

# 研 究 報 告 書

## 「高移動度二次元酸化物構造による非散逸電流デバイスの創成」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2015 年 10 月～2019 年 3 月

研 究 者: 高橋 圭

### 1. 研究のねらい

電子デバイスにおいて非散逸電子流の応用は、世界が目指すべき持続可能社会にむけた課題であり物性物理学の主題でもある。強磁性トポロジカル絶縁体において最近実証された量子異常ホール効果の自発磁化により量子化する端電流状態が、エネルギーを消費しない非散逸流として応用できると注目した。量子異常ホール効果では、強磁性の磁壁に沿ってスピン偏極したカイラルエッジ流が生じている。この磁壁を外場で制御できれば非散逸電流で組まれた論理回路の量子化された情報(電力を消費せずに取り出せる)を磁区のコントロールによって制御することができ、非散逸電流を使ったデバイスの可能性が広がる。

最近、研究者は二次元領域だけ電子ドーピングしたデルタドーピング  $\text{SrTiO}_3$  の二次元電子で電子相関の強い d 電子で初めて量子ホール効果を実現した。本研究では、量子異常ホール効果を、強磁性トポロジカル絶縁体の表面状態ではなく  $\text{SrTiO}_3$  の二次元電子を強磁性化することを目指す。磁性層を La ドーピング  $\text{SrTiO}_3$  層に積層し近接効果により二次元電子を強磁性化し量子化異常ホール効果を実現させる。磁性層には  $\text{SrTiO}_3$  と同じ結晶構造で格子定数も一致している反強磁性体  $\text{EuTiO}_3$  をドーピングにより強磁性化し用いることを計画している。多彩な物性を示す遷移金属酸化物を用いた非散逸量子伝導現象の実現は分野を大きく発展させると期待する。

量子異常ホール効果では、端電流が強磁性の磁区境界の磁壁に沿って流れるため強磁性ドメインのパターンによって量子化抵抗がデジタルに変化する。したがって、磁区パターン制御による量子抵抗変化を利用した非散逸電流メモリーデバイス応用が可能になる。まず、外部磁場掃引によって自発的に発生する磁区パターンを観察し磁壁と量子化抵抗の関係を解明し、量子化異常ホール効果の端電流によるメモリーデバイスの読み込みの研究を行う。このメモリーデバイスの書き込みは磁性層  $\text{EuTiO}_3$  の磁区の制御、磁壁の駆動によって実現する。本研究では、 $\text{SrTiO}_3$  の二次元電子上の  $\text{EuTiO}_3$  の磁壁の特性を理解することで磁壁駆動による書き込み制御の可能性も調べる。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

酸化物薄膜構造により強磁性二次元電子を作製し、量子異常ホール効果を実現し将来の非散逸量子デバイスに道筋を与えることを目標に研究を進めた。反強磁性体  $\text{EuTiO}_3$  に La を置換して電子ドーピングした薄膜を、研究者が開発したガスソース MBE によって高品質化・高移動度化することを軸に酸化物磁性半導体の量子伝導の可能性を模索した。

研究の初期段階において、この系の異常ホール効果を詳細に調べた(テーマ A)。格子定数の小さな LSAT 基板上に圧縮歪み薄膜の異常ホール効果において、磁化過程で磁化曲線から大きくずれる成分が発現した。これは、圧縮歪みによって結晶場分裂した 2 種類のバンドが交

差するワイル・ノードとフェルミエネルギーの位置関係が磁化過程において変化し、それに伴って異常ホール効果の値と符号が変化するためであることを理論的に説明した。この成果はこれまで観測できなかった新しい異常ホール効果であり論文（主な研究成果リスト5）で発表した。この異常ホール効果の値自体は小さく量子化は困難であると分かった。そこで、量子異常ホール効果実現の目標から、強磁性電子の磁場中での量子ホール効果の観察を実現し、新しい量子伝導現象を将来の非散逸量子デバイスに繋げることに目標を変えた。

量子伝導観察に向けて、SrTiO<sub>3</sub> 基板上に高温で歪みのない薄膜を成長しさらなる高移動度化に成功した（テーマ B）。最高移動度は 3200 cm<sup>2</sup>V<sup>-1</sup>s<sup>-1</sup> に到達し、強磁性状態で磁気抵抗が振動するシュブニコフド・ハース (SdH) 振動の観察に成功した。バンド計算から伝導電子はスピンのみが完全に偏極していることが示唆され、SdH 振動の角度依存性からスピン偏極した 3 つの異なるバンドのうちの 2 つのバンドが振動に寄与していることが分かった。この成果は、磁性半導体を高移動度化し量子伝導を観測した初めての結果で、今後、スピン偏極二次元電子の量子ホール効果という新たな現象の実現と強相関電子の量子伝導研究への展開が期待される。

## (2) 詳細

### 研究テーマ A「磁性半導体 La ドープ EuTiO<sub>3</sub> の異常ホール効果」(主な研究成果リスト 5)

本研究の当初の目的である「量子異常ホール効果」を磁性酸化物で実現するために、反強磁性体 EuTiO<sub>3</sub> に注目した。まず、EuTiO<sub>3</sub> 薄膜を格子定数の小さな LSAT 基板上に薄膜を合成した。ガスソース分子線エピタキシーによる成長によって、過去のパルスレーザー堆積 (PLD) 薄膜に比べて移動度が一桁高い薄膜の成長に成功した (図 2)。予想以上に La ドープ EuTiO<sub>3</sub> 薄膜自体の特性が良いことが分かったため、当初の計画の SrTiO<sub>3</sub> と EuTiO<sub>3</sub> の接合によるスピン偏極伝導電子を作る研究から、La ドープ EuTiO<sub>3</sub> 薄膜の異常ホール効果を調べて二次元化に進む計画に方針を変更した。

得られた EuTiO<sub>3</sub> 薄膜の異常ホール効果の磁場依存性を測定したところ、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。図 1E に、実験結果を示す。Eu の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、通常の磁性体の異常ホール効果は右軸で示した磁化 (青線) に比例するのに対して、異常ホール効果 (赤線) が、水色で示したように磁化曲線から大きくずれる成分が発現している。この磁化に比例しない成分の起源を理論的に調べた。圧縮歪みによって結晶場分裂した 2 種類のバンドのそれぞれにおいて、ゼロ磁場での反強磁性状態では上向きスピンと下向きスピンの分散関係は重なっている (図 3A)。磁場を加えると、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、磁化が飽和する 3 T 以上では変化がなくなる。この磁化過程でのゼーマン分裂の変化により「ワイル・ノード」と呼ばれるバンド交差点が 8 個生じる。このワイル・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の値と符号が変化するため、図 3E のように B、C の状態では異常ホール効果は負の値をとるが、そのワイル・ノードの位置がフェルミエネルギーより低くなる D では正の値をとる。そのためこのフェルミエネルギーでは、異常ホール効果が、加えた磁場に対して非単調な図 1E の実験結果を再現する曲線になる。つまり、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化して、電子の軌道を変調したといえる。

また、移動度が小さく電子が外因的な散乱を受けやすいと測定にかからなくなることも示され、この異常ホール効果は、今回得られた移動度の高い薄膜で初めて明らかになった現象である。このように興味深い成果が得られたが、EuTiO<sub>3</sub> 系の異常ホール効果の絶対値が小さく、本来の目的であった量子異常ホール効果の実現は困難であることも分かった。

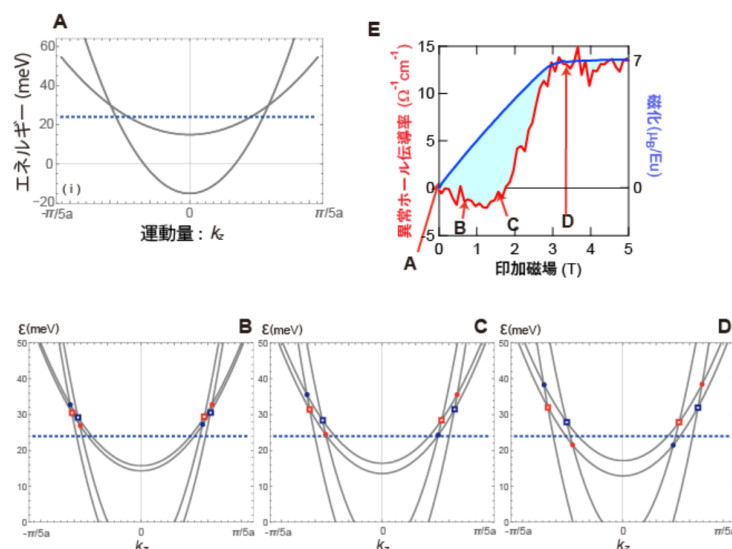


図1: 典型的な異常ホール効果の振る舞い(E) とバンド構造の関係。  
A~D は磁化過程におけるバンド構造の変化。結晶場分裂した2種類のバンド(A)は、磁化の増加によってそれぞれがゼーマン分裂してB, C, Dと上下に徐々に分裂し、ワイル・ノード(バンド交差点)を形成する。その際に発生する異常ホール効果を計算すると、異常ホール効果の磁場依存性が算出でき、Eの実験結果の変化と良く一致する。

#### 研究テーマB「強磁性電子による量子ホール効果を目指した研究」

量子異常ホール効果を実現し、その非散逸端電流を研究するという当初の目的は研究テーマAにより困難であるということが分かったので、スピン偏極した電子による新しい量子ホール効果の実現に目標を変更した。テーマAの格子定数の小さなLSAT基板上的圧縮歪み薄膜の最高移動度  $300 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  よりさらに移動度を向上させ、量子伝導が観察可能な  $1000 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  以上にしてスピン偏極した電子による量子ホール効果の観察を目指した。

SrTiO<sub>3</sub> 基板上的 SrTiO<sub>3</sub>/La-EuTiO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 構造を高温成長で作製することによって、移動度が約  $3000 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$  を越える試料が得られるようになった。EuTiO<sub>3</sub> と SrTiO<sub>3</sub> の格子定数が同じであり格子ミスマッチがなく、SrTiO<sub>3</sub> のキャップ層によりEuTiO<sub>3</sub> のペロブスカイト構造を安定化させたことが高温成長を可能にした1つの理由である。上下にペロブスカイト構造の SrTiO<sub>3</sub> があることで EuTiO<sub>3</sub> 構造が安定化するため、成長中に形成される酸素欠損を埋めるポストアニール時に異相の析出もなくなった。図2に2Kでの移動度のキャリア密度依存性を示した。PLD薄膜に比べて2桁も移動度が向上したのが分かる。この高移動度薄膜の磁気抵抗曲線を図に示した。反強磁性から強磁性にスピンのそろい過程では負の磁気抵抗、強磁性状態では通常のローレンツ力による正の磁気抵抗に加えて明瞭に振動が発現することが分かった。

この振動している電子がスピン偏極しているのかどうかを確かめるためにバンド計算を行った。その結果、完全にスピン偏極した3つのバンドに電子が入っているという結果を得た。図4に示したように印加磁場の角度を変化させてSdH振動の周波数からバンドのフェルミ面の形を調べたところ、2つのバンドの寄与から振動していることが分かった。さらに、その2つの周波数の角度依存性はバンド計算から予想される依存性とよく一致しており、確かにこの量子伝導電子はスピン偏極した電子であることが分かった。この成果は、磁性半導体を高移動度化し量子伝導を観測した初めての結果で、今後、二次元化し量子ホール効果を実現すれば、スピン偏極二次元電子の量子ホール効果という新たな現象の発見と強相関電子の量子伝導研究への展開が期待される。

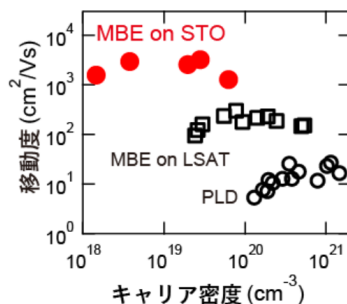


図2: Laドーパ EuTiO<sub>3</sub> 薄膜の移動度。過去の PLD 薄膜に比べて2桁も移動度が向上した。

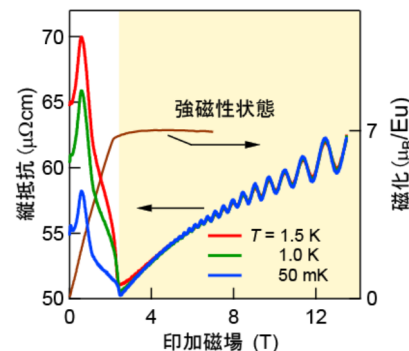


図3: 高移動度 EuTiO<sub>3</sub> 薄膜の磁気抵抗曲線。5 T 以上で量子振動が明瞭に見える。

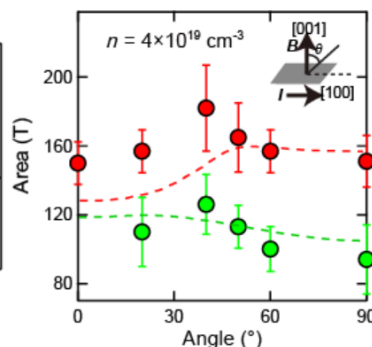
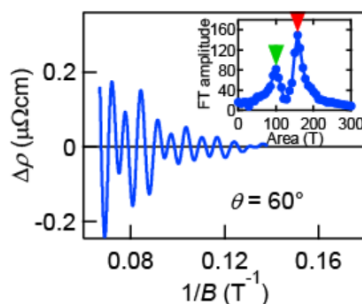


図4: (左) 印加磁場を面直から60度傾けた時の SdH 振動。2つの周波数の振動が干渉しているのが分かる。(右) 振動の周波数の角度依存性。点線がバンド計算の2つのバンドの曲線。

### 3. 今後の展開

当初目的の量子異常ホール効果の実現と非散逸流のデバイス検証は達成出来なかったものの、ガスソース MBE 酸化物薄膜のポテンシャルを生かした EuTiO<sub>3</sub> 薄膜の高品質化により、これまで例のなかった磁性半導体に関する多くの成果が得られた。特に、スピン偏極電子による磁気抵抗量子振動の実現はスピンエレクトロニクス分野へのインパクトも大きく、二次元化による量子ホール効果の実現が期待される。スピン偏極した電子から得られる分数量子ホール効果では新しい準粒子を作りだせる可能性も示唆されている。

この成果には、スピン偏極した電子相関の強い電子系物質の高品質薄膜化が重要な役割



を果たした。今後、EuTiO<sub>3</sub> や SrTiO<sub>3</sub> のチタン酸化物だけでなく、他の遷移金属酸化物の成長にこのガスソースMBE を応用する。これまで不純物や欠陥準位によって伝導が取り出せないトポロジカル電子状態、新量子物性をこの薄膜技術によって解決し、強相関電子の量子伝導研究を大きく進展させる。次世代を担う新量子材料合成の基盤技術になると期待する。

#### 4. 自己評価

当初の目的の、酸化物二次元構造による量子異常ホール効果で非散逸流デバイスの研究を進めることはできなかった。しかし、その過程で、EuTiO<sub>3</sub> を高移動度磁性半導体としてのポテンシャルを飛躍的に向上させ、量子伝導まで明瞭に観察した成果は、多くの注目を集める成果であると考ええる。その点で、研究期間の前半で、異常ホール効果の量子化に固執することなく、EuTiO<sub>3</sub> の高移動度化に注力し新たな伝導現象を発見したことは結果的には良かったと考える。研究費について、納期の関係で初年度には間に合わなかったものの、2年目に全予算の9割をかけてガスソース分子線エピタキシー装置を購入した。今後の研究に大いに役立つ装置を立ち上げることが出来た。

これらの研究成果は、ここ数年で盛んになっているトポロジカル絶縁体やトポロジカル物質の量子物性研究を電子相関の強い酸化物で始めた研究成果と位置付けられる。トポロジカル量子技術は文科省の平成30年度の戦略目標に選定されており、今後飛躍的に発展していく科学技術であると予想される。次世代電子技術の主流がこのような量子技術になり、高度化した快適な社会を支えると期待すると、本研究成果は基盤技術として価値が高いものになるだろう。

#### 5. 主な研究成果リスト

##### (1) 論文(原著論文)発表

1. M. Mogi, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. Yasuda, Y. Kozuka, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, and Y. Tokura, “Magnetic modulation doping in topological insulators toward higher-temperature quantum anomalous Hall effect”, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 182401 (2015).
2. Y. Matsubara, K. S. Takahashi, M. S. Bahramy, Y. Kozuka, D. Maryenko, J. Falson, A. Tsukazaki, Y. Tokura, and M. Kawasaki, “Observation of the quantum Hall effect in  $\sigma$ -doped SrTiO<sub>3</sub>”, *Nature Communications* **7**, 11631 (2016).
3. K. S. Takahashi, Y. Matsubara, M. S. Bahramy, N. Ogawa, D. Hashizume, Y. Tokura, and M. Kawasaki, “Polar metal phase stabilized in strained La-doped BaTiO<sub>3</sub> films” *Scientific Report* **7**, 4631 (2017).
4. K. Yasuda, M. Mogi, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, F. Kagawa, and Y. Tokura, “Quantized chiral edge conduction on domain walls of a magnetic topological insulator” *Science* **358**, 1311 (2017).
5. K. S. Takahashi, H. Ishizuka, T. Murata, Q. Y. Wang, Y. Tokura, N. Nagaosa, M. Kawasaki, “Anomalous Hall effect derived from multiple Weyl nodes in high-mobility EuTiO<sub>3</sub> films ” *Science Advances* **4**, eaar7880 (2018).

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

学会発表

1. 第 63 回応用物理学会春季学術講演会シンポジウム(招待講演), 2016 年 3 月 20 日, 東工大岡山キャンパス「ガスソース MBE 高品質酸化物薄膜で拓く酸化物エレクトロニクス」
2. 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会(一般講演), 2017.9.5, 福岡国際会議場, 「LSAT 基板上圧縮歪み  $\text{Eu}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$  薄膜の磁気輸送特性」
3. 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会(一般講演), 2017.9.5, 福岡国際会議場, 「 $\text{EuTiO}_3$  の量子井戸構造による高移動度化と磁気輸送特性」
4. APS March Meeting 2018 (Contributed talk), 2018.3.5, Los Angeles, California, U.S.A. “Anomalous Hall effect in high mobility La doped  $\text{EuTiO}_3$  films on LSAT substrates grown by gas source molecular beam epitaxy”
5. 25<sup>th</sup> International workshop on oxide electronics (Contributed talk), 2018.10.3, Les Diablerets, Switzerland “Quantum transport in the films of a magnetic semiconductor  $\text{EuTiO}_3$ ”

プレスリリース

1. 「遷移金属酸化物で量子ホール効果を実現ー強い電子同士の反発力を用いた量子デバイスへ道ー」(2016 年 5 月 27 日) [http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160527\\_2/](http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160527_2/)
2. 「磁性半導体の磁気単極子による電子の伝導制御ー新たなスピントロニクス機能に道筋ー」(2018 年 7 月 21 日) [http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160527\\_2/](http://www.riken.jp/pr/press/2016/20160527_2/)