

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 4 日現在

機関番号：51601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24710154

研究課題名(和文)負のスピンの分極材料の磁気緩和制御と高効率微細スピン注入源への新展開

研究課題名(英文)Magnetic damping control of ferromagnetic thin films with negative spin polarization and development of highly efficient spin-current generator

研究代表者

磯上 慎二(Isogami, Shinji)

福島工業高等専門学校・その他部局等・准教授

研究者番号：10586853

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：負のスピンの分極材料であるFe4N薄膜を用いた高効率スピン注入源の開発を目的として研究を行った。窒素とアルゴンの混合ガスによる反応性スパッタリング法と赤外線集光加熱プロセスを用いて、高品質Fe4N/Pt接合膜試料の作製に成功した。Fe4NからのスピンプンピングによってPt薄膜で発生するインバーススピンホール起電力は、従来使用されてきたNiFeなどの強磁性膜に比べて約1桁高い値を示すことを見出した。これはスピン流生成効率において負のスピンの分極材料を用いたFe4N/Pt系の優位性を示唆している。

研究成果の概要(英文)：Highly efficient spin-current generator was developed using Fe4N thin films with negative spin polarization. The high quality Fe4N/Pt bilayer films were fabricated by the reactive sputtering with Ar and N2 gas mixture during thermal treatment using the focused IR heating system. The electromotive force due to inverse spin-Hall effect generated by spin-pumping from the Fe4N films exhibited one order larger value, compared with the NiFe conventional films. The results implied that our developed Fe4N/Pt systems provided highly spin-current generator.

研究分野：磁性薄膜材料

キーワード：窒化鉄 スピン流 スピンプンピング 磁気緩和

1. 研究開始当初の背景

これまでハードディスク装置の磁気ヘッドや磁気メモリ応用に関する研究開発が盛んであった、CoFeB 強磁性電極と MgO トンネル障壁層を用いたスピナルブ型トンネル磁気抵抗素子(以下、MgO-TMR 素子)は、近年その高周波特性に興味が行きつづける。例えば、スピナルブトランジスタ、スピントルクダイオード¹⁾に代表されるように、GHz 帯で歳差運動するスピンの高周波応答やスピン分極電流を活用した新奇電子デバイスの創成が注目を浴びている。これらのデバイスにおける閾値電流密度は磁気緩和定数(α)に比例するため、その低減化が課題となる。一方でスピンの歳差運動に伴う磁気的ノイズの出現は α と密接に関わるため重要な因子である。よって α の深い理解や制御可能性を探る検討、また新奇電子デバイス創成に貢献する特異な材料物性を有する磁性材料探索は何年も先の将来を見据えた研究として発展させなければならない。しかしながら、デバイス消費電力(閾値電流密度)の低減化や特異な材料物性を有する磁性材料探索は研究者それぞれが試行錯誤するものの、積層構造の複雑化や作製プロセスの煩雑さを招いてしまう点に課題を残し、将来への発展性に乏しい。

2. 研究の目的

(1) スピン分極率が負である Fe₄N 薄膜の磁気緩和の解明と、その制御技術の確立を第一の目的とした。
スピン分極率が正である従来の磁性材料(例: NiFe 薄膜)の磁気緩和機構に関して、強磁性共鳴法の実験が古くから行われると同時に、いくつかの理論^{2,3)}が提唱されている。しかし、申請者が新しく着目しているスピン分極率が負の材料の磁気緩和に関して、国内外を問わず全く行われていない。研究期間の前半に従来の材料に対してと同様の検証実験を通して、磁気緩和過程が従来の材料と違う点、同じ点を明確にする。そして将来のデバイス応用可能性を拡張するため α の制御技術の確立し、制御幅の定量化を行う。その検討の中で、将来の量産化に対応可能な製造プロセスの提案を目指し、磁気緩和に及ぼすクリーン性(成膜機の真空度、基板加熱プロセス、基板洗浄)の影響に関する基礎データを蓄積する。

(2) スピン分極率が負である Fe₄N 薄膜をスピン流源とした新奇電子デバイスへの展開を第二の目的とした。
スピン分極率が正である従来の磁性材料(例: NiFe 薄膜)から創出したスピン流を半導体やグラフェンに注入する初期検討が行われている。しかし未だ注入を確認できた段階で、検出電圧の増大手法やスピン流輸送

の高効率化は今後の発展課題である。本研究では負のスピン分極率を有し、従来材料とは電子構造も異なる Fe₄N 薄膜をスピン源としたとき、検出電圧の符号と絶対値の特徴を明確にして、従来に対する利点を見出す。この比較検討の中で、スピン流源材料の電子構造とスピン流の種類(帰属する電子軌道)との関係を考察する。

3. 研究の方法

磁気緩和定数(α)および薄膜磁気特性の測定にはそれぞれ、電子スピン共鳴装置および振動試料型磁力計を用いた。薄膜試料の作製には DC マグネトロンスパッタリング装置と赤外線加熱装置を用いて行った。次に研究の着眼点を示す。

(1) 負のスピン分極を有する Fe₄N 薄膜の磁気緩和機構を明らかとする検証実験として 2 つの方法から研究を行った。

スピンポンピング効果を含む実効的 α の磁性膜厚依存性の検証。
 α の温度依存性(低温側)の検証。

(2) Fe 薄膜にそれより原子番号が小さいバナジウム(V)を第三元素として添加したところ、 α が低減したとの報告を参考として⁴⁾、 α の制御方法を確立するために Fe₄N への軽元素添加を試みた。

(3) 高濃度純スピン流源の実現へ向けた検証を行うために以下 2 つの方法から研究を行った。

本研究の主眼である負のスピン分極を有する強磁性 Fe₄N 薄膜を用いること。

Fe₄N 薄膜の結晶性を限りなく高めて、高効率なスピンポンピング効果を実現すること。

4. 研究成果

(1) Fe₄N 薄膜における磁気緩和機構の解明。接合非磁性および膜厚依存性。

従来の強磁性薄膜と比較して、負のスピン分極を有する Fe₄N の磁気緩和機構を研究するため、まず膜厚依存性の検証を行った。図 1 はその結果を示す。⁵⁾全膜厚に対する Fe₄N 系の α は NiFe 系のそれより大きい値を有することが見て取れる。また接合材料に関しては、Pt 接合の NiFe では膜厚に反比例するが、Cu 接合ではほぼ一定となっていることが判る。これは、接合する材料のスピン軌道相互作用が Pt の方が強いことに起因している。このような強いスピン軌道相互作用によって、界面のスピンポンピングが促進され、膜厚の低下に伴い α が大きく増大したと考えられる。⁶⁾それに対し、Cu / Fe₄N 系においては NiFe 同様にほぼ一定の α が得られたが、Pt 接合では逆に膜厚の増加に伴う α の増大が認

められた．別途，保磁力の Fe_4N 膜厚依存性を実験で確認したところ， α の変化とよく対応した．従って， $\text{Fe}_4\text{N}/\text{Pt}$ 系における α の増大は，少なくとも Pt 接合による磁気異方性の増大に起因することを明らかとした．磁気異方性は接合材料，接合界面格子歪みに依存するため，これらの制御が α の制御に直結することが示唆される．

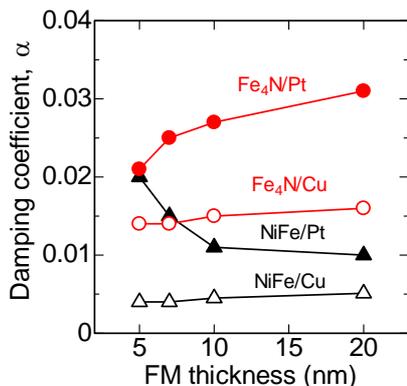


図 1 Pt, Cu と接合する Fe_4N および NiFe の磁気緩和定数 (α) の膜厚依存性

磁気緩和定数の温度依存性．

図 2 は薄膜面直方向の外部磁場角度依存性の実験から求めた真性的 α の測定温度依存性を示す．本研究では Fe_4N 擬単結晶薄膜 100 nm の試料を用いている．外部磁場方向が [100] (磁化容易軸) と [110] (磁化困難軸) では，互いに異なる α が得られた．しかし約 180 K より低温側ではその大小関係が逆転し，[110] 方向の α が増大することが確認された．以上の実験結果は， Fe_4N 固有のスピノ軌道相互作用ならびに，逆数が温度と等価であるスピノ緩和時間 (τ) を仮定して行った α の第一原理計算結果においても同様の現象が示された⁷⁾．従って，磁気緩和の制御の観点ではスピノ軌道相互作用の制御が鍵であると結論付けられる．このように約 180 K での逆転現象は国内外を問わず初めて見いだされたものの，未だ完全に理解するには至っていない．今後は結晶性のよい薄膜のダイナミクスで重要なマグノン励起の方位依存性の観点から検討を進める必要がある．

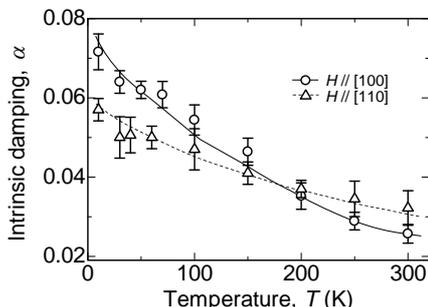


図 2 真性的 α の測定温度依存性

(2) $\text{Fe}_4\text{N}/\text{Pt}$ 系におけるスピノポンピング効率の定量評価，ならびにスピノ流の生成．

図 3 は $\text{Fe}_4\text{N}/\text{Pt}$ 試料におけるスピノポン

ピングの際に得られた起電力の，マイクロ波電力ならびに掃引磁場強度依存性を示す．起電力は Pt 薄膜表面に配置した二端子間電圧に対応する．マイクロ波電力は 5 mW から 127 mW まで増加させながら起電力を測定した．例えば $P = 127$ mW に着目すると，外部磁場を 0 から 200 mT へ増強する際，およそ 75 mT の強度でピークをとる起電力スペクトルが得られた．同時に測定していた強磁性共鳴スペクトルと照らし合わせると，75 mT は共鳴磁場強度に対応することが確認された．ここで，単磁区面内磁化における強磁性共鳴の理論式： $(\omega/\gamma)^2 = H_{\text{res}}(H_{\text{res}} + 4\pi M_{\text{eff}})$ ，を用いて共鳴磁場を解析的に見積もると，75 mT は妥当であることを確認した．ここで ω , γ , H_{res} , $4\pi M_{\text{eff}}$ はそれぞれ，マイクロ波角周波数，ジャイロ磁気定数，共鳴磁場，有効磁場を示す．別検討において，外部磁場の方向を反転させて同様の磁場強度依存性を調べたところ，起電力スペクトルの符号が反転した．これはスピノポンピングで生じたスピノ流が Pt 薄膜内部におけるインバーススピノホール効果によって起電力に変換されたことを意味する．以上は，負のスピノ分極をもつ金属強磁性薄膜からもスピノ流を生成可能であることを示し，国内外を問わず初の結果である．

続いてスピノ流生成効率を定量的に議論するため， $\text{Fe}_4\text{N}/\text{Pt}$ 界面におけるミキシングコンダクタンス ($g_r^{\uparrow\downarrow}$) を見積もった．その結果を表 1 にまとめる．従来の NiFe/Pt 界面に対して 18 倍ほど効率が高いことが判った．これと負のスピノ分極との因果関係に関しては完全には理解されていないが，将来のスピノ流デバイスの応用へ向けた重要な結果であると考えられる．

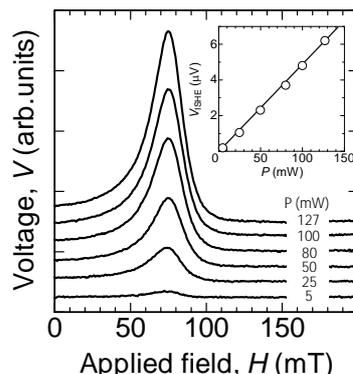


図 3 起電力信号のマイクロ波電力依存性

表 1 Fe_4N および $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ との界面におけるミキシングコンダクタンス ($g_r^{\uparrow\downarrow}$)

	$V_{\text{ISHE}} [\mu\text{V}]$	$g_r^{\uparrow\downarrow} [\text{m}^2]$
Fe_4N	4.4	1.2×10^{20}
$\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$	1.3	6.7×10^{18}

< 引用文献 >

A. A. Tulapurkar, et. al., *Nature*, **438**, 339 (2005).

V. Kambersky, *Can. J. Phys.*, **48**, 2906 (1970).
S. Kimura, et. al., *J. Phys. Soc. Jpn.*, **72**, 99 (2003).
C. Scheck, et. al., *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 117601 (2007).
S. Isogami, et. al., *Jpn. J. Appl. Phys.*, **52**, 073001 (2013).
Y. Tserkovnyak, et. al., *Appl. Phys. Express*, **6**, 063004 (2013).
S. Isogami, et. al., *J. Magn. Soc. Jpn.*, **38**, 162 (2014).

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計3件)

“Temperature and crystal orientation dependence of magnetic damping in epitaxial Fe₄N thin film”.
S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma and M. Takahashi, *J. Mag. Soc. Jpn.*, **38**, 162-168 (2014).
https://www.jstage.jst.go.jp/article/msjmag/38/4/38_1406R001/_pdf
“Enhancement of spin pumping efficiency in Fe₄N/Pt bilayer films”
S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma and M. Takahashi, *Appl. Phys. Express*, **6**, 063004-1-4 (2013).
DOI:10.7567/APEX.6.063004
“The enhancement of magnetic damping in Fe₄N films with increasing thickness”
S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma and M. Takahashi, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **52**, 073001-1-3 (2013).
DOI:10.7567/JJAP.52.073001

〔学会発表〕(計6件)

「多結晶 Co 薄膜におけるスピンプンピングへ及ぼす基板加熱中成膜法の効果」
磯上慎二，日向慎太郎，第 62 回応用物理学会春季学術講演会，11a-P2-39，東海大学（神奈川）2015 年 3 月 11 日。
“Tunable spin pumping efficiency depending on crystallographic structures in hcp-Co/Pt films”.
S. Isogami and S. Hinata, The 59th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, FV-09, Hawaii (USA), November 6th (2014).
“Generaton of spin current from ferromagnetic materials with negative spin polarization”.
S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma and M. Takahashi, BT-14, The 50th International Magnetism Conference, Dresden (Germany), May 5th (2014).

「擬単結晶γ'-Fe₄N 薄膜における磁気緩和の温度ならびに結晶方位依存性」
磯上慎二，角田匡清，大兼幹彦，佐久間昭正，高橋 研，第 37 回日本磁気学会学術講演会，5aD-10，北海道大学（札幌）2013 年 9 月 5 日。

“Enhancement of magnetic damping with increasing γ'-Fe₄N film thickness”.
S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma and M. Takahashi, QD-04, The 3rd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications, Taichung (Taiwan), July 23rd (2013).

“Generation of spin current from γ'-Fe₄N film”.

S. Isogami, M. Tsunoda, M. Oogane, A. Sakuma and M. Takahashi, The 2nd International Conference of AUMS, 5aD-4, Nara Kasugano International Forum (Nara), October 5th (2012).

〔産業財産権〕

出願状況（計1件）

名称：「論理演算素子」

発明者：磯上慎二

権利者：独立行政法人国立高等専門学校機構

種類：特許

番号：特開 2015-15597 号

出願年月日：平成 25 年 7 月 4 日

国内外の別：国内

6 . 研究組織

(1)研究代表者

磯上 慎二 (Isogami, Shinji)

福島工業高等専門学校・一般教科物理科・

専攻科 産業技術システム工学専攻

准教授

研究者番号：10586853

(2)研究協力者

角田 匡清 (Tsunoda, Masakiyo)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：80250702

大兼 幹彦 (Oogane, Mikihiro)

東北大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：50396454

佐久間 昭正 (Sakuma, Akimasa)

東北大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30361124