

界面やバルクにおける電氣的スピンの変換技術

福間 康裕*

1. はじめに

電氣的スピン変換技術とは試料へと電場を印加した際にスピン流を誘起する現象である⁽¹⁾。例えば、強磁性体中の電子はスピン分極しており、電場を印加することでスピン分極した電流(スピン流+電流)が生成される。このスピン分極した電流から自由磁化層の磁化へとトルクを作用させることで磁化反転を行い、スピン移行トルク磁気ランダムアクセスメモリ(STT-MRAM)にて情報記録が行われている⁽²⁾。図1にMRAMにおける情報書き込み技術の概略図を示す。図1(a)のトグル方式では、ビット線およびワード線に流れる電流から生成される磁場を利用する。この磁場は空間的に広がっていることから、メモリセルの選択性が悪く大容量化が困難である。スピン移行トルクの利用によりこの課題を克服し、MRAMの大容量化が進められている。一方、MRAMの情報読み出し動作にはトンネル磁気抵抗効果が利用されている。二つの強磁性体における磁化の相対角度(平行 or 反平行)に依存した抵抗変化がデジタル情報(0 or 1)に対応す

る。スピン移行トルク磁化反転では極薄トンネル障壁層に大きな電流密度($\sim 10^{11}$ A/m²)を流すことからメモリの耐久性・信頼性に課題がある⁽²⁾。そこで次世代MRAMの情報書き込み技術として、スピン軌道トルク(SOT)方式が大きな注目を集めている⁽³⁾⁽⁴⁾。

スピン軌道トルクとは、スピンホール効果やラッシュバ・エデルシュタイン効果により電場印加方向に対して垂直方向にスピン流が生成され、隣接した磁性層の磁化へと作用する力である。図1(c)に示すようにスピン変換電極に電流を印加することで自由磁化層へとスピン流を注入し、磁化反転を引き起こすことができる⁽⁵⁾。このSOT-MRAMはキャッシュメモリへの応用(SRAMの代替)が期待されている。更に、スピン軌道トルクは電極上に配置された多数の強磁性体を一斉に励起することが可能になる。このような磁性体ネットワークを利用した脳型コンピューティング技術も精力的に研究開発が進められている⁽⁶⁾⁻⁽⁹⁾。この研究分野はスピンオービトロニクスと呼ばれ、低消費電力動作の情報ハードウェアを創製する新しい技術として大きな注目を集めている。本稿では、電氣的スピン変換技術として効率的にスピン軌道トルク

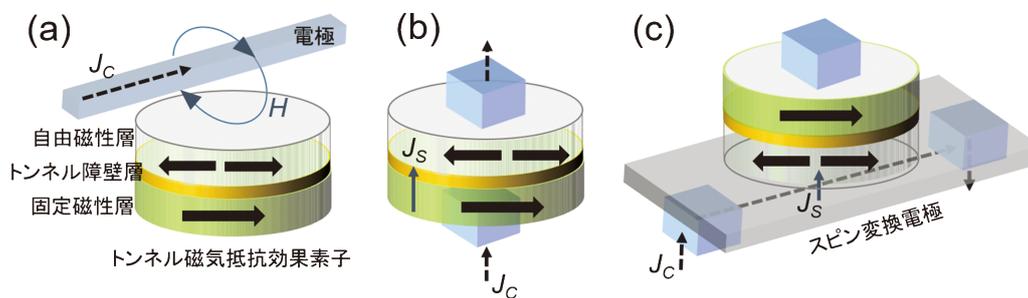


図1 MRAMにおける書き込み動作技術の概略図。(a)トグル方式では自由磁性層に隣接したビット線やワード線に流れる電流から生成される磁場からのトルク、(b)STT方式では固定磁性層からのスピントルク、(c)SOT方式ではスピン変換電極からのスピン軌道トルクを磁化反転に利用する。ここで、 J_C は電流、 J_S はスピン流、磁性層内の黒矢印は磁化を表す。(オンラインカラー)

* 九州工業大学大学院情報工学研究院；教授(〒820-8502 飯塚市川津680-4)

Charge-to-spin Conversion in Bulk and Interfaces; Yasuhiro Fukuma (Department of Physics and Information Technology, Faculty of Computer Science and Systems Engineering, Kyushu Institute of Technology, Iizuka)

Keywords: spin Hall effect, Rashba-Edelstein effect, spin current, spin-orbit torque, ferromagnetic resonance, magnetic random access memory, ion implantation, quasi-2D electron gas

2024年4月1日受理[doi:10.2320/materia.63.540]

を生成する材料系について、我々の研究結果を中心に紹介する。

ホール効果は試料へと印加する電場に対して横方向に電流が生じるのに対して、スピホール効果は電場に対して横方向にスピ流が生じる現象である⁽¹⁰⁾。このスピ変換特性の指標としてスピホール伝導度がよく利用されている。スピホール効果の実験研究は、初めに半導体であるGaAsの低温光学実験で観測された⁽¹¹⁾⁽¹²⁾。次に、5d遷移金属であるPtのスピホール伝導度がGaAsの10000倍にも達し、室温で明確な電気的信号の観測に成功した⁽¹³⁾⁽¹⁴⁾。その後、非熱平衡相である β -Ta⁽⁵⁾や β -W⁽¹⁵⁾、合金PdPt⁽¹⁶⁾等により大きなスピホール伝導度が報告され⁽¹⁷⁾、スピオービトロニクス素子の実現が期待されている。

スピホール効果の主因は物質のスピ軌道相互作用にあり、その起源が結晶場によるものが内因性機構、不純物によるものが外因性機構に大別される⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾。また、空間反転対称性の破れに起因した反対称スピ軌道相互作用も知られており、この界面にて生じるラシュバ型スピ軌道相互作用を通じたエデルシュタイン効果によってもスピ流を生成できる⁽²⁰⁾。これら現象は、内因性スピホール効果、外因性スピホール効果、ラシュバ・エデルシュタイン効果とそれぞれ呼ばれている。変換効率を議論する際、電場の印加により生成される縦方向電流(J_c)に対する横方向スピ流(J_s)の比をスピホール角($\theta_{CS} = J_s/J_c$)、ラシュバ・エデルシュタイン効果では界面における電気伝導層厚(t)を正確に見積もることが困難であるために $\theta_{CS}/t(\text{nm}^{-1})$ が評価の指標となる。

2. 不純物をイオン注入した白金薄膜のスピホール効果

金属材料において、白金は比較的大きなスピ軌道相互作用をもつがそのスピホール角は0.07(効率として7%)程度である。デバイス応用に向けてはスピ変換特性の飛躍的な向上が必要といえる。内因性機構に関して、4dおよび5d遷移金属は理論と実験の両面から明らかにされており、更なる特性の向上は困難である⁽²¹⁾⁽²²⁾。外因性機構に関して、不純物のスピ軌道相互作用が重要なことから銅やアルミニウム等の薄膜にイリジウムやビスマス等の原子番号の大きな不純物が添加されている⁽²³⁾⁻⁽²⁵⁾。最近の実験によれば、アルミニウム薄膜中にオスミウム不純物を添加した物質にて1近くのスピホール角が報告されている⁽²⁵⁾。一方、スピ軌道相互作用の大きなホスト物質にスピ軌道相互作用の小さな不純物を添加した場合、内因性機構は小さくなることが予想されるが外因性機構はどう変化するのかは明らかでない。本稿では、白金薄膜に軽元素である硫黄、酸素、窒素を不純物として添加した試料のスピホール効果について調べた結果を報告する⁽²⁶⁾⁻⁽²⁸⁾。

熱酸化膜付きシリコンウェハ上にて、超高真空スパッタ装置を利用して、アルゴンガス圧1 Pa, DCパワー50 Wにて10 nm厚の白金薄膜を作製した。薄膜中への不純物添加方法

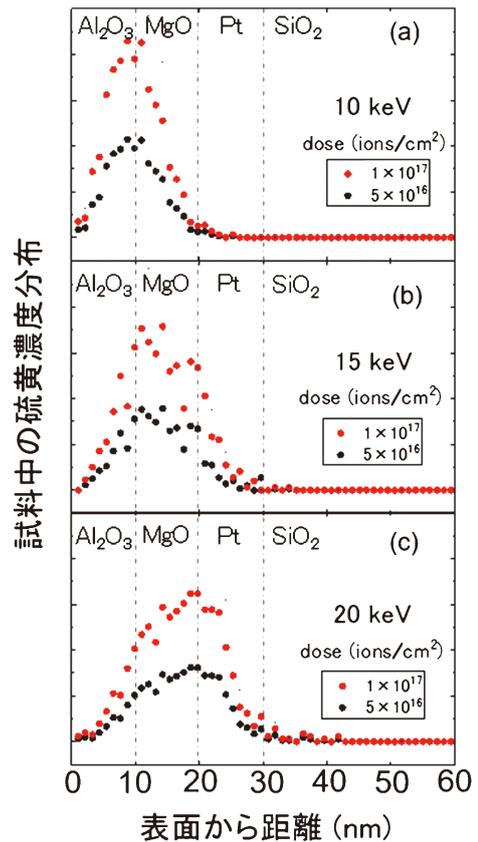


図2 TRIMシミュレーションにより計算した試料($\text{Al}_2\text{O}_3/\text{MgO}/\text{Pt}/\text{SiO}_2$)内の硫黄分布。加速電圧を増加させることで試料内部へと硫黄(S)イオンを注入することができる。(オンラインカラー)

としてイオン注入装置を利用した。イオン注入時、高エネルギー粒子から白金薄膜へのダメージを防ぐために酸化マグネシウム(10 nm)/酸化アルミニウム(10 nm)の保護層を作製した。酸化マグネシウムを利用した理由は、イオンミリングにより保護層を取り除く際、二次イオン質量分析計にて高感度に検出できるためである。酸化アルミニウムは酸化マグネシウムの潮解を防ぐために利用した。図2に、TRIM(Transportation of ion in material)シミュレーション⁽²⁹⁾により計算した試料内のSイオンの分布を示す。イオン注入による不純物添加は、加速電圧により試料内の不純物分布、ドーズ量により不純物添加量を制御することができる。図2(a)に示す10 keVの加速電圧を用いたイオン注入では、硫黄は主に保護層内に添加される。一方、図2(c)に示す20 keVの加速電圧を用いたイオン注入では基板のシリコン熱酸化膜中にも硫黄が添加される。本実験では、できるだけ白金薄膜へのダメージを低減することを目的に低加速電圧12 keVを用いてイオン注入を行った。

透過型電子顕微鏡により測定した薄膜断面像を図3に示す。図3(a)は硫黄イオン注入前(Pt)の明視野像、図3(b)は硫黄イオン注入後(Pt(S))の明視野像を示す。原子番号の大きな白金は暗く映っており、その層厚は設計通り10 nmであることが分かる。白金層中央部の高分解能像および電子線

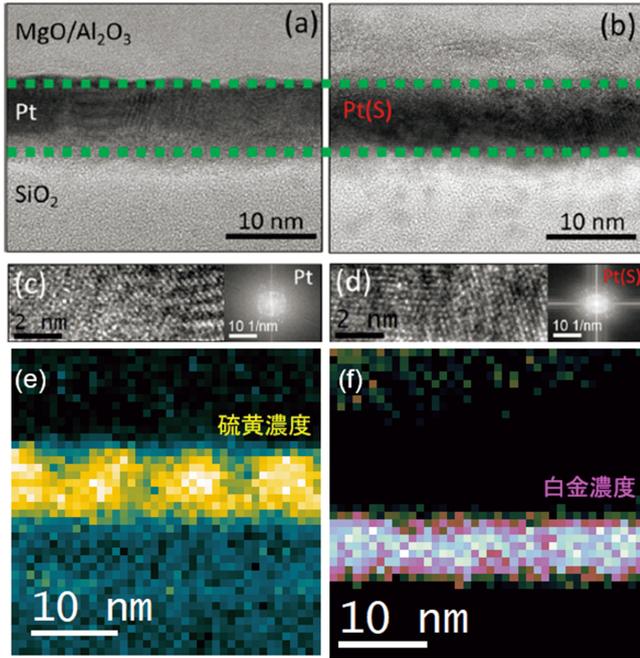


図3 透過型電子顕微鏡により観測した試料断面像。(a)および(b)硫黄イオン注入前後の明視野像，(c)および(d)硫黄イオン注入前後の白金層中央部の高分解能像と電子線回折像，(e)および(f)電子エネルギー損失分光法による測定した硫黄分布と白金分布を示す。(オンラインカラー)

回折像を図3(c)および図3(d)にそれぞれ示す。白金層は面心立方格子をもつ多結晶体であり、イオン注入によりスエリングやアモルファス化は観測されなかった。図3(e)に電子エネルギー損失分光法(Electron Energy Loss Spectroscopy: EELS)により試料内の硫黄元素(L_{2,3}-edge)分布を調べた結果を示す。図3(f)の白金元素(O_{2,3}-edge)の分布と比較して硫黄は主に保護層(MgO/Al₂O₃)内に添加されており、図2のTRIMシミュレーションとよい一致を示している。白金層内に硫黄は比較的均一に拡散しており、全体を積分して求めた不純物濃度は10%程度であった。

次に、スピンホール効果の評価方法について説明する。スピン流を直接観測することはできないために、磁性体の磁化へと作用するトルクの大きさからスピン流量を見積る⁽³⁰⁾。磁化ダイナミクスが従う現象論的な式として以下に示すLandau-Lifshitz-Gilbert方程式が知られている⁽³¹⁾。

$$\frac{dm}{dt} = -\gamma m \times H_{\text{eff}} + \alpha \left(m \times \frac{dm}{dt} \right) + \tau_{\text{DL}} (m \times (\sigma \times m)) + \tau_{\text{FL}} (m \times \sigma) \quad (1)$$

右辺第一項目が歳差項、第二項目が制動項である。有効磁場 H_{eff} は磁化 m へと作用する磁場であり、外部から印加された磁場、磁性体内の反磁場および異方性磁場を全て含んでいる。 γ はジャイロ磁気定数と呼ばれる物質定数である。制動項は磁化の平衡状態(m と H_{eff} が同じ方向)へと戻るとるトルクを表している。ダンピング定数 α がゼロの場合、磁化は磁場の周りを回り続けることができる。一般的な軟磁性体であ

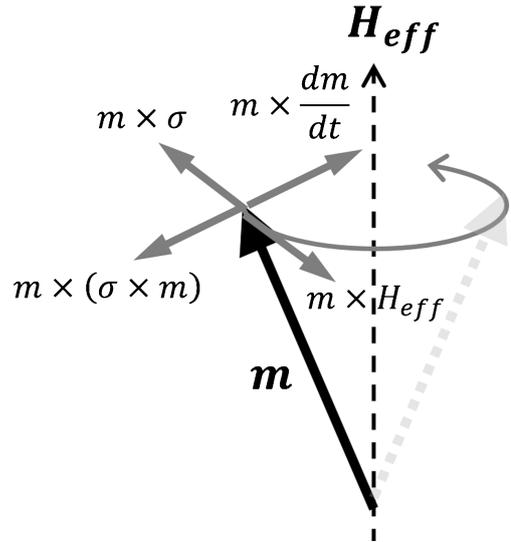


図4 励起(強磁性共鳴)状態の磁化へと作用するトルク。 m は磁化、 H_{eff} は磁化へと作用する磁場、 σ はスピン流のスピン分極方向を表す。

るパーマロイNi₇₈Fe₂₂では $\alpha \sim 0.01$ 程度の小さな値である。スピン流が磁性体へと流れ込むと磁化へとスピン移行トルクが作用する。スピンホール効果により生じるスピン流からのトルクをスピン軌道トルクと呼んでいるが、両トルクとも式(1)の第三項目および第四項目で表すことができる⁽³²⁾⁽³³⁾。磁化へと作用するこれらトルクの様子を図4に示す。 σ はスピン流の分極方向である。スピンホール効果において、 J_S 、 J_C 、 σ は互いに直交する。このために、積層膜(スピン変換電極/磁性層)構造では J_S の向きは固定されており、 J_C の印加方向により σ の向きを制御する。このために磁化へと作用するスピン軌道トルクの向きは電流により制御できる。式(1)の第三項目は制動項と同じ軸に作用し、ダンピングライク項と呼ばれている。式(1)の第四項目は歳差項と同じ軸に作用し、フィールドライク項と呼ばれている。これらの物理的起源は、磁性体との接合界面を通じてスピン流あるいはスピン蓄積のどちらが磁化へと作用するのかに依存する。一般的な金属接合ではスピン流が磁性体層へと流れ込むためにフィールドライク項は小さく、ダンピングライク項が支配的となる。このダンピングライク項やフィールドライク項を検出するためには、磁化の励起状態である強磁性共鳴を利用してスピン流による共鳴スペクトルの変化をみればよい。この手法はスピントルク強磁性共鳴法と呼ばれている⁽³⁴⁾。

図5にスピントルク強磁性共鳴測定方法および試料の概略を示す。信号発生器により振幅変調したマイクロ波を試料へと印加する。ここではマイクロ波の周波数を固定し、外部から印加する磁場 H_{ext} を掃引して測定を行っている。マイクロ波の周波数と共鳴磁場が一致したときに強磁性共鳴現象が励起され、磁化の歳差運動に起因した異方性磁気抵抗効果の変化により図5(c)に示すような電圧変化を検出することができる⁽³⁵⁾。本研究で利用したNi₇₈Fe₂₂の共鳴周波数はマイクロ波帯域であるために、図5(a)の写真に示すようなコブ

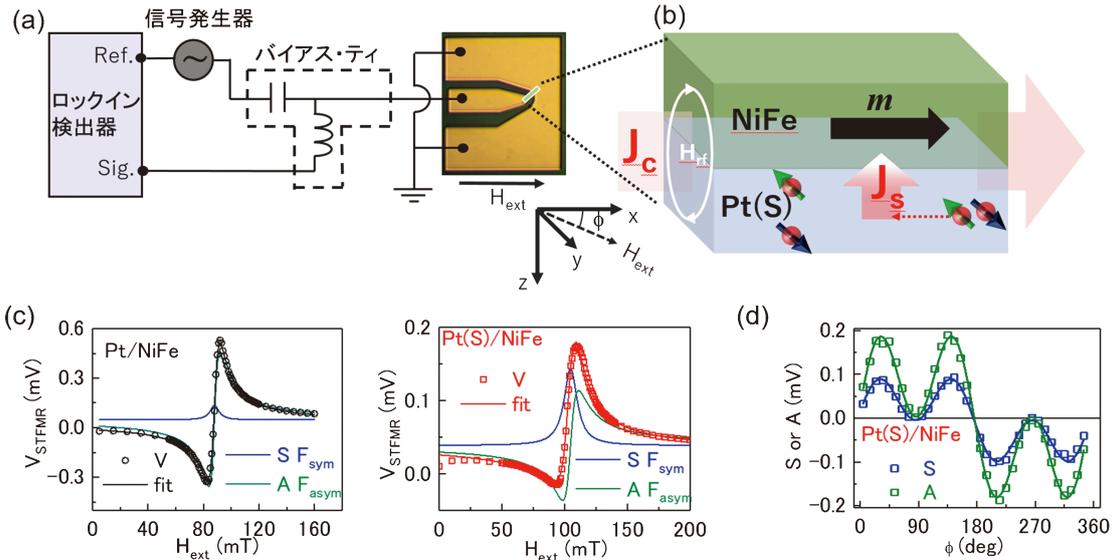


図5 (a) スピンホール効果やスピン軌道トルクを評価する方法の概略図および作製した試料の光学顕微鏡像, (b) 試料中における電流 J_c , スピン流 J_s , スピン分極 σ , エルステッド磁場 H_{eff} , 磁化 m の模式図, (c) 硫黄イオン注入前後のスピントルク強磁性共鳴スペクトル (9 GHz, 15 dBm), (d) 硫黄イオン注入後の試料における共鳴スペクトル強度の対称成分 S および非対称成分 A (9 GHz, 15 dBm) を示す. (c) において, 丸点は実験値, 実線は式(2)とのフィッティング結果. (c) から S および A を決定し, 磁場の印加角度を変えながら測定を行うことで(d)の結果を得た. (オンラインカラー)

レーナ線路を利用してマイクロメートルサイズの試料 ($60 \times 5 \mu\text{m}^2$) を測定に利用した. 試料作製は, イオン注入後に保護層 ($\text{MgO}/\text{Al}_2\text{O}_3$) をイオンミリングにより除去し, 超高真空スパッタ装置を利用して 5 nm 厚の磁性層 $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ を堆積し, リソグラフィ技術を用いて微細加工を行った. 図5 (b) に示すように, 試料へと電流を印加したとき, Pt あるいは Pt(S) へと流れる電流からアンペールの法則によりエルステッド磁場 (H_{eff}) が生じる. 加えて, スピンホール効果によりスピン流 (J_s) が生じる. この磁場およびスピン流から磁化へと作用するトルクは図4に示すように向きが異なり, この違いを共鳴スペクトル形状の変化として検出できる. 図5 (c) に Pt/ $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ および Pt(S)/ $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ のスピントルク強磁性共鳴測定結果を示す. ここでは周波数 9 GHz およびパワー 15 dBm のマイクロ波を試料へと印加した. 共鳴磁場近傍で電圧信号 V_{STFMFMR} の大きな変化がみられる. この V_{STFMFMR} は以下の式で表すことができる.

$$\begin{aligned} V_{\text{STFMFMR}} &= SF_{\text{sym}}(H_{\text{ext}}) + AF_{\text{asym}}(H_{\text{ext}}) \\ &= S \left(\frac{(\Delta H)^2}{(H_{\text{ext}} - H_0)^2 + (\Delta H)^2} \right) \\ &\quad + A \left(\frac{\Delta H(H_{\text{ext}} - H_0)}{(H_{\text{ext}} - H_0)^2 + (\Delta H)^2} \right) \end{aligned} \quad (2)$$

ここで, ΔH は共鳴スペクトルの半値半幅, H_0 は共鳴磁場, S および A は共鳴スペクトルの対称性成分および反対称成分の重みである. 対称性成分がスピントルク, 反対称性成分が磁場トルクに起因している. 図5(c)に示すように, Pt/ $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ と Pt(S)/ $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ の共鳴スペクトルを比較すると, イオン注入により対称性成分が増えている. つまり, スピントルクが磁場トルクよりも相対的に増え, スピン変換効率が向上していることが分かる. この成分比から以下の式に

よりスピンホール角を求めることができる.

$$\theta_{\text{CS}}^{\text{LS}} = \frac{S}{A} \frac{e\mu_0 M_s d_{\text{NiFe}} d_{\text{Pt}}}{\hbar} \sqrt{1 + \frac{M_{\text{eff}}}{H_0}} \quad (3)$$

ここで, M_s は自発磁化, d_{NiFe} は磁性体の膜厚, d_{Pt} はスピンホール材料の膜厚, $M_{\text{eff}} = M_s - H_p$ は磁性体内の有効磁場, H_p は異方性磁場である. 室温において, Pt の $\theta_{\text{CS}}^{\text{LS}}$ は 0.09, Pt(S) の $\theta_{\text{CS}}^{\text{LS}}$ は 0.28 であった. イオン注入によりスピンホール角は 3 倍程度も向上した. また, 磁場 (H_{ext}) の印加角度を変えながら測定した結果を図5(d)に示す. 図5(a)および(b)に示す測定系において S および A は以下の式で表すことができる⁽³⁶⁾.

$$S = S_{\text{DL}}^x \sin(2\phi) \sin(\phi) + S_{\text{DL}}^y \sin(2\phi) \cos(\phi) + S_{\text{FL}}^z \sin(2\phi) \quad (4)$$

$$A = A_{\text{FL}}^x \sin(2\phi) \sin(\phi) + A_{\text{FL}}^y \sin(2\phi) \cos(\phi) + A_{\text{DL}}^z \sin(2\phi) \quad (5)$$

ここで, S_{DL}^x , S_{DL}^y , A_{DL}^z はダンピングライク項の各方向成分 (x, y, z), A_{FL}^x , A_{FL}^y , S_{FL}^z はフィールドライク項の各方向成分 (x, y, z) である. この測定を行うことで σ の向きを同定することができる. 図5(d)では, 対称成分 S および反対称成分 A とともに $\sin(2\phi)\cos(\phi)$ 成分が支配的となっている. 上述したように, Pt(S) を流れる電流から生成されるスピン流のスピン分極は y 方向であり, 予想通りの実験結果である. また, 金属接合ではスピン流からのフィールドライク項は非常に小さく, ここでは H_{eff} からの寄与が反対称成分の信号として検出されている.

図4に示すように, スピン流からのフィールドライク項は歳差項と同じ方向に, ダンピングライク項は制動項と同じ方向に作用する. このため, 強磁性共鳴状態において直流電流を印加することでダンピングライク項を制御し, 共鳴スペ

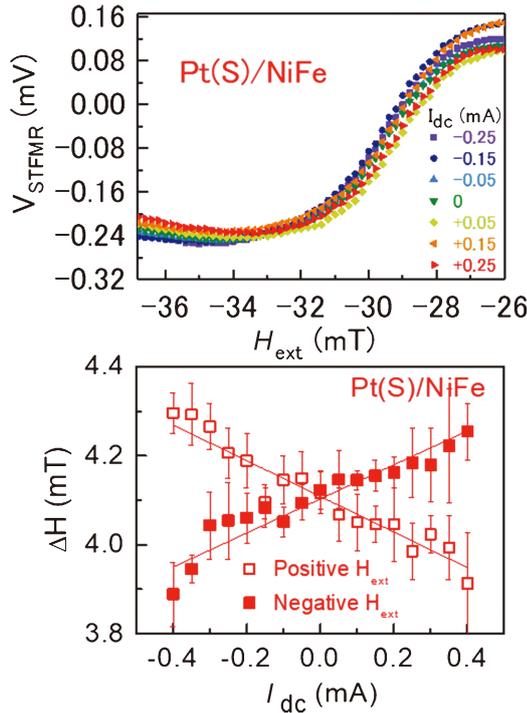


図6 (a) 硫黄イオン注入後の試料に5 GHzのマイクロ波を印加することで強磁性共鳴を励起し、直流電流を印加しながらスピントルク強磁性共鳴スペクトルを測定した結果、(b) 共鳴スペクトル線幅の印加直流電流依存性を示す。(オンラインカラー)

クトル線幅の変化が期待される。直流電流 I_{dc} を変化させながら共鳴スペクトルを測定した結果を図6(a)に示す。スペクトル線幅は変化しているが、共鳴磁場の明確な変化はみられない。このために、Pt(S)/Ni₇₈Fe₂₂においてスピン流からのフィールドライク項は無視できる。スペクトル線幅の変化から以下の式によりスピンホール角を求めることができる。

$$\theta_{CS}^{LW} = \frac{2e}{\hbar} \left(H_0 + \frac{M_{eff}}{2} \right) \mu_0 M_s d_{NiFe} \left| \frac{\Delta H}{J_C} \right| \quad (6)$$

図6の実験結果と式(6)のフィッティングにより得られたスピンホール角は0.35であり、スペクトル解析結果と比較的良好一致を示した。

Pt(S)と同様に、イオン注入を利用して酸素や窒素を添加した白金薄膜(Pt(O), Pt(N))を作製した。表1にスピンホール効果の測定結果を示す。Pt(O)は、酸素添加量と共にスピンホール角が増加する。Pt(N)は、 5.0×10^{16} ions/cm²のドーズ量まではスピンホール角が増加し、 1.0×10^{17} ions/cm²のドーズ量ではスピンホール角が減少した。これらイオン注入による不純物添加白金薄膜のスピンホール効果を理解するために、内因性機構と外因性機構の解析を行った。スピンホール効果と異常ホール効果は密接な物理現象である。外因性機構にはスキュー散乱やサイドジャンプというスピンの依存した不純物散乱がある⁽³⁷⁾⁻⁽³⁹⁾。スキュー散乱は不純物の強いスピン軌道相互作用によりスピンの運動量が変化する非弾性散乱である。一方、サイドジャンプは電子の進行方向

表1 イオン注入により不純物添加した白金薄膜のスピンホール効果。 θ_{CS}^{LS} は式(3)で求めたスピンホール角、 θ_{CS}^{LW} は式(6)で求めたスピンホール角、 σ_{SH}^{int} は内因性スピンホール伝導度、 θ_{SH}^{sj} はサイドジャンプにより生じるスピンホール角を示す。

Sample	θ_{CS}^{LS}	θ_{CS}^{LW}	$\sigma_{SH}^{int}(\Omega^{-1}m^{-1})$	θ_{SH}^{sj}
Pt	0.06	0.07	130300	0.07
Pt(S) 5×10^{16}	0.28	0.35	18200	0.46
Pt(O) 2×10^{16}	0.08	0.07	42100	0.01
Pt(O) 5×10^{16}	0.11	0.11	40000	0.12
Pt(O) 1×10^{17}	0.23	0.23	37600	0.21
Pt(N) 2×10^{16}	0.10	0.10	128400	0.25
Pt(N) 5×10^{16}	0.13	0.14	114600	0.32
Pt(N) 1×10^{17}	0.09	0.11	42300	0.26

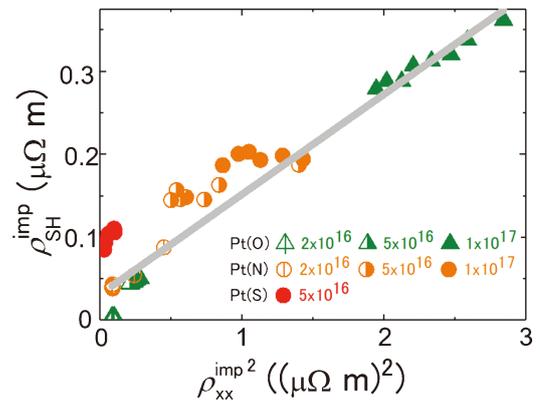


図7 不純物添加した白金薄膜の不純物によるスピンホール抵抗率 ρ_{SH}^{imp} と不純物による抵抗率 ρ_{xx}^{imp} の関係。実験結果は概ね $\rho_{SH}^{imp} \propto (\rho_{xx}^{imp})^2$ の直線上分布しており、サイドジャンプが支配的といえる。(オンラインカラー)

に対して横向きにスピンが不連続に跳躍する。この際、電子の全運動量は保存され跳躍の向きがスピンの向きに依存する。スキュー散乱で生じるスピンホール抵抗率 ρ_{SH}^{imp} は不純物による抵抗率 ρ_{xx}^{imp} に比例する。また、サイドジャンプで生じるスピンホール抵抗率 ρ_{SH}^{imp} は不純物による抵抗率 ρ_{xx}^{imp} の2乗に比例する。図7に不純物添加した白金薄膜の不純物によるスピンホール抵抗率 $\rho_{SH}^{imp} = \rho_{SH}^{Pt(S), Pt(O), Pt(N)} - \rho_{SH}^{Pt}$ と不純物による抵抗率 $\rho_{xx}^{imp} = \rho_{xx}^{Pt(S), Pt(O), Pt(N)} - \rho_{xx}^{Pt}$ の関係を示す。ここではそれぞれの試料について、温度を変えながら測定(100–300 K)した結果を示している。実験結果は概ね $\rho_{SH}^{imp} \propto (\rho_{xx}^{imp})^2$ を示しており、サイドジャンプが支配的と考えられる。これら不純物を添加した白金薄膜のスピンホール効果は内因性機構とサイドジャンプ機構により生じており、スピンホール伝導度は以下の式で表すことができる。

$$\sigma_{SH} = \sigma_{SH}^{int} + \sigma_{SH}^{side} \propto \sigma_{SH}^{int} + \theta_{SH}^{sj} \rho_{xx}^0 (\sigma_{xx})^2 \quad (7)$$

ここで、 σ_{SH}^{int} は内因性スピンホール伝導度、 σ_{SH}^{side} はサイドジ

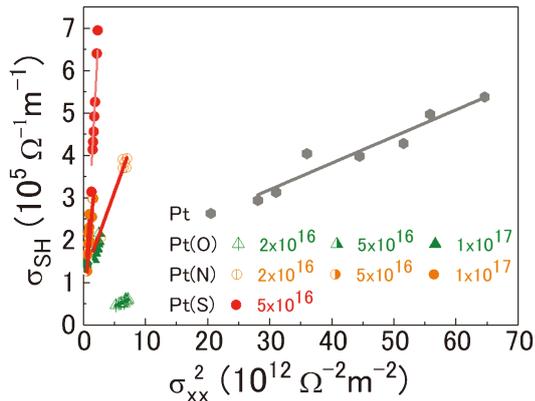


図8 不純物添加した白金薄膜のスピホール伝導度 σ_{SH} と電気伝導度 σ_{xx} の関係。(オンラインカラー)

ジャンプにより生じるスピホール伝導度、 θ_{SH}^S はサイドジャンプにより生じるスピホール角、 ρ_{xx}^0 は不純物による残留抵抗率である。図8において、傾きがサイドジャンプの強さ、 y 切片($\sigma_{xx}=0$)が内因性スピホール伝導度を示す。表1に各試料の内因性スピホール伝導度およびサイドジャンプ散乱により生じるスピホール角を示す。白金の理論計算値は $\sigma_{SH}^{int} = 1300 (\hbar/2e) (\Omega^{-1} \text{cm}^{-1})$ であり⁽²¹⁾、実験値とよい一致を示している。また、スピホール角(θ_{CS}^{LS} や θ_{CS}^{LW})の大きさとサイドジャンプ散乱により生じるスピホール角(θ_{SH}^S)の大きさは相関がみられる。不純物添加により内因性機構によるスピホール効果は減少するが、サイドジャンプ機構によるスピホール効果が増加することが分かった。スピ軌道相互作用の小さな不純物においてもホスト材料のスピ軌道相互作用が強ければスピ依存散乱が引き起こされ、スピホール効果が向上しているものと考えられる。

3. SrTiO₃/AlN や SrTiO₃/Al₂O₃ 界面におけるラシュバ・エデルシュタイン効果

空間反転対称性のある物質ではスピ軌道相互作用はスピ軌道結合(LS結合)がよい指標となる⁽⁴⁰⁾。一方、空間反転対称性が破れた系ではLS結合とは異なるスピ軌道相互作用が生じ、反対称性スピ軌道相互作用と呼ばれている⁽⁴¹⁾。その代表例がラシュバ型であり、薄膜成長方向の鏡映対称性が破れた界面等にて生じる。このようなスピ軌道相互作用を利用した電氣的スピ変換としてラシュバ・エデルシュタイン効果により電流からスピ流が生じることがSrTiO₃/LaAlO₃界面にて報告されている⁽⁴²⁾⁽⁴³⁾。しかしながら、強いLS結合の白金と比較して界面系にてどのくらいのスピ軌道トルクが生じるのかは明らかでない。本稿では、SrTiO₃/AlN/Ni₇₈Fe₂₂、SrTiO₃/Al₂O₃/Ni₇₈Fe₂₂においてラシュバ・エデルシュタイン効果により生じるスピ軌道トルクをPt/Ni₇₈Fe₂₂と比較した結果を報告する⁽⁴⁴⁾。

図9(a)に示すように、チタン酸ストロンチウムSrTiO₃(100)単結晶基板の上にパルスレーザー堆積法にて10 nm厚の

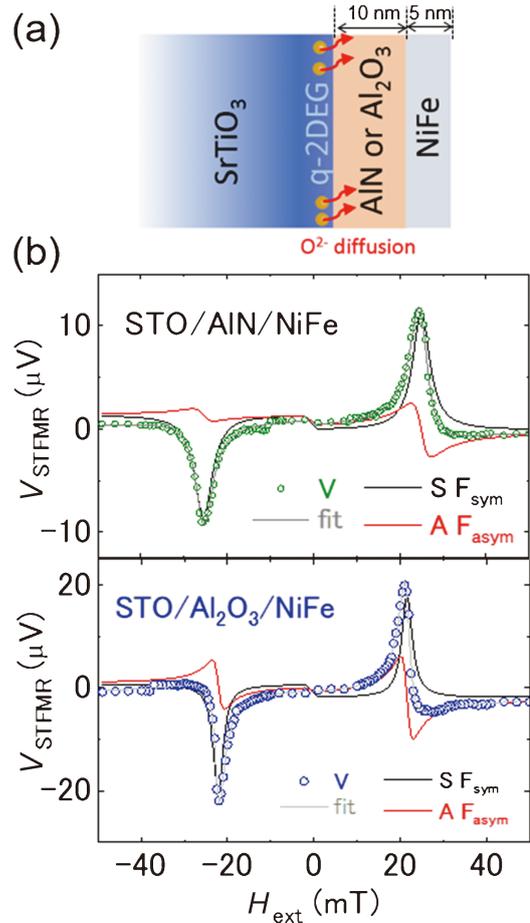


図9 (a) ラシュバ・エデルシュタイン効果を調べるために作製した試料の概略図、(b) SrTiO₃/AlN界面およびSrTiO₃/Al₂O₃界面におけるスピトルク強磁性共鳴測定の結果。(b)において、丸点は実験値、実線は式(2)とのフィッティング結果を示す。(オンラインカラー)

窒化アルミニウムAlNまたは酸化アルミニウムAl₂O₃薄膜を堆積した。AlNおよびAl₂O₃はアモルファス膜であるが、電子陰性度の違いからチタン酸ストロンチウムの表面層に電気伝導層が形成される⁽⁴⁵⁾。SrTiO₃/AlN界面、SrTiO₃/Al₂O₃界面のシート抵抗はそれぞれ90 kΩ(sq)⁻¹、1000 kΩ(sq)⁻¹であった。その後、超高真空スパッタ装置を利用して5 nm厚の磁性層Ni₇₈Fe₂₂を堆積した。スピトルク強磁性共鳴法によりスピ変換特性を評価するために、80×20 μm²のSrTiO₃/AlN/Ni₇₈Fe₂₂(SrTiO₃/Al₂O₃/Ni₇₈Fe₂₂)試料に加工し、図5(a)の写真と同様のコプレーナ線路を作製した。図9(b)に室温でのスピトルク強磁性共鳴測定結果を示す。スピトルクが起因した対称性成分(SF_{sym})がみられ、SF_{asym}は外部磁場の向きにより反転していることから、ラシュバ・エデルシュタイン効果によりスピ流が生成しているものと考えられる。白金の場合と同様に以下の式にて変換効率を議論することができる。

$$\frac{\theta_{CS}^{LS}}{t} = \frac{S}{A} \frac{e\mu_0 M_s d_{NiFe}}{\hbar} \sqrt{1 + \frac{M_{eff}}{H_0}} \quad (8)$$

SrTiO₃/AlN界面におけるスピ変換効率 θ_{CS}^{LS} は0.24 (nm)⁻¹、

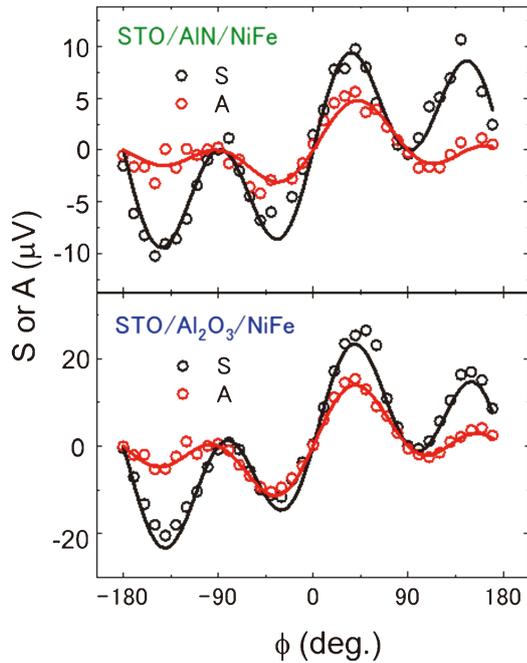


図10 磁場の印加角度を変えながらスピントルク強磁性共鳴測定を行い、式(2)とのフィッティングにより決定した S および A の実験結果を示す。(オンラインカラー)

SrTiO₃/Al₂O₃ 界面におけるスピン変換効率 η は $0.10(\text{nm})^{-1}$ であった。ここで電気伝導層を 10 nm と仮定した場合、SrTiO₃/AlN 界面の $\theta_{\text{CS}}^{\text{S}}$ は 2.4 、SrTiO₃/Al₂O₃ 界面の $\theta_{\text{CS}}^{\text{S}}$ は 1.0 と Pt と比較して非常に大きな値となる。実際の試料における電気伝導層厚は不明であるが、SrTiO₃/LaAlO₃ 界面や SrTiO₃/LaTiO₃ 界面にて報告されている巨大な $\theta_{\text{CS}}^{\text{S}}$ ⁽⁴³⁾⁽⁴⁶⁾⁽⁴⁷⁾ にはこのような理由があることも考慮しておく必要がある。

また、図10にスピントルク強磁性共鳴スペクトルの対称成分および反対称成分の印加磁場角度依存性を示す。スピンホール効果では図5(d)に示すように $\sin(2\phi)\cos(\phi)$ 成分が支配的となるが、空間反転対称性の破れた界面では様々なトルク成分からの寄与がみられる⁽³⁶⁾⁽⁴⁸⁾。SrTiO₃/AlN 界面ではスピントルクにおいて y 方向成分 ($\sin(2\phi)\cos(\phi)$) が 95% であるが、SrTiO₃/Al₂O₃ 界面では 75% に減少している。このような測定手法において、印加するマイクロ波と磁気抵抗の時間変化との位相変化によりスペクトル形状が変化することが知られている⁽⁴⁹⁾。特に、高抵抗試料ではインピーダンス不整合により印加したマイクロ波が試料へと入力されず、周波数によりスペクトル形状が大きく変化する傾向にある。このために、図10でみられる角度依存性が空間反転対称性の破れに起因したトルク成分かどうかを見極めるには更なる精密な計測が必要と考えられる。

一方、図6に示した直流電流印加による共鳴スペクトルの線幅変化を検出する手法はこのような試料のスピン変換特性を評価するのに有効な手段である。図11に、SrTiO₃/AlN 界面、SrTiO₃/Al₂O₃ 界面、Pt の測定結果を示す。SrTiO₃/AlN 界面および Pt では、磁場あるいは直流電流の印加方向

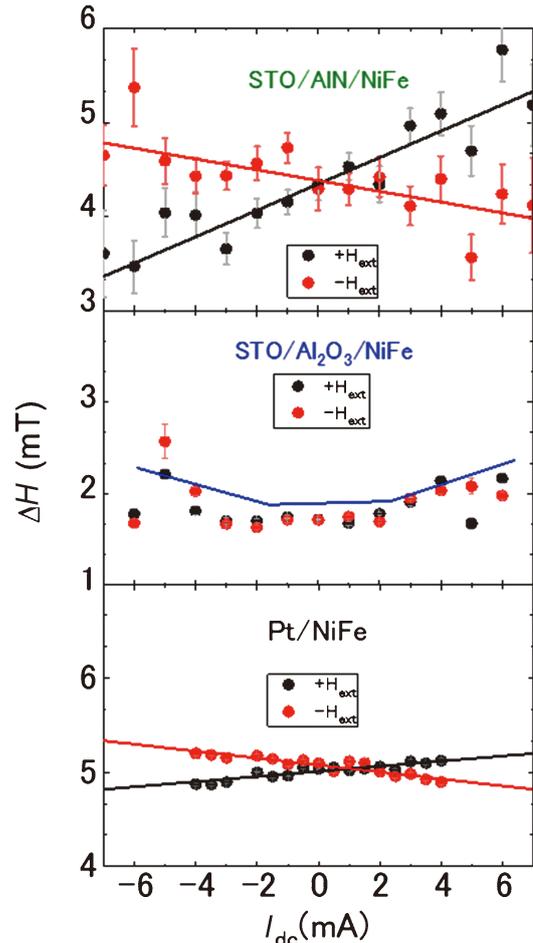


図11 強磁性共鳴を励起し、直流電流を印加しながらスピントルク強磁性共鳴スペクトルを測定することで求めたスペクトル線幅の印加直流電流依存性を示す。(オンラインカラー)

により共鳴スペクトル線幅変化 (ΔH) の増減が変わっている。これは、スピンホール効果やラシュバ・エデルシュタイン効果では、電流、スピン流、スピン流の分極方向は互いに直交しており、スピン軌道トルクの作用する方向(図4のダンピングライク項の向き)が変化するためである。この変化分 ΔH が試料におけるスピン軌道トルクの大きさとイえる。SrTiO₃/AlN 界面の ΔH は Pt と比較して 2 倍程度大きく、より強いスピン軌道トルクが Ni₇₈Fe₂₂ 層の磁化へと作用している。一方、SrTiO₃/Al₂O₃ 界面では電流印加により ΔH が放物線上に増加している。これは高抵抗かつ小さなスピン変換効率であるために、電流印加により生じるジュール熱の影響が ΔH の主因となっている。

4. まとめと今後の展望

情報通信技術の進展は企業活動のみならず、我々の生活の利便性も大きく向上した。近年、Society5.0に向けて情報通信技術は更に進展している。情報社会の持続的な発展に向けて危惧されることは、AIハードウェアの消費電力であ

る⁽⁵⁰⁾。その解決方法の一つが、キャッシュメモリ (SRAM) を不揮発性メモリに置き換えることであり⁽⁵¹⁾、スピン軌道トルク MRAM がその最有力候補である。更に、スピン軌道トルクは新しい AI デバイスの創出にも貢献できる⁽⁵²⁾。これらデバイスを実現できるかどうかのカギは電氣的スピン変換効率にある。本稿で紹介したイオン注入による不純物添加は様々な材料系に適用することができ、試料中の不純物分布や濃度を任意に制御することができる。酸素等の軽元素添加においてもホストである白金の強いスピン軌道相互作用を利用して外因性機構による変換効率の向上に成功した。元素の選択性が拡がり、更なる高い変換効率をもつ材料の開発へと繋がるのが期待される。また、界面伝導層を利用したスピン変換においてもバルク白金の性能を上回るスピン流の生成およびスピン軌道トルクの観測に成功した。スピン軌道相互作用の大きなトポロジカル絶縁体の界面(表面)伝導層を利用したスピン変換についても研究が進められている⁽⁵³⁾。スピントロニクスは、ハードディスクドライブの大容量化や MRAM の実用化を通じて情報社会の発展に貢献した。今後は、高いスピン変換効率をもつ新材料を利用した革新的なスピンオービトロニクス素子を創製し、情報社会の持続的な発展にハード面から貢献できることを期待したい。

本稿で紹介したイオン注入による不純物添加した白金に関する研究は、九州工業大学大学院情報工学研究科の Utkarsh Shashank 氏、友田好郁氏、中村要士氏、草場優氏、Surbhi Gupta 博士、Rohit Medwal 博士、山口大学大学院創成科学研究科の浅田裕法教授、Nanyang Technological University の Joseph Vimal Vas 博士、Martial Duchamp 准教授、Rajeev Singh Rawat 教授、Inter University Accelerator Center の Asokan Kandasami 博士と共同で行った。ラッシュバ界面に関する研究は、Purdue University の Angshuman Deka 博士、Nanyang Technological University の Chen Ye 博士、Renshaw Wang 准教授と共同で行った。また、本稿で紹介した研究の一部は、科学研究費補助金(22K04198)、キオクシア株式会社、池谷科学技術振興財団、田中貴金属記念財団の支援をうけて実施したものです。

文 献

- (1) Y. Otani, M. Shiraishi, A. Oiwa, E. Saitoh and S. Murakami: *Nature Phys.*, **13**(2017), 829.
- (2) <https://www.everspin.com/spin-transfer-torque-mram-technology>
- (3) Q. Shao *et al.*: *IEEE Trans. Magn.*, **57**(2021), 800439.
- (4) 池田正二, 遠藤哲郎: まぐね, **18**(2023), 276–282.
- (5) L. Liu, C.F. Pai, Y. Li, H.W. Tseng, D.C. Ralph and R.A. Buhrman: *Science*, **336**(2012), 555.
- (6) K. Kudo and T. Morie: *Appl. Phys. Exp.*, **10**(2017), 043001.
- (7) M. Zahedinejad, A. A. Awad, S. Muralidhar, R. Khymyn, H. Fulara, H. Mazraati, M. Dvornik and J. Akerman: *Nature Nanotech.*, **15**(2020), 47.
- (8) A. Houshang, M. Zahedinejad, S. Muralidhar, J. Checinski, R. Khymyn, M. Rajabali, H. Fulara, A. A. Awad, M. Dvornik and J. Akerman: *Phys. Rev. Appl.*, **17**(2022), 014003.
- (9) J. R. Mohan, A. J. Mathew, K. Nishimura, R. Feng, R. Medwal, S. Gupta, R. S. Rawat and Y. Fukuma: *Sci. Rep.*, **13**(2023), 7909.
- (10) J. E. Hirsh: *Phys. Rev. Lett.*, **83**(1999), 1834.
- (11) Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard and D. D. Awschalom: *Science*, **306**(2004), 1910.
- (12) J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova and T. Jungwirth: *Phys. Rev. Lett.*, **94**(2005), 047204.
- (13) E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima and G. Tatara: *Appl. Phys. Lett.*, **88**(2006) 182509.
- (14) T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi and S. Maekawa: *Phys. Rev. Lett.*, **98**(2007), 156601.
- (15) C. F. Pai, L. Liu, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph and R. A. Buhrman: *Appl. Phys. Lett.*, **101**(2012), 122404.
- (16) L. Zhu, K. Sobotkiewch, X. Ma, X. Li, D. C. Ralph and R. A. Buhrman: *Adv. Funt. Mat.*, **29**(2019), 1805822.
- (17) A. Hoffmann: *IEEE Trans. Magn.*, **49**(2013), 5172–5193.
- (18) 村上修一: 日本物理学会誌, **62**(2007), 2–9.
- (19) 紺谷 浩, 平島 大, 井上順一郎: 日本物理学会誌, **64**(2009), 1–9.
- (20) V. M. Edelstein: *Solid State Commun.*, **73**(1990), 233.
- (21) T. Tanaka, H. Kontani, M. Naito, D. S. Hirashima, K. Yamada and J. Inoue: *Phys. Rev. B*, **77**(2008), 165117.
- (22) M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D. H. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura and Y. Otani: *Phys. Rev. B*, **83**(2011), 174405.
- (23) Y. Niimi, M. Morota, D. H. Wei, C. Deranlot, M. Basletic, A. Hamzic, A. Fert and Y. Otani: *Phys. Rev. Lett.*, **106**(2011), 126601.
- (24) Y. Niimi, Y. Kawanishi, D. H. Wei, C. Deranlot, H. X. Yang, M. Chshiev, T. Valet, A. Fert and Y. Otani: *Phys. Rev. Lett.*, **109**(2012), 156602.
- (25) P. Wang, A. Migliorini, S. H. Yang, J. C. Jeon, I. Kostanovskiy, H. Meyerheim, H. Han, H. Deniz and S. S. P. Parkin: *Adv. Mat.*, **34**(2022), 2109406.
- (26) U. Shashank, R. Medwal, T. Shibata, R. Nongjai, J. V. Vas, M. Duchamp, K. Asokan, R. S. Rawat, H. Asada, S. Gupta and Y. Fukuma: *Adv. Quantum Technol.*, **4**(2021), 2000112.
- (27) U. Shashank, R. Medwal, Y. Nakamura, J. R. Mohan, R. Nongjai, A. Kandasami, R. S. Rawat, H. Asada, S. Gupta and Y. Fukuma: *Appl. Phys. Lett.*, **118**(2021), 252406.
- (28) U. Shashank, Y. Nakamura, Y. Kusaba, T. Tomoda, R. Nongjai, A. Kandasami, R. Medwal, R. S. Rawat, H. Asada, S. Gupta and Y. Fukuma: *Phys. Rev. B*, **107**(2023), 064402.
- (29) J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark: *The stopping Power and Range of Ion in Solids* (Pergmon, New York, 1985).
- (30) 近藤浩太, 大谷義近: 応用物理学会誌, **86**(2017), 139–143.
- (31) 小峰啓史: まぐね, **18**(2023), 52–60.
- (32) L. Berger: *Phys. Rev. B*, **54**(1996), 9353.
- (33) J. C. Slonczewski: *J. Magn. Magn. Mater.*, **159**(1996), L1.
- (34) L. Liu, Y. Kawanishi, D. H. Wei, C. Deranlot, T. Moriyama, D. C. Ralph and R. A. Buhrman: *Phys. Rev. Lett.*, **106**(2011), 036601.
- (35) Y. Suzuki and H. Kubota: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77**(2008), 031002.
- (36) D. MacNeil, G. M. Stiehl, M. H. D. Guimaraes, R. A. Burhman, J. Park and D. C. Ralph: *Nature Phys.*, **13**(2017), 300.
- (37) J. Smit: *Physica*, **21**(1955), 877.
- (38) J. Smit: *Physica*, **24**(1958), 39.
- (39) L. Berger: *Phys. Rev. B*, **2**(1970), 4559.
- (40) 播磨尚朝: 日本物理学会誌, **78**(2023), 254–255.
- (41) 柳瀬陽一, 播磨尚朝: 固体物理, **46**(2011), 283–292.
- (42) E. Lense, Y. Fu, S. Oyarzun, J. C. R. Sanchez, D. C. Vaz, H. Nagamuna, G. Sicoli, J. P. Attane, M. Jamet, E. Jacquet, J. M. George, A. Barthelemy, H. Jaffres, A. Fert, M. Bibes and L. Vila: *Nature Mat.*, **15**(2016), 1261.
- (43) Y. Wang, R. Ramaswamy, M. Motapothula, K. Narayanapillai, D. Zhu, J. Yu, T. Venkatesan and H. Yang: *Nano Lett.*, **17**

