

結晶方位制御によるビスマスにおける巨大スピン変換の実現

～積年の謎を解決し、新奇スピン注入メモリの実現/発展への道程を開拓～

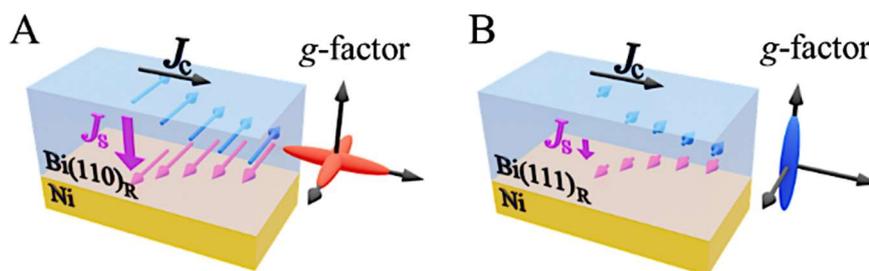
概要

京都大学大学院工学研究科電子工学専攻の福本直輝 大学院学生（修士課程 2 回生）、大島諒 助教、白石誠司 教授らのグループは東京大学物性研究所、電気通信大学の研究グループと共同で、スピントロニクス^{*1} 技術において極めて重要な高効率に電流からスピン流^{*2} を生み出す物質としてビスマスが非常に優れていることを実験的に証明することに成功しました。

高密度・高効率に記憶できるスピン注入メモリ(MRAM)に応用上大きな期待が集まっており、世界的に激しい研究開発競争が行われています。記憶層の書き込みには、従来用いられてきた電流を用いた手法に対して、低いエネルギー損失かつ高耐久性で書き込みが行えるスピン流を用いる手法の優位性が認識されているため、そのスピン流を高効率で生成できる手法（スピン変換手法）の開発が極めて重要です。現在最も優れた方法と認識されているのがスピンホール効果^{*3} を用いる手法であり、一般にこの手法では原子番号の大きな材料がよいとされているため、非放射性元素の中で一番原子番号の大きなビスマス(Bi)が理想的な材料であると期待されてきました。しかし実験的には、Bi のスピン流生成効率は何故かこれまでほとんどゼロであるという報告しかなく、応用研究としてだけでなく物性物理学の基礎研究としても永年の謎（未解決問題）とされていました。

今回、京大・東大・電通大の研究グループは、Bi のとりうる結晶方位と、それによる g 因子^{*4} の違いに着目しました。理論的考察から、従来研究で用いられてきた Bi は g 因子が小さいため原理的に極めて低いスピン流生成効率しか得られない結晶構造であることを明らかにしました。更に結晶成長方法の工夫により、g 因子が大きく高効率でスピン流を生成できる Bi を得ることに成功しました。実験的に得られた生成効率は全元素中で最大のものの 1 つであり、本来 Bi に期待されるレベルのスピン変換効率を達成したと言えます。本成果は、スピン注入メモリ応用に重要な成果であると同時に、基礎研究面でも永年の未解決問題を遂に解決した、という意味で極めて重要な成果です。

本成果は 2023 年 3 月 23 日に米国科学アカデミーの学術誌である「*Proceedings of National Academy of Science*」誌にオンライン掲載されました。



A： 今回の研究で用いた Bi の(110)結晶におけるスピン流(J_s)生成の概念図。g 因子が大きな方向にスピンを生成できるためスピン変換効率を大きくできる。 B： 従来研究で用いられてきた Bi の(111)結晶の場合、g 因子が小さな方向でしかスピンを生成できていなかった。

1. 背景

近年、電子の持つスピン^{※5}という自由度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おり、スピンを記録媒体としたメモリ素子（スピン注入メモリ）などが商用化され始めています。スピンを記録媒体とする強みは、スピンは電子の持つもう1つの自由度である電荷と異なり、電源を切ると記憶が消えてしまう「揮発性」という問題を回避できる点です。スピン1つをメモリとすることはまだ技術的障壁が高いため、現在はスピンの集団をメモリとして使うために強磁性体が記録媒体として用いられていますが、強磁性体の磁化反転には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おり、低消費電力性と書き込み耐性の観点からスピン流を用いた磁化反転方式は極めて有力な手法と認識されています。

スピン流を生成するにはいくつかの方法が知られていますが、スピンホール効果を用いる手法が高効率かつ簡便にスピン流を生成するに適していると認識されています。この手法の場合、電荷の流れである電流からスピン流を生成しますが、この電流⇒スピン流の変換効率（スピン変換効率）が高いことが省エネルギーの観点から重要です。スピン変換効率の大きさの指標の1つにスピン軌道相互作用^{※6}があり、このスピン軌道相互作用は元素の原子番号が大きいほど大きいことが知られています（つまり高校の化学で習う周期律表の右下に行くほど大きいということです）。放射性元素は実際の素子応用には非常に使いにくいいため放射性を持たない元素に限定すると、ビスマス(Bi)が最も原子番号が大きい(=83)ため最も効率的にスピン流を生成できるはずですが、これまで永年の研究者の挑戦にも関わらず、なぜか Bi のスピン変換効率はほぼゼロであることを示唆する結果しか得られておらず、応用の観点からの期待に応えられていないばかりか物性物理学における永年の謎であり続け、研究者の頭を悩ませ続けてきました。

2. 研究手法・成果

そこで私達の研究グループではBiにおけるスピンの本質を基本に立ち帰って考えることから出発しました。Biは特殊な電子状態を持っているために、そのg因子が結晶構造・結晶方位に依存して1000倍以上異なることが知られていました。g因子はBiにおいてはスピンホール効果によって生成されるスピン流の流れやすさ（=伝導度）と強くリンクするため、g因子が大きいほど相対的に大きなスピン流が生成できるということを理論面からの考察により見出しました。この観点から従来の研究を見直してみると、従来の研究で使われていた(111)構造を持つBiではg因子が0.112以下という極めて小さい状態でスピン流を生成していたことがわかりました。実はBiにはもう1つ別の構造があり、それが(110)構造ですが、この(110)構造ではg因子は最大で1000を超えます。つまり(110)構造を持つBiを作製してそのBiのスピンホール効果を用いれば非常に効率よくスピン流が生み出せる、ということになります。

実験的には強磁性体であるニッケル(Ni)の上にBiを成長させると望ましい構造である(110)構造ができることを見出したことがブレイクスルーの1つとなりました。この(110)Biを用いると、スピン変換効率として最大で27%という極めて大きな値を得ることができました（原子番号78の白金では10%以下）。現在知られている最大の変換効率は、原子番号が74のタングステンがある特殊な構造をとった時の33%ですので、今回の研究で得られた変換効率は全元素中でも最大のものの1つであり、本来Biに期待された大きなスピン変換効率の実現できた、ということが出来ます。これはスピンを用いたメモリ素子応用上、大変重要な成果であると同時に、基礎学術面でも永年の未解決問題を解決し、科学者間の議論に遂に終止符を打つことのできた記念碑的成果でもあります。

3. 波及効果・今後の予定

今後求められる研究としては、実際に(110)Biを用いてスピン注入メモリを試作し、スピン流を用いた効率的な磁化反転ができるかどうかを確認することがあります。また今回の成功のキーが「大きなg因子」にあったことから、他の材料系で大きなg因子を持つ材料があるのかどうかの探索、さらに人工的にg因子の大きさを制御できるような新しい材料系の開拓なども重要な研究となります。

4. 研究プロジェクトについて

本研究を遂行するにあたり、科学研究費補助金・基盤研究(S)「半導体スピントロニクス」、同・基盤研究(B)「強スピン軌道結合系における劇的スピン応答の制御」、同・基盤研究(A)「反強磁性金属における自励発振の研究」、スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク拠点などの支援を受けました。ここに謝意を表します。

<用語解説>

※¹ スピントロニクス：電子の持つスピン角運動量を情報担体として用いようとする研究分野の総称です。1980年代後半の巨大磁気抵抗効果の発見（2007年ノーベル物理学賞）によって創出された分野であり、これまでに磁気ヘッドや磁気メモリなど様々な素子に応用が広がっていると同時に、豊かで新しい基礎物性を内包する研究分野でもあります。

※² スピン流（※⁵ スピンも参照のこと）：電子の持つ電荷の自由度の流れは電流ですが、電荷の流れがなくスピン角運動量だけの流れをスピン流と言います。電流は流れないのでオームの法則の制約から逃れられ、超低消費電力で情報を伝播させることができる流れです。

※³ スピンホール効果：電流を流したときにスピン流が生まれる効果です。特徴的なのは、電流が流れる方向に対して垂直方向にスピン流が発生することです。この電流⇒スピン流の生成効率（変換効率）が高いほどエネルギー的に無駄なくスピン流を作れることになります。

※⁴ g因子：電子におけるスピン角運動量と磁気モーメント（磁気能率）の比であり通常は「2」という値を持ちますが、このシンプルな説明は原子1個が孤立しているときのみ成り立ちます。固体の中ではg因子は結晶構造や結晶方位で大きく値を変えることが知られています。

※⁵ スピン：スピン角運動量とも言われ、電子の持つ電荷と並んで重要な内部自由度であり、磁石の持つ磁性の源でもあります。スピンはアップとダウンの2値を持つため、情報を担うことが可能です。

※⁶ スピン軌道相互作用：電子のスピン角運動量と軌道角運動量間の相互作用を指します。一般的傾向として原子番号の大きな元素のほうが強いスピン軌道相互作用を有します。例えば金属ならば、パラジウム(Pd)や白金(Pt)、金(Au)ではこの相互作用が大きく、実質的な非放射性元素ではビスマス(Bi)が最大のスピン軌道相互作用を持ちます。

研究者のコメント

（福本）ビスマスの化合物は超伝導材料や化粧品の原料として身近なところで使用されているようですが、今回はビスマス単体の物性についてスピントロニクスの視点で研究を行いました。結晶方位で特性が劇的に変化するという発見は、ビスマスが広い領域で様々な応用できることを暗示しているようで面白いですし、本研究をきっかけにビスマスの魅力に気づく方が増えると嬉しいです。

(大島) ビスマスは、実験すればするほど分からないことが増える一方でした。今回、ようやくその不思議の一部を解明する足がかりが少し見えたように感じています。今後もその物性が解明できるよう研究に邁進したいと思います。

(白石) 10年以上前に今回の研究の共同研究者である電気通信大学・伏屋先生からこのビスマスという材料の魅力を教えていただいて以来、汲めども尽きぬ魅力を感じ続けてきました。今回、基礎学術上の永年の未解決問題に遂に決着をつけられた喜びと、応用研究にも大いに貢献できる発見ができた喜び、更にビスマスという材料が持つ豊かで美しい物理の本質に迫ることができた喜びを強く感じています。

論文タイトルと著者

“Observation of large spin conversion anisotropy in bismuth”

(ビスマスにおける大きな異方的スピン変換の観測)

N. Fukumoto^{1,*}, R. Ohshima^{1,*}, M. Aoki¹, Y. Fuseya², M. Matsushima¹, E. Shigematsu¹, T. Shinjo¹, Y. Ando^{1,3}, S. Sakamoto⁴, M. Shiga⁴, S. Miwa⁴ and M. Shiraishi¹

1. 京都大学大学院工学研究科, 2. 電気通信大学大学院情報理工学研究科、3. JST さきがけ、4. 東大物性研
掲載誌：Proceedings of National Academy of Science (米国科学アカデミー紀要)

DOI : <https://doi.org/10.1073/pnas.2215030120>