

氏名	打田 正輝
所属機関	東京大学
研究題目	イリジウム酸化物半金属における革新的電子機能の創出

### 1. 研究の目的

トランジスタや発光ダイオードをはじめとする電子・光デバイスは、そのキャリアタイプ（電子・ホール）の違いを利用した半導体薄膜もしくはヘテロ接合構造からなる。半導体中のキャリアタイプは、化学ドーピング等によってあらかじめどちらかに決められている。しかしながら、半金属とよばれる物質は、電子・ホールの両方のキャリアタイプを本質的に持っており、その伝導特性の利用に注目が集まっている。

本研究では、半金属中のキャリアタイプの外場制御を実現するために、典型的なノンシンモルフィック物質である  $\text{IrO}_2$  に加えて、同じくイリジウム酸化物半金属である  $\text{SrIrO}_3$  等に注目する。その基本的な電子構造を明らかにするとともに、様々な外場によりキャリアタイプを制御し、イリジウム酸化物半金属におけるキャリア制御の基礎学理・技術基盤の構築を目指す。これにより、次世代の省エネルギーデバイスに資する新たな機能性材料の開拓に先鞭を付ける。

### 2. 研究の内容(手法、経過、評価など)

固体材料中のキャリアタイプの外場制御については、申請者が考案し、イリジウム酸化物  $\text{IrO}_2$  において成功することでその端緒を切り拓いた(M. Uchida *et al.*, *Physical Review B* **91**, 241119(R) (2015).

Selected for Editors' Suggestion)。申請者は、これまでもイリジウム酸化物薄膜の作製とその機能開拓を行ってきた実績をもつ。例えば、層状イリジウム酸化物  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4 \cdot \text{Ba}_2\text{IrO}_4$  のエピタキシャル薄膜を作製し、その基底状態の性質と金属絶縁体転移の起源を解明した。また、トポロジカル絶縁体の候補物質として注目されるイリジウム酸化物  $\text{SrIrO}_3$  のエピタキシャル薄膜の作製に成功し、その電子バンドが特異なディラック的分散をもつことを明らかにした。本研究についても、キャリアスイッチングを示す新しい半金属材料の開拓については、既に種々のイリジウム酸化物薄膜の作製に着手し、予備データの蓄積を進めてきた。

固体材料中のキャリアタイプの外場制御は、申請者が考案した独自のアイデアであり、イリジウム酸化物  $\text{IrO}_2$  において成功することでその研究の端緒を切り拓いた。現在のところ、同様の観点から研究を進めているグループは世界中他になく、半金属キャリアタイプ制御の知見蓄積に関しては国内外をリードしている。一方、イリジウム酸化物薄膜の電気特性の研究は近年国内外で急速に盛んになりつつあり、半金属だけではなく絶縁体や超伝導体などの様々な電子状態の研究が始まっている(M. Uchida *et al.*, *Physical Review B* **90**, 075142 (2014), J. F. Mitchell, *APL Materials* **3**, 062404 (2015))。これらの例は、強いスピン軌道相互作用をもつイリジウム酸化物が今後幅広い電気・電子技術用途へと利用される可能性を示している。

## 2. 研究の内容(続き)(書ききれない場合には、同一形態のページを追加しても結構です)

半金属のキャリアタイプ制御に着目した研究はいまだ申請者の研究室を中心として進められており、その最大の利点である外場制御の特徴は完全には生かされていない。本研究においては、(1)外場スイッチングを示す半金属の基本的な電子構造を明らかにするとともに、(2)キャリアスイッチングを示す新たなイリジウム酸化物材料の開拓及び様々な外場刺激によるキャリアタイプの制御を行い、イリジウム酸化物半金属におけるキャリア制御の基礎学理・技術基盤の構築を目指した。

### (1) 外場スイッチングを示すイリジウム酸化物半金属の電子構造の解明

イリジウム酸化物に代表される半金属は、新たな量子相や電子機能の観点から、近年理論的に見直されている。特に、ノンシンモルフィックな対称性をもつ半金属は、ブリルアンゾーン中の高対称点におけるバンドの縮退を要請するため、ゾーン境界付近に非常に異方性の強い折り返されたフェルミ面を実現すると期待される。本研究では、既にキャリアタイプの磁場方位制御に成功していた  $\text{IrO}_2$  において、角度分解光電子分光法による半金属電子構造の解明を行った(図 1 参照)。また、同じくイリジウム酸化物である  $\text{SrIrO}_3$  や  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  と電子状態の比較を行い、新たな半金属材料の開拓に向けてキャリアスイッチングを示すための条件の検討を行った。

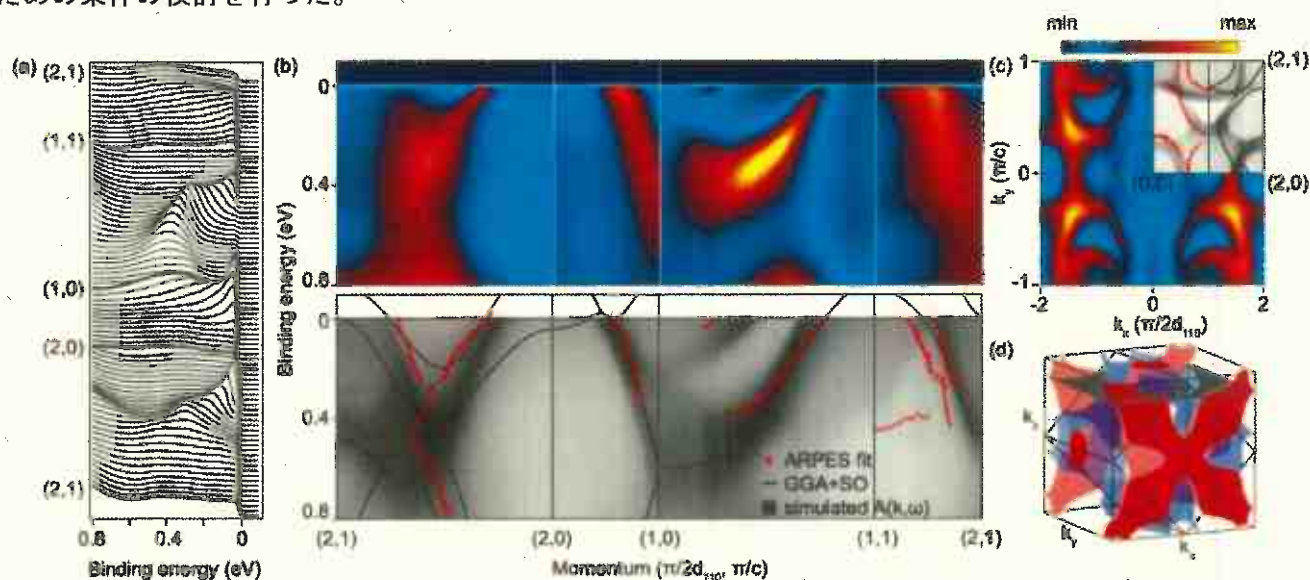


図 1 角度分解光電子分光により明らかになったイリジウム酸化物半金属( $\text{IrO}_2$ )薄膜の電子構造。

イリジウム酸化物に代表される  $5d$  遷移金属酸化物においては、電子相関とスピン軌道相互作用の競合が電子構造の決定に重要である。有効な電子相関の強さが  $\text{IrO}_2 \cdot \text{SrIrO}_3 \cdot \text{Sr}_2\text{IrO}_4$  等の  $\text{IrO}_6$  八面体で構成されるイリジウム酸化物においてどのように変化するのか検討した結果、 $\text{IrO}_6$  八面体同士のネットワークの増加につれて有効な電子相関が減少し、密度汎関数電子状態計算により予測される半金属状態が発現しやすいことを見出した。

### (2) キャリアスイッチングを示す新しい材料の開拓と新しい外部刺激によるキャリアタイプ制御

前段階の電子状態の直接観測により、イリジウム酸化物半金属薄膜  $\text{IrO}_2$  について、既に成功している磁場制御に加えて、圧力という新しい外場によってキャリアタイプのスイッチングが可能であることを示した。また、パルスレーザー堆積法により  $\text{SrIrO}_3 \cdot \text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  等のイリジウム酸化物半金属薄膜試料を作製し、様々な磁場方位下における系統的な電気伝導測定を行った。

### 3. 研究の結論、今後の課題

本研究においては、外場によるキャリアスイッチングを示すイリジウム酸化物半金属の基本的な電子構造を明らかにするとともに、キャリアスイッチングを示す新たなイリジウム酸化物材料の開拓及び様々な外場刺激によるキャリアタイプの制御を行い、イリジウム酸化物半金属におけるキャリア制御の基礎学理・技術基盤の構築を目指した。

既にキャリアタイプの磁場方位制御に成功していた  $\text{IrO}_2$  について角度分解光電子分光法による電子状態の直接観測を行った結果、 $\text{IrO}_6$  八面体同士のネットワークの増加につれて有効な電子相関が減少し、密度汎関数電子状態計算により予測される半金属状態が発現しやすいことを見出した。これらの知見は、今後新たなイリジウム酸化物半金属とその電子機能を設計する上で非常に有益な指針となると考えられる。

また、この直接観測により、イリジウム酸化物半金属薄膜  $\text{IrO}_2$  について、既に成功している磁場制御に加えて、圧力という新しい外場によってキャリアタイプのスイッチングが可能であることを示した。薄膜試料は、適切な基板を選択することで、エピタキシャル応力による巨大な圧力を薄膜に印加することも可能である。今後、引張・圧縮応力を印加可能な基板上に薄膜を成長し、同様の測定を行うことで、半金属キャリアタイプの圧力制御を実証する。

#### 4. 成果の価値(とくに判りやすく書いて下さい)

##### 4. 1. 社会的価値

トランジスタや発光ダイオードをはじめとする、現代社会を支えているあらゆる電子・光デバイスは、そのキャリアタイプの違い(p型、n型)を利用して様々な目的の機能を示す。我々の豊かな生活は、そのキャリアタイプの化学的制御にもとづいた半導体技術がなくては成り立たない。本研究では、この根源的要素であるキャリアタイプを磁場・圧力等の外部刺激により制御することに成功している。その材料開拓と制御技術の構築は、次世代の省エネルギーデバイスの開発に資すると期待される。

##### 4. 2. 学術的価値

本研究の主な学術的成果とその波及効果は、以下の三点にまとめられる。(1)イリジウム酸化物半金属薄膜におけるキャリアタイプの外場制御が体系的に基礎付けられ、キャリアスイッチングを示す新しい半金属材料の設計指針が確立される。(2)キャリアのタイプ(電子・ホール)は、固体材料の伝導・光・量子特性を決定する最も重要なパラメータである。本研究により、外部刺激によるキャリアスイッチングを技術応用した、全く新しい動作原理をもつ電子・光・量子デバイスの研究が進展すると期待される。(3)さらに、外場制御に関する基礎学理と基盤技術の構築を通じて、スピントロニクス等の幅広い分野への半金属材料の応用が実現される。

##### 4. 3. 成果論文(本研究で得られた論文等を年代順に書いて下さい。未発表のものは公表予定を書いて下さい)

"Evolution of electronic correlations across the rutile, perovskite, and Ruddelsden-Popper iridates with octahedral connectivity"

J. K. Kawasaki, M. Uchida, H. Paik, D. G. Schlom, and K. M. Shen

Phys. Rev. B **94**, 121104(R) (2016).