

令和 2 年 6 月 10 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2019

課題番号：16K21001

研究課題名(和文)履歴記憶素子に向けた酸化物クラスタースピングラスのスピングラス研究

研究課題名(英文) Research on spin wave characteristics in oxide spin cluster glass toward memory device recording history of applied external field

研究代表者

山原 弘靖 (Yamahara, Hiroyasu)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・助教

研究者番号：30725271

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：磁場・温度・光等の外場の入力履歴を記憶する履歴記憶素子の実現に向けて、ガーネット構造高温スピングラスLu₃Fe_{5-2x}Co_xSi_xO₁₂薄膜を作製した。Lu₃Fe₅O₁₂はフェリ磁性体で非常に小さいスピングラスのダンピング定数を示す。異方性Co²⁺及び非磁性Si⁴⁺を置換することでランダムネスとフラストレーションを導入し、約200Kにスピングラス挙動を示すスピングラス挙動を確認した。さらに磁場及び温度の履歴を記憶するメモリ効果を示し、多数の準安定状態が存在するポテンシャル構造を有することが示唆された。x=0.1の試料においてはスピングラス挙動とスピングラス励起を両立することが見出された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究ではスピントロニクスの中核的研究対象である強磁性体・反強磁性体のような秩序系ではなく、スピングラスという無秩序系を対象としている点に学術的特色がある。その複雑なポテンシャル構造(多谷構造)において特徴的な磁化応答は先行研究によって証明されており、スピングラスとの相関に発展させることは意義がある。スピングラスのポテンシャルはニューラルネットワークと同じモデル式で表現され、脳型記憶素子実現に向けた足掛かりとして社会的意義がある。

研究成果の概要(英文)：Garnet-structured spin cluster glass Lu₃Fe_{5-2x}Co_xSi_xO₁₂ thin films were fabricated toward memory device recording history of applied external field such as magnetic field, temperature, and light irradiation. Lu₃Fe₅O₁₂ is a ferrimagnet with an exceptionally low Gilbert damping constant. The substitution of anisotropic Co²⁺ and nonmagnetic Si⁴⁺ induces randomness and frustration resulting in spin glass behaviours below spin freezing temperature at around 200 K. The film demonstrate memory effect that record previous thermal history; this reveals the presence of metastable magnetic state. Lu₃Fe_{4.8}Co_{0.1}Si_{0.1}O₁₂ (x=0.1) film shows spin glass behaviours and spin wave generation that reflects spin freezing dynamics.

研究分野：酸化物エレクトロニクス

キーワード：スピングラス クラスタースピングラス スピングラス 希土類鉄ガーネット メモリ効果

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

スピングラスとは微量の磁性不純物の添加によって、そのスピン配列に「ランダムネス」と「フラストレーション」を導入することで、低温でスピンの乱雑に凍結した状態をとる物質である。このような物質は 1972 年に非磁性金属に微量 (1-2%) の磁性元素を添加した AuFe 合金が初めて報告された (スピン凍結温度 $T_f \sim 10$ K)。1975 年には Edwards-Anderson によってスピングラスの理論モデルが定式化され、1980 年代には情報統計学分野で精力的な研究が為され、最適化問題へと応用されることになる。ここで興味深いのは、そのモデル式が Hopfield によって提唱されたニューラルネットワークのモデル式とよく似ているという点であり、スピングラスの脳型記憶素子への応用研究が提案されているが、実現には至っていない。現象論では、低温のスピングラス相において非平衡スローダイナミクスに起因するメモリ効果やエージング現象と呼ばれる特徴的な記憶性質が報告されている。申請者は応用上、室温付近で動作することを目的として、酸化物クラスタースピングラス ($T_f \sim 270$ K) の磁気特性を研究してきた (J. Appl. Phys. 118 (2015) 063905)。($\text{FeTi})_3\text{O}_4$ 薄膜の磁場中冷却過程において、ある温度 (例えば 200 K) で磁化緩和を加えることで、昇温過程において緩和温度で明確な磁化変化が見られる。このメモリ効果は温度及び磁場の履歴を記憶していると言える。また、先行研究では ($\text{MgFeTi})_3\text{O}_4$ クラスタースピングラスにおいて光励起磁化応答が報告されている (Y. Muraoka et al. J. Appl. Phys. 88 (2000) 7223)。これらはスピングラスが多種の外場 (磁場・温度・光) に応答し、その履歴を重ね合わせた磁化状態を記憶する履歴/多値記憶素子として動作することを示唆している。しかしながら、応用面で重要となるスピングラスを用いた素子の実現は長年課題となっている。一方、スピントロニクス研究分野では近年、スピン角運動量の伝搬であるスピン波スピン流 (マグノン) が注目されている。2010 年にはフェリ磁性絶縁体であるイットリウム鉄ガーネット (YIG) にマイクロ波を照射することでスピン波を発生し、Pt とのヘテロ界面において逆スピンホール効果による起電力検出が為された (Y. Kajiwara et al. Natute 464 (2010) 262)。スピン波はスピンと直接作用するため、スピン配列状態を高感度で検出することが期待できる。そこで申請者はスピングラスの磁気状態をスピン波によって検出することにより、履歴/多値記憶素子を実現するという着想を得た。スピングラスをスピン波素子として利用した先行研究は、2011 年に Iguchi らが AgMn をスピン波吸収体として用い、低温のスピングラス相においてスピン拡散長やミキシングコンダクタンスが変化することを示している (R. Iguchi et al. J. Phys.:Conf. Ser. 266 (2011) 012089)。また、2015 年に申請者は希土類鉄ガーネットに元素置換した $\text{Lu}_3\text{Fe}_{5-2x}\text{Co}_x\text{Si}_x\text{O}_{12}$ クラスタースピングラスをスピンポンピングし、逆スピンホール電圧により、スピングラスの特徴である時間緩和現象を測定した。光励起と組み合わせることで、長期増強として知られるシナプスの結合強度の持続的増加現象を模倣することに成功している (Appl. Phys. Exp. 8 (2015) 043002)。しかしながら、多種の外場 (磁場・温度・光) に対する磁化履歴を検出するには至っていない。

2. 研究の目的

本研究では酸化物クラスタースピングラスにおけるマグノンの発生・伝搬機構を明らかにすることにより、履歴・多値記憶素子の開発を目的とする。非常に小さいスピングラス定数を有することを特徴とする希土類鉄ガーネットを対象として、磁気配列にランダムネスとフラストレーションを導入し、室温付近で動作する新規クラスタースピングラス材料を開発する。次にスピングラス相におけるスピン波特性を詳細に調査し、マグノンの発生/伝搬機構を明らかにする。磁場・温度・光等の外場の入力履歴を重ね合わせた磁化状態を記録し、スピン波により計測する履歴/多値記憶素子が実現できれば、この素子の動作は脳の学習機能に対応しており、集積化によって脳型記憶素子へと応用することを目指している。

3. 研究の方法

本研究では希土類鉄ガーネットの中でもダンピング定数が小さいルテチウム鉄ガーネット ($\text{Lu}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, LuIG) を対象とし、磁気異方性の強い Co^{2+} 及び非磁性電荷補償 Si^{4+} を添加することでランダムネスとフラストレーションを導入した $\text{Lu}_3\text{Fe}_{5-2x}\text{Co}_x\text{Si}_x\text{O}_{12}$ (LFCS, $x=0-0.5$) 薄膜を $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG) 基板上にパルスレーザー堆積法 (PLD 法) で作製した (図 1)。 Co^{2+} および Si^{4+} はイオン半径から Fe の八面体及び四面体サイトをそれぞれ置換することが予想される。LuIG/YAG の格子ミスマッチは 2.3% あり、一般には $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (GGG) 基板 (LuIG とのミスマッチ: -0.7%) が結晶成長に適している。しかし、GGG 基板が常磁性を示すことから薄膜の磁性評価に重点を置いて、本研究では非磁性の YAG 基板を選択した。X 線結晶構造解析 (XRD) で結晶構造を評価し、走査型透過電子顕微鏡 (STEM) により構造解析を実施した。超伝導量子干渉計 (SQUID) により熱履歴の記憶を示すメモリ効果を含め、スピングラス挙動を詳細に調べた。磁気異方性およびスピンポンピングは電子スピン共鳴法 (ESR) により評価し、8 nm 厚の Pt を堆積したヘテロ構造においてスピン波が電圧変換された逆スピンホール効果電圧を計測した。スピン凍結温度以

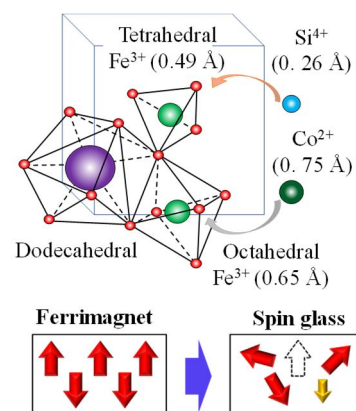


図 1. LuIG に対する Co 及び Si 置換の模式図

8 nm 厚の Pt を堆積したヘテロ構造においてスピン波が電圧変換された逆スピンホール効果電圧を計測した。スピン凍結温度以

下の低温から Néel 温度以上の高温を含む広い温度依存性を計測し、スピン凍結を伴うスピン波の挙動を調べた。

4. 研究成果

XRD により単結晶薄膜の成長と不純物相が無いことを確認し、STEM により Co や Si の析出がないことを確認した。従って、PLD 法により目的とする LFCS 単結晶薄膜の成膜に成功した。次に SQUID により磁気特性を詳細に調べた。Co,Si 置換量 x の増加に伴い、直流磁化率の温度依存性において、磁場中冷却 (FC) - 零磁場冷却過程 (ZFC) に分岐が見られ、 $x=0.5$ では 50~100 Oe の磁場条件下で 190~220 K に分岐が見られた。この分岐の温度がスピン凍結温度 T_f に対応しており、一般的なスピングラスと比べて高温でのスピン凍結挙動が確認された。交流磁化率においてはカスプ温度が測定周波数 1Hz ~ 1kHz に対して 292 ~ 299 K にシフトし、Vogel-Fulcher 則 ($f = f_0 \exp(-E_a/(T-T_0))$) に従う周波数分散が見られた。活性化エネルギー E_a から見積もられるクラスターサイズは約 30 nm であり、スピングラスであることが示唆された。さらにスピングラスの特徴であるメモリ効果について調査を行った (図 2)。磁場中冷却過程において 120 K、150 K、180 K で磁化緩和を加えることで、昇温過程において各緩和温度で明確な磁化変化が見られた。これは磁化緩和した温度を記憶する熱履歴記憶・多値記憶を示している。このメモリ効果は T_f 以下の各温度で多数の準安定状態が存在し、温度冷却に対して磁化緩和を記憶する Hierarchical モデルで表現される。

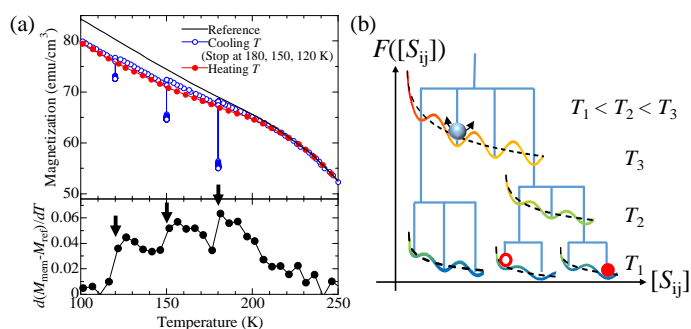


図 2. (a) LFCS ($x=0.5$) におけるメモリ効果。180 K、150 K、120 K において緩和を伴う磁化温度依存性を示す。下図は磁化変化を明確にすることを目的として、リファレンスとの差分の温度微分を示す。(b) 多数の準安定状態 (多谷ポテンシャル) を有する Hierarchical モデルの模式図。

次に、ESR・強磁性共鳴 (FMR) による評価の結果、Co,Si 置換量 x の増加に伴い、一軸性異方性定数 K_u が増加し、 Co^{2+} が垂直磁気異方性を強めていることがわかった。さらに FMR の半値幅からダンピング定数を見積り、 $x=0$ から 0.5 の増加によってダンピング定数 α は 0.009 から 0.088 に増加した (図 3(a))。それから見積もられるスピン波伝搬長は $2 \mu\text{m}$ から 200 nm に減少する。スピン波の発生・検出を可能とするコプレーナ線路の一般的なデバイスサイズは数 μm であるため、このままではスピン波デバイスへの応用は難しい。しかしながら、薄膜成長の際の単結晶基板を適切に選択 (GGG 基板を選択し、薄膜のミスマッチを小さくする) ことで薄膜の結晶性が改善し、伝搬長は約一桁増大することが明らかとなり、スピングラス特性とスピン波伝搬を両立することは可能であることが見積もられた。 $x=0.1$ 以下の試料においては Pt (8 nm) を堆積した Pt/LFCS ヘテロ構造において FMR によるスピンポンピングを行い、Pt 電極両端に発生した逆スピンホール効果電圧の計測に成功した (図 3(b))。 T_f 以下を含む温度依存性を計測した結果、いずれの試料に対しても逆スピンホール電圧 V_{ISHE} はダンピング定数 α を反映した温度依存性を示し、Néel 温度 T_N 付近で最大値を示した (図 3(c))。LuIG では V_{ISHE} および α のピークは T_N とほぼ一致するが、Co,Si を置換した試料では少なく見積もっても 20 K のずれが生じた。これはスピングラスにおけるスピンのゆらぎを反映しており、ZFC-FC の分岐で見積もられた T_f よりも高温でスピンのゆらぎが生じていることを示唆している。

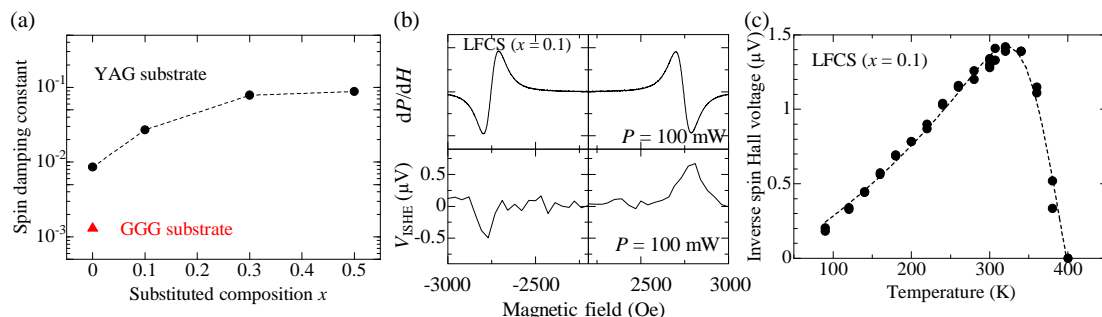


図 3. (a) ダンピング定数の Co,Si 置換量 x 依存性。(b) LFCS ($x=0.1$) の強磁性共鳴信号及び逆スピンホール効果電圧の磁場依存性。(c) LFCS ($x=0.1$) の逆スピンホール効果電圧の温度依存性。

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 0件）

1. 著者名 Hiroyasu Yamahara, Munetoshi Seki, Hitoshi Tabata	4. 巻 501
2. 論文標題 High temperature spin cluster glass behavior in Co- and Si-substituted garnet ferrite thin films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Magnetism and Magnetic Materials	6. 最初と最後の頁 166437 1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2020.166437	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 Md Shamim Sarker, Hiroyasu Yamahara, Hitoshi Tabata	4. 巻 10
2. 論文標題 Spin wave modulation by topographical perturbation in Y3Fe5O12 thin films	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 15015
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) https://doi.org/10.1063/1.5130186	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 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Hiroyasu Yamahara, Sarker Md Shamim, Munetoshi Seki, Yasuo Cho, Hitoshi Tabata
2. 発表標題 Flexoelectricity and magnetism in strain-gradient rare-earth iron garnet thin films
3. 学会等名 26th International Workshop on Oxide Electronics (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 山原 弘靖、S. Md Shamim、関 宗俊、長 康雄、田畑 仁
2. 発表標題 傾斜格子歪み希土類鉄ガーネットにおけるフレクソ分極とフェリ磁性の共存
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～2020年

1. 発表者名 H. Yamahara, S. Nakamura, Md. S. Sarker, M. Seki, H. Tabata
2. 発表標題 Coexistence of Flexoelectric Polarization and Magnetization in Strain-gradient Rare-earth Iron Garnet Thin Films for Spin Wave Devices
3. 学会等名 International Symposium on Hybrid Quantum Systems 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 山原 弘靖, 桑野 資基, 川山 巖, 田畑 仁
2. 発表標題 テラヘルツ波分光計測による傾斜格子歪み希土類鉄ガーネット薄膜の誘電分極評価
3. 学会等名 光・量子ビーム科学合同シンポジウム2019
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 山原 弘靖, S. Md Shamim, 鈴木 雄大, 関宗俊, 田畑 仁
2. 発表標題 Co,Si置換Lu ₃ Fe ₅ O ₁₂ スピクラスタガラス薄膜における低温スローダイナミクスとスピン波励起寿命
3. 学会等名 第66回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 山原 弘靖, Sarker Md Shamim, 関宗俊, 田畑 仁
2. 発表標題 Co,Si置換Lu ₃ Fe ₅ O ₁₂ クラスタガラス薄膜におけるエージング・メモリ効果
3. 学会等名 強的秩序とその操作に関わる研究グループ 第8回 研究会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Hiroyasu Yamahara, Akihiro Katougi, Ryota Kikuchi, Hitoshi Tabata
2. 発表標題 Magnetic and Dielectric Properties of Strained Garnet Ferrite Thin Films
3. 学会等名 International Workshop on Oxide Electronics 25 (国際学会)
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 山原 弘靖、加藤木 章浩、菊池 亮太、佐藤 英斗、 関 宗俊、田畑 仁
2. 発表標題 歪み希土類鉄ガーネット薄膜における誘電特性の膜厚依存性
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～2018年

1. 発表者名 Hiroyasu Yamahara, Tetsuya Murata, Munetoshi Seki, Hitoshi Tabata
2. 発表標題 Magnetic Aging and Memory Effect on Anisotropic Co and Nonmagnetic Si-substituted Lu ₃ Fe ₅ O ₁₂ Cluster Spin Glass Thin Films
3. 学会等名 International Workshop on Oxide Electronics (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 山原 弘靖、三橋 啓多、村田 哲也、関 宗俊、田畑 仁
2. 発表標題 希土類鉄ガーネット薄膜ヘテロ構造における磁気特性制御
3. 学会等名 第77回 応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 山原 弘靖、三橋 啓多、関 宗俊、田畑 仁
2. 発表標題 Co,Si置換Lu3Fe5012クラスターガラス薄膜における熱履歴記憶
3. 学会等名 強的秩序とその操作に関わる研究グループ 第4回 研究会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 山原 弘靖、三橋 啓多、関 宗俊、田畑 仁
2. 発表標題 Co,Si置換Lu3Fe5012クラスターガラス薄膜における熱履歴記憶
3. 学会等名 第64回 応用物理学会春季学術講演会
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
--	---------------------------	-----------------------	----