

ナノグラデーションスピントロニクスの開拓

神 永 健 一*

Pioneering of Nano Gradient Spintronics

Kenichi KAMINAGA*

本研究は、ハーフメタル強磁性酸化物 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO) における磁気特性の限界打破を目的とし、物質内部に人工的な組成勾配を導入する「ナノグラデーション」という新概念に基づくスピン機能制御手法を提案する。独自開発のガルバノミラー走査型パルスレーザ堆積法 (PLD) を駆使し、重元素 Ru 濃度をナノスケールで線形変調させた傾斜組成薄膜を創製した。その結果、従来の均一ドーブ系では不可避であった「磁化減少と保磁力増大のトレードオフ」を、Mn スピン副格子の物理的強化を通じて解消することに成功した。さらに、組成勾配に伴う空間反転対称性の破れを内因的に利用することで、勾配の極性による飽和異常ホール抵抗率の系統的な連続制御を実証した。本知見は、従来の界面不連続性に依存した材料設計を超越し、バルク内の「勾配」を新たな機能自由度として確立するものである。これは、次世代の超低消費電力磁気デバイスの基盤となる「ナノグラデーションスピントロニクス」という新領域を切り拓く革新的成果といえる。

1. 緒言

ペロブスカイト型マンガン酸化物 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ (LSMO) は、高いキュリー温度 (T_C) および完全スピン偏極率を示す室温ハーフメタル強磁性体であり、酸化物スピントロニクスデバイスの基幹材料として広く注目されている (1)。しかし、LSMO は本質的に保磁力 (H_0) が低く磁気異方性も小さいという特性を有しており、これがデバイス実装における実用上の障壁となってきた。この問題を解決する手段の一つとして、Mn サイトへの Ru 部分置換が保磁力の増大に有効であることが報告されている (2)。しかし、均一組成ドーブ系においては、Ru 置換量の増加に伴い飽和磁化 (M_S) および T_C が顕著に単調減少することが知られており (3)、磁気特性間に深刻なトレードオフが生じる。

上記の課題を克服するため、本研究では試料内部に人工的な組成勾配を導入する「ナノグラデーション」という新たな物質設計指針を提案し、その磁気物性制御に対する有効性を実験的に検証した。試料作製には、筆者らが独自に開発したガルバノミラー走査型パルスレーザ堆積 (PLD) 装置を用いた (4)。本装置はミリ秒オーダーでの高速ターゲット切替機構を備えており、熱拡散を効果的に抑制しつつ、原子層レベルで精密に制御された傾斜組成構造の形成を実現する。この手法を駆使して、LSAT (001) 基板の上に膜厚方向に沿って Ru 濃度を 0 at.% から 10 at.% まで線形に変化させた傾斜組成薄膜を作製した。なお、Ru 濃度の勾配方向として、基板側から表面側へ濃度が増加する構造 (UP-graded) および減少する構造 (DOWN-graded) の二種類を設計することで、勾配方向依存性についても系統的に調査した。

2. スピン輸送特性の評価

スピン輸送特性に対するナノグラデーションの影響を定量的に評価するため、異常ホール効果 (AHE) 測定を実施した。まず、比較対象として作製した均一組成試料では、先行報告 (5) 同様に Ru 置換量の増大 (0, 5, 10 at.%) に伴い飽和異常ホール抵抗率 (ρ_{AHE}) が系統的に増大する挙動が確認された (図 1 および挿入図)。

注目すべきは、平均組成を同一 (Ru 5 at.%) に制御した傾斜組成試料における挙動である。組成勾配の方向に依存して ρ_{AHE} は顕著に変化し、基板界面側に Ru 高濃度領域を配した DOWN-graded 膜 (DOWN) は、逆方向の勾配を持つ UP-graded 膜 (UP) と比較して 2.5 倍以上の高い値を呈した。

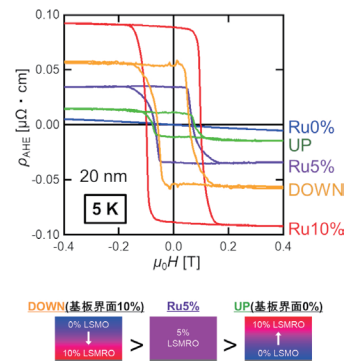


図 1 Ru:LSMO の異常ホール抵抗率の比較。

さらに、DOWN-graded膜の ρ_{AHE} は均一ドープ系である Ru 5 at.%試料の値を凌駕しており、これは単なる組成の積分値では説明できない効果である。これらの結果は、組成勾配に由来する空間反転対称性の破れが、スピン輸送特性を支配する独立した制御パラメータとして機能することを示唆している。すなわち、ナノグラデーション構造における組成勾配の極性は、磁化量や Ru 置換量といった従来のバルクパラメータとは独立に、スピン流輸送を高度に制御する新たな自由度を提供するものと結論付けられる。

3. 静磁気特性の評価

次いで、静的な磁気特性に対するナノグラデーションの効果を検証し、保磁力 (H_c) の増大と飽和磁化 (M_s) の維持という、磁性材料における根源的な二律背反の解消を試みた。図2に示す通り、従来の均一ドープ系では H_c の増大に伴い M_s が線形に減少する相克関係 (トレードオフ) が顕著であった。これに対し、ナノグラデーション構造を導入した薄膜では、 H_c をノンドープ膜の7~10倍へと劇的に増強させつつ、 M_s および T_c をノンドープ膜と同等レベルに維持することに成功した。

この特異な磁気特性の起源を解明するため、偏極中性子反射率 (PNR) および放射光 X線磁気円二色性 (XMCD) を用いた微視的解析を実施した。その結果、傾斜組成膜内部のバルク層において Mn スピン副格子の交換相互作用が物理的に強化されており、局所的に均一ドープ膜を上回る磁気モーメントが誘起されていることが判明した。本成果は、ナノグラデーションが単なる界面効果の導入に留まらず、バルク内部のスピン秩序を高度に変調し、既存の材料限界を打破する極めて有効な物質設計指針であることを示している (6)。

4. 結論

以上の通り、本研究は「ナノグラデーション」という新たな物質設計指針を導入することで、ハーフメタル強磁性酸化物における飽和異常ホール抵抗率の系統的設計、および磁気特性のトレードオフ打破を同時に達成し得ることを実証した。これは、従来の界面設計に依存してきたスピントロニクスに対し、バルク内部の空間反転対称性を内因的に制御することで、スピン輸送特性と磁気秩序を独立に高度化できることを示すものである。今後は、本手法を基盤として組成勾配が誘起する新奇スピンドYNAMIKSの解明を深化させ、材料科学の新たな地平を拓く「ナノグラデーションスピントロニクス」の学理構築を目指す。

REFERENCES

- 1) M. Bowen, M. Bibes, A. Barthélémy, J.-P. Contour, A. Anane, Y. Lemaître and A. Fert, *Appl. Phys. Lett.*, **82** (2003) 233-235.
- 2) H. Yamada, M. Kawasaki and Y. Tokura, *Appl. Phys. Lett.*, **86** (2005) 192505.
- 3) S. S. Manoharan, H. L. Ju and K. M. Krishnan, *J. Appl. Phys.*, **83** (1998) 7183-7185.
- 4) S. Maruyama, N. Sannodo, R. Harada, Y. Anada, R. Takahashi, M. Lippmaa and Y. Matsumoto, *Rev. Sci. Instrum.*, **90** (2019) 09390.
- 5) E. Hua, L. Si, K. Dai, Q. Wang, H. Ye, K. Liu, J. Zhang, J. Lu, K. Chen, F. Jin, L. Wang and W. Wu, *Adv. Mater.*, **34** (2022) 2206685.
- 6) S. Gaku, K. Kaminaga, *et al.*, *ACS Appl. Electron. Mater.*, *in press*. DOI: 10.1021/acsaem.6c00176

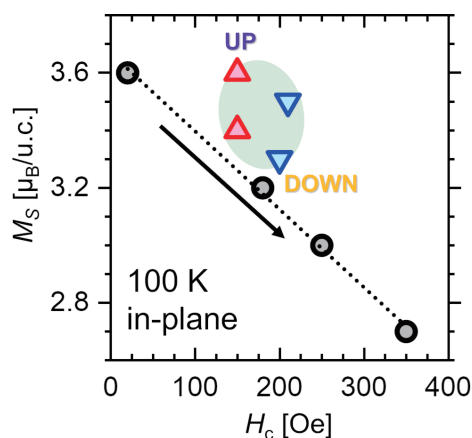


図2 Ru:LSMO均一組成膜 (丸) と傾斜組成膜 (三角) の H_c vs. M_s の比較。