンス dI/dV の電流依存性を測定した。量子ホール状態では過電流による量子ホール状態の破壊がおり、正の微分抵抗が観測されるのに対し、量子ホール絶縁体では電流による絶縁体状態の融解が起こり負の微分抵抗が

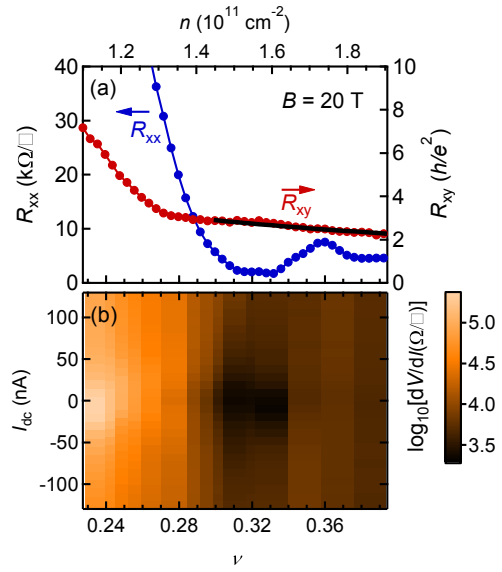


図4. (a) $B = 20 \text{ T}$ における R_{xx} および R_{xy} のキャリア濃度(フィリングファクター)依存性。(b) フィリングファクターと直流電流(I_{dc})に関する微分コンダクタンスのマッピング。

観測される。その様子を図4(b)にカラーマップとして表す。この図から明らかなように、 $\nu = 1/3$ 付近では量子ホール状態が実現し、正の微分抵抗が観測されるのに対し、キャリア濃度を減少させることによって、 $\nu < 0.28$ では負の微分抵抗が観測される。これは上述の量子ホール状態から量子ホール絶縁体状態への転移が起こっている実証である。(雑誌論文①)

(4) これまでの結果により、酸化亜鉛では大きな有効質量のため、電子相関が強いこと

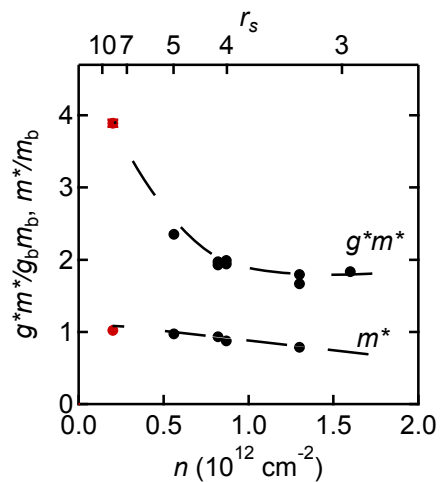


図5. スピン感受率 g^*m^* および有効質量 m^* のバルク値に対するキャリア濃度依存性。上軸には電子相関の強さを示す r_s パラメータが示されている。

が明らかとなり、磁場誘起の金属絶縁体転移が観測された。この電子相関の影響をさらに調べるため、スピン感受率測定を行った。スピン感受率は試料を磁場に対して傾けながら磁気抵抗振動を測定することで見積もることができる。これは磁場によるランダウ分裂とゼーマン分裂の比を変化させることに対応し、この2つのエネルギー分裂が一致するとき分裂順位に二重縮退が起こり、磁気振動周期は2倍になる。この角度よりスピン感受率 m^*g^* が図5に示されるように見積もられる。この結果からスピン感受率はキャリア濃度減少に伴い増大し $n = 2.0 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ でバルク値のおよそ4倍の値を示した。また、磁気振動の温度依存性を測定することで、有効質量を見積もると、キャリア濃度には大きく依存せず、バルクの値に近い $0.29m_0$ をとるため、スピン感受率の増大は g 因子の増大に起因していることが明らかとなった。この結果は酸化亜鉛の二次元電子系において強磁性転移近傍まで近づいていることを示唆しており、さらにキャリア濃度を減少させることで、純粋に電子相関による強磁性転移が期待できる。(雑誌論文③)

(5) このような相互作用の強い量子ホール系ではどのような分数量子ホール状態が実現されているか、興味が持たれる。特に、分数量子ホール状態では、電子間相互作用を繰り込んだ複合フェルミオンという準粒子で理解されるため、定性的に異なった繰り込みが期待できる。そこで、最高移動度の試料を $T = 0.4 \text{ K}$ まで冷却し、磁気輸送特性を測定した(図6)。その結果、 $\nu = 5/9$ や $5/11$ の高次の分数状態が観測された。また温度依存性より、自由粒子として捉えられるはずの複合フェルミオン間にも有効的な相互作用が働いていることが明らかとなり、これまでの理論でき枠組みでは説明できない現象であることが示唆される結果を得た。(雑誌論文④)

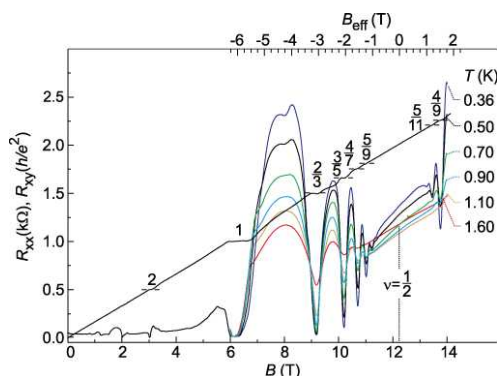


図6. $n = 1.4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ 、 $\mu = 700,000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ の試料の磁気輸送特性。

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4件)

- ① 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 $\text{Mg}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}/\text{ZnO}$ heterostructures below $\nu = 1/3$ ", *Phys. Rev. B* **84**, 033304-1-4 (2011).
DOI: 10.1103/PhysRevB.84.033304
- ② J. Falson, D. Maryenko, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, "Magnesium doping controlled density and mobility of two-dimensional electron gas in $\text{Mg}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}/\text{ZnO}$ heterostructures", *Appl. Phys. Express* **4**, 09110-1-3 (2011).
DOI: 10.1143/APEX.4.091101
- ③ 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 $\text{Mg}_x\text{Zn}_{1-x}\text{O}/\text{ZnO}$ strongly correlated two-dimensional electron system", *Phys. Rev. B* **85**, 075302-1-5 (2012).
DOI: 10.1103/PhysRevB.85.075302
- ④ D. Maryenko, J. Falson, Y. Kozuka, A. Tsukazaki, M. Onoda, H. Aoki, M. Kawasaki, "Temperature-dependent magnetotransport around $\nu = 1/2$ in ZnO heterostructures", *Phys. Rev. Lett.* **108**, 186803-1-5 (2012).
DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.186803

[学会発表] (計7件)

- ① 小塚裕介、「オゾンを用いた分子線エピタキシー法による高移動度 ZnO/MgZnO ヘテロ界面の作製」、第71回応用物理学会学術講演会、2010年9月17日、長崎(長崎)
- ② Y. Kozuka、「Enhancing Mobility of Two-Dimensional Electron Gas in ZnO/MgZnO Heterostructures」、17th International Workshop on Oxide Electronics、2010年9月20日、淡路(兵庫)
- ③ 小塚裕介、「 SrTiO_3 ヘテロ構造における高移動度二次元超伝導相の創成」、第58回応用物理学関係連合講演会、2011年3月24日、厚木(神奈川)
- ④ 小塚裕介、「 ZnO/MgZnO ヘテロ構造における高移動度希薄二次元電子の量子ホール状態」、日本物理学会2011年年次・春季大会、2011年3月25日、新潟(新潟)
- ⑤ 小塚裕介、「 MgZnO/ZnO ヘテロ構造における高移動度希薄二次元電子の量子ホー

- ル状態」、日本物理学会 2011 年年次・秋季大会、2011 年 9 月 25 日、富山（富山）
- ⑥ Y. Kozuka、「Highly correlated quantum Hall system realized at MgZnO/ZnO interfaces」、2012 SPIE Photonics West、2012 年 1 月 23 日、サンフランシスコ（USA）
- ⑦ 小塚裕介、「フォトルミネッセンスによる MgZnO 薄膜の低 Mg 濃度の定量」、2012 年春季 第 59 回応用物理学関係連合講演会、2012 年 3 月 16 日、東京（東京）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小塚 裕介 (KOZUKA YUSUKE)
東京大学・大学院工学系研究科・助教
研究者番号：70580372
研究者番号：

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：