

**第3回 CSRN-Tokyo Workshop 2019**  
**東京大学スピントロニクス学術連携研究教育センター(CSRN)主催 ワークショップ**  
**スピントロニクス新機能物質と巨大物性応答**  
**日時： 2019年11月22日(金)～23日(土)**  
**場所： 東京大学本郷キャンパス工学部2号館4階246講義室**  
<http://www.csrn.t.u-tokyo.ac.jp/workshop3/>

**報告書**

**Session I 強磁性半導体の新物性と電界効果**

**報告者：東京大学大学院工学系研究科 大矢 忍**

Session Iでは、東京大学大学院工学系研究科の瀧口耕介氏による「高いキュリー温度をもつn型およびp型Fe添加III-V族強磁性半導体とヘテロ構造 –巨大な近接磁気抵抗効果とゲート電圧による制御–」についての講演と、東京大学物性研究所の福島鉄也氏による「Feベース強磁性半導体の物質設計と極めて高いキュリー温度の予測」についての2件の講演が行われた。

**高いキュリー温度をもつn型およびp型Fe添加III-V族強磁性半導体とヘテロ構造 –巨大な近接磁気抵抗効果とゲート電圧による制御–**

東京大学大学院工学系研究科 瀧口耕介

従来の強磁性半導体(FMS)の研究では、Mn添加III-V族半導体の研究が主に行われてきたが、これらの材料系ではp型しか実現できないことや、また室温を超えるような高いキュリー温度 $T_C$ が得られないことなどが大きな問題点であった。本講演では、狭ギャップIII-V族半導体にFeを添加した新しいFMSとそのヘテロ構造についての報告が行われた。低温分子線エピタキシー法を用いて、p型の(Ga,Fe)Sbや、n型の(In,Fe)Asや(In,Fe)Sbが実現でき、さらに、室温を超える $T_C$ が得られることが示された。FMSのデバイス応用に向けた有望な結果であるといえる。また講演の後半では、Fe添加FMSを用いたヘテロ接合において得られた新しい磁気抵抗効果 (magnetoresistance, MR) についての報告がなされた。瀧口氏らは、絶縁的なp型強磁性半導体(Ga,Fe)Sb (20% Fe,  $T_C > 300$  K) に隣接した非磁性n型InAs量子井戸におけるMR比が、高磁場下で80%もの非常に大きな値になると同時に、ゲート電圧によりMR比を10倍以上変調できることを見出した。このメカニズムはInAs/(Ga,Fe)Sb 界面におけるs-d交換相互作用を介した強い磁気近接効果により説明できる。このようなFe添加FMSを用いたデバイスにおける新しい磁気伝導現象は、次世代のスピントロニクス

デバイスにおける新機能の実現に結びつく可能性があり、大変有望だと言える。

## Feベース強磁性半導体の物質設計と極めて高いキュリー温度の予測

東京大学物性研究所 福島鉄也

福島鉄也氏は、独自に開発した第一原理計算と統計力学的手法を組み合わせた「多階層連結シミュレーション」により、Fe系強磁性半導体の電子状態、磁気特性、構造安定性の解明を行っている。Variational pseudo self-interaction correction (VP-SIC)を用いることで光電子分光により観測される電子状態を定量的に再現することに成功した。Intrinsicな(In,Fe)Sbや(Ga,Fe)Sbでは強い反強磁性超交換相互作用により強磁性状態は安定しないが、*n*型もしくは*p*型ドーピングを行うことにより反強磁性から強磁性への磁気相転移を引き起こすことが可能であることが示された。特に*p*型ドーピングにより非常に高い強磁性転移温度( $T_C$ )を実現できることが明らかになった。これは物理的には、磁氣的交換相互作用と有効対相互作用の複雑な相関性によって理解され、(Ga,Fe)Sbに関しては実験によって観測されているhigh- $T_C$ を矛盾なく説明することができる。しかし、(In,Fe)Sbにおける高い $T_C$ はキャリアドーピングだけでは理解は困難であるため、格子間位置のFe原子を考慮し、置換位置と格子間位置のFe原子に強い強磁性相互作用が働くと考えられる。その結果、Fe系強磁性半導体の理論 $T_C$ の最大値を予測することできるようになり、理論的には1,000 K近傍の $T_C$ が実現可能であることが明らかになった。Fe系強磁性半導体が、室温動作スピントロニクスデバイスの実現に向けて、非常に有望であることが示された。

## Session II トポロジカル絶縁体における新物性・新機能

報告者：東京工業大学工学院 Pham Nam Hai (ファム ナム ハイ)

セッションII「トポロジカル絶縁体における新物性・新機能」では、東京工業大学工学院のNguyen Huynh Duy Khang氏、国立情報学研究所の濱祐介氏、東京大学物性研究所の近藤猛氏および理化学研究所CEMSの吉見龍太郎氏による4件の発表が行われた。

Giant spin related phenomena in BiSb topological insulator/ferromagnet heterostructures  
(トポロジカル絶縁体/磁性体ヘテロ接合における巨大スピン物性)

東京工業大学工学院 Nguyen Huynh Duy Khang

Nguyen Huynh Duy Khang氏は、BiSbトポロジカル絶縁体・磁性体ヘテロ接合における様々な巨大スピン物性について報告した。特に、BiSb(012)面とMnGa垂直磁化膜の接合において、巨大な室

温スピンホール効果（スピンホール角 $\sim 52^\circ$ ）および超低電流密度によるスピン軌道トルク磁化反転が報告された。これらの値は従来に研究された重金属よりも2桁優れているため、次世代スピン軌道トルク磁気抵抗メモリ(SOT-MRAM)への応用が期待できる。さらに、Si/SiO<sub>2</sub>基板に製膜されたCoTb垂直磁化膜とBiSb(001)の接合において、超低電流密度で磁化反転の実証および巨大なスピンホール効果の観測など、トポロジカルスピントロニクス最新の研究成果が報告された。Si基板上に製膜された結晶性が悪いBiSbでもスピンホール性能が劣化しなかったことから、トポロジカル絶縁体の産業応用の可能性が見えてきた。さらに、BiSbと強磁性半導体GaMnAsとの接合について、1%を超える巨大な一方向性磁気抵抗効果(UMR)が報告された。また、この巨大なUMRの起源はGMR-likeなスピン依存散乱ではなく、GaMnAs内部のマグノン励起・吸収およびスピン無秩序散乱によることも明らかになった。この巨大なUMR効果とトポロジカル絶縁体の巨大なスピンホール効果を用いれば、極めて簡単な構造で2端子SOT-MRAMの実現が期待できる。

#### 磁性トポロジカル絶縁体表面におけるスピントロニック・マルチフェロイック機能

国立情報学研究所 濱 祐介

濱祐介氏はトポロジカル絶縁体・磁性体のハイブリッド系および磁性トポロジカル絶縁体の表面において生じる物理現象とその機能性についての理論的研究を報告した。まず、磁性体ダイナミクスについては、強磁性共鳴とそれに付随するマグノンについての解析が紹介された。磁化容易軸が表面に対して垂直でありかつトポロジカル絶縁体の表面状態が量子異常ホール状態にある時、磁化を磁場（ゼーマン相互作用）よりも電場と強く結合させることができることが明らかになった。これは電場によって強磁性共鳴及びそれに付随したマグノン（エレクトロマグノン）を生じさせられることを表し、磁性トポロジカル絶縁体表面がマルチフェロイックな機能を持つことが示唆された。次に、スピンプンピングによって誘起されたトポロジカル絶縁体表面における電流及び電圧についての解析が報告された。その結果、スピンプンピング（強磁性共鳴）を引き起こす交流磁場の振幅の2乗に比例した電流・電圧、即ちスピンプンピングによって誘起された非線形電流及び電圧が生じる。また、これらは交換相互作用の強さに比例する。従って、磁性トポロジカル絶縁体表面は磁気的な制御による高効率の電流-スピン変換機能を持つことを表している。これらの理論解析は磁性トポロジカル絶縁体表面およびトポロジカル絶縁体・磁性体ハイブリッド構造の表面を利用したスピントロニック・マルチフェロイック機能の開拓につながると期待できる。

#### ナノARPESで解明する擬一次元ヨウ化ビスマスの弱いトポロジカル絶縁体状態

東京大学物性研究所 近藤 猛

近藤猛氏は、ナノ ARPES で解明した擬一次元ヨウ化ビスマス<sup>β</sup>の弱いトポロジカル絶縁体状態について報告した。3次元トポロジカル物質では、「強い」「弱い」のどちらかに分類されることが理論的に提案されている。強いトポロジカル絶縁体 (STI) については、理論提案後直ぐに実証され、今では多くの物質で確認されている。対照的に、弱いトポロジカル絶縁体 (WTI) については、実験的に確証を得た物質はこれまでなかった。その最大の理由は、WTI では特定の表面状態でのみトポロジカルな表面状態が出現することが予想されているが、その鍵となる結晶表面を劈開できる候補物質がこれまで見つからなかったことにある。近藤氏は、WTI の実証を可能とする候補物質として、ヨウ化ビスマス $\beta$ -Bi<sub>4</sub>I<sub>4</sub>に着目した。この物質は、ファンデルワールス力を介して一次元鎖がスタッキングする構造を取るため、結晶の上面と側面が共に劈開可能となり、角度分解光電子分光 (ARPES) を用いたトポロジカル表面の検証が可能になる。近藤氏のグループは高分解能レーザーARPES、及びナノ集光した放射光を用いる顕微 ARPES を用いることで、 $\beta$ -Bi<sub>4</sub>I<sub>4</sub> が WTI であることを実証した。また Bi<sub>4</sub>I<sub>4</sub> が通常の絶縁体となる  $\alpha$  相から WTI の  $\beta$  相へと結晶構造相転移すること、しかもそれが室温付近で生じることを見出した。弱いトポロジカル相は 3 次的に積層された量子スピンホール絶縁体と見なされ、後方散乱に対して保護された無散逸かつ指向性の高いスピン流を高密度に流すことができるため、スピントロニクスにとっても有用な機能性を備えている。

#### 磁性トポロジカル絶縁体・磁性ラシュバ半導体のスピントロニクス機能

理化学研究所 吉見 龍太郎

最後に、吉見龍太郎氏は、磁性トポロジカル絶縁体・磁性ラシュバ半導体のスピントロニクス機能について報告した。空間反転対称性の破れによってラシュバ型のスピン偏極バンドでは、電子の結晶運動量とスピンの向きが一对一の関係性を持つ「スピン-運動量ロッキング」と呼ばれる特徴を持つため、電荷-スピン変換などによってスピントロニクス機能をもたせることが可能になる。また、強磁性化することで、バンド構造が変化し異常ホール効果の巨大化や量子異常ホール効果などの電磁応答が期待される。極性半導体 GeTe に磁性元素 Mn をドーブした (Ge, Mn)Te における電流印加による強磁性磁化の制御が報告された。磁性ラシュバ半導体の特異なバンド構造を反映し、磁化反転効率および異常ホール抵抗において顕著な正孔濃度依存性が観測された。磁性トポロジカル絶縁体では Cr をドーブした (Bi, Sb)<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> および非磁性層の薄膜積層構造において、磁性トポロジカル絶縁体に特有の量子現象である量子異常ホール効果が報告された。量子異常ホール効果は系の端に散逸のないスピン偏極したカイラルエッジ電流が流れる現象で、そのエッジ伝導の向きは磁化の向きと一对一に対応する。その特性を利用し、磁気力顕微鏡 (MFM) の探針を用いて磁化を直接書き込むことでエッジ電流を制御する実験が報告された。磁区構造に対応して端子間

の抵抗は量子化抵抗値の整数倍もしくは整数分の一の値を取ることが観測された。将来的に、電流誘起磁化反転技術と組み合わせることで、電気制御によるエッジ伝導制御につながると期待される。

### Session III 反強磁性体における巨大物性応答

報告者：東京大学大学院工学系研究科 関 宗俊

Session IIIでは、肥後友也氏（東京大学物性研究所）と木村健太氏（東京大学大学院新領域創成科学研究科）による2件の発表が行われた。

#### ワイル反強磁性体 $Mn_3Sn$ における室温での巨大なゼロ磁場応答

東京大学物性研究所 肥後 友也

強磁性体では電気や熱・光との応答を磁化の向きで制御できるため、ハードディスクドライブ（HDD）の磁気ヘッドやセンサー等で広く用いられている。また、インターネットの普及による社会の高度情報化は著しく、膨大な量のデータを低消費電力・高密度・高速で処理するためにさまざまな技術開発が行われており、例えば、強磁性体を用いた「磁気メモリ」は実用段階にまで達している。その一方で、磁化を持たない反強磁性体は、漏れ磁場の影響がなく、かつ、スピンダイナミクスが強磁性体に比べて数桁高速であるため、既存の磁気デバイスの更なる高機能化を実現しうる材料として近年注目を集めている。しかしながら反強磁性体では、強磁性体で見られるような電気や熱・光に対する巨大な応答は期待できないため、強磁性体と反強磁性体両方の利点を持った新たな磁性材料の開発が望まれていた。肥後友也氏らは、そのモデル物質として反強磁性体金属 $Mn_3Sn$ の研究を進めており、本講演ではその最新の研究成果が発表された。 $Mn_3Sn$ では、クラスター磁気八極子という磁気秩序変数を持った非共線スピン構造が実現しており、この特異な磁気対称性に起因して、強磁性体に匹敵するほどの大きな異常ホール効果、異常ネルンスト効果、磁気光学カー効果、室温・ゼロ磁場において現れることが見出された。これらの応答は、ワイル金属状態と呼ばれる特異な電子状態とも深く関係していることが明らかとなっており、従来の磁性体にはない新規な物性創出の舞台として、今後より研究が進展していくと期待される。また、最近ではバルク単結晶試料だけでなく、薄膜試料においても同様の巨大応答の観測に成功したという注目すべき報告もあった。これらの研究成果は、反強磁性体の特性を活かした新たなスピントロニクス素子の創製につながるものであり、極めて大きな意義を有している。

#### 電気磁気効果を介した反強磁性ドメインのイメージングと制御

近年、次世代スピントロニクス材料として、磁気記録デバイスの高密度化や高速動作が可能と期待される反強磁性体に注目が集まっている。しかし、マクロな磁化がないために通常の反強磁性体の外場応答は弱く、また、これに関連して、反強磁性ドメインのイメージングや制御も困難であった。本講演では、電気磁気効果を示す絶縁性反強磁性体における特異な光学応答の観測と、これを利用した反強磁性ドメインおよびその電場スイッチのイメージングに関する最新の研究成果が紹介された。電気磁気効果は、電場（磁場）の印加により磁化（電気分極）が誘起される現象であり、磁性の電場制御を可能とするのみならず、光の進行方向の正負で光学定数が変化する特異な非相反光学応答をも誘起する。この非相反光学応答の利用により反強磁性ドメインをイメージングすることが原理的には可能であるが、従来の反強磁性体で観測される非相反光学応答は極めて小さく、その実証には至らなかった。木村健太氏は、新たに合成された銅酸化物反強磁性体  $\text{Pb}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$  において、約4%にも達する非相反線二色性が可視光域で現れることを見出した。この値は、従来の反強磁性体で観測された非相反光学応答に比べて2桁も大きな値である。さらに、この巨大な非相反線二色性を利用し、反強磁性ドメインおよびその電場スイッチを偏光顕微鏡観察という極めてシンプルな手法でイメージングできることを初めて実証した。したがって、この反強磁性体では、特別な装置を用いることなく、磁気情報の「電場による書き込み」および「光による読み取り」が可能である。以上のように、この反強磁性体は基礎学術的に興味深いだけでなく、応用の観点からも非常に大きな可能性を有しており、スピントロニクス応用に向けた研究が今後一層進展していくものと期待される。

#### Session IV 強磁性酸化物：新物質相と巨大物性応答

報告者：東京大学大学院工学系研究科 田畑 仁

Session IV では、強磁性酸化物：新物質相と巨大物性応答に関する4件の講演（若林勇希氏、大矢忍氏、関宗俊氏、谷山智康氏）が行われた。

#### 4d, 5d 強磁性ペロブスカイト酸化物の分子線エピタキシー成長と物性開拓

NTT 物性科学基礎研究所 若林 勇希

まず、若林勇希氏（NTT 物性科学基礎研）から、“4d, 5d 強磁性ペロブスカイト酸化物の分子線エピタキシー成長と物性開拓”と題した講演がなされた。

ペロブスカイト酸化物は誘電性・超伝導性・磁性など様々な物性の宝庫であり、基礎・応用の

両面から盛んに研究されてきた。なかでも、スピン軌道相互作用 (SOC) の強い遷移元素を含む磁性体に対しては、SOC に由来した長距離強磁性秩序の形成が報告されており、これを材料の磁気特性の向上に繋げる観点からの研究も盛んである。実際、若林氏の研究グループでは、酸化物分子線エピタキシー (MBE) 技術により、SOC の大きな 4d、5d 遷移元素 (Ru、Os 等) を構成元素を含む磁性ペロブスカイト酸化物の新物質探索、品質向上に取り組んできた。その中で、全ての絶縁体及び酸化物の中で最高のキュリー温度  $T_C$  ( $\sim 1060$  K) を持つ、B-サイト秩序型ダブルペロブスカイト  $\text{Sr}_3\text{OsO}_6$  を世界に先駆けて合成・発見した。さらに、密度汎関数理論に基づくバンド計算により、 $\text{Sr}_3\text{OsO}_6$  では、5d 遷移元素 Os の大きな SOC に由来する  $J_{\text{eff}} = 3/2$  強磁性絶縁状態が形成されていることを明らかにした。また、このような新物質探索に加え、既知物質の高品質薄膜を作製するための機械学習を活用した MBE 成長の高効率化への取り組みについても報告した。具体的には、ベイズ最適化によって、強磁性金属酸化物  $\text{SrRuO}_3$  薄膜の MBE 成長の成長条件 (基板温度、Ru 原子供給量、オゾン供給量) に対する残留抵抗比の予想と探索を通じた最適化を行い、24 回の MBE 成長で残留抵抗比 (RRR) が 50 を超える高品質な  $\text{SrRuO}_3$  薄膜を得ることが出来たとの報告がなされた。4d、5d 遷移金属酸化物に特徴的な強いスピン軌道相互作用を活用したもので、**Spin-Orbitronics** の例である。

#### 強磁性酸化物界面における超低消費電力磁化スイッチング

東京大学大学院工学系研究科総合研究機構 大矢 忍

次に、大矢忍氏 (東大院工総合研究機構) より、“強磁性酸化物界面における超低消費電力磁化スイッチング” についての発表があった。

同氏からは強磁性ペロブスカイト酸化物 ( $\text{ABO}_3$ ) からなるオールエピタキシャルの磁気トンネル接合 (MTJ) で得られた超低消費電力磁化スイッチングに関する報告がなされた。ペロブスカイト酸化物には、強磁性、強誘電、2次元伝導、超伝導など様々な特性を示す材料系が多数存在し、多くの材料が近い格子定数を有しているため、それらの特性を融合した新たなデバイスが実現できると期待される。また、すべて類似の結晶構造を有する単結晶でデバイスを構成することによりスピン散乱を低減することで、物質が持つ本来の特性を引き出すことができる。本材料系では、多くの物質において d 軌道の電子が伝導を支配しており、s, p 軌道の伝導が支配的な一般的な金属材料では見られないような新たな機能性が実現できる可能性がある。大矢氏らは  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  (LSMO) /  $\text{SrTiO}_3$  (STO) / LSMO からなる MTJ を作製し、特異な極低電圧での磁化回転現象の観測に成功した。MTJ への印加電圧を 200 mV から 15 mV に変えると、磁場を印加しない状態で、上部 LSMO 層の磁化が面内で 90 度回転する現象が観測された。その時の電流密度は  $10^{-2}$  A/cm<sup>2</sup> 程度であり、この値は金属材料系におけるスピン輸送トルクやスピン軌道トルクを用いた電流による磁化反転

に必要な電流密度と比較すると 9 桁程度小さかった。磁気異方性の変調の大きさは約 300 fJ/Vm であり、この値は、電圧磁気異方性制御の研究で一般的に得られている変調量  $\sim 100$  fJ/Vm と比較しても大きい。この現象は、フェルミレベルにおける電子の軌道対称性が電圧で変化することにより起こっているものと考えられる。このような電子軌道の電圧制御を用いた磁気異方性の制御は、超高効率な磁化回転方式の実現に結びつく新たな手法として期待される。3d 遷移金属酸化物の強い電子相関（強相関電子系）における軌道の自由度を活用した **Orbitronics** の例である。

## 鉄酸化物薄膜における電気磁気特性の室温制御

東京大学大学院工学系研究科 CSRN 関 宗俊

引き続き、関宗俊氏（東大院工 CSRN）から、“鉄酸化物薄膜における電気磁気特性の室温制御”に関する講演があった。

遷移金属酸化物では、構成イオンの価数が物性発現において決定的な役割を担っているため、外部からイオンを注入して酸化物の構成イオンの価数を変調することにより、巨大な物性変化を誘起することが可能と期待される。講演では、室温強磁性酸化鉄や導電性高分子（ポリアニリン）をチャンネルに用いた全固体型イオン注入型素子の作製とその電気磁気特性制御について報告された。ポリアニリンは、酸化還元状態により分子構造と導電性が変化するという特徴を有している。このポリアニリンの薄膜の上に、プロトン伝導性電解質のナフィオン膜を形成してエレクトロクロミック素子を作製し、電圧印加によってポリアニリンへの  $H^+$  の挿入・脱離を誘起することにより、その導電性や光学特性および磁気抵抗特性を室温で変調することに成功した。本研究ではさらに、この素子原理を利用して、スピネル型鉄酸化物の磁気特性の室温制御を試みた。V 置換  $CoFe_2O_4$  ( $CoFe_{2-x}V_xO_4$ : V:CF0) 薄膜をオゾンアニールすると、膜中の  $V^{3+}$  が  $V^{5+}$  に酸化され、電荷補償の効果でカチオン欠損が導入される。このカチオン欠損型 V:CF0 薄膜の上に、イオン注入層としてプロトン伝導体・イットリア安定化ジルコニア (YSZ) の薄膜を堆積して素子を形成し、電圧印加でプロトンを挿入することにより、Fe-V 間の磁気相関が変調され、室温において V:CF0 の磁化が可逆的に変化することが分かった。この他にも、ウスタイト  $FeO-MgO$  におけるワイドギャップ p 型透明伝導性の実現や、マグネタイト  $AlRuFeO_4$  系における室温スピングラス等に関する報告もなされた。鉄酸化物の多価数機能およびレドックス機能を活用した **Chemitronics**、**Iontroncs** の例だと思われる。

## 界面マルチフェロイクスにおける電気磁気効果

名古屋大学理学研究科 谷山 智康

最後に、谷山智康氏（名大院理）から、界面マルチフェロイク材料における電気磁気結合効果のメカニズムと最近の研究の現状について紹介された後、ご自身の関連するいくつかのトピックスについての紹介がなされた。

はじめに、[Cu/Ni]多層膜/強誘電体 BaTiO<sub>3</sub> 界面マルチフェロイクスの電界誘起軌道弾性効果について紹介された。[Cu/Ni]多層膜は垂直磁気異方性を示すことが知られており、これまで講演者は [Cu/Ni]多層膜/BaTiO<sub>3</sub> において面直から面内への磁化配向の電界スイッチングを実証してきた。しかしその微視的起源は最近まで明らかでなかった。講演では、電界印加中での放射光磁気円二色性のオペランド計測により、電界印加に伴う面直-面内磁化スイッチングが界面歪みに伴うスピン角運動量の変化でなく、軌道角運動量の変化にその主たる要因があることを示す最新の研究成果が示され、議論された。

続いて、FeRh 合金、マンガン酸化物 La-Sr-Mn-O と強誘電体 PMN-PT とのヘテロ界面においても同様に大きな電気磁気結合効果が発現することが紹介された。強誘電ドメインのスイッチングに伴う磁気光学 Kerr 効果および強磁性共鳴信号の変化に加え、残留電界状態における磁気光学信号が、正負のいずれの電界から残留状態に到達したかに依存して明確な相違を示す結果が紹介され、これらの電界に伴う磁気応答の起源について議論された。本研究は **Interface Multi-Ferroics** の代表例であると思われる。