

研究報告書

「界面電子軌道混成を利用した新物質創生と超省電力磁化反転技術の開発」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 24 年 10 月～平成 28 年 3 月

研究者: 紅林 秀和

1. 研究のねらい

本研究のねらいは、対称性の低い材料中での新しいスピン新物質科学構築とそれらの産業応用を実現させる材料探索である。

電子の持つ電荷とスピンはそれぞれ異なる性質・特長も持っており、それらを巧みに利用して電荷のみのエレクトロニクスで達成できなかった革新的な電子デバイスを創出することがスピントロニクスと呼ばれる研究分野の基本理念である。現在までに巨大磁気抵抗効果、スピントランスポール効果そしてスピンホール効果など物質中の電荷とスピンの輸送に関連した新現象が見つかり、基礎学問レベルからデバイス応用化まで盛んに研究されている。しかし、使われている材料系は非常に限られている。単純な結晶系を有する 3d 遷移金属やその合金が主である。この部分にスピントロニクス分野発展の大きな伸びしろが存在すると問題抽出をし、特定の結晶構造や界面近傍での特異な電子状態の対称性の破れから生まれる新しい電荷スピン変換現象の発見そして応用を本研究の目標とした。

具体的には、今まで着目されていなかった反転対称性の破れた結晶系にのみ存在する特定のスピン軌道相互作用に着目し、それが引き起こす新しいスピントルク効果や関連した諸現象の発見と発現機構の解明、さらにはそれらの室温駆動を実現させる材料群の発見を目指した。これらが成功することで、スピン物性物理学の進展はもちろんのこと、本研究から従来とは全く異なる「スピン軌道相互作用を用いた新しい高効率磁化反転機構」が生まれ、エネルギー効率の高いスピンメモリやロジックへの応用が実現する。さらにこれらをレアメタルを使わずに達成することが本研究における室温駆動材料の設計指針であり、新しい物質科学で材料本来のポテンシャルを最大限に引き出す当領域の哲学である。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究のねらいである、1. 対称性の低い材料中での新しいスピン新物質科学構築と2. それらの応用化を実現させる材料探索、を実現するため、以下4テーマを遂行した。

研究テーマ A「SOI 起因のスピントルク効果の微視的機構解明」

研究テーマ B「反転対称性の破れた非磁性体からのスピントルク効果の発見」

研究テーマ C「SOI スピントルクの逆効果の発見」

研究テーマ D「金属系における新物質探索」

研究テーマ A から C までは反転対称性の破れた結晶をもつ GaMnAs をモデル材料としたねらい1に対する物性解明そして新機能創出を行い、それぞれ画期的な発見をした。研究テーマ A では SOI を用いた電子散乱を必要としない内因的スピントルク発現機構の発見をし、外因性機構も含めて世界で初めて電子レベルでのスピントルク生成機構の詳細を明らかにした。

研究テーマ B では、反転対称性の破れた”非磁性体”材料に注目し、電流印加により生成されるスピン偏極状態の有効利用法として、磁性体非磁性体界面を介したスピントルク生成の実験を報告した。これにより、反転対称性の破れた磁性体そして非磁性体両方がスピントルク生成に有用であることを実証した。**研究テーマ C** では、電流印加スピントルク効果の逆効果であるスピンを用いた電流励起効果の実証を達成した。具体的には GaMnAs をマイクロ波でスピン励起した際に生まれる GHz電流を測定した。**研究テーマ D** では、反転対称性の破れた様々な薄膜材料を成膜し、SOI に起因するスピントルク効果の探索を行った。特に本研究では室温駆動(室温強磁性)や安価な材料という厳しいスクリーニングをかけ、スピントロニクス産業に対してインパクトの高い材料を発見する目標を掲げた。さらに界面の効果を使った系や結晶構造に着目した系など独自のアイデアも盛り込んだ。今まで薄膜材料として使われていない系において、エピタキシャル成長を達成するなどある程度の進展は見られたが、現在のところ大きな発見には至っていない。

以上まとめると、対称性の低い材料中での新しいスピン新物質科学構築という点ではかなりの成果を残すことができたが、それを生かす新材料発見にはまだ努力と時間が必要である。これら研究領域はまだ未発見の現象が多く存在し、スピントロニクス応用という明確な経済効果が見込める。世界的にも非常に注目されており、このさきがけによりスタートできた本研究テーマを今後さらに深化させる予定である。

(2) 詳細

研究テーマ A「SOI 起因のスピントルク効果の微視的機構解明」

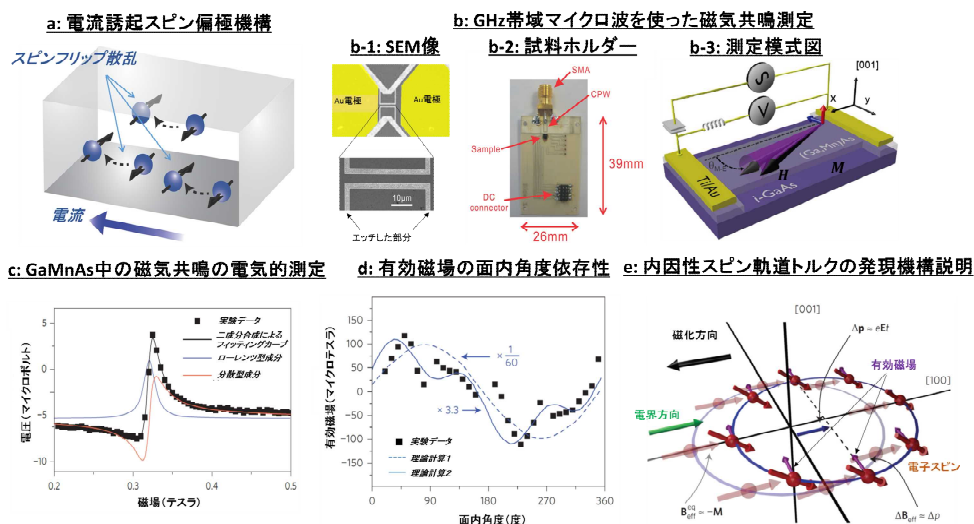


図 1: (a) 電流誘起スピン偏極機構。特定の材料に電流を流すことでスピンフリップ散乱が起こりスピン偏極状態が作り出される。(b) 磁気共鳴測定説明図。微細加工した試料の SEM 像(b-1)。実験で使用した試料ボード(b-2)。実験模式図(b-3)。マイクロ波を直接微細加工した GaMnAs 層に注入し、試料端で発生する電圧を測定した。(c) 磁気共鳴時に発生する起電力のデータとフィッティング。(d) 起電力の面内角度依存性と内因性スピントルク生成機構の計算結果の比較。(e) 内因性スピン軌道トルクの発現機構説明図。電界が印加され、電子が加速されるとその最中に電子スピンの有効磁場を受け、歳差運動を始める。これにより散乱なしにスピン偏極が生むことができ、本実験で初めて実証された。(一部発表論文(Kurebayashi et al., Nature Nanotech. (2014))より転写。

研究開始当初, SOI 起因のスピントルク効果の研究分野ではデータ解析を現象論的取り扱いのみに頼っていた. この状況を打破すべく, SOI 起因のスピントルク効果の微視的機構解明を目指した. 具体的には GaMnAs をモデル材料として, 研究者が磁化の電流励起実験を担当し, 理論家チームとの共同研究することで微視的発現モデルからのシミュレーションデータと実験データを比較した. それにより, 実際の試料においてどのトルク発現機構が電子一つレベルで発現しているか(微視的機構)を調べた. 結果として, 交換結合と SOI が共存している GaMnAs 系では電子散乱を必要としない内因的スピントルク発現機構が存在することを世界にさきがけて発見することができた(Nature Nanotech. (2014)). この発見により, 量子力学的位相がスピンメモリーなどを支える磁化制御に利用可能であることが実証された. この新しい磁化制御メカニズムは他の材料系にも応用できると期待され, 今まであまり注目されていなかった量子位相に着目した材料探索そして材料物性評価という方向性が見出された.

研究テーマ B「反転対称性の破れた非磁性体からのスピントルク効果の発見」

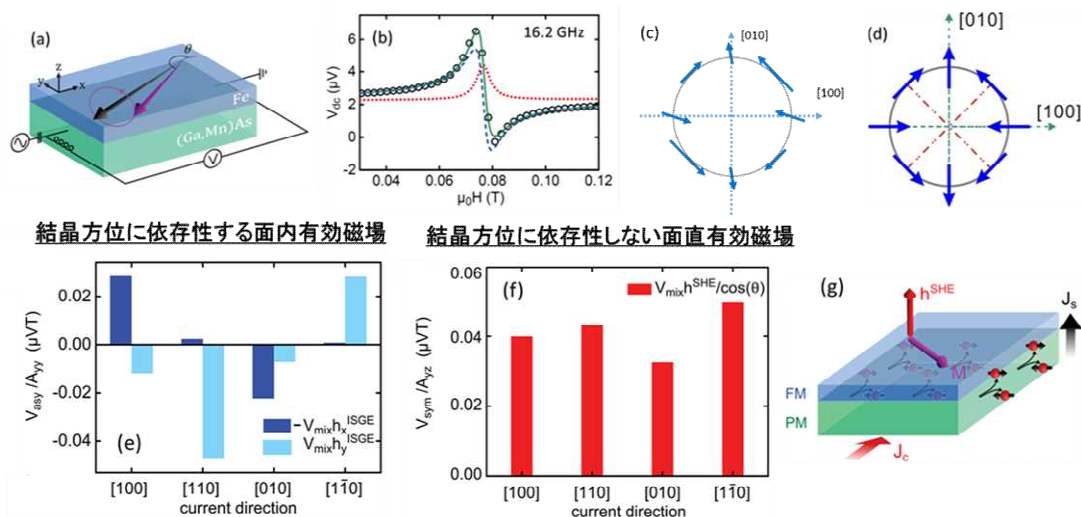


図 2: (a) 測定した膜と測定回路の模式図. (b) DC 電圧に現れる磁気共鳴励起のシグナル. ドットが測定結果になり, 赤線がローレンツ型の波形そして青線が分散型波形になり, 両方を足し合わせたものがデータとフィットする緑線になる. (c) DC 電圧の面内角度依存性を解析することで得られた内部磁場の結晶方位依存性. 例えば, [100]方向に電流を流すと, [-100]方向に磁場が発生することを矢印は意味する. 試料が立方晶であるため, 逆格子空間基本ベクトルと実空間基本ベクトルの方向が一致し, この実験結果をそのまま波数空間のスピンテクスチャに投影できる. (d) GaAs を一軸に歪ませたときに生まれる波数空間のスピンテクスチャ. (e) 面内方向の有効磁場の電流-結晶方位依存性. (f) 面直方向の有効磁場の電流-結晶方位依存性. (g) スピンホール効果による磁化制御の模式図. スピン流が磁性層に注入され, 磁性層中の磁化がスピン流と相互作用することで磁化制御が起こる.

それまで反転対称性の破れた磁性体のスピントルク効果に注目していたが, 本テーマは反転対称性の破れた非磁性体を使って同様のスピントルク生成を狙ったものである. 非磁性体として選んだ材料は前テーマで磁性体として利用した GaMnAs である. 磁性体には磁性転移温度があり, 材料はそれ以上の温度では非磁性体として振舞うことを活用した. このアプローチのアドバンテージとしては既に GaMnAs 中の SOI の形や大きさが理解されているので, 実験結果が予想しやすい. 試料膜構造 Al (2 nm)/Fe (2 nm)/GaMnAs (20 nm)/GaAs sub.において, マイクロ波を利用した磁気共鳴測定から SOI によるスピン

ルク検出を室温にて行った(Fig.2(a)). その結果, Fig.2(b)に示すような明瞭な磁気共鳴が観測され, 詳細を調べるため, DC 電圧の面内角度依存性を測定した結果, Fig.2(c&e)の面内方向有効磁場の結晶方位依存性が得られた. この結果は既知の GaMnAs 内に起こる歪誘起 SOI から生まれるもの(Fig.2(d))と一致する. さらに面直方向の有効磁場も確認され, そちらの対称性を調べるとその有効磁場は電流の結晶方位依存性を持たないことがわかる(Fig.2(f)). つまり, 結晶方位依存性のあるスピントルクから発現するものではない. この効果を説明できる機構はスピンホール効果によるスピン流生成(Fig.2(g))が挙げられる. まとめると, 本二層構造には二つの異なる機構の有効磁場源があることが明らかとなった(Nature Comm. (2015)). これにより反転対称性の破れた非磁性膜においても SOI を用いたスピントルク生成が実現された.

研究テーマ C「SOI スピントルクの逆効果の発見」

オンサーガーの相反定理に基づけば, 電流によりスピン生成ができる材料内ではスピンにより電流が生成できるはずである. 本視点から, SOI を用いたスピン軌道トルク生成が既に観測されている GaMnAs を用いて, スピンから電流を生成する実験を行った. スピン励起法として磁気共鳴現象を用い, その際に生成される GHz電流をマイクロ波ミキサーを用いて効率良く検出した. 発生された電流が古典的な電磁誘導などで生成された場合, その振幅は磁化の際差運動の際差角のみに依存する. しかし, 本実験で得られた GHz電流は際差角そして GaMnAs の運動量空間中のスピン構造を反映したものであった. これこそ, まさしくオンサーガーの相反定理から予想される逆効果現象であり, 実際に電流励起の変換効率もスピン励起の逆効果とほぼ一致する. よって, 本研究により世界で初めて SOI 起因のスピントルク効果の逆効果を観測することに成功した(Nature Nanotech. (2015)). また, この現象は現在スピン電流変換効果として多様されている逆スピンホール効果と異なり, スピン蓄積を直接検出でき, また磁性体中でも駆動可能である. 今後, スピントロニクス研究のスピン検出ツールとして活躍すると予想される.

研究テーマ D「金属系における新物質探索」

SOI 起因のスピントルク効果を室温にて高効率で生み出す金属材料発見を目指した. プロジェクト当初の提案は磁性超薄膜(Fe)と反転対称性の破れた下地層(GaAs)との界面にて生じる共鳴状態を利用するものであった. 結果的には GaAs 上のエピタキシャル Fe 超薄膜(1nm)の FMR 励起に成功した(Appl. Phys. Lett. 2013)が, その磁気励起機構の対称性は狙っていた GaAs の SOI の対称性とは異なるものであった. その後, 反転対称性の破れた結晶系を持つ室温強磁性相 FeNiSi やハーフホイスラー材料そしてマンガン系材料などを含めた多数の材料を試した. 結果として, エピタキシャル成長を達成する条件などをそれぞれ見つけることには成功したが, 金属系において明確な SOI 起因のスピントルク効果の測定にまでは至っていない. こちらが本プロジェクトで現在一番注力しているテーマである.

3. 今後の展開

本研究プロジェクトで対称性の低い材料中での SOI を使った新しいスピン新物質科学をスタートすることができた. 特に SOI による新しいスピントルク効果の発現解明や新現象発見に成功し, 今後はこれからの機軸としてやり残された新スピントロニクス材料発見を第一目標にする. さらに,

本題材をより広義にみつめ、電流励起以外の物質励起に関しても今後取り組む予定である。

4. 評価

(1) 自己評価 (研究者)

当初の研究提案書に書いた研究プラン(界面電子軌道混成の利用)は大失敗に終わったが、苦しい部分から軌道修正をし、これが功を奏し、より本質的な「対称性の低い材料中での新しいスピン新物質科学構築」という形で研究を再定義するチャンスとなった。新物質科学として自分の研究の新しい方向性を見出すことができ、スピントロニクスの新現象と呼べる成果も挙げた。

これら物性研究に比べ、材料研究では実質50%以上時間を費やしたにもかかわらずこの三年半で大きな成果が挙げられなかった。材料研究の厳しさを肌で感じ、同時に領域内でそれぞれの分野で着々と成果を出している同年代の研究者を目の当たりにした。独自の材料研究への切り口そして材料研究力向上が今の課題になり、未開の現象が多数存在する本テーマで世界をリードする存在を目指す。

支援いただいた研究費により、英国で研究グループを主宰する機会が与えられ、早いスピードで自分のグループの研究環境(測定装置2台)を整えることができた。グループ発足から二年経った現在、グループメンバー数名そして充実した研究設備により、英国のスピントロニクスグループとして認知されつつあり、更なる研究の発展が狙える状態にある。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

今まで着目されていなかった反転対称性の破れた結晶系にのみ存在する特定のスピン軌道相互作用に着目し、それが引き起こす新しいスピントルク効果や関連した諸現象の発見と発現機構の解明、さらにはそれらの室温駆動を実現させる材料群の発見を目指した研究。以下の4つのテーマに取り組み、それぞれについてレベルの高いジャーナルに論文が出版されたように成果を挙げた。本領域で明確なジャンプが生じた研究者の一人といえる。「SOI起因のスピントルク効果の微視的機構解明」、「反転対称性の破れた非磁性体からのスピントルク効果の発見」、「SOIスピントルクの逆効果の発見」、「金属系における新物質探索」。特に電流で電子スピンを制御する新しいメカニズムの発見は応用面でもこれからの展開ができる。以上、対称性の低い材料中での新しいスピン新物質科学構築という点ではかなりの成果を残すことができたが、それを生かす新材料発見にはまだ努力と時間が必要である。さきがけ期間中にUCLで独立研究室を主宰するチャンスを掴んだことは素晴らしい。これからの研究の方向がかなり明確になったと思われるので、機構解明と新材料探索を上手くバランスさせ、国際連携も有効に活用して、ジャンプアップを図って欲しい。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

| |
|--|
| <p>1. H. Kurebayashi, Jairo Sinova, D. Fang, A. C. Irvine, T. D. Skinner, J. Wunderlich, V. Novak, R. P. Campion, B. L. Gallagher, E. K. Vehstedt, L. P. Zarbo, K. Vyborny, A. J. Ferguson and T. Jungwirth. "An anti-damping spin-orbit torque originating from the Berry curvature" <i>Nature Nanotechnology</i> vol. 9 p. 211-217 (Mar. 2014)</p> |
| <p>2. T.D. Skinner, K. Olejník, L. K. Cunningham, H. Kurebayashi, R.P. Campion, B.L. Gallagher, T. Jungwirth and A. J. Ferguson. "Complementary spin-Hall and inverse spin-galvanic effect torques in a ferromagnet/semiconductor bilayer" <i>Nature Communications</i> vol. 6 Article Number 6730 (Mar. 2015).</p> |
| <p>3. C. Ciccarelli, K. M. D. Hals, A. Irvine, V. Novak, Y. Tserkovnyak, H. Kurebayashi, A. Brataas and A. Ferguson. "Magnonic charge pumping via spin-orbit coupling" <i>Nature Nanotechnology</i> vol. 10 p. 50-54 (Jan. 2015)</p> |
| <p>4. H. Kurebayashi, T. D. Skinner, K. Khazen, K. Olejník, D. Fang, C. Ciccarelli, R. P. Campion, B. L. Gallagher, L. Fleet, A. Hirohata and A. J. Ferguson. "Uniaxial anisotropy of two-magnon scattering in an ultrathin epitaxial Fe layer on GaAs" <i>Appl. Phys. Lett.</i> vol. 102 p. 082415 (Feb. 2013).</p> |
| |

(2) 特許出願

研究期間累積件数:0 件

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

上記以外の原著論文

[1] "Electric control of the spin-Hall effect by inter-valley transitions"

N. Okamoto, H. Kurebayashi, T. Trypiniotis, I. Farrer, D. A. Ritchie, E. Saitoh, J. Sinova, J. Masek, T. Jungwirth, and C. H. W. Barnes

Nature Materials vol.13 p. 932 (2014 Aug)

[2] "Spin-orbit torque opposing the Oersted torque in ultrathin Co/Pt bilayers"

T.D. Skinner, M. Wang, A.T. Hindmarch, A.W. Rushforth, A.C. Irvine, D. Heiss, H. Kurebayashi and A.J. Ferguson

Appl. Phys. Lett. vol. 104 p. 062401 (2014 Jan).

[3] "Enhanced Inverse Spin-Hall Effect in Ultrathin Ferromagnetic/Normal Metal Bilayers"

T.D. Skinner, H. Kurebayashi, D. Fang, D. Heiss, A.C. Irvine, A.T. Hindmarch, M. Wang, A.W. Rushforth and A.J.Ferguson

Appl. Phys. Lett. vol. 102 p. 072401 (2013 Oct).

解説論文

[1] 紅林秀和「スピン軌道相互作用に起因した新しいスピントルクの最近の発展」固体物理 No.11 (通巻 597 号) 特集号 スピントロニクスの新展開—スピン変換現象を中心に (印刷中) 2015.

招待講演 計 6 件

- 9th International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Solids (PASPS IX), Kobe (08/2016) 予定
- Magnonics 2015, Munich (08/2015)
- The 1st international workshop on Spin-orbitronics, Seoul (02/2015),
- Royal-Society-IBS conference, Seoul (10/2014)
- Quantum Science Symposium Asia 2013, Tokyo (11/2013)
- CMOS Emerging Technology, Vancouver (07/2013)

プレスリリース

- 「電流で電子スピンを制御する新しいメカニズムの発見～量子位相を利用した磁化制御～」
科学技術振興機構報 第 1010 号 平成26年3月3日