

機関番号：12601

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2010

課題番号：19048013

研究課題名（和文） 新しいスピン流生成・操作手法の探索

研究課題名（英文） Establishing novel methods for spin current generation and manipulation

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

研究成果の概要（和文）：

スピン依存伝導を駆動原理とするスピントロニクス素子の開発には、スピン流の生成、輸送、操作、そして検出する手法を確立することが必要不可欠である。本研究課題では、スピン流の生成・操作に着目して、①強磁性金属を用いない新規なスピン流生成法の一つである巨大なスピンホール効果を示す物質探索とその機構解明、②スピン流の自由度の一つであるスピン偏極ベクトルの電氣的制御方法の確立、③スピン蓄積量の増幅手法の確立を目指した、常伝導体とは異なる電子状態を有する超伝導体へのスピン注入及びスピン蓄積信号の測定手法の確立、の3つの研究に取り組み、大凡計画通りの成果を得ることができた。具体的には、4d5d 遷移金属における内因性スピンホール伝導度の d 電子数依存性の実験的検証、Ir 不純物を Cu 細線に導入することにより大きな外因性スピンホール効果を発現させることに成功した。また、スピン蓄積（非平衡磁化）ベクトル方向の電氣的な制御方法の確立。計画以上の成果としてスピン注入強磁性端子接合界面に MgO 層を挿入することによるスピン注入効率とスピン蓄積量の増強に成功した。更に超伝導への比局所スピン注入に成功したが、非線形効果の観測はこれからの課題となる。

研究成果の概要（英文）：

It is indispensable to establish effective means to generate, transfer, manipulate, and detect spin currents in order to develop spintronic devices based on spin dependent transport behaviors. In this project we set following three targets concerning generation and manipulation of the spin currents; 1) exploration of materials which exhibit large spin Hall effects; 2) establishing a means to rotate the spin accumulation vector; 3) establishing a method to amplify the spin accumulation using superconductors. We have accomplished almost all the three targets as planned. More precisely we first demonstrated experimentally the intrinsic nature of the spin Hall conductance in 4d and 5d transition metals, exhibiting the d-electron number dependence, and also succeeded in inducing a large extrinsic spin Hall conductance in Cu by adding Ir impurities. Secondly we have succeeded in electronic manipulation of the spin accumulation vector. We have also found the MgO interface layer drastically enhances the spin injection efficiency and the spin accumulation. Finally we have established the way to inject the spin current non-locally into superconductors. Amplification of the spin current using superconductor remained to be accomplished.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	11,500,000	0	11,500,000
2008年度	14,400,000	0	14,400,000
2009年度	14,400,000	0	14,400,000
2010年度	11,500,000	0	11,500,000
総計	51,800,000	0	51,800,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・機能材料

キーワード：金属スピントロニクス、スピン注入、スピン蓄積、スピンホール効果

### 1. 研究開始当初の背景

エレクトロニクスに伝導電子の電荷による機能に加え電子のスピン自由度を積極的に利用するスピントロニクスが隆盛を極めていた。当時のスピン自由度を利用する主な手法は、巨大磁気抵抗効果やトンネル磁気抵抗効果発現の源であるスピン依存伝導である。すなわち強磁性体からそれにオーミック接合あるいはトンネル接合した非磁性体に電流を流しこむことによりスピン偏極電流を作り、それをもう一つの強磁性体に流し込む際の伝導度の違いを用いる手法である。このようなスピン依存伝導現象の発現に不可欠な物理概念がスピン流であり、強磁性体を用いずにスピン流を生成するスピンホール効果の発見にも後押しされて、にわかにスピン流の生成、伝搬、操作、検出と言った要素スピン流物性に注目が集まっていた。

### 2. 研究の目的

上述したようにスピン依存伝導をその駆動原理とするスピントロニクス素子の開発には、高効率にスピンの流れを生成、輸送、操作、蓄積、そして検出する手法を確立することは必須である。本研究課題ではその第一の過程であるスピン流の生成に着目して研究を遂行する。特に強いスピン軌道 (SO) 相互作用を示す白金や金等の貴金属元素を含む非磁性合金系を用いて強磁性体や磁場を使わずに、電場のみによって高効率にスピン流と電荷流の相互変換手法を確立し新規な低消費電力スピン流回路を実現することが本研究の最終目的である。このために電子スピンの散乱機構に着目してスピン緩和現象の系統的な研究を行う。更に研究結果を利用して巨大な SO 相互作用を実現する候補物質を探索し、高効率なスピン流生成を実現する素子設計を行う。

### 3. 研究の方法

一般に電流中の上向きあるいは下向きスピンの流れは向きに応じてスピン軌道相互作用によりお互いに反対方向に曲げられる。このために強い SO 相互作用を示す細線に通電するとその相対する側面に向きの異なるスピンが蓄積するために電流に対して直行方向にスピン流が誘起される。この現象をスピンホール効果と呼び、本研究計画では、まずこの効果に着目して研究を展開する。ここで重要な物理因子はスピン軌道相互作用であり、その強さはスピンの拡散・緩和過程と密接な関係にある。

まず、面内多端子素子構造を用いてスピン流

のスピン偏極方向の電氣的制御手法を確立する。素子サイズ (細線幅や厚さ)、接合界面構造と拡散長の相関を調べ、スピンホール効果発現と電氣的制御に重要な素子設計指針を明らかにする。また、スピン拡散長の異なる種々の遷移金属 (白金、金、銀、パラジウム等) を用いて素子を作製して系統的にスピンホール効果の物質依存性を調べる。並行して、極低温から室温まで広範囲に温度を変化させながらスピンホール効果の測定を行うことで、電子構造に由来する内因性散乱機構、不純物散乱に依存するスキュー散乱、サイドジャンプ散乱等の発現機構との関連性を詳細に調べる。

研究成果を実験に還元させながら、スピン回路の試作に取り組む。また、将来的にも重要な課題であるスピン流の増幅の可能性を検討する。

### 4. 研究成果

本計画研究で得られた成果を以下に列記する。

#### ① スピン蓄積ベクトルの電氣的制御[論文 3]

図 1 に示すように、非局所スピンバルブ構造の入力を 2 端子化して相対的に  $90^\circ$  角度をなす二つの強磁性電極を用いて合成したスピン蓄積ベクトルを測定した。その結果、それぞれの入力端子に投入する電流の割合を変化させることにより、非磁性体中に蓄積するスピンの偏極ベクトルは二つの注入端子で形成されるスピン蓄積の合成ベクトルと

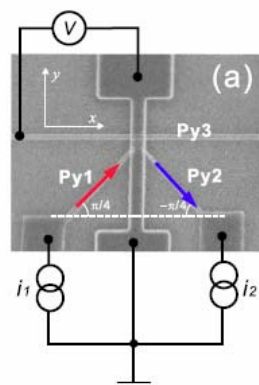
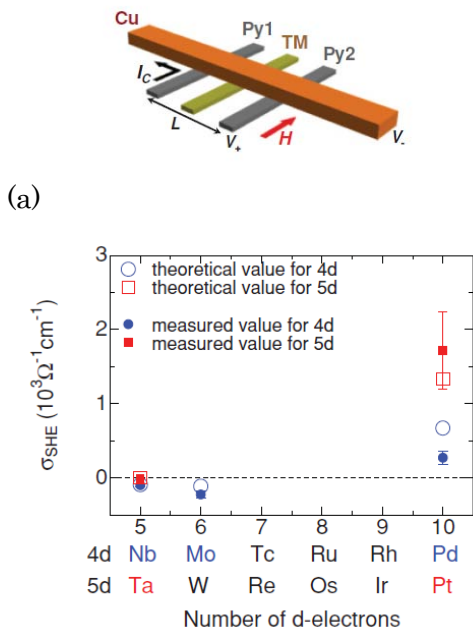


図 1. 2 端子スピン注入素子の走査電子顕微鏡像。二つの強磁性パーマロイ端子は  $90^\circ$  角度をなしており、それぞれの端子から注入するスピン流の強度を制御することによりスピン蓄積ベクトルを電氣的に回転することができる。

して検出されること、検出強磁性細線の磁化方向に対して連続的に回転できることを解明した。

## ② 4,5d 遷移金属の内因性スピンホール効果 [論文 2, 15]

本研究計画で開発したスピン吸収の手法を用いて、系統的にスピンホール伝導度の d 電子数依存性を調べた。この測定用素子は通常の面内スピンバルブ構造の二つの強磁性細線端子の間に被測定物質の細線をオーミック接合したものである(図 2(a))。挿入した細線の両端に生じるスピンホール電圧を、スピンバルブ信号の変化から決定されるそこに吸収されるスピン流の量で乗じることにより、スピンホール伝導度とスピンホール角が算出される。図 2(b)に示すように、測定から求められたスピンホール角は、d 電子数に依存して符号を変えて変化する。この様子は、遷移金属の原子的な電子状態を反映したスピン軌道相互作用を考慮した計算結果と良く一致すること、すなわちフントの第3法則に従う内因性の様相を示すことが明らかとなった。



(b)

図 2 (a) 実験に用いた素子の概略図。(b) 実験及び理論から求められた 4d 及び 5d 遷移金属のスピンホール角の d 電子数依存性。理論計算の結果と実験結果がよく一致していることが分かる。

## ③ Ir 不純物による外因性スピンホール効果 [論文 14]

一方、外因性スピンホール効果は添加する不純物の種類や濃度により巨大なスピンホール効果の発現が期待される。そこで、我々は

非磁性金属における外因性スピンホール効果に着目した。1981 年、Fert らによって行われた実験解析によると、非磁性金属不純物として Ir を Cu に微量添加すると、スピン軌道相互作用により添加した Ir のスピン軌道が分裂し、それに伴う共鳴散乱によって大きなスピン依存ホール効果が観測されている。そこで、CuIr 細線を挿入細線とする Py/Cu 非局所スピンバルブ構造を作製した。この素子を用いたスピン吸収の手法により、温度 10 K におけるスピンホール効果測定を行ったところ、不純物添加による抵抗変化とスピンホール抵抗の間に線形関係が観測された。このことから、添加された Ir のスピン軌道相互作用によるスキュー散乱を主因とする、外因性スピンホール効果が引き起こされていることが分かった。測定から、スピンホール角は 2.1% と過去に予測されていた値と非常に良い一致を見た。

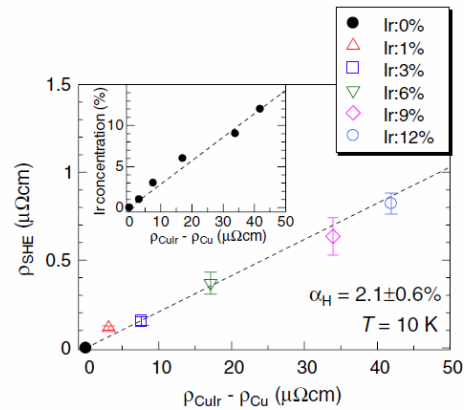


図 3 スピンホール抵抗の Ir 不純物による抵抗変化依存性。良好な線形性を保って増大していることが分かる。不純物 Ir 添加による抵抗変化も不純物濃度との良い線形関係を示す。

## ④ スピン蓄積量の増強効果 [論文 9, 16]

面内スピンバルブ素子中に蓄積する非平衡磁化 (スピン蓄積量) を増大させるために注入と検出の高効率化を目指した。手法として両接合端子にスピントラップ効果を有する MgO 界面層を挿入し熱処理による低抵抗化することでスピン抵抗不整合の問題を回避した。その結果、従来  $1 \mu V$  (程度であった) スピン蓄積電圧が 200 倍の  $200 \mu V$  程度にまで増強できることが分かった。低抵抗化したことにより、発熱の問題を回避しながら、注入電流量を増やすことができることが主要因である。このスピン蓄積電圧  $200 \mu V$  を磁場換算すると約 2 T (テスラ) に及び銀細線中に比較的有効磁場が生じていることに相当する。さらに蓄積量が増大したことから、より  $6 \mu m$  にも及ぶ長距離のスピン伝送が

可能になった。外部から磁場を印加することにより集団スピンの歳差運動を誘起して  $2\pi$  回転させることに成功した (図4)。

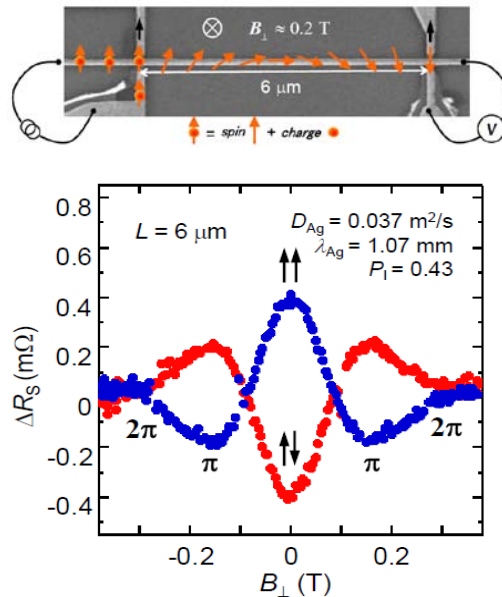


図4上) 長距離スピン拡散伝導測定に用いた面内 Py/MgO/Ag 接合スピンバルブ素子の走査電子顕微鏡像とスピン伝搬の模式図。下) 歳差運動させることにより磁場変調されたスピン蓄積信号。集団スピンは  $2\pi$  回転する。

⑤ 超伝導への比局所スピン注入[論文 4, 11]  
非線形効果などの新奇なスピン流物性の創出を狙って超伝導体への非局所スピン注入の可能性を探った。従来のようなスピン偏極電流の直接注入ではなくスピン蓄積させた Cu ナノ細線を経由して超伝導 Nb に純スピン

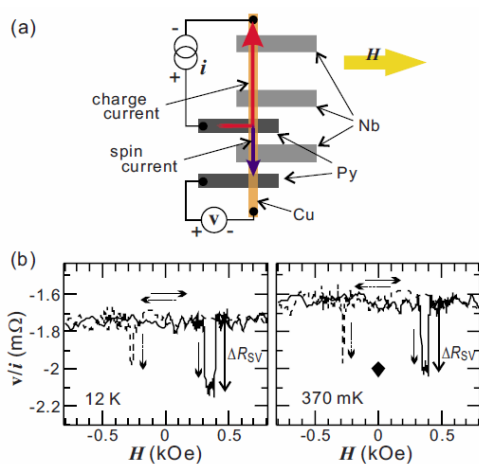


図5 a) 超伝導 Nb に非局所スピン注入を行う素子構造の概略図。上向き矢印はスピン偏極電流を示し、下向き矢印は純スピン流の伝搬方向を示す。b) Nb 細線の超伝導転移温度近傍での非局所スピンバルブ信号の振る舞いの比較。

流を注入することを試みたところ、常伝導状態だけでなく超伝導状態においても同じ強度のスピンバルブ信号が観測される。これは、超伝導状態においても常伝導状態と同じ注入効率でスピン流が注入されることに相当する (図 5(b))。このようにスピン流の非局所中に成功した。

## 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 16 件) 全て査読有

1. T. Yang, A. Hirohata, T. Kimura, and Y. Otani, "Manipulating spin current in the magnetic nanopillar", *J. Nanosci. Nanotechnol.: Special Issue on Nanotechnology for Information Storage* **7**, 259~264 (2007).
2. L. Vila, T. Kimura, and Y. Otani, "Evolution of the spin Hall effect in Pt nanowires: Size and temperature effects", *Phys. Rev. Lett.* **99**, 226604-1~4 (2007).
3. T. Kimura, Y.C. Otani, and P.M. Levy, "Electrical control of the direction of spin accumulation", *Phys. Rev. Lett.* **99**, 166601-1~4 (2007).
4. K. Ohnishi, T. Kimura, and Y. Otani, "Improvement of superconductive properties of mesoscopic Nb wires by Ti passivation layers", *Appl. Phys. Exp.* **1**, 021701-1~3 (2008).
5. T. Kimura, T. Sato, and Y. Otani, "Temperature evolution of spin relaxation in NiFe/Cu lateral spin valve", *Phys. Rev. Lett.* **100**, 066602-1~4 (2008).
6. Y. Togawa, T. Kimura, K. Harada, T. Matsuda, A. Tonomura, Y. Otani, and T. Akashi, "Current-excited magnetization reversal under in-plane magnetic field in a nanoscaled ferromagnetic wire", *Appl. Phys. Lett.* **92**, 012505-1~3 (2008).
7. R. Antos, and Y. Otani, "Simulations of the dynamic switching of vortex chirality in magnetic nanodisks by a uniform field pulse", *Phys. Rev. B* **80**, 140404-1~4 (2009).
8. J.-B. Laloë, T. Yang, T. Kimura, and Y. Otani "Spin-dependent transport in a nanopillar non-local spin valve", *J. Magn. Magn. Mater.* **321**, 3829-3832 (2009).
9. Y. Fukuma, L. Wang, H. Idzuchi, and Y. Otani, "Enhanced spin accumulation obtained by inserting low-resistance MgO interface in metallic lateral spin valves," *Appl. Phys. Lett.* **97**, 012507-1~3 (2010).



10. H. Idzuchi, Y. Fukuma, L. Wang, and Y. Otani "Spin diffusion characteristics in magnesium nanowires," Appl. Phys. Exp. **3**, 063002-1~3 (2010).
11. K. Ohnishi, T. Kimura, and Y. Otani, "Nonlocal injection of spin current into a superconducting Nb wire," Appl. Phys. Lett. **96**, 192509-1~3 (2010).
12. J. Tarun, S. Huang, Y. Fukuma, H. Idzuchi, Y. Otani, N. Fukata, K. Ishibashi and S. Oda, "Demonstration of spin valve effects in silicon nanowires," J. Appl. Phys. **109**, 07C508-1~3 (2011).
13. L. Wang, Y. Fukuma, H. Idzuchi and Y. Otani, "Efficient spin injection into nonmagnetic metals through low-resistance MgO," J. Appl. Phys. **109**, 07C506-1~3 (2011).
14. Y. Niimi, M. Morota, D. H. Wei, C. Deranlot, M. Basletic, A. Hamzic, A. Fert and Y. Otani, "Extrinsic spin Hall effect induced by Iridium impurities in Copper," Phys. Rev. Lett. **106**, 126601-1~4 (2011).
15. M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D.H. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura, and Y. Otani "Indication of intrinsic spin Hall effect in 4d and 5d transition metals", Phys. Rev. B **83**, 174405-1~5 (2011).
16. Y. Fukuma, L. Wang, H. Idzuchi, S. Takahashi, S. Maekawa, and Y. Otani, "Giant enhancement of spin accumulation and long-distance spin manipulation in metallic lateral spin valves" Nature Material (2011) to appear.

[学会発表] (計 49 件)

招待講演 (計 30)

1. Y. Otani, "Spin currents, spin dynamics and spin Hall effect in metallic nanostructures(invited)," IEEE MML 2007, University of Western Australia, Perth, Australia, October 2007.
2. Y. Otani, Y. Fukuma, L. Wang & H. Idzuchi "Spin transport in lateral spin valves consisting of permalloy and nonmagnetic Cu, Ag, or Mg with MgO interface layer(invited)," IEEE MML2010, USA, Berkeley, September 2010.  
その他 28 件

一般講演 (計 19 件)

1. Y. Niimi, M. Morota, Y. Kawanishi, D.H. Wei, C. Deranlot, A. Fert & Y. Otani "Search for the mechanism of extrinsic spin Hall effect," International Conference of

AUMS(ICAUMS2010), Jeju Island, Korea, December 2010.

2. Y. Niimi, M. Morota, D. Wei, C. Deranlot, M. Basletic, A. Hamzic, A. Fert & Y. Otani "Extrinsic spin Hall effects in Cu induced by Ir impurity," 55th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials, Atlanta, USA, November 2010.

その他 17 件

その他 24 件、国内学会発表 36 件

[産業財産権]

○出願状況 (計 2 件)

1. 名称: スピン注入源およびその製造方法  
発明者: 福間 康裕, 大谷 義近  
権利者: 独立行政法人理化学研究所  
種類:  
番号: 特願 2010-197047  
出願年月日: 2010 年 9 月 2 日  
国内外の別: 国内
2. 名称: 電流-スピン流変換素子  
発明者: 福間 康裕, 藤原 宏平, 松野 丈夫, 大谷 義近, 高木 英典  
権利者: 独立行政法人理化学研究所  
種類:  
番号: 特願 2010-191414  
出願年月日: 2010 年 8 月 27 日  
国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

[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  
(平成 21 年~22 年度)  
新見 康弘 (NIIMI YASUHIRO)  
東京大学・物性研究所・助教  
研究者番号: 00574617

(平成 19 年度~20 年度)  
木村 崇 (KIMURA TAKASHI)  
東京大学・物性研究所・助教  
研究者番号: 80065234

(平成 19 年度~20 年度)  
戸川欣彦 (TOGAWA YOSHIHIKO)

理化学研究所・量子現象観測技術研究系  
一ム・研究員  
研究者番号：00415241