

令和 5 年 10 月 24 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2022

課題番号：18K04875

研究課題名(和文) スピンナノ素子の圧力効果研究の確立

研究課題名(英文) Establishment of study on pressure effects of spin nano-systems

研究代表者

光田 暁弘 (Mitsuda, Akihiro)

九州大学・理学研究院・准教授

研究者番号：20334708

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：磁性体のナノ構造上で発現するスピン自由度に起因する新しい現象を発掘・探求するスピントロニクス分野が注目され、センサーやメモリーなどの応用も含めて盛んに研究されている。本研究では、スピントロニクス分野ではこれまで余り行われてこなかった圧力効果の実験を行う上での様々な問題を乗り越え、交換バイアス型スピンバルブ素子の巨大磁気抵抗効果や強磁性共鳴によるスピンポンピングに伴う諸現象の圧力効果を測定することに成功した。圧力効果はその他の実験条件を保ちながら現象の変化を追いかけることが可能であり、両現象の機構について物理的な考察を進めることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

圧力効果の研究はバルク結晶体の物性研究において強力な研究手段となっており、新しい高温超伝導体の発見など様々な研究に使われてきた。特に元素ドーピングなどの手法に比べると結晶のランダムネスの影響がなく、同一の試料を用いて圧力の変化による現象の変化を追いかけられる点は有利である。しかし、スピントロニクス現象に関する圧力効果の研究は15年ほど前に少し存在するのみで、殆ど行われてこなかった。本研究では、ナノ構造に圧力を加える際や圧力セル内に高周波信号を導入する際の困難を克服し、圧力実験の可能性を広げた。今後、現象の解明やデバイス開発の最適値を探る上で、圧力実験は強力な手法の1つとなりうると考える。

研究成果の概要(英文)：Recently, a variety of novel phenomena associated with spin degree of freedom in nanometer-size structures of magnetic materials have been discovered and examined extensively. This field, which is called spintronics, has attracted attention and extended novel application to such advanced devices as a sensor, a memory, and so on. This study is a trial to bring pressure effects to the spintronics field. Study of pressure effects on bulk materials has been a powerful tool and given us fruitful information. However, study of pressure effect on spintronics has been hardly carried out. In this study, we overcome difficulties of high-pressure experiments of spintronics materials and succeed in measuring giant magnetoresistance (GMR) effects in exchange-biased spin valve devices and spintronic phenomena accompanied by spin pumping induced by ferromagnetic resonance (FMR) under high pressure. Pressure effects enable us to discuss spintronic phenomena with preserving conditions except pressure.

研究分野：磁性物理学

キーワード：スピントロニクス 圧力効果

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスは、磁性体のナノ構造によってスピン自由度を利用した物理現象の探求や応用デバイスの構築を行う新しい学問分野である。既にこの分野の先駆的な研究成果である巨大磁気抵抗(GMR)効果はハードディスクの磁気ヘッドとして利用されている。更に最近では電荷の流れ(電流)を伴わないスピンの流れ(純スピン流)が実現され、これを利用した新しい物理現象の発掘、その機構の解明、および新デバイスへの応用などが盛んに研究されている。この分野において圧力を用いた研究は九大・巨海グループの先駆的な研究[1]を除いてほとんど行われてこなかった。圧力効果はバルク結晶体の物性研究において強力な研究手段であり、圧力誘起超伝導を始めとする多くの新現象を発掘するとともに、同一試料を用いて、圧力印加による物理パラメータの変化に伴う現象の変化を追いかけることができ、現象の機構解明にも繋がる重要な情報を提供してくれる。よって、スピントロニクス分野に圧力効果の手法を用いることは、この分野の研究をより進展させ、デバイスの最適化条件を探る一手段となることが期待される。その一方で、ナノ構造に圧力を加えたり、金属製の圧力セル内に高周波信号を入出力することに実験上の困難な点があり、これらの問題を克服していく必要もあった。

2. 研究の目的

そこで、本研究ではスピントロニクス現象を示すナノ構造に圧力を加えて、スピントロニクス現象の観測を実現すること、さらに圧力印加とともに物理量の変化を観測することを目的とした。ターゲットとしては、交換バイアス型スピバルブ(EBSV)素子の GMR 効果と強磁性共鳴(FMR)を用いたスピンポンピングによる純スピン流の生成とスピン-電荷変換効率について圧力効果を調べることにした。

3. 研究の方法

EBSV 素子は Ta(5nm) / Ru(2nm) / IrMn(7nm) / CoFe(2nm, ピン層) / Cu(3nm) / CoFe(2.5nm, 自由層) / Cu(1nm)の構造のものを用いた。膜に平行方向に±1200 Oe までの磁場を印加して磁気抵抗を直流 2 端子法で測定した。圧力は二層式ピストンシリンダー型圧力セル(内側に NiCrAl 合金、外側に CuBe 合金)を用いて発生させた(図 2 左)。静水圧力を発生させるために圧力媒体としてダフニオイル 7373 を用い、電極を付けた EBSV 素子とともにテフロンセルに封じ込め、圧力セルに入れて上下から加重を加えることで圧力を発生した。実際の圧力値は別途、マンガニン線の電気抵抗の圧力依存性を測定して校正した。スピンポンピングによる純スピン流の生成は Cu(100nm) / CoFeB(10nm) / Pt(5nm)の素子を用い、Cu 膜に GHz 帯の高周波電流を流すことによって CoFeB 強磁性膜の FMR を誘起した。これに伴い純スピン流が Pt 重金属膜に導入され、逆スピンホール効果によってスピン流が電流に変換される。この様子を圧力下で観測した。

4. 研究成果

EBSV 素子の圧力効果の結果を図 1 に示す。この実験の過程で EBSV 素子の表面は圧力媒体と反応して酸化している可能性が生じたため、素子表面を SiO₂ でコーティングする措置を行い、酸化の影響を排除した。図 1 の縦軸は十分に強い磁場をかけてピン層(P 層)と自由層(F 層)のスピンが平行になったときの電気抵抗 R_p で規格化してある。圧力を増加していくとゼロ磁場付近の電気抵抗が減少し、GMR 効果が弱くなっていることが分かる。これは P 層と F 層の間に挟まれた非磁性の Cu 層が縮むことによって、P 層と F 層のスピン間の相互作用が反強磁性的なものから強磁性的なものへ変化したことが考えられる。また、図 1 のゼロ磁場付近には幅の狭いループ状の領域が生じる。これは、F 層における磁区構造の変化に対応するもので、横幅が広いほど磁壁が動きにくいことを示している。図 1 では明確には見えないが、拡大して調べると、この横幅は 2GPa まではほぼ一定で、2GPa 以上で広くなる振舞に転じている。この圧力実験で用いた圧力媒体のダフニオイル 7373 は 2GPa 以上の圧力で固化して静水圧力性が急に失われることが指摘されている。本研究では 2GPa 以上で静水圧力性が失われた結果、試

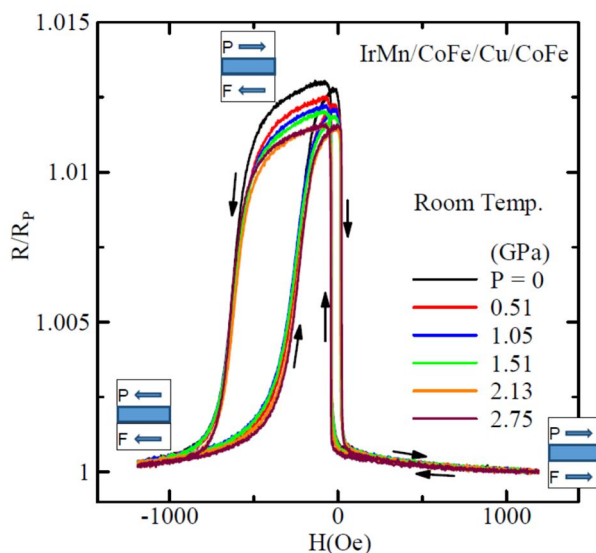


図 1. EBSV 素子の圧力下における磁気抵抗

料内に歪みが導入され、これが磁壁の動きを阻害しているものと考えられる。この結果はベトナムで開催された国際シンポジウムにおいて招待講演で発表した。

続いて、Cu-CoFeB-Pt 薄膜素子のスピンプンピングによる純スピンの生成とスピンの電荷変換効率の測定を圧力下で行った結果を示す。FMR によるスピン注入には、当初、通常用いられるアンテナを小型化して強磁性膜を密着させて圧力セル内に封入することを試みた

が、小型アンテナからの高周波磁場では十分な強度の FMR 信号を得られなかった。そこで、図 2 右のように十分な厚さの Cu 膜を CoFeB 膜上に蒸着し、高周波電流方向に対して ϕ だけ傾けた方向に静磁場を印加することによって、十分な強度の FMR 信号を誘起することができた。これによって純スピン流が CoFeB 層から Pt 層に流れ込み、Pt 層内の逆スピンホール効果によって電流に変換される。これを直流電圧 V_{DC} として検出することでスピン流-電流変換効率の測定を圧力下で行うことに成功した。圧力発生法は EBSV 素子の測定時と同様の方法を用いた。図 3 には常圧における FMR 周波数の印加磁場依存性を示す。図 3 挿入図に様々な周波数における V_{DC} の磁場依存性を示しているが、周波数を高くするにつれて共鳴周波数に対応するピークが高磁場側へシフトしている。この様子はキツェルの式(図 3 中の黒色曲線に対応)で説明できることから、挿入図のスペクトルピークは CoFeB 膜の FMR によって生じたものであることを示している。すなわち、素子を圧力セル内に入れた状態で十分な強度の FMR を誘起することに成功した。続いて V_{DC} の圧力変化の様子を図 4 左に示す。圧力印加とともにピークが高くなっている。この曲線はローレンツ関数の対称成分と非対称成分に分離することができ、前者は主に逆スピンホール効果、後者は主にスプリアス信号によるものと考えられる。

図 4 左の曲線はほぼ対称的な形状をしており、逆スピンホール効果が支配的であり、圧力とともに増強されていることが分かる。これをフィッティングによって分離して対称成分のピーク強度を圧力の関数で示したものを図 4 右に示す。常圧から 0.8GPa にかけて増加し、それ以上

の圧力で飽和していることがわかる。この結果はスピンのホール角が圧力によって変化していることを示しているが、スプリアスな外因的な効果の可能性についても考察した。外因的な効果の 1 つとして、圧力による体積収縮による試料断面積の減少がピーク強度を増加させている可能性がある。しかしながら、素子の直流抵抗は圧力に対して一定であること、ローレンツ関数の非対称成分も圧力に対して一定であることから、この可能性は否定された。したがって、本研究で逆スピンホール効果の圧力による増強を見いだすことができた。この原因として CoFeB 層と Pt 層間の界面ミキシングコンダクタンスの増強と Pt 層のスピンのホール角の増強の 2 つの機構が考えられるが、現在の実験結果だけでは結論づけることは難しい。今後、様々な二層膜の系について同様の系統的な測定を行うことが重要と考える。また、Pt についてのバンド計算が進行中であり、その予備的な結果はミキシングコンダクタンスの増強の可能性を示唆している。

以上のように、本研究ではスピンプンポンピング素子について圧力下の測定を実現し、一定の成果を得ることができた。この後、この成果をベースにして更に圧力効果の研究を推進していく。

[参考文献]

[1] K. Suenaga et al., Phys. Rev. Lett. **98** (2007) 207202.

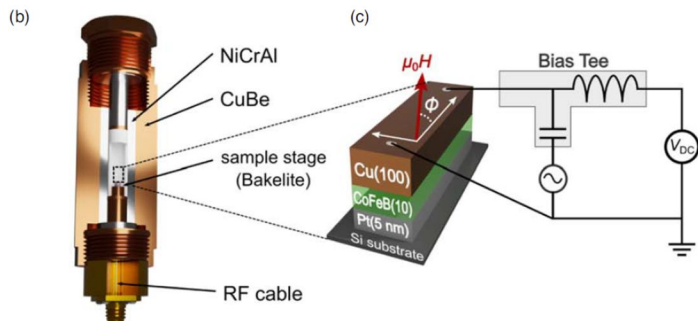


図 2. 圧力セルの断面図(左)とスピンプンピングによる純スピン流生成とスピン-電荷変換実験回路図(右)。

そこで、図 2 右のように十分な厚さの Cu 膜を CoFeB 膜上に蒸着し、高周波電流方向に対して ϕ だけ傾けた方向に静磁場を印加することによって、十分な強度の FMR 信号を誘起することができた。これによって純スピン流が CoFeB 層から Pt 層に流れ込み、Pt 層内の逆スピンホール効果によって電流に変換される。これを直流電圧 V_{DC} として検出することでスピン流-電流変換効率の測定を圧力下で行うことに成功した。圧力発生法は EBSV 素子の測定時と同様の方法を用いた。図 3 には常圧における FMR 周波数の印加磁場依存性を示す。図 3 挿入図に様々な周波数における V_{DC} の磁場依存性を示しているが、周波数を高くするにつれて共鳴周波数に対応するピークが高磁場側へシフトしている。この様子はキツェルの式(図 3 中の黒色曲線に対応)で説明できることから、挿入図のスペクトルピークは CoFeB 膜の FMR によって生じたものであることを示している。すなわち、素子を圧力セル内に入れた状態で十分な強度の FMR を誘起することに成功した。続いて V_{DC} の圧力変化の様子を図 4 左に示す。圧力印加とともにピークが高くなっている。この曲線はローレンツ関数の対称成分と非対称成分に分離することができ、前者は主に逆スピンホール効果、後者は主にスプリアス信号によるものと考えられる。

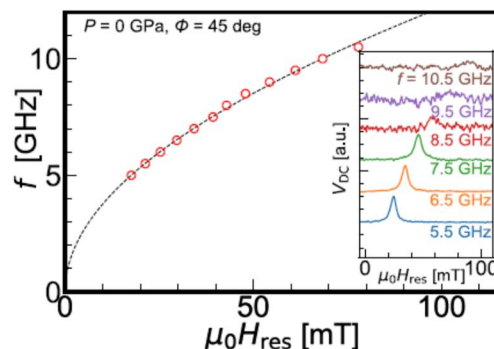


図 3. 強磁性共鳴周波数の印加磁場依存性。挿入図は様々な周波数において磁場掃引しながら V_{DC} を観測した様子。

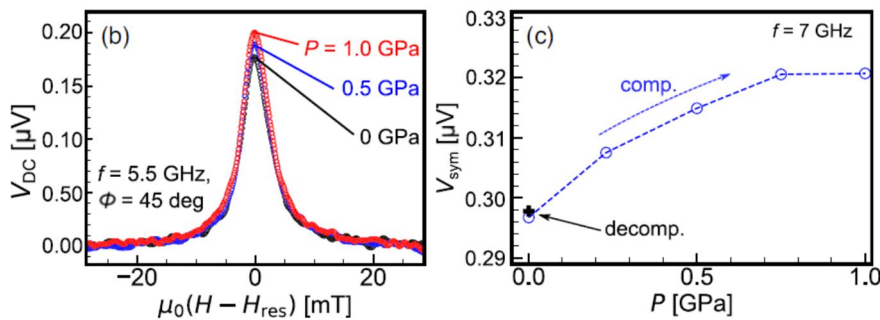


図 4. 強磁性共鳴の圧力依存性(左)と左図の信号から求めた対称成分の振幅の圧力依存性(右)。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Iimori Riku, Obinata Sora, Mitsuda Akihiro, Kimura Takashi	4. 巻 15
2. 論文標題 Pressure-induced enhancement of spin-charge conversion efficiency in CoFeB/Pt bilayer	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 033003-1~4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1882-0786/ac5501	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mitsuda Akihiro, Kaneda Motoki, Matsutomo Kanta, Kimura Takashi, Yuasa Hiromi	4. 巻 61
2. 論文標題 Pressure Effects on Magnetic and Transport Properties in CoFe-Based Spin Valve	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 1483~1486
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/matertrans.MT-MN2019040	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 飯森陸、大日方初良、光田暁弘、木村崇
2. 発表標題 バルク及び界面におけるスピン軌道相互の圧力依存性
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 飯森陸、大日方初良、光田暁弘、木村崇
2. 発表標題 CoFeB/Ag/Bi 三層膜における磁気抵抗効果とその圧力依存性
3. 学会等名 The 25th symposium on the Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松友寛太, 有木大晟, 宮崎圭司, 木村崇, 光田暁弘
2. 発表標題 高圧下におけるナノ磁性薄膜の電流磁気効果
3. 学会等名 電子情報通信学会・磁気記録・情報ストレージ研究会(MRIS)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Akihiro Mitsuda, Motoki Kaneda, Kanta Matsutomo, Takashi Kimura, Hiromi Yuasa
2. 発表標題 Novel pressure effects on functional nano spintronic devices
3. 学会等名 Joint 5th Int ' I Symposium on Frontiers in Materials Science & 3rd Int ' I Symposium on Nano-materials, Technology and Applications (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 松友寛太, 有木大晟, 木村崇, 光田暁弘
2. 発表標題 強磁性/常磁性二層膜構造における高圧下でのスピン依存型熱伝導現象
3. 学会等名 第124回日本物理学会九州支部例会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	木村 崇 (Kimura Takashi) (80360535)	九州大学・理学研究院・教授 (17102)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------