

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05258

研究課題名(和文) 軌道ラシュバ効果や軌道モーメント輸送によるスピン操作に関する研究

研究課題名(英文) Research on spin manipulation by orbital Rashba effect and orbital moment transport

研究代表者

金 俊延 (Kim, Junyeon)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・研究員

研究者番号：50753646

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：より効率の高いスピントロニクスの実現を目指して、最近注目されている軌道モーメントによるスピン制御に関して実験研究を行い、不明であったこれらの物性の解明が達成された。特に「強磁性体/非磁性金属/酸化物」三層膜構造に焦点を当てて研究を行い、「軌道モーメント生成や伝播」や「伝播された軌道モーメントの強磁性体における作用」の観点で課題を分けてスピン制御の効率性を決める要素を明らかにした。またスピン制御の効率性変調の基になる現象を見出すことまで進んだ。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電子が持っているさまざまな特性において、活用する範囲を広げることにより革新的なエレクトロニクスの展開が開いてきた。今まで電子輸送に関する基礎物性物理・デバイス応用分野の両領域において深く工夫されたことのない電子の特性である軌道モーメントについて、本研究ではその基礎物性を明らかにすることで、革新的なエレクトロニクスに至る道を開ける意義を持っている。特にスピンを用いるスピントロニクス分野において軌道モーメントの利用は効率性の向上と機能性の拡張を同時にもたらす。

研究成果の概要(英文)：To realize more efficient spintronic device, we experimentally studied spin manipulation induced by orbital moment, and succeeded to clarify veiled physical properties. Here we focused on ferromagnet/non-magnet metal/oxide trilayer. We successfully extracted critical determining factors for the efficiency of the spin manipulation after dividing subjects to <generation and transport of the orbital moment>, and <action on the ferromagnet by the orbital moment>. Also we found a mechanism for the modulation of the spin manipulation from this study.

研究分野：スピン物性

キーワード：オービットロニクス スピントロニクス 軌道モーメント スピン 輸送特性 スピン制御 界面 磁性

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) ある物質系において電荷電流の注入により同一な向きで整列されたスピンの発生が誘起される現象を指す「スピン変換」は効率的なスピン制御の手法と見なされ、近年集中的に研究されてきた。しかしスピン変換はスピン軌道相互作用により起きる現象であるため、その材料は重元素を含めた材料に限られる問題点が指摘されている。

(2) スピン変換と同様に電荷電流の注入により整列された軌道モーメントの発生が起こり、これを「軌道変換」と呼ぶ(図1)。軌道変換に関しては2005年ごろから理論的な議論が開始されたが、これを直接にスピンの制御に用いることまでは至らなかった。本研究の開始視点になってから非磁性材料からの軌道モーメントが強磁性体の磁化(スピン)と直接に相互作用することによりトルクを誘起し、磁化の向きを変える可能性が理論的に提示され始めた。また本研究者は先行研究を通してCoFe/Cu/Al₂O₃三層膜において、Cu/Al₂O₃界面からの軌道変換のため非常に効率の高いスピン制御が誘起されることを発見した。



図1. 軌道変換

(3) 軌道変換はスピン変換とは異なりスピン軌道相互作用による現象ではないため、Cu/Al₂O₃界面のような原子量の小さい軽い材料系においても効率高く変換が起きる。これはより効率や機能性の高いスピントロニクス創成に向けて軌道モーメントを用いるスピン変換の学理を構築すべき理由になる。しかし、研究開始の時点では軌道変換や軌道モーメントの輸送に関する全般的な理解の不足のため、スピン制御の効率に影響を及ぼす要素・特性などは不明な状態であった。

2. 研究の目的

(1) 本研究の究極的な目的は軌道モーメントによるスピン制御の学理を構築し、スピン制御の効率性を決める要素・特性を明らかにすることであった。

(2) 上記の究極的な目的を達成するため、「強磁性体/非磁性金属/酸化物」三層膜構造に研究範囲を絞って、軌道変換と生成された軌道モーメント輸送の効率性を決める要素、また強磁性膜に伝播された軌道モーメントがトルクを起こす際に影響を及ぼす要素を明らかにすることを具体的な研究目標として設定した。

3. 研究の方法

(1) 本研究では電子ビーム蒸着、またはスパッタ手法を用いて「強磁性体/非磁性金属/酸化物」三層膜構造を成膜した。デバイス製作はフォトリソグラフィ手法を用いて行った。

(2) 軌道モーメントによるスピン制御効率性の評価は主に外部磁場印加の下に、GHz領域の電荷電流の注入により誘起されるトルク観測により行われた(図2)。これはトルクにより発生される磁性膜の磁気共鳴を電氣的に測定することで行われる。また軌道変換によるトルクが起こす磁気抵抗の測定、ホール効果測定なども補助的な手法として採用した。

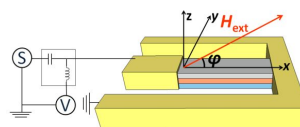


図2. トルク測定概念図

(3) 材料の構造特性と軌道モーメントによるスピン制御効率性の関係を解明するため、共同研究を展開した。電子顕微鏡観測のためにはNIMSの研究者、X線照射による物質評価のためには東京大学の研究者と連携した。

(4) 軌道モーメントによりスピン制御の物性の探索は韓国(POSTECH)とドイツ(Peter Grünberg Institut and Institute for Advanced Simulation)の理論研究者との連携で行われた。

(5) サンプルの制作・測定は部分的に中国(Tsinghua Univ., ShanghaiTech Univ.)との連携で行われた。

4. 研究成果

(1) 酸化物の種類に依存するスピン制御の効率性：軌道モーメントによるスピン制御の効率性の問題の中、「非磁性金属/酸化物」界面における軌道変換の効率性を決める要素は界面における酸素蓄積の程度であることが分かった。本研究では先行研究のCoFe/Cu/Al₂O₃三層膜と同様のCoFe/Cu/OX(OX = SiO₂, TiO₂, MgO)三層膜における軌道モーメントによるスピン制御を調

べ、酸化物の種類によりその効率性が大きく変わることを観測した。またこれは酸化物の化学的な安定性の関数で表現されることを見つかり(図3) 界面においてCuと酸素原子の結合が活発に起きるほど軌道モーメントによるスピン制御の効率性が高くなることが分かった。酸化物の化学的な安定性とCuと酸素原子の結合の関連性は電子顕微鏡観測、X線照射物質評価の結果で支えられる。また最近の理論研究もCuと酸素原子の間の結合が「Cu/酸化物」界面における軌道変換の原因になっていることを示す(Go *et al.*, Phys. Rev. B **103**, L121113(2021))。軌道変換を決める要素を明らかにすることは本研究課題の核心的な問いであって、これの解決により効率の高い軌道変換が起きる新しい材料の探索に礎石になると予想する。以上の実験結果は現在論文準備中である。

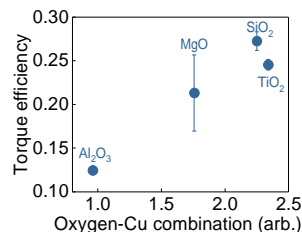


図3. 酸化物に依存するスピン制御の効率

(2)軌道モーメントの輸送とスピン制御の効率：軌道モーメントが効率よく流れやすい材料を求めて、Ruを含めたCoFe/Ru/Al₂O₃三層膜における効率の高いスピン制御を観測した。先行研究で使われたCoFe/Cu/Al₂O₃三層膜の場合、Cu/Al₂O₃界面で誘起された軌道モーメントがCu膜を通過してCoFe膜に伝播される。しかし、Cuの3d軌道構造はたいてい埋めているため、3d軌道状態を通じて伝播される軌道モーメントの輸送のために最適な材料ではない問題点がある。この問題に対してCuの代わりに3d軌道状態において空きの多い材料(例え、Ru)が軌道モーメントの輸送により適する環境をもたらすと予想される。本研究ではCoFe/Ru/Al₂O₃三層膜におけるスピン制御の効率性がCoFe/Cu/Al₂O₃三層膜におけるスピン制御の効率性より2倍ほど大きいことを観測した。Ru/Al₂O₃界面とCu/Al₂O₃界面における軌道変換の効率はまだ不明であるが、少なくとも効率の高い軌道モーメントによるスピン制御を求めてRuは有用な材料であることを示す。この研究内容はLiao *et al.*, Phys. Rev. B **105**, 104434 (2022) で掲載されている。

(3)強磁性体の種類に依存するスピン制御の効率：FM/Cu/Al₂O₃(FM=Ni, Ni₈₀Fe₂₀, Fe, Co₂₅Fe₇₅, Fe)三層膜において軌道モーメントによるスピン制御を強磁性体の種類により系統的に調べ、その効率性が強磁性体の種類により最大100倍以上変わることを発見した(図4)。これは一般的なスピントルクの場合、強磁性体依存性が最大3倍前後であったことと対照的である(Zhang *et al.*, Nat. Phys. **11**, 496 (2015))。この問題に対して電子顕微鏡観測を行い、効率性の高いFM=Co₂₀Fe₈₀の場合と比べFM=Niの場合は強磁性体とCuの混成が強く起きたことが分かった。軌道モーメントの輸送の場合、スピン輸送とは異なり混成による界面状態の乱れによりその情報を失いやすくなるため、これに従いスピン制御の効率も強い強磁性体依存性を示す。このような軌道モーメントによるスピン制御の特徴的な現象はKim *et al.*, Phys. Rev. B **103**, L020407 (2021) に掲載されている。

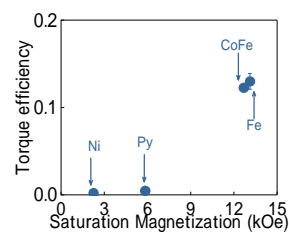


図4. 強磁性体に依存するスピン制御の効率

(4)熱処理に依存するスピン制御の効率：Co₂₅Fe₇₅/Cu/Al₂O₃三層膜において熱処理の温度に依存して軌道モーメントによるスピン制御の効率性が最大2.5倍ほど変わることが分かった(図5)。これは熱処理によりほぼ変わらないスピントルクの効率性と対照的である(Kim *et al.* Phys. Rev. Lett. **116**, 097201 (2016))。項目3と同様に電子顕微鏡観測を行い、熱処理によりCo₂₀Fe₈₀/Cu界面においてよりきれいに物質の分離が起こることが分かった。そのため、熱処理を行った構造においては軌道モーメントがその情報を失わずCo₂₅Fe₇₅/Cu界面を通過することになるため、スピン制御の効率性が大きくなる。このような軌道モーメントによるスピン制御の特徴的な現象はKim *et al.*, Phys. Rev. B **103**, L020407 (2021) に掲載されている。

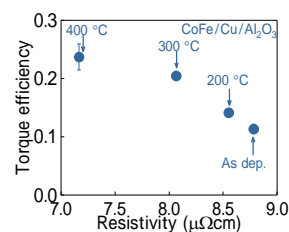


図5. 熱処理の温度に依存するスピン制御の効率

(5)強磁性膜における酸素蓄積に依存するスピン制御の効率：Co₂₅Fe₇₅/Cu/Al₂O₃三層膜において、Cu膜の自然酸化により軌道モーメントによるスピン制御の効率が最大2倍ほど変わることが分かった。これについて電子顕微鏡観測の結果、Cu膜の自然酸化時間に依存してCu膜内の酸素蓄積量はあまり変わらず、その代わりにCu膜の下に位置するCo₂₀Fe₈₀膜に蓄積される酸素の量が大きく変わることが分かった。以上の結果をまとめると、Cu/Al₂O₃界面から発生されて強磁性膜に伝播された軌道モーメントは強磁性膜においてトルクを誘起する際に、膜内の酸素蓄積により激しく影響を受けていることを示す。このような現象は今後、スピン制御の効率の変調の基盤技術として使われると予想する。以上の結果は現在論文準備中である。

(6)軌道モーメントによる磁化反転: $\text{Co}_{25}\text{Fe}_{75}/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 三層膜において直流電荷電流と若干の垂直方向の磁場の印加で $\text{Co}_{25}\text{Fe}_{75}$ 膜の磁化反転を達成した(図6)。以上の結果はは Kim *et al.*, Phys. Rev. B **103**, L020407 (2021) に掲載されている。

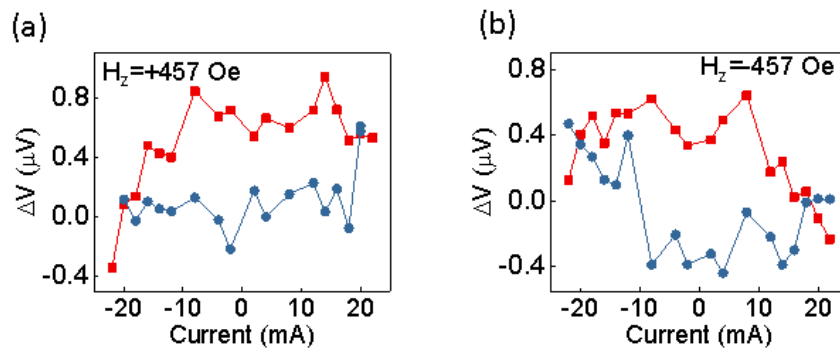


図6.軌道モーメントによる磁化判定。 ΔV はプラナーホール効果(Planar Hall effect)の変化量。(a)と(b)は各々 +457 Oe と -457 Oe のデバイス垂直方向磁場を印加しつつ行われた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Liao Liyang, Xue Fenghua, Han Lei, Kim Junyeon, Zhang Ruiqi, Li Lun, Liu Jiuming, Kou Xufeng, Song Cheng, Pan Feng, Otani YoshiChika	4. 巻 105
2. 論文標題 Efficient orbital torque in polycrystalline ferromagnetic-metal/Ru/Al2O3 stacks: Theory and experiment	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 104434-1~6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.105.104434	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

1. 著者名 Junyeon Kim, Dongwook Go, Hanshen Tsai, Daegeun Jo, Kouta Kondou, Hyun-Woo Lee, and YoshiChika Otani	4. 巻 103
2. 論文標題 Nontrivial torque generation by orbital angular momentum injection in ferromagnetic-metal/Cu/Al2O3 trilayers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L020407-1~6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.103.L020407	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

1. 著者名 Jorge Puebla, Junyeon Kim, Kouta Kondou & Yoshichika Otani	4. 巻 1
2. 論文標題 Spintronic devices for energy-efficient data storage and energy harvesting	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Communications Materials	6. 最初と最後の頁 1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s43246-020-0022-5	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4件（うち招待講演 3件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Junyeon Kim, Dongwook Go, Daegeun Jo, Hyun-Woo Lee, YoshiChika Otani
2. 発表標題 Determination of orbital torque efficiency in ferromagnet/Cu/Oxide thin films
3. 学会等名 第69回 応用物理学会 春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Junyeon Kim and YoshiChika Otani
2. 発表標題 Non-trivial orbital torque in ferromagnetic metal/Cu/Al2O3
3. 学会等名 2021 MRS Fall Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Junyeon Kim, Dongwook Go, Hanshen Tsai, Daegeun Jo, Kouta Kondou, Hyun-Woo Lee, YoshiChika Otani
2. 発表標題 Orbital torque for efficient spin manipulation
3. 学会等名 韓国物理学会学術大会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 J. Kim, D. Go, H. Tsai, D. Jo, K. Kondou, H. Lee & Y. Otani
2. 発表標題 Orbital torque in ferromagnetic metal/Cu/Al2O3
3. 学会等名 New Perspective in Spin Conversion Science (NPSCS2020) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 スピントルク発生素子、その製造方法、及び、磁化制御装置	発明者 大谷義近、金俊延、 近藤浩太	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、JP2019/042137	出願年 2019年	国内・外国の別 外国

〔取得〕 計0件

〔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			
韓国	Pohang Univ. of Sci. and Tech.			
ドイツ	Forschungszentrum Julich and JARA	Johannes Gutenberg University Mainz		
中国	Tsinghua University	ShanghaiTech University		