

令和 4 年 6 月 8 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02604

研究課題名(和文) 偶奇パリティ電子軌道混成に基づいたスピホール効果の解明と設計指針

研究課題名(英文) Designing spin-Hall effect based on even-odd parity hybridization of electron orbitals

研究代表者

小塚 裕介 (KOZUKA, Yusuke)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・主任研究員

研究者番号：70580372

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：磁性体を用いた不揮発メモリでは、磁性体中の磁化反転において電力が消費されるため、磁化反転過程の低消費電力化が望まれている。本研究では、スピホール効果を用いた磁化反転を効率的に行うことを狙い、軌道混成を考慮した物質・界面設計指針を得ることを目的とした。結果として、SrIrO₃薄膜において大きな非線形スピホール効果を観測した。第一原理計算により、表面・界面における反転対称性の破れに起因していることを突き止めた。また、Py/Bi₂WO₆界面ではマイクロ波照射によりPy中で大きな逆スピホール効果を観測した。この成果は、遷移金属と酸化物イオンの軌道混成が重要な役割を果たしていることを示している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ランダムアクセスメモリは電子デバイスの消費電力の大きな割合を占めるため、低消費電力化が望まれており、不揮発メモリの開発が盛んに行われている。磁気メモリは有力な候補であるが、データ書き換え時の電力消費の低減が望まれており、スピホール効果を用いた磁化反転によるデータ書き換えが注目されている。スピホール効果はスピ軌道相互作用に基づくため非磁性体の元素のみ注目されてきたが、本研究では多軌道間の混成も重要であることを示した。本研究成果の知見は、より効率的にスピホール公開による磁化反転を行うことのできる磁性体/非磁性体の組み合わせを設計する際の重要な指針となる。

研究成果の概要(英文)：In a non-volatile memory using a magnetic material, it is desired to reduce the power consumption in the magnetization reversal process as power consumption occurs in the magnetization reversal in the magnetic material. In this study, we aim to efficiently perform magnetization reversal using the spin Hall effect to obtain material design guidelines that consider orbital hybridization. As a result, a large nonlinear spin Hall effect is observed in the SrIrO₃ thin film. Based on the first-principles calculation, we find that this is caused by the inversion symmetry breaking at the surface and interface. In addition, at the Py/Bi₂WO₆ interface, a large signal of inverse spin Hall effect is observed in Py by microwave irradiation. This result shows that orbital hybridization of transition metals and oxide ions play an important role.

研究分野：酸化物エレクトロニクス

キーワード：スピホール効果 スピ軌道相互作用 酸化物エレクトロニクス

1. 研究開始当初の背景

磁性体を用いた不揮発メモリでは、磁性体中の磁化反転において電力が消費されるため、磁化反転過程の低消費電力化が望まれている。現在、磁化反転には伝送路に流す電流による磁場を用いている。しかし、この手法は大電流を流す必要があり消費電力の低減には限界がある。そこで、磁化反転の低消費電力化を図るため、スピン軌道相互作用を用いた手法が注目されている。この方法では、磁化反転を行いたい磁性体に非磁性層を積層し、非磁性層に流す電流に垂直方向に発生するスピン流を用いて磁性体の磁化にトルクを及ぼし磁化反転を行う。非磁性層のスピンホール効果が大きく、効率的に磁化反転が可能であれば、電流による磁場発生より格段に低い電力で磁化反転可能である。現在、より効率的に磁化反転を行うことが可能な非磁性体の探索が行われており、スピンホール効果の原理に基づいた物質設計が必要とされている。

2. 研究の目的

この背景に基づき、スピンホール効果を大きくする要素を物理的原理に基づいて切り分けて明らかにすることを目指す。一般的にスピンホール効果はスピン軌道相互作用に基づいているため、その効果が大きい重金属が用いられてきた。しかしながら、スピンホール効果を引き起こすスピン軌道相互作用は、*s* 軌道と *p* 軌道など異なる対称性を持つ軌道の混成が本質であり、必ずしも元素そのもののスピン軌道相互作用の大きさのみが重要とは限らない。本研究では、遷移金属酸化物を用いて、遷移金属酸化物の *d* 軌道と酸化物イオンの *p* 軌道の混成を用いたスピン軌道相互作用およびスピンホール効果の増強を目的とした。

3. 研究の方法

本研究で用いる酸化物薄膜試料はパルスレーザー堆積法によって作製した。まず、遷移金属酸化物の中でもスピン軌道相互作用が大きいと考えられている、イリジウム酸化物 SrIrO₃ のスピンホール効果について検証を行った。次に、絶縁体の遷移金属酸化物と磁性体の積層による近接効果を用いた、スピン軌道相互作用の増強の検討を行った。評価方法はロックインアンプによる交流電気測定による 2 次高調波測定を用いた。また、遷移金属酸化物と磁性体の積層に関しては逆スピンホール効果によって評価を行った。

4. 研究成果

(1) SrIrO₃ 薄膜の作製

パルスレーザー体制法を用いて、SrIrO₃ 薄膜を LSAT(001)、GdScO₃(110)、NdGaO₃(110) 基板上に堆積した。図 1 (a) の X 線回折像に示すようにいずれの基板上においてもエピタキシャルに SrIrO₃ 薄膜が堆積されている。図 1 (b) に示すように、GdScO₃ と NdGaO₃ は SrIrO₃ と同じ GdFeO₃ 型の歪んだペロブスカイト構造を持っており、LSAT は歪みのないペロブスカイト型構造を取る。

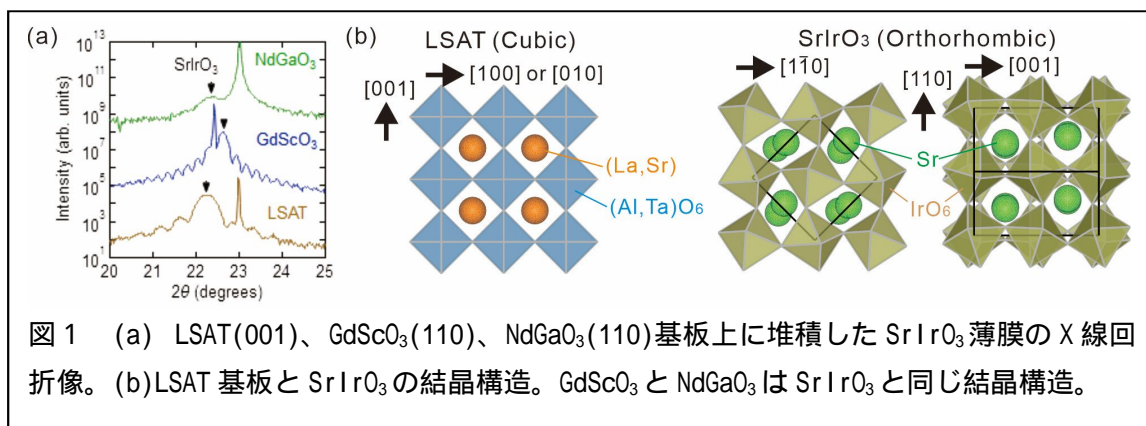
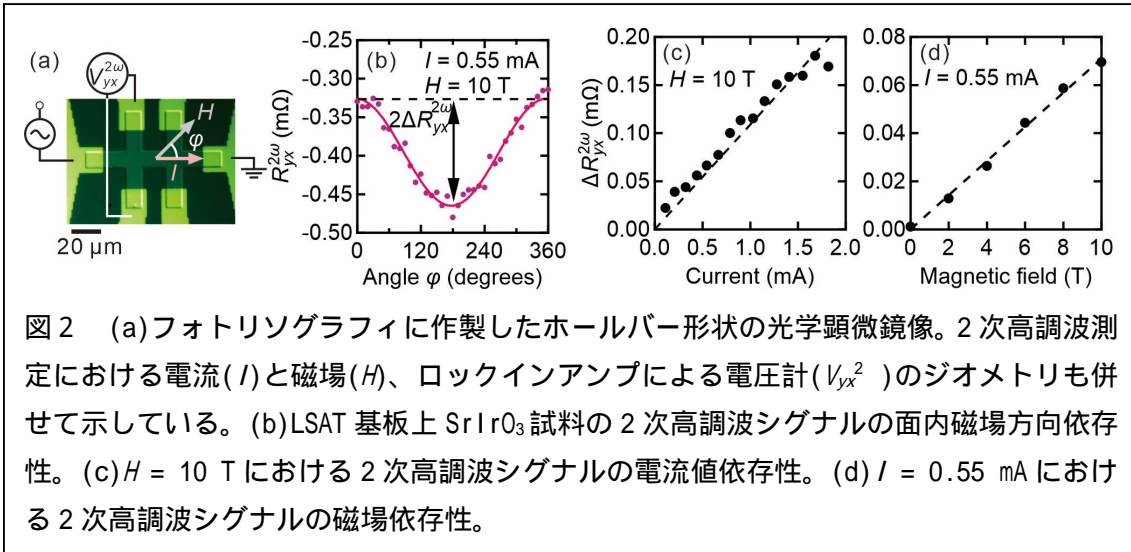


図 1 (a) LSAT(001)、GdScO₃(110)、NdGaO₃(110) 基板上に堆積した SrIrO₃ 薄膜の X 線回折像。(b) LSAT 基板と SrIrO₃ の結晶構造。GdScO₃ と NdGaO₃ は SrIrO₃ と同じ結晶構造。

(2) 2 次高調波による非線形スピンホール効果の観測

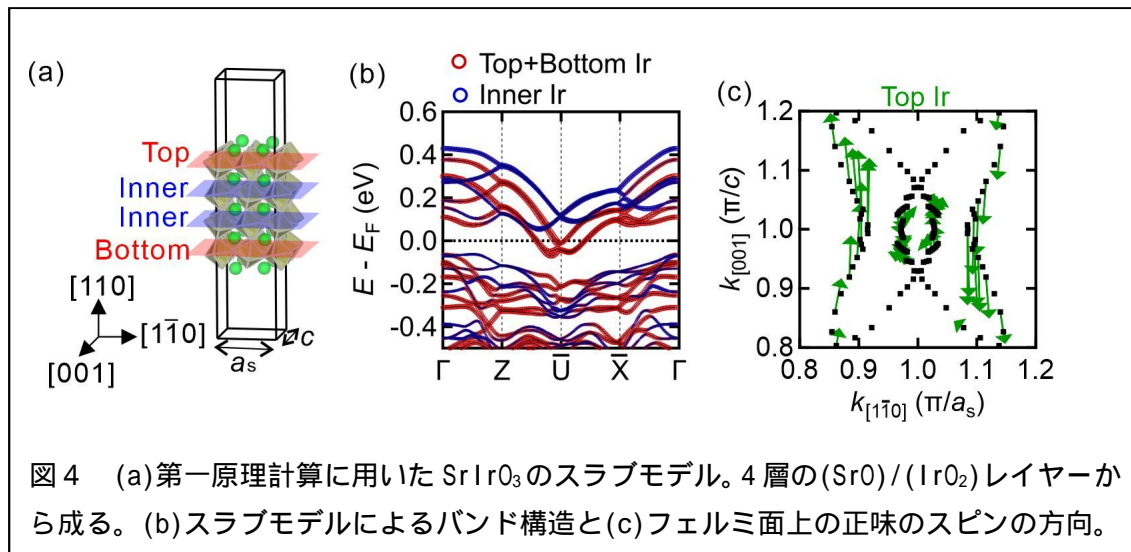
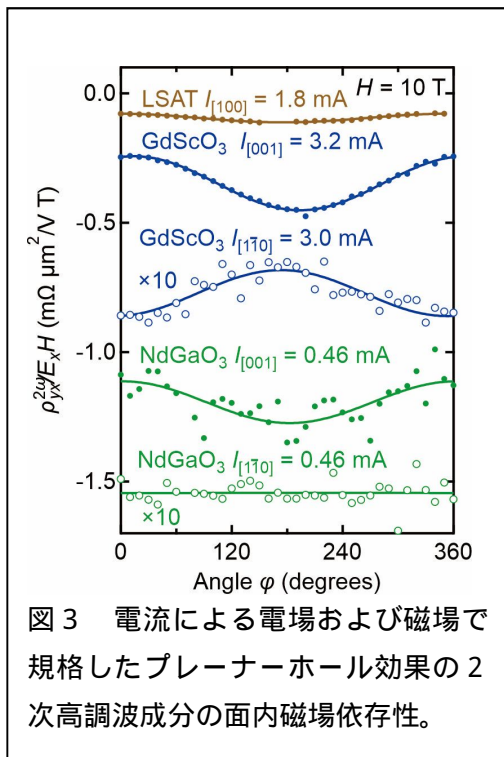
非線形のスピンホール効果はスピン軌道相互作用が強く、結晶反転対称性の破れた物質に現れることが知られている。これまで、Bi₂Te₃、WTe₂、LaAlO₃/SrTiO₃ において観測されている[1]。薄膜においては表面・界面では必ず反転対称性が破れるため、非線形スピンホール効果が表れる可能性がある。観測に十分な電流密度を得るため、フォトリソグラフィによりホールバーを形成した[図 2(a)]。測定は電流に垂直方向の電圧を測定するプレーナーホールジオメトリを用い、磁場は面内で回転させた。図 2(b) に示すように、2 次高調波シグナルは cos の磁場依存性を示し、非線形プレーナーホール効果が観測されていることを示している。図 2(c)、2(d) に示されるよ



うに、この2次高調波は電流と磁場に対し比例するため、実際に電流に対し2次の効果であり、非線形スピンホール効果が面内磁場によって観測されていることを示している。

この非線形スピンホール効果が表面・界面の影響であれば、基板の結晶構造の対称性や格子定数により敏感にシグナルに変化が現れることが示唆される。図3に示すように基板の違いによる非線形プレーナール効果の2次高調波成分の面内磁場依存性を調べると、LSAT基板では異方性が無いのに対し、GdScO₃基板とNdGaO₃基板では大きさ・符号ともに異方性が見られ、基板の対称性を反映していると考えられる。特に電流を[001]方向に流すと大きなシグナルが得られるのに対し、[1-10]方向に流すと符号は反転し大きさは1/10程度であった。

その起源を調べるために、第一原理計算を用いた。図4(a)に示す、スラブモデルを薄膜のモデルとして使用しバンド計算を行うと、図4(b)に示されるように、フェルミ準位の電子状態は表面のIrのd軌道によって構成されていることが分かった。このフェルミ面上の各k点に対してスピンを抽出すると、スピン波打ち消し合っており、構造を持つことが明らかとなった。比較のためバルクのSrIrO₃のバンドにおいてもスピンを計算すると、各k点で2つのスピン固有値は打ち消し合っており、スラブモデルでも有限のスピン起源は表面での反転対称性の破れに起因するものであることが示唆される。



今回観測された非線形スピホール効果は室温において WTe_2 や $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ よりも大きく、Ir のスピ軌道相互作用が強いのに加え酸化物イオンとの混成によってスピホール効果が増強されたことによると考えられる。

(3) Bi_2WO_6 薄膜の作製

スピ軌道相互作用の弱い磁性体に大きなスピホール効果を誘起することを目的に、絶縁体の酸化物の作製を行った。候補物質として層状の Bi_2WO_6 薄膜の作製をパルスレーザー堆積法によって試みた。 SrTiO_3 基板の表面の清浄化を目的に真空中で 900 程度の熱処理を行った後、500 で Bi_2WO_6 薄膜を堆積すると、図 5(a) に示されるように、a 軸方向に配向したドメインが形成され、不均質な薄膜が堆積された。一方で、 SrTiO_3 基板を 100mTorr の酸素雰囲気中で十分に加熱した後に Bi_2WO_6 薄膜を堆積すると均質に c 軸配向した Bi_2WO_6 薄膜が形成された。基板に酸素欠損があると酸化物イオンが基板に吸い取られてしまい、 Bi_2WO_6 薄膜が均質に結晶化しないため、このような配向特性を示したと考えられる。

(4) $\text{Py}/\text{Bi}_2\text{WO}_6$ ヘテロ構造における逆スピホール効果
図 6(a) に示す $\text{Py}/\text{Bi}_2\text{WO}_6$ 界面を作製し、界面の反転対称性の破れによって Py 中にスピ流が生成するか確かめるため、マイクロ波を照射し逆スピホール効果の測定を行った。図 6(b) に示すように逆スピホール効果が観測されスピ流が生成していることを示している。その大きさを見積もるため、図 6(c) に示すように対称・反対称成分 ($V_S \cdot V_A$) に分解し、その比 V_S/V_A からスピホール効果を見積もると、 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 界面や $(\text{Bi}, \text{Sb})_2\text{Te}_3$ に比肩する値を示すことが分かった。これは Bi_2WO_6 と Py を構成する Ni, Fe の軌道との混成が界面で起こり、スピホール効果が増強された結果と考えられる。

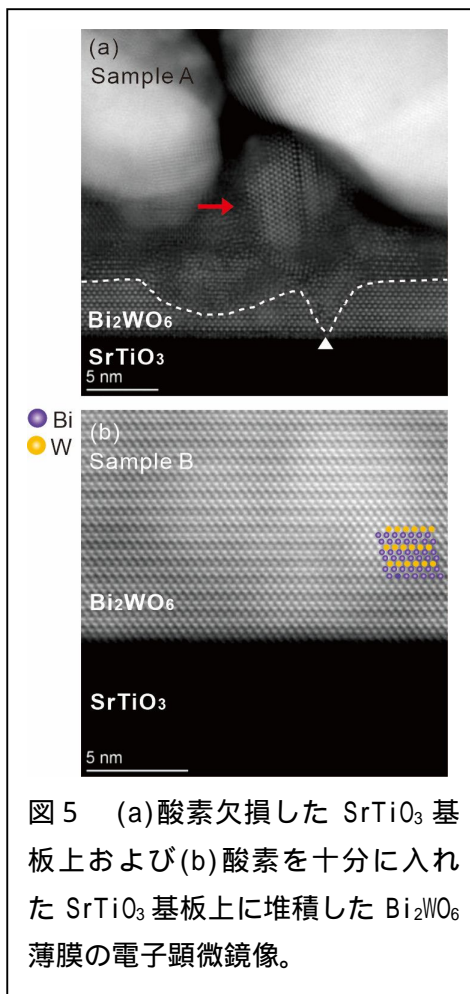


図 5 (a)酸素欠損した SrTiO_3 基板上および (b)酸素を十分に入れた SrTiO_3 基板上に堆積した Bi_2WO_6 薄膜の電子顕微鏡像。

参考文献

[1] P. He, S. S.-L. Zhang, D. Zhu, S. Shi, O. G. Heinonen, G. Vignale, and H. Yang, Phys. Rev. Lett. **123**, 016801 (2019).

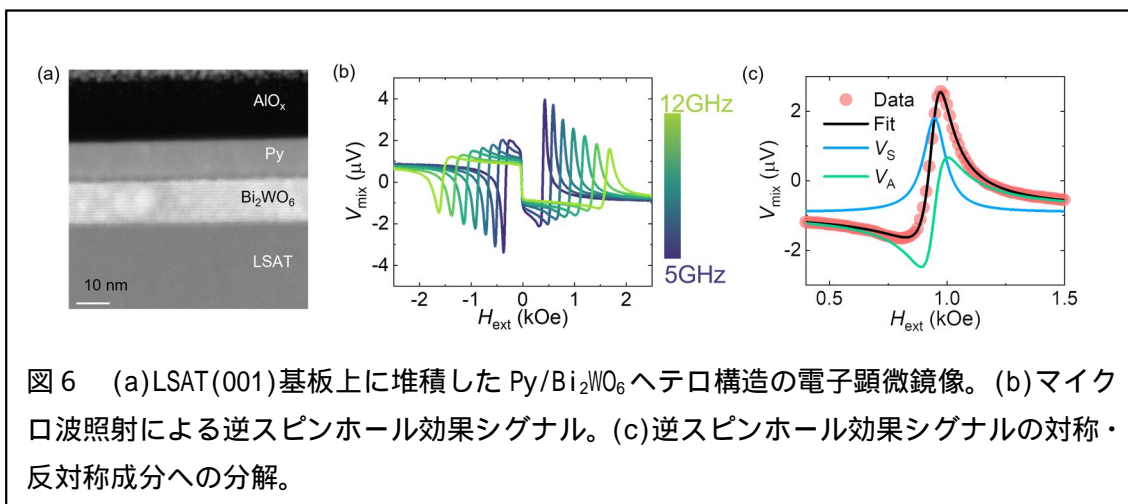


図 6 (a) $\text{LSAT}(001)$ 基板上に堆積した $\text{Py}/\text{Bi}_2\text{WO}_6$ ヘテロ構造の電子顕微鏡像。(b) マイクロ波照射による逆スピホール効果シグナル。(c) 逆スピホール効果シグナルの対称・反対称成分への分解。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Saikat Das, Tadakatsu Ohkubo, Shinya Kasai, Yusuke Kozuka	4. 巻 21
2. 論文標題 Deterministic Influence of Substrate-Induced Oxygen Vacancy Diffusion on Bi ₂ WO ₆ Thin Film Growth	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Crystal Growth & Design	6. 最初と最後の頁 625-630
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.cgd.0c01428	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 Kozuka Y., Isogami S., Masuda K., Miura Y., Das Saikat, Fujioka J., Ohkubo T., Kasai S.	4. 巻 126
2. 論文標題 Observation of Nonlinear Spin-Charge Conversion in the Thin Film of Nominally Centrosymmetric Dirac Semimetal SrIrO ₃ at Room Temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 236801-1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.126.236801	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 2件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 小塚 裕介
2. 発表標題 イリジウム酸化物薄膜におけるスピン-電荷結合電子輸送
3. 学会等名 物性研究所ワークショップ「ナノスケール物性科学の最先端と新展開」（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小塚 裕介, 磯上 慎二, Saikat Das, 藤岡 淳, 葛西 伸哉
2. 発表標題 SrIrO ₃ 薄膜における非線形電荷-スピン変換
3. 学会等名 第81回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Saikat Das, Tadakatsu Ohkubo, Shinya Kasai, Yusuke Kozuka
2. 発表標題 Deterministic influence of substrate-induced oxygen vacancy diffusion on Bi ₂ WO ₆ thin film growth
3. 学会等名 American Physical Society March Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Kozuka
2. 発表標題 Spin-charge coupled transport in Iridate heterostructures
3. 学会等名 Quantum Materials Symposium 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小塚 裕介, 磯上 慎二, 大久保 忠勝, 葛西 伸哉
2. 発表標題 SrIrO ₃ /Co ヘテロ 界面におけるスピン軌道トルク
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Saikat Das, Satoshi Sugimoto, Varun Kumar Kushwaha, Yusuke Kozuka, Shinya Kasai
2. 発表標題 Robust Spin Current Generation using Ferroelectric Bi ₂ WO ₆ at Room Temperature
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 小塚 裕介, 増田 啓介, 三浦 良雄, 藤岡 淳, 磯上 慎二, Saikat Das, 大久保 忠勝, 葛西 伸哉
2. 発表標題 第一原理計算によるSrIrO3薄膜における非線形スピホール効果発現機構の解明
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2021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
研究協力者	磯上 慎二 (ISOGAMI Shinji)		スピホール効果測定における協力

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------