ペロブスカイト酸化物界面に生じる 界面ダイポール層によるバンドアライメント変調効果の検証 Investigation on band alignment modulation by interface dipole layer formation at perovskite oxide interface 東京大学大学院工学系研究科マテリアル工学専攻、田村 敦史、喜多 浩之 Dept. of materials Engineering, The Univ. of Tokyo, ^oAtsushi Tamura and Koji Kita

E-mail: tamura@scio.t.u-tokyo.ac.jp

[背景]酸化物界面に生じるダイポール効果は high-k/SiO2界面においてよく知られ、絶縁体界面のイオン 対を起源とすると考えられており[1]、バンドアライメントの変調に用いることが可能である。一方で high-k/SiO2界面とは異なるメカニズムだが、ペロブスカイト酸化物の界面に電荷層を挿入することに よって得られるダイポール効果がショットキー障壁の変化から実験的に示されている[2]。このダイポ ール層の一つの例は、Fig.1 に示すように導電性酸化物電極 SrRuO₃(SRO)と絶縁性酸化物 SrTiO₃(STO) の界面に、LaAIO₃(LAO)を電荷層として挿入し、電極側と合わせて正負の電荷対を生じさせたものであ る。原子層を制御して成長できるエピタキシャル界面では電荷を持つ原子層を意図的に導入すること ができるため、大きな電荷を界面に安定に保持させたものであり、界面におけるイオンの変位に基づ く high-k/SiO2のダイポール層とは起源が異なっている。本研究では、このダイポール効果を利用した 酸化物積層構造のバンドアライメントの変調効果を検証した。

[実験] STO(001)基板上に PLD 法を用いて、下部電極として SRO、絶縁膜として STO を堆積した。

STO/SRO 界面への挿入層として LaAlO₃(LAO)を用いた。成膜温度を SRO 及び STO は 700℃、LAO は 750℃とし、いずれも酸素を導入した雰囲気中で成膜した。まず XPS 評価用には、上部の STO 膜厚を 3 nm、挿入する LAO 膜厚を(i)0 nm (ii)1 nm (iii)1.5 nm として XPS の二次電子の立ち上がりを測定する カットオフエネルギー測定[2]によってダイポール効果の有無を調査した。

[結果]XPS によるカットオフエネルギー測定の結果を Fig.2 に示す。カットオフエネルギーは、LAO を 挿入していない場合(i)に比べて、LAO を(ii)1 nm 及び(iii)1.5 nm 挿入した場合はそれぞれ(ii) -0.07 eV(iii) 0.38 eV のシフトが見られた。仮にチャージアップの影響で表面の STO が正に帯電していれば、高エネ ルギー側へのシフトは説明できない。(iii)でみられた大きなシフトはダイポール層の形成を示唆し、 LAO 層中に~10¹⁴ /cm²の負の電荷が SRO 表面と~1 nm 程度の距離に存在すれば説明可能な大きさであ る。試料(ii)でシフトがほとんど見られないのは、電荷層として(AlO2)層が安定するには初期の1nm程 度が有効に使われなかった可能性がある。以上のようにペロブスカイト酸化物においては界面ダイポ ール層の形成の効果を利用することで、バンドアライメントを意図的に大きく制御した積層構造の形 成が可能である。追加の実験として電気特性評価のために、上部の STO 膜厚を 97 nm とし、800℃、 30 sec の O₂アニールを行ってから上部電極として Au を蒸着して MIM キャパシタを作製し、I-V 測定 を行った(Fig.3)。Au 電極への正バイアス印加時における選択的な電流減少は明確には見られなかった が、これは室温においては欠陥構造を介した伝導機構が支配的であるため、欠陥の影響を抑制すれば バンドアライメント変調効果の電流伝導に与える影響が現れると考えられる。

参考文献[1] K. Kita and A. Toriumi, Appl. Phys. Lett. 94, 132902 (2009).

[2] T. Yajima et al., Nat. Commun. 6, 6759 (2015). [3] N. Fujimura et al., Jpn. J. Appl. Phys. 57, 04FB07 (2018).

(ii)



alignment modulation by dipole



(i)

(iii)

Ξ



voltage of SRO/STO stack and SRO/LAO/STO stack