

## SrTiO<sub>3</sub> 電場誘起超伝導

上野 和紀／東北大学原子分子材料科学高等研究機構 助教

### 1. はじめに

銅酸化物超伝導を始めとする多くの超伝導体が絶縁体母材料への化学ドーピングによって開発されてきた。化学ドーピングでは母材料の構成元素の一つを価数の異なる不純物元素で置き換え、電気を流す電子やホールといったキャリアを材料へ供給する。図1に示すように多くの半導体・絶縁体がキャリア濃度の上昇とともに超伝導を示す。その中でも、SrTiO<sub>3</sub>は $10^{19}$  cm<sup>-3</sup>以下という最も低キャリア濃度で超伝導を示す材料である [1]。

さて、絶縁体(半導体)にキャリア濃度を誘起するもう一つの方法が電界効果を用いた電気的なキャリアドーピングである。シリコンなどの半導体の上に絶縁体、金属膜を積層した構造を作成し、金属と半導体の間に外部から電圧をかけると、この構造はコンデンサとして働き、半導体表面には電荷が蓄積する。この原理を応用した電界効果トランジスタ(FET)は低消費電力のスイッチング素子として情報産業を支える基本素子となっている。このFETを用いて超伝導材料の特性を変調させようとする研究は50年にも及ぶ長い研究の歴史がある [2,3]。しかし、絶縁体に電場誘起のみによってキャリアドーピングし、超伝導を作り出すことは今まで誰にもできなかった。FETで蓄積可能なキャリア濃度は絶縁層の絶縁破壊によって制限されるが、超伝導を誘起するには図1にあるように $10^{20}$  cm<sup>-3</sup>程度のキャリア濃度が必要である。これほど膨大な量のキャリア蓄積に耐える絶縁膜は知られておらず、電場誘起超伝導は不可能だと考えられてきた。10年ほど前に起きたBell研究所 Schonによる研究捏造事件では特殊なアルミナを絶縁膜とすることで高濃度のキャリア蓄積が実現できると報告されたが、最終的には全ての結果が捏造であったという結論となった [4]。

私の電場誘起超伝導の研究は、実はそのBell研の報

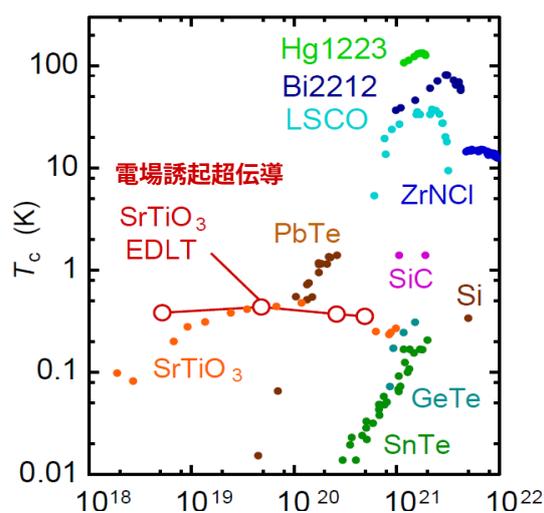


図1 化学ドーピングで得られる様々な超伝導体とSrTiO<sub>3</sub>での電場誘起超伝導。超伝導転移温度とキャリア濃度との関係を示す。

告を受けて開始したものである。後追いで始めた有機半導体にアルミナ絶縁膜で超伝導を目指す研究は当然うまくいかなかった。そこで、新たにFETで蓄積可能なキャリア濃度の範囲で超伝導が実現できる材料としてSrTiO<sub>3</sub>でのFET研究を開始した。

私自身は室温でのデバイス動作までしか実現できなかったが [5]、その後の東大高木研、リップマー研などでの研究によって低温でのデバイス動作が報告された [6,7]。一方、私は電気二重層トランジスタという従来のFETとは全く異なるコンセプトに基づくデバイスをSrTiO<sub>3</sub>へ応用する研究を開始した。FET開発で培われた半導体デバイス作成技術を取り入れながらデバイス開発を進めた結果、従来のFETでは到達不可能だったシートキャリア濃度にして $10^{14}$  cm<sup>-2</sup>(体積キャリア濃度 $10^{21}$  cm<sup>-3</sup>)もの高濃度キャリア蓄積を実現、完全な絶縁体のSrTiO<sub>3</sub>表面で始めて電場誘起超伝導を実現した [8]。

## 2. 電場誘起超伝導

電場誘起超伝導の実現の鍵となったのが、液体にイオンの溶けこんだ電解液を絶縁層として用いる電気二重層トランジスタの酸化物への応用である。図 2(a),(b) に示す半導体、電解液、金属がつながった構造を作り電圧を印加することで、電解液と半導体、金属の界面には正負のイオンが集まり、1 nm 程度の厚さを持つ電気二重層を形成する。電解液はイオン伝導性の物質であるため、電解液に電流が流れるためには電気二重層で電気化学反応が起き、イオンと電極の間で電子を授受する必要がある。そこで電解液として有機電解液のような電気化学的に安定な材料を用いると、電気二重層は固体絶縁層では不可能な 50 MV/cm を越える強電界まで電気化学反応（絶縁破壊）を起こさない [9,10]。その結果、半導体表面には FET と同様の原理で非常に高キャリア濃度の二次元電子ガス (2DEG) が生じ、図 2(c) に示すように電圧印加とともに伝導度が上昇する FET 動作が得られる。トポロジカル量子現象ではトポロジカル性の異なる界面で興味深い現象がおきるが、本研究はまず、電気二重層という古典的な固液界面に隠れていた新しい物理の種を見つけ出し、応用したものである。

SrTiO<sub>3</sub> 単結晶はキャリアドーピングしない状態ではシート抵抗 10 GΩ を越える完全な絶縁体である。こ

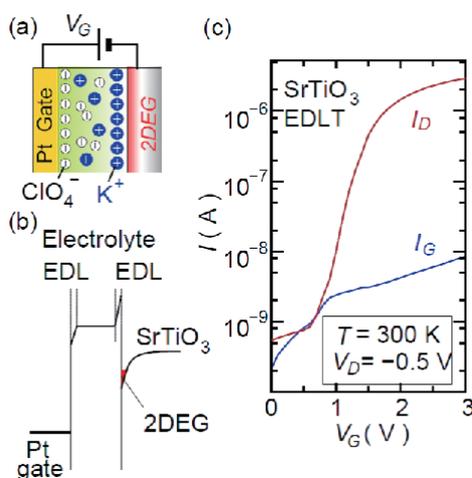


図 2 (a) 電気二重層の模式図

(b) バンドダイアグラム

(c) SrTiO<sub>3</sub> 電気二重層トランジスタの室温デバイス特性

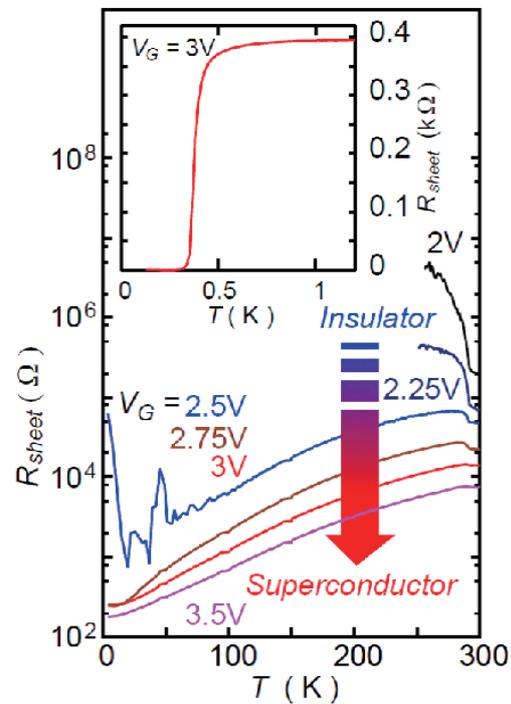


図 3 電場誘起による絶縁体・金属転移。  
挿入図：ゲート電圧 3 V での超伝導転移。

の SrTiO<sub>3</sub> を半導体として電気二重層トランジスタを作成すると、ゲート電圧によって表面に電荷が誘起される。図 3 に示すようにゲート電圧  $V_G$  の小さい領域では抵抗が温度とともに上昇する絶縁体的な振る舞いだが、電圧を十分に上げると低温まで抵抗が減少する金属的な振る舞いへと変化した。また、低温でホール係数からキャリア濃度を見積もると  $V_G$  に対しほぼ線形にキャリア蓄積がおき、 $V_G = 3.5$  V で  $1 \times 10^{14}$  cm<sup>-2</sup>、と一般的な Si MOSFET の 10 倍ものキャリア濃度が得られた。

このトランジスタをゲート電圧を印加した状態で希釈冷凍機により 0.02 K まで冷却することで、図 3 挿入図に示すようにゼロ抵抗への超伝導転移を観測した。さらに、磁場や電流の印加によりゼロ抵抗からノーマル抵抗に戻ることも確認された。これらの挙動は超伝導の特徴であり、SrTiO<sub>3</sub> 表面が電場誘起キャリアにより超伝導状態になっていると考えられる。

### 3. 電場誘起超伝導の二次元性評価

二次元超伝導の研究は Nb や Bi など金属薄膜で主に行われてきた。一方、電場誘起超伝導は絶縁体表面に電場によって閉じ込められた二次元電子ガスが超伝導を示す。電場によって反転対称性を破ることで初めて超伝導になるという点、二次元電子ガスが深さ方向に濃度勾配を持つなどの点で金属薄膜の二次元超伝導とは本質的に異なる。

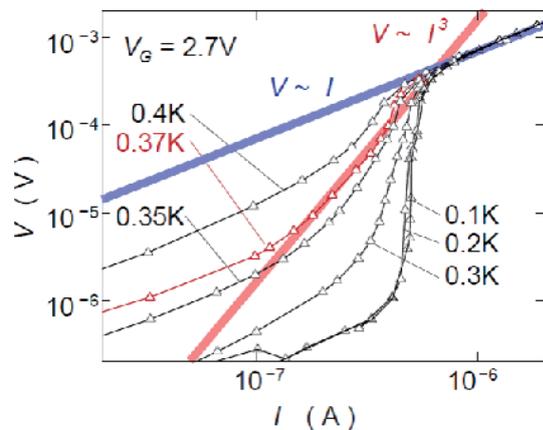


図4 電場誘起超伝導の BKT 転移。0.37K 付近で  $V \sim I^3$  の臨界特性を示す。

現在のところ、電場誘起超伝導は二次元超伝導体の理論に非常によく一致した振る舞いを示す。一例として、二次元超伝導に特有の Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (BKT) 転移の結果を示す。二次元超伝導体に電流を流すと、 $T_c$  直下ではボルテックスフローフロー（磁束量子の渦系の流れ）による有限の抵抗が生じる。その結果、 $T_c$  付近で  $I$ - $V$  特性は  $V \sim I^\alpha$  のような非線形の振る舞いを示し、BKT 転移温度で  $\alpha = 3$  となる。図4に示すように  $V_G = 2.7$  V での  $I$ - $V$  特性からは温度を下げるとともに徐々に  $\alpha$  が増加していく様子が観察され、0.37 K で  $\alpha = 3$  になった。従って、この系の超伝導転移 0.37 K の臨界温度を持つ BKT 転移であると言える。

電場誘起超伝導の二次元性などの超伝導物性は本新学術領域の重要な課題であり、すでに若手相互滞在プログラムを利用して磁気輸送特性の詳細な評価を行っている。今後、電場誘起超伝導に隠れている新しい超伝導の物理を本学術領域の研究で見つけ出したいと考えている。

本研究は青木晴善、岩佐義宏、大友明、中村慎太郎、川崎雅司、木村憲彰、下谷秀和、野島勉、H. T. Yuan の各氏と

の共同研究である。

- [1] J. F. Schooley, W. R. Hosler, E. Ambler, J. H. Becker, M. L. Cohen and C. S. Koonce, *Phys. Rev. Lett.* 14, 305 (1965).
- [2] R. E. Glover, III and M. D. Sherrill, *Phys. Rev. Lett.* 5, 248 (1960).
- [3] C. H. Ahn, J.-M. Triscone, J. Mannhart, *Nature* 424, 1015 (2003).
- [4] G. Brumfiel, *Nature* 419, 419 (2002). 村松秀「論文捏造」中央新書ラクレ (2006) など。現在も読める当時のニュースとして  
<http://wiredvision.jp/archives/200209/2002092702.html> (Wired Vision 日本語版)
- [5] K. Ueno, I. H. Inoue, H. Akoh, M. Kawasaki, Y. Tokura, and H. Takagi, *Appl. Phys. Lett.* 83, 1755 (2003).
- [6] K. Shibuya *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 88, 212116 (2006).
- [7] H. Nakamura *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 89, 133504 (2006).
- [8] K. Ueno, S. Nakamura, H. Shimotani, A. Ohtomo, N. Kimura, T. Nojima, H. Aoki, Y. Iwasa and M. Kawasaki, *Nature Mater.* 7, 855 (2008).
- [9] H. Shimotani, H. Asanuma, J. Takeya, and Y. Iwasa, *Appl. Phys. Lett.* 89, 203501 (2006).
- [10] K. Ueno, H. Shimotani, Y. Iwasa, and M. Kawasaki, *Appl. Phys. Lett.* 96, 252107 (2010).

### 著者紹介



#### うえの・かずのり

1976年千葉県出身。99年東京大学工学部卒業、2004年東京大学新領域創成科学研究科博士課程修了。東北大学金属材料研究所博士研究員を経て現職。酸化物の薄膜作成、半導体デバイスが専門。現在は新たな超伝導体の発見を目指して研究している。