

論文内容の要旨

論文題目 Electrostatic Carrier Density Control in SrTiO₃

(チタン酸ストロンチウムの静電キャリア濃度制御)

氏名 中村 浩之

1. 序

近年、高温超伝導や巨大磁気抵抗などの物性を発現する遷移金属酸化物のキャリア濃度を、外部電界によって制御する試みが注目されている。この手法は、キャリア濃度を制御する方法として一般的な化学ドーピング（元素置換）と異なり、格子に乱れを導入せず、さらには可逆的・連続的な制御が可能であると期待されているため、キャリア濃度を変数とした相転移を研究する手段として非常に興味深い。

本研究では、酸化物をチャネルとする電界効果トランジスタ(FET)を作製し、電界を用いて酸化物のキャリア濃度を制御する手法を構築した。酸化物材料には代表的なペロブスカイト型酸化物である SrTiO₃を用いた。SrTiO₃は 3.2 eV のバンドギャップを有する絶縁体であるが、元素置換によってキャリアを導入すると比較的低いキャリア濃度($\sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$)で金属に転移し、さらに、 10^{19} cm^{-3} という非常に低いキャリア濃度で超伝導を発現することが知られている。これらのキャリア濃度は、電界効果で十分到達できる範囲にあるため、電界誘起の金属絶縁体転移、あるいは超伝導転移を観測できる可能性がある。

これまで、SrTiO₃をチャネルとする FET は何例か報告があるが、低温でキャリア注入が困

難になることが最大の課題であった。絶縁膜/SrTiO₃界面のトラップ準位や、ソース・ドレイン電極/SrTiO₃界面の障壁が原因として考えられるため、この2つの界面を最適化することが重要である。我々は、ゲート絶縁膜に有機高分子を用いた新しいタイプのFETを作製し、作製条件の改良を重ねた結果、最低温までキャリア濃度を制御できる酸化物FETの作製に成功した。

2. デバイス作製

素子は研磨およびエッチング処理を施した市販のSrTiO₃(100)単結晶基板上に作成した(図1)。ゲート絶縁膜には有機高分子であるパリレン($\epsilon_r=3.15$)を用いた。パリレンを選択したのは、製膜の間基盤を室温に保持できること、製膜にプラズマ等の高エネルギー粒子を必要としないこと等の理由から、SrTiO₃の表面が良好な状態に保たれることを期待したためである。電極のアルミニウム、およびゲート金電極は通常の真空蒸着で作製した。

FETのチャネルには電極を通してキャリアが供給されるため、電極のアルミニウムの酸化を防ぐことが重要である。特に、パリレン蒸着時の真空中度が素子の特性に大きな影響を与える。図2(a)にはパリレン蒸着前の真空中度が10⁻³Pa程度のときの電流電圧特性(I_D-V_D)を示してあるが、ゲートに160Vという大きな電圧を加えてキャリアを誘起しているにもかかわらず、低温では電流が減衰している。一方、図2(b)はより高い真空中度でパリレンを作製した素子の結果であり、低温でも十分キャリアを注入できていることが分かる。また、図2(c)は、低温で電流電圧特性が非線形になることを示しているが、これは図2(c)のように、ドレイン電流(I_D)を、ソース・ドレイン間に配置した電圧端子間の電圧(V_{12})に対してプロットすると消滅する。これは、低温における電流電圧特性の非線形性がAl/SrTiO₃界面に生じた障壁に由来することを示している。すなわち、特に低温では、Al/SrTiO₃界面の障壁を小さくすることが効率的なキャリア注入のために必要である。

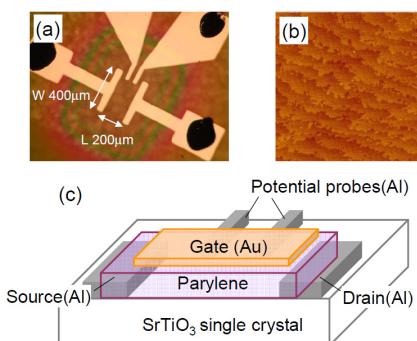


図1 素子の構造。(a)パリレン蒸着直後の素子の写真。(b)素子製作前のSrTiO₃表面のAFM像(2μm×2μm)(c)完成した素子の構造。

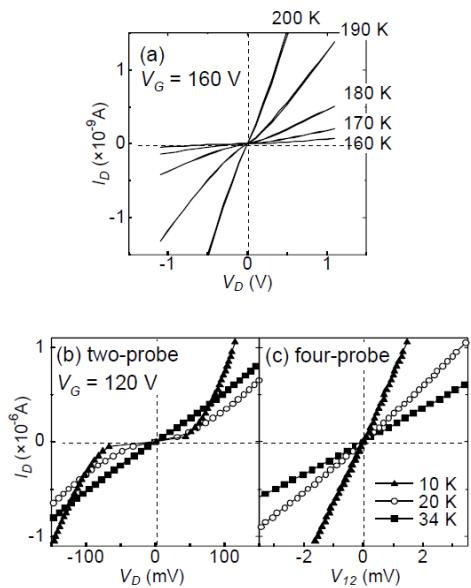


図2 (a) パリレン蒸着を低真空中度(10⁻³–10⁻²Pa)で行ったときの電流電圧(I_D - V_G)特性(b) パリレン蒸着を高真空中度(10⁻⁴Pa)で行ったときの電流電圧特性(c) (b)の測定を電圧端子間の電位差 $V_{12}=V_1-V_2$ に対してプロットしたもの。

3. 電界誘起の金属状態

SrTiO_3 -FET の低温における電界効果特性の詳細を説明する。図 3 は SrTiO_3 チャネルの面抵抗をゲート電圧に対してプロットしたものである。ゲートの漏れ電流はドレイン電流よりもはるかに小さいため無視できる。下のスケールの $n_{\square\text{eff}}$ は自由なキャリアの面密度であり、ゲートの閾電圧を V_{Gth} として $n_{\square\text{eff}} = C_i(V_G - V_{\text{Gth}})$ から算出した。ここで、 C_i は絶縁膜の面あたりの容量である。キャリア密度の増加と共に、面抵抗が 60Ω から 10Ω のオーダーまで劇的に減少していることが分かる。

図 3において興味深い点が 2 点挙げられる。一つは、量子抵抗 $h/e^2 = 25.8 \text{ k}\Omega$ よりも小さな面抵抗値が実現していることである。Drude モデルを仮定した簡単な議論では、 h/e^2 は 2 次元電子系において金属と絶縁体を分ける目安となる値であり、高ゲート電圧側でチャネルが金属的である可能性がある。もう一つは、120 V 付近で $R-V_G$ 曲線に「折れ曲がり」が見られることである。この点ではチャネルの状態に何らかの質的な変化が起こっていると考えられる。ここでは詳述しないが、パーコレーション的な転移を示唆する結果を得ており、それを反映している可能性がある。

次に、チャネルに誘起された電子の移動度を電界効果より見積もった。電界効果移動度は $R-V_G$ の測定から以下のような式を用いて求めた。

$$\mu_{FE} = \frac{1}{q} \frac{\partial(1/R_{\square})}{\partial n_{\square}} = \frac{1}{C_I} \frac{\partial(1/R_{\square})}{\partial V_G}$$

この式から計算した移動度を図 3 の下に示す。移動度は $1000-2000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ に達し、これはこれまでに報告されている SrTiO_3 -FET のなかで最も高い値である。また、図 4 には、8 つの異なるゲート電圧下での面抵抗の温度依存性を示す。図から明らかのように、金属的な温度依存性がこの測定の最低温度である 8 K まで観測された。

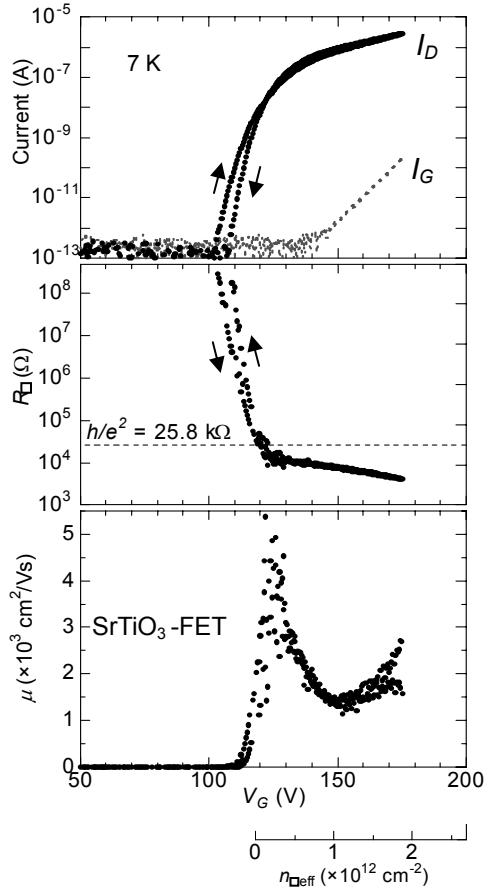


図 3 ドレイン電流 I_D 、漏れ電流 I_G 、面抵抗 R_{\square} 、移動度 μ のゲート電圧依存性。

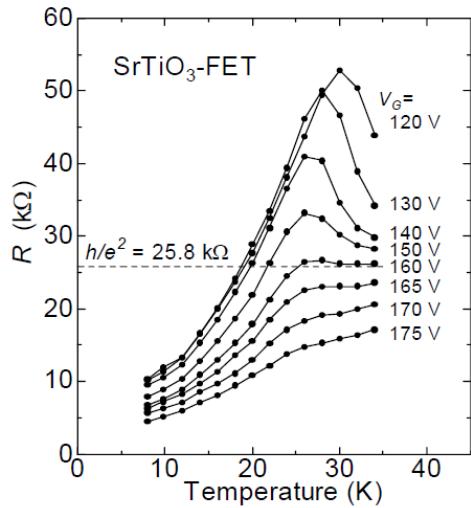


図 4 面抵抗の温度依存性。

4. 磁場効果

上述のように、 SrTiO_3 の表面を電界によって金属化することに成功した。Si や GaAs など通常の半導体においては、FET の伝導層の厚みは数 nm であり、2 次元電子系が形成されることが知られている。一方、 SrTiO_3 の場合はこの伝導層の厚みを決めるパラメータの一つである誘電率の値が非常に大きいため、電子が試料の深くまで分布している可能性がある。そこで、誘起された電子層

の深さ方向を見積もる目的で、 SrTiO_3 の表面に対して垂直と平行の 2 通りの磁場を印加し、磁気抵抗を測定した（図 5）。図より、面に垂直に磁場を印加すると大きな正の磁気抵抗が観測されるが、面に平行な磁場を印加すると磁気抵抗は非常に小さくなることが分かる。いずれの場合も電流の方向には垂直であるため、磁気抵抗は電子のサイクロトロン運動に由来する。磁場方向による異方性の原因としては、チャネルの深さがサイクロトロン半径 ($r_c = mv/eB \sim 10\text{nm}$) よりも小さいため、面内磁場では磁気抵抗の効果が小さいと考えることができる。すなわち、 SrTiO_3 -FET においても、Si 等と同じように 2 次元電子系が形成されている可能性がある。

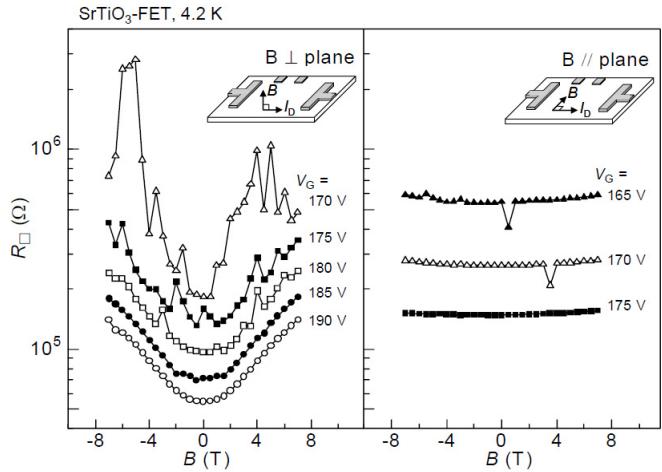


図 5 SrTiO_3 表面に垂直（左）および平行（右）な磁場下での磁気抵抗。いずれの場合も磁場は電流と垂直である。

5. まとめ

有機高分子のゲート絶縁膜からなる FET 構造を用いて、 SrTiO_3 のキャリア濃度を電場で制御した。低温でゲートに十分な電界を加えることで、 SrTiO_3 表面に $1000\text{ cm}^2/\text{Vs}$ 以上の非常に高い移動度を有する金属状態を誘起することに成功した。また、 SrTiO_3 チャネルの磁気抵抗は磁場の方向に対して異方的であり、2 次元的な電子層の形成が示唆される。

本研究の意義の一つは、「電界を用いたキャリア濃度制御」という手法で酸化物の金属絶縁体転移が観測できることを実証した点である。さらに、 SrTiO_3 -FET は電場でキャリア濃度が制御できる 2 次元電子系の、新たな例ともいえる。ドープされた SrTiO_3 は基底状態が超伝導である点で Si や GaAs 等、普通の半導体とは異なっており、例えば、2 次元電子系に固有の量子ホール効果が超伝導とどう共存、あるいは競合するか、といった物理的に非常に興味深い問題を探求しうる系である。