

高効率スピン軌道トルクに向けた 多元系金属の軌道ホール効果の第一原理計算

名 和 憲 嗣*

First-principles Study for Orbital Hall Effect of Multicomponent Metals Toward Highly Efficient Spin-orbit Torque

Kenji NAWA*

The orbital Hall effect, which generates a flow of orbital angular momentum of electron, is expected to boost magnetization switching of spin-orbit torque magnetic-random access memory, along with spin Hall effect, which generates a flow of spin angular momentum of electron. In this work, magnetic materials with large orbital Hall conductivity and spin Hall conductivity were explored by first-principles approach. The first-principles calculations, performed for monoatomic crystals and multicomponent metals of binary alloys and multilayers, found several promising candidates, with large spin-orbit coupling that is also essential for high conversion efficiency from orbital angular momentum to spin angular momentum.

1. はじめに

生成AIやIoTをはじめとする高度な情報技術は我々の生活を豊かにする一方で、膨大なデータ処理を常時必要とするために電力消費量の増大が深刻な社会課題となっている。今後さらに需要が高まるこれら技術の社会実装には、省エネルギー性に優れたメモリデバイスの開発が不可欠である。不揮発性磁気メモリ（MRAM）は省エネルギー性に優れ、またスピン軌道トルク型MRAM（SOT-MRAM）によるデータ書込み（磁化反転）技術が実用化されれば、現行のスピン移行トルク型MRAM（STT-MRAM）よりも飛躍的なデータ処理能力の高速化と低消費電力化が期待できる。SOT-MRAMの磁化反転効率は物質固有のスピンホール効果の大きさにより決定される。スピンホール効果とは、金属に電圧を印加したとき、その直交方向にスピン軌道相互作用に起因して純スピン流が生成される現象である。SOT-MRAMでは、生成された純スピン流を磁気トンネル接合素子の記録層に流すことで磁化を反転し情報を書き込む。この磁化反転技術の最近の研究から¹⁾、スピンホール効果に加えて軌道ホール効果も磁化反転効率を決定づける重要な因子であることが分かってきた。軌道ホール効果は、金属への電圧印加により電子の軌道運動（軌道角運動量）の流れが生成される現象である。軌道流という新奇な物理現象に関する学術的興味は当然ながら、大きな軌道ホール効果をもつ金属材料の設計は、SOT-MRAMの効率的な磁化反転に不可欠である。本研究では多種多様な単金属材料や、元素種組み合わせを考慮した2元系の金属合金や金属超格子における軌道ホール伝導度（OHC）およびスピンホール伝導度（SHC）を第一原理計算により評価し、これら物性の制御指針の構築およびSOT-MRAM開発に有望な候補材料を理論予測することを研究目的とした。

2. 計算モデルと手法

周期表の3d, 4d, 5d遷移金属の単金属と、いくつかの元素種を組み合わせた2元系金属合金および金属超格子を対象にOHCとSHCを第一原理計算から評価した。金属合金の原子組成比を変化させることで占有電子数を、また原子層レベルで金属元素を積層した超格子構造を用いることで界面効果を制御できるため、これらがOHCとSHCに与える影響を調べた。全電子フルポテンシャル線形化補強平面波法の第一原理計算と線形応答理論（久保公式）に基づきOHCとSHCを算出した。SOT-MRAMの磁化反転効率は $\theta_{\text{SH}}^{\text{eff}} \propto (\text{SHC} + \eta_{\text{LS}} \times \text{OHC})$ の関係がある¹⁾。ここで η_{LS} は、軌道角運動量（L）がスピン角運動量（S）へ変換されるLS変換係数であり、スピン軌道相互作用の大きさに依存することが分かっている。OHCを無駄なくスピン軌道トルクに変換する材料を設計すべく、OHCとスピン軌道相互作用の両方が大きな材料を探索する。

3. 計算結果と考察

単金属と2元素の金属合金および金属超格子のOHCとSHCの相関関係を図1に示す。まず単金属について、最大のOHCを示したのは4*d*遷移金属(4*d*-TM)のRu(~8000 S/cm)、次いで5*d*-TMのOsやIrとなった。Ru(4*d*-TM)のスピン軌道相互作用の大きさはOsやIr(5*d*-TM)のそれよりも小さいことから、OHCがスピン軌道相互作用に依存しないことが確認できる。SHCは5*d*-TMのPtで正の最大値(~2000 S/cm)、Wで負の最大値(~-1000 S/cm)となった。図1からスピン軌道相互作用が大きくなるにつれてSHCの絶対値は増大する傾向が見られ、また本研究のSHC値は先行研究の理論計算²⁾と比較して実験値³⁾と定量的にも一致する結果が得られた。

続いて、OHCが大きなRuとSHCが大きなPtのそれぞれを基とする2元素金属合金 $Ru_{1-x}X_x$ 、 $Pt_{1-x}X_x$ (X はTM元素)を対象に、原子組成比 x ($x=0.25, 0.50, 0.75$)を変化させながらSHCとOHCを評価した。

図1より、特定のRu基の金属合金($Ru_{0.50}Ir_{0.50}$, $Ru_{0.50}Os_{0.50}$, $Ru_{0.75}Rh_{0.25}$ 等)では単金属Ruと同程度のOHC値が得られた。また、特定のPt基の金属合金($Pt_{0.75}Pd_{0.25}$, $Pt_{0.75}Au_{0.25}$, $Pt_{0.75}Rh_{0.25}$ 等)では単金属Ptと同程度のSHC値が得られた。これら金属合金のスピン軌道相互作用は単金属のRuやPtとも同程度に大きい。さらに金属超格子の例として、 Cu_{3ML}/X_{3ML} や Ir_{3ML}/X_{3ML} の結果も図1に示す。ここで各原子は3層積層(3ML)とした。 Pt_{3ML}/Ir_{3ML} においてOHC(~6000 S/cm)とSHC(~1000 S/cm)の両方が比較的大きな値を示したが、電子構造の解析から超格子構造特有の界面効果の影響は顕著には見られなかった。本研究で調べた200程度の材料の中で図1の緑色で示した領域が、OHCとSHCの両方が大きく、且つスピン軌道相互作用も大きい高い LS 変換効率(η_{LS})、つまり優れたスピン軌道トルクの生成が期待できる材料群である。

図2に、本研究で調べた全ての系のOHCとSHCを*d*電子占有数に対する依存性として示す。図2(a)より、4*d*-TMのRuは*d*電子占有数が~6.5程度であり、これと同程度の*d*電子占有数をもつとき、多くの単金属系や金属合金のOHCが最大化する傾向が確認できる。同様にSHCにおいても*d*電子占有数に対して明瞭な依存性が見られ[図2(b)], 単金属5*d*-TMのPtの*d*電子占有数(~8.3)と同程度の材料(特に金属合金 $Pt_{1-x}X_x$)でSHCが最大化する。以上の結果は、SHCやOHCを決定づける重要な説明変数が*d*電子占有数であることを示唆している。

4. まとめと今後の展望

不揮発性磁気メモリ(SOT-MRAM)の効率的な磁化反転の実現にはスピンホール効果に加えて軌道ホール効果も重要な役割を担うため、大きなOHCとSHC、スピン軌道相互作用をもつ材料開発が不可欠である。本研究では、第一原理計算に基づく計算科学の立場から、単金属から2元素の金属合金および金属超格子のOHCとSHCを評価した。その結果、OHCは*d*電子占有数が、SHCはスピン軌道相互作用と*d*電子占有数が物性を決定づける重要な説明変数であることを解明するとともに、OHCとSHC、スピン軌道相互作用が大きな金属合金や金属超格子を理論予測できた。今後、より多元系の材料を対象に、元素種組み合わせや原子組成比、膜厚などの自由度を拡張したハイスループット第一原理計算によりデータベースを拡充させ、OHCとSHC、そしてスピン軌道相互作用の3つの観点からSOT-MRAM開発に有望な材料を理論開拓する。

REFERENCES

- 1) D. Go and H.-W. Lee, *Phys. Rev. Res.*, **2** (2020) 013177.
- 2) L. Salemi and P. M. Oppeneer, *Phys. Rev. Mater.*, **6** (2022) 095001.
- 3) M. Morota, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **83** (2011) 174405, 他.

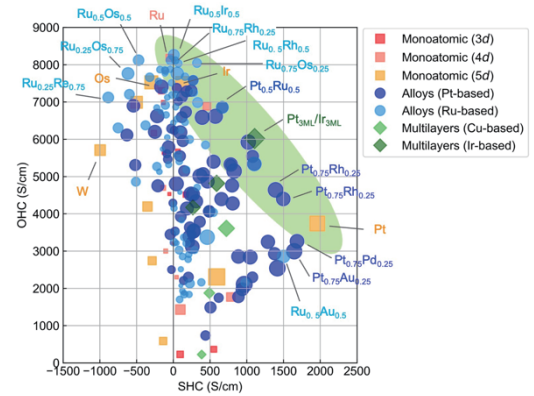


図1 軌道ホール伝導度 (OHC) とスピンホール伝導度 (SHC) の相関図。プロット点の大きさはスピン軌道相互作用力の大きさに対応する。

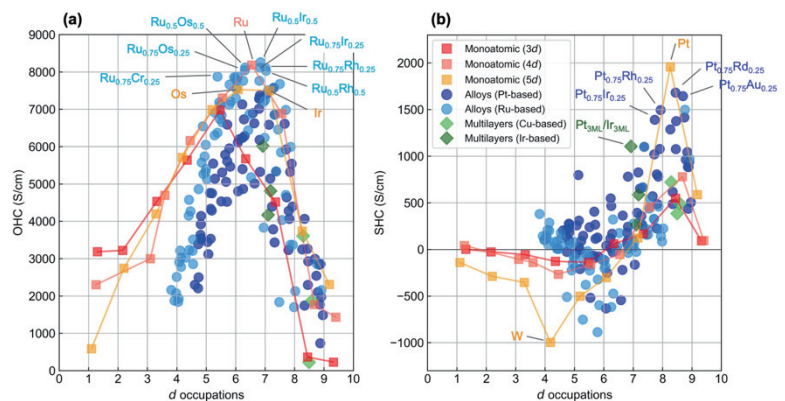


図2 (a) OHC と (b) SHC の *d* 電子占有数依存性。