

令和 3 年 5 月 26 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2017～2020

課題番号：17H02791

研究課題名（和文）スピン-軌道相互作用を用いた強相関界面制御

研究課題名（英文）Control of correlated oxide interfaces by utilizing spin-orbit interaction

研究代表者

松野 丈夫（Jobu, Matsuno）

大阪大学・理学研究科・教授

研究者番号：00443028

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：イリジウム酸化物と強磁性体との界面において、異常ホール効果とトポロジカルホール効果が電界で制御できること、イリジウム酸化物がスピホール効果に起因する高いスピン軌道トルク生成効率を示しその効率が白金やタンタルと同程度であること、の二点を実験的に示した。これらの磁気輸送特性・スピン流輸送特性において、イリジウム酸化物中の5d電子が持つ強いスピン-軌道相互作用が本質的な役割を果たすことが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

イリジウム酸化物を含む5d電子系の持つ興味深い基礎物性は広く研究の対象となっている一方で、その電子材料としてのポテンシャルは注目されてこなかった。本研究で明らかとなった異常ホール効果、トポロジカルホール効果、スピホール効果などの輸送特性は5d電子が持つ強いスピン-軌道相互作用の学理が持つ重要性を示すとともに、磁化、スキルミオン、スピン流などを用いたデバイス応用の可能性を示しており、新電子材料としての5d電子系を提示している。

研究成果の概要（英文）：At interfaces consisting of Ir oxides and ferromagnet, we experimentally demonstrate that both anomalous Hall effect and topological Hall effect can be controlled by electric field and that high spin-orbit torque efficiency stemming from spin Hall effect of Ir oxides is comparable to that of Pt or Ta. We clarified that strong spin-orbit coupling of 5d electrons in the Ir oxides plays a crucial role in the magnetotransport and spin-current transport properties of the interfaces including the Ir oxides.

研究分野：物性物理学

キーワード：スピン・軌道相互作用 5d電子系 スピントロニクス イリジウム酸化物 パルスレーザー堆積法

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 大きなスピン-軌道相互作用を持つ  $5d$  電子系酸化物が強相関物理学の新しいパラダイムとなっている。これまで強相関の主な舞台であった  $3d$  電子系に対し、 $5d$  電子系ではクーロン相互作用が  $0.5$  eV 程度と小さいため、学術的興味に乏しいとされてきた。この常識に一石を投じたのが層状ペロブスカイト型  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  である。Ir 酸化物ではスピン-軌道相互作用 ( $\sim 0.5$  eV) がクーロン相互作用と同程度のエネルギーを持つため、 $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  ではスピン-軌道モット絶縁体という新たな電子相が現れる。この  $5d$  電子系におけるスピン-軌道相互作用と電子相関の協奏はバルク試料で盛んに研究されているが、エレクトロニクスへの展開は進んでいない。

(2) (1)で述べた現状に対し、研究代表者は  $5d$  電子系の特長に早くから着目し、薄膜・デバイス技術を駆使した研究により  $5d$  電子系を持つ電子材料としてのポテンシャルを以下のように明らかにしてきた。

二次元的  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  の三次元版である立方ペロブスカイト型  $\text{SrIrO}_3$  を  $\text{SrTiO}_3$  と組み合わせた人工超格子を作製することで次元性を 2 と 3 の間で精緻に制御するバンドエンジニアリングを行い、スピン-軌道モット絶縁体とその近傍の電子相制御を実現した。

よく知られた電極材料である  $\text{IrO}_2$  において、室温でスピンホール効果を観測した。 $\text{IrO}_2$  のスピン流検出特性は純金属の中でも優れた値を示す Pt を凌駕した。 $\text{IrO}_2$  において、これまで見過ごされてきたスピン-軌道相互作用の役割を初めて実験的に検証した。

### 2. 研究の目的

大きなスピン-軌道相互作用を持つ  $5d$  電子系、特に Ir 酸化物の電子材料としてのポテンシャルに着目する。 $5d$  電子系において近年発見されたスピン-軌道相互作用と電子相関との協奏効果を活用し、界面でのみ発現する新規電子相を開拓する。

(1) 良好な界面を形成しやすい立方ペロブスカイト型  $\text{SrIrO}_3$  を舞台に、パルスレーザー堆積法による薄膜・界面作製技術を駆使した界面での磁気スキルミオン形成を行う。これらの界面磁性制御の実現により、強相関エレクトロニクスにスピン-軌道相互作用という新たな自由度を取り込むとともに、背後にある界面でのジャロシンスキー-守谷相互作用などの学理を探求する。

(2) Ir 酸化物の持つスピン流物性を開拓する。金属スピントロニクスの分野ではスピン-軌道相互作用の強い物質として Pt がよく用いられる。Ir 酸化物は Pt と異なり  $6s$  電子を含まないため  $5d$  電子のスピン-軌道相互作用を十全に活用できるため、定性的に異なるスピン流物性が期待できる。

### 3. 研究の方法

パルスレーザー堆積法を用い、 $\text{SrIrO}_3$  薄膜および他の立方ペロブスカイトとの界面の作製条件最適化を行う。 $\text{SrIrO}_3$ /強磁性体界面におけるスキルミオン相をトポロジカルホール効果により検出し、界面 DM 相互作用と背後にあるスピン-軌道相互作用の役割を明らかにする。得られた界面スキルミオン相に対して、X 線吸収磁気円二色性を用いて電子構造の解析を行う。反応性スパッタ法を用いてルチル型  $\text{IrO}_2$  と強磁性体 (Py, CoFeB, YIG) との界面を形成し、界面により生じるスピン軌道トルク、スピンホール磁気抵抗、磁気異方性を評価する。

### 4. 研究成果

(1) 積層構造を  $\text{SrIrO}_3/\text{SrRuO}_3/\text{SrTiO}_3$  と  $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3/\text{SrTiO}_3$  の 2 種類作製し、ホール抵抗の電界効果を測定したところ、後者の構造でのみ電界効果が観測された。特に、異常ホール効果に対しては電界で符号を変えることに成功した (図 1)。 $\text{SrIrO}_3$  を挿入しない場合にはこのような大きな電界効果は観測されないことから、強いスピン-軌道相互作用を持つ  $\text{SrIrO}_3$  をゲート絶縁体と強磁性体の間に置くことが異常ホール効果の電界効果に対して本質的に寄与することが明らかとなった。さらに、トポロジカルホール効果でも  $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3/\text{SrTiO}_3$  の構造でのみ電界効果を観測した。界面に生じるジャロシンスキー-守谷相互作用およびそれによって作られたスキルミオン構造がトポロジカルホール効果の起源であることは、すでに研究代表者による先行研究で明らかとなっているため、観測された電界効果は、スキルミオンの数密度変化に対応すると考えられる。

(2) Spring-8 BL39XU において X 線吸収磁気円二色性 (XMCD) により  $\text{SrRuO}_3/\text{SrIrO}_3$  界面において  $\text{SrIrO}_3$  に生じる近接磁性を評価したところ、 $0.02$  ボーア磁子と金属系界面に比べて著しく小さいことを見出した。界面と混晶  $\text{Sr}(\text{Ru}, \text{Ir})\text{O}_3$  における XMCD スペクトルの違い、第一原理計算との比較から、金属系に比して非常に小さい近接効果が Ir 酸化物における電子構造の特殊性に由来することを明らかにした。一方でトポロジカルホール効果の原因となると考えられる DM 相互作用と近接磁化との相関は非常に弱いことが明らかとなった。

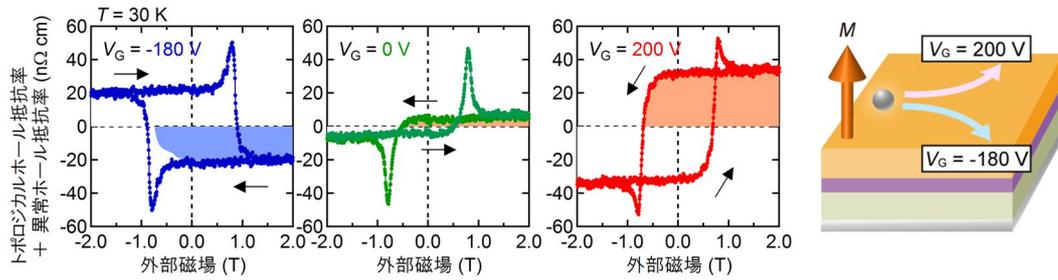


図 1 左：30 K で測定した異常ホール効果の電界効果 ( $V_G$  はゲート電圧を示す)。塗りつぶした部分がトポロジカルホール効果を除去した異常ホール効果のみの寄与を表し、その符号がマイナス (青) からプラス (赤) へと電界によって反転している。右：異常ホール効果の電界効果を示す模式図。磁化  $M$  を反転させずに電界のみで異常ホール効果の符号を反転させている。

(3) Ir 酸化物を含む界面系を 4 つ取り上げてスピン流物性を調べた。

2 層膜  $\text{Py}/\text{IrO}_2$  においてホール電圧の二次高調波を測定することでスピン軌道トルク生成を確認した。磁化方向に依存する damping like (DL) と磁化方向に依存しない field like (FL) の 2 つの成分を独立に評価することで  $\text{IrO}_2$  が Pt や Ta と同程度の高い DL スピン軌道トルク生成効率を持つことが分かった。生成効率の膜厚依存性は、ドリフト拡散モデルと一致し、スピンホール効果に起因することが明らかとなった (図 2)。さらに、2 層膜  $\text{Py}/\text{IrO}_2$  における DL スピン軌道トルクや界面に起因する異常ホール抵抗、垂直磁気異相性が  $\text{IrO}_2$  を下に積層した方が増大するという積層順序の重要性を示唆する結果を得た。

2 層膜  $\text{CoFeB}/\text{IrO}_2$  において高調波ホール抵抗測定とスピンホール磁気抵抗効果 (SMR) 測定を行い、 $\text{IrO}_2$  の電流-スピン流変換効率が Pt と同程度の大きさを示すことを明らかにした。これは 2 層膜  $\text{Py}/\text{IrO}_2$  と一致する結果である。強磁性層を二種類の非磁性層で挟んだ三層膜構造  $\text{IrO}_2/\text{CoFeB}/(\text{Pt}, \text{Ir})$  についても同様の測定を行い、Pt と Ir の挿入により変換効率が制御可能であることを示した。

$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (YIG) を含む界面において電流-スピン流変換効率とスピン流の透過度をスピンホール磁気抵抗効果 (SMR) により調べた。Si 基板上的多結晶 YIG/Pt において、報告例の多い GGG 基板上的エピタキシャルな YIG/Pt と同程度の信号が観測された、YIG/ $\text{IrO}_2$  では有意な信号が観測できなかった。YIG と  $\text{IrO}_2$  の界面の質が原因となっていると考えられる。 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (YIG) を含む界面において電流-スピン流変換効率とスピン流の透過度を SMR により調べた。YIG/ $\text{IrO}_2$  では YIG/Pt に比べて微弱な SMR 信号を観測することができた。YIG 上に  $\text{IrO}_2$  を堆積させる際の表面処理ならびに  $\text{IrO}_2$  の結晶性が SMR 信号の強度に関与することが示唆された。

エピタキシャル  $\text{SrIrO}_3/\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  界面において、磁性層  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6$  において強磁性共鳴により生じたスピン流を非磁性層  $\text{SrIrO}_3$  に注入し、逆スピンホール電圧として検出するスピンポンピング測定を行った。フォトリソグラフィにより導波路デバイスを形成することにより、エピタキシャル界面  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6/\text{SrIrO}_3$  のスピンポンピング信号を確認した。これはエピタキシャル酸化物界面における初めてのスピン流観測であると同時に、参照資料である  $\text{La}_2\text{NiMnO}_6/\text{Pt}$  と比べても同程度の信号強度であることから、スピントロニクスにおけるエピタキシャル界面の重要性を示唆している。

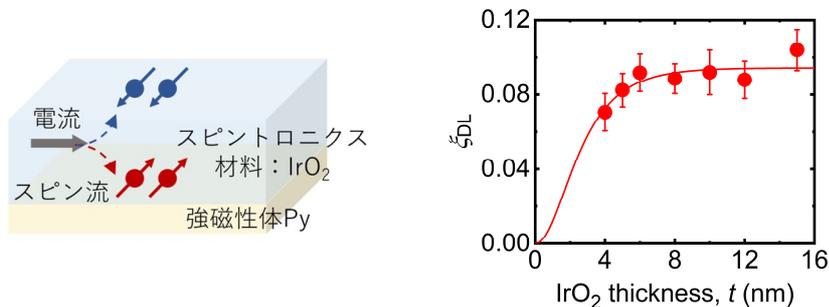


図 2 左： $\text{IrO}_2$  において電流からスピン流を生成し強磁性体との界面に蓄積させる模式図。右：スピン軌道トルク生成効率の  $\text{IrO}_2$  膜厚依存性。実線はドリフト拡散モデルによるフィッティング。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 5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 Ueda Kohei, Moriuchi Naoki, Fukushima Kenta, Kida Takanori, Hagiwara Masayuki, Matsuno Jobu	4. 巻 102
2. 論文標題 Spin-orbit torque generation in NiFe/IrO <sub>2</sub> bilayers	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134432(1-7)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.102.134432	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 松野 丈夫	4. 巻 71
2. 論文標題 強いスピン-軌道相互作用を持つ酸化物界面	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 生産と技術	6. 最初と最後の頁 53-58
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
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 Y. Ohuchi, J. Matsuno, N. Ogawa, Y. Kozuka, M. Uchida, Y. Tokura, and M. Kawasaki	4. 巻 9
2. 論文標題 Electric-field control of anomalous and topological Hall effects in oxide bilayer thin films	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 213 (1-7)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-017-02629-3	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 Y. Kozuka, T. C. Fujita, M. Uchida, T. Nojima, A. Tsukazaki, J. Matsuno, T. Arima, and M. Kawasaki	4. 巻 96
2. 論文標題 Visualizing ferroic domains in an all-in-all-out antiferromagnet thin film	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 224417 (1-5)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.96.224417	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 T. C. Fujita, Y. Kozuka, J. Matsuno, M. Uchida, A. Tsukazaki, T. Arima, and M. Kawasaki	4. 巻 2
2. 論文標題 All-in-all-out magnetic domain inversion in Tb2Ir2O7 with molecular fields anti-parallel to external fields	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 011402(R) (1-5)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.2.011402	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 松野 丈夫	4. 巻 38
2. 論文標題 5d電子系酸化物界面におけるスピン依存伝導	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 表面科学	6. 最初と最後の頁 614-619
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 松野 丈夫, 川崎 雅司	4. 巻 33
2. 論文標題 スピンの実空間トポロジジーが生む新たな輸送現象：トポロジカルホール効果	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 パリティ	6. 最初と最後の頁 32-33
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

〔学会発表〕 計29件（うち招待講演 17件 / うち国際学会 11件）

1. 発表者名 上田浩平, 森内直輝, 福島健太, 木田 孝則, 萩原 政幸, 松野丈夫
2. 発表標題 強いスピン-軌道相互作用を持つIrO2のスピン軌道トルク
3. 学会等名 スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク拠点2020年度年次報告会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上田浩平, 森内直輝, 福島健太, 木田 孝則, 萩原 政幸, 松野丈夫
2. 発表標題 Ni81Fe19/IrO2界面から誘起されるスピン軌道トルク
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 堀惣介, 上田浩平, 松野丈夫
2. 発表標題 SrIrO3/CoFeB界面における電流-スピン流変換効率
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Jobu Matsuno
2. 発表標題 Emergent Phenomena at Oxide Interfaces with Strong Spin-Orbit Coupling
3. 学会等名 2020 MRS Spring/Fall Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 J. Matsuno
2. 発表標題 Emergent phases at oxide interfaces with strong spin-orbit coupling
3. 学会等名 Oxide Superspin 2019 Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松野 丈夫
2. 発表標題 5d電子系界面におけるスピン流特性
3. 学会等名 令和元年度東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究会「固体素子における非平衡ダイナミクスの精緻な理解と機能開拓」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 福島 健太, 森内 直輝, 木田 孝則, 萩原 政幸, 上田 浩平, 松野 丈夫
2. 発表標題 Y3Fe5012/1r02界面におけるスピン流物性
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 森内 直輝, 福島 健太, 木田 孝則, 萩原 政幸, 上田 浩平, 松野 丈夫
2. 発表標題 NiFe/1r02界面における電流-スピン流変換効率
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺林 真輝, 関 真一郎, 高木 里奈, 中村 優男, 川崎 雅司, 石橋 幸治, 齋藤 智彦, 松野 丈夫
2. 発表標題 エピタキシャル酸化物界面におけるスピン流の検出
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 上田 浩平, 森内 直輝, 福島 健太, 木田 孝則, 萩原 政幸, 松野丈夫
2. 発表標題 2層膜Ni81Fe19/IrO2におけるスピン軌道トルク生成
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 J. Matsuno
2. 発表標題 Transport phenomena in heterostructures of strong spin-orbit interaction oxides
3. 学会等名 14th International Ceramics Congress (CIMTEC 2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 J. Matsuno
2. 発表標題 Oxide spintronics utilizing spin-orbit coupling
3. 学会等名 Topological and Correlated Electronic Materials (ToCoTronics2018) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 J. Matsuno
2. 発表標題 Electric-field control of anomalous and topological Hall effects in oxide bilayer thin films
3. 学会等名 SPIE (Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers) Nanoscience + Engineering (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 J. Matsuno
2. 発表標題 Spin-orbitronics at transition-metal oxide interfaces
3. 学会等名 16th RIEC International Workshop on Spintronics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Matsuno
2. 発表標題 Oxide spintronics utilizing spin-orbit coupling
3. 学会等名 19th Japan-Korea-Taiwan Symposium on Strongly Correlated Electron Systems (JKT19) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Matsuno
2. 発表標題 Magnetic proximity effect at oxide interfaces with strong spin-orbit coupling
3. 学会等名 8th Indo-Japan Seminar: Designing Emergent Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Matsuno
2. 発表標題 Oxide spin-orbitronics
3. 学会等名 第42回日本磁気学会学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松野 丈夫
2. 発表標題 5d電子系酸化物の界面とスピントロニクス
3. 学会等名 平成30年度東北大学電気通信研究所共同プロジェクト研究会「電荷とスピンの制御に基づく精密物性科学の構築とデバイス応用」(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松野 丈夫
2. 発表標題 酸化物界面におけるDM相互作用とスキルミオン
3. 学会等名 日本磁気学会・第67回スピントロニクス専門研究会(招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Ohuchi, J. Matsuno, Y. Kozuka, M. Uchida, M. Kawasaki
2. 発表標題 Anomalous Hall effect in perovskite cobalt oxide thin films
3. 学会等名 APS March Meeting 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松野 丈夫
2. 発表標題 スピン 軌道相互作用・電子相関・トポロジーの三重点
3. 学会等名 東北大学金属材料研究所共同利用・共同研究ワークショップ「物性物理分野における協働展開」(招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松野 丈夫
2. 発表標題 非磁性イリジウム酸化物を用いたスピントロニクス
3. 学会等名 日本学術振興会先進セラミックス第124 委員会研究会「電子・スピン・フォトン機能と情報分野に関わるマテリアル開発」(招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 J. Matsuno
2. 発表標題 CEMS Symposium on Trends in Condensed Matter Physics
3. 学会等名 Magnetic proximity effect at epitaxial oxide interfaces (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松野 丈夫
2. 発表標題 トポロジに由来する界面磁気輸送現象
3. 学会等名 平成29年度東北大学電気通信研究所 共同プロジェクト研究会「電荷とスピンの制御に基づく精密物性科学の構築とデバイス応用」(招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松野 丈夫, 大内 祐貴, 鈴木 基寛, 是常 隆, 有田 亮太郎, 小塚 裕介, 打田 正輝, 有馬 孝尚, 十倉 好紀, 川崎 雅司
2. 発表標題 酸化物エピタキシャル界面における磁気近接効果
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 大内 祐貴, 松野 丈夫, 小塚 裕介, 打田 正輝, 川崎 雅司
2. 発表標題 SrCoO <sub>3</sub> 薄膜における異常ホール効果
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Y. Ohuchi, J. Matsuno, M. Suzuki, T. Koretsune, R. Arita, Y. Kozuka, M. Uchida, T. Arima, Y. Tokura, M. Kawasaki,
2. 発表標題 Observation of antiparallel Ru-Ir spins in SrRuO <sub>3</sub> -SrIrO <sub>3</sub> heterointerface
3. 学会等名 第78回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 J. Matsuno
2. 発表標題 Oxide spintronics: how to tame spin-orbit coupling
3. 学会等名 International Union of Materials Research Societies - International Conference on Advanced Materials 2017 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松野 丈夫
2. 発表標題 スピン 軌道相互作用を用いたスピンの制御・活用 イリジウム酸化物を含む界面現象
3. 学会等名 日本磁気学会・第75回ナノマグネティクス専門研究会 (招待講演)
4. 発表年 2017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
--	---------------------------	-----------------------	----

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