

博士論文（要約）

Controlling ferroic orders and properties in oxide
hetero interfaces by electric double layer gating

（電気二重層ゲートによる酸化物ヘテロ界面の強秩序と物性制御）

西野 隆太郎

背景と目的

イオン液体などの電界質をゲート絶縁部に採用した電気二重層トランジスタは、電界質/チャンネル界面に形成される電気二重層が従来の固体ゲート方式に比べて数十倍の電荷密度を誘起することから、遷移金属酸化物の物性制御の手法として適用されてきた。しかしながらその報告のほとんどは単体材料の物性制御であり、2つの異種材料で構成されたヘテロ界面に誘起される物性を電気二重層で制御した例は限られている。酸化物ヘテロ界面では、単体材料には見られない界面特有の現象に由来した物性が報告されており、電界効果によるこれら界面物性の制御が期待されている。本博士論文では(1)強誘電体/金属酸化物と(2)常磁性半金属/反強磁性絶縁体の2つのヘテロ構造を対象に、それぞれの系に誘起される強誘電性及び界面強磁性の電界制御の実現とその起源の解明を目指した。(1)に関しては、強誘電体 PbTiO_3 と金属酸化物 SrRuO_3 を対象に、界面のスクリーニング長に起因した脱分極場が、強誘電性をどのように抑制するかを調べた。(2)に関しては、常磁性半金属 CaIrO_3 と反強磁性絶縁体 CaMnO_3 のヘテロ界面を対象に、界面強磁性に由来した異常ホール効果の電場制御性を調べることで、その起源の解明を目指した。

I. 電気二重層による強誘電体/金属酸化物の分極反転と分極値測定

パルスレーザー堆積法により強誘電体 PbTiO_3 と金属酸化物 SrRuO_3 のヘテロ構造を作製し、 PbTiO_3 薄膜の残留分極値の膜厚依存性から脱分極場が強誘電性に及ぼす影響の解明を目指した。イオン液体/強誘電体界面に形成される電気二重層を利用して強誘電体の分極反転を実現すると共に、その残留分極値を定量的に評価する手法を開発した。イオン液体の高い絶縁性が分極値測定の阻害となるリーク電流を抑制することで、最小で膜厚2.6nmまでの PbTiO_3 薄膜の残留分極値を電氣的に評価することに初めて成功した。また、得られた分極値の膜厚依存性とランダウモデルを用いた計算値を比較することで、ランダウモデルでは強誘電性の消失が予想される膜厚領域であっても、強誘電性が維持されることを見出した。

II. $\text{CaIrO}_3/\text{CaMnO}_3$ ヘテロ界面における界面強磁性と異常ホール効果

巨視的な磁化をもたない常磁性金属 CaIrO_3 と反強磁性絶縁体 CaMnO_3 のヘテロ界面において界面強磁性に由来した異常ホール効果が生じることを見出した。界面におけるSTEM-EELS測定からIrサイトからMnサイトへと電荷移動が生じ、Mnサイトが二重交換相互作用を獲得することで磁性が誘起されていることを見出した。また、異常ホール効果の大きさが CaIrO_3 層のキャリア密度変化（フェルミ準位の変化）に敏感であることから、ヘテロ界面における異常ホール効果は、 CaIrO_3 が持つトポロジカル半金属としての線形分散なバンド構造に起因した内因性異常ホール効果である可能性が高いことを明らかにした。

III. 電気二重層による $\text{CaIrO}_3/\text{CaMnO}_3$ ヘテロ界面の異常ホール効果の電界制御

電気二重層トランジスタ構造を用いて、 $\text{CaIrO}_3/\text{CaMnO}_3$ ヘテロ界面に見られる異常ホール効果の電界制御性を調べた。電界効果により CaIrO_3 のフェルミ準位をバンド交差点に近づけることで異常ホール伝導度が増大する傾向を明らかにした。観測された異常ホール伝導度の増大はフェルミ準位が CaIrO_3 のバンド交差点に近づくことでベリー曲率が増大したことに起因していると考えられ、II.の結果と合わせてヘテロ界面における異常ホール効果が CaIrO_3 層のバンド構造を強く反映した内因性効果であることが強く示唆された。

結論

電気二重層ゲートを用いた電界制御手法を用いて、酸化物ヘテロ界面における(1)脱分極場による強誘電性への影響及び(2)電荷移動に起因した界面強磁性と異常ホール効果の起源を解明することに成功した。(1)に関しては、電気二重層による強誘電体の分極反転・測定を実現し、膜厚低下に伴う強誘電性の変化を実験的に明らかにした。(2)に関しては、 $\text{CaIrO}_3/\text{CaMnO}_3$ ヘテロ界面において界面の電荷移動によって界面強磁性が誘起され異常ホール効果が発現することを見出し、その電場制御性から異常ホール効果の起源を明らかにした。今回得られた成果は、酸化物ヘテロ界面系での新規物性探索やその起源の解明に電気二重層ゲートを用いた電界制御が有用であることを示しており、今後様々な系に対する本手法の適用が期待される。