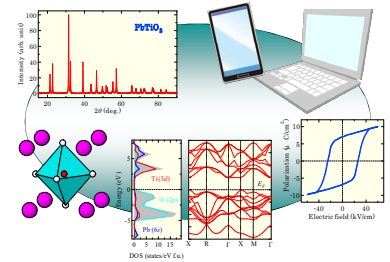


新しい機能デバイスのための酸化物材料研究

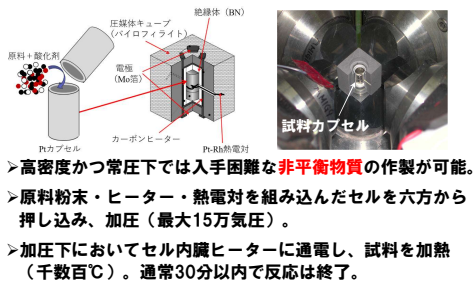
現在のIT社会は多くの電子デバイスの発展の上に成り立っています。その主役はシリコンを中心とする半導体なのですが、高速化・大容量化に伴い、半導体では実現できない様々な機能が要求されるようになってきています。そうした中で我々が注目しているのは、「機能性酸化物」です。無機酸化物は、半導体にはない多彩な物性(誘電性、磁性、光学特性、電気化学性、電気伝導性、等々)を示し、多くの新しい機能を実現する材料として期待されています。ナノスケールレベルで構造制御された物質の設計・合成・評価を通して、多彩な「物性」の起源である結晶構造や電子状態を解明し、新たな「機能材料」を探索・開発していくことを目標に研究を進めています。



高酸化条件合成

超高压下やオゾン雰囲気下などの高酸化条件下では、 Fe^{4+} や Ni^{4+} などの通常ではとり得ない高い価数状態をもつ物質の作製が可能になります。

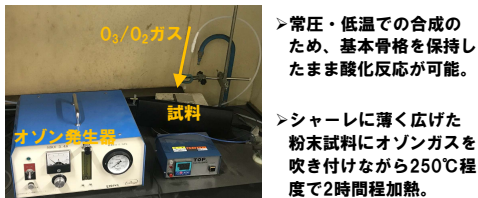
◆ 超高压発生装置 ◆



原料・酸化剤
圧媒体キューブ (ダイヤモンド)
絶縁体 (BN)
電圧 (MeV)
カーボンヒーター
Pt-Rh熱電対
試料カプセル

- 高密度かつ常圧下では入手困難な非平衡物質の作製が可能。
- 原料粉末・ヒーター・熱電対を組み込んだセルを六方から押し込み、加圧(最大15万気圧)。
- 加圧下においてセル内ヒーターに通電し、試料を加熱(千数百℃)。通常30分以内で反応は終了。

◆ オゾン発生装置 ◆

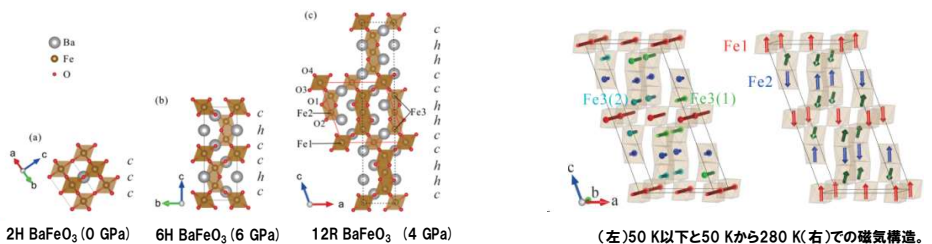


常圧・低温での合成のため、基本骨格を保持したまま酸化反応が可能。

シャーレに薄く広げた粉末試料にオゾンガスを吹き付けながら250℃程度で2時間程加熱。

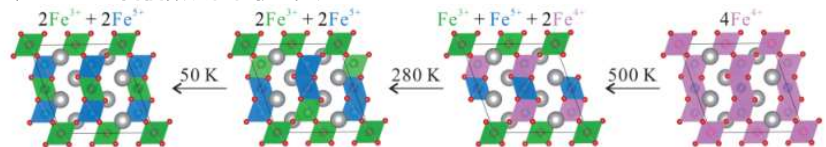
異常高原子価イオンを活かした機能性酸化物の探索

■超高压合成により酸素欠損のない Fe^{4+} を含む12層層状ペロブスカイトの合成に成功



- 合成条件の制御 (4 GPa, 1000 °C) により Fe^{4+} を含む12層層状ペロブスカイトの合成に成功
- 長周期に起因して環境の異なる3種類のFeサイト
- 280 K以下で反強磁性秩序を形成
- 50 Kでスピン再配列転移

■ $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{5+}$ サイト間価数反転転移を発見



- 500 Kで構造相転移を伴い一部のFeサイトが電荷不均化 ($\text{Fe}^{1+} + \text{Fe}^{2+} \rightarrow \text{Fe}^{1.5+} + \text{Fe}^{2.5+}$)
- 280 Kで磁気相転移を伴い残りのFeサイトが電荷不均化 ($2\text{Fe}^{3+} \rightarrow \text{Fe}^{3(1)3+} + \text{Fe}^{3(2)5+}$)
- 50 Kでスピン再配列を伴い、面共有接続を含む $\text{Fe}^{2.5+}$ と $\text{Fe}^{3(1)3+}$ サイト間で電荷移動(価数反転)

Z. Tan *et al.* Physical Review B, 102, 054404, (2020).

ナノ薄膜作製

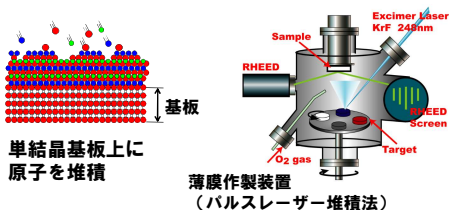
遷移金属酸化物薄膜

酸化物材料の示す多彩な物性は、シリコンを中心とする半導体では実現不可能な将来の新しいエレクトロニクスを生み出すものとして期待されています。

原子配列の制御による新物質

原子レベルで平坦にした基板の上に、望みの原子を一層ずつ積層していくことで、自然界には存在しない人工超構造を作り出し、新しい機能性材料として応用する研究を展開しています。

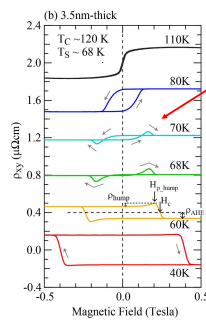
◆ エピタキシャル単結晶薄膜の作製 ◆



Excimer Laser KrF 248nm
Sample
RHEED
KrF 248nm
Target
O₂ gas
基板
単結晶基板上に原子を堆積
薄膜作製装置 (パルスレーザー堆積法)

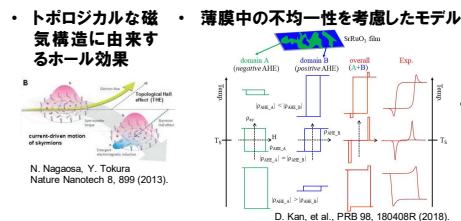
遍歴強磁性体 SrRuO_3 のトポロジカルホール効果的振舞いの別解釈

■ SrRuO_3 薄膜のトポロジカルホール効果的振舞い



ハンブ構造は通常の異常ホール効果では説明できない。その起源は?

トポロジカルな起源? それとも、薄膜の不均一性に由来?



トポロジカルな磁気構造に由来するホール効果

薄膜中の不均一性を考慮したモデル

N. Nagaoa, Y. Tokura Nature Nanotech 8, 899 (2013).

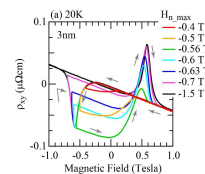
D. Kan, *et al.*, PRB 98, 180408R (2018).

- ペロブスカイト酸化物 SrRuO_3 の磁気輸送特性には、ペリ位相が重要な役割。

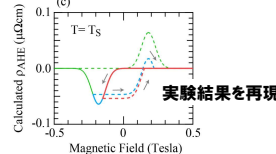
- SrRuO_3 極薄エピタキシャル薄膜の異常ホール効果を想定したところ、通常の異常ホール効果では説明できない振舞い(ハンブ構造)を観測。

- ハンブ構造のマイナーループ測定は、トポロジカルな解釈を用いなくとも、薄膜中の不均一性(正負の異常ホール効果の共存と保持力のばらつき)を考慮することで説明できることがわかった。

■マイナーループ測定



不均一性を考慮したモデルでの計算結果



- マイナーループ測定に加えて、ハンブ構造の磁場掃引速度依存性や電界効果についても調べた。観測された結果は全て、薄膜中の不均一性を考慮したモデルで説明できることがわかった。

D. Kan, K. Kobayashi and Y. Shimakawa Physical Review B101, 144405 (2020).

D. Kan, T. Moriyama, and Y. Shimakawa Physical Review B101, 014448 (2020).

D. Kan, T. Moriyama, K. Kobayashi, and Y. Shimakawa Physical Review B 98, 180408R (2018).