

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和2年4月6日現在

機関番号：14301
研究種目：特別推進研究
研究期間：2015～2019
課題番号：15H05702
研究課題名（和文） スピンオービトロニクス of 学理構築とデバイス展開
研究課題名（英文） Spin-orbitronics and device application
研究代表者
小野 輝男 (ONO, Teruo)
京都大学・化学研究所・教授
研究者番号：90296749
交付決定額（研究期間全体）（直接経費）：432,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究によって、従来のスピントロニクスに軌道という新たな自由度を加えた「スピンオービトロニクス」という新しい学理が構築され、次世代磁気メモリで必要となる巨大磁気異方性物質の新規デザイン手法、将来の磁気デバイス開発に必須の効率的な磁化制御手法、従来利用されてきた強磁性体を凌駕する機能を発揮すると期待されている反強磁性体のスピン制御手法など革新的デバイスイノベーションへつながる成果が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピンと電荷の2つの自由度を利用するスピントロニクスの発展によって、ハードディスクの高性能化や不揮発性磁気メモリの開発が達成された。スピントロニクスに軌道自由度を付加することによる新規現象の探索によってスピンオービトロニクスという新しい学理が構築されたことが本研究の学術的意義であり、効率的磁化制御や反強磁性体のスピン制御手法など革新的デバイスイノベーションへつながる成果が得られた点に社会的意義がある。

研究成果の概要（英文）：This project established the field of Spin-orbitronics by exploiting the spin-orbit interaction of electrons in solids to form new materials with novel functionalities and find new physics. New approach for designing strong magnetic anisotropy materials, novel way for efficient magnetization control, and new method for controlling spins in antiferromagnets were developed, which will enable development of high speed, energy efficient electronic devices and technological innovations.

研究分野：磁性物理、スピントロニクス

キーワード：スピンオービトロニクス、スピントロニクス、磁気デバイス、磁気メモリ

1. 研究開始当初の背景

ノーベル賞受賞となった巨大磁気抵抗効果の発見以降、スピンと電荷の2つの自由度を利用するスピントロニクスが急速に発展してきた。巨大磁気抵抗効果がハードディスクの読み取りヘッドに利用され、トンネル磁気抵抗効果を利用した不揮発性磁気メモリが開発されるなど、スピントロニクスは基礎現象の発見と理解がイノベーションに直結する魅力的な研究分野である。

研究代表者は、基盤研究(S)「新規スピンドイナミクスデバイスの研究」において、当初目的を達成するのみならず、以下の研究開始時には予期されなかった成果をあげることができた。

(1) スピンホールトルクによる磁壁駆動 (Appl. Phys. Exp. 7 (2014) 053006)

(2) 電界による磁性制御・磁壁移動制御 (Nature Mater. 10 (2011) 853; Nat. Commun. 3 (2012) 888)

(3) 磁気コア運動に伴うスピン起電力の検出 (Nat. Commun. 3 (2012) 845)

これらの現象の共通起源は「スピン軌道相互作用」であることを認識し、スピン軌道相互作用を利用してスピントロニクスに軌道という新たな自由度を加えることが可能なのではないかとという着想に至った。

磁性体/非磁性体界面におけるジャロシンスキー守谷相互作用、スピンホール効果、ラッシュバ効果などの界面効果は、高効率スピン操作技術への応用が期待されるために、国内・国外ともに盛んに研究がなされていた。本研究開始当時は、磁性体/非磁性体界面という切り口から磁性体と非磁性体の組み合わせ研究がなされている段階であった。これに対し、本研究では、単なる界面研究ではなく、反転対称性のない原子単位の人工積層構造という新たな物質相における物質物性探索という視点から研究を進めた点が革新的であったと考える。

2. 研究の目的

本研究の目的は、スピン軌道相互作用を利用してスピントロニクスに軌道という新たな自由度を加えることで、「スピンオービトロニクス」という新しい学理を構築し、革新的デバイスイノベーションへ展開することである。

3. 研究の方法

本研究では、スピン軌道相互作用によって生じるジャロシンスキー守谷相互作用、スピンホール効果、ラッシュバ効果などに着目した。これらは、反転対称性のない系において発現するため、原子層単位の高高度な薄膜形成技術によって、物質A/物質B/物質Cのような反転対称性のない積層構造やその超格子に注目した物質探索を行った。最先端の薄膜成長技術を用いれば、原子層単位で制御された人工積層構造作製は可能と考えられるが、これまで反転対称性が破れた原子単位人工積層構造に着目した系統的物質探索はなされたことがなく、この点も本研究の独創的な点である。また、このような原子層単位の構造体に対しては、第一原理計算による物性予測が可能であると考えており、第一原理計算による物質デザインと実験を組み合わせる研究を推進した。

軌道という新たな自由度をスピントロニクスに加えてスピンオービトロニクスという新分野を開拓するという発想が、本研究の学術的特色である。スピン軌道相互作用が増強される構造として、反転対称性のない原子単位の人工積層構造に着目して物質と物性の探索を行う点も、これまでに試みられたことのない独創的アプローチである。さらに、比較的単純な構造を対象とするため、第一原理計算による物性予測と実験による確認の両輪による研究推進が可能となる点も特色である。

4. 研究成果

これまでに得られた成果に関して、論文発表 165 報 (IF10 以上の論文誌論文 11 報)、招待講演 123 回の報告を行った。主な研究成果を研究項目ごとに以下に記述する。

(1) スピン軌道相互作用を利用した物質探索

(1-1) 巨大磁気異方性物質の探索

モデル物質として構造反転対称性が破れた Pt/Co/Pd 超格子の垂直磁気異方性を系統的に調査した。対照試料である構造反転対称性を有する Pt/Co 超格子および Co/Pd 超格子に比べて、構造反転対称性が破れた Pt/Co/Pd 超格子はほぼ2倍の垂直磁気異方性を持つことが明らかとなった。この実験結果は、第一原理計算でもほぼ定量的に再現され、構造反転対称性によるバンド変調の効果が認められた (Phys. Rev. B 99, 180410(R) (2019))。

上述のように Pt/Co 系は巨大磁気異方性物質の候補であり Pt に誘起される磁性の理解が重要である。電界による Pt の電子構造と磁性の変化が、フェルミ準位の変位および軌道混成の変化というマイクロなメカニズムから生じていることを明らかにした (Phys. Rev. Lett. 120, 157203 (2018))。また、振動性交換結合が発現する Ir/Co/Pt 多層膜では、異方性磁場が 10 T に迫る巨大な垂直磁気異方性が誘起されることが明らかになった。Co 層間の反強磁性結合と構造反転対

称性の破れによる磁気特性の向上が影響していることがわかった(Phys. Rev. Mater. 3, 104419 (2019))。

強磁性金属の結晶性や接する非磁性金属の種類によって強磁性金属の磁気弾性効果が大きく変化することを示し、歪みセンサー応用を実証した(Nature Electron. 1, (2018) 124)。磁気弾性効果は磁気異方性と同じくスピン軌道相互作用に由来しており、磁気異方性向上の指針となる結果である。

(1-2) 巨大ジャロシンスキー守谷相互作用物質の探索

巨大ジャロシンスキー守谷相互作用物質の探索のためには、簡易で定量的な測定法が必用である。従来、スピン波を用いた測定法が用いられてきたが、複雑な装置が必用であり温度依存性測定等が難しかった。本研究では、電気抵抗測定から磁区生成を検出することでジャロシンスキー守谷相互作用を定量化する手法を開発した(Phys. Rev. B 95, 220402(R) (2017))。

巨大ジャロシンスキー守谷相互作用物質の探索のためには、そのミクロなメカニズムの理解が不可欠である。SPRING8での放射光実験によって、Co/Pt系のジャロシンスキー守谷相互作用と軌道モーメントの異方性の間に強い相関があることを見出した。実験結果は第一原理計算によって説明可能で、第一原理計算による物質デザインの可能性が期待される(Nature Comm. 9 (2018) 1648)。

(1-1)で述べたPt/Co/Pd構造において、PtとPd層の位置を逆転させることで、ジャロシンスキー守谷相互作用による有効磁界の符号が逆転していることも明らかにした(AIP advances. 7 (2017) 085123)。また、Ir/Co界面がPt/Co界面と同程度の大きさのジャロシンスキー守谷相互作用を有することがわかったが、符号が同じであるため、Pt/Co/Ir多層膜などでは各界面からの寄与がキャンセルしてしまうことが判明した。この課題を解決するため、Pt/Co/Cu多層膜を用いることが有効であることを示した(Phys. Rev. B 99, 134421 (2019))。

ジャロシンスキー守谷相互作用によって磁壁移動がソリトニックになることを明らかにし、さらに、磁壁の最高速度からジャロシンスキー守谷相互作用の大きさを定量的に評価することが可能であることを示した(Nature Physics 12, 157 (2016))。

アモルファスフェリ磁性体GdFeCoがバルクのジャロシンスキー守谷相互作用を有することを見いだした。アモルファスであるためにその構造対称性からはジャロシンスキー守谷相互作用の存在は期待されないが、膜厚方向の元素組成傾斜がジャロシンスキー守谷相互作用を生み出すという新しいメカニズムが存在することが示唆される(Nature Materials 18, 685 (2019))。

ジャロシンスキー守谷相互作用の大きさが印加電流に対して変化することがわかった。単位電流あたりの変化量を調べた結果、ジャロシンスキー守谷相互作用の起源が平衡スピン流であるとする理論モデルと一致することがわかった。ジャロシンスキー守谷相互作用の発現機構解明に寄与する結果である(Phys. Rev. Lett. 122, 257205 (2019))。

(1-3) 巨大スピンホール・ラッシュバ物質の探索

Pt/Co構造のCo表面を自然酸化することで、スピン軌道トルクを数倍向上できることを示した(Appl. Phys. Lett. 111 (2017) 132404)。また、Pt/Co構造の界面を酸化し、Pt/Co_x/Co構造とすることで、Pt層においてスピンホール効果により生成されたスピン流が効率よくCo層へ流入することを示した。これはCo_x層の反強磁性的性質に関連するものと考えられる。また、上記の効果と界面構造の変化により、ラッシュバ効果に起因したスピン軌道トルクが10倍向上することも示した(Phys. Rev. B 98, 02045(R) (2018))。

スピンホール効果はスピン軌道相互作用が大きい物質で発現することが明らかになっている。しかし、本研究で常磁性体のCoGaで5d遷移金属並みのスピンホール角が発現することがわかった。第一原理計算により、Coの3d軌道とGaの4p軌道の軌道混成がスピンホール効果の発現に大きく寄与していることがわかった。大きなスピンホール角を有する材料の設計指針を与える結果である(Phys. Rev. B 99, 064410 (2019))。

また、スピン流生成機構の起源を調べるため、熱流-スピン流変換現象を調査した。その結果、理論的に予測されていたスピネルンスト効果の観測に成功した(Science Advances 3, e1701503 (2017))。熱流によって生成されるスピン流は、スピンホール効果を介して電流で生成されるスピン流とスピンの向きが逆であり、フェルミ面近傍の電子がどのようにスピン流生成に寄与するかを解明する手がかりを得た。

ディラック型のバンドを持つとされるBiSb半金属で大きなスピンホール効果が発現することがわかった。BiSb層の膜厚とともにスピンホール伝導度が増加、飽和することから、生成されたスピン流がトポロジカル表面状態によるものではなく、バルクのディラック電子型構造に起因するものであることが明らかになった(Science Advances 6, eaay2324 (2020))。また、Cu/Bi界面など、スピンと運動量が結合した電子状態を有する積層膜に円偏光を照射すると、電子構造の対称性を反映した光起電流が発生することを見出した。光起電流測定によって、界面の電子状態の対称性(ラッシュバ型かディラック型かなど)を検出することがわかった(Appl. Phys. Lett. 113, 222404 (2018))。

(2) 新規スピン操作

(2-1) スピン軌道トルク

非磁性体/強磁性体界面のスピン軌道相互作用に起因する新たなタイプのスピン軌道トルク-スピン軌道歳差トルク-の存在と性質を明らかにする研究を NiFe/Pt/Co 構造を用いて行った。スピン軌道歳差トルクは、Pt の膜厚に反比例し、界面由来のトルクであることが明らかとなった (APL Materials 査読中)。このトルクは、スピンホール効果起因のトルクとは異なる方向に働くため、両者を組み合わせることで外部磁界を用いずに、スピン軌道トルクのみで磁化反転を行う道筋を拓くものである。

(1-3)に記載した CoGa とフェリ磁性体 Mn₂Ga の 2 層構造を調べた結果、スピン軌道トルクを利用することで低電流磁化反転を誘起できることがわかった (Phys. Rev. B 99, 064410 (2019))。垂直磁気異方性が大きく、磁化が小さい Mn₂Ga は低電流で磁化制御ができるだけでなく、強磁性共鳴周波数が大きいために THz 波デバイスにも応用できることが期待される。

(1-1)で述べた振動性交換結合を有する Pt/Co/Ir 多層膜に電流を印加し、Co 層間の結合が反強磁性の時、強磁性の時のスピン軌道トルクを比較した。その結果、前者のスピン軌道トルクが後者のそれより、15 倍程度大きいことがわかった。多層膜の磁気構造を反映したスピン依存量子井戸がスピン軌道トルクに影響を与えていることを示唆する結果である (Phys. Rev. B 101, 014404 (2020))。

(2-2) 電界駆動磁壁移動

Co/Pt 系材料で観測された磁区構造の電界変調現象を詳細に調査し、その起源が電界印加による交換相互作用作用の変調に由来することを明らかにした (Appl. Phys. Lett. 109, 022401 (2016))。さらに交換相互作用の電解変調の大きさから提案するデバイスにおける電界駆動磁壁移動の有効磁場の大きさを見積もった (Jpn. J. Appl. Phys. 56, 050305 (2017))。

また、電界により局所的な磁化反転を起こす機構として、磁壁移動が優位な場合と磁区の核生成が優位な場合で、電界効果による保磁力の変化の方向が異なることが明らかとなった (Phys. Rev. B 96 (2017) 224409)。

(2-3) 反強磁性体のスピン操作

申請時に IrMn 合金で見いだされていた反強磁性体を介したスピン流伝搬を、FeMn や NiO などの他の反強磁性体においても確認し (Appl. Phys. Lett. 106, 162406 (2015))、反強磁性体を介したスピン流伝搬の理論構築を行った (Phys. Rev. B 92, 020409(R) (2015))。さらに、この反強磁性体を介したスピン流伝搬が反強磁性体中のスピン構造に依存することを見出した (Phys. Rev. Lett. 119, 267204 (2017))。

反強磁性体を介したスピン流伝搬が起こるということは、反強磁性体の磁化にスピン移送トルクを印加することが可能であることを意味している。実際、反強磁性体 NiO の磁化をスピントルクで制御するメモリ動作が可能であることを実証した (Scientific Reports 8, 14167 (2018))。さらに、人工反強磁性体の磁化をスピントルクで制御できることを示した (Phys. Rev. Lett. 121, 167202 (2018))。

(3) 当初計画で予期されなかった成果

フェリ磁性体は、2 種類の磁気モーメントが反強磁性的に結合しながらも正味の磁化を有する物質である。磁化の大きさは組成や温度で調整可能で、2 種類の磁気モーメントが完全に打ち消し合い反強磁性体のように磁化がゼロとなる状況も実現可能である。フェリ磁性体を利用して反強磁性体のスピン操作の研究を行ったところ、以下の当初計画で予期されなかった成果を得ることができた。GdFeCo 合金中の磁壁移動速度が特定の温度で急激に増大することを見だし、この現象を理論的に考察することで、この温度では GdFeCo 合金中の Gd の角運動量と FeCo の角運動量が打ち消しあうために、反強磁性的超高速スピンダイナミクスによって磁壁移動速度が増大することを明らかにした (Nature Materials 16, 1187 (2017))。さらに、フェリ磁性 GdFeCo 合金を用いてスキルミオンホール効果の温度依存性を調べ、角運動量補償温度においてスキルミオンホール効果が消失することを実証した (Nature Nanotechnology 14, 232 (2019))。また、フェリ磁性 GdFeCo 合金中の磁壁と電流の相互作用が強磁性体に比べてかなり大きいことを見いだした (Nature Electronics 2, 389 (2019))。

以上のように、本研究では、当初に掲げた研究目的を達成するのみならず、角運動量補償温度におけるフェリ磁性体が磁化を持つ反強磁性体として振る舞うことを明らかにするなど、当初目的を超えた成果をあげることができた。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 5 件)

- ① Takaya Okuno, Duck-Ho Kim, Se-Hyeok Oh, Se Kwon Kim, Yuushou Hirata, Tomoe Nishimura, Woo Seung Ham, Yasuhiro Futakawa, Hiroki Yoshikawa, Arata Tsukamoto, Yaroslav Tserkovnyak, Yoichi Shiota, Takahiro Moriyama, Kab-Jin Kim, Kyung-Jin Lee, Teruo Ono, Spin-transfer torques for domain wall motion in antiferromagnetically coupled ferrimagnets, *Nature Electronics* 2, 389-393 (2019); DOI: 10.1038/s41928-019-0303-5, 査読有
- ② Duck-Ho Kim, Mitsutaka Haruta, Hye-Won Ko, Gyungchoon Go, Hyeon-Jong Park, Tomoe Nishimura, Dae-Yun Kim, Takaya Okuno, Yuushou Hirata, Yasuhiro Futakawa, Hiroki Yoshikawa, Wooseung Ham, Sanghoon Kim, Hiroki Kurata, Arata Tsukamoto, Yoichi Shiota, Takahiro Moriyama, Sug-Bong Choe, Kyung-Jin Lee, Teruo Ono, Bulk Dzyaloshinskii-Moriya interaction in amorphous ferrimagnetic alloys, *Nature Materials* 18, 685 (2019); DOI:10.1038/s41563-019-0380-x, 査読有
- ③ Yuushou Hirata, Duck-Ho Kim, Se Kwon Kim, Dong-Kyu Lee, Se-Hyeok Oh, Dae-Yun Kim, Tomoe Nishimura, Takaya Okuno, Yasuhiro Futakawa, Hiroki Yoshikawa, Arata Tsukamoto, Yaroslav Tserkovnyak, Yoichi Shiota, Takahiro Moriyama, Sug-Bong Choe, Kyung-Jin Lee, Teruo Ono, Vanishing skyrmion Hall effect at the angular momentum compensation temperature of a ferrimagnet, *Nature Nanotechnology* 14, 232-236 (2019); DOI:10.1038/s41565-018-0345-2, 査読有
- ④ K.-J. Kim, S. K. Kim, Y. Hirata, S.-H. Oh, T. Tono, D.-H. Kim, T. Okuno, W. S. Ham, S. Kim, G. Go, Y. Tserkovnyak, A. Tsukamoto, T. Moriyama, K.-J. Lee, T. Ono, Fast Domain Wall Motion in the Vicinity of the Angular Momentum Compensation Temperature of Ferrimagnets, *Nature Materials* 16, 1187 (2017); DOI: 10.1038/nmat4990 (2017) 査読有
- ⑤ Yoko Yoshimura, Kab-Jin Kim, Takuya Taniguchi, Takayuki Tono, Kohei Ueda, Ryo Hiramatsu, Takahiro Moriyama, Keisuke Yamada, Yoshinobu Nakatani, Teruo Ono, Soliton-like magnetic domain wall motion induced by the interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction, *Nature Physics* 12, 157 (2016) DOI:10.1038/nphys3535, 査読有

*プロジェクト全体で 165 報の論文を発表した。

[学会発表] (計 5 件)

- ① Teruo Ono, Vanishing skyrmion Hall effect in ferrimagnet, 10th International Symposium on Metallic Multilayers, Madrid, Spain, June 21, 2019 (invited)
- ② Teruo Ono, Intermag 2018, Magnetic domain wall dynamics and its application, Singapore, Singapore, April 25, 2018, (invited)
- ③ Teruo Ono, Gordon Research Conference “Spin Dynamics in Nanostructures”, Spin Dynamics in Materials with Dzyaloshinskii-Moriya Interaction, Les Diablerets, Switzerland, July 20, 2017 (invited)
- ④ Teruo Ono, Soliton-like magnetic domain wall motion induced by the interfacial Dzyaloshinskii-Moriya interaction, American Physical Society March Meeting, Baltimore, USA, March 14, 2016 (invited)
- ⑤ Teruo Ono, Domain wall motion by electric field gating, International Magnetism Conference 2015, Beijing, China, May 12th, 2015 (invited)

*プロジェクト全体で 123 件の招待講演を行った。

[産業財産権]

○出願状況 (計 2 件)

名称：磁気メモリ素子
 発明者：小野輝男
 権利者：京都大学
 種類：特許
 番号：特願 2019-182912
 出願年：2019
 国内外の別： 国内

名称：磁気メモリ素子
 発明者：小野輝男
 権利者：京都大学
 種類：特許

番号：特願 2020-043841

出願年：2020

国内外の別： 国内

[その他]

ホームページ：<https://www.scl.kyoto-u.ac.jp/~onoweb/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：河野 浩

ローマ字氏名：(KOHNO, hiroshi)

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：大学院理学研究科

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：10234709

研究分担者氏名：仲谷 栄伸

ローマ字氏名：(NAKATANI, yoshinobu)

所属研究機関名：電気通信大学

部局名：大学院情報理工学研究科

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：20207814

研究分担者氏名：長浜 太郎

ローマ字氏名：(NAGAHAMA, taro)

所属研究機関名：北海道大学

部局名：工学系研究科

職名：准教授

研究者番号 (8 桁)：20357651

研究分担者氏名：中村 浩次

ローマ字氏名：(NAKAMURA, kohji)

所属研究機関名：三重大学

部局名：大学院工学研究科

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：70281847

研究分担者氏名：林 将光

ローマ字氏名：(HAYASHI, masamitsu)

所属研究機関名：東京大学

部局名：理学系研究科

職名：准教授

研究者番号 (8 桁)：70517854

研究分担者氏名：千葉 大地

ローマ字氏名：(CHIBA, daichi)

所属研究機関名：大阪大学

部局名：産業科学研究所

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：10505241

研究分担者氏名：谷山 智康

ローマ字氏名：(TANIYAMA, tomoyasu)

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：理学研究科

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：10302960