

(様式第5号)

バナジウム酸化物薄膜デバイスの電圧印加中の XAFS 測定 XAFS measurements of V-oxide thin-film devices under electric voltages

和達大樹^A、Zhang Yujun^A、堀田育志^B、根元亮一^B
Hiroki Wadati^A、Yujun Zhang^A、Yasushi Hotta^B、Ryoichi Nemoto^B

^A東大物性研、^B兵庫県立大
AISSP, Univ. of Tokyo, ^BHyogo Pref. Univ.

- ※1 先端創生利用（長期タイプ）課題は、実施課題名の末尾に期を表す（Ⅰ）、（Ⅱ）、（Ⅲ）を追記してください。
- ※2 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後2年以内に研究成果公開〔論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表〕が必要です（トライアル利用を除く）。
- ※3 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※4 共著者には実験参加者をご記載ください（各実験参加機関より1人以上）。

1. 概要（注：結論を含めて下さい）

私達は Si エレクトロニクスの新なる高性能化を目指しており、 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{VO}_3/\text{Si}$ ($x=0-1$) 接合薄膜の XAFS 測定を行った。最初に、V K 端での電子状態を室温において測定した。その後、 $x=0.25$ の組成についてクライオスタットを用いて測定試料を冷却し、20 K 付近で電圧をかけながら V K 端の XAFS スペクトルの変化の観測を試みた。得られた結果は電圧依存を示さず、本現象での V の価数変化は小さいことが分かった。

(English)

We are trying to achieve higher performance in Si electronics, and performed XAFS measurements of $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{VO}_3/\text{Si}$ ($x=0-1$) thin films. First, we measured electronic structures at room temperatures. Then we cooled the $x = 0.25$ sample by using a cryostat, and around 20 K we tried to observe the change of the V K XAFS spectra under electric voltages. The obtained results showed no dependence on voltages, indicating that the change of the V valence is negligibly small in this phenomenon.

2. 背景と目的

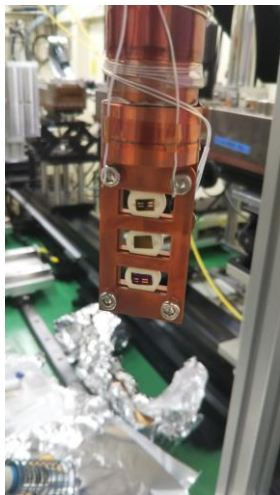
Moore の法則に従い発展を続けてきた Si エレクトロニクスは、相補型金属-絶縁体-半導体 (CMOS) 素子の微細化限界の到来によって、これまでとは違った開発の方向性が求められている。このような流れは Beyond CMOS と呼ばれ、その一つとして、新しい材料を用い、既存 CMOS とは異なる動作原理を Si デバイスに導入することで Si エレクトロニクスの新なる高性能化を目指す研究が活発に行われている。

注目される材料としてペロブスカイト型遷移金属酸化物がある。この物質群は、電子の電荷やスピン、軌道の相互作用によって強磁性や超伝導、金属絶縁体転移といった既存の CMOS デバイスには使われていない物性を持つこと、さらに物性自体のエネルギースケールが小さいことから、新しい動作原理の導入やデバイスの大幅な低消費電力化が可能になると考えられている。

これまで我々は、 SrTiO_3 基板上へのモット型絶縁体の LaVO_3 の薄膜成長および $\text{LaVO}_3/\text{SrTiO}_3$ 接合デバイス特性の研究を行ってきた[1]。さらに、 LaVO_3 を Beyond CMOS 材料の一つとして利用するために LaVO_3/Si 接合デバイスの特性に注目してきた。現在、 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{VO}_3/\text{Si}$ ($x=0-1$) 接合の低温電流-電圧特性において特異な抵抗変化現象のメカニズム現象を確認し、この現象のメカニズム解明を目指している。2017年12月のビームタイム(1710106F)では、電極の厚さの問題でその直下の電子状態観測ができなかった。本ビームタイムでは、電極を薄くすることでその直下の電子状態観測に成功した。

3. 実験内容 (試料、実験方法、解析方法の説明)

今ビームタイムのために $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{VO}_3/\text{Si}$ ($x=0-1$) 接合薄膜を準備した。試料は、堀田研究室 (兵庫県立大) においてパルスレーザー堆積法によって作製された。実験室での事前評価として、XRDによる結晶構造の同定および電気抵抗測定を行なっている。



最初に、V K端での電子状態と局所構造を室温において測定した。その後、 $x=0.25$ の組成についてクライオスタットを用いて測定試料を冷却し、250 Kから15 Kまでの温度変化 (250 K, 200 K, 150 K, 100 K, 50 K, 15 Kの6温度条件) の測定を行った。そして20 K付近で電圧をかけながらV K端のスペクトルの変化を観測した。電圧印加の実験は左の図1のようなセッティングにて行った。得られた結果の解析にはAthenaとArtemisを用いてバックグラウンドの除去や規格化やカーブフィッティングを行い、電子状態と局所構造を定量的に評価した。

図1 : XAFS測定のセットアップ。上の試料に導線により電圧印加を行うことができる。

4. 実験結果と考察

2017年12月のビームタイム(1710106F)で電圧印加 XAFS 測定の手法が確立した。 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{VO}_3/\text{Si}$ ($x=0.25$) 接合に対する測定では、電圧印加に伴う XAFS スペクトルの変化が見られなかった。これは電極が厚かったため、X線でその電極の真下の電子状態を観測することができなかったことによるものである。そのため、本ビームタイムでは電極を薄くしても抵抗変化現象が起こることを観測後に、このような薄い電極の試料に対して XAFS 測定を行うことで、スペクトルの変化の観測を目指した。特に、 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{VO}_3/\text{Si}$ 界面への電圧印加による電子ドーピングにより、Vの価数が3+から4+へ変化することが期待した。

図2に20 Kにおける $x=0.2$ の試料のV K端の XAFS スペクトルの電圧依存性を示す。この結果から、Vのスペクトルに変化は見られず、電圧による価数変化が小さいことを明らかにした。

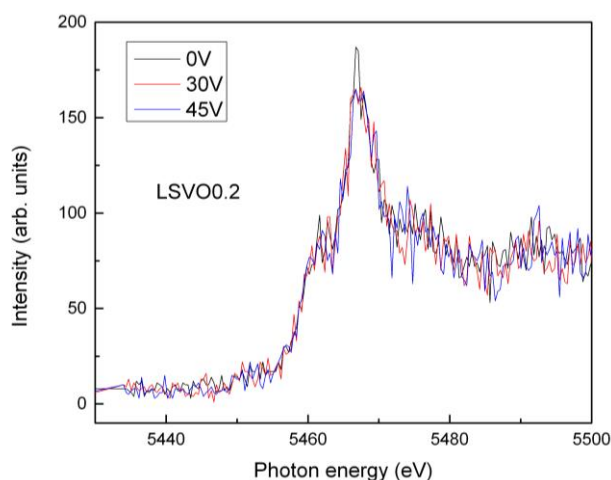


図2 : 電圧印加下でのV K端の XAFS スペクトル。

5. 今後の課題

これまでの研究で電圧印加 XAFS 測定の手法が確立された。 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{VO}_3/\text{Si}$ ($x=0.25$) 接合に対する測定では、電圧印加に伴う XAFS スペクトルの変化が見られなかった。これは電極の大きさに対し、Vの価数変化の領域が小さいことを意味すると考えられる。

今後は、顕微 XAFS 測定を行うことで、スペクトルの変化の観測を目指す。特に、 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{VO}_3/\text{Si}$ 界面への電圧印加による電子ドーピングにより、Vの価数が3+から4+へ局所的に変化することを期待している。

6. 参考文献

[1] 以下の5論文により、 LaVO_3 薄膜の表面界面状態を X線分光で明らかにしてきた。

H. Wadati, D. G. Hawthorn, J. Geck, T. Z. Regier, R. I. R. Blyth, T. Higuchi, Y. Hotta, Y. Hikita, H. Y. Hwang, G. A. Sawatzky: "Interface reconstruction in V-oxide heterostructures determined by x-ray absorption spectroscopy", Appl. Phys. Lett. 95, 23115 (2009).

M. Takizawa, Y. Hotta, T. Susaki, Y. Ishida, H. Wadati, Y. Takata, K. Horiba, M. Matsunami, S. Shin, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, T. Ishikawa, A. Fujimori, H. Y. Hwang: "Spectroscopic Evidence for Competing Reconstructions in Polar Multilayers $\text{LaAlO}_3/\text{LaVO}_3/\text{LaAlO}_3$ ", Phys. Rev. Lett. 102, 236401 (2009).

H. Wadati, Y. Hotta, A. Fujimori, T. Susaki, H. Y. Hwang, Y. Takata, K. Horiba, M. Matsunami, S. Shin, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, and T. Ishikawa: "Hard x-ray photoemission study of $\text{LaAlO}_3/\text{LaVO}_3$ /multilayers", Phys. Rev. B 77, 045122 (2008).

H. Wadati, Y. Hotta, M. Takizawa, A. Fujimori, T. Susaki, H. Y. Hwang: "Characterization of LaVO_x thin films by photoemission spectroscopy", J. Appl. Phys. 102, 053707 (2007).

Y. Hotta, H. Wadati, A. Fujimori, T. Susaki, H. Y. Hwang: "Electronic structure of the Mott insulator LaVO_3 in a quantum-well geometry", Appl. Phys. Lett. 89, 251916 (2006).

7. 論文発表・特許 (注: 本課題に関連するこれまでの代表的な成果)

本研究成果についての論文を現在準備中で、2018年の発表を目指している。

8. キーワード (注: 試料及び実験方法を特定する用語を2~3)

XAFS、バナジウム酸化物、電圧印加

9. 研究成果公開について (注: ※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文(査読付)発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください(2017年度実施課題は2019年度末が期限となります)。

長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。

① 論文(査読付)発表の報告

(報告時期: 2019年3月)