

世界最高効率のスピンド電流変換を酸化物で実現 ——酸化物を用いた低消費電力スピンドデバイスの実現に向けた新たな進展——

1. 発表者：

- 金田（高田）真悟（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 博士課程）
北村 未歩（高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 助教）
小林 正起（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携
研究教育センター 准教授）
田中 雅明（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携
研究教育センター 教授）
大矢 忍（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携
研究教育センター 准教授）

2. 発表のポイント：

- ◆ 電子のスピンド自由度と軌道自由度を生かした次世代のデバイスの実現に向けて、近年さまざまな材料系で観測されている電流とスピンド流間の相互変換現象は、高効率の磁化制御技術に応用できるものとして期待されています。本研究では、高品質の単結晶酸化物界面に形成された2次元電子ガスを用いて、世界最高効率のスピンド電流変換を実現することに成功しました。
- ◆ 今までは、絶縁体の酸化物同士の界面に形成される2次元電子ガスを用いて研究が行われてきましたが、スピンド流を2次元電子ガスに注入する際に、スピンド流が絶縁体で減衰してしまうことが問題でした。本研究では、金属状態の強相関電子系酸化物 LaTiO_3 を用いることにより、高効率のスピンド注入を実現しました。
- ◆ 本結果は、高品質の単結晶界面や強相関電子材料を利用することにより、高効率のスピンド電流変換が実現できることを示しています。将来的には、磁性を用いた次世代の不揮発性メモリの実現に向けた、より高効率の磁化反転技術の実現に結びつくものと期待されます。

3. 発表概要：

東京大学大学院工学系研究科の金田（高田）真悟大学院生、Le Duc Anh 准教授、小林正起准教授、関宗俊准教授、田畑仁教授、田中雅明教授、大矢忍准教授のグループと、高エネルギー加速器研究機構（KEK）物質構造科学研究所の北村未歩助教、堀場弘司准教授（現量子科学技術研究開発機構次世代放射光施設整備開発センター上席研究員）、東北大学多元物質科学研究所の組頭広志教授らは、強相関電子系（注1）酸化物 LaTiO_3 と酸化物 SrTiO_3 基板との界面に形成される2次元電子ガス（注2）に純スピンド流（注3）を注入し、世界最大効率のスピンド電流変換を実現することに成功しました。

近年、強磁性体の電子のスピンド自由度（注4）を用いて新たな省エネルギーデバイスを実現する試みが盛んに行われています。現在、強磁性体を用いた磁気抵抗メモリなどが商用化され始めていますが、強磁性体の磁化反転に比較的大きな電力が必要で、将来の新しい磁化反転方式が模索されています。その中で、スピンド流と電流の相互変換現象を利用することにより、高効率の磁化反転が実現できると期待されています。特に、物質の界面では相対論効果によるスピンド軌道相互作用（注5）が強く、それによりスピンド流と電流を高効率に相互変換できると期

待されています。その有力な候補として、酸化物同士の界面に形成される2次元電子ガスが注目されています。絶縁体酸化物基板として広く利用されている SrTiO₃ の上に、絶縁体の LaAlO₃ 薄膜を製膜すると、界面に2次元的に電子が蓄積することが広く知られています。今まで、この2次元電子ガスを用いると非常に高効率にスピン流を電流に変換できることが示されてきました。しかし、この界面にスピン流を注入する際には、絶縁体である LaAlO₃ を介してスピン流を注入する必要があり、そこでスピン流が減衰してしまうことが問題でした。今回、研究グループは、LaAlO₃ の代わりに、金属状態の強相関電子系酸化物 LaTiO₃ を用いました。LaTiO₃ は、強相関電子系として知られる材料の一つであり、もともとは絶縁体ですが、SrTiO₃ 基板の上に製膜すると歪みや基板からの酸素の拡散により、金属状態となります。研究グループは、分子線エピタキシーと呼ばれる手法を用いて、1原子層ごとに結晶成長を行って高品質の LaTiO₃/SrTiO₃ の単結晶界面を作製し、スピン流が流れる際のスピン散乱を大幅に抑制しました。その結果、これまでに報告された最大値と比べて3倍以上の大きなスピン流電流変換を実現することに成功しました。また、KEK 放射光実験施設フォトンファクトリーで共鳴角度分解光電子分光法（注6）を用いて LaTiO₃/SrTiO₃ 界面に形成された2次元電子ガスの Ti 3d 軌道由来の電子構造を観測し、その結果に基づいて理論計算を行うことで、スピン流電流変換効率の温度依存性を理論的に説明することに成功しました。本研究の結果は、高品質の単結晶界面や強相関電子材料を利用することにより、高効率のスピン流電流変換が実現できることを示しています。将来的には、次世代の磁性を用いた不揮発性メモリの実現に向けた、より高効率の磁化反転技術の実現に結びつくものと期待されます。

本研究成果は、2022年9月26日（英国夏時間）に英国科学誌「Nature Communications」のオンライン版に掲載されました。

4. 発表内容：

① 背景

近年、情報量の急激な増大に伴い、より高度で高速な情報処理技術が必要とされるようになってきました。それに伴い、トランジスタなどの半導体デバイスの需要が飛躍的に増大しています。トランジスタは、パソコン、スマートフォン、家電、自動車など、日常生活の至るところに利用されているだけでなく、近年は、モノのインターネット化（IoT）や人工知能（AI）技術の実現において欠かすことのできない存在となっています。このような変化に伴い、情報処理に必要な消費エネルギーが劇的に増大しています。今後、サステナブルな社会を実現していくためには、トランジスタの消費電力を低減することが極めて重要です。現在のトランジスタにおいては、電源を切るとデータが失われてしまうこと（揮発性）が大きな問題です。情報を維持するためだけに、常に電力を供給し続ける必要があります。一方で、近年、電子の持つスピン自由度を利用して、現在のトランジスタに長期記憶の機能（不揮発性）を持たせる研究が進んでいます。このような技術を用いて新たなデバイスが実現できれば、大幅な消費電力の削減が可能となります。実際に、磁石の磁化の向きを電子のスピンを用いて読み書きする不揮発性の磁気抵抗メモリデバイスが商用化されつつあり、情報を磁化の向きとして蓄えて高速に読み取ることができるようになってきました。これにより、電力を使わずにデータを保持できるようになってきています。

一方で、このような不揮発性の磁気デバイスの大きな問題点は、磁化の向きを変えるために大きな電力が必要であることです。そのため、新しい磁化反転方式が模索されています。近年、さまざまな材料においてスピン流と電流が相互に変換される現象が報告されています。この現象を利用することにより高効率の磁化反転を実現できると期待されています。とりわけ異なる

物質同士の界面では、空間反転対称性の破れにより電子のスピンと軌道間の相対論的な相互作用が強くなり、それによりスピン流と電流を高効率に変換できることが示されています。絶縁体である LaAlO_3 を絶縁体の酸化物基板 SrTiO_3 上に製膜すると、その界面には2次的に電子が蓄積することが知られていますが、この2次元電子ガスを用いると、高いスピン流電流変換効率が得られることが報告されていました。しかしこの系では、スピン流を2次元電子ガスに注入する際に、スピン流が絶縁体である LaAlO_3 で減衰してしまうことが大きな問題でした。

② 研究内容

研究グループは、 LaAlO_3 の代わりに強相関電子系酸化物 LaTiO_3 を用いました。 LaTiO_3 は、もともとは絶縁体ですが、 SrTiO_3 の上に製膜された状態では、歪みや SrTiO_3 からの酸素の拡散により金属状態となります。 LaTiO_3 と SrTiO_3 の界面にも2次元電子が蓄積することが知られています。2018年に、この2次元電子ガスが $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ と比較して1桁程度大きなスピン軌道相互作用を持つことが米国のグループから報告されました。 LaTiO_3 は不安定な結晶ですが、研究グループでは、分子線エピタキシーと呼ばれる高純度の単結晶を形成できる手法を駆使して、1原子層ずつ結晶成長を行い、すべて単結晶の $(\text{La,Sr})\text{MnO}_3/\text{LaTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ からなる高品質の多層膜構造を作製しました。研究グループは、素子にマイクロ波を照射して、強磁性体である $(\text{La,Sr})\text{MnO}_3$ の強磁性共鳴(注7)状態を利用して、スピン流を $(\text{La,Sr})\text{MnO}_3$ から $\text{LaTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ 界面の2次元電子ガスに注入し、素子から発生する起電力を測定しました。起電力は低温になるにつれて大きくなることが分かりました。スピン流電流変換の効率は逆エデルシュタイン長と呼ばれる長さが次元の値で評価されます。解析の結果、15 Kにおいて193.5 nm という、過去最大のスピン流電流変換効率が得られていることが分かりました。この値は、2020年にフランスのグループから *Nature* 誌に報告されていた世界最高値の3倍程度の非常に大きな値で、他の物質で報告されているスピン流電流変換効率と比較しても最も大きな値です。さらに、研究グループは、共鳴角度分解光電子分光法を用いて $\text{LaTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ 界面における2次元電子ガスの電子構造を観測し、その結果に基づいて理論計算を行うことで、スピン流電流変換効率の温度依存性を理論的に説明することに成功しました。強相関電子系におけるスピン流の研究はほとんど行われておらず、まだ十分にはスピン流の伝導機構は理解されていませんが、基本的にこのような材料系では、反対向きのスピンが同じエネルギーをもつことが難しくなり、スピンの散乱が抑制されると考えられます。このような強相関性と、研究グループの作製した結晶の高い品質により、スピン流注入時のスピンの散乱が大幅に抑制され、高効率のスピン流注入が実現されたものと考えられます。

③ 社会的意義・今後の予定

本研究の成果は、高品質の単結晶界面や強相関電子材料などを利用することにより高効率のスピン流電流変換を実現できることを意味しています。この結果の本質的な要因については、上述したさまざまな寄与が考えられ、今後、研究が進むことにより、どの現象が本質的に重要であるかが明らかになるものと考えられます。将来的には、次世代の磁性を用いた不揮発性メモリの実現に向けた、より高効率の磁化反転技術の実現に結びつくものと期待されます。

5. 発表雑誌：

雑誌名： *Nature Communications* (オンライン版：9月26日)

論文タイトル： Giant spin-to-charge conversion at an all-epitaxial single-crystal-oxide Rashba interface with a strongly correlated metal interlayer

著者： S. Kaneta-Takada, M. Kitamura, S. Arai, T. Arai, R. Okano, L. D. Anh, T. Endo, K. Horiba, H. Kumigashira, M. Kobayashi, M. Seki, H. Tabata, M. Tanaka and S. Ohya
DOI 番号： 10.1038/s41467-022-33350-5
URL： <https://www.nature.com/articles/s41467-022-33350-5>

6. 研究グループの構成：

金田（高田）真悟（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 博士課程）
北村 未歩（高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 助教）
荒井 勝真（研究当時：東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 修士課程）
新居 拓真（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 修士課程）
岡野 諒（研究当時：東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 修士課程）
Le Duc Anh（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 准教授）
遠藤 達朗（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻 修士課程）
堀場 弘司（研究当時：高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 准教授、現：量子科学技術研究開発機構次世代放射光施設整備開発センター 上席研究員）
組頭 広志（東北大学 多元物質科学研究所 教授）
小林 正起（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 准教授）
関 宗俊（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 准教授）
田畑 仁（東京大学 大学院工学系研究科バイオエンジニアリング専攻／電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 教授）
田中 雅明（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 教授）
大矢 忍（東京大学 大学院工学系研究科電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携研究教育センター 准教授）

7. 問い合わせ先：

<研究に関すること>
東京大学 大学院工学系研究科
電気系工学専攻／附属スピントロニクス学術連携研究教育センター
准教授 大矢 忍（おおや しのぶ）
Tel: 03-5841-7425 E-mail: ohya@cryst.t.u-tokyo.ac.jp

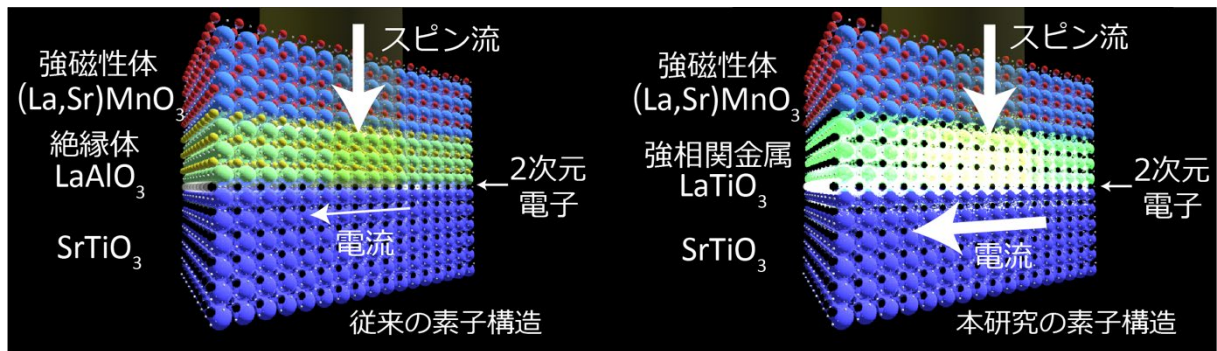
<報道に関すること>
東京大学 大学院工学系研究科 広報室
Tel: 03-5841-0235 E-mail: kouhou@pr.t.u-tokyo.ac.jp

高エネルギー加速器研究機構 広報室
Tel: 029-879-6047 E-mail: press@kek.jp

8. 用語解説：

- (注1) 強相関電子系：電子と電子の間に働く反発力（クーロン力）の影響が強く表れる電子系。この性質が強いと、互いに逆向きのスピンをもつ電子同士は、同じエネルギーをもつことが難しくなる。
- (注2) 2次元電子ガス：2次元状に電子が分布する状態。異なる物質同士の界面に存在する面直方向の電界により、電子が閉じ込められて形成される。
- (注3) 純スピン流：上向きスピンと下向きスピンをもつ電子が逆方向に流れる状態。電流としてはゼロである。スピンの意味については注4参照。
- (注4) スピン自由度：電子の磁石としての向きの自由度。スピンは古典的には電子の自転により生じる角運動量と考えることができる。磁石の磁力の主な起源となっている。
- (注5) スピン軌道相互作用：電子の進む方向に対して、スピンの向きやすい方向が決まる効果。相対論効果が起源であり、物質や多層膜の構造の非対称性や、原子の質量によりその強さが変わることが知られている。
- (注6) 共鳴角度分解光電子分光法：固体表面に X 線を入射した際に、物質外に放出される電子（光電子）の運動エネルギーと放出角度分布を計測することにより、物質のバンド構造（物質中の電子の運動量とエネルギーの関係）を直接調べる手法を角度分解光電子分光法という。特に、入射 X 線のエネルギーを特定の元素の内殻準位から非占有準位への吸収が起こる値に設定することにより、特定の電子軌道からの光電子強度を選択的に増強して観測する手法を共鳴角度分解光電子分光法と呼び、その電子軌道が強く関与するバンド構造を選択的に調べることができる。
- (注7) 強磁性共鳴：強磁性体にマイクロ波を印加した際に、その周波数をもつ磁化の回転運動（正確には歳差運動）が継続的に起きる現象。これに伴いスピン流が生成されると考えられている。

9. 添付資料：



図（左）従来の研究で使われてきた素子構造の例。 $(\text{La,Sr})\text{MnO}_3/\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ を用いて、スピンの流れを LaAlO_3 と SrTiO_3 の界面に形成されている2次元電子ガスに注入すると、スピンの流れが電流に変換される。スピンの流れが絶縁体である LaAlO_3 で減衰するため、効率的なスピンの流れ注入は難しい。（右）今回用いた $(\text{La,Sr})\text{MnO}_3/\text{LaTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ 構造。スピンの流れが強相関金属である LaTiO_3 をスムーズに流れるため、高効率のスピンの流れ電流変換が実現できる。