

令和 2 年 6 月 1 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2019

課題番号：18K18935

研究課題名（和文）高スピン軌道相互作用酸化物ヘテロ構造での磁気スキルミオンの創出とナノスケール観察

研究課題名（英文）Creation and nanoscale observation of magnetic skyrmions at large spin-orbit coupling oxide heterostructures

研究代表者

福村 知昭（Fukumura, Tomoteru）

東北大学・材料科学高等研究所・教授

研究者番号：90333880

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：磁気スキルミオンを発現する新たな材料系として、希土類単酸化物の開拓を行った。パルスレーザー堆積法により初めて新強磁性体NdOとPrO薄膜および高圧相fcc構造のPr薄膜を合成した。LaO / EuOヘテロエピタキシャル構造では、磁気スキルミオンの発現を示唆する結果は得られなかったが、スピンホール磁気抵抗の検出に成功した。低温走査型トンネル顕微鏡システムを用いて、SrVO₃超薄膜とPr薄膜のin-situ測定を行った結果、SrVO₃超薄膜では表面再構成に起因する金属-絶縁体転移を観測し、Pr薄膜では電子定在波を観測することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

次世代の高密度・低消費電力磁気メモリーの情報の担い手として磁気スキルミオンは注目を集めており、その発現原理の追求と共に、デバイス応用へ適した新たな材料系の開拓が望まれている。多彩な物性を示す希土類単酸化物とヘテロ構造は、その候補材料として有望であることを示す結果が得られ、それらの新物質を超高真空中でその場観察できる手法を構築できた。今後、磁気スキルミオン発現の原理追求や新奇スピントロニクスデバイスの開拓にも応用していく。また、高圧相のfcc構造をもつPr薄膜の合成成功は、常圧における高圧相物性の探索、例えば4f電子の遍歴化など、を可能にし、新たな機能性材料を生み出す可能性がある。

研究成果の概要（英文）：We explored electronic and magnetic properties of rare-earth monoxides as new candidate materials that generate magnetic skyrmions. New ferromagnetic NdO and PrO and high pressure phase fcc type Pr epitaxial thin films were synthesized for the first time by pulse laser deposition (PLD). LaO / EuO heteroepitaxial structure showed clear spin Hall magnetoresistance in spite of no trace of magnetic skyrmions. Using low-temperature scanning tunneling microscopy with PLD, we performed in-situ experiments of SrVO₃ ultrathin films and Pr thin films. In SrVO₃ film, two surface reconstructions were observed to influence electronic states, which probably are connected with the metal-insulator transition. In Pr thin film, electronic standing waves were observed in their differential conductance maps.

研究分野：酸化物スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス 走査型プローブ顕微鏡 酸化物エレクトロニクス エピタキシャル成長 スキルミオン

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

磁気スキルミオンは、数ナノメートル (nm) ~ 数百 nm のサイズをもつ磁気モーメントが渦状に配列した特異な磁気構造である。磁気スキルミオンは、そのサイズがナノメートルスケールであること、トポロジカルに安定であること、磁壁と比較して数桁小さな電流密度で駆動できることから、次世代の高密度・低消費電力磁気メモリーの情報の担い手として期待されている。そこで、磁気スキルミオンの基本的な性質に加え、磁場や電流への応答を明らかにするため、実空間での磁気スキルミオン観察がさかんに行われている。

磁気スキルミオンを発現するためには、磁気モーメント間にねじれを誘起するジャロシンスキー・守谷相互作用が必要で、その作用を引き起こす空間反転対称性の破れが磁性体に求められる。これまで、磁気スキルミオンの実空間観察は、空間反転対称性がない螺旋磁性体バルク試料 (MnSi や FeGe など) に対して、透過型電子顕微鏡 (TEM) を用いて行われてきた。これらの研究により、磁気スキルミオンが安定した準粒子として振る舞い周期的な三角格子を組む様子や、格子の接合界面では大きさや形の異なる磁気スキルミオンが生成されること、微小な電流により磁気スキルミオンが動く様子などが明らかにされてきた。

しかしながら、デバイス応用の観点からはバルク試料より薄膜材料の方が有望であり、電界でのスキルミオン制御という観点からは金属より半導体や絶縁体の方が望ましい。そこで、磁気スキルミオンを発現する基本原理の追求に加えて、新たな材料の開拓が望まれている。一方、実空間観察の従来法である TEM は、試料中を透過してきた電子の偏向を利用するため、試料が十分薄い (約 0.2 μm 以下) 必要がある。超薄膜の狭い領域に磁気スキルミオンを生成する場合、TEM 観察用に基板を削って薄くする際に生じる欠陥がスキルミオンをトラップしてしまうという問題が起こる。そこで磁気スキルミオンを実空間で観察する新たな手法の確立が必要とされている。

2. 研究の目的

(1) パルスレーザー堆積法 (PLD) を用いて強磁性酸化物薄膜 / 非磁性酸化物薄膜のヘテロ構造を作製し、ヘテロ界面における空間反転対称性の破れを利用して強磁性酸化物薄膜中に磁気スキルミオンの生成を試み、新たな材料系を開拓する。

磁気スキルミオンを生成する新たな材料系として、希土類単酸化物を検討する。それまで気相の存在しか知られていなかった希土類単酸化物 YO の単結晶薄膜の合成に世界で初めて成功し、これまでに LaO、NdO、SmO、YbO、LuO の合成に成功した。希土類単酸化物のほとんどは良好な電気伝導性を示し、室温強磁性や超伝導といった多彩な物性を示すことがわかってきた。また、希土類単酸化物が単純な岩塩 (NaCl) 構造をもつことから、超格子などのエピタキシャルヘテロ構造の作製が比較的容易であることが予想され、SmO / EuO のヘテロ構造の作製にも成功した。また、つい最近、超伝導体中に磁気スキルミオンを誘起できるという理論の論文 [Phys. Rev. Lett. **119**, 167001 (2017)] が発表され、今後他にも様々な材料が提案されることが予想される。超伝導 (LaO) や遍歴強磁性 (NdO) など多彩な物性を示す希土類単酸化物は、磁気スキルミオンを生成する新たな材料の探索にも大きな可能性を秘めている。

(2) 高い空間分解能とスピン分解能をもつスピン偏極走査型トンネル顕微鏡 (スピン偏極 STM) を、磁気スキルミオンの実空間観察に応用する。

スピン偏極 STM は、強磁性体など磁気モーメントをもつ探針を用いて、トンネル磁気抵抗効果により、試料表面の磁化方向を検出することができる。ベクター磁石を利用すると、磁化の x 、 y 、 z 方向の 3 成分を検出でき、磁化ベクトルを導出できる。原子サイズから数百 nm のスケールで磁気構造を実空間で画像化できることから、磁気スキルミオンの観察に適している。また、微分コンダクタンスの測定から電子状態を明らかにすることができ、表面原子構造観察と併せて、磁気スキルミオン物理の微視的理解が得られる。

3. 研究の方法

(1) PLD を用いて、希土類単酸化物の単結晶薄膜とエピタキシャルヘテロ構造を作製する。薄膜とヘテロ構造作製中の結晶性とエピタキシャル成長を反射高速電子線回折 (RHEED) により確認し、作製後は X 線回折による結晶構造解析を行う。磁気スキルミオンが生成されると、ホール抵抗の磁場依存性に、正常ホール効果や異常ホール効果と異なるトポロジカルホール効果が発現することが報告されている。そこで、作製した薄膜とヘテロ構造に磁気スキルミオンが生成された可能性を議論するためホール抵抗測定を行う。

(2) PLD システムと低温 STM を組み合わせた装置を用いて、作製した薄膜を大気へ晒すことなく、薄膜作製から低温 STM 測定まで一貫して行う。薄膜の表面形状や構造を調べるために STM 観察を行い、電子状態を明らかにするために微分コンダクタンススペクトル測定を行う。

4. 研究成果

(1) 先行研究から YAlO_3 (110)基板に作製した強磁性半導体 EuO 薄膜は磁気スキルミオンを発現することがわかっている。そこで EuO 以外に磁気スキルミオンを生成できそうな希土類酸化物の強磁性体探索をした結果、PLD を用いることで初めてエピタキシャル薄膜の合成に成功した NdO と PrO 薄膜が新強磁性体であることがわかった。また、その実験の過程で、 CaF_2 基板上に作製した希土類金属プラセオジウム (Pr) 薄膜は、常圧相の六方最密充填構造ではなく高压相の面心立方構造をとり、強磁性を示すことがわかった。

(2) 磁気スキルミオンを発現するヘテロエピタキシャル構造の探索を行い、 EuO / LaO ヘテロ構造の作製に成功した。磁気スキルミオンの発現を示唆するようなホール抵抗の変化は得られなかったが、シャープなヘテロ界面を反映して、スピンホール磁気抵抗の検出に成功した。

(3) PLD-STM システムを用いて、 SrVO_3 超薄膜を SrTiO_3 (001)基板上に作製し、in-situ 低温 STM 測定を行った。大気にさらすことなく作製した薄膜の表面を観ることができるので、図 1(a)に示すように、薄膜の表面形状を原子分解で評価することに成功した。STM 像から、膜厚を 4 nm 以下にすると、 $(\sqrt{2} \times \sqrt{2})\text{-R}45^\circ$ と $(\sqrt{5} \times \sqrt{5})\text{-R}22.6^\circ$ の 2 つの再構成表面が現れることがわかった。さらに、図 1(b)に示す微分コンダクタンススペクトル測定から、 $(\sqrt{2} \times \sqrt{2})\text{-R}45^\circ$ では金属的な電子状態をもつことが、 $(\sqrt{2} \times \sqrt{2})\text{-R}45^\circ$ ではフェルミレベル近傍 (0 V) で微分コンダクタンスが大きく減少することがわかった。この結果は、表面再構成が電子状態を変化させるファクターの一つとなることを示しており、表面再構成に起因した金属-絶縁体転移の可能性を示唆している。

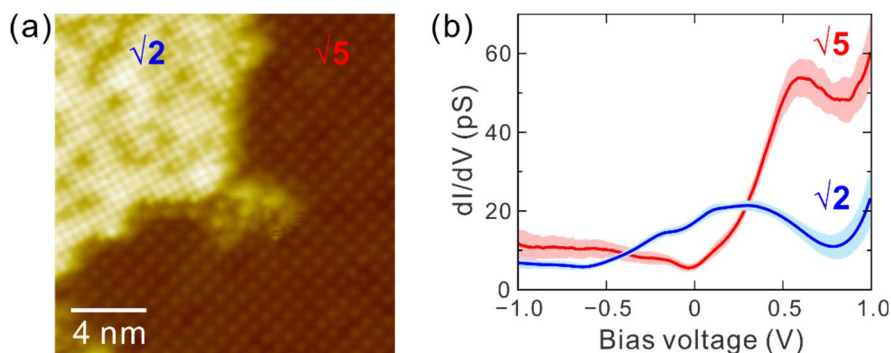


図 1 : (a) SrVO_3 超薄膜の STM 像。 (b) SrVO_3 超薄膜の微分コンダクタンス (dI/dV) スペクトル。

(4) PLD-STM システムを用いて、 CaF_2 (111)基板に Pr 薄膜を作製し、in-situ 低温 STM 測定を行った。図 2 に示すように、成膜時の基板温度を最適化することにより、 Pr 薄膜はステップフロー成長し、テラス幅の広いステップ - テラス構造をもつ[図 2(b)]ことがわかった。また、 Pr 薄膜は、微分コンダクタンススペクトルにおいてフェルミレベル近傍に大きなピークを示すことがわかった。さらに微分コンダクタンスの 2 次元マッピングから、ステップや欠陥付近に電子定在波が形成されることもわかった。これらの結果は面心立方構造 Pr 薄膜の電子状態を特徴づけている。バルクの Pr では、高压を加えることにより結晶構造が変化し、局在している 4f 電子が遍歴性をもつことが示唆されている。しかしながら、4f 電子の遍歴化を直接示す実験結果はいまだ得られておらず、上記微分コンダクタンスの 2 次元マッピングで観察された電子定在波が 4f 電子に起因するものであれば非常に興味深い結果となる。低温での結晶構造解析や第一原理計算による電子状態解析が必要である。

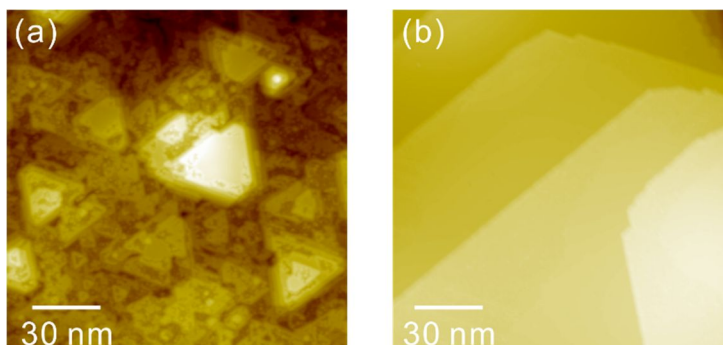


図 2 : Pr 薄膜の STM 像。成膜時の基板温度は(a) 200 度、(b) 300 度。走査範囲は(a)と(b)ともに、 $150 \times 150 \text{ nm}^2$ 。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kaminaga Kenichi, Oka Daichi, Oka Hirofumi, Fukumura Tomoteru	4. 巻 48
2. 論文標題 Heteroepitaxy of Rock-salt Superconductor/Ferromagnet Thin Film: LaO/EuO	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1244 ~ 1247
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.190460	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 -

1. 著者名 Saito Daichi, Kaminaga Kenichi, Oka Daichi, Fukumura Tomoteru	4. 巻 3
2. 論文標題 Itinerant ferromagnetism in rocksalt NdO epitaxial thin films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 064407-1 ~ 4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.3.064407	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 -

1. 著者名 Oka Hirofumi, Okada Yoshinori, Hitosugi Taro, Fukumura Tomoteru	4. 巻 113
2. 論文標題 Two distinct surface terminations of SrVO ₃ (001) ultrathin films as an influential factor on metallicity	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 171601-1 ~ 4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5051434	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 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 4件/うち国際学会 7件）

1. 発表者名 D. Saito, K. Kaminaga, D. Oka, T. Fukumura
2. 発表標題 Magnetization and Magnetotransport Studies of an Itinerant Ferromagnet Rocksalt NdO Epitaxial Thin Films
3. 学会等名 Tohoku University GP-Spin seminar 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Kaminaga, D. Oka, T. Hasegawa, T. Fukumura
2. 発表標題 Carrier and epitaxial strain control of superconductivity in LaO thin film
3. 学会等名 APS 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Fukumura
2. 発表標題 New functional rare earth binary oxides
3. 学会等名 Second Workshop of SG-SPIN (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Fukumura
2. 発表標題 Oxide electronics: converting insulators into electronic materials
3. 学会等名 JSPS San Fransisco's 15-Year Anniversary Event: World Premier Research in Japan (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Fukumura
2. 発表標題 Oxide electronics: converting insulators into electronic materials
3. 学会等名 JSPS San Fransisco's 15-Year Anniversary Event: World Premier Research in Japan (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Oka, P. Mishra, Z.-K. Qi, T. Komeda
2. 発表標題 Spatially resolved magnetic anisotropy of Co islands on Au(111)
3. 学会等名 2018 International Conference on Nanoscience + Technology (ICN+T) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Oka, P. Mishra, Z.-K. Qi, T. Komeda
2. 発表標題 Spatially resolved magnetic anisotropy of Co islands on Au(111)
3. 学会等名 SPSTM-7 & LTSPM-1 International Conference 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 神永 健一, 岡 大地, 岡 博文, 福村 知昭
2. 発表標題 岩塩型超伝導/強磁性ヘテロエピタキシャル薄膜: LaO/EuO
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山本 卓, 松本倅太, 齋藤大地, 寺門恭兵, 神永健一, 河底秀幸, 岡 大地, 福村知昭
2. 発表標題 電気伝導性希土類単酸化物とBi 正方格子超伝導体の開拓
3. 学会等名 第12回 物性科学領域横断研究会 (領域合同研究会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 齋藤 大地、神永 健一、岡 大地、福村 知昭
2. 発表標題 異常原子価Nd0エピタキシャル薄膜の強磁性と異常ホール効果
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 岡 博文
2. 発表標題 Coナノ磁石の磁気特性：スピン偏極STMによる研究
3. 学会等名 顕微鏡学会研究会「超高空間分解能SPMの最前線」(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岡 博文、Mishra Puneet、Qi Zhi-Kun、米田忠弘
2. 発表標題 Co アイランドの磁気異方性エネルギーの膜厚依存性
3. 学会等名 2018年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究 分担者	岡 博文 (Oka Hirofumi) (70374600)	東北大学・材料科学高等研究所・助教 (11301)	