

# 5d遷移金属酸化物の強いスピン軌道相互作用を活かした 酸化物スピントロニクス



若 者

上 田 浩 平\*

Oxide spintronics utilizing strong spin-orbit coupling of  
5d transition metal oxides

Key Words : 5d transition metal oxides, spin current, spin-orbit torque

## はじめに

スピントロニクスは、電子のスピン角運動量の流れであるスピン流を積極的にエレクトロニクスに活用する分野である。スピン流は、発熱効果を抑制するため、次世代の省エネルギー磁気メモリ開発に貢献できる。そのため、スピントロニクスは国内外で活発に研究されている分野である。ここでスピントロニクス研究に従事している著者の経歴について述べる。指導教官である小野輝男先生の下、2014年3月に京都大学大学院化学専攻博士後期課程にて博士(理学)を取得し、同研究室で博士研究員として従事した。2015年2月からマサチューセッツ工科大学材料工学専攻 Beach 研究室にて博士研究員を経た。金属磁性薄膜を中心とした研究に励んだ後、2018年7月より大阪大学大学院理学研究科物理学専攻松野研究室に助教として着任し、酸化物のスピントロニクス研究に従事するようになった。現在では、様々な非磁性・磁性酸化物のエピタキシャル薄膜作製とそれらのスピントロニクス機能の開拓に取り組んでいる。今回、本誌『若者』について執筆の機会を頂き、同研究室にて行っている5d遷移金属酸化物を用いた酸化物スピントロニクス研究の成果の一部について紹介させていただく [1-3]。

## 5d 遷移金属酸化物を用いたスピントロニクスへの期待

現在、情報化社会の急速な発展に伴い Artificial Intelligence や Internet of Things などの新しい技術が普及し、我々の生活を大きく変革しつつある。その一方で、このような技術の根幹となる電子デバイスの動作には膨大な電力が必要であるため、その省電力化は喫緊の課題である。そこで、スピン流の制御は、エネルギー損失を伴わない磁化制御の要素技術であるため、研究が盛んになっている。中でも、強磁性層と非磁性層の二層膜に電流を流すだけで、磁気ビットとして情報を書き込めるスピン軌道トルク誘起磁化反転が注目されている。この手法と磁気記録媒体が持つ不揮発性の特徴を活かし、磁気メモリの更なる省電力化・高集積化が期待される。スピン軌道トルクは、スピンホール効果(電流-スピン流変換)に起因したスピン流と強磁性層の磁化との相互作用により誘起される [1-7]。

これまで、スピンホール効果に実績のある Pt [4,5] や Ta [6,7] などの非磁性5d遷移金属多結晶が研究の中心である。その理由として、フェルミ準位には5d電子の寄与があるため、スピン流生成の原因となるスピン軌道相互作用が強いからである。しかし、これら5d遷移金属のフェルミ準位は5d, 6s電子の寄与もあり、電流-スピン輸送現象における6s電子の影響は不明である。そこで6s電子の寄与を排除出来る5d遷移金属酸化物は、フェルミ準位が5d電子のみで占有される特異な電子構造をもつ。これより、5d遷移金属酸化物は既存の5d遷移金属とは定性的に異なるスピン流生成が期待され、高い電流-スピン流変換を実現する新規材料になりえると考えられる。本稿では、物性物理学の視点から新たなスピントロニクス材料を開拓することを目指し、5dイリジウム酸化物である非晶質 IrO<sub>2</sub> とペロプス



\* Kohei UEDA

1985年3月生まれ  
京都大学大学院 理学研究科 化学専攻  
博士後期課程 修了 (2014年)  
現在、大阪大学大学院 理学研究科 物  
理学専攻 助教 理学博士  
TEL : 06-6850-5534  
FAX : 06-6850-5376  
E-mail : kueda@phys.sci.osaka-u.ac.jp



カイト型 SrIrO<sub>3</sub> におけるスピン軌道トルク生成について述べる。

### 非晶質 IrO<sub>2</sub> におけるスピン軌道トルク生成 [1,2]

スパッタ法により非磁性体 IrO<sub>2</sub> と強磁性体 Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 合金 (Py) からなる二層膜構造 Py (4 nm)/IrO<sub>2</sub> (*t* = 3–8 nm) を成膜し、フォトリソグラフィとリフトオフによりホールバー構造のデバイスを作製した (図 1(a))。非晶質 IrO<sub>2</sub> は Ir ターゲットを用いた反応性スパッタ法により成膜した。IrO<sub>2</sub> の非晶質性は、電気抵抗率と X 線回折から判断した。超伝導量子干渉計により得られた二層膜の磁化測定から IrO<sub>2</sub> による Py の酸化が無視できるほど小さいことが確認されている。IrO<sub>2</sub> から生成するスピン流は、界面を通して隣接する磁性層の磁化と相互作用することで dampinglike (DL) と fieldlike (FL) 成分を持つスピン軌道トルクを誘起する (図 1(a))。本研究では、交流電流を用いた 2 倍波ホール抵抗 ( $R_H^{2\omega}$ ) の面内角度依存性を測定することで 2 つの有効磁場 ( $B_{DL}$ ,  $B_{FL}$ ) を分離する [6,7]。  $R_H^{2\omega}$  はスピン流による変調を反映することから、スピン軌道トルクの検出によく用いられる。ここで、交流電流は実効値 1–2 mA、周波数 13 Hz を用いた。図 1(b) は Py (4)/IrO<sub>2</sub> (12) 試料における  $R_H^{2\omega}$  の面内角度 ( $\phi$ ) 依存性を示しており、外部磁場を 100 mT から 300 mT に増大することで  $R_H^{2\omega}$  の絶対値が減少することが分かった。これは、スピン軌道トルクが外部磁場により抑制されていることに起因している。従って、2 つの有効磁場と磁化測定の結果を考慮することで、スピン軌道トルク効率が評価される。スピン流を用いた磁化制御には DL トルクが重要視されて

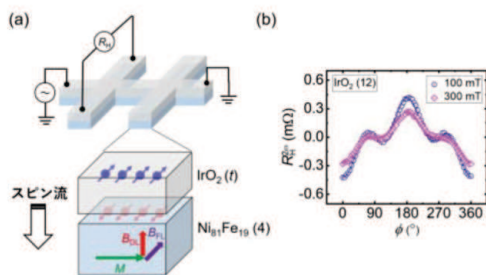


図 1 (a) 二層膜 Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> (Py)/IrO<sub>2</sub> とデバイスの概念図。スピン軌道トルクは有効磁場として磁化に作用し dampinglike ( $B_{DL}$ ) と fieldlike ( $B_{FL}$ ) の成分を持つ。(b) 2 倍波ホール抵抗  $R_H^{2\omega}$  測定によるスピン軌道トルクの観測。外部磁場の増大は共にトルクの寄与を抑制する。

いるため、本稿では、FL トルクの結果の詳細には触れない予定である。

図 2(a) は DL スピン軌道トルク効率  $\xi_{DL}$  の IrO<sub>2</sub> 膜厚依存性を示している。  $\xi_{DL}$  は、+0.064 ~ +0.104 の範囲で変化し、その効率は膜厚の増大と共に徐々に高まり、 $t = 6$  nm 以上で飽和した。このような生成効率の膜厚依存性はスピンホール効果を元にしたドリフト拡散モデルにより説明でき、IrO<sub>2</sub> の有効スピンホール角とスピン拡散長が各々 +0.093 と 1.7 nm となることが示された。参照試料 Pt (+0.103) と Ir (+0.014) を比較すると IrO<sub>2</sub> の有効スピンホール角は Pt と同程度、Ir より 7 倍大きい結果となり、IrO<sub>2</sub> を用いた高い電流-スピン流変換効率が実証された。本結果より、5d 電子のみで支配されるイリジウム酸化物の特異な電子構造がスピン流生成に重要な役割を担うことが示され、スピントロニクス材料としての 5d 電子系酸化物の重要性が明らかとなった。

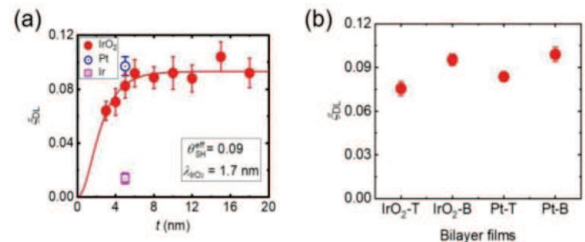


図 2 (a) DL スピン軌道トルク効率の膜厚依存性及び参照試料 Pt と Ir 試料。赤線はスピンホール効果を考慮した理論結果。(b) DL スピン軌道トルク効率の積層順序効果。

5d 電子系イリジウム酸化物を含んだ界面の理解を深めるために、二層膜構造の積層順序に着目し  $\xi_{DL}$  を調査した。磁性層と非磁性層の厚さを固定した二層膜、Py (3)/IrO<sub>2</sub> (10) と IrO<sub>2</sub> (10)/Py (3) 及び参照試料 Py (3)/Pt (6) と Pt (6)/Py (3) を作製した。ここで、非磁性層が磁性層の上に成膜される構造を IrO<sub>2</sub> (Pt)-T、磁性層の下に成膜される構造を IrO<sub>2</sub> (Pt)-B と定義する。これらの積層順序を制御した試料に対して  $R_H^{2\omega}$  測定からスピン軌道トルク効率を評価した結果を図 2(b) に示す。DL スピン軌道トルク効率については、IrO<sub>2</sub> と Pt の高い電流-スピン流変換に起因して、全ての試料において明瞭な信号が観測された。積層順序に着目すると、IrO<sub>2</sub> (Pt)-B と比べて IrO<sub>2</sub> (Pt)-T の DL-スピン軌道トルク効率が 20% 減少することが明らかとなった。磁



性層と非磁性層の界面で生じる intermixing 効果 [8] が界面スピン透過率の低下の要因であると考えられており [5]、我々の結果は  $\text{IrO}_2$  と Pt の双方で非磁性層を下 (B) にした方が intermixing を抑制できることを示唆している。以上の結果より、5d 電子系イリジウム酸化物を含んだ二層膜の積層順序を変えることで、DL スピン軌道トルク効率の大きさが制御できることを実証した。

### ペロブスカイト型酸化物 $\text{SrIrO}_3$ におけるスピン軌道トルク生成 [3]

ペロブスカイト型構造を持つ 5d イリジウム酸化物は、これまで半金属-絶縁体転移 [9] やそのトポロジカル電子構造 [10] などの基礎物理の観点から研究されてきた。ここでは  $\text{SrIrO}_3$  (以下、SIO) が、強いスピン軌道相互作用に起因する非磁性半金属であることに着目し、エピタキシャル薄膜の合成とそれに続く強磁性体との二層膜構造作製によりデバイスへの展開を図った。パルスレーザー堆積法により、基板温度  $630^\circ\text{C}$ 、酸素分圧 190 mTorr の条件で、(110) に配向した直方晶の  $\text{DyScO}_3$  (DSO)<sub>0</sub> 基板上に SIO 薄膜を成膜した。図 3(a) は DSO 基板の (220) 回折ピーク付近の拡大図を示し、基板と薄膜のみのピークが観測されていることから、異相を含まない SIO のエピタキシャル成長が確認された。基板の左側に疑似立方晶の  $\text{SIO}(002)_c$  薄膜の回折ピークが観測されている。その周りに明瞭なフリンジが観測され、膜厚は 21 nm と評価された。図 3(b) は、逆格子空間マッピングを示し、薄膜と基板の面内格子定数が揃うコヒーレント成長が確認された。これらの結果は、デバイス化とスピン流測定に最適な高い結晶性を持つ SIO 薄膜が得られたことを示している。

SIO 薄膜上にスパッタ法により強磁性層  $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$  合金 (以下、CoFeB) を成膜し、二層膜 CoFeB (2–6 nm)/SIO (21 nm) を作製した。二層膜デバイスにおいて、 $R_H^{2\omega}$  を測定することで、DL トルクと FL トルクに対応する有効磁場を独立して評価した。図 3(c) は DL トルク効率の CoFeB 膜厚依存性を示している。膜厚依存性が観測されないことから、得られた信号における CoFeB の寄与は無視できるほど小さく、SIO 由来のスピン軌道トルク生成が実現していることが確認された。SIO

の DL トルク効率は、+0.32 に達し、実績のある参照試料 Pt の  $\sim 0.093$  と比べて約 3 倍の大きさである。本研究により、5d ペロブスカイト型 SIO が高い効率をもち、スピン軌道トルクを用いた磁化反転デバイスに活用できる新たなスピントロニクス材料であることが明らかになった。

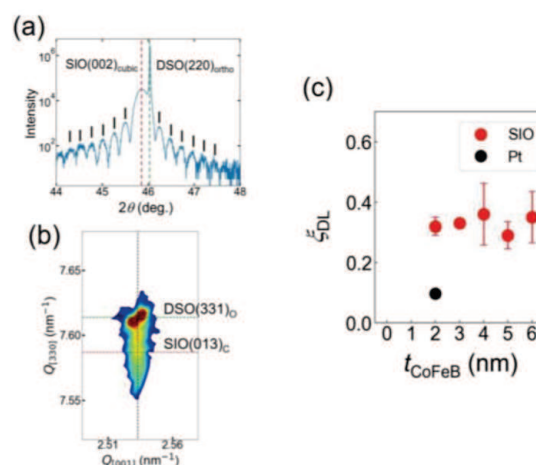


図 3 (a)  $\text{DyScO}_3$  (110)<sub>0</sub> 基板上に成膜したエピタキシャル  $\text{SrIrO}_3$  (001)<sub>c</sub> 薄膜の  $2\theta$ - $\theta$  回折結果. (b) 逆格子空間マッピング. (c) DL スピン軌道トルク生成効率の磁性層厚さ依存性.

### おわりに

本稿では、強いスピン軌道相互作用を有する 5d 遷移金属酸化物に着目し、スピントロニクス機能の一つであるスピン軌道トルク生成について述べた。既存物質と比べて、非晶質  $\text{IrO}_2$  は同程度、ペロブスカイト型  $\text{SrIrO}_3$  は、同程度以上の生成効率を有する材料である。今後は 5d 遷移金属酸化物を非磁性体材料として組み込んだデバイスの開発が加速される。一つの有望な方向性として、エピタキシャル成長しやすい酸化物の利点を活かして、同じ結晶構造を持つ非磁性体と強磁性体を用いたエピタキシャル界面を形成することが挙げられる。そこではスピン軌道トルクの更なる高効率化と省エネルギー磁化反転の実現が見込まれる。また、酸化物薄膜では、電子構造やフェルミ準位の制御が一般的な金属薄膜より容易であることから、スピン軌道トルクの効率や符号を電界で操作することが期待できる。このような将来展望が見込める 5d 遷移金属酸化物は、酸化物スピントロニクス研究の基盤構築に重要な役割を担う。



参考文献

- [1] K. Ueda, N. Moriuchi, K. Fukushima, T. Kida, M. Hagiwara, and J. Matsuno, *Phys. Rev. B* **102**, 134432 (2020).
- [2] K. Ueda, N. Moriuchi, K. Fukushima, T. Kida, M. Hagiwara, and J. Matsuno, *Phys. Rev. Appl.* **16**, 034039 (2021).
- [3] S. Hori, K. Ueda, T. Kida, M. Hagiwara, and J. Matsuno, *Appl. Phys. Lett.* **121**, 022402 (2022).
- [4] I. M. Miron, K. Garello, G. Gaudin, P.-J. Zermatten, M. V. Costache, S. Auffret, S. Bandiera, B. Rodmacq, A. Schuhl, and P. Gambardella, *Nature* **476**, 189 (2011).
- [5] C. F. Pai, Y. X. Ou, L. H. Vilela-Leao, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, *Phys. Rev. B* **92**, 064426 (2015).
- [6] J. Kim, J. Sinha, M. Hayashi, M. Yamanouchi, S. Fukami, T. Suzuki, S. Mitani, and H. Ohno, *Nat. Mater.* **12**, 240 (2013).
- [7] C. O. Avci, K. Garello, M. Gabureac, A. Ghosh, A. Fuhrer, S. F. Alvarado, and P. Gambardella, *Phys. Rev. B* **90**, 224427 (2014).
- [8] I. K. Schuller, S. Kim, and C. Leighton, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 571 (1999).
- [9] J. Matsuno, K. Ihara, S. Yamamura, H. Wadati, K. Ishii, V. V. Shankar, H.-Y. Kee, and H. Takagi, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 247209 (2015).
- [10] Y. F. Nie, P. D. C. King, C. H. Kim, M. Uchida, H. I. Wei, B. D. Faeth, J. P. Ruf, J. P. C. Ruff, L. Xie, X. Pan, C. J. Fennie, D. G. Schlom, and K. M. Shen, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 016401 (2015).

