

研究報告書

「スピンホールエンジニアリングによる省エネルギーナノ電子デバイスの創出」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 25 年 10 月～平成 29 年 3 月

研究者: 安藤 和也

1. 研究のねらい

電子の電荷自由度と電流だけでは実現困難なデバイス機能創出の指導原理として、スピン自由度とスピン流に基づくスピントロニクスがある。不揮発性と高性能・高耐性を兼ね備えた省エネルギースピン流デバイスの研究開発は全世界規模で進められており、この熾烈な競争に日本が勝ち残り国際的イニシアチブをとるためには、既存のデバイス構造最適化のみならず、現在のスピントロニクス原理の延長線上にはない本質的に新しいアプローチによるスピン流デバイスの省エネルギー化が必須である。この突破口を拓くのが本研究である。

本研究は、電流－スピン流変換効率の制御・増幅原理「スピンホールエンジニアリング」の開拓により、スピン軌道相互作用をベースとした新原理スピントロニクスの基盤構築を目指す。従来のスピントロニクスは、トンネル磁気抵抗素子に電流を流すことでスピン偏極電流を作り出し、これにより現れるスピントルクを用いて磁化制御を実現してきた。しかし、高抵抗素子に電流を流す必要があり、巨大なエネルギー損失に加えて絶縁破壊の可能性という深刻な問題を抱えている。一方、スピン軌道相互作用は物質中の電流とスピン流を結合し、電流と直交した方向に流れるスピン流を創り出す。これにより絶縁層を介した電流印加が不要となり、上記問題を根本的に解決できる。さらに、電流とスピン流が空間的に分離されているという著しい特長のため、磁気抵抗素子では原理的に不可能であった、電流を超える巨大スピン流の生成を実現できる可能性がある。本研究では、スピン軌道相互作用ベースの新原理スピントロニクスの基盤構築に向け、素子駆動に最も本質的となる電流－スピン流変換の制御・増大原理を明らかにし、既知の現象では到達できない変換効率実現のルート解明を狙う。これにより、既存原理では到達不可能な超低電力スピンドバイスの物理基盤を構築し、世界に発信する。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究ではスピン軌道相互作用を基盤としたスピントロニクス構築に向け、電流－スピン流変換の制御・増大原理を探索した。その中で、バルクスピン軌道相互作用では実現困難であった高い変換効率が界面スピン軌道相互作用によるスピン－電荷変換により実現可能となることを明らかにし、更に、金属の酸化というこれまでにないアプローチがスピントルク生成効率を劇的に増大することを見出し、スピン軌道相互作用ベースのスピントロニクス素子設計に新たなルートを拓いた。

これまで研究が進められてきた電流－スピン流変換現象であるスピンホール効果は、物質バルクのスピン軌道相互作用を起源とするものであった。一方、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光電子分光により明らかとなっており、その中でも巨大な Rashba 分裂を示す系として Ag/Bi が知られていた。本研究では、Ag/Bi 界面ス

ピン軌道相互作用によるスピン流から電流へ変換を観測すると共に、この逆過程である電流からスピン流への変換とスピントルク生成を実現した。この結果から得られた 3 次元電流-スピン流変換効率は 50 パーセント程度と非常に大きなものであった。これまで知られていたバルクスピン軌道相互作用による変換効率は 10 パーセント程度であり、界面スピン軌道相互作用を用いた電流-スピン流変換の有用性が本研究により明らかとなった。

研究期間内に得られたもう一つの重要な成果として、Cu の酸化によるスピントルク効率の増大現象がある。Cu はスピン軌道相互作用が弱く、検出可能なスピントルクを生成しない材料の一つであった。本研究ではスピントルク強磁性共鳴法により自然酸化を制御した Cu からのスピントルクを定量した結果、酸化によりスピントルク生成効率が 2 桁以上増大し、自然酸化した Cu が磁気共鳴を駆動するほどの巨大なスピントルクを生成する材料となることを見出した。これにより、古くから広く産業で用いられ、世の中にありふれた金属である Cu が Pt を超えるスピントロニクス材料となることが明らかとなった。

以上の研究成果により、研究計画当初の目標であった 50 パーセントを超える電流-スピン流変換効率が実現された。更に、本研究により明らかとなった新原理のスピントルク生成はスピントロニクス材料選択の可能性を大きく広げるものであり、既知の現象では到達困難な変換効率実現へのルートを拓いた。

(2) 詳細

研究テーマ A 「界面スピン軌道相互作用によるスピン流-電流相互変換」

これまで研究が進められてきた電流-スピン流変換現象であるスピンホール効果は、物質バルクのスピン軌道相互作用を起源とするものであった。一方、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光電子分光により明らかとなっており、その中でも巨大な Rashba 分裂を示す系として Ag/Bi が知られていた。このような界面スピン軌道相互作用は、ゼロ磁場でアップ・ダウンスピンのエネルギー分裂を生み、運動量とスピンを結合する。本研究では、電子散乱によるバルク効果ではなく、このようなスピン-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。

まず、強磁性金属からのスピン注入により Ag/Bi 界面におけるスピン流-電流変換を測定した。強磁性金属としては NiFe を用い、比較のため NiFe/Ag/Bi の 3 層膜に加え、NiFe/Ag 及び NiFe/Bi の 2 層膜についてもスピン注入により現れる電流測定を行った。この結果、NiFe/Ag 及び NiFe/Bi に関しては、Ag 及び Bi のバルクスピン軌道相互作用によるスピン流-電流変換は本測定では無視できるほど小さいことが明らかとなった。しかし、このように Ag 或いは Bi のみではスピン流から電流への変換が殆ど検出されないものの、この 2 つの物質を接合にした NiFe/Ag/Bi では、1 桁以上大きなスピン流-電流変換が観測された。これは Ag/Bi 界面に特徴的な現象であり、これにより界面スピン軌道相互作用によるスピン流から電流へ変換が観測されたと言える[3]。

上記現象の存在は、この逆過程の存在を予言している。そこで、電流からスピン流への変換とスピントルク生成の検出を次に試みた。Ag/Bi 界面に電流を流すということは Rashba 電子系の運動量に偏りを作り出すことに対応する。Rashba 電子系では運動量とスピンが結合しているため、この運動量の偏りからスピン分極が生まれる。Ag/Bi 界面で現れたこのスピン分

極は Ag 中を拡散するはずであり、この拡散スピン流を検出するため、強磁性体/Ag/Bi 構造におけるスピントルク測定を行った。この結果、強磁性/Ag/Bi 構造において、Ag 或いは Bi のバルクスピン軌道相互作用では説明できないスピントルクが観測され、Ag/Bi 界面における Rashba スピン軌道相互作用によるスピントルク生成の検出に成功した。この結果は、非磁性金属接合における Rashba スピン軌道相互作用を用いてスピントルク生成に成功した初めての結果であり、この結果から得られた 3 次元電流-スピン流変換効率は 50 パーセント程度と非常に大きなものであった。これまで知られていたバルクスピン軌道相互作用による変換効率は 10 パーセント程度であり、界面スピン軌道相互作用を用いた電流-スピン流変換の有用性が本研究により明らかとなった[2]。

研究テーマ B「金属酸化によるスピントルク効率の増大」

研究期間内に得られたもう一つの重要な成果として、Cu の酸化によるスピントルク効率の増大現象がある。Cu はスピン軌道相互作用が弱く、検出可能なスピントルクを生成しない材料の一つであった。本テーマでは、スピントルク強磁性共鳴という手法により自然酸化を制御した Cu からのスピントルクを定量した結果、酸化によりスピントルク生成効率が 2 桁以上増大し、自然酸化した Cu が磁気共鳴を駆動するほどの巨大なスピントルクを生成する材料となることを明らかにした。これにより、古くから広く産業で用いられ、世の中にありふれた金属である Cu が酸化により Pt を超えるスピントロニクス材料となることが見出された [1]。

スピントルク強磁性共鳴により Cu からのスピントルク生成を定量するため、シリコン酸化膜キャップ層により表面保護した $\text{SiO}_2/\text{NiFe}/\text{Cu}$ を作製し、GHz の高周波電流を流しながら外部磁場の大きさを変え、試料に生じる直流電圧を測定した。共鳴時には、磁化の運動と高周波電流の整流効果により直流電圧が現れ、この直流電圧の形状を解析することで、スピントルクの大きさを見積もることができる。図 1 は、自然酸化を防ぐために表面を保護した Cu(図 1(a))、自然酸化を制御するためにキャップ層を薄くした Cu(図 1(b))、自然酸化した Cu(図 1(c))についてスピントルク強磁性共鳴を測定した結果である。1 段目の図は 3 つの試料の模式図、2 段目の図がスピントルク強磁性共鳴の測定結果であり、Cu が自然酸化していくとスペクトル形状が変化することを示している。この電圧スペクトル形状からスピントルク生成効率を求めた結果が 3 段目の図であり、表面を保護し、自然酸化を防いだ Cu ではスピントルクの生成効率は 0.1 パーセント以下と非常に小さいものであった。これは Cu のバルクスピン軌道相互作用が非常に弱いことから予想された結果である。しかし、表面のキャップ層を薄くし、Cu が少し自然酸化するように制御したところ、生成効率が 5 パーセントまで増大した。更に、キャップ層をなくし自然酸化層を生じさせたところ、巨大なスピントルクが観測され、その生成効率は 10 パーセントを超えることが明らかとなった。これは、白金(生成効率約 10 パーセント)などのレアメタルスピントロニクス材料を上回る高い効率である。

自然酸化は表面から進行するため、自然酸化した Cu は酸化した Cu 層と酸化していない Cu 層の 2 層で構成されていると見なせる。そこで比較のため、Cu 全体を一様に酸化させ、酸化 Cu と Cu の 2 層から成る構造を作製し同様の測定を行ったところ、スピントルクが検出されなかった。この結果から、自然酸化により現れたスピントルクは酸化した Cu 層と Cu の界面ではなく、自然酸化した Cu 内部の電子輸送の変化に起因することが明らかとなった。

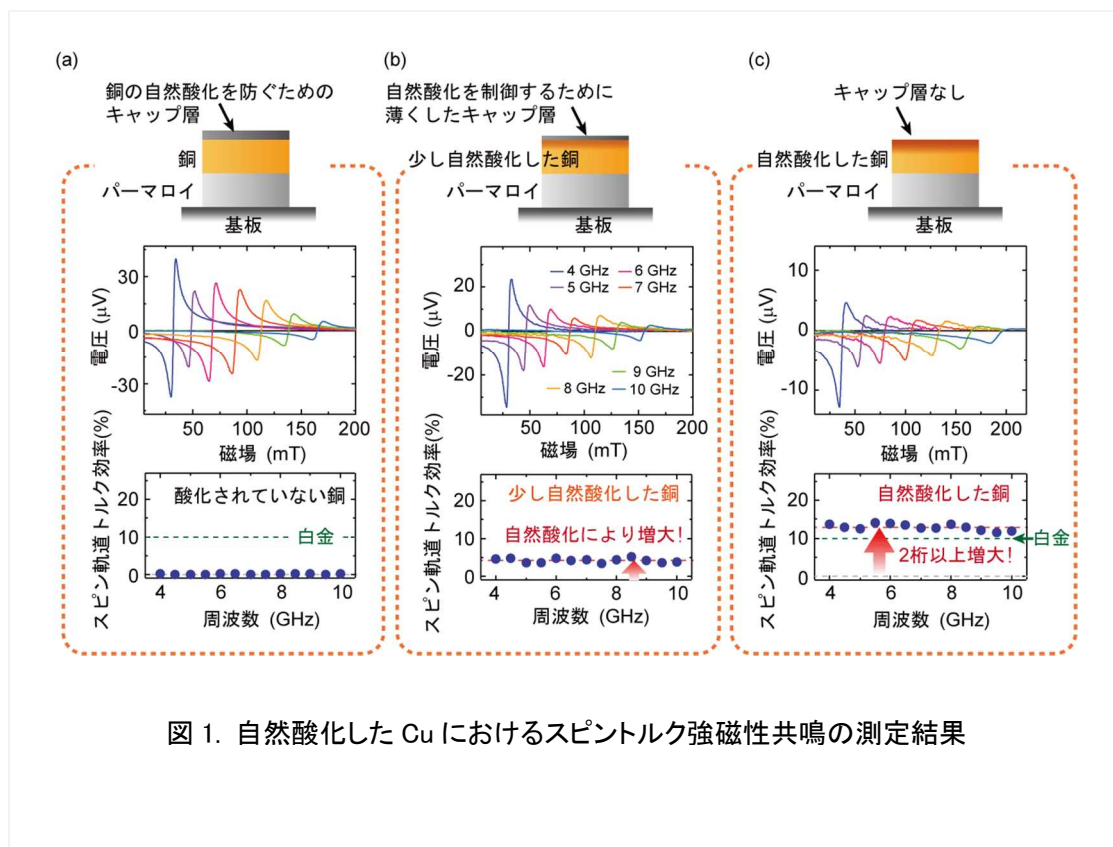


図 1. 自然酸化した Cu におけるスピントルク強磁性共鳴の測定結果

3. 今後の展開

スピン軌道相互作用を用いたスピントルク生成には、Pt をはじめとする原子番号の大きな物質が必須であるというのが常識であり、現在広く産業で用いられている Cu はスピントルク生成源としてほとんど注目されてこなかった。本研究により明らかとなった酸化によるスピントルク効率の増大現象はこのような常識を覆すものであり、ありふれた材料を酸化するというシンプルかつ新たなアプローチによって、これまで脚光を浴びてこなかった物質のスピントロニクス応用への道が拓かれ、材料の選択の幅が大きく広がった。今後の研究による機構解明と酸化に注目した物質探索により、スピン軌道相互作用を基盤とした新原理の高性能スピントロニクス素子作製が可能となるのみならず、レアメタルフリーのスピントロニクスデバイスの実現へと繋がるのが期待される。また本研究は、界面スピン軌道相互作用による電流-スピン流変換が、バルクスピン軌道相互作用と並ぶ重要なスピントルク生成機構となることを明らかにした。界面スピン変換はバルクスピン軌道相互作用による変換と共存可能であり、バルク・界面スピン軌道相互作用を併用したスピントロニクス素子設計が可能となる。

スピン軌道相互作用を基盤とするスピントロニクスは、これまで研究が進められてきた磁気抵抗素子ベースのスピントロニクス素子に加え、スピン流を介した熱電素子をはじめとする新原理デバイスを駆動できる。本研究により明らかとなったスピン軌道相互作用による新原理の電流-スピン流変換を用いることで、省エネルギー電子素子への展開が期待される。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

- ・本研究計画で当初目標としていた電流-スピン流変換効率 50 パーセントは界面スピン軌道相互作用を用いることで達成された。これだけでなく、Cu の自然酸化によるスピントルク生成効率の 2 桁以上の増大が見出されたことで、更なる変換効率向上へのルートが明らかとなった。

- ・本さがけ研究開始年度に現在の所属大学へと異動し、新たな研究室を立ち上げた。このため研究開始当初は研究環境の整備から始めることとなったが、途中の増額も含めて柔軟な予算執行を認めて頂けたため、早期に研究を軌道に乗せることができた。

- ・スピントロニクスは巨大磁気抵抗効果の発見を契機に始まったが、近年新たな展開を迎えている。その中で重要となるのがスピン軌道相互作用による電流-スピン流変換であり、本さがけにより得られた研究成果はこのような新原理のスピントロニクス技術の基盤となることが期待される。特に、2 桁以上のスピントルク効率増大を可能とするのは本研究により明らかとなった金属の酸化のみであり、今後の研究によりメカニズムまで解明することができれば、スピントロニクス素子の原理を本格的に変えられる可能性がある。

(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)

スピン軌道相互作用を用いたスピントロニクスデバイスは実用への期待も大きく、その基盤となる電流-スピン流変換に関して安藤研究者はインパクトのある成果をあげた。特に、ある程度の知見が蓄積されていたバルクにおける効果から脱却して表面や界面に注目することで、電流-スピン流変換の効率が向上できることを見出した。特に、さがけ開始時には～数10%であった電流-スピン流変換の効率を、巨大 Rashba スピン軌道相互作用に着目することにより、非磁性元素の Bi/Ag 界面において～50%まで上昇させることに成功したことは高く評価できる。加えて、ありふれた銅を自然酸化するだけでスピン軌道トルク生成効率が2桁以上向上する効果を見出したことは、想定外の非常に重要な成果である。従来から用いられていた白金を凌駕する性能であり、技術的にも容易なアプローチの提示であることから、将来のスピントロニクス素子の実用化に向けた大きな貢献が期待される。研究申請時の想定を遥かに上回る、「さがけ」らしい研究成果であると評価する。Nature Communication などの著名誌への8報の論文掲載や国際会議での8件の招待講演など、成果発表も申し分ない。

大きな波及効果の可能性をもつ技術を見い出していることから、産業界に向けた情報発信を積極的に行っていくことも望まれる。新原理に基づいた研究は始まったばかりであり、メカニズム解明もこれからなので、基礎学理の確立や新たな応用につながる技術の創出に向けて今後も研究を推進して欲しい。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. 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).
2. 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).
3. 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).
4. Hiroto Sakimura, Takaharu Tashiro, and, Kazuya Ando, "Nonlinear spin-current enhancement enabled by spin-damping tuning," Nature Communications 5, 5730 (2014).
5. Shun Watanabe, Kazuya Ando, Keehoon Kang, Sebastian Mooser, Yana Vaynzof, Hidekazu Kurebayashi, Eiji Saitoh, and Henning Sirringhaus, "Polaron Spin Current Transport in Organic Semiconductors," Nature Physics 10, 308 (2014).

(2)特許出願

研究期間累積件数:2 件

1.

発 明 者: 安藤和也, 中山裕康, 田代隆治, 桑原勇作
 発明の名称: スピントロニクスデバイス及びこれを用いた記憶装置
 出 願 人: 慶應義塾大学
 出 願 番 号: 2015-241179

(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)

国際会議招待講演

1. "Spin current coupled with dynamical magnetization,"
International Conference of Asian Union of Magnetism Societies, August 1-5, 2016,
Tainan, Taiwan.
2. "Spin-current emission governed by nonlinear spin dynamics,"
International School and Conference on Spintronics and Quantum Information
Technology, August 10-13, 2015, Basel, Switzerland.
3. "Dynamical generation of spin current,"
Energy Materials Nanotechnology, May 4-7, 2015, Phuket, Thailand.
4. "Dynamical spin injection into organic materials,"
International Meeting on Spin in Organic Semiconductors, October 13-17, 2014, Himeji,
Japan.
5. "Spin current generated by magnetization dynamics,"

SPIE, August 17-21, 2014, San Diego, USA.

受賞

1. 本多記念研究奨励賞(本多記念会)2016 年 5 月 27 日.
2. 船井学術賞(船井情報科学振興財団)2014 年 4 月 19 日.

プレスリリース

1. 銅を酸化させると白金を超える性能を発揮(2016 年 10 月 11 日)
2. 磁気の流れ(スピン流)の増大原理を初めて解明(2014 年 12 月 10 日)