

タンタル酸化物薄膜および界面の磁気輸送現象

大熊 光*

Magnetotransport Phenomena in Tantalum Oxide Thin Films and Interfaces

Hikaru OKUMA*

遷移金属酸化物は、遷移金属のd軌道に由来する狭いバンド幅により電子間相互作用が強く働き、金属絶縁体転移や超伝導、巨大磁気抵抗など多彩な物性を示す。その中でも、近年物質開拓が進展している4d・5d遷移金属酸化物では、伝導バンドを構成する遷移金属の強いスピン軌道相互作用や、3d遷移金属酸化物とのバンドのエネルギーの差異により、3d系では見られなかった面白い電子状態の発現が期待される。

実際、強いスピン軌道相互作用を示す系では、トポロジカルな電子状態や異常な超伝導など3d系では見られない新物性が一部の物質で報告されている。また、第4族・第5族遷移金属に限って言えば、3dから5dに原子番号が大きくなるにつれて、電気陰性度が段階的に減少することが知られており、O2pバンドと遷移金属dバンドのエネルギー準位差が大きくなる。上述の効果により、例えば第5族4d遷移金属酸化物SrNbO₃では深紫外領域での高い透過率も報告されている¹⁾。また、3d系と5d系とのエネルギー準位の差異は、酸化物界面における電荷移動を促進し、2次元電子系の形成に大きく寄与する。第5族4d・5d酸化物SrNbO₃やSrTaO₃では、半導体SrTiO₃との界面形成により4d・5d側から3d側への電荷移動が、実験²⁾および理論³⁾の両面から報告されている。

以上の背景から、我々は第5族酸化物の4d・5d遷移金属酸化物を中心とした低次元物性の開拓を行っている。特に5d遷移金属酸化物ではTaの4価が熱力学的に不安定であるためそもそも物質合成自体が難しいが、本プロジェクト開始時点でパルスレーザー堆積法を用いてTa4価を準安定化させることで、SrTaO₃エピタキシャル薄膜の作製に成功、極薄膜化によって強いラッシュバースピン軌道相互作用を示すことも明らかにしてきた⁴⁾。本年度(2025年度)では、Taの強いスピン軌道相互作用が、強磁性的な磁気秩序に与える影響の解明と、3d酸化物との界面接合による2次元電子系の形成といった2つを柱に研究を進めた。現時点での成果として、(1) SrTaO₃のAサイトをEuに置換することで5d酸化物の新しい強磁性金属伝導酸化物EuTaO₃薄膜の作製に成功し、その磁気輸送現象を明らかにした。次に、(2)強い電子供給能力をもつ5d遷移金属酸化物SrTaO₃と金属伝導を示す3d遷移金属酸化物SrVO₃との界面において、極薄膜での金属伝導と、強いスピン軌道相互作用が発現することが明らかになりつつある。以下に、詳細を述べる。

1. EuTaO₃エピタキシャル薄膜の作製と磁気輸送特性

パルスレーザー堆積法によって絶縁体基板((LaAlO₃)_{0.3}-(SrAl_{0.5}Ta_{0.5}O₃)_{0.7}) (略称LSAT) (100) およびGdScO₃ (110) 上にそれぞれEuTaO₃エピタキシャル薄膜を作製した(それぞれS1, S2と記す)。図1にS1の磁化曲線を示す。低温で強磁性に特徴的な磁化の飽和が確認された。図2に伝導度の磁場依存性を示す。極低温の4 Kでは、高磁場で正の伝導度を観測した。同様の現象は、4d1系EuNbO₃薄膜⁵⁾、5d0.2系Ba_{3-x}Eu_xTa₅O₁₅⁶⁾のバルク単結晶でも観測され、磁気秩序形成に伴うドメイン散乱の抑制が起源と考えられる。一方、30Kでは、負の伝導度が出現し、我々がこれまで報告してきたSrTaO₃と同じように強いスピン軌道相互作用を持つ薄膜特有の弱反局在効果が支配的であると考えられる。そこで、強いスピン軌道相互作用を持つ2次元系における弱反局在効果を記述する氷上-ラルキン-長岡モデル(黒線)を用いて、伝導度の磁場依存性からスピン軌道相互作用に特徴的な散乱長(L_{so})と、磁気散乱に関連する散乱長(L_s)を抽出し、温度の関数としてプロットした(図3)。図3に示すように、温度の上昇によってスピン緩和長の減少と磁気散乱長の増加がみられ、大小関係が反転する。つまり、温度上昇により、強磁性化に起因する磁気散乱に比べ、強いスピン軌道相互作用によって生じるスピン軌道散乱が支配的になることで、正の伝導度から負の伝導度へと切り替わると考えられる。類似の現象は、磁性半導体GaAsMnやLaAlO₃/EuTiO₃/SrTiO₃などのラッシュバ系でも見られる。本物質のメリットは、比較的高温で弱反局在・弱局在が観測されることであり、スピン軌道相互作用と強磁性の競合による輸送現象の寄与を調査する上での絶好なプラットフォームであると考えられる。

2026年3月1日 受理

* 豊田理研スカラー

東京大学大学院総合文化研究科広域科学専攻

今後の展望として、これまで試料の抵抗率（縦抵抗）を中心に議論してきたが、試料の横抵抗の磁場依存性の解析から得られる異常ホール効果の寄与についても調査したい。異常ホール効果の観測にあたって、サンプルの微細加工やより金属的な試料の作製が不可欠であると考えている。

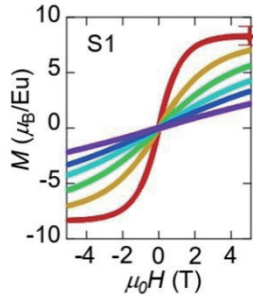


Fig. 1 Out-of-plane M - H curves of the EuTaO₃ thin film on LSAT (S1).

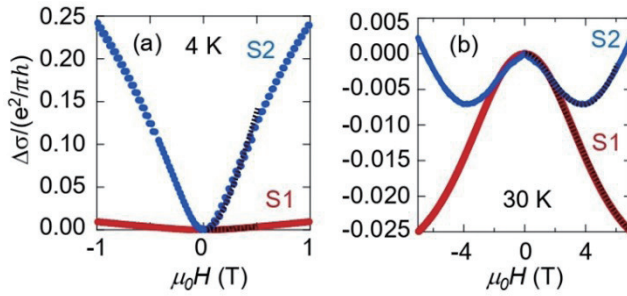


Fig. 2 (a),(b) $\Delta\sigma$ in units of $e^2/\pi h$ measured under a perpendicular magnetic field at (a) 4 K and (b) 30 K for films. The dotted lines represent fits to the data based on the HLN theory.

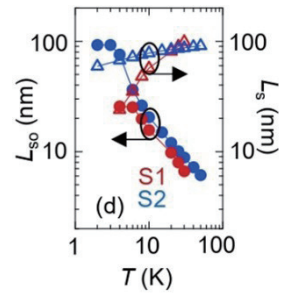


Fig. 3 (left) L_{so} and (right) L_s for EuTaO₃ films plotted against T .

2. SrTaO₃/SrVO₃ 薄膜の作製と磁気輸送特性

パルスレーザー堆積法と成膜中のRHEED振動により、膜厚を数原子層単位で制御したSrVO₃単膜とSrTaO₃/SrVO₃二層膜を作製した。図4(a)にシート抵抗の温度依存性を示す。SrVO₃単膜では、膜厚の減少に伴い低温における抵抗が急増し、4原子層 (ML) 以下では測定可能な電気伝導が得られず、絶縁体的状態を示した。これに対して、SrTaO₃/SrVO₃二層膜では、SrVO₃の膜厚が4 MLの試料においても、低温まで金属的な伝導が維持された。上述の振る舞いは、SrTaO₃の積層により、SrVO₃層がキャップされて表面劣化が抑制されるとともに、界面における電荷移動によりSrVO₃層のキャリア状態が変調されている可能性を示唆している。図4(b)にSrTaO₃/SrVO₃の磁場による伝導度変化の温度依存性を示す。温度の上昇に伴い、伝導度が正から負へと転移する振る舞いが見られた。これはSrVO₃単膜と類似した振る舞いである⁷⁾。

今後の展望としては、単膜と比べた場合の、伝導電子の濃度やスピン軌道相互作用の強さをSrTaO₃の厚さを系統的に変えた場合に制御できるのかを明らかにしたい。

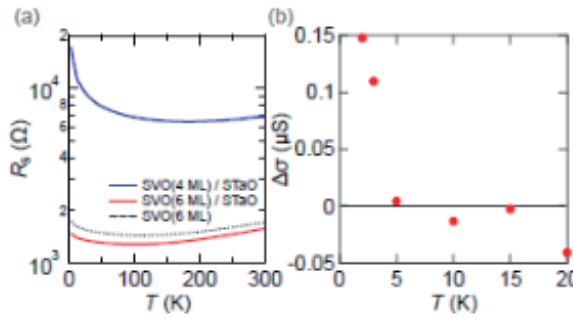


Fig. 4 (a) Temperature dependence of the resistance for SrVO₃ single films and SrTaO₃/SrVO₃ bilayers. (b) Temperature dependence of $\Delta\sigma$ for the SrTaO₃/SrVO₃ 4 ML bilayer at $B = 1$ T.

REFERENCES

- 1) Y. Park, *et al.*, *Commun. Phys.*, **3** (2020) 102.
- 2) R. Hayasaka, *et al.*, *APL Mater.*, **12** (2024) 071111.
- 3) Z. Zhong and P. Hansmann, *Phys. Rev. X*, **7** (2017) 011023.
- 4) H. Okuma, *et al.*, *APEX*, **17** (2024) 093001.
- 5) T. Maruyama, *et al.*, *APL*, **113** (2018) 032401.
- 6) H. Takei, *et al.*, *Phys. Rev. Mater.*, **8** (2024) 054405.
- 7) A. Fouchet, *et al.*, *Mater. Sci. Eng. B*, **212** (2016) 7.