

令和 2 年 6 月 5 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2019

課題番号：18K19012

研究課題名（和文）単一磁性体における自己誘導型スピントルクの観測と革新的高周波素子の実証

研究課題名（英文）Observation of self-induced spin torque in a single ferromagnet and demonstration of novel rf generator

研究代表者

関 剛斎（Seki, Takeshi）

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：40579611

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：単一の磁性体中における「自己誘導型スピントルク」という新概念のスピントルク現象を観測するために、強磁性体内における電流-スピントルク変換の機構を理解すること、および変換効率の大きな材料を創製することを目的として研究を遂行した。強磁性単層膜におけるスピントルクの定量評価に取り組み、自己誘導型スピントルクに繋がる知見を得た。また、スピントルク強磁性共鳴法を用いてスピントルク異常ホール効果を観測し、生じたスピントルクによるスピントルク磁化反転にも成功した。さらに、強磁性ホイスラー合金における電流-スピントルク変換の機構を解明した。以上は自己誘導型スピントルクの理解と応用展開につながる成果である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、軌道の自由度を取り入れスピントルク相互作用を積極的に活用するスピントロニクスが、学術的観点さらにはデバイス応用の観点から注目を集めている。スピントロニクスでは、電流とスピントルク角運動量の流れであるスピントルクをいかに効率よく変換し制御するかがキーとなるが、強磁性体内部での変換現象は理解が進んでいなかった。本研究で得られた成果は、そのメカニズムの理解に繋がるものであり、単一の磁性体のみで構成される究極に単純な構造の発振素子など全く新しいスピントロニクスデバイスの実現可能性を拓くものである。

研究成果の概要（英文）：The purposes of this research project are the elucidation of underlying mechanism of spin-charge conversion in ferromagnets and the development of ferromagnet with high conversion efficiency in order to observe the “self-induced spin torque” in a single ferromagnetic layer. We evaluated the spin orbit torque in the single ferromagnetic layer by using the harmonic Hall voltage measurement. We also observed the spin anomalous Hall effect exploiting the spin torque ferromagnetic resonance method, and successfully demonstrated the magnetization switching induced by spin anomalous Hall effect. In addition, we elucidated the spin-charge conversion mechanism in the ferromagnetic Heusler alloys. These findings and achievements will be beneficial to understand and control the self-induced spin torque.

研究分野：磁性材料、スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス スピントルク相互作用 スピントルク 強磁性体

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

電子の持つ電荷とスピンの二つの性質を利用するスピントロニクスは、半導体材料をベースとする従来のエレクトロニクスにはない新しい機能性をもたらす工学分野として、基礎および応用の観点から盛んに研究が行われている。1980年代後半に発見された巨大磁気抵抗効果を機として飛躍的な発展を遂げてきたスピントロニクスは、現在転換期を迎えており、その中でも軌道の自由度を取り入れスピン軌道相互作用を積極的に活用する「スピンオービトロニクス」が大きな注目を集めている。

スピンオービトロニクスにおける代表的な効果に、非磁性物質におけるスピンホール効果がある。これはスピン軌道相互作用の大きい非磁性物質に電流を流すと、その横方向にスピン角運動量の流れであるスピン流が生成される現象である。スピンホール効果を利用することで、強磁性物質の磁化方向を操作することも可能となる。例えば、非磁性金属と強磁性金属を接合させた構造において非磁性物質のスピンホール効果によりスピン流を生成し、そのスピン流を強磁性金属の磁化に作用させると、磁化反転を励起することや磁化の自励発振を実現できる。この時に磁化に作用するトルクはスピン軌道トルクと呼ばれる量子力学的トルクであり、スピン軌道相互作用に由来する基礎物理現象として多くの学術研究が報告されている。また、基礎学問的な研究のみならず、スピン軌道トルクを書き込み原理とすることで超高速かつ低エラーレートを実現できる3端子スピントロニクス素子も提案されており、そのような素子の研究開発など応用を見据えた取り組みも盛んに進められている。

しかしながら上述した従来のスピンオービトロニクス研究では、スピン流源となるスピン軌道相互作用が大きい非磁性層とトルクが作用する強磁性層が個別に必要であり、積層構造のために界面状態がトルクの効率を左右するなど不透明な因子が多く、さらに複数層から構成されるというデバイス構造の複雑化も基礎および応用の両面で弊害であった。これらの点を考慮すると、界面を無くした単一磁性体を用いることでスピンオービトロニクスが抱える課題をクリアにできると期待される。それにより、例えば単一磁性体のみで構成される究極に単純な構造の発振素子を実現できる可能性もある。このような単一磁性体を用いたスピンオービトロニクス研究を進めていくためには、強磁性金属内におけるスピン流生成メカニズムを理解し、それを利用した磁化方向の操作を実証することが不可欠となっていた。

### 2. 研究の目的

本研究では、単一の磁性体中における「自己誘導型スピントルク」という新概念のスピン流現象を観測するために、強磁性体内での電流-スピン流変換の機構を理解することを第一の目的として研究を遂行した。そして、自己誘導型スピントルクの大きな材料の探索に取り組み、単一磁性体細線に電流を流すだけで発振する高周波素子など革新的なスピンオービトロニクスデバイスを開発するための要素技術の開発を行い、実現に向けた指針を構築することを目指した。

本研究において着目する自己誘導型スピントルクの概念図を図1に示す。自己誘導型スピントルクとは、強磁性体に電流を流すことで生じるスピン流と強磁性体自身の磁化との相互作用によるトルクのことを呼ぶ。この自己誘導型スピントルクの理解と制御につながる知見を得るために、「高調波ホール電圧を用いた強磁性単層膜におけるスピン軌道トルクの定量評価」、「スピントルク強磁性共鳴法(ST-FMR)を利用した強磁性金属におけるスピン異常ホール効果(SAHE)の観測」、「SAHEによるスピントルク磁化反転の実証」、さらに「強磁性ホイスラー合金におけるスピン流-電流変換の機構解明」という具体的な課題に取り組んだ。

### 3. 研究の方法

本研究課題を遂行するにあたり、高品位な薄膜試料の成長と微細加工法を用いた素子の作製、作製した試料の基本的な磁気特性および磁気伝導特性の理解、高調波ホール電圧測定法およびST-FMR法によるスピン軌道トルクやスピン異常ホール効果の定量評価をポイントとした。

単一の強磁性層を有する薄膜や複数の強磁性層を有する薄膜など多様な構造の試料を研究対象とし、また強磁性層の磁化方向を任意に制御する必要があった。そこで、スパッタ法を駆使することにより、磁化容易軸を任意に変化させるための薄膜作製条件の探索を行った。作製した積層膜の構造や表面形態は、X線回折法および反射高速電子線回折法により評価した。積層膜の基本的な磁気特性の評価には、振動試料型磁束計および超伝導量子干渉素子磁束計を用いた。その後、電気的および光学的測定を行うための素子構造へと微細加工した。微細加工には、電子線リソグラフィ、フォトリソグラフィおよびArイオンミリングを利用し、高周波測定用のコプレーナ導波路形状素子、および磁気抵抗効果およびホール効果測定用の多端子素子を作製した。

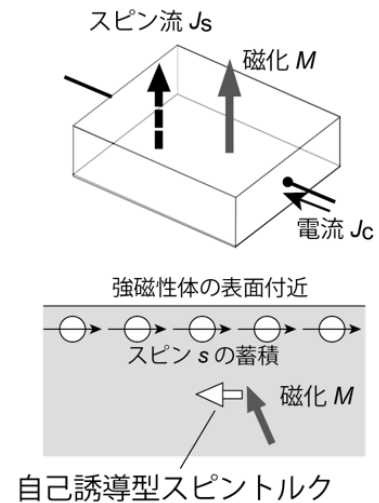


図1 自己誘導型スピントルクの概念図。膜面垂直方向に磁化を持つ強磁性層に電流を流すと、スピンホール効果によって膜面垂直方向にスピン流が誘起される。強磁性体表面において、スピン流によるスピン蓄積が生じ、蓄積スピンと強磁性層の磁化が相互作用する。

ホール効果や磁気抵抗効果などの磁気伝導特性の評価には、物理特性測定装置(PPMS)を用いた。

高調波ホール電圧によるスピン軌道トルクの評価に関しては、多端子素子に kHz 帯域の交流電流を印加し、スピン軌道トルクによって変調された磁化成分を高調波ホール電圧としてロックインアンプを用いて検出した。これによりスピン軌道トルクの大きさを定量評価した。一方、ST-FMR 測定にはコプレーナ導波路形状素子を用い、信号発生器から GHz 帯域の高周波電流を投入することで強磁性共鳴を励起し、整流効果によって出てくる直流電圧をロックインアンプにより検出した。得られた強磁性共鳴スペクトルの線幅変調から、生成されたスピン流の大きさを調べ、最終的には強磁性金属内における SAHE に由来したスピン流・電流変換の効率を見積もった。

#### 4. 研究成果

##### (1) 高調波ホール電圧を用いた強磁性単層膜におけるスピン軌道トルクの定量評価

SrTiO<sub>3</sub>(100)単結晶基板上に作製した FePt 単層を有する薄膜試料において、高調波ホール電圧測定によるスピン軌道トルクの定量評価を行った。X 線回折パターンから FePt 層がエピタキシャル成長していること、および L1<sub>0</sub> 規則化していることが確認され、磁化曲線を測定した結果、垂直磁化を有する FePt 層が形成されていることがわかった。膜厚を 5 nm とした FePt 単層の試料について高調波ホール電圧を測定したところ、スピントルクによる変調の信号は観測されなかった。一方で、FePt 層上に Pt 層を成膜した試料においては、図 2 に示すようにスピントルクによる高調波電圧信号が現れた。この結果から、自己誘導型スピントルクを有効利用するためには、単層試料においても結晶や合金濃度の不均一性など空間反転対称性を破る要因を作ることが重要になることが示唆された。

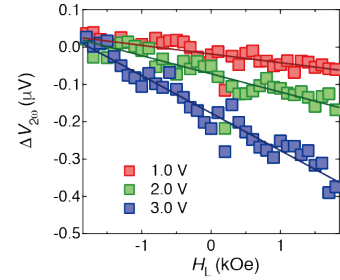


図 2 FePt/Pt 薄膜における高調波電圧信号の外部磁場依存性。

##### (2) スピントルク強磁性共鳴法を利用した強磁性金属におけるスピン異常ホール効果の観測

SAHE とは、異常ホール効果(AHE)を起源としてスピン流を生成できる現象である。自発磁化を持つ強磁性物質に電流を流すと、その外積方向に電界が生じる。この現象が異常ホール効果であり、古くから知られている。SAHE とは、AHE によって生じる横方向電流もスピン分極しており、スピン流となる(スピン角運動量を運ぶ)という概念に基づいている。本研究課題では、大きな AHE を示すことで知られている L1<sub>0</sub> 型 FePt 規則合金に着目し、L1<sub>0</sub>-FePt / Cu / Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> の巨大磁気抵抗膜において、電流印加による強磁性共鳴線幅の変調を観測することにより、L1<sub>0</sub>-FePt の SAHE を調べた。

SrTiO<sub>3</sub>(110)単結晶基板上に L1<sub>0</sub>-FePt (30 nm) / Cu (3 nm) / Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> (2 nm) をエピタキシャル成長させた。FePt 層の成長温度は 450°C とし、L1<sub>0</sub> 構造への規則化を促進した。図 3(a) および 3(b) に、SAHE によって生成されるスピン流を説明した図および素子の光学顕微鏡像を示す。L1<sub>0</sub>-FePt 層の SAHE によって生成されたスピン流が Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> の磁化( $m$ ) と相互作用し、Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> の磁化ダイナミクスが変調される。図 3(b) に示したセットアップにより ST-FMR を測定し、直流電流( $I_{dc}$ )を印加したことによる共鳴線幅の変化を調べた。図 3(c) および 3(d) に  $I_{dc} = +4$  mA および  $-4$  mA を印加して測定した Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 層の共鳴スペクトルを示す。 $I_{dc}$  の値に依存して共鳴線幅の変化が観測されており、Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 層のダンピングが L1<sub>0</sub>-FePt 層からのスピン流によって変調されることがわかった。この結果から、L1<sub>0</sub>-FePt におけるスピン異常ホール角(変換効率に相当)を見積もったところ、およそ 0.25 という大きな値が得られた。これは、L1<sub>0</sub>-FePt が強磁性体内で効果的にスピン流を作り出すための候補材料であることを示唆しており、本研究課題における重要な成果である。

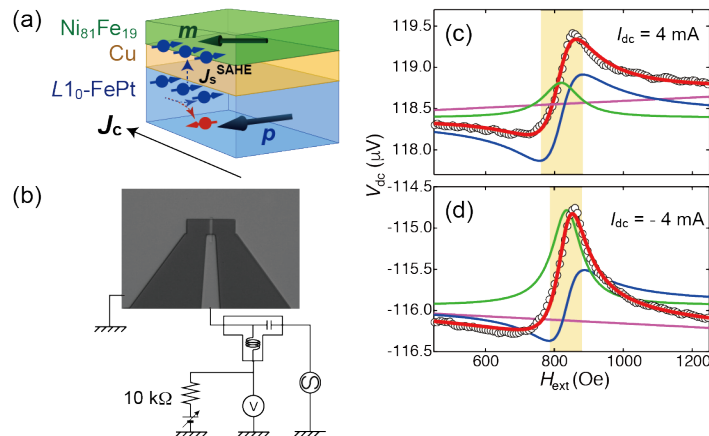


図 3 (a) L1<sub>0</sub>-FePt / Cu / Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> におけるスピン異常ホール効果の模式図。(b) 面内通電型巨大磁気抵抗素子の光学顕微鏡像。(c)  $I_{dc} = +4$  mA および(d)  $-4$  mA を印加して測定した ST-FMR スペクトル。

### (3) スピン異常ホール効果によるスピントルク磁化反転の実証

(2)において報告したように、 $L1_0$ -FePt は大きな SAHE を示す強磁性材料であることが明らかとなった。そこで、 $L1_0$ -FePt の SAHE で生成されたスピントルクが磁化に対してどのように作用するかを理解するため、 $L1_0$ -FePt / Cu /  $Ni_{81}Fe_{19}$  巨大磁気抵抗素子の構造を用いて  $Ni_{81}Fe_{19}$  層の磁化反転を誘起することを試みた。

図 4 に、 $L1_0$ -FePt / Cu /  $Ni_{81}Fe_{19}$  巨大磁気抵抗素子における素子抵抗の  $I_{dc}$  依存性を示す。明瞭な抵抗のヒステリシスが観測されており、電流印加によって抵抗状態の遷移が起こることが確認された。また、抵抗変化の現れる印加電流値が外部磁場に依存して変化することがわかった。これらの実験結果は、 $L1_0$ -FePt の SAHE により  $Ni_{81}Fe_{19}$  の磁化方向が変化することを意味しており、SAHE によって生じるスピントルクおよびスピントルクが磁化操作に有効であることが示された。これは、単一磁性層において自己誘導型スピントルクによる磁化制御を行うための指針となり、本研究課題のターゲットとした発振素子の実現に向けた有用な知見となる。

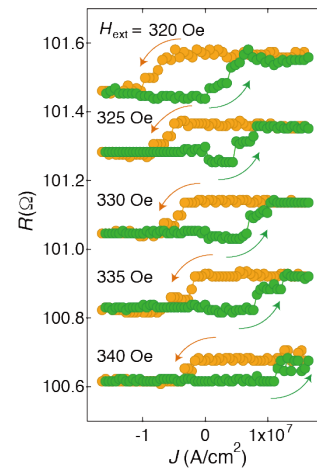


図 4  $L1_0$ -FePt / Cu /  $Ni_{81}Fe_{19}$  における素子抵抗の直流電流依存性。

### (4) 強磁性ホイスラー合金におけるスピントルク・電流変換の機構解明

効率よく電流とスピントルクを変換できる材料を探索するという観点から、スピントルク率の高いホイスラー合金中におけるスピントルク・電流変換の機構解明に取り組んだ。磁性絶縁体である  $Y_3Fe_5O_{12}$  (YIG) 結晶とハーフホイスラー合金の  $NiMnSb$  を接合させ、スピントルクポンピング法により YIG から  $NiMnSb$  にスピントルクを注入し、 $NiMnSb$  の逆スピントルク効果によって電圧を計測した。このスピントルク変換効率の温度依存性を詳細に解析したところ、バルクと界面のそれぞれに由来するスピントルク変換機構が存在することが明らかとなった。

この  $NiMnSb$  の研究に加えて、SAHE を増強できる強磁性材料を探索する目的で、バルクにおいて巨大な AHE が報告されている  $Co_2MnGa$  ホイスラー合金に着目し、薄膜試料においても大きな異常ホール角が得られることを実証した。これらの実験結果は、自己誘導型スピントルクを増強するための材料を開発するという観点で重要な成果といえる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sato Takumi, Seki Takeshi, Kohda Makoto, Ryu Jeongchun, Gamou Hiromu, Karube Shutaro, Takanashi Koki, Nitta Junsaku	4. 巻 58
2. 論文標題 Evaluation of spin-orbit torque in a L10-FePt single layer and a L10-FePt/Pt bilayer	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 060915R/1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7567/1347-4065/ab1e5a	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 Seki Takeshi, Iihama Satoshi, Taniguchi Tomohiro, Takanashi Koki	4. 巻 100
2. 論文標題 Large spin anomalous Hall effect in L10-FePt: Symmetry and magnetization switching	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 144427/1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.100.144427	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 Wen Zhenchao, Qiu Zhiyong, Tolle Sebastian, Gorini Cosimo, Seki Takeshi, Hou Dazhi, Kubota Takahide, Eckern Ulrich, Saitoh Eiji, Takanashi Koki	4. 巻 5
2. 論文標題 Spin-charge conversion in NiMnSb Heusler alloy films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eaaw9337/1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1126/sciadv.aaw9337	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Wang Qiang, Wen Zhenchao, Kubota Takahide, Seki Takeshi, Takanashi Koki	4. 巻 115
2. 論文標題 Structural-order dependence of anomalous Hall effect in Co <sub>2</sub> MnGa topological semimetal thin films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 252401/1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5127553	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 Gamou Hiromu, Du Ye, Kohda Makoto, Nitta Junsaku	4. 巻 99
2. 論文標題 Enhancement of spin current generation in epitaxial -Ta/CoFeB bilayer	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 184408/1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.184408	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 Karube Shutaro, Tezuka Nobuki, Kohda Makoto, Nitta Junsaku	4. 巻 13
2. 論文標題 Anomalous Spin-Orbit Field via the Rashba-Edelstein Effect at the W/Pt Interface	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 024009/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.13.024009	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8件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 T. Seki, S. Iihama, T. Taniguchi, K. Takanashi
2. 発表標題 Spin Anomalous Hall Effect in L10-FePt
3. 学会等名 The 2nd Symposium for World Leading Research Centers Materials Science and Spintronics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 関剛斎、飯浜賢志、谷口知大、高梨弘毅
2. 発表標題 L10-FePtにおけるスピンの異常ホール効果
3. 学会等名 第43回磁気学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Seki and K. Takanashi
2. 発表標題 Spin-Charge Conversion in Ferromagnetic Materials
3. 学会等名 17th RIEC International Workshop on Spintronics and 10th JSPS Core-to-Core Workshop on “New-Concept Spintronic Devices” (招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Seki, S. Iihama, T. Taniguchi, and K. Takanashi
2. 発表標題 Large Spin Anomalous Hall Effect in L10-FePt
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Gamou, S. Nishimura, M. Kohda and J. Nitta
2. 発表標題 Field-free current induced perpendicular magnetization switching property in epitaxial Ta/CoFeB/MgO structure
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Karube, N. Tezuka, M. Kohda, J. Nitta
2. 発表標題 Anomalous spin-orbit field via Rashba-Edelstein effect at W/Pt interface
3. 学会等名 第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Seki and K. Takanashi
2. 発表標題 Spin-Charge Conversion in Ferromagnetic Materials
3. 学会等名 New Perspective in Spin Conversion Science (NPSCS2020) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Seki and K. Takanashi
2. 発表標題 Spin-Charge Conversion in Ferromagnets
3. 学会等名 The 3rd Symposium for The Core Research Clusters for Materials Science and Spintronics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究室ホームページ <a href="http://magmatelab.imr.tohoku.ac.jp">http://magmatelab.imr.tohoku.ac.jp</a>
--

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
研究分担者	好田 誠  (Kohda Makoto)  (00420000)	東北大学・工学研究科・准教授    (11301)	