

薄膜の電気抵抗が厚さに依存して周期的に振動する現象を発見

～室温で従来の数万倍の 2.5 ナノメートル周期の大きな変化～

ポイント

- ・“ピヨンド・ナノ”制御の超薄膜の作製に成功。
- ・モット絶縁体とパイエルス転移の協奏による発現メカニズムを提唱。
- ・従来の数千倍の変化を室温・常圧で達成したことによりスケールリングデバイスへの展開に期待。

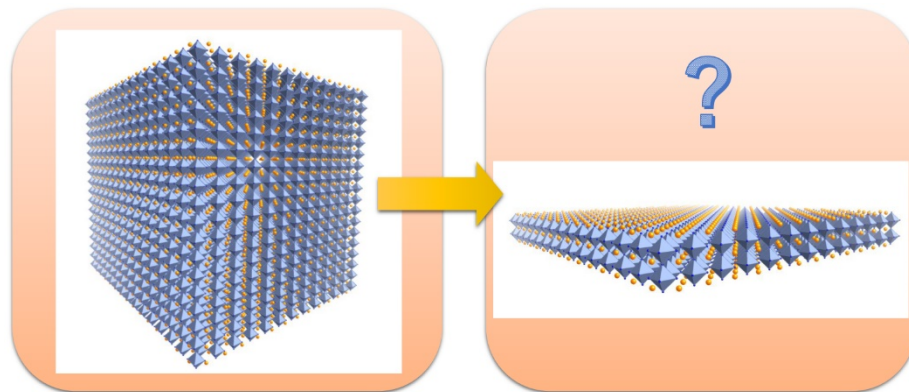
北海道大学大学院工学研究院の迫田将仁助教、丹田 聡教授、同大学大学院理学研究院の延兼啓純助教、同大学触媒科学研究所の下田周平技術職員らのグループは、薄膜の電気抵抗が厚さに依存して周期的に振動する現象を発見しました。従来のサイズ効果^{*1}と比較して桁外れに変化が大きく、室温で数千倍、低温では 10 桁にも迫る巨大な変化を見せます。

私たちの世界の物質は 10 の 23 乗個もの膨大な原子の配列で構成されています。これらを構成する元素によって、物質の性質は大きく変化します。では、その性質は試料の大きさにはよらないのでしょうか？物質を原子数個が入る程に小さくしても、元の性質を保っていられるのでしょうか？このような疑問に対して、これまでビスマス (Bi) を代表とした多くの研究がなされ、サイズに依存して電気抵抗が変動する現象などが発見されてきました。しかし、豊富な性質を示す化合物においては、複数の元素の精密制御が難しいことから未知の領域が多くありました。

私たちは数ナノメートル (1 ナノメートル (nm) = 1mm の百万分の 1) の原子が見えるくらいに薄い試料 (超薄膜^{*2}) を作製しました。分子線エピタキシー法^{*3}を用いて、界面をピコメートル (1 ピコメートル (pm) = 1mm の十億分の 1) のオーダーで制御し表面粗さが 199pm の CaRuO₃ 超薄膜の作製に成功しました。これにより、電気抵抗率が薄膜の厚さに対して、2.5nm の周期で変動する現象を発見しました。最大で、室温と低温でそれぞれ 3 桁と 9 桁以上もの大きな変化をします。従来のサイズ効果では説明できない大きな変化を示し、化合物に特有の電子の状態が寄与していることを示しました。

室温・常圧での実用的な変化率を達成し、今後種々のデバイスへの展開が期待されます。基礎研究への“スケール”の概念の導入により、将来的に新しい機能性材料の設計が期待されます。

なお、本研究成果は、2021 年 11 月 17 日 (水) 公開の Physical Review B 誌に掲載されました。



物質を原子数個分まで薄くすると、その性質はどう変化するのだろうか？

【背景】

物質中で起こる多様な現象は、電子が主役となり引き起こされます。通常の金属中において、電子は3次元方向に自由に動き回れます。しかし、電子の動きが制限された層状化合物と呼ばれる物質中において、高温超伝導、トポロジカルな性質などの特異な現象が多く発見されてきました。このように、電子の動ける方向を制限した物質中において、特異な量子現象が多く発見されてきました。一方で、超薄膜、量子細線、または量子ドットを作製することにより、電子の動きを制限した低次元系を人工的に創成することができます。ただし、複数の元素を正確に制御することは技術的に難しいため、数ある元素で構成される化合物の低次元系における特性は未知の領域であります。本研究では、分子線エピタキシー法を用いた原子の安定供給により、高品質の CaRuO_3 超薄膜を作製し、人工的に創成した2次元系において発現する現象を開拓します。

【研究手法・成果】

分子線エピタキシー法を用いて、厚さが0.8-16 nmの CaRuO_3 超薄膜を作製しました。図1の原子間力顕微鏡⁴から、その表面の粗さは199pmと原子の大きさ程度の平坦さを確認しました。これによってnmを上回るpmオーダーの“ビヨンド・ナノ”の超精密制御に成功しました。豊富な性質を示す、複数の元素を含む化合物の、ビヨンド・ナノ制御によって新たなる大陸の開拓の引き金となることが予想されます。

次に、様々な厚さの CaRuO_3 超薄膜の電気抵抗率を測定しました。その結果、 CaRuO_3 超薄膜の電気抵抗率は膜厚に依存して周期的に変化することを発見しました。図2は、厚さが10.1~7.1 nmの CaRuO_3 超薄膜の電気抵抗率の温度依存性を示しています。厚さが10.1 nmの CaRuO_3 超薄膜は金属です。厚さを薄くすると電気抵抗率は上昇し、厚さ8.5 nmの CaRuO_3 超薄膜は300Kと4.2Kでそれぞれ 1×10^3 と $2 \times 10^8 \text{ m}\Omega\text{cm}$ の電気抵抗率を示して典型的な絶縁挙動を示します。さらに厚さを薄くすると、電気抵抗率の大きさは再び減少し、最初の金属状態に戻ります。厚さ7.1 nmと8.5 nmの薄膜はわずかなサイズの違いにもかかわらず、電気抵抗率は室温で3桁、低温で9桁以上の劇的な変化を示します。

図3は0.8~16 nmの異なる膜厚における CaRuO_3 の4.2及び300 Kでの電気抵抗率のプロットを示しています。驚くことに、直線性フィッティングから、膜厚に応じて電気抵抗率が2.5 nm周期で変動していることがわかります。後に、一つの膜をエッチングすることによっても光学強度の周期的な変化を再現し、桁外れな電気抵抗変動を伴うサイズ効果の発見を確定しました。

このようなわずかなスケールの違いによる大きな電気抵抗の変化は、これまでに報告されていません。ビスマス材料に代表される量子サイズ効果では、室温で~10%、低温でも数倍程度の電気抵抗率の変動が観測されていました。この従来の報告と比較すると、本研究によって室温で1万倍、低温では10億倍を超える性能向上を達成しました。既存の概念を塗り替える桁外れなブレイクスルーを起こし、室温・常圧下において実用レベルの大きな変化を実現しました。本研究における結晶異方性やこれまでの電子状態の報告から、モット絶縁体⁵とパイエルス転移⁶が共存する新奇なメカニズムを提唱しています。

【今後への期待】

本研究成果は基礎科学と工学への応用の両方に対して、将来の貢献が予想されます。

基礎科学については、従来のサイズ効果と比較して桁外れに大きな変化を実現したことによって、モノの“スケール”という新たな概念を大きく発展させます。複数の元素を精密制御して超薄膜における2次元系化合物を創成したことによって、人工低次元という未解明の領域における多様な性質の開拓に貢献します。

工学応用については、室温で数千倍の大きな変化を示すことから、スイッチング素子などの動作が安定し、圧力・磁場・電圧などの制約がなく、幅広い分野への適用が可能です。積層化や微細加工が必要のない、単一の薄膜でサイズ効果を示したことにより、既存の技術を用いたあらゆる形状のデバイスへと展開が可能となります。

論文情報

論文名	Extraordinary alternating metal-insulator transitions in CaRuO ₃ ultrathin films at integer multiples of 25 Å of thickness (CaRuO ₃ 超薄膜が示す 2.5 nm 周期の特異な交互金属-絶縁体転移)
著者名	迫田将仁 ¹ , 延兼啓純 ^{2,3} , 下田周平 ⁴ , 丹田 聡 ^{1,3} (1北海道大学大学院工学研究院, 2北海道大学大学院理学研究院, 3北海道大学トポロジー理工学教育研究センター, 4北海道大学触媒科学研究所)
雑誌名	Physical Review B (物理学の専門誌)
DOI	10.1103/PhysRevB.00.005400
公表日	2021年11月17日(水)(オンライン公開)

お問い合わせ先

北海道大学大学院工学研究院 助教 迫田将仁 (さこだまさひと)

T E L 011-706-6154 F A X 011-706-6154 メール sakodam@eng.hokudai.ac.jp

U R L <https://exp-ap.eng.hokudai.ac.jp/>

配信元

北海道大学総務企画部広報課 (〒060-0808 札幌市北区北8条西5丁目)

T E L 011-706-2610 F A X 011-706-2092 メール jp-press@general.hokudai.ac.jp

【参考図】

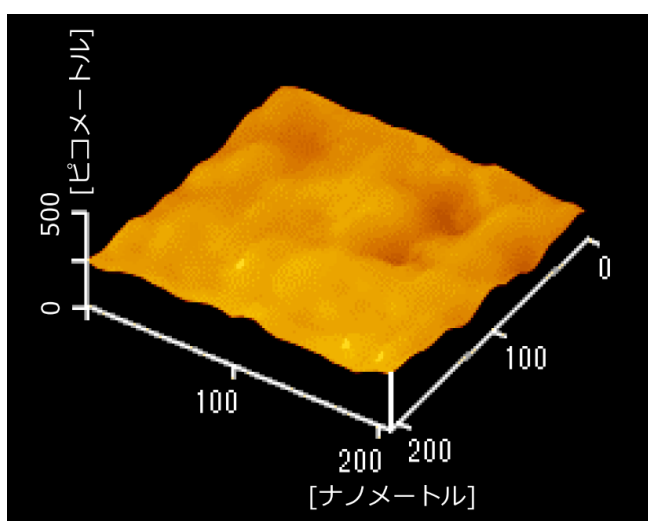


図 1. 原子間力顕微鏡を用いて観察した CaRuO₃ 超薄膜の表面の凹凸像。

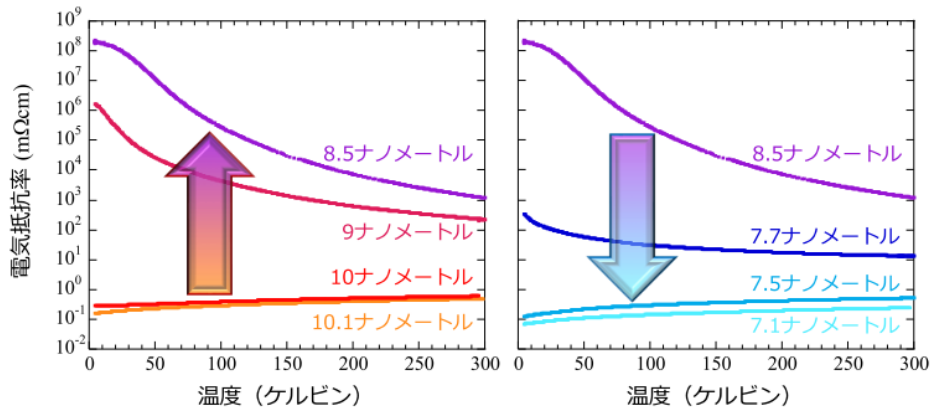


図 2. 厚さ 7-10nm の CaRuO_3 超薄膜の電気抵抗率の温度依存性。

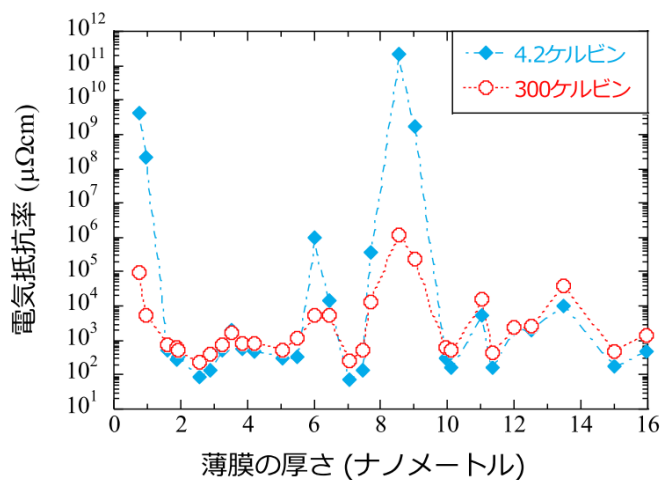


図 3. 厚さ 1-16nm の CaRuO_3 超薄膜のそれぞれ 4k と 300k における電気抵抗率のプロット。

【用語解説】

- * 1 サイズ効果 … 物質の大きさに依存して、電気抵抗や磁化などものの性質が変動する現象。
- * 2 超薄膜 … 厚さが nm オーダーの薄膜サンプルの中でも、10nm 程度以下を超薄膜と呼んでいる。
- * 3 分子線エピタキシー法 … 超高真空中で、原料となる元素を加熱し基板に元素を供給して薄膜を製作する手法。
- * 4 原子間力顕微鏡 … サンプルと探針に働く原子間力により、サンプル表面の凹凸を調べる手法。
- * 5 モット絶縁体 … 負の電荷をもった電子がお互いに及ぼす強いクーロン斥力により、電子が動けなくなり伝導しなくなる絶縁体。
- * 6 パイエルズ転移 … 結晶中の電荷が周期的に配列する状態。