

「反強磁性薄膜を用いたスピン超流動デバイスの創出」

研究期間:2020年12月～2024年3月

研究者:森山貴広

1. 研究のねらい

Society 5.0を見据えた情報化社会の急激な発展に伴い、これまでになく膨大な量の情報のやり取りが見込まれる。従来の電子デバイスにおいて、これらの情報のやり取りは主に電荷が担っており、ジュールの法則によるエネルギー損失は避けられない問題である。よって今後、情報通信量や情報処理量の増大に伴い、これらに関わるエネルギー消費量は大きな問題となることが予想される。本研究は、これらの問題を解決し得る超低散逸のスピン超流動を利用した、スピン流による超低エネルギー情報通信および情報処理技術に関わるものである。

一般的に超流動現象とは、液体ヘリウム超流動や超伝導に代表される無散逸の流体现象である。超流動は、その秩序変数がボース＝アインシュタイン凝縮することによって量子効果が巨視的に現れた現象であると捉えられる。一方、磁性体において磁気モーメントが2次元的に束縛された秩序を有する場合、スピン超流動が発現することが理論的に提案されている[Sonin, *Solid State Commun.* **25**, 253 (1978)]。これまで、さまざまな実験的試みがなされているがスピン超流動は実証されていない。

本研究では、磁性体において2次元的な磁氣的束縛状態、すなわち磁気容易面を作ることによって、スピン超流動を実験的に実証し、超低散逸のスピン輸送の実現を目的とする。磁気容易面を持つ磁性体は種々考えられるが、本研究では次の理由から、反強磁性体を媒体としたスピン超流動の実現を目指す。(1)強い磁気容易面を持つ材料群、かつ磁気容易面の制御が可能：反強磁性体の磁気異方性は結晶構造の対称性と強く結合しており、NiOやMn₃Irなど磁気容易面をもつ反強磁性体が多数存在する。また、ヘテロエピタキシャル成長を利用して意図的に結晶を歪ませることで磁気異方性を制御できる。(2)ダイポール相互作用が無い：局在スピンの長距離秩序を乱すダイポール相互作用がスピン超流動を実現する上で障害となる。全体として磁気モーメントが打ち消しあっている反強磁性体ではダイポール相互作用を最小限にできるため適切な材料系である。

以上の点から、反強磁性体はスピン超流動の実現に必要な優れた潜在特性を有している。スピン超流動デバイスの実現のために、磁気容易面を制御した高品質の単結晶反強磁性薄膜の作製、スピン超流動材料へのスピン注入手法の確立、スピン超流動の評価方法の確立を通して、最終的には超低散逸・長距離スピン輸送デバイスの実証を目指す。

2. 研究成果

(1) 概要

上記の研究目的を達成するために、(1)単結晶薄膜成長、(2)スピン流注入の効率化、(3)スピン超流動の評価、(4)スピン伝送デバイスの開発、の4つの項目について研究を順次実施し、最終成果としてスピン超流動状態によると考えられる超低散逸・長距離スピン輸送デバイスを実証した。以下に要約する。

研究初期段階において、反強磁性体 NiO の磁気異方性と結晶方位の関係を理解し [Moriyama et al., Phys. Rev. Mater. **7**, 054401 (2023)]、さらに磁気容易面の評価手法を開発した。この評価手法を活用し、MgO(111)基板上に NiO を適切な成膜条件でヘテロエピタキシャル成長させることで結晶ひずみによって、(111)面に強い磁気容易面を持つ NiO 単結晶薄膜の作製に成功した。これによりスピン超流動実現の要件の一つである 2 次元的な磁氣的束縛状態を達成した。

また、スピンドイナミクス測定を利用した単結晶 NiO 薄膜中のスピン伝送距離の評価手法を確立した。本手法を用いて、スピン伝送距離が NiO の結晶方位に大きく依存することを発見した [Ikebuchi, Moriyama et al., Appl. Phys. Exp. **14**, 123001 (2021).]。また、NiO 薄膜へのスピン注入効率を高めるために、単結晶 Pt 中のスピンホール効果の効率評価を行った [Ikebuchi, Moriyama et al., Appl. Phys. Lett. **120**, 072406 (2022).]。

以上の成果を踏まえて、長距離のスピン輸送の実現およびその評価を目指し、スピン流の出入力機構を備えたスピン超流動デバイスを作製し、スピン流の長距離伝送の実証を行った。研究を進めていく中で、非局所測定においてスピン注入手法として一般的に用いられるスピンホール効果は、スピン超流動を励起するのに適切ではないことが分かった。そこで、スピン軌道歳差効果 (Spin orbit precession effect: SOPE) を利用したデバイスを考案した。SOPE を利用することで、スピン超流動を励起するのに適切な方向にスピン注入が可能になった。これにより、本デバイスにおいて、数 μm の長距離スピン輸送を観測し、超流動の特徴の一つである非指数関数的なスピン流減衰を確認した。また、NiO の磁気容易面の特性を反映して、超流動の励起に必要な閾値が存在することが分かった。以上の研究結果は、本デバイスにおいてスピン超流動が励起され、伝搬していることを強く示唆している。

(2) 詳細

研究項目 1 「高品質単結晶薄膜成長」

反強磁性体 NiO は既存の MgO 単結晶基板や Al_2O_3 単結晶基板、Si 単結晶基板などと相性が良く、スパッタ法を用いて、比較的容易にヘテロエピタキシャル成長が可能である。本項目では、強い磁気容易面をもつ NiO 薄膜の作製を試みた。NiO は (111)面に磁気容易面を持つことが知られている。この場合、結晶構造の対称性から 4 つの等価な {111}面 ((111)、(1-11)、(11-1)、(-111)面) が磁気容易面となり得る。NiO には、これら 4 つの方向に存在する磁気容易面に起因した T-domain と呼ばれる磁区が存在する。複数の T-domain が存在すると、T-domain 間の境界において磁気モーメントのコヒーレンスが不連続となるため、スピン超流動が阻害される。従って、{111}磁気容易面

の縮退を解き、特定の(111)面に磁気容易面を出すことが強い磁気容易面を得る上で肝要である[Moriyama et al., Phys. Rev. Mater. 7, 054401 (2023).]。そこで、ヘテロエピタキシャル成長時に生じる結晶ひずみを利用して磁気容易面の縮退を解き、特定の(111)面に磁気容易面を実現することを目指した。図1は MgO(111)単結晶基板および Al₂O₃(0001)単結晶基板上にスパッタ成膜した NiO 表面の反射光速電子線回折(RHEED)像である。適切な基板温度で成長させることにより MgO(111)および Al₂O₃(0001)基板どちらにおいても、(111)にエピタキシャル配向した NiO 薄膜が得られていることが分かる。RHEED 回折スポットの解析等から MgO(111)基板上の NiO では膜面垂直方向に圧縮歪みが、Al₂O₃(0001)基板上の NiO では引張歪みが生じていることが分かった。NiO の磁気容易面の発現機構を考慮すると、膜面垂直方向に圧縮歪みがある方が強い磁気容易面を得られることが予想される。反強磁性薄膜上にさらに強磁性薄膜を堆積し、反強磁性/強磁性体の二層膜界面に生じる交換バイアスを利用して反強磁性体の異方性や磁気容易面を測定した。

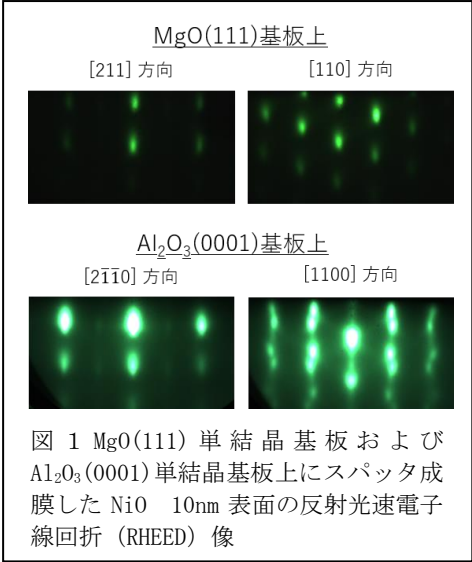


図1 MgO(111)単結晶基板および Al₂O₃(0001)単結晶基板上にスパッタ成膜した NiO 10nm 表面の反射光速電子線回折(RHEED)像

研究項目2「スピン流注入の効率化」

スピン超流動デバイスを実現するためには効率的なスピン流注入が必須である。本研究では、スピントロニクスにおいて広く用いられている電流→スピン流変換現象の一つであるスピンホール効果を利用したスピン注入を検討している。広く用いられているスピンホール材料として Pt があるが、これまでの研究では多結晶 Pt に関するものがほとんどで、単結晶 Pt におけるスピンホール効果の報告がなかった。今回、単結晶 Pt の様々な結晶方位に対して電流→スピン流変換(=スピンホール角: θ_{SH})の評価を行った結果、結晶方位、電流方向、およびスピン流方向に依存してスピンホール角が大きく変化することが分かった。Pt(111)面を用いた場合(図2の series(A))、 $\theta_{SH}=0.3$ が得られた。これはこれまで多結晶 Pt において報告されていた θ_{SH} の約三倍の大きさである[Ikebuchi, Moriyama et al., Appl. Phys. Lett. 120, 072406 (2022).]。今回得られた知見を元にスピン超流動デ

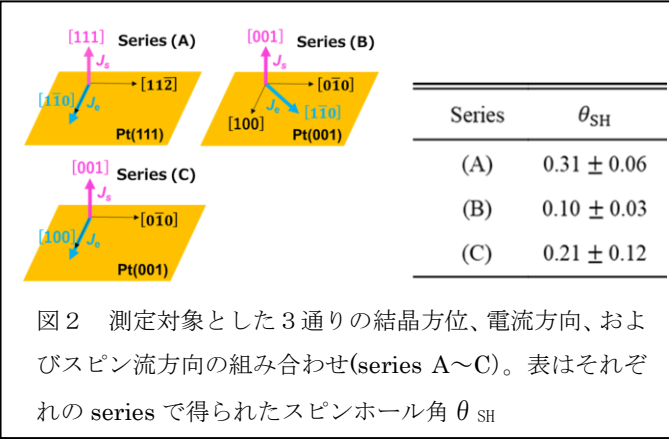


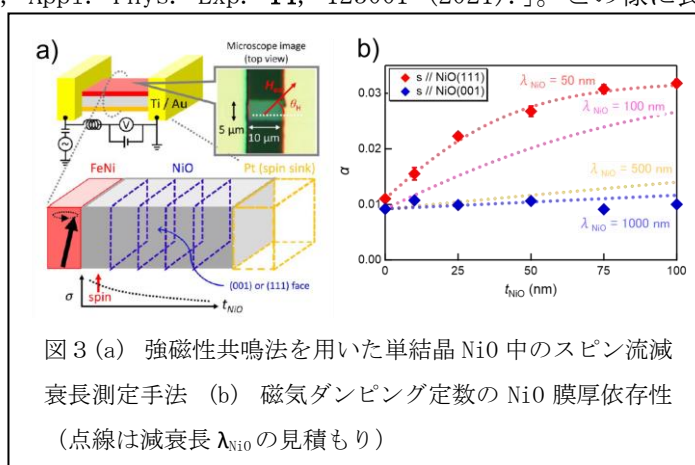
図2 測定対象とした3通りの結晶方位、電流方向、およびスピン流方向の組み合わせ(series A~C)。表はそれぞれの series で得られたスピンホール角 θ_{SH}

バイスの材料や構造の検討を行った。

研究項目 3 「スピン超流動の評価」

強磁性共鳴法を用いて、反強磁性体(NiO)/強磁性体(FeNi)多層膜の磁気ダンピング定数(α)を測定することで、NiO中のスピン流散逸を定量化することができる。これまでの研究で、多結晶NiO中のスピン流の減衰長が30nm程度であることが分かっている。今回、同様の測定手法を用いて単結晶NiO中のスピン流減衰長を測定した(図3(a))。スピン流の分極方向 s とNiOの結晶方位が $s//\text{NiO}(111)$ の時、スピン流減衰長が50nmなのに対して、 $s//\text{NiO}(001)$ の時、減衰長は1000nmを超えるという結果が得られた(図3(b))。これはNiO中でこれまで観測されたスピン流減衰長で最も長いものである[Ikebuchi, Moriyama et al., Appl. Phys. Exp. **14**, 123001 (2021).]。この様に長い減衰長はスピン超流動を

示唆しているが、本測定手法では原理的に1000nm以上の減衰長を精確に見積もることができないため、研究項目4に述べる非局所測定等を利用した減衰長の評価およびスピン超流動の同定に重点的に取り組んだ。



研究項目 4 「スピン伝送デバイスの開発」

図4(a)に示したようなスピン超流動デバイスを考案した。スピン超流動の励起には、スピン流のスピン分極方向がNiOの磁気容易面に対して垂直である必要がある。本デバイスでは、スピン注入源として強磁性体を用いることで強磁性体において生じるスピン軌道トルク(スピン軌道歳差効果:SOPE)を利用してNiO磁気容易面に垂直にスピン分極を注入する。デバイス作製はEBリソグラフィおよびArミリングを用いて行った(図4(b))。左側の強磁性体細線に入力電流を印加するとNiOにスピン流が注入される。注入されたスピン流はスピン超流動を励起し、左側の強磁性体細線に到達すると、スピン軌道トルクの逆効果によって電流信号(電圧 V_d)に変換される。 V_d は検出細線下のスピン流密度に比例するため、細線間距離(d)依存性を測定することにより、スピン散逸特性を知ることができる。

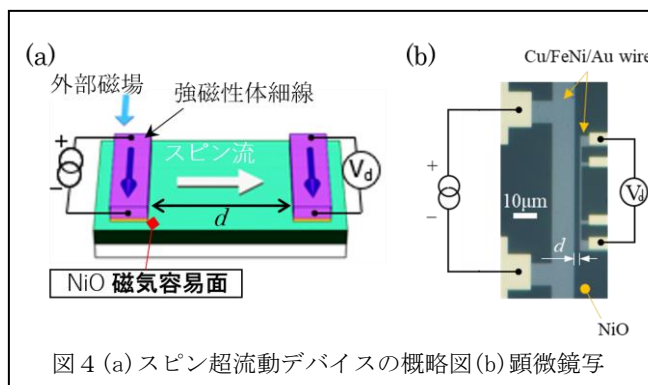


図4(a)のデバイス構造について、外部印加磁場や、温度、細線印加電流等のパラメータを変化させて検出電圧 V_d の細線間距離 d 依存性を測定した。図5に室温で得られたデータを示す。通常の散逸スピン流では距離に対して指数関数的に減衰する(図2点線)のに対して、測定データは代数的に減衰する(図5実線)傾向が見られており、スピン超流動の兆候が観測されていると考えられる。また、 $d = 4 \mu\text{m}$ 程度までスピン流の伝送が観測された。さらに、入力電流は V_d に対して閾値があることが観測されており、スピン超流動の励起にエネルギーギャップが存在することが分かった。このエネルギーギャップはNiOの磁気容易面内における磁気異方性エネルギーに対応していると考えられる。

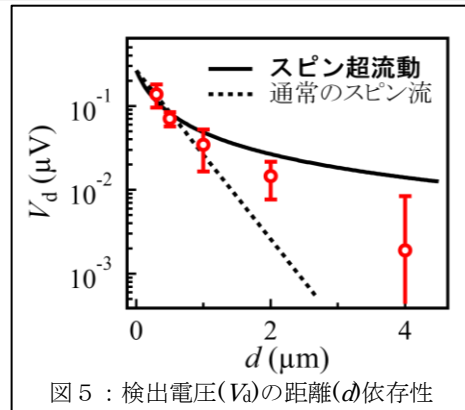


図5：検出電圧(V_d)の距離(d)依存性

3. 今後の展開

本研究では、反強磁性材料として主に NiO に着目し、その磁気容易面を活用することでスピン超流動を示唆する結果を得た。同様の発想により他の反強磁性材料においてもスピン超流動を調査し、本結果の普遍性を検証したい。近年注目されているファンデルワールス二次元磁性材料について展開したい。とくにファンデルワールス二次元反強磁性体である NiPS_3 は、その構造上 2 次元平面に磁気モーメントが強く束縛されており、スピン超流動材料としては理想的と考えられる。

スピントロニクスデバイスにおいて、スピン流による磁化反転は情報記録・情報処理の肝になる動作原理である。スピン超流動を利用した磁化反転デバイスを実現させることで、スピン超流動を用いた超省電スピン情報デバイスの創成を展開する。

4. 自己評価

研究目的の達成状況

本研究では、スピン超流動の条件を満たしたデバイスを作製し、数 μm の長距離スピン輸送を観測し、超流動の特徴の一つである非指数関数的なスピン流減衰を確認した。また、NiOの磁気容易面の特性を反映して、超流動の励起に必要な閾値が存在することが分かった。これらの結果は、本デバイスにおいてスピン超流動が励起され、伝搬していることを強く示唆している。

以上の成果より、本研究目的である超低散逸・長距離のスピン輸送の実現については達成した。本結果がスピン超流動であると確定できるかどうかは議論の余地があるため、追加実験や理論家との共同研究を引き続き行うことで本デバイスにおけるスピン超流動の解明を行いたい。

研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)

本研究では、研究代表者が指導大学院生 2 名程度とともに試料作製、評価、データ解析、考察を一気通貫で行った。また、データの考察過程において、スピン超流動デバイスの理論的提案者であり、著名な磁気物理理論家である Prof. Tserkovnyak および Prof. Takei らに理論的な支援を仰い

だ。

研究代表者は、研究期間中(2023 年度)に京都大学化学研究所材料機能化学研究系ナノスピントロニクス領域・准教授から名古屋大学工学研究科物質科学専攻・教授に昇進異動した。本研究費により購入した反強磁性薄膜作製用の多元スパッタリング装置他は、さきがけ・スタートアップ支援により名古屋大学に移設し研究を継続した。上記大学院生らには、引き続き京都大学にて研究を継続してもらい、本研究が滞ることがないよう最大限配慮した。

科学技術及び社会・経済への波及効果

従来の電子デバイスにおける情報担体は主に電子の電荷が担っており、ジュールの法則によるエネルギー損失は避けられない問題である。一方、スピン角運動量の流れであるスピン流は、電荷の動きが必ずしも伴わないのでジュール損失を回避できる。しかしながら、スピン流は固体中で散逸されやすい(スピン情報を失う)点が、スピンを情報担体とする場合のボトルネックであった。今回の研究成果であるスピン超流動による低散逸なスピン輸送は、このボトルネックを物理的に回避できることを実証したものである。現状では基礎的実証にとどまっているが、今後、より具体的にスピン超流動を用いた情報デバイスの提案・応用開発を進めることで、情報担体の低消費エネルギー化が求められる社会への本研究成果の波及が期待できる。

また、科学技術的観点では、本研究成果は常温常圧における超流動物理を再現したものに他ならない。厳密にいうと、スピン超流動は超伝導のような無散逸流動ではないが、超流動状態を常温常圧で再現できるテストベッドとして基礎物理への波及効果も期待できる。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数： 9 件

1. K. Sugi, T. Ishikawa, M. Kimata, Y. Shiota, T. Ono, T. Kato, and T. Moriyama, "Spin Hall magnetoresistive detection of easy-plane magnetic order in the van der Waals antiferromagnet NiPS₃", *Physical Review B* **108**, 064434 (2023).

概要：ファンデルワールス二次元反強磁性体 NiPS₃ はスピン超流動の媒体候補物質の一つである。本研究では、NiPS₃/Pt 多層膜におけるスピンホール磁気抵抗 (SMR) 効果を調査した。SMR の温度依存性や外部磁場依存性から NiPS₃ の磁気容易面や磁気相転移温度 (ネール温度) などの磁気特性を明らかにした。本成果で得られた比較的大きな SMR は NiPS₃ 表面と伝導電子スピンの相互作用が有意に存在することを示している。これは、伝導電子スピンによって NiPS₃ 内にスピン超流動励起が可能なことを示唆している。

2. T. Moriyama, L. Sánchez-Tejerina, K. Oda, T. Ohkochi, M. Kimata, Y. Shiota, H. Nojiri, G. Finocchio, and T. Ono, "Micromagnetic understanding of evolutions of antiferromagnetic domains in NiO", *Physical Review Materials* **7**, 054401 (2023).

概要：NiO の磁気ドメインのダイナミクスはこれまで実験的に明らかではなかった。本研究では、反強磁性体 NiO の磁気ドメイン構造とそのドメイン構造のダイナミクスについて、磁気線二色性を用いたドメインイメージング実験と、結晶ひずみや磁気異方性を考慮したマイクロマグネティックシミュレーションを比較することによって調査した。

結晶ひずみ方向と磁気異方性が強く結合しており、磁気ドメインのダイナミクスが結晶ひずみに大きく依存することが分かった。本成果は、結晶ひずみにより磁気ドメインの制御や、スピン超流動に必要な磁気容易面を制御できることを強く示唆している。

3. T. Ikebuchi, Y. Kobayashi, I. Sugiura, Y. Shiota, T. Ono, and T. Moriyama,
"Long-distance spin current transmission in single-crystalline NiO thin films"
Applied Physics Express **14**, 123001 (2021).

概要：NiO の磁化構造や磁気異方性から、そのスピン輸送特性が結晶方位に依存することが予想される。本研究では、単結晶 NiO/FeNi 多層膜においてスピンポンピングにより、異なる結晶方向からスピン流を注入し、そのスピン散逸特性を測定した。スピン流のスピン分極が NiO(001) な場合、NiO(111) と平行な場合に比較して、けた違いにスピン減衰長が長くなることが分かった。本測定デバイスの構造上、本結果がスピン超流動に起因しているかどうかまでは断定できなかった。本結果を踏まえて、測定手法やデバイス構造を見直して、スピン超流動の実証にむけて研究を展開した。

(2) 特許出願

なし

(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)

1. <招待講演> 森山貴広, "スピントロニクスの最前線",
電子情報通信学会 2022 年総合大会 (3/17/2022)
2. <招待講演> T. Moriyama, "Spin transport and dynamics in antiferromagnets",
Spin Argentina 2022 (11/10/2022)
3. <一般講演> I. Sugiura, Y. Kobayashi, Y. Shiota, T. Ono, and T. Moriyama,
"Characterization of long-distance spin transport in antiferromagnetic NiO"
Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials 2022 (11/2/2022)
4. <解説記事> 森山貴広, 小野輝男,
"反強磁性体のネールベクトル操作とテラヘルツ反強磁性共鳴",
日本磁気学会誌「まぐね」 17, 219 (2022).
5. <著書> 森山貴広, "第 6 章 4 節「反強磁性スピントロニクス」"
スピントロニクスハンドブック: 基礎から応用まで (2023) (ISBN: 4860438426)