

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 18 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2016

課題番号：15H05517

研究課題名(和文) 酸化物ヘテロ構造におけるスピン軌道トルク

研究課題名(英文) Spin orbit torque in oxide hetero structures

研究代表者

山ノ内 路彦 (Yamanouchi, Michihiko)

北海道大学・電子科学研究所・准教授

研究者番号：40590899

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 18,000,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性酸化物ヘテロ構造 $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ (LSMO)/ SrTiO_3 において、磁気輸送測定を用いて電流誘起有効磁場を調べた。LSMOの膜面内方向に電流を印加すると、膜面内かつ電流と垂直方向に有効磁場が誘起されることがわかった。また、その有効磁場の大きさは電流の大きさとともに増加し、電流方向を反転させると有効磁場の方向も変化することを明らかにした。さらに、有効磁場の起源を調べるために、有効磁場のLSMO膜厚依存性を調べた結果、有効磁場は電流密度でスケールリングできることを明らかにした。これは、観測された有効磁場がLSMO内部の効果に起因していることを示唆している。

研究成果の概要(英文)：We investigate current-induced effective magnetic field H_{eff} in ferromagnetic oxide heterostructures $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ (LSMO)/ SrTiO_3 by using the planar Hall effect. By applying in-plane current to LSMO films, in-plane H_{eff} orthogonal to the current direction is exerted on magnetization. The H_{eff} magnitude increases with increasing current magnitude, and the direction reverses when the applied current is switched to opposite sign. Assuming that a 6.5-u.c. insulating layer is created in the LSMO, the values of H_{eff} observed in the heterostructures with three different LSMO thicknesses are almost scaled with current density, evaluated from the effective LSMO thickness excluding the insulating layer, suggesting that H_{eff} is induced in the LSMO bulk.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン軌道トルク 酸化物ヘテロ構造

1. 研究開始当初の背景

近年、エレクトロニクスの低消費電力化の要求から、強磁性体をベースとするスピントロニクス素子を用いた不揮発性メモリや不揮発性ロジックが注目されている。それらの動作には電氣的に磁化方向を制御することが不可欠であり、その手法としてスピン軌道相互作用に起因したトルクによる磁化反転が注目を集めている。スピン軌道相互作用を利用した電氣的磁化方向制御は、2009年に強磁性半導体 GaMnAs において報告された(A. Chernyshov *et al.*, *Nature Phys.* **5**, 656 (2009).)。その後、 $\text{AlO}_2/\text{Co}/\text{Pt}$ や $\text{MgO}/\text{CoFeB}/\text{Ta}$ などの絶縁体/強磁性金属/重金属ヘテロ構造において、膜面内方向に電流を印加することにより強磁性体の磁化方向を反転できることが報告された(I. M. Miron *et al.*, *Nature Mater.* **9**, 230 (2010). L. Liu *et al.*, *Science* **336**, 555 (2012).)。この磁化反転の機構として、絶縁体/強磁性金属または強磁性金属/重金属界面におけるラシュバ効果、及び重金属中のスピンホール効果により発生するトルクが理論的に提案されている。ラシュバ効果、及びスピンホール効果はともにスピン軌道相互作用に基づいているため、これらのトルクは総称してスピン軌道トルクと呼ばれている。このスピン軌道トルクは、実験的には膜面内方向に印加した電流により誘起される有効磁場(電流誘起有効磁場)として観測されているが、その発生要因は明らかになっていない。

ラシュバ効果の研究は半導体量子構造において始められ、その後、金属においても研究されるようになった。ヘテロ構造のように非対称な界面や重金属表面では、界面または表面と直交する方向に電界が発生し、その電界中を伝導電子が移動すると伝導電子スピンの有効磁場が作用してスピン方向がそろう。これがラシュバ効果であり、絶縁体/強磁性金属/重金属ヘテロ構造においてもラシュバ効果による界面のスピン分極が現れる。強磁性金属内では、伝導電子と磁性を担う局在スピン間に交換相互作用が働くため、交換相互作用を介して伝導電子から局在スピンに有効磁場が働き、スピン軌道トルクが磁化に作用する。スピンホール効果についても、半導体において初めて観測され、その後、金属においても研究されるようになった。スピンホール効果は、不純物またはバンド構造に起因したスピン軌道相互作用によってスピン方向に応じて伝導電子の散乱が変わる効果であり、伝導電子の移動方向と直交する方向に純スピン流(電荷の流れを伴わない角運動量のみ流れ)が流れる。絶縁体/強磁性金属/重金属ヘテロ構造の場合には、重金属中のスピンホール効果で発

生した純スピン流が強磁性金属に注入され、それによりスピン軌道トルクが磁化に作用する。ラシュバ効果とスピンホール効果が支配的なトルクの方向は互いに直交すると考えられており磁化反転のダイナミクスが全く異なる。したがって、スピン軌道トルクを利用した電氣的な磁化反転の理解のみならず、さらに高効率なスピントロニクス素子の実現のために、スピン軌道トルクの発生要因を明らかにすることが重要である。

2. 研究の目的

スピン軌道トルクの中で、ラシュバ効果に起因したスピン軌道トルクは界面における伝導電子のスピン分極により誘起され、そのスピン分極密度の大きさは界面のポテンシャル勾配に比例する。このことに着目すると、スピン軌道トルクと界面におけるポテンシャル勾配の関係を調べることにより、スピン軌道トルクの発生要因の手がかりが得られると考えられる。界面にポテンシャル勾配を誘起可能な系として、酸化物ヘテロ構造が期待される。しかし、これまでに酸化物ヘテロ構造における電流誘起有効磁場の報告はない。本研究では、界面分極を誘起可能な強磁性酸化物ヘテロ構造において、電流誘起有効磁場を観測する。そして、界面分極と電流誘起有効磁場の関係を調べ、酸化物ヘテロ構造における電流誘起有効磁場(スピン軌道トルク)の発生要因を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

界面分極を有する強磁性酸化物ヘテロ構造として、 $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ (LSMO)/ SrTiO_3 (STO) 基板に着目した。 $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ はハーフメタルとして多くの研究が行われてきた材料であり、[001]方向に分極した $(\text{La,SrO})^{+2/3}$ と $(\text{MnO}_2)^{-2/3}$ が交互に積層されている。一方、STO は、[001]方向に電氣的に中性な TiO_2 と SrO が交互に積層されている。したがって、STO 基板の終端面を制御することにより、LSMO/STO 界面の分極を制御できる(M. Minohara *et al.*, *Phys. Rev. B* **81**, 235322, (2010).)。

パルスレーザー堆積法を用いて、STO (001) 基板上に LSMO 薄膜を成膜した。成膜中の基板温度は 750°C 、酸素圧は 25 Pa であった。また、LSMO を成膜後、酸素欠損を回復させるため、成膜時と同条件で 20 分間熱処理した。ここで、表面の SrO を取り除き TiO_2 終端とするため、純水で洗浄した STO 基板を用いた。SrO 終端の場合には、STO 基板と LSMO の間に 1 u.c. の SrMnO_3 を成膜した。作製した薄膜の X 線回折測定、及び原子間力顕微鏡観察から、基板表面を反映した高さ 0.4 nm のステップとテラスから

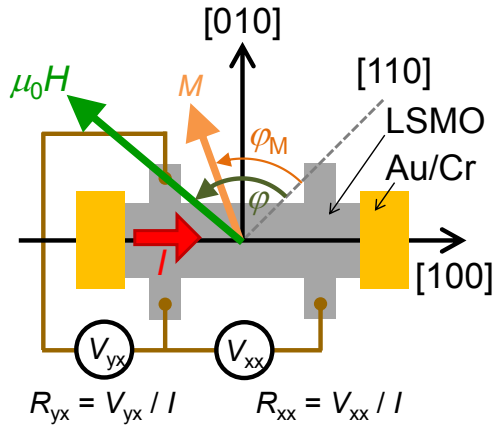


図 1. ホールバーと測定系の模式図。ホールバーのチャンネル幅は 10 μm 、2 対のプロープの間隔は 20 μm 。

なる原子レベルで平坦な LSMO 薄膜であることを確認した。さらに、シート抵抗の温度依存性から、LSMO の強磁性転移温度は 340–380 K であった。続いて、作製した LSMO 薄膜をフォトリソグラフィとウェットエッチングにより 2 対のホールプローブを備えた、チャンネル幅 10 μm のホールバー形状の素子に加工した。チャンネル方向は、[100] 方向に平行である。そして Au/Cr の電極をリフトオフにより作製した(図 1)。LSMO の磁化方向は外部磁場、異方性磁場、電流誘起有効磁場 H_{eff} のもとで安定な方向を向く。したがって、磁化方向の外部磁場依存性、および外部磁場角度依存性を解析することにより、 H_{eff} を調べることができる。LSMO の横抵抗 R_{yx} はプレーナーホール効果が支配的であり、電流方向と磁化方向の相対角度に依存した $R_{yx} = R_{\text{PHE}} \sin(2\varphi_M + 90^\circ) + R_{\text{off}}$ と表される。ここで R_{PHE} はプレーナーホール抵抗の振幅、 R_{off} はオフセット抵抗である。また、[110] 方向から測定した外部磁場方向の角度 φ 、磁化方向の角度 φ_M とする。本研究では、図 1 に示すように、磁化方向を反映した R_{yx} の外部磁場依存性、および外部磁場角度依存性を解析することにより H_{eff} を調べた。また、高電流下ではジュール発熱によって、素子温度が上昇するため、電流印加下での縦抵抗 R_{xx} と低電流で測定した R_{xx} の温度依存性を比較することにより、素子温度を校正した。

4. 研究成果

作製した LSMO 薄膜の H_{eff} 、及び磁気異方性を調べるため、[110] 方向に外部磁場を印加して磁化方向を揃えた後、電流を印加した状態で、外部磁場を時計回り、及び反時計回りに回転して R_{yx} の外部磁場角度依存性を調べた。図 2 は

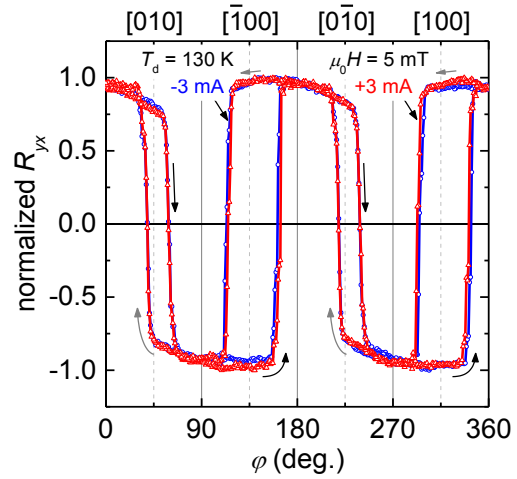


図 2. LSMO 膜厚 13 u.c. の素子の $T_d = 130\text{ K}$ における R_{yx} の磁場角度依存性。印加電流、印加磁場はそれぞれ $\pm 3\text{ mA}$ 、 5 mT 。

LSMO 膜厚 13 u.c. の素子について、素子温度 $T_d = 130\text{ K}$ において、 $\pm 3\text{ mA}$ の電流(正(負)電流は左(右)から右(左)方向)、及び $\mu_0 H = 5\text{ mT}$ を印加して測定した R_{yx} の外部磁場角度依存性である。 R_{yx} は、前述の \sin 曲線からずれており、4 回対称軸 $\langle 100 \rangle$ 周囲の角度でヒステリシスを示す。これは、面内に $\langle 100 \rangle$ を磁化困難軸とする二軸磁気異方性を有することを示している。また、 $[\bar{1}00]$ 、 $[100]$ の周囲におけるヒステリシスの幅は $[010]$ 、 $[0\bar{1}0]$ の周囲におけるものより広い。これは、二軸磁気異方性に加えて、 $[100]$ ($[\bar{1}00]$) 方向を困難軸方向とする一軸異方性が重畳しているためと考えている。さらに、 $[010]$ と $[0\bar{1}0]$ の周囲におけるヒステリシスは電流方向に依存しないが、 $[\bar{1}00]$ ($[100]$) の周囲におけるヒステリシスは正電流(負電流)を印加した場合、逆方向の電流の場合よりも、高角側にシフトする。これは、正電流(負電流)によって、 $[010]$ ($[0\bar{1}0]$) 方向の H_{eff} が誘起されると考えると説明できる。

続いて、この H_{eff} と平行または反平行の磁場による磁化方向のスイッチングを調べ、 H_{eff} の存在を調べた。 $T_d = 130\text{ K}$ において、磁化容易軸方向の 1 つである $[110]$ 方向の外部磁場を印加して磁化方向を揃え、初期状態を用意した(図 3(a))。そして、 $\pm 3\text{ mA}$ の電流で R_{yx} の $[010]$ 方向磁場依存性を測定した(図 3(b))。規格化した R_{yx} は $\mu_0 H = 2.2\text{--}2.5\text{ mT}$ において、急激な増加を示す。これは $[110]$ から $[\bar{1}\bar{1}0]$ への磁化方向のスイッチングを表している。このスイッチングに必要な磁場(スイッチング磁場)は、 -3 mA を印加した場合よりも $+3\text{ mA}$ を印加した場合の方が大きい。これは、図 2 に示す規格化 R_{yx} の外部磁場角度依存性の結果と一致する。この正負電流印加下でのスイッチング磁場の差を H_{diff} とし、 H_{diff} の電

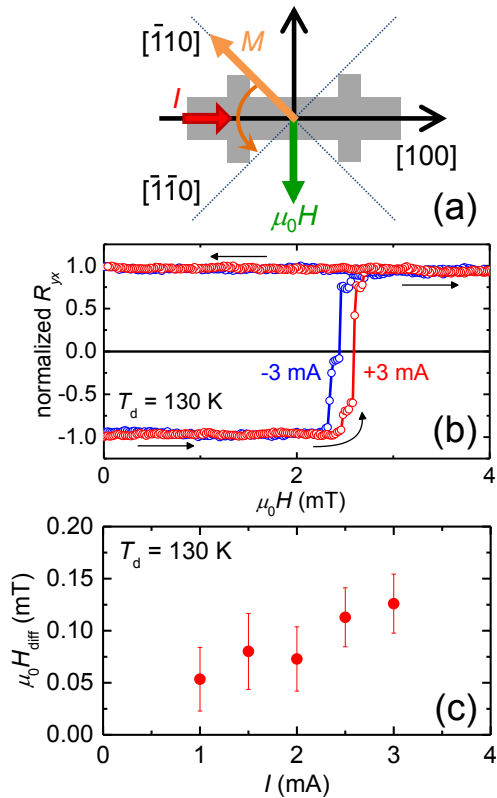


図 3. (a) $[110]$ に磁化方向を揃えた後、 $[010]$ の磁場で磁化方向をスイッチングする模式図。(b) LSMO 膜厚 13 u.c. の素子について、 $T_d = 130$ K において(a)に示すように磁化方向をスイッチングしたときの規格化 R_{yx} の磁場依存性。印加電流は ± 3 mA。(c) (b) から求めた $\mu_0 H_{\text{diff}}$ の電流値依存性。

流値依存性を調べた(図 3(c))。 H_{diff} は電流の増加とともに増加する。一斉磁化反転の場合、 H_{diff} は、 $2H_{\text{eff}}$ に対応することから、 H_{eff} も電流値の増加とともに増加すると考えられる。以上のことから、確かに正電流(負電流)によって、 $[010]$ ($[0\bar{1}0]$) 方向の H_{eff} が誘起されていると考えられる。

この H_{eff} の発生要因を調べるため、界面分極が逆方向となる LSMO(13 u.c.)/SrMnO₃ (1 u.c.)/SrTiO₃ について同様の磁化方向のスイッチングを調べた。前述の測定では、 $[110]$ 方向を初期状態としたが、本実験では、図 4(a) に示すように $[1\bar{1}0]$ 方向を初期状態とし、 $[010]$ 方向の外部磁場を掃引することにより、 $[1\bar{1}0]$ から $[\bar{1}10]$ への磁化方向のスイッチングを調べる。したがって、界面分極が逆方向となったことにより、 H_{eff} の方向が反転すると、スイッチング磁場は、負電流を印加した場合よりも正電流を印加した場合の方が大きくなると予想される。図 4(b) に 10 K において、 ± 2 mA の電流で測定した R_{yx} の $[010]$ 方向磁場依存性を示す。予想とは異なり、スイッチング磁場は、正電流を印加した場合よりも負電流を印

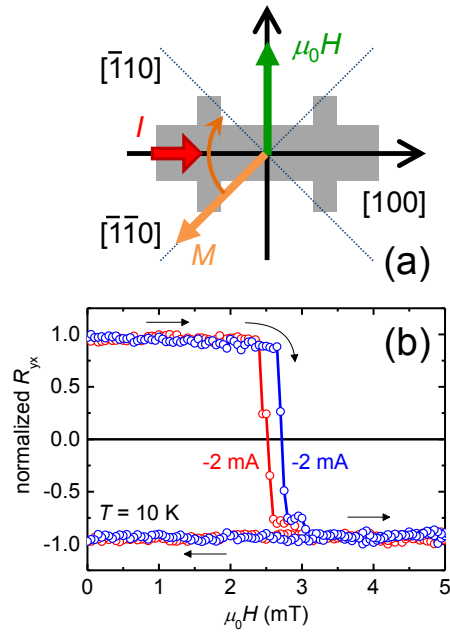


図 4. (a) $[110]$ に磁化方向を揃えた後、 $[010]$ の磁場で磁化方向をスイッチングする模式図。(b) LSMO(13 u.c.)/SrMnO₃ (1 u.c.)/SrTiO₃ の素子について、 $T = 10$ K において(a)に示すように磁化方向をスイッチングしたときの規格化 R_{yx} の磁場依存性。印加電流は ± 2 mA。

加した場合の方が大きい。これは、界面の終端面を変えた場合においても同方向の H_{eff} が発生していることを示す。 H_{eff} が、界面の終端面に依存しない要因として、観測された H_{eff} が界面分極ではなく、別な要因によって誘起されていること、または SrMnO₃ (1 u.c.) の挿入によって期待される界面分極を誘起できていないことが考えられる。前者の場合には、界面に起因しないバルクの効果により、 H_{eff} が誘起されている可能性がある。これを明らかにするために、まず、 H_{eff} の LSMO 膜厚依存性を調べた。

LSMO(13, 18, 25 u.c.)/SrTiO₃ を作製し、図 1 の素子に加工した。図 2 に示す磁化方向のスイッチング測定の場合、スイッチングの際に中間状態をとる。これは磁区生成や磁壁移動に関係している可能性があり、 H_{eff} の正確な評価を妨げる。本実験では、磁区の影響を避けるために、電流を印加した状態で異方性磁場よりも大きな磁場を困難軸方向の $[100]$ 周辺で回転させ、 R_{yx} の磁場角度依存性を調べた。図 5(a) に LSMO 膜厚 13 u.c. の素子について、 $T_d = 130$ K において $\mu_0 H = 31$ mT の外部磁場を回転させた時の R_{yx} の磁場角度依存性を示す。印加電流は ± 3 mA である。正電流の場合の方が、負電流の場合よりも高角側で磁化方向が回転する。この正負電流印加時の磁化回転角度の差を $\Delta\phi$ とすると、有効磁場は $H_{\text{eff}} \approx H \sin(\Delta\phi/2)$ と表される(A.

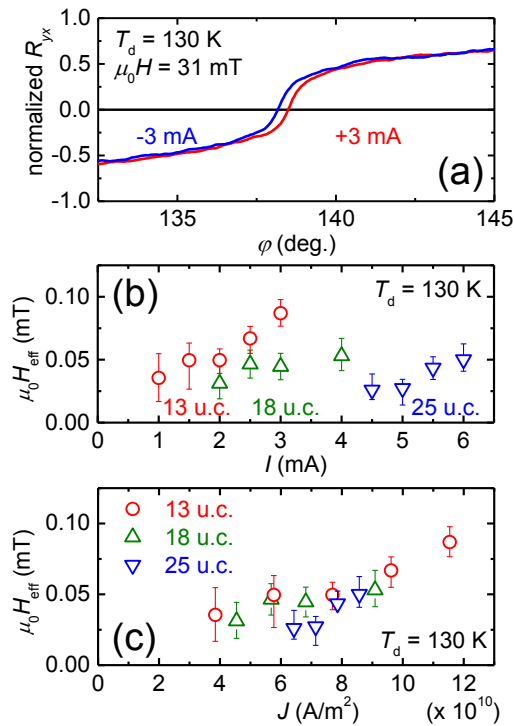


図 5. (a) LSMO 膜厚 13 u.c. の素子について、 $T_d = 130$ K における規格化 R_{yx} の外部磁場角度 ϕ 依存性。印加電流、磁場はそれぞれ ± 3 mA、31 mT。 (b) $T_d = 130$ K において、(a) と同様の測定より求めた H_{eff} の電流依存性。 (c) (b) より求めた H_{eff} の実効電流密度依存性。電流密度は、LSMO 中に 6.5 u.c. の絶縁的なデッドレイヤーが形成されていると仮定して求めた。

Chernyshov *et al.*, Nature Phys. **5**, 656 (2009).)。このようにして、膜厚 13、18、25 u.c. の LSMO 薄膜における H_{eff} の印加電流値依存性を求めた (図 5(b))。 H_{eff} は電流値の増加とともに増加する。また、 H_{eff} は電流値ではスケールできないことが分かる。 LSMO/STO においては、界面または表面に 6 - 7 u.c. の絶縁的なデッドレイヤーが形成されることが知られている (B. Kim *et al.*, Sol. St. Commun. **150**, 598 (2010).)。実際、6.5 u.c. の LSMO 薄膜を STO 基板上に成膜したところ、絶縁的な温度依存性を示し、250 K 以下で 13 u.c. の LSMO 薄膜よりも 2 桁高い抵抗率を示した。したがって、LSMO 薄膜内部に 6.5 u.c. の絶縁的な LSMO が形成されていると仮定し、この膜厚を除いた LSMO の実効膜厚を用いて実効電流密度を求めた。図 5(c) に H_{eff} の実効電流密度依存性を示す。 H_{eff} は実効電流密度ではほぼスケールできる。これは、 H_{eff} が LSMO 内部の効果に起因していることを示唆している。

本研究では、これまでに観測されていない酸化物ヘテロ構造 LSMO/STO において電流誘起有効磁場を観測した。当初の予想とは異なり、この有効磁場の方向は界面の終端面には依存し

ないことが分かった。さらに、有効磁場の LSMO 膜厚依存性を調べたところ、実効電流密度でスケールできることが分かった。このことから、本研究で観測された有効磁場は、LSMO 内部の効果に起因していると推察される。 LSMO はスピン軌道相互作用に基づくプレーナーホール効果を示すことから、LSMO において観測された電流誘起有効磁場は、LSMO のスピン軌道相互作用、または化合物半導体で報告されている歪み誘起のスピン軌道相互作用に関係していると考えている。

5. 主な発表論文等

[学会発表] (計 4 件)

- ① Tatsuro Oyamada, Takayoshi Katase, Hiromichi Ohta, Michihiko Yamanouchi, "Thickness Dependence of Current-Induced Effective Magnetic Field in $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ heterostructure," 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜(神奈川県横浜市), 2017 年 3 月 17 日.
- ② Michihiko Yamanouchi, Tatsuro Oyamada, Takayoshi Katase, Hiromichi Ohta, "Current-induced effects on switching magnetic field in an oxide half-metal heterostructure," 第 21 回スピン工学の基礎と応用 (Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors, PASPS-21), 北海道大学学術交流会館 (北海道札幌市), 2016 年 12 月 13 日.
- ③ Michihiko Yamanouchi, Tatsuro Oyamada, Takayoshi Katase, Hiromichi Ohta, "Current-induced modulation of switching magnetic field in $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ structures," 61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (2016 MMM Conference), New Orleans (USA), Nov. 2, 2016.
- ④ 山ノ内路彦, 小山田達郎, 片瀬貴義, 太田裕道, "Current-induced effects on switching magnetic field in $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$," 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ(新潟県新潟市), 2016 年 9 月 13 日 (ポスター).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山ノ内 路彦 (YAMANOUCHI, MICHIHIKO)
北海道大学・電子科学研究所・准教授
研究者番号: 40590899