

令和 6 年 5 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18965

研究課題名（和文）キラル結晶薄膜合成とキラルスピン트로ニクス開拓

研究課題名（英文）Synthesis of Chiral Crystal Thin Films and Exploration of Chiral Spintronics

研究代表者

金澤 直也（Kanazawa, Naoya）

東京大学・生産技術研究所・准教授

研究者番号：10734593

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：キラル物質薄膜合成とそのスピントロニクス機能の開拓を行ってきた。特に立方晶キラル結晶構造を有するFeSiのエピタキシャル薄膜合成に成功して、表面における室温強磁性の発現、室温ゼロ磁場での電流誘起磁化スイッチング、スキルミオン形成、リザーバーコンピューティングへ応用可能な高次非線形ホール効果といった新しい物性と機能を発見した。その他にも、らせん磁性体における創発インダクタンス効果の観測、不純物ドーピングに対するスキルミオンの安定性の精査などを行い、スピントロニクス応用におけるキラル物質の大きな潜在性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

キラル結晶やらせん磁性を利用して、概要に示したような様々なスピントロニクス機能を開拓することができた。一連の成果は6件の論文として出版し、さらに1件の日本語解説記事を執筆することができた。中でも、地球上にありふれた元素である鉄とシリコンの化合物であるFeSi薄膜において発見した電流誘起磁化スイッチング現象や高次非線形ホール効果は、MRAMやリザーバーコンピューティングなどへの持続可能な応用可能性を示した顕著な例となっている。今後も本研究で得られた知見を発展させることによって、基礎学理の構築やさらなる応用への発展研究が期待できる。

研究成果の概要（英文）：We have focused on the synthesis of chiral material thin films and the development of their spintronics functionalities. In particular, we successfully synthesized epitaxial thin films of FeSi with a cubic chiral crystal structure, discovering new properties and functionalities such as the manifestation of room temperature ferromagnetism on the surface, current-induced magnetization switching at room temperature without an external magnetic field, skyrmion formation, and higher-order nonlinear Hall effects applicable to reservoir computing. In addition, we observed the emergent inductance effect in helimagnetic materials. We also scrutinized the stability of skyrmions with impurity doping. Based on these results, we could demonstrate the significant potential of chiral materials in spintronics applications.

研究分野：物性物理学、応用物理学

キーワード：キラリティ トポロジースピントロニクス スピン軌道相互作用 スキルミオン スピン軌道トルク

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

構造のキラリティは生物学、宇宙物理学、有機化学など多岐に渡る分野において重要な概念になっている。物性物理学においても、キラリな結晶構造を有する無機固体において、キラリティに起因した電子状態やスピン状態、そしてそれらの物性や機能が発現することが知られている。特にこの十数年において無機固体のキラリ物性についての研究が発展し、ワイル電子状態やらせん/スキルミオン磁性、そしてキラリティ誘起スピン選択則、磁気キラリ効果による非相反伝導特性といった多彩な状態や物性が発見されてきた。現在も、物質中のトポロジーの概念との融合に根ざして、キラリ結晶におけるユニークな量子状態と量子機能の開拓が重要な課題となっている。

2. 研究の目的

原子が高密度に凝縮した無機結晶においては、電子状態の量子性が顕著に現れる。構造のキラリティが量子物性に反映した“キラリ量子物性・機能”の開拓が本研究の背景にある大きな目的である。特に構造由来の対称性の破れに起因した反対称的スピン軌道相互作用に注目することにより、種々のスピントロニクス機能への応用可能性を目指す。具体的には、Zak 位相と呼ばれる電気分極のトポロジーの概念をキラリ結晶に導入することによって、表面トポロジカル状態を創出し、表面における強スピン軌道結合物性の開拓を目標とした。

3. 研究の方法

(1) キラリ結晶薄膜の合成

本研究では立方晶のキラリ結晶 FeSi に注目してスピントロニクス機能開拓を行った。FeSi は非磁性の強相関絶縁体として古くから知られていたが、近年、研究代表者らは、Zak 位相という電気分極のトポロジーを表す量子位相に由来して、FeSi 表面に強磁性金属状態が発現することを発見した[1]。FeSi 薄膜を合成し様々なヘテロ接合を作製することによって、このユニークなトポロジカル表面状態におけるスピン物性を探索した。

具体的には、分子線エピタキシー法を用いることによって Si 基板の上に FeSi をエピタキシャル成長させ、数 nm から数十 nm の間で精密に膜厚制御した薄膜を作製した。さらにスパッタリング法によって FeSi エピタキシャル薄膜の上に、絶縁体物質や重金属膜を積層した。

(2) マイクロデバイス加工とスピン軌道結合物性測定

反対称的スピン軌道相互作用に起因した電気伝導現象を精密に評価するため、フォトリソグラフィを用いたマイクロデバイスを作製した。マイクロサイズにしたことによって、実効的に高電流密度を印加することが可能になり、スピン軌道相互作用を介した非線形伝導特性を評価することができた。特に高電流パルス印加時のスピン軌道トルクによる電流誘起磁化反転現象や交流電流によるインダクタンス効果を観測した。

(3) 磁気力顕微鏡を用いた磁気構造観察

反対称的スピン軌道相互作用は、電気伝導現象だけでなく磁気構造形成にも影響を与える。特に、反対称的スピン軌道相互作用はサイト間のスピンの向きをひねる交換相互作用 (Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用) として現れ、らせんスピン構造やスキルミオンといった非共線的スピントクスチャ形成を引き起こす。非共線的スピン構造形成の可能性を探求するため、磁気力顕微鏡 (MFM) を用いた実空間観測を行った。

4. 研究成果

(1) 室温ゼロ磁場における電流誘起磁化スイッチング現象の実現

FeSi トポロジカル表面状態に様々な非磁性絶縁体を積層し、表面電子・スピン状態がどのように変調されるかを系統的に調べた(図 1)。その結果、界面における電子軌道混成の度合いを小さくするほど、FeSi 表面状態密度の上昇や表面強磁性秩序形成の促進に繋がることが明らかになった。特に、FeSi 表面状態との電子軌道混成を最小限に抑制できるワイドバンドギャップを有するフッ化物絶縁体 (BaF_2 や CaF_2 など) を堆積することにより、表面強磁性磁気転移温度を室温以上にまで上昇させることができた。

さらに、反対称的スピン軌道相互作用に起因した表面バンドのフェルミ面の巨大スピン分裂により、高効率の電流-スピン流変換が可能である。具体的にはスピン軌道トルクを介した、電流誘起の磁化反転現象を観測できた。特に BaF₂ を接合した FeSi において、室温かつアシスト磁場なしで磁化スイッチング現象を実現できた。従来は、このような電氣的磁化反転デバイスは、磁化を担う磁性体層とスピン流発生を担う重金属層の多層構造になっていた。中でも重金属層は希少元素で構成されていることが多く、実用化に向けた障壁となっていた。ありふれた元素のみで構成され、多層構造が必要ない FeSi 薄膜は、MRAM といった磁気デバイスへの応用が強く期待できる。

これらの成果に対して論文出版[2]、特許出願[3]、解説記事執筆[4,5]を行った。

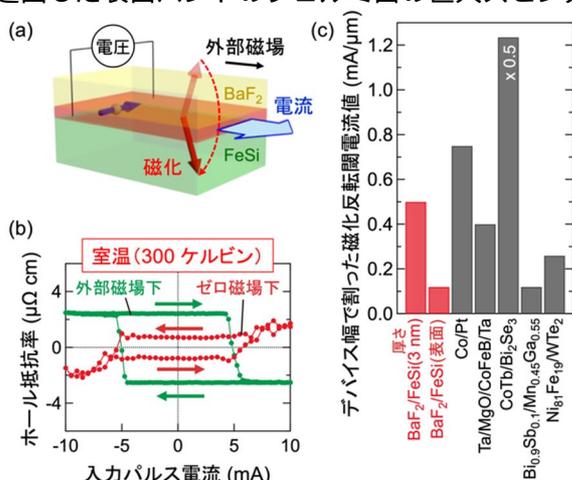


図 1. FeSi 表面での室温電流誘起磁化反転

(2) 界面スキルミオン形成と高次非線形ホール効果の観測

FeSi 表面スピントロニクス機能のさらなる開拓に向けて白金(Pt)接合による表面スピン状態の変調を試みた(図 2)。上記の通り FeSi トポロジカル表面は化学的に活性であり、接合物質の種類に応じて大きく変化する。スピン軌道結合の効果をさらに増強するため、原子番号が大きく原子そのものが本質的に強いスピン軌道相互作用を有している Pt を接合した。

界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が増強され、FeSi の表面強磁性秩序が変調を受け、サブミクロンサイズのスキルミオン磁気構造が発現した。これらのスキルミオンは結晶構造の乱れ(欠陥や表面荒さなど)によって強くピンされ、従来のスキルミオン状態と比べて 6 桁程度大きな電流密度でも駆動されないことがわかった。

この強いピン留め効果によって、大電流下でも安定にスキルミオンが存在してくれるため、高電流密度下で顕著になる非線形伝導効果を調べることができた。その結果、7 次までに及ぶ高次の非線形ホール効果を観測できた。高次非線形効果は、電流による非線形磁化ダイナミクスや非共線スピン構造による電子散乱効果といった複合的な機構によって引き起こされていると考えられた。特に、スピン構造のトポロジーが関与した「非線形トポロジカルホール効果」といった新しい伝導機構の発現が示唆された。またこのような強い非線形伝導現象はリザバーコンピューティングといった応用展開も期待できる。

これらの成果に対して論文出版[6]、解説記事執筆[5]を行った。

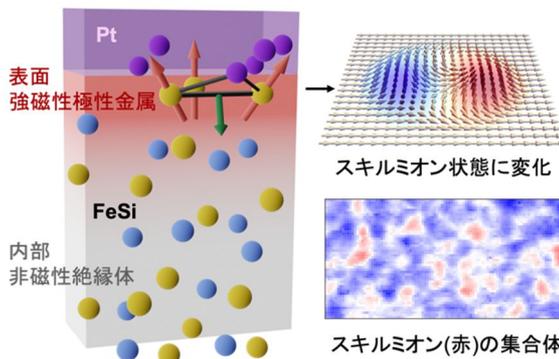


図 2. Pt/FeSi 表面でのスキルミオン形成

<引用文献>

- [1] Yusuke Ohtsuka[†], Naoya Kanazawa^{*†}, Motoaki Hirayama[†], Akira Matsui, Takuya Nomoto, Ryotaro Arita, Taro Nakajima, Takayasu Hanashima, Victor Ukleev, Hiroyuki Aoki, Masataka Mogi, Kohei Fujiwara, Atsushi Tsukazaki, Masakazu Ichikawa, Masashi Kawasaki, and Yoshinori Tokura, "Emergence of spin-orbit coupled ferromagnetic surface state derived from Zak phase in a nonmagnetic insulator FeSi", *Sci. Adv.* 7, eabj0498 (2021).
 - [2] Tomohiro Hori, Naoya Kanazawa^{*}, Motoaki Hirayama, Kohei Fujiwara, Atsushi Tsukazaki, Masakazu Ichikawa, Masashi Kawasaki, Yoshinori Tokura, "A Noble-Metal-Free Spintronic System with Proximity-Enhanced Ferromagnetic Topological Surface State of FeSi above Room Temperature", *Adv. Mater.* 35, 2206801 (2023).
 - [3] 金澤直也, 大塚悠介, 堀智洋, 平山元昭, 十倉好紀, 塚崎敦, 藤原宏平, "磁気素子", 特願 2022-177723, 出願日 2022 年 11 月 4 日.
 - [4] 解説記事: 金澤直也, 平山元昭, "非磁性半導体 FeSi における強磁性金属表面の発現とスピンオービトロニクス機能", *まてりあ* 61, 671-678 (2022).
 - [5] 解説記事: 金澤直也, 平山元昭, "非磁性絶縁体 FeSi における強磁性トポロジカル表面状態の発現と強スピン-軌道結合物性", *固体物理* 59, 133-143 (2024).
 - [6] T. Hori, N. Kanazawa^{*}, K. Matsuura, H. Ishizuka, K. Fujiwara, A. Tsukazaki, M. Ichikawa, M. Kawasaki, F. Kagawa, M. Hirayama, Y. Tokura, "Strongly pinned skyrmionic bubbles and higher-order nonlinear Hall resistances at the interface of Pt/FeSi bilayer", *Phys. Rev. Materials* 8, 044407 (2024).
- ([†]: equal contribution, ^{*}: corresponding author)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Aji Seno, Oda Tatsuro, Fujishiro Yukako, Kanazawa Naoya, Saito Hiraku, Endo Hitoshi, Hino Masahiro, Itoh Shinichi, Arima Taka-hisa, Tokura Yoshinori, Nakajima Taro	4. 巻 108
2. 論文標題 Direct observations of spin fluctuations in hedgehog-anti-hedgehog spin lattice states in MnSi _{1-x} Gex (x = 0.6 and 0.8) at zero magnetic field	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 54445
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.108.054445	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 Guang Yao, Fujishiro Yukako, Tanaka Aito, Peng Licong, Kaneko Yoshio, Kanazawa Naoya, Tokura Yoshinori, Yu Xiuzhen	4. 巻 7
2. 論文標題 Topological stability of spin textures in Si/Co-doped helimagnet FeGe	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Materials	6. 最初と最後の頁 025009 ~ 025009
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2515-7639/ad2ec4	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 -
1. 著者名 Sato Yuki, Nagahama Soma, Belopolski Ilya, Yoshimi Ryutaro, Kawamura Minoru, Tsukazaki Atsushi, Kanazawa Naoya, Takahashi Kei S., Kawasaki Masashi, Tokura Yoshinori	4. 巻 8
2. 論文標題 Molecular beam epitaxy of superconducting FeSexTe1-x thin films interfaced with magnetic topological insulators	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 L041801
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.8.L041801	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 Hori T., Kanazawa N., Matsuura K., Ishizuka H., Fujiwara K., Tsukazaki A., Ichikawa M., Kawasaki M., Kagawa F., Hirayama M., Tokura Y.	4. 巻 8
2. 論文標題 Strongly pinned skyrmionic bubbles and higher-order nonlinear Hall resistances at the interface of Pt/FeSi bilayer	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 44407
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.8.044407	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 Hori Tomohiro, Kanazawa Naoya, Hirayama Motoaki, Fujiwara Kohei, Tsukazaki Atsushi, Ichikawa Masakazu, Kawasaki Masashi, Tokura Yoshinori	4. 巻 35
2. 論文標題 A Noble Metal Free Spintronic System with Proximity Enhanced Ferromagnetic Topological Surface State of FeSi above Room Temperature	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2206801
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202206801	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 Kitaori Aki, White Jonathan S., Kanazawa Naoya, Ukleev Victor, Singh Deepak, Furukawa Yuki, Arima Taka-hisa, Nagaosa Naoto, Tokura Yoshinori	4. 巻 107
2. 論文標題 Doping control of magnetism and emergent electromagnetic induction in high-temperature helimagnets	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 24406
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.024406	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 該当する

〔学会発表〕 計11件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 金澤 直也
2. 発表標題 キラル結晶におけるトポロジカルスピン構造形成と創発電磁物性の研究
3. 学会等名 日本物理学会2024年春季大会 (招待講演)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Yuki Sato, Soma Nagahama, Ilya Belopolski, Ryutaro Yoshimi, Minoru Kawamura, Atsushi Tsukazaki, Naoya Kanazawa, Akiyoshi Yamada, Masashi Tokunaga, Kei S Takahashi, Masashi Kawasaki, Yoshinori Tokura
2. 発表標題 FeSexTe1-x thin films as a platform for exploring exotic superconducting states
3. 学会等名 APS March Meeting 2024 (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名	T. Hori, N. Kanazawa, M. Hirayama, K. Fujiwara, A. Tsukazaki, M. Ichikawa, M. Kawasaki, and Y. Tokura
2. 発表標題	A Noble-Metal-Free Spintronic System with Ferromagnetic Topological Surface State of FeSi above Room Temperature
3. 学会等名	第84回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年	2023年

1. 発表者名	永濱壯真, 佐藤雄貴, Ilya Belopolski, 吉見龍太郎, 川村稔, 塚崎敦, 金澤直也, 高橋圭, 川崎雅司, 十倉好紀
2. 発表標題	MBE成長させたFe(Se,Te)薄膜における電子相図
3. 学会等名	日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年	2023年

1. 発表者名	佐藤雄貴, 永濱壯真, Ilya Belopolski, 吉見龍太郎, 川村稔, 塚崎敦, 山田暉馨, 徳永将史, 金澤直也, 高橋圭, 川崎雅司, 十倉好紀
2. 発表標題	MBE成長させたFe(Se,Te)薄膜の上部臨界磁場測定
3. 学会等名	日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年	2023年

1. 発表者名	金澤直也
2. 発表標題	偏極中性子反射率測定による新規トポジカル強磁性表面の直接観測
3. 学会等名	東京大学物性研究所共同利用成果発表会 (招待講演)
4. 発表年	2023年

1. 発表者名 Naoya Kanazawa
2. 発表標題 Emergence of spin-orbit coupled ferromagnetic surface state derived from Zak phase in a nonmagnetic insulator FeSi
3. 学会等名 The 6th Asia-Pacific Conference on Semiconducting Silicides and Related Materials (APAC-SILICIDE 2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Naoya Kanazawa
2. 発表標題 Emergence of Ferromagnetic Topological Surface State in FeSi and Nonlinear Dynamics of Magnetic Domains
3. 学会等名 2022 MRS Fall Meeting & Exhibit (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 金澤 直也
2. 発表標題 FeSi における強磁性トポロジカル表面状態の発現と強スピン-軌道結合物性
3. 学会等名 2022年度第2回界面ナノ科学研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Hori, N. Kanazawa, M. Hirayama, A. Matsui, T. Nomoto, R. Arita, K. Fujiwara, A. Tsukazaki, M. Ichikawa, M. Kawasaki, Y. Tokura
2. 発表標題 Noble-metal free spintronic system with proximity-enhanced topological surface-ferromagnetic state of FeSi above room temperature
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 T. Hori, N. Kanazawa, M. Hirayama, K. Fujiwara, A. Tsukazaki, M. Ichikawa, M. Kawasaki, Y. Tokura
2. 発表標題 Noble-metal free spintronic system with proximity-enhanced ferromagnetic topological surface state of FeSi above room temperature
3. 学会等名 American Physical Society March Meeting 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 磁気素子	発明者 金澤直也, 大塚悠介, 堀智洋, 平山元昭, 十 倉好紀, 塚崎敦, 藤原	権利者 国立大学法人東 京大学, 国立大学 法人東北大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2022-177723	出願年 2022年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

金澤研究室ホームページ https://sites.google.com/view/kanazawa-lab
--

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
---------------------------	-----------------------	----

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		
スイス	Paul Scherrer Institute		