

研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 酸化物・有機分子の界面科学とデバイス学理の構築

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点):

研究代表者

川崎 雅司 (東京大学工学系研究科 教授)(平成 18 年 10 月～)

主たる共同研究者

岩佐 義宏 (東京大学大学院工学系研究科 教授)(平成 18 年 10 月～)

大友 明 (東京工業大学大学院理工学研究科 教授)(平成 22 年 4 月～)

3. 研究実施概要

本研究は、金属酸化物と有機物を用いた様々な二次元界面構造を形成し、その電気特性や光応答を調べて界面電子状態を明らかにするとともに、その機能化を雛形デバイスで実証することを目的としたものである。研究代表者が展開してきた金属酸化物ヘテロ構造の高品質化と、有機電解質との接合により形成される電界効果トランジスタ構造の駆使が研究の二本柱と言える。

金属酸化物ヘテロ構造では、最も典型的な酸化物半導体である ZnO について本 CREST 研究以前から精力的な研究がなされており、 $(\text{MgZn})\text{O}/\text{ZnO}$ ヘテロ接合界面に電子が蓄積され、低温で移動度が大きくなることが見出されていた。この二次元電子ガス(2DEG)の移動度向上に向けた接合界面の高品質化策として、パルスレーザー堆積(PLD)法から分子線エピタキシー(MBE)法への転換、MBE マシンのチューンアップ、基板表面の清浄化、成長条件や Mg 濃度の最適化などについて膨大な検討が行われ、 $770,000 \text{ cm}^2/(\text{Vs})$ という高い移動度の実現に成功した。また、金属酸化物においては最初の例となる量子ホール効果の観測、さらにはより難度の高い分数量子ホール効果の観測に成功した。また、2DEG の生成機構や移動度を抑制する散乱機構の解釈に加え、量子ホール効果における ZnO の特異性の抽出などへ研究を進展させた。

これらの高品質酸化物薄膜調製技術をベースに、有機物との接合による従来にない機能界面の創出を試みた。その一つが電界効果型トランジスタ構造の接合界面での超伝導である。有機電解質として KClO_4 をポリエチレングリコールに分散させたものやイオン液体を用い、 SrTiO_3 、 ZrClN 、 KTaO_3 で電界効果法という従来にないアプローチ法で始めて超伝導を観測した。有機電解質中に電気二重層が形成されることにより、数 V の低いゲート電圧でも無機物側に高濃度のキャリアが誘起されることがポイントである。ただし、臨界温度は最も高温である ZrClN 系でもまだ 15 K である。今後の改良が期待される。

この酸化物／有機機能界面をもつ構造物の特徴は、有機導電性ポリマーと ZnO の界面が非常に優れたショットキー接合となることであり、その応用として紫外線センサーの実用化が企業により検討されている。また、電気二重層トランジスタ(EDLT)の技術を、透明強磁性酸化物半導体($\text{Ti}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$)に応用し、電界による強磁性の誘起を確認した。

さらに EDLT の他への展開の基礎として、材料の拡張を検討した。その結果、 NiO 単結晶、 NdNiO_3 薄膜、グラフェンなど多くの劈開性結晶が EDLT 構築に活用できることが明らかとなった。また、グラフェンへの高密度キャリア蓄積による量子準位の観測にも成功した。トポロジカル絶縁体や強相関電子系酸化物へもキャリア蓄積が可能であることが明らかになりつつある。

4. 事後評価結果

4-1. 研究の達成状況及び得られた研究成果(論文・口頭発表等の外部発表、特許の取得状況等を含む)

酸化物としては最高品質のエピタキシャル膜を作製し、整数量子ホール効果のみならず分数量子ホール効果まで観測するまでに至ったことは本チームならではの快挙である。過去の蓄積があるとはいえ、MBE 法で作製する GaAs 系でしか観測できないと思われていた分数量子ホール効果が、酸化物で観測できたことは

高く評価できる。現状のキャリア移動度は百万 $\text{cm}^2/(\text{Vs})$ に迫っており、GaAs 系で 10 年かかった進展に CREST 期間内で肉薄するところまで到達している。このクリーンな酸化物ヘテロ界面技術は、今後もさらなる新物性の発現や新デバイスの開発に繋がる可能性が高い。

また、このクリーンな無機半導体(または絶縁体)表面と有機物との界面に着目した研究展開も、着想の良さと共同研究者との優れた連携が相まって、予想以上の相乗効果を発揮した。有機電解質中に形成される EDL を利用した電界誘起による KTaO_3 の超伝導の発見など世界をリードする成果が挙げられている。 KTaO_3 は従来の化学ドーピングなどによっても超伝導が得られなかった物質であり、超伝導物質探索への新しい道を拓いたことになる。EDLT では、さらに磁性の制御にも成功しており、今後スピントロニクス分野への展開を始め、様々な物性研究に適用できる手法として期待できる。以上の成果は、いずれも高度でオリジナルな技術を背景にしたものであるが、世界をリードする程の高いレベルにあり、内外の類似研究と比べても先頭を走っていることは明白である。

これらの成果はレベルの高い論文誌に継続的に掲載されており(原著論文数 84 報)、Essential Science Indicators データベースのトップ 0.1% の論文に 5 件がリストされるなど卓越した業績である。一方、特許に関しても、国内出願 14 件に対して半数の 7 件が PCT 出願されており、いずれも企業が絡んでいて実効性を考慮した取り組みがなされている。今後の活用を期待したい。

4-2. 研究成果の科学技術や社会へのインパクト、戦略目標への貢献

高い機能を発揮する“ナノ界面”(酸化物ヘテロ界面、電気二重層界面)の形成技術が確立したことは、新現象の探索など科学的に極めて大きなインパクトがある。この成果のインパクトの高さは、論文の引用状況からも裏付けられる。本研究の中心的成果である量子ホール効果や超伝導現象などの舞台となっているのは、紛れもなく「ナノ界面」である。本 CREST の限られた期間内ではその構造の詳細を解明するには十分な時間がなかったと思われるが、現象発見によってナノ界面研究の分野を大きく広げた功績は大きい。今後、これらのナノ界面の詳細が解明されていくことを期待する。

一方、ZnO 系の薄膜研究は、これまで長期間にわたって取り組んできており、試料の品質も行き着くところまで行ったのではないと思われる。これから先、どこにこの物質の新規な活路を求めるのか、これから真価が問われるフェーズに入るとと思われる。

また、産業応用を睨んだ技術的インパクトについては、科学的インパクトに比べるとまだ小さいが、将来に亘るその可能性は十分にあり、本 CREST 研究を起源とする新デバイスの出現を期待したい。

これらの成果は、異分野でそれぞれ力量のある研究者の相補的組合せ(川崎グループ+岩佐グループ)が相乗効果を生み出した好例であり、時機を得た研究連携が大きな成果に繋がることを証明している。また研究活動の把握や展開、特に困難な壁に直面した時に見せる果敢な判断力などから、研究代表者が高いリーダーシップを持っているものと評価できる。この体制の下、期間中に 15 名もの共同研究者の昇進があり、研究代表者のリーダーシップにより積極的な人材育成が行われたことが伺える。

4-3. 総合的評価

本 CREST チームからは、世界初となる金属酸化物界面での整数・分数量子ホール効果や酸化物・有機物界面における電界誘起超伝導現象などを始めとする量質ともに豊富な研究成果が世に送り出された。これらは川崎グループがもつ薄膜成長技術の卓越さと有機 TFT や超伝導などで蓄積した岩佐グループがもつ EDLT 手法が連携したことで実現したものであり、本 CREST ならではの成果である。インパクトと発展性の観点から極めて高く評価される。また、5 年間という限られた期間内に多くの若手人材が育ったことも特筆に値する。これらの結果は、分野を越えた共同研究は大きな成果に繋がり、またそのような研究環境からは優秀な人材が巣立つことを如実に物語っている。今後、本 CREST の成果が実用展開に繋がることを期待するとともに、金属酸化物に関する研究分野を牽引する存在となって今後も活躍が続くことを期待する。