

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 28 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2014

課題番号：23244071

研究課題名(和文) スピン流を用いた物性制御法の探索

研究課題名(英文) Investigation of methods for controlling physical properties by using spin currents

研究代表者

大谷 義近 (OTANI, Yoshichika)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：60245610

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,500,000円

研究成果の概要(和文)：磁気相転移等の諸現象をスピン流により制御するためのスピン流注入素子設計及び候補物質の探索を遂行した。面内スピバルブの拡散スピン伝導を統一的に記述する解析モデルを構築し、設計指標であるスピン緩和時間の解析精度を格段に向上させた。理論と実験の両面から物質設計・検証を進め、24%の巨大な電流-スピン流変換効率を示す銅ビスマス希薄合金を開発した。スピントルク磁気共鳴実験を行い、スピンホール効果により有効ダンプ係数を20%変調することに成功した。超伝導体に準粒子スピン流を注入して、スピン寿命を励起電流で400%変調できることを実験的に示した。この成果は巨大な準粒子スピンホール効果の発見に繋がった。

研究成果の概要(英文)：We have investigated methods for controlling magnetic properties using spin currents and obtained following results: We have succeeded in fully describing spin current properties including the anisotropic spin absorption in lateral spin valves, which enables one to elucidate intrinsic spin relaxation mechanisms in nonmagnets. We have designed the best material exhibiting large spin Hall angle based on the first principle calculation and experimentally demonstrated that Cu-Bi dilute alloys exhibited a giant spin Hall angle, charge to spin currents interconversion efficiency of about 24%. Spin torque ferromagnetic resonance experiments demonstrated that the effective damping constant of Permalloy can be modulated 20% via the spin Hall effect of platinum. We have succeeded in injecting quasi particle mediated spin currents into superconducting niobium and discovered the spin lifetime was enhanced by 400%. This achievement led to the quasi-particle mediated giant spin Hall effect.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン流 スピンホール効果 スピン吸収 スピン注入 スピン緩和

1. 研究開始当初の背景

本研究開始時点において、強磁性ナノピラーの純スピンドラフト起磁化反転や絶縁体におけるスピントロニクス効果とスピンドラフトの伝搬実験がなされ、スピントロニクス研究は、スピンドラフト電流を用いて磁気物性を制御する従来型から、電荷の流れを伴わないスピンドラフト運動量のみの流れである純スピンドラフトを用いて金属から絶縁体まで多様な物質群の新奇な物性を創出する新世代型スピントロニクス研究へと新しい局面を迎えていた。このため、スピンドラフトを媒介として生じる新しい現象の探索やそれらの舞台となる物質群の開拓の必要性が叫ばれていた。

2. 研究の目的

本研究課題では、上述のような背景を踏まえて、純スピンドラフトのスピントルクや内部磁場に注目して研究目的を設定した。特にこれまでに独自に開発した高効率非局所スピンドラフト注入手法や巨大スピンドラフト効果を用いた物性開拓の道具立てとして活用することにより、微小磁気モーメントの発振励起、磁気相転移や金属絶縁体相転移等の諸現象をエネルギー効率良く発現させることを目指す。更に、これらの諸現象が現出する革新的な物質群を開拓し、素子設計手法を確立することを目的とする。

3. 研究の方法

以下に述べる二つの課題に関して、

(1) 第1の課題は、純スピンドラフトを用いたナノ磁性体磁化の発振励起である。これについては、既に先行研究で微小強磁性体の磁化を制御性良く反転させることに成功しているため、反転に必要なスピンドラフト密度や前駆歳差運動の周波数に関する最適化情報は有している。新たに解決すべき重要な点は、まず高いスピンドラフト蓄積から効率的にスピンドラフト密度を稼ぐための条件、次に微小磁性体がコヒーレント（一様な微小磁気モーメント（マクロスピンドラフト）として運動するための素子形状や最適な飽和磁化を持つ物質の条件、更に歳差運動するマクロスピンドラフトをナノ磁性体の内部磁場方向に向けようとするダンピングトルクとそれに抗するスピンドラフトトルクが釣り合う条件である。これらを、電気的手法を用いた実験から明らかにする。上記三つの条件の解明が第二の課題に資する所は少なくない。

(2) 第2の課題は、スピンドラフト蓄積誘起局所内部磁場による磁気相転移および金属絶縁体転移である。金属絶縁体転移は電子相関の織り成す多彩な現象であり、今まで磁場や電場と言った巨視的外場やキャリヤドープにより実現されてきた。一方、スピンドラフト物性研究の進展によりスピンドラフト蓄積（内部磁場）を発生させる技術も発展している。この二つを組み合わせることで、スピンドラフト蓄積により巨視的外場無しに磁気相転移あるいは金属絶縁体転移を発現させることを目指す。

以上の二つの課題を追求することで、最終的にはスピンドラフト注入を利用した物性制御を統一的に理解することを目指す。

4. 研究成果

研究の方法で説明した二つの課題について得られた成果を以下に纏める。

第1の課題である純スピンドラフトを用いた磁化ダイナミクスの発振励起については、最初に素子構造を再検討した。面内スピンドラフト構造を用いて磁化反転を行う構造ではナノ磁性体の他にもう一つの強磁性体をスピンドラフト注入端子として使用するため、二つの磁化状態を相対的に制御することが必要となる。このため素子を動作させる条件が複雑になる。そこで、スピンドラフトホール効果を用いて純スピンドラフトを発生させる方法に着目した。この手法を用いる素子では磁化ダイナミクスを示すナノ磁性体が

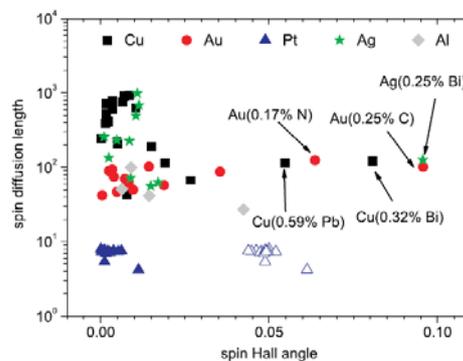


図1 スピンドラフト拡散長とスピンドラフトホール角の相関

唯一の強磁性体となる。純スピンドラフトを生成する効率は強磁性体を用いる場合は強磁性体のスピンドラフト偏極率であり、スピンドラフトホール効果の場合は、スピンドラフトホール角である。本研究では物質合成において制御性に優れた不純物によるスキュー散乱を起源として発生するスピンドラフトホール効果に着目して第一原理計算に基づいた不純物とホスト物質の組み合わせの選定を行った。その結果図1に示すようにCuやAgをホストに選び重元素であるBi、Pbを不純物として選択すると大きなスピンドラフトホール角が期待されることを明らかにした（論文⑩）。さらにこのアイデアに基づき、CuにBiを微量添加した物質を系統的に調べ24%に及ぶ巨大なスピンドラフトホール角を実現できることを実験的に明らかにした（論文⑩）。その他、スピンドラフトホール効果を示す物質探索の関連研究から5d遷移金属Irの酸化物を用いて大きなスピンドラフト抵抗が観測されることが分かり、スピンドラフト検出に最適物質であることを発見した（論文⑥）。

スピンドラフトを増強するために素子構造についても最適化した。具体的には、スピンドラフト注入端子を二つに増やして磁化を反平行に配向することにより集団スピンドラフトを、10ミクロンにも及ぶ金属ナノ細線中を拡散伝導させると同時に一回転歳差運動させること事に成功した（論

文⑦)。また、スピン伝導チャネルである銀ナノ細線の表面を MgO で被覆する事により表面スピンフリップ散乱を抑制できることを見出した(論文⑨)。これらの成果を元にして面内スピンバルブ内を拡散伝導する集団スピンを統一的に記述する解析解を導出した(論文⑧, ⑤)。これにより、これまで無視されていた強磁性電極が集団スピンの拡散運動に及ぼす効果を定量的に考慮して正確にスピン緩和時間を算出することが可能となった。副産物ではあるが、この成果を用いることでグラフェン中のスピン緩和時間が過小評価される問題を解決できることを示した(論文投稿中 arXiv:1411.2949)。

接合界面にスピンホール効果により生成される純スピン流の総量は界面の面積に比例するため接合面積を大きくする事によりスピン注入効率を上げることができる。従って、ダンピングトルクを相殺することが容易であるスピントルク磁気共鳴の手法について、上述の面内スピンバルブ構造を用いる構造と並行して研究を進めた。その結果、白金のスピンホール効果を用いて $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ 中の有効ダンピング係数を 20% 変調する事に成功した(論文③)。現在本研究プロジェクトの発展研究として、上述の Cu-Ir と Cu-Bi 希薄合金を用いてダンピング係数の変調実験を試みている。

第2の課題のスピン蓄積誘起局所内部磁場による磁気相転移および金属絶縁体転移については、予想以上に困難を極めた。スピン蓄積を用いて相転移を引き起こすためには、まず相転移に伴って生じる分域構造(強磁性ドメイン)の大きさを知る必要がある。このため、候補物質として絶縁体 EuS に Gd をドーブした Gd-EuS を用いて磁化測定と低温透過電子顕微鏡観察を対比させる実験を行った。その結果、 Gd ドープ量に応じて s - f 交換相互作用が増強されキュリー温度の増大(15 K から 80 K)と同時に磁気ドメインも増大すること、これらの物性変化に伴い相転移を特徴付けるユニバーサリティクラスもハイゼンベルグ型から平均場型に変化することが分かった

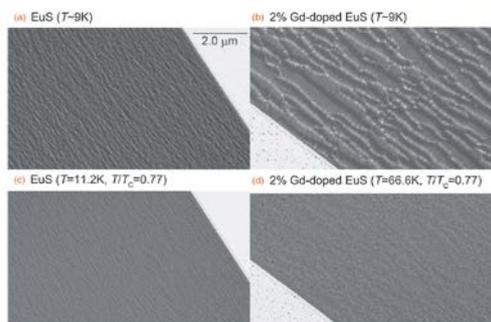


図2 EuS および Gd-doped EuS の強磁性状態 (a)(b)とキュリー温度近傍(c)(d)のローレンツ法で観測された磁区構造。

(論文④)。

しかしながら図2(b)に示すように予想以上にドメイン構造は複雑であり、微細化によ

り制御性が向上する可能性は低いと判断し、この物質を用いてスピン流注入誘起相転移の研究をこの物質で続けることを断念した。

そこで、スピン注入に伴い非線形な効果を出現させる事を目的に、超伝導体 Nb への非局所スピン注入を行った。その結果、超伝導体中に準粒子スピン流を非局所に注入することが出来ることを見出した。さらにこの現象を詳細に調べたところ、スピン緩和時間が純スピン流の励起電流に非線形に応答することが分かった。具体的には、図3に示すように

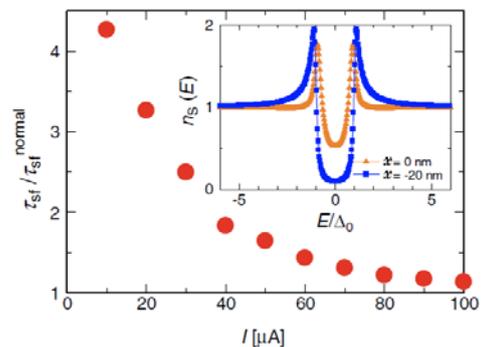


図3 常伝導状態のスピン緩和時間で規格化した超伝導状態のスピン緩和時間の励起電流 I 依存性。挿入図は、非局所注入接合界面の超伝導 Nb の状態密度の計算結果。

励起電流 I を低減させるとスピン緩和時間は常伝導状態に比べて4倍以上に増大することを見出した(論文②)。

以上を纏めると、本研究の主な成果は以下の通りである。

1. スピン流を効率よく生成するための物質探索を行い、計算と実験の両面から Cu-Bi あるいは Ag-Bi 希薄合金が有力候補であることを見出した。実験的な検証を行い Cu-Bi 希薄合金が 24% のスピンホール角を有することを見出した。その他酸化物電極材料である $5d$ 遷移金属 Ir の酸化物が大きなスピンホール角を有し、抵抗率が大きいことからスピン流検出に有力な物質であることを見出した。
2. スピントルク強磁性共鳴の手法を用いてスピンホール効果による有効ダンピング係数を 20% 変調する事に成功した。
3. 面内スピンバルブ内を拡散伝導する集団スピンを統一的に記述する解析解を導出したことで、正確にスピン緩和時間を決定することが可能となった。
4. 超伝導体 Nb への非局所スピン注入に成功した。準粒子スピンが注入されることおよびスピン緩和時間が常伝導状態に比べて4倍以上に増大することを見出した。

以上の4つのことからスピン吸収効果およびスピンホール効果がスピン注入による物性制御の道具立てとして有用であることが分かった。特に超伝導 Nb への非局所スピン注入は超伝導体の準粒子スピン流の緩和時間を制御

するための有力な手法であり、逆スピンホール効果を観測する有効な道具立てとなることが期待される。このことに着目して発展研究を続けた結果、準粒子を媒介とした巨大逆スピンホール効果は常伝導状態と比べて2000倍に増強されることを発見した(論文①)。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 30 件) 全て査読有

- ① T. Wakamura, H. Akaike, Y. Omori, Y. Niimi, S. Takahashi, A. Fujimaki, S. Maekawa, and Y. Otani, "Quasiparticle-mediated spin Hall effect in a superconductor", Nature Materials AOP (2015). DOI:10.1038/nmat4276
- ② T. Wakamura, N. Hasegawa, K. Ohnishi, Y. Niimi, and Y. Otani, "Spin injection into a superconductor with strong spin-orbit coupling", Phys. Rev. Lett. 112, 036602-1~5 (2014). <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.036602>
- ③ S. Kasai, K. Kondou, H. Sukegawa, S. Mitani, K. Tsukagoshi, and Y. Otani, "Modulation of effective damping constant using spin Hall effect", Appl. Phys. Lett. 104, 092408-1~3 (2014). <http://dx.doi.org/10.1063/1.4867649>
- ④ H. Idzuchi, Y. Fukuma, H. S. Park, T. Matsuda, T. Tanigaki, S. Aizawa, M. Shirai, D. Shindo, and Y. Otani, "Critical exponents and domain structures of magnetic semiconductor EuS and Gd-doped EuS films near Curie temperature", Appl. Phys. Exp. 7, 113002-1~4 (2014). doi:10.7567/APEX.7.113002
- ⑤ H. Idzuchi, Y. Fukuma, S. Takahashi, S. Maekawa, and Y. Otani, "Effect of anisotropic spin absorption on the Hanle effect in lateral spin valves", Phys. Rev. B 89, 081308(R)-1~5 (2014). <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.89.081308>
- ⑥ K. Fujiwara, Y. Fukuma, J. Matsuno, H. Idzuchi, Y. Niimi, Y. Otani, and H. Takagi, "5d iridium oxide as a material for spin-current detection", Nature Commun. 4, 2893-1~6 (2013). doi:10.1038/ncomms3893
- ⑦ H. Idzuchi, S. Karube, Y. Fukuma, T. Aoki, and Y. Otani, "Impact of interface properties on spin accumulation in dual-injection lateral spin valves", Appl. Phys. Lett. 103, 162403-1~4 (2013). <http://dx.doi.org/10.1063/1.4824897>

- ⑧ H. Idzuchi, Y. Fukuma, and Y. Otani, "Towards coherent spin precession in pure-spin current", Scientific Reports 2, 628-1~5 (2012). doi:10.1038/srep00628
- ⑨ H. Idzuchi, Y. Fukuma, L. Wang, and Y. Otani, "Spin relaxation mechanism in silver nanowires covered with MgO protection layer", Appl. Phys. Lett. 101, 022415-1~4 (2012). <http://dx.doi.org/10.1063/1.4737001>
- ⑩ Y. Niimi, Y. Kawanishi, D. H. Wei, C. Deranlot, H. X. Yang, M. Chshiev, T. Valet, A. Fert, and Y. Otani, "Giant spin Hall effect induced by skew scattering from Bismuth impurities inside thin film CuBi alloys", Phys. Rev. Lett. 109, 156602-1~5 (2012). <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.156602>
- ⑪ M. Gradhand, D.V. Fedorov, P. Zahn, I. Mertig, Y. Otani, Y. Niimi, L. Vila, and A. Fert, "Perfect alloys for spin Hall current-induced magnetization switching", SPIN 2, 1250010-1~8 (2012). DOI: 10.1142/S2010324712500105

[学会発表] (計 59 件 内招待講演 30 件)

- ① Y. Niimi, and Y. Otani "Giant spin Hall effect in Cu-based alloys and its application (invited)", BIT's 1st Annual World Congress of Smart Materials 2015, Busan, Korea, March 2015.
- ② Y. Niimi, and Y. Otani, "Spin Hall effect in spin glass systems", APS March Meeting 2015, San Antonio, USA, March 2015.
- ③ Y. Otani, K. Kondou, Y. Niimi, S. Kasai, H. Sukegawa & S. Mitani, "Thickness dependence of SH angle evaluated by means of ST-FMR for Ni₈₀Fe₂₀/Pt (or Pd) bilayer (invited)", Wilhelm und Else Heraeus Seminar on spin-orbit-driven transverse transport phenomena, Bad Honnef, Germany, December 2012.
- ④ Y. Otani "Giant spin Hall effect induced by doping Copper with small amount of strong spin orbit coupling impurities (invited)", 2013 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston, USA, December 2013.
- ⑤ Y. Niimi and Y. Otani, "Giant spin Hall effect induced by skew scattering on large SO impurities in copper", CEA seminar, Grenoble, France, November 2013.
- ⑥ Y. Niimi and Y. Otani,

"Giant spin Hall effect induced by skew scattering from large SO impurities in copper (invited)", International Japanese-French Workshop on Spintronics, Orsay, France, November 2013.

- ⑦ Y. Otani,
"Static and dynamic measurements of spin Hall effects (invited)", The 2nd STT-MRAM Global Innovation Forum 2013, Tokyo, November 2013.
- ⑧ Y. Otani, H. Idzuchi, and Y. Fukuma,
"Long distance spin precession to characterize dynamic properties (invited)", EASTMAG 2013 Trends in MAGnetism, Vladivostok, Russia, September 2013.
- ⑨ Y. Niimi, Y. Kawanishi, D. H. Wei, C. Deranlot, H. Yang, M. Chshiev, T. Valet, A. Fert, and Y. Otani, "Giant spin Hall effect induced by skew scattering on large SO impurities in copper (invited)", SPIE NanoScience + Engineering, San Diego, USA, August 2013.
- ⑩ K. Kondou, H. Sukegawa, S. Mitani, S. Kasai, and Y. Otani,
"Dynamic measurement of spin Hall effects in nonmagnetic/ferromagnetic bilayer films (invited)", SPIE NanoScience + Engineering, San Diego, USA, August 2013.
- ⑪ Y. Otani, K. Kondou, Y. Niimi, S. Kasai, H. Sukegawa and S. Mitani, "Thickness dependence of SH angle evaluated by means of ST-FMR for Ni₈₀Fe₂₀/Pt (or Pd) bilayer (invited)", Wilhelm und Else Heraeus Seminar on spin-orbit-driven transverse transport phenomena, Bad Honnef, Germany, December 2012.
- ⑫ Y. Fukuma, H. Idzuchi, and Y. Otani,
"Giant enhancement of spin accumulation and long-distance spin precession in lateral spin valves", 2012 Workshop on Innovative Nanoscale Devices and Systems (WINDS), Kohala Coast, USA, December 2012.

[その他]

ホームページ等:

<http://www.riken.jp/lab-www/nanomag/indexjpn.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

大谷 義近 (OTANI, Yoshichika)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号 : 60245610

(2)研究分担者

新見 康洋 (NIIMI, Yasuhiro)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号 : 00574617

(2)研究分担者

福間 康裕 (FUKUMA, Yasuhiro)

(H23→H25)

理化学研究所・基幹研究所・研究員

研究者番号 : 90513466