

令和元年5月29日現在

機関番号：32612

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2014～2018

課題番号：26220604

研究課題名(和文)スピホールナノエレクトロニクス

研究課題名(英文)Spin Hall Nanoelectronics

研究代表者

安藤 和也 (ANDO, KAZUYA)

慶應義塾大学・理工学部(矢上)・准教授

研究者番号：30579610

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 152,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、スピン軌道相互作用を基軸とした新原理の電子技術構築に向け、スピン流-電流変換の体系的理解と制御・増大手法の確立を目指すものである。本研究により、非線形領域まで含めた界面スピン変換の体系的理解が得られるとともに、界面及びバルクスピン軌道相互作用により発現する電流-スピン流変換の新現象が明らかとなった。さらに、酸化・有機分子・イオン液体を用いたこれまでにないアプローチによって、スピン流変換の電氣的・光学的制御機構を発現させることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピンの電子物理・技術の基盤はスピン流の生成と変換である。本研究により得られたヘテロ界面におけるスピン流生成現象の体系的理解は、近年発見が相次ぐ、界面スピン流変換によって駆動されるスピントロニクス現象の基礎となるものであり、大きな学術的波及効果が期待できる。さらに、酸化・有機分子を用いたこれまでにないアプローチによって得られたスピン流変換に関する新現象と制御原理に関する知見は、スピン流変換を基軸とした新たなスピン流デバイス機能実現へのルートを拓くものである。

研究成果の概要(英文)：This research aimed to develop a fundamental understanding of the conversion between spin and charge currents and to establish methods to control the spin-charge conversion, which are indispensable to construct a new principle of electronic technology based on spin-orbit interaction. Our results provide a systematic understanding of the interface spin conversion and reveal new phenomena of the spin-charge conversion arising from interface and bulk spin-orbit interaction. Furthermore, we have established electrical and optical ways to control the spin-current conversion using oxidation, organic molecules, and ionic liquids.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン流 スピン軌道相互作用

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ナノ領域における電子物性にはスピン自由度が顕著に表れ、電子のスピン・電荷が素励起と共に織り成す多彩な物理現象が発現する。物質中の電子スピンの流れ「スピン流」物理の体系化はスピン物性及び電子スピンを用いた電子技術における本質的課題であり、この実現に必須となる汎用的スピン流生成手法の確立が希求されてきた。このような中、代表者らは、スピン流と磁化ダイナミクスの相関現象により発現する動的スピン流生成現象が、あらゆる物質への巨大スピン流注入を実現することを明らかにした。これにより広範囲の物質群・環境における電流 - スピン流変換現象の系統的測定が可能となり、スピン伝導に関する新現象の発見とスピン物性の解明が相次ぐこととなった。

2. 研究の目的

本研究の狙いは、スピン流と磁化ダイナミクスの相関現象を用いることで、物質中の相対論的效果によって現れるスピン流 - 電流変換「スピンホール効果」を基軸とする電子物理・技術を開拓し、新時代のエレクトロニクスの物理基盤を構築することにある。

巨大磁気抵抗効果の発見を契機に長足の進歩を遂げたスピントロニクスは、電子スピン及びスピン流の制御により、電荷自由度を基盤とする現代のエレクトロニクス機能を凌駕する次世代電子技術へのルートを開く。本研究は、スピン軌道相互作用により発現するスピン流 - 電流変換現象を用いたスピン流物性開拓により、これまでのスピントロニクスでは実現困難であったスピン流生成・変換の体系的物理構築を目指す。スピン流生成・変換はあらゆるスピンベースの電子技術の基盤であり、本研究遂行により新原理の電子技術「スピンホールナノエレクトロニクス」を開拓し、既存原理の延長線上にはない次世代省エネルギー電子技術に貢献する。

3. 研究の方法

スピン軌道相互作用を基軸とした新原理の電子技術構築に必要な本質的要素は、金属・絶縁体を含むヘテロ構造におけるスピン流 - 電流変換の体系的理解と制御・増大手法の確立である。本研究では、スピン流・磁化の界面動的交換相互作用とスピン軌道相互作用によるスピン - 電荷変換を組み合わせることで、空間対称性の低いヘテロ接合におけるバルク・界面・表面スピン伝導物性を開拓する。

4. 研究成果

本研究により得られた主要な成果は以下の5点である。

(1) 金属/磁性絶縁体接合における非線形スピン流生成現象の体系化

本研究では、逆スピンホール効果によるスピン流の時間領域精密測定手法を確立し、界面スピン流生成に関する系統的データを収集することに成功した。これにより、マグノン励起を介したマイクロ波から伝導電子スピン流への角運動量変換効率がマグノン寿命によって支配されていることを明らかにし、スピンダイナミクスの非線形性に起因するスピン流増大現象の一般論を構築した(図1, Nature Communications 5, 5730 (2014))。界面スピン変換はスピントロニクスの重要課題の一つとして認識されていながら、その結果を統一的に理解することは困難であった。上記研究により明らかとなった非線形スピン流生成現象の一般論により、このような一連のデータを体系的に理解することが可能となり、界面スピン流生成現象の全体像が初めて明らかとなった(Scientific Reports 5, 15158 (2015))。また、パラメトリック励起されたマグノンによるスピン流生成の時間・磁場依存性を詳細に調べ、交換相互作用が支配的となる短波長極限では波数ベクトルに依らないユニバーサルなスピン流生成効率を示すことを初めて明らかにし(Physical Review B 93, 184429 (2016))。マイクロ波とマグノン間の位相シフトによるスピン流生成の非自明な振動現象を見出した(Physical Review B 93, 174423 (2016))。さらに、パラメトリック励起を用いた波数選択的マグノン励起により、スピン系と格子系の結合モード「マグノン・ポーラロン」によって駆動されるスピンポンピング効果を初めて観測することに成功した(Physical Review Letters 121, 237202 (2018))。

以上の研究成果によって、非線形領域まで含めたヘテロ界面におけるスピン流生成現象の体系的知見が得られた。これは、近年発見が相次ぐ界面スピン流変換が駆動するスピントロニクス現象の基礎となるものであり、大きな波及効果が期待できる。

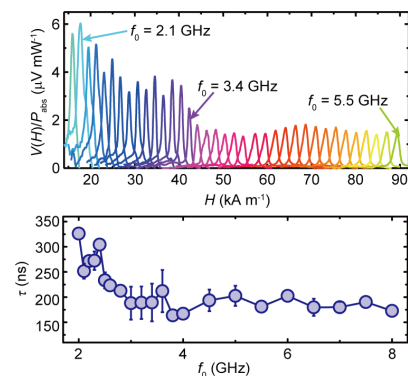


図1. スピン流とマグノン寿命。

(2) 界面スピン流変換により発現する新原理磁気抵抗効果の観測

スピンホール効果は、物質バルクのスピン軌道相互作用に起因する電流 - スピン流変換現象である。一方、バルクのみならず、電子構造が不連続となる金属表面或いは界面における Rashba スピン軌道相互作用の存在が古くから知られていた。本研究では、光電子分光測定から巨大な Rashba 分裂を示す系として知られていた Ag/Bi 接合に注目し、バルク効果によるスピン依存電子散乱ではなく、スピン - 運動量結合を利用したスピン流 - 電流変換の定量を試みた。この結果、Ag 及び Bi のバルクスピンホール効果と比較して1桁以上巨大なスピン流変換が Ag/Bi 接合で実現されることを見出し、本現象が界面 Rashba スピン軌道相互作用に起因することを温度依存性測定から明らかにした (Applied Physics Letters 106, 212403 (2015))。

スピン流から電流への変換の逆過程の観測にも成功し、これにより発現するスピン軌道トルク生成と磁気抵抗効果観測を実現した。運動量とスピンの結合した Rashba 電子系に電流を流すことでスピン分極を生成でき、バルクスピン軌道相互作用に依らない電流からスピン流への変換が可能となる。強磁性体/Ag/Bi 構造における高調波ホール測定を精密に行い、スピン軌道トルクを定量することに成功した。これは、非磁性金属接合における Rashba スピン軌道相互作用によるスピン軌道トルク生成を初めて観測した重要な成果である。上記現象は、強磁性体/Ag/Bi 構造における拡散スピン流を介した非局所スピン結合に起因する。本研究ではさらにこの非局所結合に注目し、新原理の磁気抵抗効果「Rashba-Edelstein magnetoresistance」を観測することに成功した(図2, Physical Review Letters 117, 116602 (2016))。

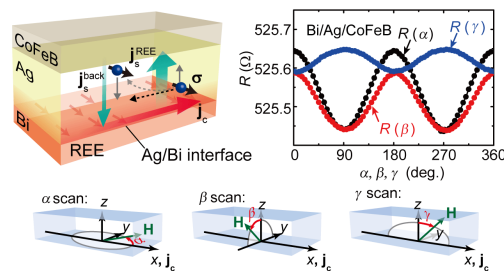


図2. Rashba-Edelstein magnetoresistance.

(3) 金属酸化によるスピン軌道トルク生成効率の劇的増大

スピン流・スピン軌道トルクを効果的に生成するためには、Ptをはじめとするスピン軌道相互作用の強い重金属が必須であるというのが常識であった。本研究では、金属の酸化というこれまでにないアプローチにより、スピン軌道トルクの生成効率が劇的に増大することを見出した。特に、スピン軌道相互作用が弱い金属の代表例である Cu のスピン軌道トルク生成効率が自然酸化により2桁以上増大し、自然酸化 Cu によるスピン軌道トルク生成効率は10%を超え、Pt に並ぶスピン軌道トルク生成源となることを明らかにした (Nature Communications 7, 13069 (2016), NHK テレビニュースなどで報道)。

上記結果は、酸化という非常に一般的な現象によって、スピンホール物質としては全く期待されていなかった金属が極めて有効なスピン流源となることを初めて明らかにしたものである。そこで本現象の一般性を明らかにするため、現在最も広く用いられているスピンホール物質である Pt に対する酸化効果を系統的に調べた。この結果、強く酸化させ、絶縁体とみなせる Pt 酸化物によるスピン軌道トルク生成効率はトポロジカル絶縁体に匹敵することが明らかになり、この Pt 酸化物絶縁体スピン軌道トルク源を用いることで、純粋に界面スピン軌道相互作用のみによる磁化操作を実現した (図3, Science Advances 4, eaar2250 (2018), Physical Review B 98, 014401 (2018), Physical Review B 99, 024432 (2019))。さらに、強磁性金属/金属酸化物ヘテロ界面におけるスピン軌道トルクの酸化度に対する系統的变化から、スピン軌道トルクの起源がベリー曲率にあることを明らかにした (Physical Review Letters 121, 017202 (2018))。以上の進展により、金属酸化物絶縁体がトポロジカル絶縁体に続く第2の絶縁性スピントロニクス物質群となることが明らかとなり、現在では、本研究成果を契機として、酸化に注目したスピントロニクス研究が世界中のグループから報告され始めている。

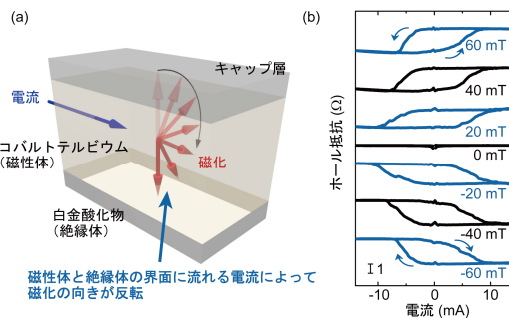


図3. Pt 酸化物によるスピントルク磁化反転。

(4) スピン流変換制御の実現

スピントロニクスにおける重要な機能の多くは、スピン軌道相互作用によって実現される。半導体素子では、スピン軌道相互作用を外部から制御する手法が確立されており、これにより可能となる様々な機能・現象が提案されてきた。しかし、金属ベースのスピン流素子において、バルク効果であるスピンホール効果を外部から制御することは極めて困難であり、これまでスピン流変換の変調量は僅か数%に限られていた。(2)(3)の研究により明らかになった金属界面及び金属/酸化物界面におけるスピン流変換を用いることで界面電子状態の変調によるスピ

ン流変換制御へのルートが拓かれ、 固体素子中の電場による酸素駆動、 有機単分子膜の自己組織化形成、 イオン液体による電界効果キャリアドーピング、 という全く異なる3つのアプローチにより、 数十%に及ぶスピン流変換制御を実現するに至った。

固体素子中の電場による酸素駆動

強磁性金属/金属酸化物界面におけるスピン軌道トルク生成効率(スピン流変換効率)は、界面酸化度に強く依存する。この結果は、界面酸化度の変調により、スピン軌道トルク生成効率さえ外部制御可能となることを示している。電場による酸素駆動によって動作する抵抗変化型メモリに着想を得て、電場印加可能なPt酸化物スピン軌道トルク微細構造素子を研究分担者と共に作製し、電場による酸素駆動に起因するスピン流変換効率の不揮発且つ可逆的制御を実現した(Science Advances 4, eaar2250 (2018))。

有機単分子膜の自己組織化形成

空間反転対称性の破れによって発現するBi/Ag界面のスピン変換現象が、Bi表面への自己組織化有機単分子膜形成により制御可能であることを明らかにし、この起源が有機分子/Bi界面における電荷移行にあることを見出した。さらに、アゾベンゼン自己組織化単分子膜をスピントロニクス素子表面に形成することで、光照射による分子構造変化によって、電流-スピン流変換効率を光制御可能であることを明らかにした(図4, Science Advances 4, eaar3899 (2018))。

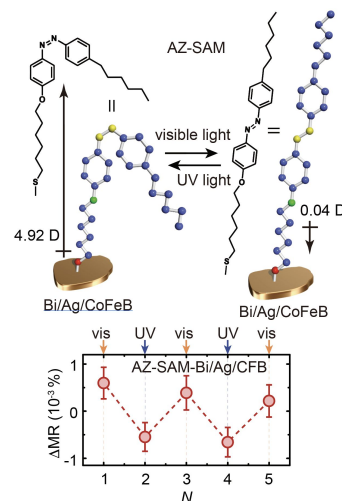


図4.スピン流変換の光制御。

イオン液体による電界効果キャリアドーピング

Au超薄膜/強磁性金属ヘテロ構造におけるスピン流変換が界面スピン軌道散乱に支配されていることを見出し、研究分担者の技術を用いて作製した微細構造試料を用いることで、イオン液体によるキャリアドーピング効果を調べた。この結果、スピン軌道トルクは、イオン液体によるゲーティングによって可逆的に変化し、わずか1Vの電圧印加により、スピン軌道トルク生成効率を約50%変調可能であることを明らかにした(Physical Review Applied 9, 064016 (2018))。

(5) 高効率スピン流変換の実現

(3)に記載した通り、酸化Pt/強磁性金属界面のスピン軌道相互作用は極めて高いスピン軌道トルク生成効率(スピン流変換効率)を実現する。スピン軌道トルク効率はPt酸化度に対してほぼ単調に増加し、3次元電流からスピン流への変換相当で変換効率は90%以上に達した(Physical Review B 98, 014401 (2018))。この結果は、酸化物膜の成膜条件探索により、さらなる高効率化が十分に狙えることを示している。

上記結果に加え、自然酸化Cuによるスピン軌道トルク生成効率が、顕著な温度依存性を示すことを見出した。低温になるに従ってスピン流変換効率は劇的に増大し、25Kにおいては室温と比較して5倍程度巨大なスピン流変換効率が実現されることが明らかになった。この結果は、本現象がスピンホール効果をはじめとする既知の変換メカニズムではなく、本質的に新しい原理のスピン流変換によって発現していることを示している。

以上の研究により、非線形領域まで含めた界面スピン変換の体系的理解が得られるとともに、界面及びバルクスピン軌道相互作用により発現する電流-スピン流変換の新現象が明らかとなった。さらに、酸化・有機分子・イオン液体を用いたこれまでにないアプローチによって、スピン流変換の電気的・光学的制御機構を発現させることに成功し、高効率スピン流変換を実現した。金属酸化物絶縁体を用いたスピントロニクス素子の駆動は、これまでのあらゆるスピントロニクス素子が抱えていた重金属に流れるバルク電流によるエネルギー損失を、根本的に回避できる省エネルギー素子実現への道を拓くものである。金属酸化物絶縁体がトポロジカル絶縁体に匹敵するスピン軌道トルク効率を示すという期待以上の結果は、金属酸化物絶縁体という新たなスピントロニクス物質群の重要性を明らかにしただけでなく、界面電流を念頭に置いたスピントロニクス素子設計の新たなルートを拓くものである。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 24 件、15 件抜粋)

- Akio Asami, Hongyu An, Akira Musha, Tenghua Gao, Makoto Kuroda, and Kazuya Ando, "Spin absorption at a ferromagnetic-metal/platinum-oxide interface" *Physical Review B* 99, 024432 (2019). (査読有) 10.1103/PhysRevB.99.024432
- Hiroki Hayashi and Kazuya Ando, "Spin Pumping Driven by Magnon Polarons," *Physical Review Letters* 121, 237202 (2018). (査読有) 10.1103/PhysRevLett.121.237202
- Hongyu An, Yusuke Kanno, Akio Asami, and Kazuya Ando, "Giant spin-torque generation by heavily oxidized Pt," *Physical Review B* 98, 014401 (2018). (査読有) 10.1103/PhysRevB.98.014401
- Tenghua Gao, Alireza Qaiumzadeh, Hongyu An, Akira Musha, Yuito Kageyama, Ji Shi, and Kazuya Ando, "Intrinsic spin-orbit torque arising from the Berry curvature in a metallic-magnet/Cu-oxide interface," *Physical Review Letters* 121, 017202 (2018). (査読有) 10.1103/PhysRevLett.121.017202
- Hongyu An, Satoshi Haku, Yusuke Kanno, Hiroyasu Nakayama, Hideyuki Maki, Ji Shi, and Kazuya Ando, "Manipulation of spin-torque generation using ultrathin Au," *Physical Review Applied* 9, 064016 (2018). (査読有) 10.1103/PhysRevApplied.9.064016
- Hiroyasu Nakayama, Takashi Yamamoto, Hongyu An, Kento Tsuda, Yasuaki Einaga, and Kazuya Ando, "Molecular engineering of Rashba spin-charge converter," *Science Advances* 4, eaar3899 (2018). (査読有) 10.1126/sciadv.aar3899
- Hongyu An, Takeo Ohno, Yusuke Kanno, Yuito Kageyama, Yasuaki Monnai, Hideyuki Maki, Ji Shi, and Kazuya Ando, "Current-induced magnetization switching using an electrically insulating spin-torque generator," *Science Advances* 4, eaar2250 (2018). (査読有) 10.1126/sciadv.aar2250
- Hongyu An, Hiroyasu Nakayama, Yusuke Kanno, Akiyo Nomura, Satoshi Haku, and Kazuya Ando, "Spin-orbit torques in asymmetric Pt/Co/Pt structures," *Physical Review B* 94, 214417 (2016). (査読有) 10.1103/PhysRevB.94.214417
- Hongyu An, Yuito Kageyama, Yusuke Kanno, Nagisa Enishi, and Kazuya Ando, "Spin-torque generator engineered by natural oxidation of Cu," *Nature Communications* 7, 13069 (2016). (査読有) 10.1038/ncomms13069
- Hiroyasu Nakayama, Yusuke Kanno, Hongyu An, Takaharu Tashiro, Satoshi Haku, Akiyo Nomura, and Kazuya Ando, "Rashba-Edelstein Magnetoresistance in Metallic Heterostructures," *Physical Review Letters* 117, 116602 (2016). (査読有) 10.1103/PhysRevLett.117.116602
- Masaya Fukami, Yuma Tateno, Koji Sekiguchi, and Kazuya Ando, "Wave-vector-dependent spin pumping as a probe of exchange-coupled magnons," *Physical Review B* 93, 184429 (2016). (査読有) 10.1103/PhysRevB.93.184429
- Yuma Tateno, Masaya Fukami, Takaharu Tashiro, and Kazuya Ando, "Time-resolved spectroscopy of spin-current emission from magnetic insulator," *Physical Review B* 93, 174423 (2016). (査読有) 10.1103/PhysRevB.93.174423
- Takaharu Tashiro, Saki Matsuura, Akiyo Nomura, Shun Watanabe, Keehoon Kang, Henning Sirringhaus, and Kazuya Ando, "Spin-current emission governed by nonlinear spin dynamics," *Scientific Reports* 5, 15158 (2015). (査読有) 10.1038/srep15158
- Akiyo Nomura, Takaharu Tashiro, Hiroyasu Nakayama, and Kazuya Ando, "Temperature dependence of inverse Rashba-Edelstein effect at metallic interface," *Applied Physics Letters* 106, 212403 (2015). (査読有) 10.1063/1.4921765
- Hiroto Sakimura, Takaharu Tashiro, and Kazuya Ando, "Nonlinear spin-current enhancement enabled by spin-damping tuning," *Nature Communications* 5, 5730 (2014). (査読有) 10.1038/ncomms6730

[学会発表](計 46 件、13 件抜粋)

- 安藤和也, "金属酸化物スピンオービトロニクス of 展開," 第 38 回光機能磁性デバイス・材料専門研究会, 2019 年 1 月 28 日, 東京. (招待講演)
- Kazuya Ando, "Spin-orbit torques in metal-oxide heterostructures," 16th RIEC International Workshop on Spintronics, January 9-10, 2019, Sendai, Japan. (招待講演)
- 安藤和也, "金属酸化物を用いたスピンオービトロニクス," 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会 シンポジウム「IoT に資する高周波デバイスにおける機能性酸化物の役割」, 2018 年 9 月 21 日, 名古屋. (招待講演)

Kazuya Ando, "Spin-orbitronics in metal-based systems," SPIE, August 19-23, 2018, San Diego, USA. (招待講演)

Kazuya Ando, "Spintronic phenomena arising from bulk and interface spin-orbit interaction," 18th International Union of Materials Research Societies, International Conference in Asia (IUMRS-ICA), November 5-9, 2017, Taipei, Taiwan. (招待講演)

Kazuya Ando, "Spintronic phenomena arising from bulk and interface spin-orbit interaction," SPIE, August 6-10, 2017, San Diego, USA. (招待講演)

安藤和也, "バルク及び界面スピン軌道相互作用が誘起するスピントロニクス現象," 日本磁気学会ナノマグネティクス研究会, 2017年6月30日, 東京. (招待講演)

安藤和也, "バルク及び界面スピン軌道相互作用が誘起するスピントロニクス現象," 第77回応用物理学会秋季学術講演会 シンポジウム「応用に向けた新規スピントロニクス現象の物理」, 2016年9月15日, 新潟. (招待講演)

Kazuya Ando, "Spin current coupled with dynamical magnetization," 4th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies (ICAUMS 2016), August 1-5, 2016, Tainan, Taiwan. (招待講演)

Kazuya Ando, "Spin-current emission governed by nonlinear spin dynamics," 8th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (SPINTECH 8), August 10-13, 2015, Basel, Switzerland. (招待講演)

Kazuya Ando, "Dynamical generation of spin current," Energy Materials Nanotechnology Phuket Meeting, May 4-7, 2015, Phuket, Thailand. (招待講演)

Kazuya Ando, "Dynamical spin injection into organic materials," 5th International Meeting on Spin in Organic Semiconductors, October 13-17, 2014, Himeji, Japan. (招待講演)

Kazuya Ando, "Spin current generated by magnetization dynamics," SPIE, August 17-21, 2014, San Diego, USA. (招待講演)

[図書](計2件)

Kazuya Ando and Eiji Saitoh, "Incoherent spin current" (Chapter 2), "Exchange spin current" (Chapter 3), "Experimental observation of the spin Hall effect using spin dynamics" (Chapter 15), in "Spin Current (second edition)" edited by S. Maekawa, E. Saitoh, S. O. Valenzuela, and T. Kimura (Oxford University Press, 2017).

Kazuya Ando, Eiji Saitoh, "Spin Current Generation by Spin Pumping," in "Handbook of Spintronics" edited by Yongbing Xu, David D. Awschalom, Junsaku Nitta (Springer, 2015).

[産業財産権]

出願状況(計2件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.ando.appi.keio.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名: 牧 英之

ローマ字氏名: MAKI, Hideyuki

所属研究機関名: 慶應義塾大学

部局名: 理工学部(矢上)

職名: 准教授

研究者番号(8桁): 10339715

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、研究者個人に帰属されます。