

(公財) 日本板硝子材料工学助成会

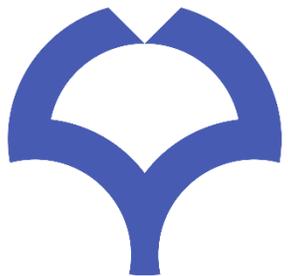
第42回無機材料に関する最近の研究成果発表会

- 材料研究に新しい風を- 2025年1月22日@住友会館 (東京)

エピタキシャル5d酸化物薄膜創製に基づく 電流-スピン流変換現象に関する研究

助教 上田 浩平

大阪大学 大学院理学研究科 物理学専攻



OSAKA UNIVERSITY

今日の内容

- ✓ イントロダクション - page 1~7
(スピントロニクスについて、電流-スピン流変換、なぜ酸化物?)
- ✓ 5*d*イリジウム酸化物を用いたスピン流生成とエピタキシャル界面の影響 - page 8~17
- ✓ 5*d*タングステン酸化物を用いたスピン流生成の開拓 - page 19~22
- ✓ まとめと展望 - page 23

スピントロニクス：電荷に加え**スピン**を活用する研究分野

電氣的性質「電荷」

→ 電流：発熱を担う



磁氣的性質「**スピン**」

→ **スピン流**：発熱を抑制

- 。 スピンに起因した物理現象の探求 。 見出した物性・機能をデバイスに応用
- 電子デバイスの高性能化：不揮発性の省電力磁気メモリ開発など**

解決

近年の社会的な問題：コンピュータにおける膨大な電力消費

(情報化社会の発展に伴う人工知能やモノのインターネットの普及)

GMR (Giant Magnetoresistance) : 磁化が平行と反平行状態で電気抵抗が大きく変化
(スピン依存伝導)

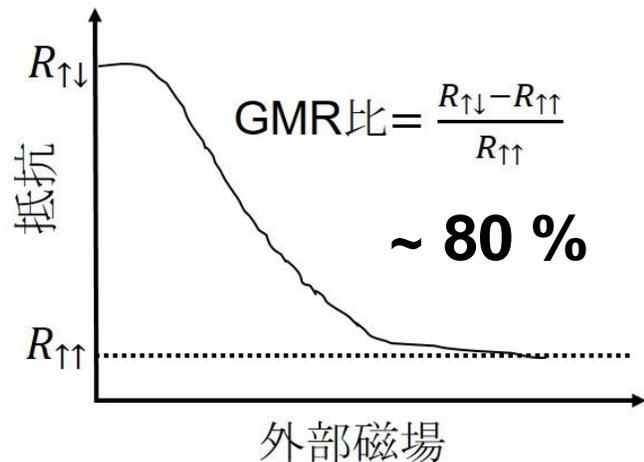
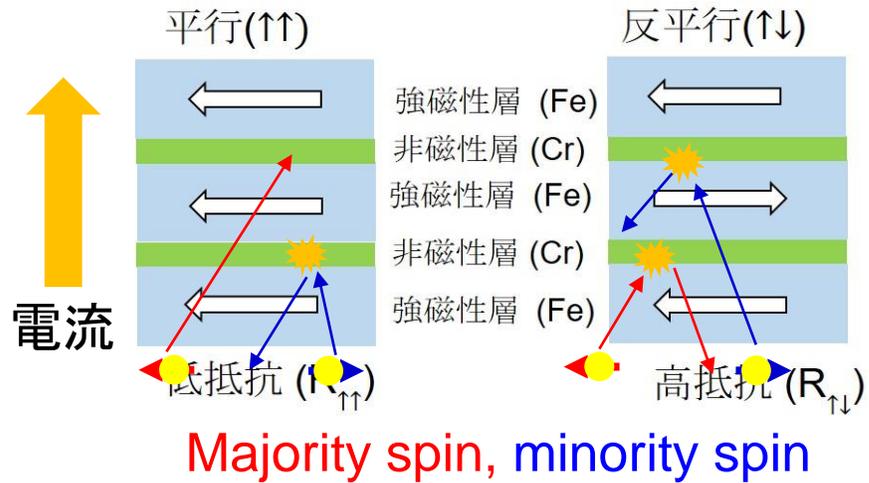


Baibich *et al.*, Phys. Rev. Lett. (1988).

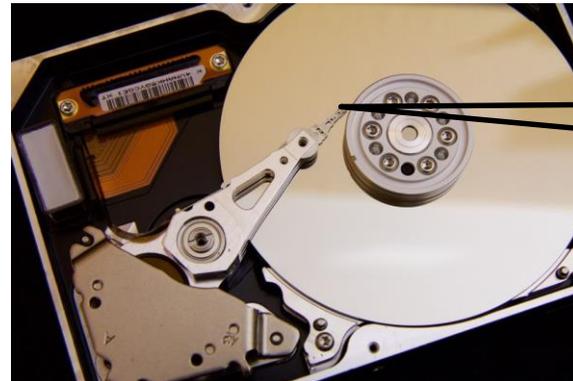
Binash *et al.*, Phy. Rev. B (1989).

- ✓ 金属多層膜（人工格子）
- ✓ 磁性層と非磁性層が交互に積層
- ✓ 各層は厚さ～数nm程

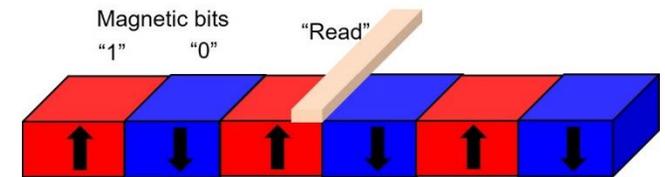
GMR (Giant Magnetoresistance)



スピンの輸送現象に強く関係！



磁気ビットを読むセンサー



応用

Albert Fert

Peter Grünberg

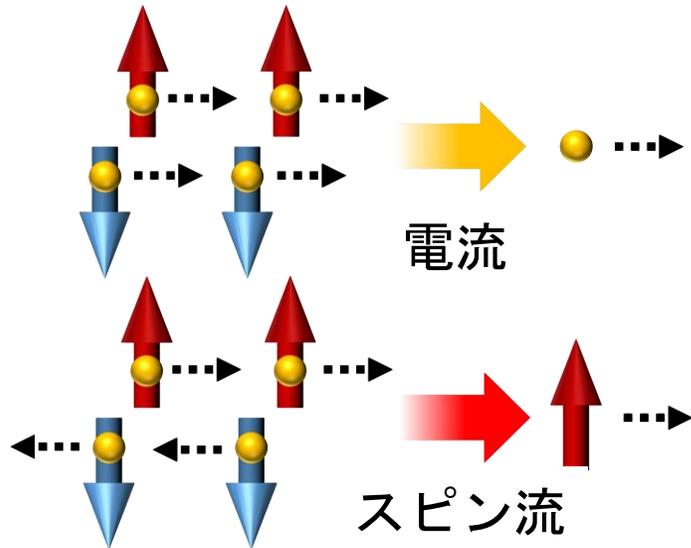


基礎

ノーベル物理学賞 (2007)

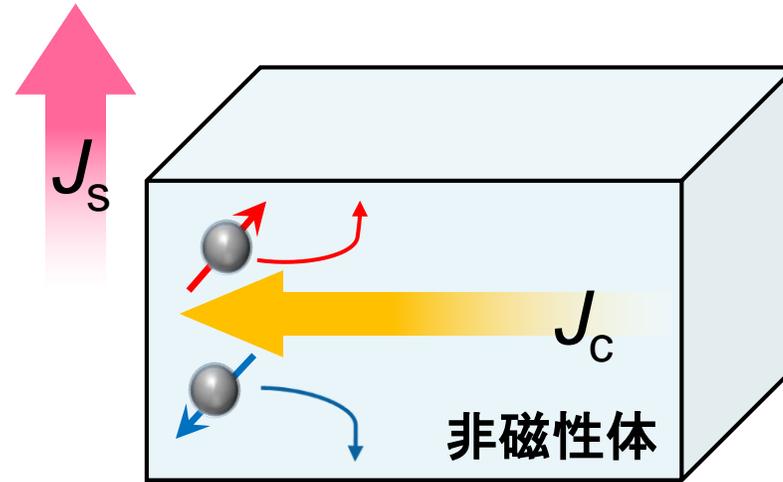
現在、スピントロニクス研究対象は、
金属・半導体から酸化物や量子物質などに展開

スピン流 J_s :



- 電子のスピン角運動量の流れ
- 電流 J_c と異なり、発熱を抑制
→ デバイスの省電力化に貢献

スピンホール効果：電流からスピン流への変換

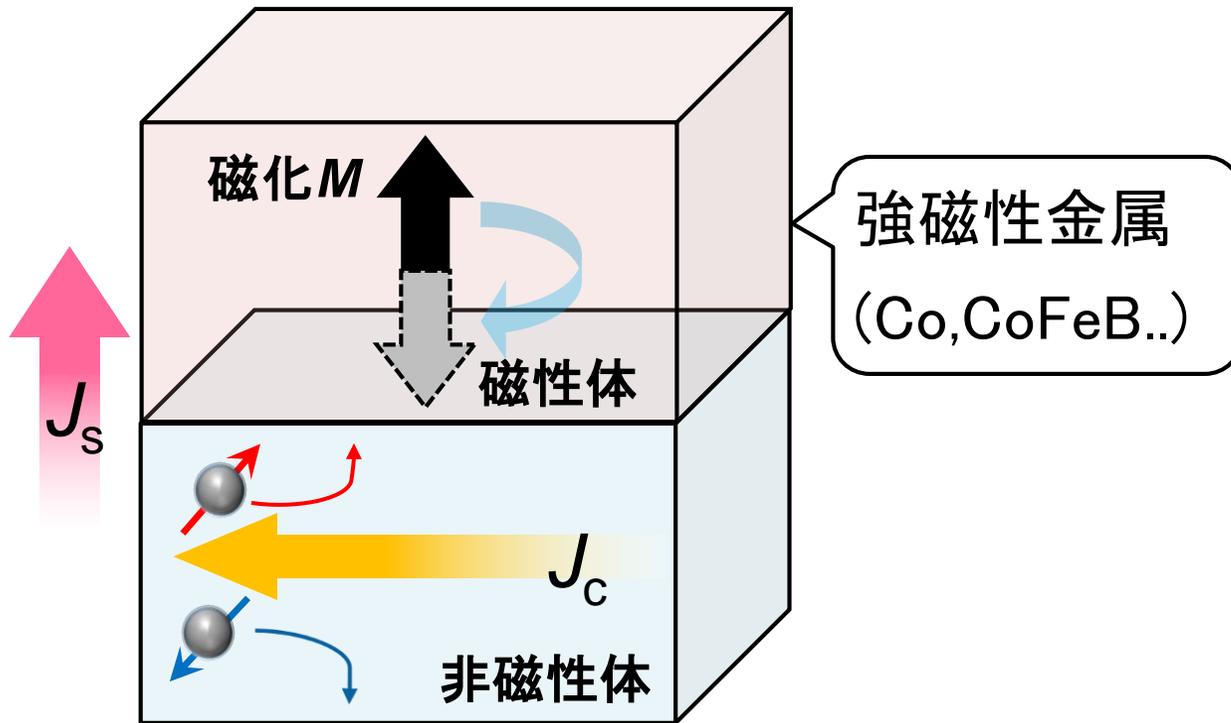


豊富な実績
5d遷移金属Pt, Ta, W..

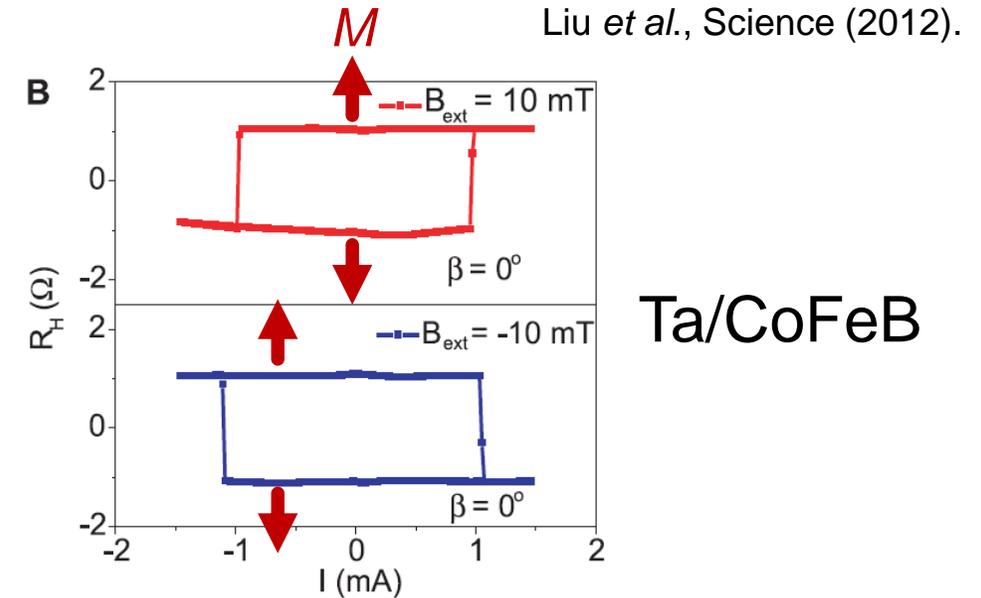
- 強いスピン-軌道相互作用を有する非磁性体において電子スピンの散乱
- スピンホール角 θ_{SH} ($\sim J_s/J_c$) が指標

磁性層と非磁性層の界面を持つ二層膜デバイスが舞台

非磁性層と磁性層からなる二層膜構造



スピン流を用いた磁化反転



スピン流は磁化制御の基盤技術

Pt/Co, Ta/CoFeB, W/CoFeB...

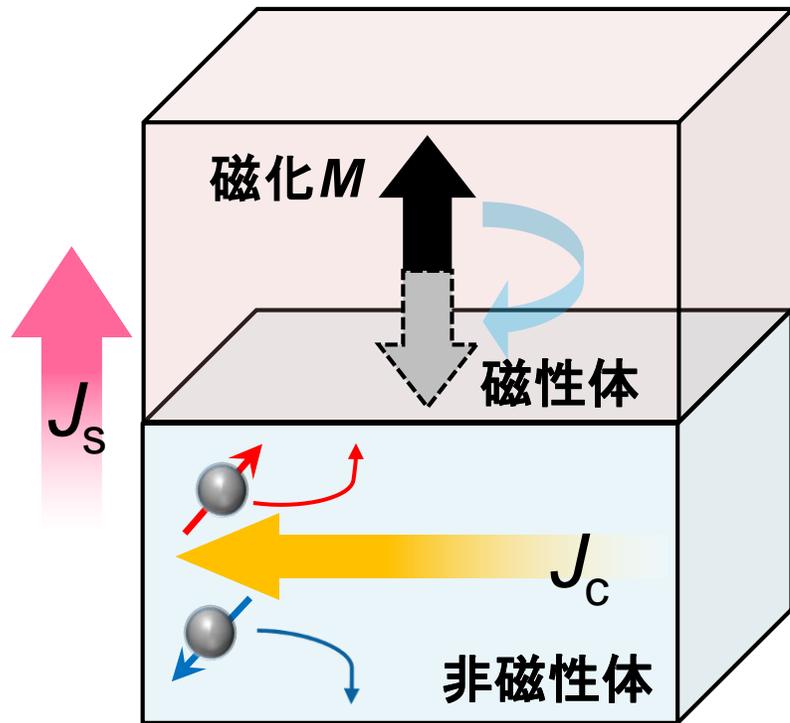
Miron et al., Nature (2011).

Liu et al., Science (2012).

Pai et al., Appl. Phys. Lett. (2012).

磁化制御の更なる効率化には
電流-スピン流変換効率の増大が必須

非磁性層と磁性層からなる二層膜構造



界面スピン透過率 T
(界面品質に依存)

電流-スピン流変換効率

$$\xi_{DL} = T (< 100\%) \cdot \theta_{SH}$$

理想的な界面では $\xi_{DL} = \theta_{SH}$

現実には T により ξ_{DL} は減少

これまでの金属二層膜：

異なる結晶構造を組み合わせた界面



$T \sim 20 - 40\%$:

金属二層膜 CoFeB/Pt, Co/Pt...

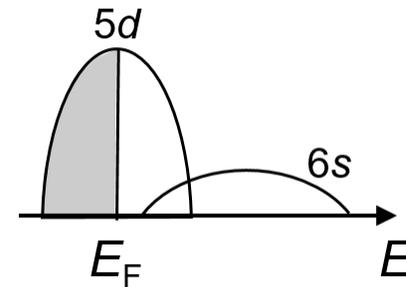
新たな二層膜構造及びスピン流生成物質

の探索が必須

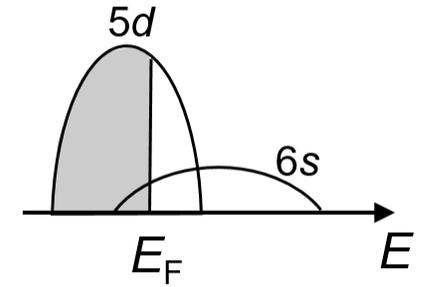
基礎物理学としての興味

- 特異な電子構造 (右図)
- スピン軌道相互作用と電子相関の共存
→ Ir酸化物のトポロジカルバンド構造 etc.

Ir酸化物: $5d^5$



Ir: $5d^7$ と $6s^2$



特異な電子構造：強いスピン軌道相互作用を持つ5d電子のみが電気伝導を支配

スピントロニクス研究への利点

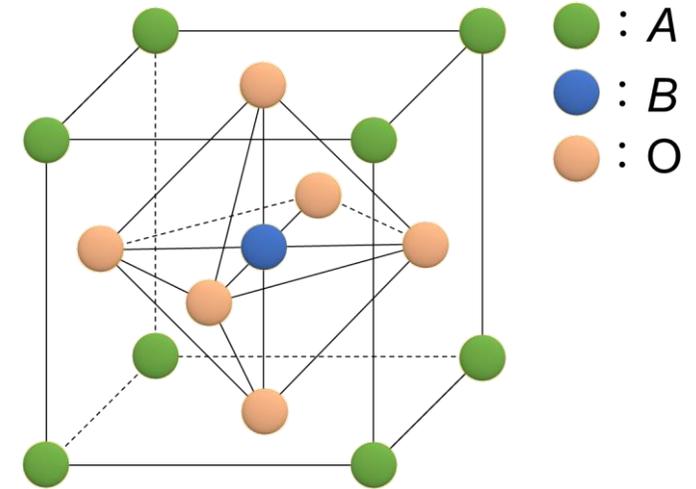
- エピタキシャル成長 (基板の配向面に沿う成長) ◦ 結晶対称性 ◦ 界面の制御

酸化物薄膜成長 & スピントロニクスの融合

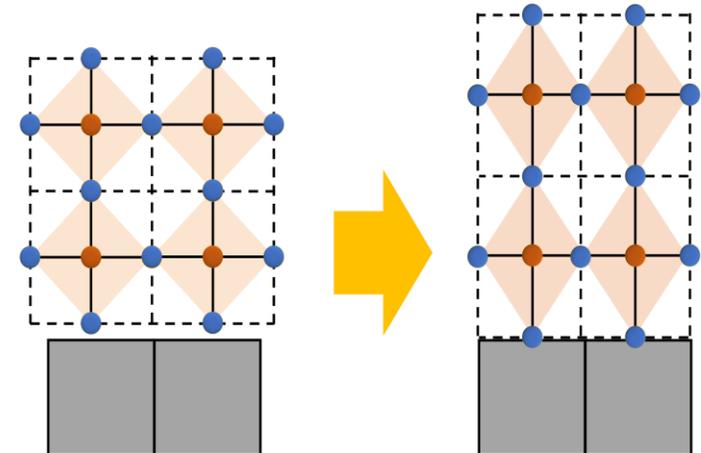
本日：5d酸化物 (SrIrO_3 & WO_2)を用いた電流-スピン流変換

- ペロブスカイト構造 ABO₃
- バルクでは高圧安定相
→ 歪み効果により (応力)、エピタキシャル膜
では常圧化において安定
- 非磁性 & 半金属
- スピンホール効果に起因したスピンの生成

どのように薄膜合成するのか？



エピタキシャル成長

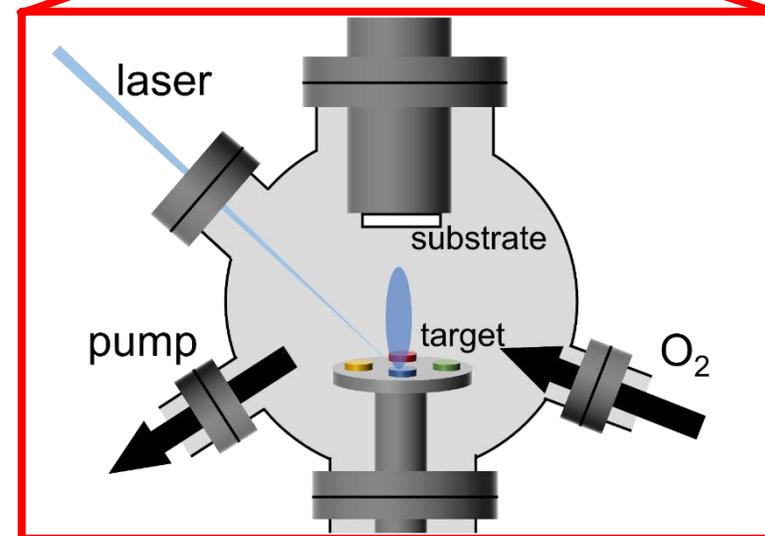


SrIrO₃焼結ターゲットの作製



- $\text{IrO}_2 + \text{SrCO}_3 \rightarrow \text{SrIrO}_3 + \text{CO}_2$
- 放電プラズマ焼結法

パルスレーザー堆積法

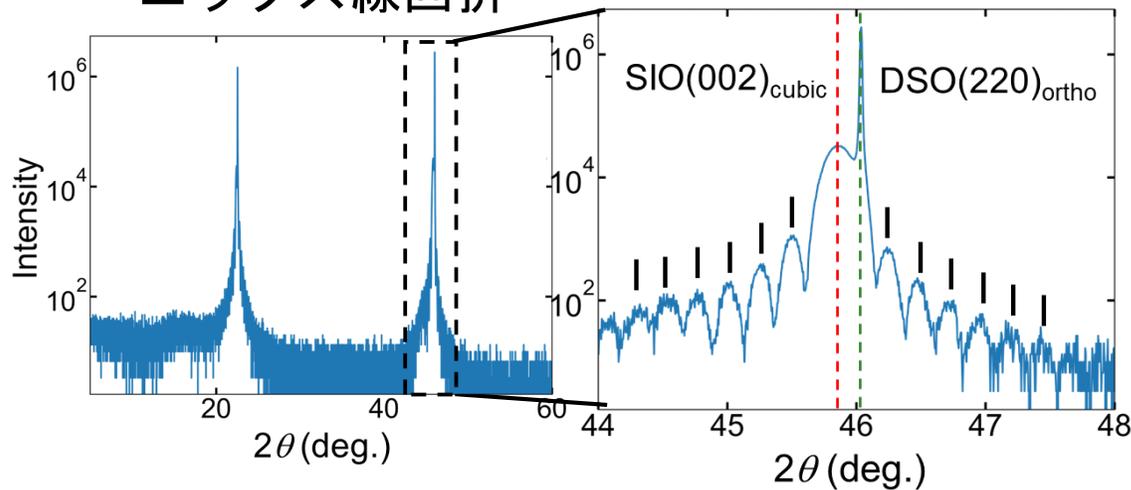


パルスレーザー堆積法

→ 基板温度650°C & 酸素分圧190 mTorr

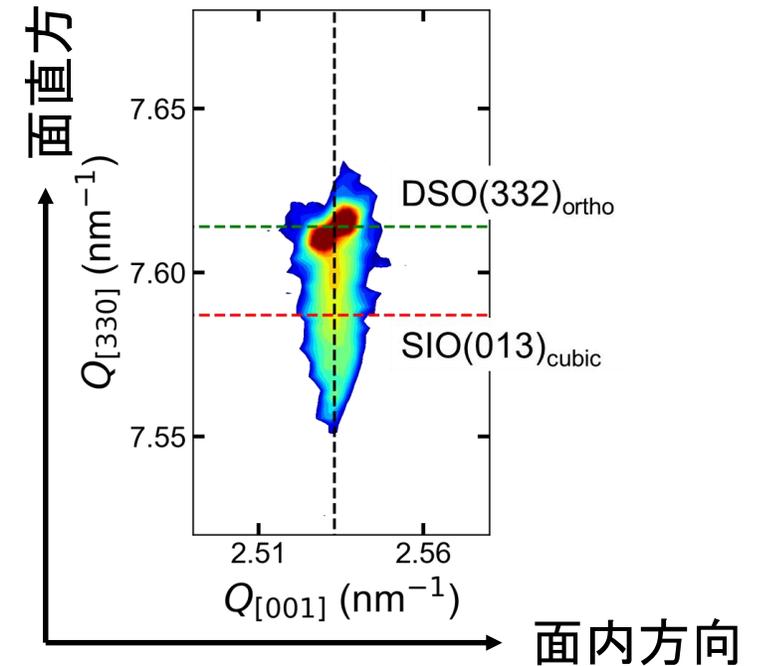
DyScO₃(110)基板

エックス線回折



単相、薄膜ピーク周りに明瞭なフリンジ

逆格子空間マッピング

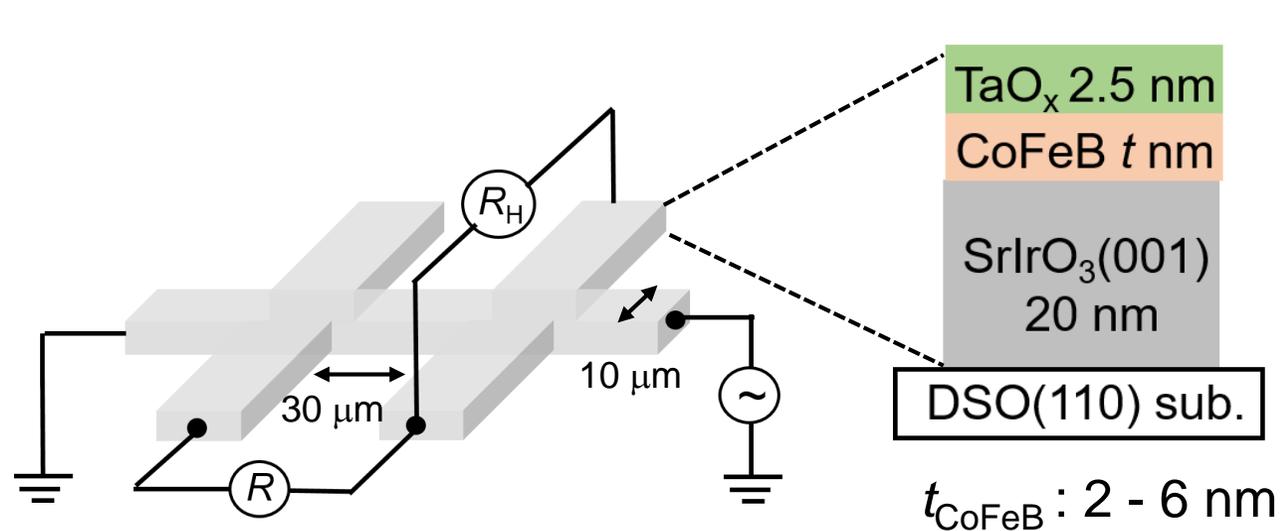


薄膜と基板の面内格子定数が一致

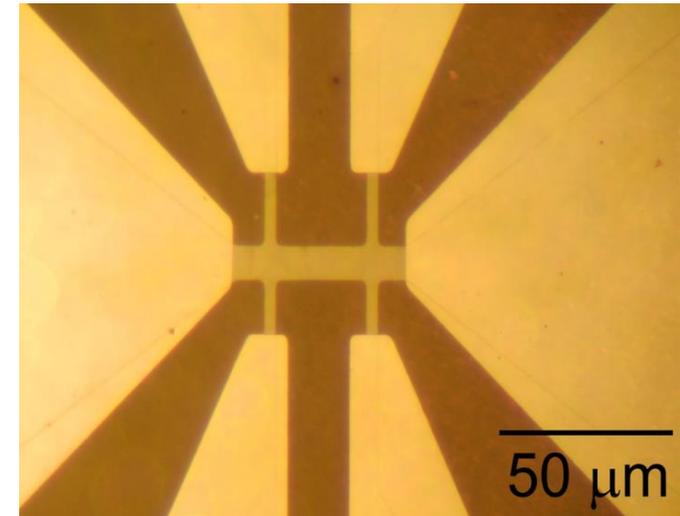
→ コヒーレントにSIOが成長

高品質なエピタキシャルSIO薄膜が作製

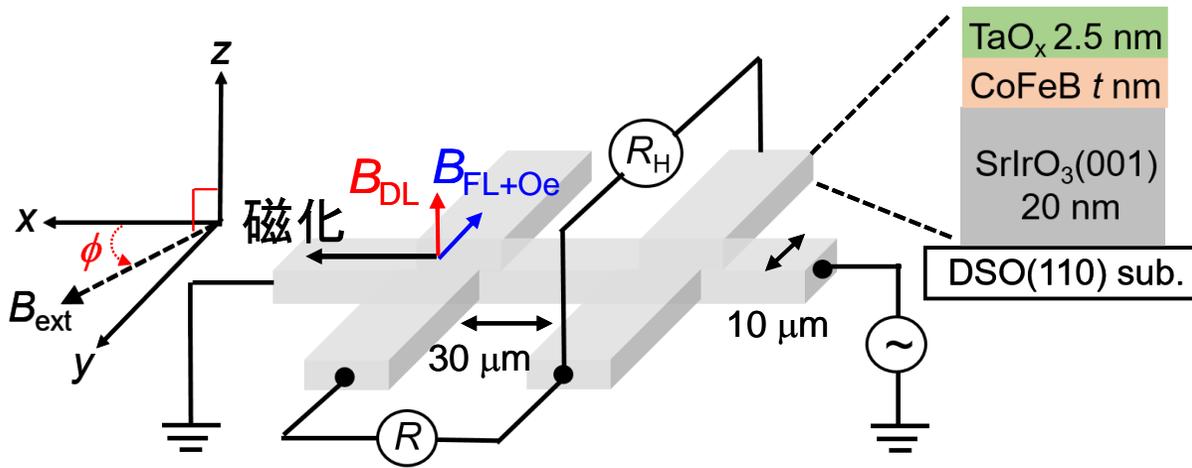
- マグネトロンスパッタ法 – 強磁性金属 $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$, 保護層Ta
- フォトリソグラフィ & Arミリング → ホールバー型デバイス



光学顕微鏡図



四端子抵抗 R 測定：電気抵抗率 $\rho \sim 190\ \mu\Omega\text{cm}$ (CoFeB)
 $\rho \sim 570\ \mu\Omega\text{cm}$ (SIO)



- ホール抵抗 R_H の角度依存性を測定

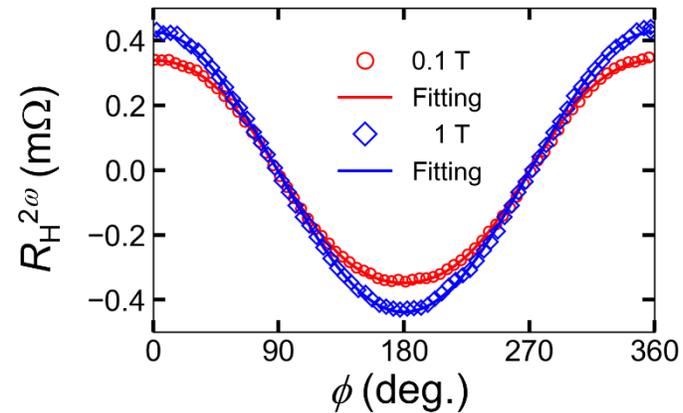
Avci et al., Phys. Rev. B (2014).

$$\circ R_H(t) \approx R_H^\omega \sin \omega t + R_H^{2\omega} \cos 2\omega t$$

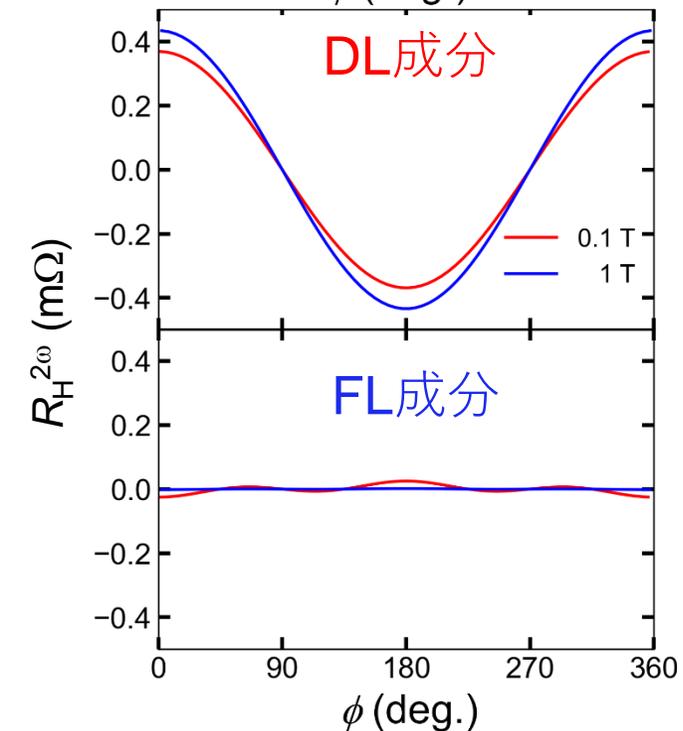
DC測定
の
ホール抵抗

スピン流による磁化の変調

CoFeB(6)/SIO



$$A \cos \phi + B(2 \cos^3 \phi - \cos \phi)$$



DL成分のみに注目

$$R_H^{2\omega} = A \cos \phi + B(2\cos^3 \phi - \cos \phi)$$

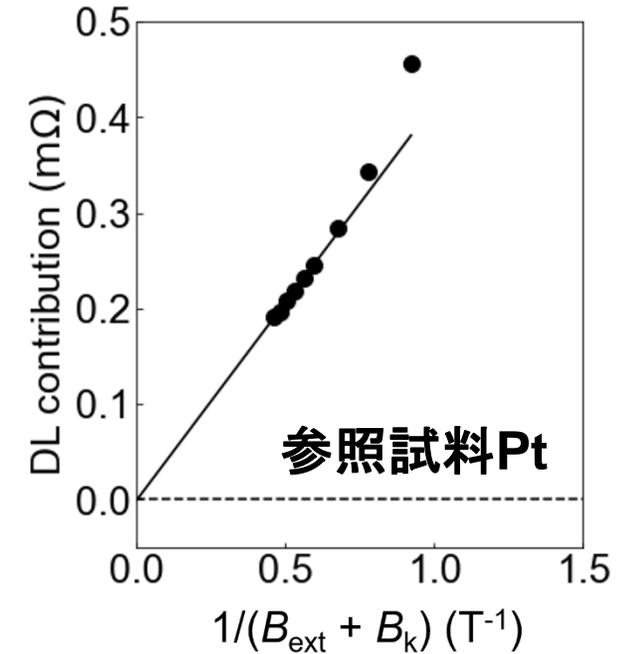
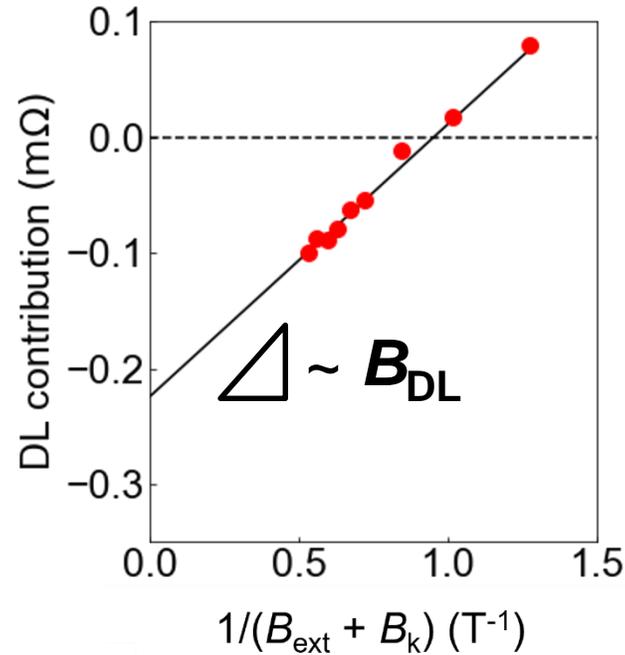
DL成分

$$A = \frac{R_{AHE} B_{DL}}{B_{ext} + B_k}$$

R_{AHE} : 異常ホール抵抗

B_k : 飽和磁場

→ 他より決定



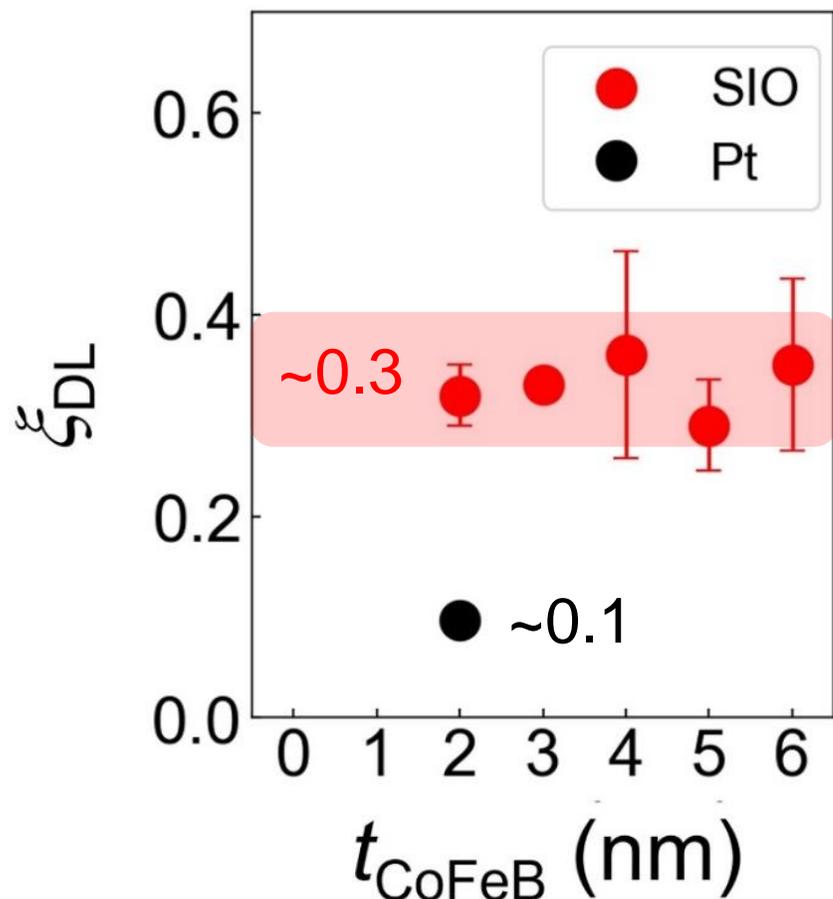
電流-スピンドル変換効率 (ξ_{DL})

$$\xi_{DL} = B_{DL} / J \times C$$

C : 磁化や磁性層の厚さを含むパラメータ

J : SIOに流れる電流密度 (分流比を考慮)

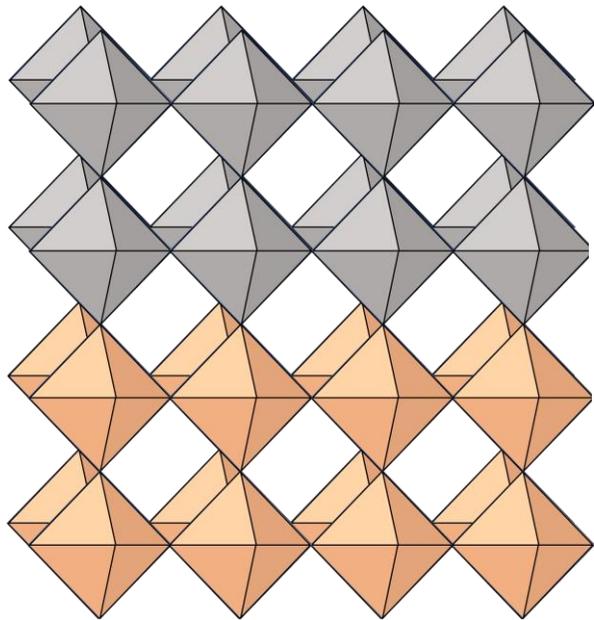
二層膜デバイス : CoFeB(t nm)/SrIrO₃(20 nm)



- ✓ CoFeB膜厚に依存しない
→ SIO由来のスピン流生成 (スピンホール効果)
- ✓ 実績のあるPtの3倍
→ 有力なスピン流生成物質



酸化物エピタキシャル界面を用いた
電流-スピン流変換の研究に期待



マンガン酸化物
($\text{La}_{0.7}\text{Ba}_{0.3}\text{MnO}_3$)

非磁性層: SrIrO_3

- ペロブスカイト構造
- 室温下において強磁性を発現
(組成に依存)
- SrIrO_3 との格子整合性が良好



格子欠陥の少ない理想的な界面が実現

→ T の増強が期待

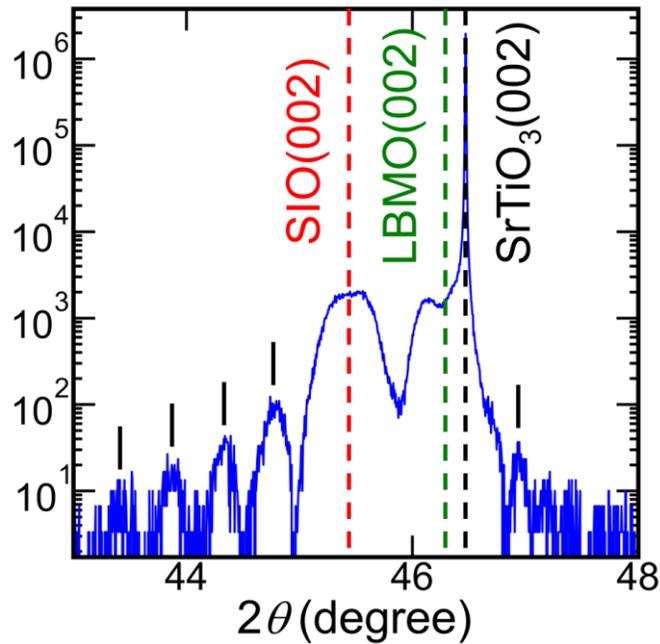
→ ξ_{DL} も増大

$$\xi_{\text{DL}} = T\theta_{\text{SH}}$$

$T \sim 20 - 40\%$: 金属二層膜 CoFeB/Pt , Co/Pt ...

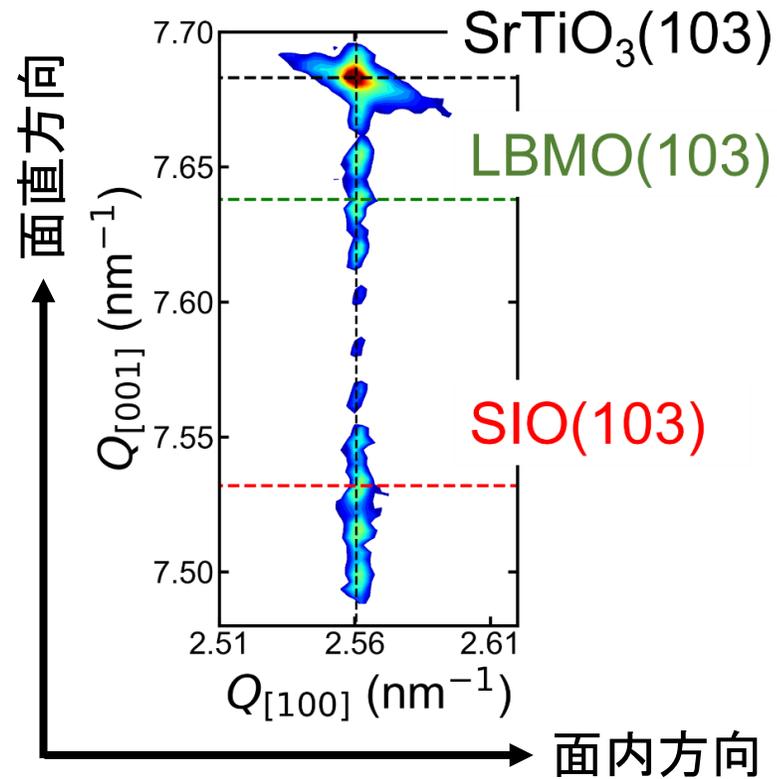
二層膜: SIO(15 nm)/(La_{0.7}, Ba_{0.3})MnO₃(20 nm)

エックス線回折



SIO, LBMO由来の薄膜ピーク
明瞭なフリンジ

逆格子空間マッピング



二層膜がコヒーレントに成長

原子レベルで制御
された界面の確認



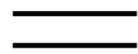
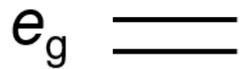
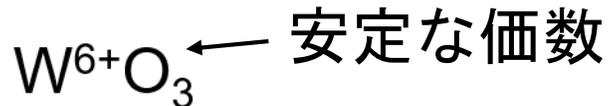
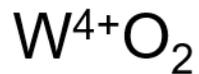
高品質界面の形成

他の5d酸化物：バンド絶縁体 ($5d^0$) が安定価数

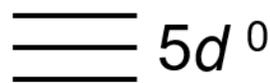
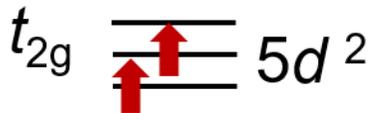
→ 価数制御により金属相が得られる系を探す

二元系タングステンW酸化物 WO_2

5d軌道: 5重縮退が分裂



導電性と強いスピン軌道相互作用
を合わせもつ5d電子系酸化物

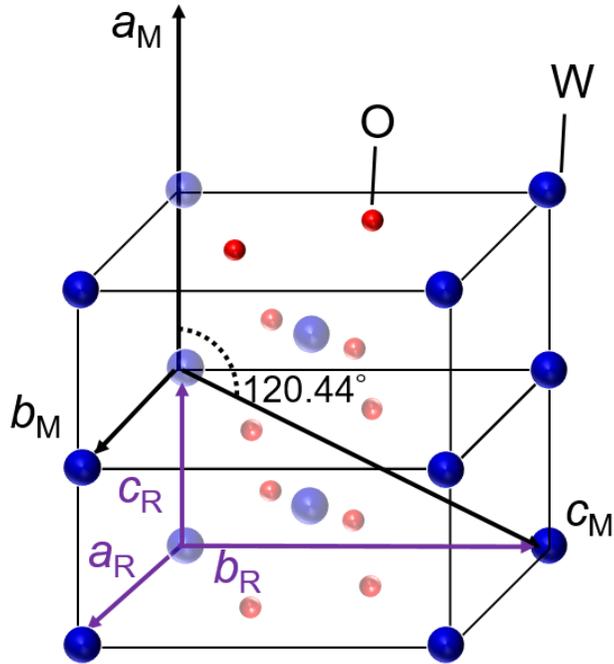


金属

バンド絶縁体

大きなスピンの期待

歪んだルチル構造



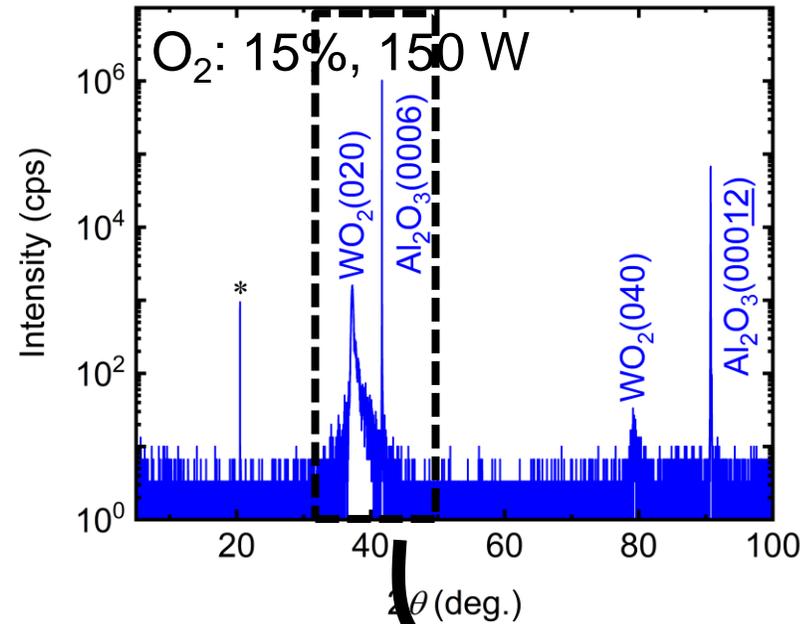
単斜晶構造

$$a_M = c_M \sim 5.56 \text{ \AA}, b_M \sim 4.89 \text{ \AA}$$

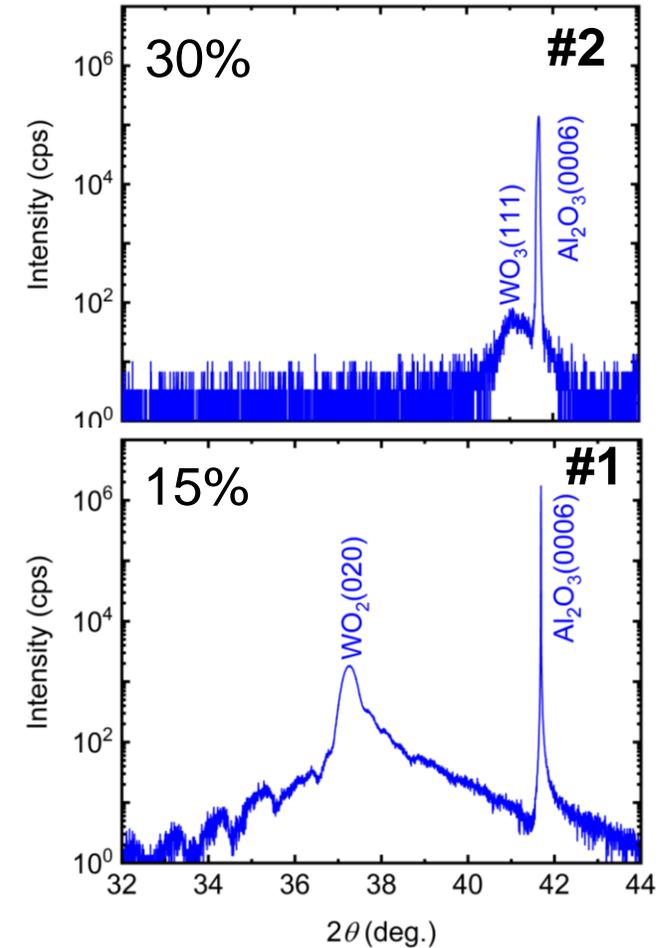
b軸配向

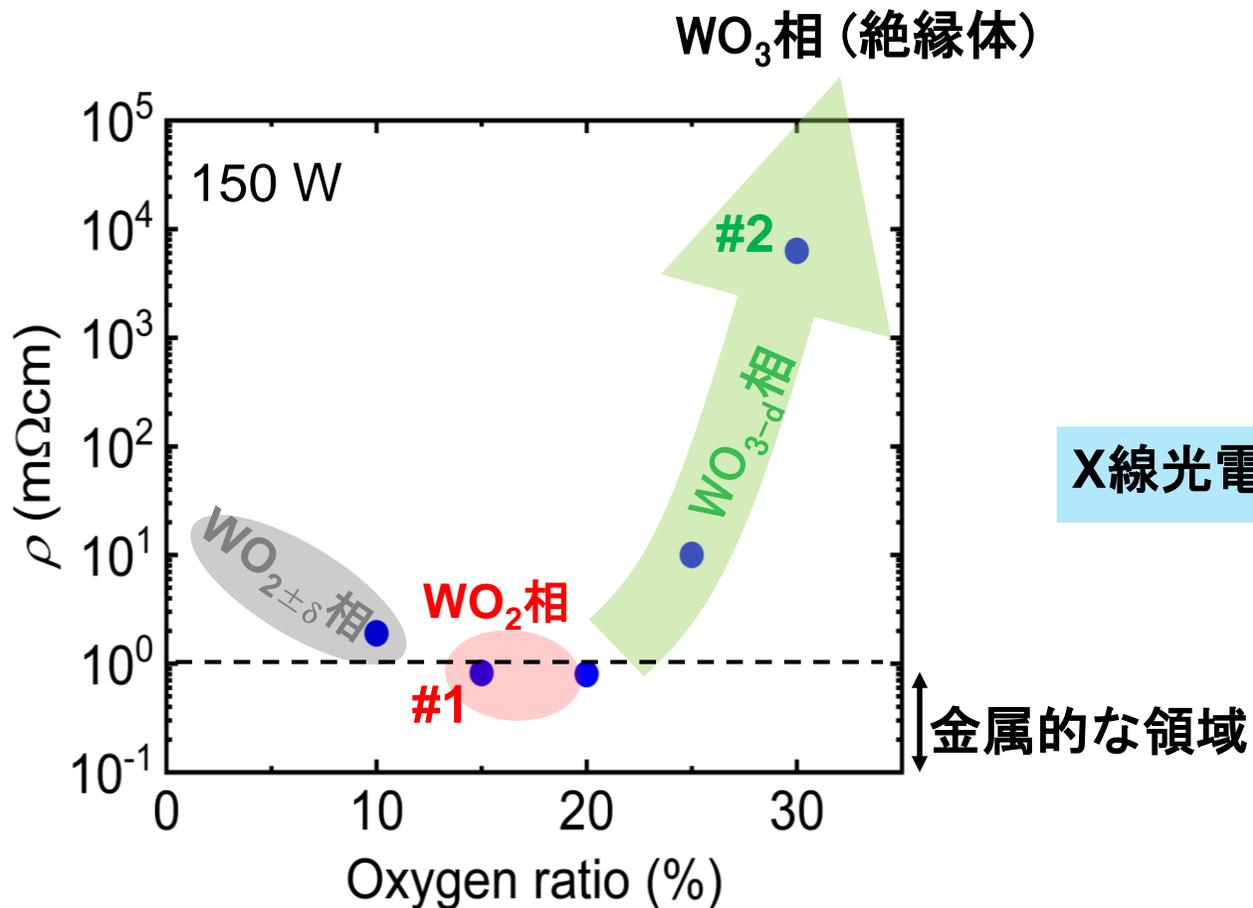
反応性スパッタ法：Ar：O₂比 & 電力 (W)制御

基板温度550°C, Al₂O₃ (0001)基板

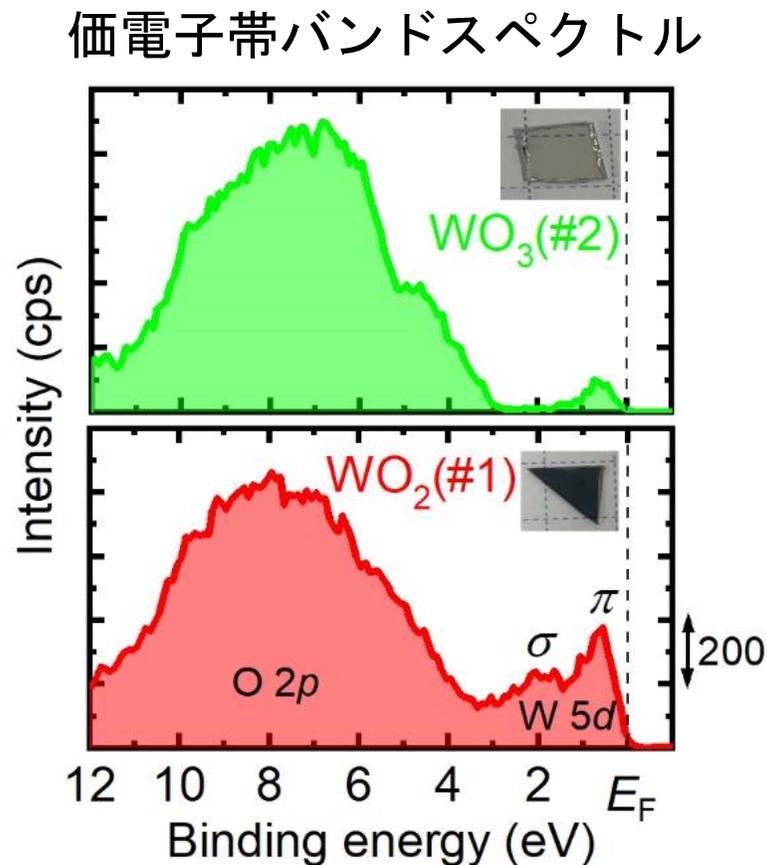


- ✓ 単相
- ✓ エピタキシャル成長





X線光電子分光



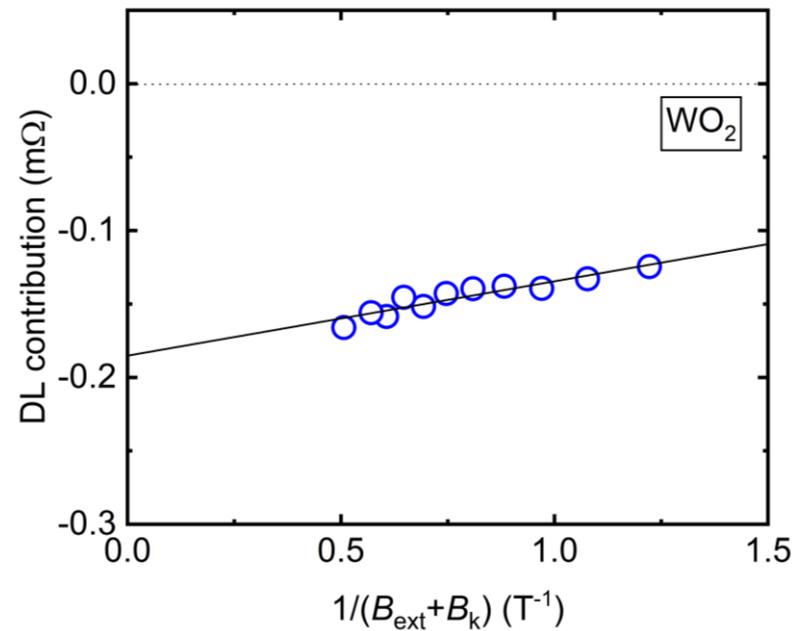
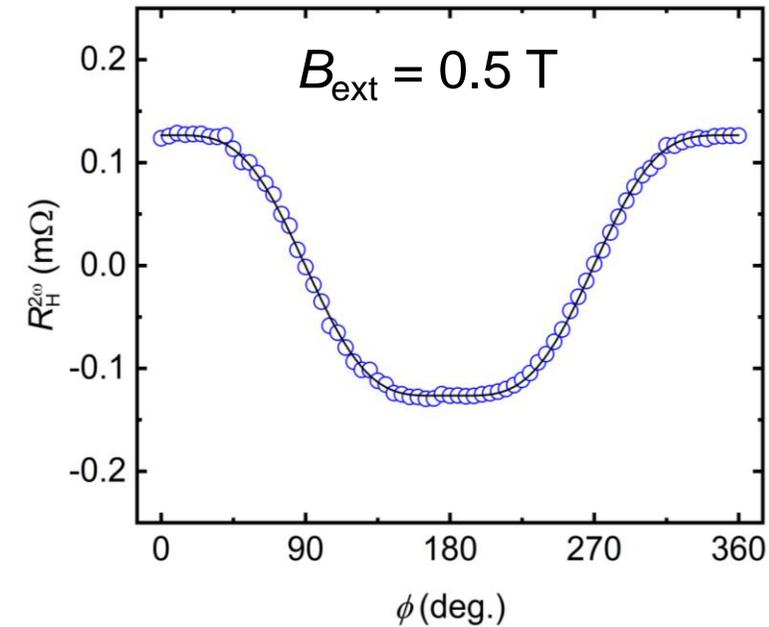
ルチル型WO₂に特有の2ピーク構造を観測

Jones *et al* Sur. Sci. (1997).

金属相WO₂ (5d²)の確認

二層膜デバイス：強磁性金属Ni₈₀Fe₂₀(3 nm)/WO₂(20 nm)

高調波測定



- ✓ WO₂のスピン流生成を観測
- ✓ $\xi_{DL} = +0.174$
→ 実績のあるPtと同程度

エピタキシャルWO₂は有力なスピントロニクス材料

酸化物薄膜創成を軸とする電流-スピンの変換に関する研究

- 。高効率電流-スピン変換デバイスの創出。新規なスピン生成物質を開拓

スピントロニクス研究における酸化物薄膜の有用性を示す成果



展望

酸化物界面のスピン物性を解明 & 電流-スピン変換効率の制御指針を獲得

磁気デバイスにおける基盤技術の更なる発展に貢献

謝辞：日本板硝子材料工学助成会からの支援に心から感謝します。