

# 5d 遷移金属酸化物を用いたエピタキシャル界面が もたらす高効率電流 - スピン流変換

大阪大学 大学院理学研究科 物理学専攻 上田浩平

Highly-Efficient Charge to Spin-Current Conversion Arising from  
Epitaxial Interface Based on 5d Transition Metal Oxide

Kohei Ueda

Department of Physics, Graduate School of Science, Osaka University

5d 遷移金属酸化物は、5d 電子の強いスピン軌道相互作用により支配される特異な電子構造を形成するため、スピン流物性を開拓するための有力な舞台である。本研究では、SrTiO<sub>3</sub>(001) 基板上に二層膜 SrIrO<sub>3</sub>(001)/(La<sub>0.7</sub>, Ba<sub>0.3</sub>)MnO<sub>3</sub>(001) を成膜し、そのエピタキシャル界面に起因した高効率電流 - スピン流変換を報告する。薄膜の面内格子定数は基板の面内格子定数に一致しており、高品質エピタキシャル二層膜が確認された。高調波ホール測定を行うことで、その変換効率は、既存の二層膜に比べて、1桁以上も大きい値が得られた。高い変換効率の要因は不明であるが、この結果はスピン流物性をより理解するための第一歩となる。このように、5d 遷移金属酸化物を用いた酸化物エピタキシャル界面は、高効率電流 - スピン流変換に重要な役割を担い、低消費電力で駆動する不揮発性磁気メモリ応用への道筋をつくる。

The 5d transition-metal oxides have a unique electronic structure only dominated by 5d electrons with strong spin-orbit coupling and hence they can be an intriguing platform to explore spin-current property. We report on highly-efficient charge to spin-current conversion at epitaxial interface of bilayer non-magnetic layer SrIrO<sub>3</sub> and magnetic layer (La<sub>0.7</sub>,Ba<sub>0.3</sub>)MnO<sub>3</sub>, where the bilayer composes of (001)-oriented SrIrO<sub>3</sub> and (La<sub>0.7</sub>,Ba<sub>0.3</sub>)MnO<sub>3</sub> films grown on STO (001) substrate. The film characterization reveals that both the in-plane lattice constants of the films correspond to that of the substrate, conveying high quality of epitaxial bilayer. By performing the harmonic Hall measurement, we find that the conversion efficiency exhibits more than an order of magnitude larger compared to typical bilayer devices based on ferromagnetic layer and SrIrO<sub>3</sub> or 5d transition metals such as Pt, W. While the high efficiency still remains unclear issue at current stage, it is a starting point to further understand the spin-current property. Thus, epitaxial oxide interface based on the 5d transition metal oxides plays a critical role in the highly efficient conversion, developing for non-volatile magnetic memory application with low power consumption.

## 1. はじめに

近年、情報化社会の基盤である電子デバイスの動作には大量の電力消費が生じるため、デバイスの省電力化が喫緊の課題である。この課題解決に向けて、電子のスピン角運動量

の流れであるスピン流を利用したスピントロニクスが重要な研究課題になっている。スピン流はナノからマイクロメートルのスケールで減衰するため、かつてはスピン流に由来する物理現象の観測は困難であった。近年のナノテクノロジーの発展により、異種物質界面、超格子、ナノデバイスなどを舞台として、スピン流の減衰距離よりも短いスケールの現象が観測され、その活用が検討されるようになってきている。中でも、ナノスケールの厚みを持つ強磁性体と非磁性体を組み込んだ磁気デバイスの電気的操作は必須であり、スピン軌道トルクを用いた磁化反転技術が次世代磁気メモリ開発の鍵となる。このスピン軌道トルク生成は、電流-スピン流変換（スピンホール効果）に由来する機能<sup>1)</sup>であり、強いスピン軌道相互作用を有する非磁性体に起因する。現在提案されている金属二層膜デバイス構造には、スピン軌道トルク生成に実績のあるPt<sup>2,5-7)</sup>、Ta<sup>3)</sup>、W<sup>4)</sup>などの非磁性5d遷移金属多結晶と強磁性金属が用いられている。ところが、金属の酸化によるデバイスの劣化、界面での構造インコヒーレンスによる電流-スピン流変換効率の低下、という二つの重要な問題があることが明らかとなってきた。

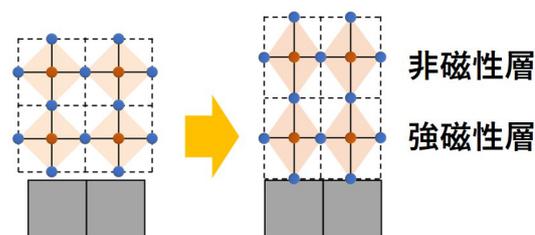
デバイス応用に向けて上記の問題を解決するために、酸化物のみで構成される二層膜を用いて高効率電流-スピン流変換デバイスの創出が必須である。酸化物は金属と比べ、基板との格子整合性に優れているため、エピタキシャル成長しやすい構造上の利点がある。同じ結晶構造を有する磁性層と非磁性層を用いれば、原子レベルで平坦なエピタキシャル界面が実現できる。さらに、申請者が取り組んでいる5d遷移金属酸化物のイリジウム酸化物SrIrO<sub>3</sub>は有望なスピン軌道トルク生成源として注目されている。本研究課題では、非磁性SrIrO<sub>3</sub>と強磁性マンガン酸化物(La<sub>0.7</sub>, Ba<sub>0.3</sub>)MnO<sub>3</sub>で構成されるエピタキシャル二層膜の作製及び高効率電流-スピン流変換の実証に関する成果を報告する。

## 2. 実験手順

### 2.1 薄膜合成と薄膜構造の評価

パルスレーザー堆積法によりセラミックターゲットに波長248nmのエネルギーを持つエキシマレーザーを照射することでエピタキシャル薄膜の作製を行う。チャンバー内の基板温度と酸素分圧を系統的に制御し、任意の基板の上にエピタキシャル成長する。次に、エックス線回折による $2\theta$ - $\theta$ スキャンを行い、基板と薄膜のピークを観測し、面直格子定数と厚さを決定する。面内方向の結晶配向を調査するために、逆格子空間図を得る。基板と薄膜物質の面内格子定数が一致することで、コヒーレントなエピタキシャル成長が実現する [Fig.1]。酸化物の利点は、基板とバルク物質の格子不整合性が~2%までの範囲でこのコヒーレンス成長が見込める。このような薄膜成長が出来る二層膜の界面は、スピン流物性を探求する重要な舞台となる。

### “コヒーレント”なエピタキシャル成長



基板と薄膜物質の面内格子定数が一致

Fig.1: 本研究において重要なエピタキシャル酸化物二層膜構造の概念図。高品質な界面形成が見込める。

### 2.2 デバイス加工とスピン軌道トルク測定

二層膜構造がエピタキシャル成長した薄膜にフォトリソグラフィとイオンミリングを用

いてホールバー構造のデバイスを作製する。参照試料として、二層膜デバイス強磁性金属  $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}/\text{SrIrO}_3$  の光学顕微鏡図を Fig.2(a) に示す<sup>7)</sup>。  $\text{SrIrO}_3$  についての詳細は 3.1 で述べる。その形状は幅  $10\mu\text{m}$  と長さ  $50\mu\text{m}$  である。  $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$  は強磁性金属として実績があり、二層膜構造に用いられている。スピン軌道トルク測定は、二倍波ホール抵抗  $R_{\text{H}}^{2\omega}$  を測定することで、非磁性層由来のスピン軌道トルク生成を観測する。このような高調波測定と呼ばれる測定法<sup>3,7)</sup>から、スピン流が磁化と相互作用することで生じるトルク~有効磁場の評価ができるため、電流-スピン流変換効率を得られる。同デバイスにおける高調波測定の結果を Fig.2(b) に示す。印加磁場を  $xy$  面内で回転させた時の  $R_{\text{H}}^{2\omega}$  の角度 ( $\phi$ ) 依存性を調査し、  $R_{\text{H}}^{2\omega}$  が印加磁場の増大と共に増加することを観測した。この結果は、  $\text{SrIrO}_3$  においてスピン流が生成していることに加えて、スピン流の寄与が外部磁場により抑制されていることを示す。

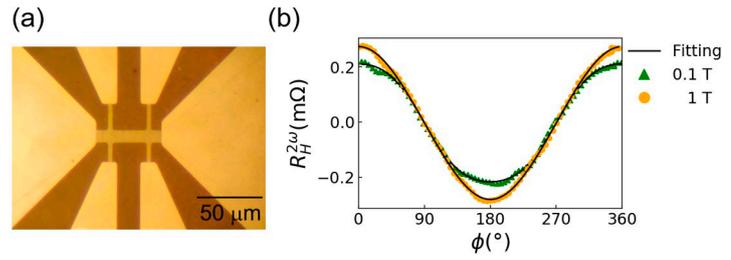


Fig. 2: (a) ホールバー構造を持つデバイスの光学顕微鏡図。(b) 外部磁場印加時 0.1 T と 1 T における二倍波ホール抵抗  $R_{\text{H}}^{2\omega}$  の面内角度 ( $\phi$ ) 依存性結果。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 エピタキシャル酸化物二層膜の作製 $\text{SrIrO}_3/(\text{La}_{0.7}, \text{Ba}_{0.3})\text{MnO}_3$

$5d$  遷移金属酸化物の代表であるイリジウム酸化物は、スピン-軌道モット絶縁体<sup>8)</sup>や半金属絶縁体転移<sup>9,10)</sup>のような多彩な物性を示すことで知られている。特にペロブスカイト構造を持つ  $\text{SrIrO}_3$  (以下、SIO) は、半金属の物性を持つことが自明であり、エピタキシャル薄膜合成により、デバイスに展開できるためスピン流測定が可能になる。これに対して、同構造を持つ Mn 酸化物は室温下において強磁性を発現することが知られており、磁気特性は元素置換や組成に強く依存する。

パルスレーザー堆積法により、(001) に配向した  $\text{SrTiO}_3$  (STO) 基板の上に  $\text{SrIrO}_3/(\text{La}_{0.7}, \text{Ba}_{0.3})\text{MnO}_3$  を成膜した。

ここで、STO 基板の格子定数は  $0.3905\text{nm}$ 、SIO と LBMO のバルクの格子定数は  $0.3950\text{nm}$  と  $0.3910\text{nm}$  である。そのため、理想的には STO 基板からの面内圧縮歪みの影響で、SIO と LBMO 薄膜における面直方向の格子定数がバルク値から伸びることが予想される。成膜条件は、SIO において基板温度

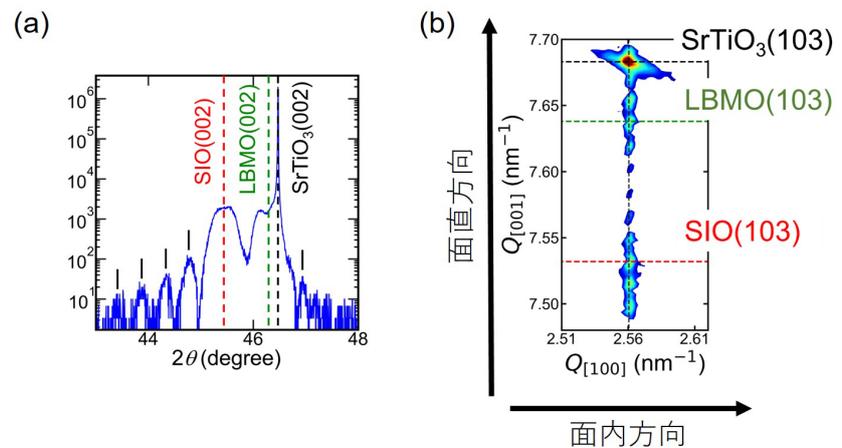


Fig. 3: (a) STO (002) 周りの  $2\theta$ - $\theta$  スキャン。SIO (002) と LBMO (002) 周りに明瞭なラウエフリッジ。(b) (a) の逆格子空間図。薄膜と基板の面内格子定数が揃うコヒーレント成長を実現し高品質な界面形成が期待される。

650°C、酸素分圧 190mTorr、LBMO において基板温度 710°C、酸素分圧 300mTorr である。二層膜 LBMO/SIO の作製後、そのエックス線回折から結晶性を評価した。Fig.3 (a)は STO (002) 基板周りの  $2\theta$ - $\theta$  結果を示している。基板と 2つの薄膜のみのピークが生じており、不純物の影響もなく単相であることから、SIO と LBMO のエピタキシャル成長が確認された。薄膜ピークから SIO と LBMO の格子定数は 0.3985nm、0.3981nm と見積もられ、バルク値より伸びた値は、面内圧縮歪みに起因していることが分かった。薄膜ピーク周りに明瞭なフリンジが観測され、膜厚は SIO において 18nm と LBMO において 20nm である。引き続き面内の結晶性を調べるために、Fig.3 (b) に示す逆格子空間図を得た。薄膜と基板の面内格子定数が揃っているため、コヒーレントなエピタキシャル成長を示している。このような酸化物二層膜から、高品質界面形成が見込めるため、スピン流研究に有力な舞台となる。

### 3.2 高効率電流—スピン流変換デバイスの実現

上述したように二層膜 SIO/LBMO デバイスを作製し、高調波測定を行った。 $R_H^{2\omega}$  に対して、スピン流が磁化に作用するトルクの成分を分離することで、dampinglike, DL トルクの寄与 (DL contribution) を見積る。Fig.4 (a) は、 $R_H^{2\omega}$  の面内角度依存性結果を示し、明瞭な  $\cos\phi$  成分が得られた。この係数が DL 成分に相当するため、その外部磁場依存性をプロットした結果を Fig.4 (b) に示す。傾きと異常ホール抵抗を考慮し DL トルクに相当する有効磁場  $B_{DL}$  を評価する。さらに、 $B_{DL}$  から非磁性層に流れる電流密度  $J$  と磁化率などのパラメータを考慮し、LBMO/SIO のスピン軌道トルク生成効率 ( $\xi_{DL} = +8$ ) が評価された。既存研究との比較のために、Fig.4 (c) は様々な 2 層膜における  $\xi_{DL}$  の結果を示す。強磁性金属との界面を持つ CoFeB/SIO 及び CoFeB/Pt において、前者は  $\xi_{DL} = +0.3^{7)}$ 、後者は  $\xi_{DL} = +0.1^{5-7)}$  と報告されている。これら先行研究の結果を比べても、SIO/LBMO における  $\xi_{DL}$  の増大は明白である。

この巨大な  $\xi_{DL}$  について議論する。一般的に、界面を介した  $\xi_{DL}$  は、 $\xi_{DL} = T_{int} \theta_{SH}$  の式で理解されている。 $T_{int}$  は界面のスピン透過率 ( $0 < T_{int} < 1$ )、 $\theta_{SH}$  はバルクのスピンホール角である。物質固有である  $\theta_{SH}$  はバルクの効果とみなされる一方で、 $T_{int}$  は界面品質に強

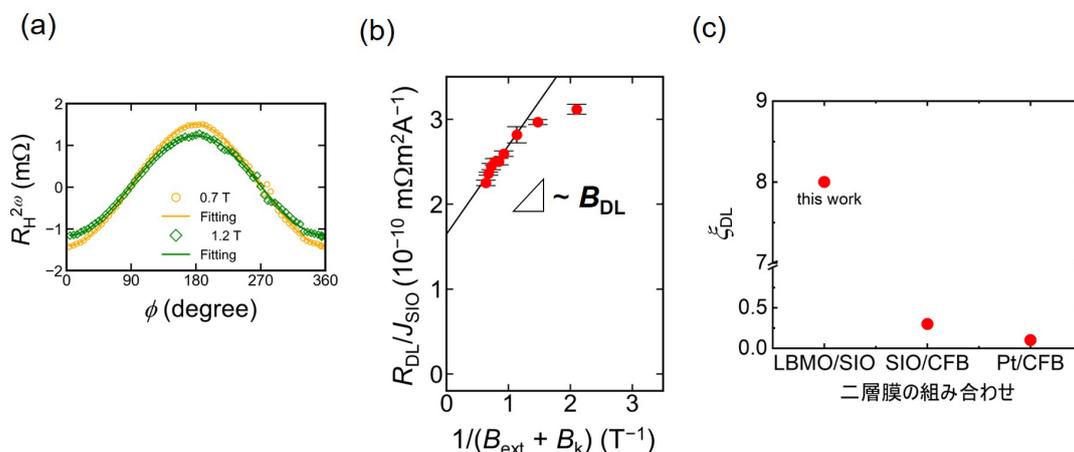


Fig.4: (a) SrIrO<sub>3</sub> (18nm) / (La<sub>0.7</sub>, Ba<sub>0.3</sub>)MnO<sub>3</sub> (20nm) デバイスにおける 2 倍波ホール抵抗の面内角度依存性。(b) 同デバイスにおける外部磁場依存性。(c) 様々な 2 層膜におけるスピン軌道トルク生成効率。CFB/SIO [7] と CFB/Pt [4,7] 参照。

く依存し  $T_{\text{int}}$  の増大と共に  $\xi_{\text{DL}}$  も増大する。これまでの金属二層膜の先行研究では、 $T_{\text{int}}$  が 0.2–0.5 と評価されている<sup>5,6)</sup>。しかし、本研究における SIO/LBMO の高品質界面において  $T_{\text{int}} \sim 1$  が実現されたとしても、 $\xi_{\text{DL}}$  の急激な増大は説明できない。SIO 由来のバルクのスピホール効果とは異なる界面に起因したスピ流生成機構が示唆される。現地点では、急激な  $\xi_{\text{DL}}$  の増大は不明であるが、エピタキシャル酸化物二層膜の形成は、既存の金属二層膜を凌駕する高効率電流 - スピ流変換デバイスの創出に貢献する。今後は、このような原子レベルで平坦なエピタキシャル界面に着目することで、高効率電流 - スピ流変換現象の理解を深めることが課題となる。

#### 4. 結論

本研究では、5d 遷移金属酸化物 SrIrO<sub>3</sub> を研究対象として、高品質な界面を有するエピタキシャル二層構造膜 SrIrO<sub>3</sub> / (La<sub>0.7</sub>, Ba<sub>0.3</sub>)MnO<sub>3</sub> を作製した。二層膜デバイスにおいて高調波測定を行うことで、スピ軌道トルク由来の明瞭なシグナルを検出した。結晶構造の異なる物質を用いた既存の二層膜と比べ、スピ軌道トルク生成効率が 1 桁以上も増大し、高効率電流 - スピ流変換効率デバイスの創出が実現された。生成効率の劇的な増大の原因は不明であるが、酸化物エピタキシャル界面は、スピ流生成現象の更なる理解と変換効率の高効率化に迫るための有力な舞台となりえる。今後の一つの有望な方向性として、酸化物薄膜では、電子構造やフェルミ準位の制御が一般的な金属薄膜より容易であるため、スピ軌道トルクの効率や符号を電界で操作することが期待できる。このような展望を踏まえると、5d 遷移金属酸化物は、スピ流を用いた磁化制御の基盤技術を革新させる可能性を秘めている。

#### 5. 謝辞

本研究は、令和 3 年度日本板硝子材料工学助成会の研究助成を受けて行ったものである。同助成会に心より感謝いたします。

#### 6. 参考文献

- 1) Y. Otani, M. Shiraishi, A. Oiwa, E. Saitoh, S. Murakami, Nat. Phys. **13**, 829 (2017).
- 2) I. M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, and P. Gambardella, Nature **476**, 189 (2011).
- 3) C. O. Avci, K. Garello, M. Gabureac, A. Ghosh, A. Fuhrer, S. F. Alvarado, and P. Gambardella, Phys. Rev. B **90**, 224427 (2014).
- 4) C.-F. Pai, L. Liu, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Appl. Phys. Lett. **101**, 122404 (2012).
- 5) W. Zhang, W. Han, X. Jiang, S.-H. Yang, and S. S. P. Parkin, Nat. Phys. **11**, 496 (2015).
- 6) C. F. Pai, Y. X. Ou, L. H. Vilela-Leao, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Phys. Rev. B **92**, 064426 (2015).
- 7) S. Hori, K. Ueda, T. Kida, M. Hagiwara, J. Matsuno, Appl. Phys. Lett. **121**, 022402 (2022).
- 8) B. J. Kim, H. Ohsumi, T. Komesu, S. Sakai, T. Morita, H. Takagi, T. Arima, Science **323**, 6 (2009).

- 9) J. Matsuno, K. Ihara, S. Yamamura, H. Wadati, K. Ishii, V. V. Shankar, H.-Y. Kee, and H. Takagi, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 247209 (2015).
- 10) D. J. Groenendijk, C. Autieri, J. Girovsky, M. C. Martinez-Velarte, N. Manca, G. Mattoni, A. M. R. V. L. Monteiro, N. Gauquelin, J. Verbeeck, A. F. Otte, M. Gabay, S. Picozzi, and A. D. Caviglia, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 256403 (2017).