

令和 3 年 6 月 29 日現在

機関番号：32629

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化(A））

研究期間：2018～2020

課題番号：18KK0414

研究課題名（和文）人工ナノ歪制御技術を用いた圧電・強磁性ナノコンポジット薄膜素子の創製

研究課題名（英文）Artificial nano strain induced ferromagnetic material nanocomposite films

研究代表者

三浦 正志（Miura, Masashi）

成蹊大学・理工学部・教授

研究者番号：10402520

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 9,200,000円

渡航期間： 12ヶ月

研究成果の概要（和文）：本研究では、人工ナノひずみ制御技術を熱電や超伝導だけでなく、スピントロニクスデバイスに発展させることを目指した。成果として(1)銅酸化物超伝導薄膜に新たなひずみを導入し、電気特性向上に成功した。(2)新ニッケル酸化物超伝導薄膜へのひずみの影響を調べるために、還元処理によりひずみを制御し、従来の超伝導とは異なる特徴的な振舞いを見出した。(3)酸化物強磁性薄膜へのひずみを印加するため、異なる基板に酸化物強磁性薄膜を作製し、磁化特性の向上に成功した。(4)磁気抵抗メモリ応用に期待されているトポロジカル絶縁体/磁性薄膜へのひずみを印加・制御するため、熱処理によりひずみ制御した薄膜は高い特性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電気電子材料のなかでも超伝導、熱電やスピントロニクス材料などの機能性エピタキシャル薄膜は、SDGsやSociety5.0社会に役立つ様々な応用に期待されている。本研究で開発した独自「ナノコンポジット薄膜創製」、「キャリア制御」、「ひずみ制御」、「界面制御」等の新技術は、様々な機能性電気電子材料の金属-絶縁転移、超伝導特性、磁性特性、熱電特性、スピンホール特性などの機能を最大限に引き出す手段として有用な技術である。

研究成果の概要（英文）：(1) We developed a method of introducing a nanostrain into the cuprate superconductor thin film, and succeeded in further improving the electrical characteristics. (2) In order to investigate the effect of strain on the nickel oxide superconducting thin film, nanostrain was controlled by reduction treatment, and the effect of them on high magnetic field characteristics was investigated. (3) In order to apply and control strain on the oxide ferromagnetic thin films, we prepared film on the different substrates. We study the effect of magnetization on the temperature dependence and succeeded in improving the magnetization characteristics. (4) We studied the spin-orbit torques on hetero-structures thin film by using second harmonic Hall and spin-torque ferromagnetic resonance techniques. The spin torque efficiency corresponding to the y-spin polarization from nanostrain controlled MnPd3 thin films grown on thermally oxidized silicon substrate was improved.

研究分野：電気電子材料

キーワード：強磁性材料 トポロジカル絶縁体 磁気抵抗メモリ 超伝導

様式 F-19-2

1. 研究開始当初の背景

これまで機能性酸化物エピタキシャル薄膜は、基板上に成長させるため下地の格子定数や組成などによるひずみの影響を受けることが分かっている。例えば、異なる基板に薄膜を作製するとひずみが異なるため VO_2 薄膜の金属-絶縁体転移温度(T_M)、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ 薄膜の磁化特性や $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 薄膜の超伝導転移温度(T_c)が異なる。これまで代表者は、鉄系超伝導、銅酸化物超伝導や酸化物熱電エピタキシャル薄膜への新たな人工ナノひずみ制御技術として基板からのひずみ導入技術に加えて、元素置換による化学圧力によるひずみ導入やナノ異相によるひずみ導入を開発し、それらが機能性エピタキシャル薄膜の電気特性に影響を及ぼすことを明らかにしてきた。本研究では、人工ナノひずみ制御技術を熱電や超伝導薄膜だけでなく、電子が有する磁石としての性質(スピン)を利用したスピントロニクスデバイスに発展させることを目指した。

2. 研究の目的

本研究では、海外共同研究者と共同し、大きく分けて4つの研究課題に取り組み、人工ナノひずみ制御技術により機能性エピタキシャル薄膜の機能向上を目指した。

(1) 有機金属分解(MOD)法を用いて銅酸化物超伝導 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (Y123)薄膜に新たなひずみを導入する手法を開発し、それらが電気特性である臨界電流密度に及ぼす影響を明らかにする。(2) PLD(パルスレーザー蒸着)法を用いて、新たに発見されたニッケル酸化物超伝導 $(\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{NiO}_2$ ((Pr,Sr)112)薄膜へのひずみの影響を調べるために、還元処理によりナノひずみを制御し、それらが電気特性である臨界磁場特性に及ぼす影響を明らかにする。(3) MOD法を用いて酸化物強磁性 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ ((La,Sr)113)薄膜へのひずみを印加・制御するため、異なる基板上に LSMO 薄膜を作製し、磁化の温度依存性に及ぼす影響を明らかにする。(4) スパッタ法を用いて磁気抵抗メモリ応用に期待されているトポロジカル絶縁体/磁性 $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{MnPd}_3/\text{CoFeB}/\text{MgO}/\text{Ta}$ 薄膜へのひずみを印加・制御するため、蒸着後の熱処理により薄膜へのひずみを制御しにスピンホール角、スピンホール伝導率、磁化反転電流密度にそれらが及ぼす影響を明らかにする。

3. 研究の方法

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜及び $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜作製には、固相法の一つである MOD 法を用いた。 $(\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x)\text{NiO}_2$ 薄膜及び MnPd_3 薄膜作製には、気相法である PLD 法及びスパッタ法をそれぞれ用いた。作製した薄膜の結晶構造は、X線回折(X-ray diffraction, XRD)法を用いた。電気特性は、四端子法を用いて評価した。薄膜表面観察には、高解像度光学顕微鏡、微細構造観察には走査透過型電子顕微鏡(Scanning transmission electron microscopy, STEM)、組成分析をエネルギー分散型 X線分光法(Energy dispersive X-ray spectroscopy, EDX)を用いて行った。

4. 研究成果

(1) ナノ組織制御 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ 薄膜

Y123 薄膜は、 c 軸に圧縮ひずみを印加することでよりキャリア密度が増え、臨界温度(T_c)や臨界電流密度(J_c)の向上が期待できる。そこで本研究では、MOD 法を用い RE123 超伝導相より c 軸長の長い $\text{Y}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_8\text{O}_x$ (Y248)の導入により RE123 薄膜の c 軸に圧縮ひずみを印加する技術を開発した。その結果、微細構造観察より Y248 でサンドイッチされた RE123 超伝導体は、 c 軸長が圧縮されていることが確認された。その結果、Y248 でサンドイッチされた RE123 薄膜のキャリア密度は増加し T_c や J_c を向上させることに成功した。

(2) ナノ組織制御($\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x$) NiO_2 薄膜

RE123 超伝導体の Cu^{2+} と同じ $3d^9$ 電子構造を持つ Ni^{2+} を含むニッケル酸化物 ($\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x$) NiO_2 薄膜が $T_c \sim 12 \text{ K}$ の超伝導になることが 2019 年発表された。そこで、本研究では Nd を Pr に変えることでイオン半径の違いによる化学圧力がこれら無限層 (RE,Sr)112 の超伝導特性にどのような影響を及ぼすかを検討するため、PLD 法により ($\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x$) NiO_2 薄膜を作製した。($\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x$) NiO_2 薄膜のひずみを制御するために 113 構造から 112 構造にする際の還元処理環境を制御した結果、最適条件で作製した ($\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x$) NiO_2 薄膜の臨界磁場 (B_{c2}) や J_c が ($\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x$) NiO_2 に比べて高いことを発見した。また、($\text{Pr}_{1-x}\text{Sr}_x$) NiO_2 超伝導は、s 波的超伝導、マルチバンドなど RE123 超伝導とは異なる特徴を示すことが明らかになった。

(3) ナノ組織制御 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜

これまでの研究より基板を変えることで、 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜の格子定数を変えることで磁化特性の温度依存性が変化することが知られている。そこで、本研究では、MOD 法を用いてナノサンドイッチ構造によるひずみ印加技術により $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜へのひずみを印加・制御した。その結果、基板からのひずみのみの $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜に比べてナノサンドイッチ構造によるひずみ印加した薄膜は、室温でも従来よりも高い磁化特性を示す事が明らかになった。

(4) ナノ組織制御 MnPd_3 薄膜

トポロジカル絶縁体は、電気伝導率の低さにより、磁性金属との接合において、大部分の電流が磁性金属側に流れてしまい、スピンの発生に寄与しないという問題がある。そこで、本研究ではスパッタ法を用いて磁気抵抗メモリ応用に期待されているトポロジカル絶縁体/磁性 $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{MnPd}_3/\text{CoFeB}/\text{MgO}/\text{Ta}$ 薄膜を作製し、蒸着後の熱処理により薄膜へのひずみを制御しそれらが特性に及ぼす影響を調べた。その結果、最適熱処理を施した MnPd_3 薄膜は、従来のトポロジカル絶縁体に比べて高いスピントロニクスデバイスに適したスピンホール角、スピンホール伝導率、磁化反転電流密度を得ることに成功した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Osada Motoki, Wang Bai Yang, Goodge Berit H., Lee Kyuho, Yoon Hyeok, Sakuma Keita, Li Danfeng, Miura Masashi, Kourkoutis Lena F., Hwang Harold Y.	4. 巻 20
2. 論文標題 A Superconducting Praseodymium Nickelate with Infinite Layer Structure	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 5735 ~ 5740
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.nanolett.0c01392	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計22件（うち招待講演 0件/うち国際学会 15件）

1. 発表者名 M. Miura
2. 発表標題 Recent results on flux pinning in nanoparticle-doped TFA-MOD REBa ₂ Cu ₃ O _y Coated Conductors
3. 学会等名 32th International Symposium on Superconductivity 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 G. Tsuchiya, J. Kawanami, M. Miura, M. Kiuchi and T. Matsushita
2. 発表標題 Film thickness dependence of in-field J _c in (Y,Gd)BaCuO+BaMO ₃ (M=Zr, Hf) nanoparticle CCs
3. 学会等名 32th International Symposium on Superconductivity 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Miyata, J. Nishimura, S. Anno, M. Miura, A. Ibi and T. Izumi
2. 発表標題 The in-field J _c in RTR-PLD EuBa ₂ Cu ₃ O _y +BaHfO ₃ coated conductors
3. 学会等名 32th International Symposium on Superconductivity 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 J. Ohta, K. Shimizu, M. Miura, A. Ibi, K. Nakaoka and T. Izumi
2 . 発表標題 The influence of carrier density on the in-field J_c of (Y,Gd)BCO+BZO CCs
3 . 学会等名 32th International Symposium on Superconductivity 2019 (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T.Furuya, Y. Kamada, K. Sakuma and M. Miura
2 . 発表標題 Enhanced critical current density in TFA-MOD (Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy films on CeO2 buffered R-Al2O3 substrates
3 . 学会等名 32th International Symposium on Superconductivity 2019 (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Sakuma, Y. Kamada, S. Anno, and M. Miura
2 . 発表標題 Properties of electron-doped high temperature superconductor Nd _{2-x} Ce _x CuO ₄ Films deposited by TFA-MOD
3 . 学会等名 32th International Symposium on Superconductivity 2019 (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 G. Tsuchiya, J. Kawanami, M. Miura, M. Kiuchi and T. Matsushita
2 . 発表標題 Film thickness dependence of in-field J_c in (Y,Gd)BaCuO+BaZrO ₃ nanoparticle CCs
3 . 学会等名 14th European Conference on Applied Superconductivity (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Miyata, S. Anno, J. Nishimura, M. Miura, A. Ibi and T. Izumi
2 . 発表標題 The influence of BaHfO ₃ nanorods on the in-field J _c for RTR-PLD EuBa ₂ Cu ₃ O _{7-y} CCs
3 . 学会等名 14th European Conference on Applied Superconductivity (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 J. Ohta, K. Shimizu, M. Miura, A. Ibi, K. Nakaoka and T. Izumi
2 . 発表標題 The influence of O ₂ annealing condition on the in-field J _c of (Y,Gd)BCO+BZO CCs
3 . 学会等名 14th European Conference on Applied Superconductivity (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Furuya, Y. Kamada, K. Sakuma and M. Miura
2 . 発表標題 The enhanced J _c in TFA-MOD (Y,Gd)BCO+BZO films on CeO ₂ / R-Al ₂ O ₃ substrates
3 . 学会等名 14th European Conference on Applied Superconductivity (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Harada, G. Tsuchiya, M. Miura, K. Tanabe, M. Kiuchi and T. Matsushita
2 . 発表標題 Enhanced J _c in BaZrO ₃ nanoparticles doped BaFe ₂ (AsO _{0.66} P _{0.33}) ₂ films
3 . 学会等名 14th European Conference on Applied Superconductivity (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Sakuma, Y. Kamada, and M. Miura
2. 発表標題 High Jc TFA-MOD-(Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy films on CeO2 buffered R-Al2O3 substrates
3. 学会等名 14th European Conference on Applied Superconductivity (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 太田 順也, 清水 一輝, 三浦 正志, 中岡 晃一, 和泉 輝郎
2. 発表標題 酸素アニール温度がTFA-MOD法 (Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy + BaM03線材のキャリア濃度及び超伝導特性に及ぼす影響
3. 学会等名 2020年第67回応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 土屋 豪, 原田 工夢, 川浪 隼也, 三浦 正志, 木内 勝, 松下 照男
2. 発表標題 BaM03ナノ粒子導入(Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy線材における 磁場中臨界電流密度の膜厚依存性
3. 学会等名 2020年第67回応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 宮田健司, 西村隼, 安野秀治, 三浦正志, 衣斐顕, 和泉輝郎
2. 発表標題 BaHf03ナノロッド導入Reel-to-Reel-PLD法EuBa2Cu3Oy線材の 磁場中Jc特性の評価
3. 学会等名 2020年第67回応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 古谷 大起, 鎌田 哲徳, 作間 啓太, 三浦 正志
2. 発表標題 TFA-MOD法(Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy+ BaHfO3/CeO2/R-Al2O3薄膜 の臨界電流密度
3. 学会等名 2020年第67回応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Masahiro Saito, Junya Ohta, Keita Sakuma and Masashi Miura
2. 発表標題 The influence of the introduction of BaZrO3 nanoparticles on the superconducting properties of TFA-MOD La2-xBaxCuO4 films
3. 学会等名 Applied Superconductivity Conference 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Koudai Kobayashi, Jun Nishimura, Keiichi Sato, Masashi Miura and Masaru Kiuchi and Teruo Matsushita
2. 発表標題 The effect of BaHfO3 nanoparticles on Jc in a longitudinal magnetic field for multilayered TFA-MOD (Y0.77Gd0.23)Ba2Cu3Oy Coated Conductors
3. 学会等名 Applied Superconductivity Conference 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 齋藤優大, 太田順也, 作間啓太, 三浦正志
2. 発表標題 TFA-MOD法を用いた BaZrO3ナノ粒子導入(La2-xBax)CuO4薄膜の作製
3. 学会等名 2020年度秋季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高橋 洸, 宮田 健司, 三浦 正志, 横江 大作, 加藤 文晴, 衣斐 顕, 和泉 輝郎
2. 発表標題 Reel-to-Reel PLD法EuBa ₂ Cu ₃ O _y + BaHfO ₃ 線材の 磁場中超伝導特性
3. 学会等名 2020年度秋季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 原田 工夢, 土屋 豪, 三浦 正志, 木内 勝, 松下 照男
2. 発表標題 BaZrO ₃ ナノ粒子導入によるBaFe ₂ (As _{1-x} P _x) ₂ 薄膜の磁場中超伝導特性向上
3. 学会等名 2020年度秋季低温工学・超電導学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Masashi Miura, Go Tsuchiya, Takeharu Kato, Ryuji Yoshida, Koichi Nakaoka, Teruo Izumi, Masaru Kiuchi, Teruo Matsushita
2. 発表標題 Recent results on flux pinning in nanoparticle-doped TFA-MOD REBa ₂ Cu ₃ O _y Coated Conductors
3. 学会等名 International Symposium on Superconductivity 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

https://researchmap.jp/MasacMiura/ http://www.sd.seikei.ac.jp/lab/per/Research_map https://researchmap.jp/MasacMiura/ 成蹊大学理工学部電力・エネルギー研究室(三浦正志研究室) http://www.sd.seikei.ac.jp/lab/per/
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
主たる渡航先の主たる海外共同研究者	ファン ハロルド (Hwang Harold)	スタンフォード大学・応用物理・教授	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
米国	スタンフォード大学			