

# チタン酸ストロンチウム表面における磁気伝導層の開発

## Study on magneto-transport at a ferromagnetic surface of SrTiO<sub>3</sub>

京都大学大学院工学研究科電子工学専攻 助教 大島 諒

Department of Electronic Science and Engineering, Kyoto University, Ryo OHSHIMA

### 要旨

本研究は、チタン酸ストロンチウム(SrTiO<sub>3</sub>)表面に形成される二次元電子系におけるスピン輸送特性の解明、および新たなスピン機能開発を目的とする。ワイドギャップ半導体である SrTiO<sub>3</sub> は、表面を他の酸化物絶縁体(LaAlO<sub>3</sub>)でキャップ、あるいはイオンミリング処理を施すことで、表面に二次元的な電気伝導層が形成される。このように形成される二次元電子系は周りが絶縁体で覆われており、他の二次元材料(グラフェンなど)に比べ外部擾乱に強くバルク伝導がないという強みを有している。一般に電気伝導は遍歴した  $s/p$  軌道電子が担うが、SrTiO<sub>3</sub> 表面は、Ti の  $3d$  軌道電子が遍歴するという特徴があるため、他の非磁性材料とは異なるスピン輸送特性を持つことが期待できる。また、局在した  $d$  軌道電子は遷移金属における磁性の起源であり、SrTiO<sub>3</sub> 表面に電子ドーピングすることで強磁性が発現するといった報告も存在する。二次元電子系内での強磁性相の形成は、スピン輸送の制御・検出を可能とする。SrTiO<sub>3</sub> におけるスピン伝導について、強磁性相が担う役割を解明することが最終目標である。

### 1. はじめに

スピントロニクスは、電子が有する 2 つの自由度である電荷とスピンを同時に制御することで、多機能かつ省電力なデバイスを実現することを目的とした学術領域である。電流とは電荷を伴う電子の流れであるが、ここで、それら電子のスピンが偏極しているとき、同時にスピン情報も伝送されることとなる。これをスピン流と呼ぶ。中でも、電荷の流れを伴わないスピン流を純スピン流と呼ぶが、これを用いた情報伝達は、電流によるジュール損が限りなく低減されるため省電力化が期待されている。一方で、電子スピンは保存量ではないため、スピン流は伝搬中にそのスピン情報を失う。そのため、スピントロニクスでは長距離スピン輸送を可能とする材料の探索・開発が広く行われている。加えて、スピンが非保存量であるが故に、スピン流の検出も大きな課題の一つである。物理量の観測は対象が保存量であることが必要なため、スピン流は別の物理量に変換することで観測が可能となる。スピ

ン流の電気的な検出手法としては、スピン軌道相互作用を利用した電流への変換、あるいは強磁性体中の電気伝導度のスピン依存性を利用した観測がある。一般にこれら検出手法の逆効果はスピン流の生成方法であり、スピン流をよりよく生成・検出できる材料についても積極的に研究されている。

これまで長距離スピン輸送が報告されてきた材料は、シリコン・グラフェン・銅などスピン軌道相互作用の小さな軽元素で構成された材料である。一方、スピン流と電流の間の相互変換は、変換がスピン軌道相互作用を通じて行われるため、スピン軌道相互作用の大きな材料が好しい。そのため、スピンデバイスはスピン流の生成・輸送・検出にそれぞれ好適なスピン軌道相互作用を持つ材料を接合したデザインをとることが一般的である。しかし、実際に理想的な接合界面を作成することは困難であり、界面の存在がスピン流生成・検出のボトルネックとなっている。近年ではグラフェン上に同じく原子膜材料である遷移金属ダイカルゴゲナイド

(TMD)を載せることで、TMDの持つ強いスピン軌道相互作用をグラフェン側に転写することが可能であり、スピン流チャンネルには接合界面がないという画期的な構造を実現した研究が報告されているが、グラフェンの電気伝導は大気中の水和物イオン等により強く影響を受けるほか、TMD転写前の酸化等の影響もあり、応用化への課題は多い。

本研究では、チタン酸ストロンチウム( $\text{SrTiO}_3$ )表面に形成される二次元電子系について研究する。 $\text{SrTiO}_3$ はワイドギャップ半導体( $E_g \sim 3.3 \text{ eV}$ )であるが、表面を他の酸化物絶縁体( $\text{LaAlO}_3$ )でキャップ、あるいはイオンミリング処理を施すことで、表面に二次元的な電気伝導層が形成される。[1,2] この酸化物表面に形成された二次元電子系は、以下のような特性を持つ: (i) 外部擾乱に強く、バルク伝導が無視できる、(ii) 伝導電子が遍歴  $d$  軌道電子である、(iii) 電子ドーピングによる強磁性が報告されている [3–5]、(iv) 面直方向の電場に起因するラシュバ型のスピン軌道相互作用を持つ、(v) バルクが低温において  $10^4$  を超える誘電率を有し、バックゲート電圧が効果的に印加できる。一般に電気伝導は遍歴した  $s/p$  軌道電子がその役割を担うが、 $\text{SrTiO}_3$  は Ti の  $3d$  軌道による電子バンドにフェルミ面が存在し、電気伝導は  $d$  軌道電子がキャリアとなる。ここで、スピン流のキャリアは伝導電子であるため、 $\text{SrTiO}_3$  では他の非磁性材料とは異なるスピン輸送特性を持つことが期待できる。

内含する豊かな物性と期待される非凡なスピン輸送特性とは裏腹に、 $\text{SrTiO}_3$  のスピントロニクスでの研究展開は数えるほどである。理由の一つとして、 $\text{SrTiO}_3$  表面の特性は、従来スピン輸送に不利である特性であることが挙げられる。ラシュバ型のスピン軌道相互作用に由来した高効率なスピン流－電流変換が報告されているが [6]、これは前述の通り、スピン軌道相互作用の大きなスピン輸送に不適な材料が示す特徴である。また、強磁性もスピンの散乱要因であるとされている。強磁性の起

源である  $d$  軌道電子が伝導電子であることもまた、スピン輸送に不適だと考えられる要素の一つである。しかし、我々は、従来の常識に囚われることなく論文を精査することで、 $\text{SrTiO}_3$  表面でのスピン輸送の可能性を見出し、室温での長距離スピン輸送を達成した。[7] スピン輸送長はスピン拡散長というパラメータで定義づけられるが、 $\text{SrTiO}_3$  表面ではスピン拡散長が室温で  $340 \text{ nm}$  と、スピン輸送に好適な材料である銅と同程度の長さであることが分かった。これは、 $\text{SrTiO}_3$  が、従来共存し得ないスピン輸送とスピン流生成・検出の双方に好適な材料であることを示唆する結果である。

遍歴  $d$  軌道電子が示した長距離スピン輸送の起源について検討する上で、ここではチャンネルの磁性について着目した。 $\text{SrTiO}_3$  表面のキャリア密度は、チャンネルが強磁性とならない領域を用いたが、一方で、実験結果は何らかの磁性の存在を示唆する結果が得られている。図1に先行研究 [7] のデバイス構造を示す。 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  上に、スピン流源である強磁性  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  (Py) 細線と、スピン流検出電極である白金 (Pt) 細線をそれぞれ作成する。外部磁場とマイクロ波により Py 中の磁化を揺らすことで、スピン角運動量保存則からスピン流が生成される。 $\text{SrTiO}_3$  表面を拡散伝導するスピン流は、大きなスピン軌道相互作用を持つ Pt 細線へと流れ込み、電流へと変換される。スピンの向き(外部磁場の向き)に対応した Pt 細線での起電力から、スピン輸送が観測できる。図2に得られる起電力を示す。磁化の歳差運動が最大となる外部磁場(共鳴点、 $H = H_{\text{FMR}}$ )にてスピン流生成が最大となり、起電力も明瞭なピークを示す。このとき、スピン流はマイクロ波の吸収強度に比例するため、共鳴点に対して対称なローレンツ型の曲線(Sym)を描く。一方、マイクロ波を印加しているため、強磁性体は異常ホール効果(AHE)による起電力を出力する。これは共鳴点に対して非対称な形をと

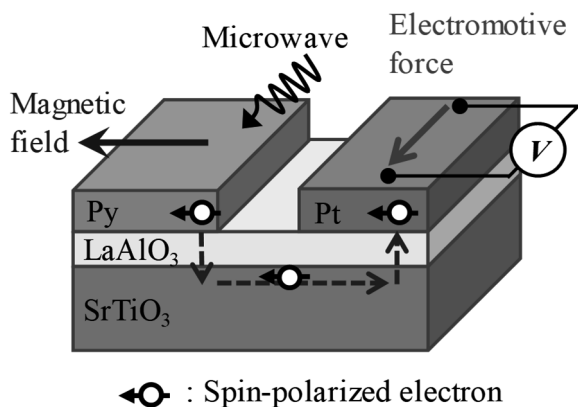


図 1: スピン輸送測定の設定アップ

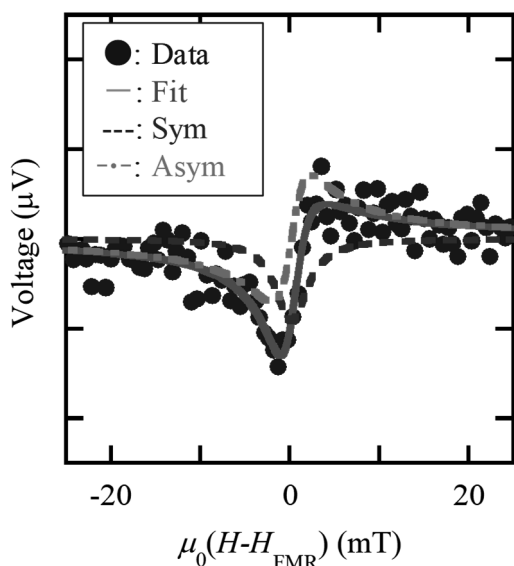


図 2: スピン輸送の実験結果

る (Asym)。一般に AHE はスピン流生成源である Py に由来するが、今回用いた LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> は抵抗が高く、Py 由来の起電力がわずか 10% 未満しか Pt に重畳しないことが実験から分かっているため、得られた結果の Asym 成分は Py から由来する起電力だけでは説明できない (Py のみでは実験結果の 10 分の 1 程度になる見込み)。よって、この AHE 成分の起源がチャンネルの強磁性に由来すると思った。実際、チャンネル自体のキャリア密度は非磁性となるよう調整したが、電極の存在によりキャリアが誘起され、かつスピン偏極するといった報告も

ある。[8] これは、Pt やパラジウムと強磁性体を接合すると、界面近傍で非磁性体も磁化するという近接効果と同様の効果であり、元々キャリア密度変調により強磁性体になるという報告が理論・実験共にある LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> で生じる可能性は大いにあると考えられる。また、この磁気伝導層について研究することで、先に挙げた TMD/グラフェンデバイスのような、同一チャンネルを用いた高効率なスピン流生成・輸送・検出が可能となる新規デバイス提案が可能になる。

本研究では、SrTiO<sub>3</sub> 表面の磁気伝導層について研究するため、強磁性電極を用いた SrTiO<sub>3</sub> 表面の近接効果強磁性層の実現、およびスピン輸送由来の磁気抵抗効果の観測を目的とする。当初の計画では非磁性層を用いた測定を検討していたが、近接効果で得られる磁気モーメントは小さいことが予想されるため、磁化方向の制御が容易である強磁性電極を用いることとした。

## 2. 実験方法

作成したデバイス構造を図 3 に示す。より大きな信号を得るために、チャンネルに強磁性電極 (Py) を複数本並べた構造をしている。Py 電極は幅の異なる 2 種類 (0.5 μm 幅と 3.0 μm 幅) が 363 組存在し、その外側に、電流印加および電圧降下測定用の非磁性電極 (Au/Ti) を用意した。Py 電極の長手方向に外部磁場を印加すると、Py 中の磁化は磁場方向へと揃う。形状磁気異方性により 2 つの Py 電極の反転磁場値が異なるため、外部磁場を掃引することで磁化の平行状態と反平行状態が実現する。このとき電極間のスピン輸送があれば、磁化配置に依存した電気抵抗の変化が観測できる。測定にはクライオスタットによる冷却と電磁石による磁場印加を用いた。基板の裏面には銀ペーストを用いて導通を確保し、バックゲート電圧を印加できるようにした。本実験では抵抗を下げるため  $V_G = +40$  V を印加した。測定は 4 K で行った。

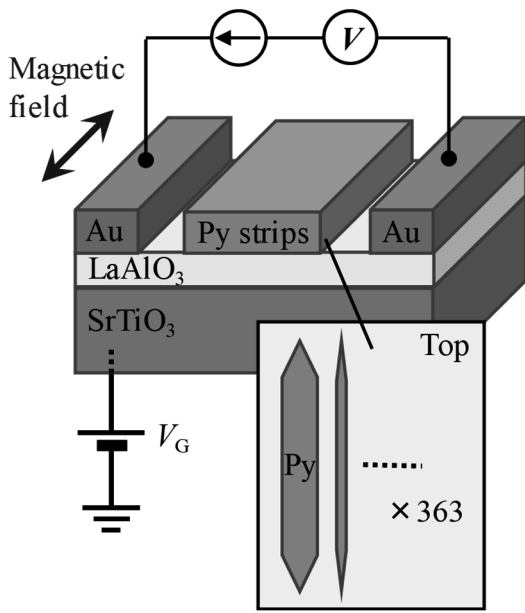


図 3: 作成したデバイス構造

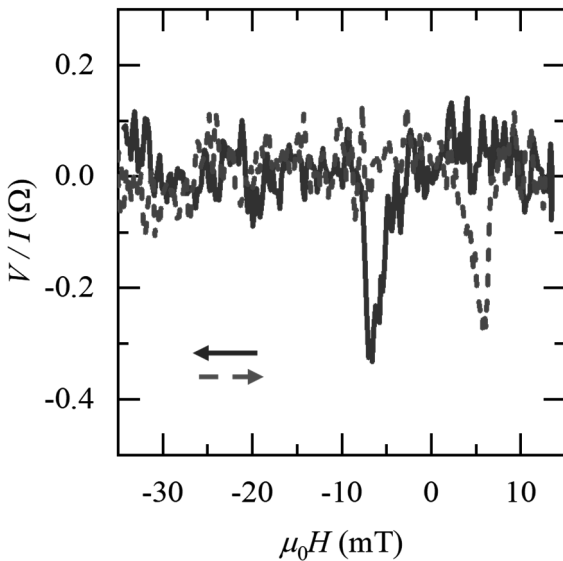


図 4: 非磁性電極二端子間の磁気抵抗

### 3. 実験結果

図 4 に観測された磁気抵抗を示す。図中の矢印は、磁場の掃引方向を示す。正磁場については、 $0.5 \mu\text{m}$  細線の Py の保持力 (25 mT 程度) より十分小さい。つまり、 $0.5 \mu\text{m}$  細線の磁化は負の磁場方向に固定され、 $3.0 \mu\text{m}$  細線の磁化のみが反転する (7 mT 程度)。磁化反転のタイミングで、Py 細線の

磁化配置が平行・反平行が切り替わる。今回はスピン輸送に起因するヒステリシス曲線 [9] は得られなかったが、磁化反転のタイミングで急峻な抵抗の変化が観測できた。起源として Py 細線の磁化変化に伴う異方性磁気抵抗効果 (AMR) が考えられる。しかし、有限要素法を用いた解析により Py 細線を通る電流を見積もったところ、デバイス中を通る電流のおよそ  $2 \times 10^{-5} \%$  しか流れていないことが分かった。Py 中の AMR は 1 % 以下であるため、Py の AMR から期待できる磁気抵抗はたかだか  $10^{-7} \%$  しか見込めない。一方、今回の実験で得られる磁気抵抗の大きさは  $6 \times 10^{-3} \%$  であり、Py 細線の AMR だけでは説明できない。そこで、近接効果により誘起された SrTiO<sub>3</sub> 表面の強磁性層における AMR を考える。先の解析から電流はおよそ全てチャンネル中を流れるため、強磁性層の AMR は  $6 \times 10^{-3} \%$  程度となるが、これは Py の AMR に比べて十分小さく、近接効果により発現したとしても妥当な値であると言える。

### 4. まとめ

本研究では、SrTiO<sub>3</sub> 表面における AMR を示唆する磁気抵抗が得られた。反転磁場が Py 細線の磁化反転と対応していることから、期待通り近接効果によるチャンネル中の磁化方向の制御を強磁性電極によって制御できたとと言える。一方、近接強磁性層間のスピン輸送は観測できなかった。理由としては、(i) 高抵抗基板上での微細加工技術の問題から細線間の距離が  $1.0 \mu\text{m}$  と広いこと、(ii) SrTiO<sub>3</sub> の誘電率の温度変化に起因する内部電場の変化によりスピン軌道相互作用が変化し、室温とはスピン輸送特性が大きく異なる、などが挙げられる。SrTiO<sub>3</sub> の誘電率は 10 K 以下で室温の 100 倍にまで上昇するが、これにより表面における内部電場が増大すれば、Rashba 型のスピン軌道相互作用が大きくなり、スピンもより散逸される。上記を踏まえ、絶縁体基板など高抵抗な基板上におけ

る微細加工技術をより改良し、電極間距離を狭めたデバイス作成を目指す。また、磁気抵抗の温度依存性についても検討する予定である。

## 謝辞

本研究を援助していただいた公益財団法人京都技術科学センターに感謝致します。

## 参考文献

- [1] A. Ohtomo and H. Y. Hwang, *Nature* **427**, 423 (2004).
- [2] J.-W. Chang, J. S. Lee, T. H. Lee, J. Kim, and Y.-J. Doh, *Appl. Phys. Express* **8**, 055701 (2015).
- [3] Ariando, X. Wang, G. Baskaran, Z. Q. Liu, J. Huijben, J. B. Yi, A. Annadi, A. R. Barman, A. Rusydi, S. Dhar, Y. P. Feng, J. Ding, H. Hilgenkamp, and T. Venkatesan, *Nat. Commun.* **2**, 188 (2011).
- [4] S. Sengupta, E. Tisserond, F. Linez, M. Monteverde, A. Murani, T. Rödel, P. Lecoeur, T. Maroutian, C. Marrache-Kikuchi, A. F. Santander-Syro, and F. Fortuna, *J. Appl. Phys.* **124**, 213902 (2018).
- [5] Z. Q. Liu, W. M. Lü, S. L. Lim, X. P. Qiu, N. N. Bao, M. Motapothula, J. B. Yi, M. Yang, S. Dhar, T. Venkatesan, and Ariando, *Phys. Rev. B* **87**, 220405(R) (2013).
- [6] E. Lesne, Y. Fu, S. Oyarzun, J. C. Rojas-Sánchez, D. C. Vaz, H. Naganuma, G. Sicoli, J.-P. Attané, M. Jamet, E. Jacquet, J.-M. George, A. Barthélémy, H. Jaffrès, A. Fert, M. Bibes, and L. Vila, *Nat. Mater.* **15**, 1261 (2016).
- [7] R. Ohshima, Y. Ando, K. Matsuzaki, T. Susaki, M. Weiler, S. Klingler, H. Huebl, E. Shikoh, T. Shinjo, S. T. B. Goennenwein, and M. Shiraishi, *Nat. Mater.* **16**, 609 (2017).
- [8] R. Arras, V. G. Ruiz, W. E. Pickett, and R. Pentcheva, *Phys. Rev. B* **85**, 125404 (2012).
- [9] T. Sasaki, Y. Ando, M. Kamenno, T. Tahara, H. Koike, T. Oikawa, T. Suzuki, and M. Shiraishi, *Phys. Rev. Applied* **2**, 034005 (2014).