

令和 2 年 6 月 17 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K14111

研究課題名(和文) 酸化物スピントロニクスの開拓

研究課題名(英文) Spin-orbitronics in oxides

研究代表者

軽部 修太郎 (Karube, Shutaro)

東北大学・工学研究科・助教

研究者番号：30802657

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、これまでスピントロニクスで扱われてきた重金属やトポロジカル絶縁体とは異なる、「電気伝導性酸化物」をスピントロニクス物質として取り扱い、新しいスピントロニクス生成機構を解明する事を目的に遂行された。

研究期間において、主にルテニウムとルテニウムの電気伝導性酸化物を用いて研究を行った。何れも酸化させる事でスピントロニクスの生成効率が高くなる事が分かり、新しいスピントロニクス機能の創製に成功した。これらの酸化物群は従来の比抵抗に依存するスケールリング則に依存しない事や、結晶方位依存性を示す事が明らかとなり、電気伝導性酸化物のスピントロニクス開拓を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

現在、我々の生活にかかす事の出来ないMRAMなどの磁気デバイスは、磁性体材料の磁化反転現象を原理として動作している。この磁化反転は、スピントロニクス物質に電流を印加する事で生成される「スピントロニクス」と呼ばれる物理現象を用いると効率的に行える事が知られており、様々な物質の探索や、生成機構解明のため研究が行われている。本研究課題は電気伝導性酸化物が、高いスピントロニクス生成効率や、結晶性に依存したスピントロニクス物性を有している事を明らかとし、今後スピントロニクス研究領域に新しい知見をもたらすと同時に、デバイス応用などの産業分野にも寄与できる社会的意義が大きい研究であると考えている。

研究成果の概要(英文)： This project called as "spin-orbitronics in oxide" has been done in order to explore and unveil novel spin current or spin-orbit torque generation mechanism in a electrically-conductive oxide as spin-orbit material which is different with conventional heavy metal or topological insulator.

I have focused on mainly rhenium oxide and ruthenium oxide for the study. the oxides have got a functionality to generate spin current via oxidation from the metals successfully. In particular, I have found specific behaviors in the oxides such as an independent resistivity scaling relationship of the spin current generation, and anisotropic spin current generation on the crystal orientation. Thus, I have studied the spin physics in the electrically-conductive oxides for exploring "spin-orbitronics in oxide".

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス スピントロニクス スピントロニクス スピントロニクス スピントロニクス 電気伝導性酸化物

1. 研究開始当初の背景

これまでにスピントロニクスは先進的に物理学の分野を牽引し様々な発見、応用を成してきた。例えば 80 年代に発見されたスピン依存電子散乱が起源である巨大磁気抵抗効果は、ハードディスクドライブの高密度集積化に大きく貢献し、ハードウェア市場に対して大きな影響を与えた。今日、我々が恩恵を実感するまでに至っている社会的意義が非常に大きい研究であった。このように電子の持つスピンの主役となるスピントロニクスは様々な可能性を秘めている。中でも取り分け重要な概念として、「スピン流」がある。スピン流は電荷の流れを伴わないスピン角運動量のみの流れを指し、物質中の強いスピン軌道相互作用(Spin-orbit interaction: SOI)によって生成が可能である。このスピンの流れを上手く利用することによって、磁化制御、特に磁化反転などを効率的に行おうとする傾向が強まっている。これまでに SOI の大きな Pt や Ta といった遷移金属が中心的に研究されてきたが、低電力消費デバイス開発という社会的要請からスピン軌道トルク生成効率が高い新たな物質群の探索およびその発現機構解明が望まれる。そのような最中昨年、スピン軌道トルク生成材料に新たな展開が訪れた。それは SOI が大きい遷移金属 W を「酸化」すると、トルク生成効率が従来の 20~30% から 50% 程度まで増加したというものである[1]。また SOI が大きい Bi の「酸化物」と銅の接合界面 Cu/Bi₂O₃ において、スピン軌道トルク生成が可能である直接的な証拠を申請者が世界で初めて発見した[2]。更に、申請者が所属するグループ[3]や他のグループ[4]から、元々 SOI が非常に弱い Cu を「酸化」させる事によって、Pt 並の SOI 発現、あるいはスピン軌道トルク生成が成される事を発見した。母物質の SOI の強さを問わず、酸化させる事によって何れもスピン軌道トルク生成源としての機能を持たせる事が出来るのは非常に興味深い。また応用的観点からも酸化物は大気に対して非常に安定であり取り扱い易く、Pt のような貴金属を用いなくとも、高効率トルク生成が出来る可能性を秘めている。

2. 研究の目的

1. で示したように、非常に魅力的な物質群であるが、未だ酸化物は殆どが調べられておらず、その巨大なトルクの生成機構については全く明らかとなっていない。本研究の学術的独自性は、スピントロニクスの観点において、酸素が金属に与える全く新しい機能に着目し、更なる学理を構築していこうとする点である。上述したように、これまでは Pt や Ta といった遷移金属系が調べられ、またスピン-運動量ロッキング現象から大きなスピン軌道トルク生成が見込まれるトポロジカル絶縁体 (BiSbTe) [5] などに関しても研究が行われてきた。今後は先に述べた WO_x や CuO_x などの酸化物を用いた高効率スピン軌道トルクの更なる利用が期待される。本研究ではこのようなトルク生成が期待される酸化物を系統的に調べ、その生成機構を解明する事を目的とする。最終的には「酸化物スピントロニクス」の学理を構築する事が目標である。

3. 研究の方法

本研究は、「(A)スピントルク強磁性共鳴測定」、「(B)ハーモニックホール測定」の2つの手法を駆使して、酸化物が生成するスピン軌道トルクの大きさやその生成効率ならびに結晶方位依存性を測定し、スピン軌道トルクを発現する材料を見出し、その生成機構解明に務めた。実験ではまず始めに、Si/SiO₂ 基板あるいは Al₂O₃ 単結晶基板上に、マグネトロン RF スパッタリング法によりレニウム酸化物、ルテニウム酸化物の成膜を行った。続いてフォトリソグラフィおよびイオンミリング法を用いてマイクロスケールのデバイスに加工を行った。測定において、(A)および(B)の手法では、スピン軌道トルクの大きさを直接的に測定する事が可能である。これらの測定を酸化条件や結晶性を変えたサンプルに対して行い、スピン軌道トルク生成機構を議論した。

4. 研究成果

まず始めに酸化によるスピン流生成効率の増強について、レニウム酸化物から得られた成果を述べる。金属レニウムは第一原理計算による理論および実験における先行研究によって、生成効率が非常に小さい物質として知られている。一般的

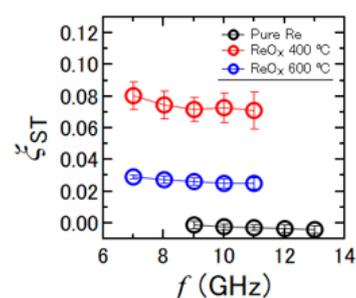


図 1 金属 Re, ReO_x(400°C 成膜), ReO_x(600°C 成膜)におけるスピン軌道トルク生成効率の周波数依存性

に酸化レニウム、特に ReO_3 などは電気伝導性が高いため、スピン軌道物質として利用する事が出来れば、上述した磁化反転現象などに有用であると考え研究を行った。実験では弱く酸化した ReO_x ($0 < x < 2$) が得られたが、金属並みの電気伝導性を有する酸化膜を得た。3.で述べた(A)の方法によって、スピン軌道トルクの生成効率 ξ_{ST} を調べた結果を図1に示す。金属 Re に関する結果は、前述した先行研究と良く一致する結果であり、極小である事が分かる。一方で ReO_x を 400°C および 600°C で成膜した何れの場合も、生成効率が増強されていることが見て取れる。特に 400°C の場合は金属 Re に比べ、実に 37 倍も大きくなる事が分かった。この結果は、一般的な重金属のスピンホール効果に見られるような、物質の比抵抗に依存するスケーリング則からは説明する事が出来ず、「酸化」された事で現れた特性であると考えられる。本成果はジャーナルに投稿し、出版準備中である。

続いて結晶の対称性に起因したスピン軌道トルク生成に関するルテニウム酸化物の報告を行う。

スピン流生成機構は主に、不純物散乱による外因性機構と、電子構造に由来する内因性機構が存在する。これまで単金属で調べられてきたものは外因性機構によるものが多く、電子構造や結晶方位に依存するような機構の議論が今後重要であると考えられる。そのような背景から、理論計算との対比も容易な高品質エピタキシャル酸化物薄膜が必要になる。ルチル型酸化物である RuO_2 は、正方晶系であり、(101)方向に成長すると、膜面内で2回結晶対称性を有する興味深い物質である。実験では本酸化物のエピタキシャル薄膜の成膜に成功しており、これをベースとしてスピン流、特にスピン軌道磁場の生成において結晶方位依存性が存在する事を明らかにした。以下にその詳細について述べる。

3.で上述した反応性スパッタリング法によって成膜したエピタキシャル $\text{RuO}_2(101)$ および $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}(\text{Py})$ の積層膜をマイクロスケールの細線に加工し、(B)の測定を行った。測定には図 2(a)に示すような同一基板上で異なる結晶方位角 ϕ_{C} を持つホールバー素子を用いた。図 2 (b), (c)はエピタキシャル RuO_2 によって生成されたダンピングライク (Damping-like: DL) 磁場およびフィールドライク (Field-like: FL) 磁場の結晶方位依存性を表す。大変興味深い事に、得られたスピン軌道磁場は $\sin 2\phi_{\text{C}}$ の依存性を示す事が分かり、DL 磁場に関しては全く値を示さない方位から 90° ずれると 10 倍以上大きな磁場が生成される事を明らかにした。このような方位依存性は、ルチル型の $\text{RuO}_2(101)$ 結晶の 2 回対称性と整合する結果であり、結晶性がスピン流 (スピン軌道磁場) 生成に異方性をもたらす重要な結果である。また、スピントルク強磁性共鳴法などの別の測定からも、同じような結晶方位の異方性を示すことが分かっている。本成果に関しても、現在論文投稿の準備中である。

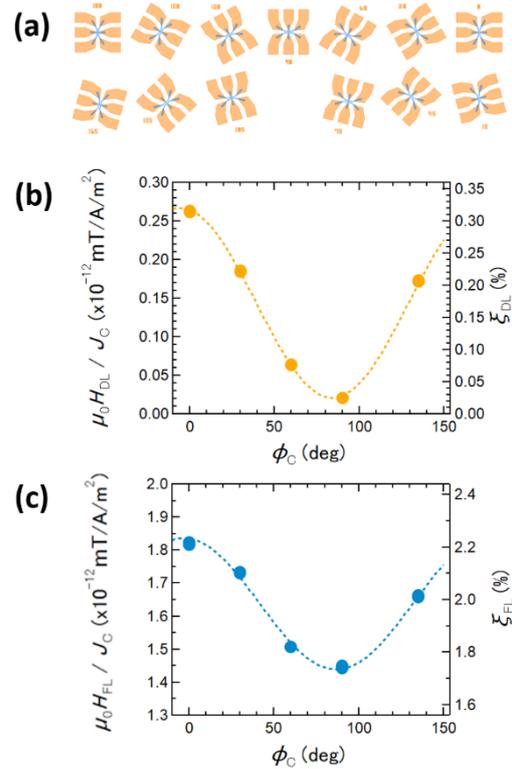


図 2(a) Al_2O_3 単結晶基板上に作製された素子. それぞれ異なる結晶方位角度 ϕ_{C} を有する. (b), (c) エピタキシャル RuO_2 で生成される DL, FL 磁場の結晶方位角依存性

<引用文献>

- [1]. Kai-Uwe Demasius, Timothy Phung, Weifeng Zhang, Brian P. Hughes, See-Hun Yang, Andrew Kellock, Wei Han, Aakash Pushp & Stuart S.P. Parkin, *Nature Communications* **7**, 10644 (2016).
- [2]. S. Karube, K. Kondou, Y. Otani, *Applied Physics Express* **9**, 033001 (2016).
- [3]. Ryoto Enoki, Hiromu Gamou, Makoto Kohda, and Junsaku Nitta, *Applied Physics Express* **11**, 033001 (2018).
- [4]. Hongyu An, Yuito Kageyama, Yusuke Kanno, Nagisa Enishi and Kazuya Ando, *Nature Communications* **7**, 13069 (2016).
- [5]. K. Kondou, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, Y. Fukuma, J. Matsuno, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Y. Tokura and Y. Otani, *Nature Physics* **12**, 1027 (2016).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 Shutaro Karube, Daichi Sugawara, Makoto Kohda and Junsaku Nitta
2. 発表標題 Spin-orbit torque in ionic crystal ReOx
3. 学会等名 応用物理学会 春季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Karube, D. Sugawara, C. Tang, T. Tanabe, M. Kohda, Y. Oyama and J. Nitta
2. 発表標題 Spin current generation and detection by THz-spectroscopy in ionic-coupling ReOx
3. 学会等名 金属学会 春季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Karube, N. Tezuka, D. Sugawara, C. Tang, T. Tanabe, M. Kohda, Y. Oyama and J. Nitta
2. 発表標題 新奇スピン軌道ヘテロ接合の創製と機能
3. 学会等名 第14回加藤委員会（招待講演）
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計0件

〔取得〕 計1件

産業財産権の名称 スピン材料およびスピン軌道トルク生成効率の制御方法	発明者 輕部修太郎、菅原大地、好田誠、新田淳作 他	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、特願2019-141973	取得年 2019年	国内・外国の別 国内

〔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
---------------------------	-----------------------	----