

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 8 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22540354

研究課題名（和文）強磁性核磁気共鳴法によるスピン伝導の検出と制御

研究課題名（英文）Detection and control of spin conduction by ferromagnetic nuclear magnetic resonance.

研究代表者

安岡 弘志（YASUOKA HIROSHI）

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・非常勤嘱託

研究者番号：50026027

研究成果の概要（和文）：強磁性状態での核磁気共鳴法（NMR）を用いて、スピントロニクス物質の界面を通してのスピン注入を[YIG/Fe]二層膜を使って Fe 核の核磁気緩和時間の変化としてとらえることができた。更に Fe-57 核の強磁性核磁気共鳴下で白金相にスピン電流が流れることを発見した。これらの結果は、更なる検証が必要であるが、NMR がスピン伝導の検出や制御に微視的なプローブとして有効であることを示した。

研究成果の概要（英文）：The Ferromagnetic Nuclear Magnetic Resonance (FNR) has been applied for the first time to detect and control the spin current in ferromagnetic and nonmagnetic bi-layer systems. Particular focus has been placed to explore spin-injection and spin-pumping behavior in Pt/YIG interface utilizing ⁵⁹Fe-FNR in YIG. Although we need to verify the each finding, it is nevertheless assured that FNR provides with a powerful tool to investigate the spintronics with microscopic view points.

交付決定額

（金額単位：円）

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|---------|-----------|---------|-----------|
| 2010 年度 | 1,900,000 | 570,000 | 2,470,000 |
| 2011 年度 | 600,000 | 180,000 | 780,000 |
| 2012 年度 | 500,000 | 150,000 | 650,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 3,000,000 | 900,000 | 3,900,000 |

研究分野：数物系科学 B

科研費の分科・細目：物性 II

キーワード：スピントロニクス、強磁性核磁気共鳴

1. 研究開始当初の背景

最近の物質科学の世界的動向は、より未知な物質を開発しそこから新しい性質を発見させ、新奇な機能性材料を開発していくというものである。そのような流れの中で、従来良く知られていた物質であっても、それを構成する原子核や電子のもつ内部自由度を利用した新しい発想の機能性材料開発が盛んになって来ている。その典型が電子のもつ二

つの自由度である電荷とスピンを自在に制御することによって、電荷流（電流）とスピン流を融合させた新しい機能性材料の開発が活発に行われるようになって来ている。世に言うスピントロニクスである。このような研究は、近年の微細加工技術の飛躍的な進展によって初めて可能になったもので、基礎研究が応用へと直結する物質科学研究として一大潮流となっている。

2. 研究の目的

本研究計画は、このスピントロニクスの世界に核磁気共鳴 (NMR) 技術を投入してスピン流の検出と制御を試みるものである。

一般に、NMR は核スピン系に外部磁場を印加して核種固有の核磁気回転比に由来する磁気共鳴を周波数あるいは時間軸上で観測するものである。しかしながら、外部磁場を印加することは電荷とスピンの融合した世界に“磁場”という余計な要素が加わることになり、特にスピン流の本質を把握するには解析が複雑となる。そこで、本研究では、無磁場で NMR が観測できる強磁性状態での NMR 技術を導入した。強磁性体における NMR は “Ferromagnetic Nuclear Resonance: FNR” と呼ばれ通常の NMR とは一味違った趣を持っている。この FNR の特徴を、本計画では積極的にスピン伝導の検出と制御に応用するものでこの研究から磁性体におけるスピントロニクスに関する研究分野に新たな展開と方向を提示することを目的とした。

3. 研究の方法

上記研究目的達成のためには、最初の段階として強磁性体を対象として FNR 技術を駆使することである。この場合、共鳴は無磁場のもとで観測でき、FNR から得られる物理情報は共鳴周波数から決定される内部磁場の値とその分布及び動的な性質としての核磁気緩和時間である。

具体的には以下の手順で研究を進めてきた。

平成 22 年度

- 1) スピントロニクスは基本的にナノ構造の世界である。従って、極めて少数の原子を扱うことになる。ここで用いる FNR の手法は 10 万倍にも及ぶ強磁性特有の増強効果を用いるにしても、共鳴の検出感度の向上は不可欠である。そのため、本研究に特化した共鳴観測用の NMR プロブを開発すると同時に検出感度向上のための新しい電子回路を作成する。(安岡、中堂が担当)
- 2) 最近、磁壁駆動型磁気メモリとして注目されている Co/Ni 多層膜を取り上げ ^{59}Co 核の FNR を観測する。その際、最初の段階として Co と Ni の界面状態を把握する目的で FNR 周波数スペクトルの精密測定をおこなう。これは、素材の微視的評価である。(安岡、徳永担当)
- 3) この強磁性 Co/Ni を細線化して磁壁を導入したのちに電流を印加してスピン伝導を誘発させる。その際の磁区と磁壁での共鳴周波数の変化や緩和時間の測定を行い、磁壁移動に伴うスピン伝導の微視的

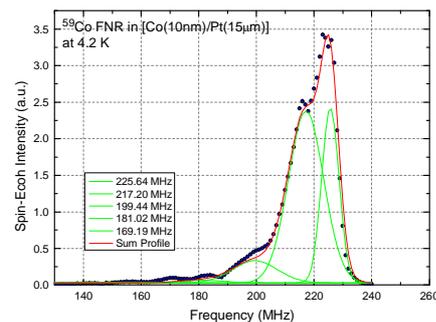
な機構や動的性質を解明する。(安岡、徳永担当)

平成 23 年度以降

- 1) FNR 共鳴を起こさせたときに核スピン系の分極が強い超微細相互作用を通じて電子スピン系に跳ね返る効果が期待できる(信号増強効果の一種)。この効果を積極的に利用してスピン伝導を誘起しそれを制御することが出来ることを実証する。
- 2) 本計画の最終段階では、強磁性と非磁性との界面を通じておこるスピン注入についての研究を開始する。スピン注入は界面での微妙な電子物性を反映しておこっており、界面第一層での強磁性金属の構造や電子状態を FNR の技術を使って解明する。更に、Al のような非磁性相に注入されたスピン状態は Al 核での NQR 法(無磁場で核の電気四重極モーメントに作用する電場勾配のもとでの NMR の一手法)をもちいてその特性を明らかにする。

4. 研究成果

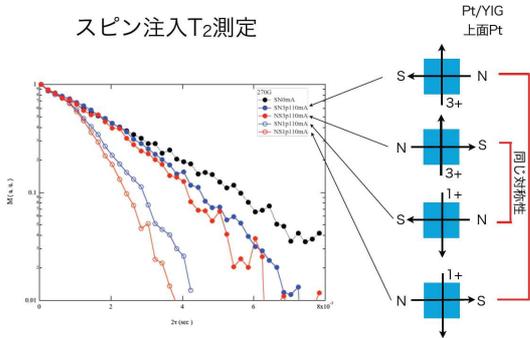
(1) 初年度は研究計画の立ち上げとして、核磁気共鳴装置の整備や、核磁気共鳴測定法に適したスピントロニクス材料の検討等を行った。従来型の強磁性共鳴手法 (FMR) によるスピン生成 (スピンポンピング) はパーマロイを中心に研究されているが、Fe や Ni は核磁気共鳴には不向きである。そこで、NMR に適した核種である Co や Mn に着目し、強磁性 Co/Pt や ハーフメタル合金 Co₂MnSi/Pt 薄膜二重層のゼロ磁場における NMR 測定をおこない、 ^{59}Co 、 ^{55}Mn NMR 信号の観測に成功した (下図)。



また、Co₂MnSi/Pt においては、従来の FMR によるスピン流生成 (スピンポンピング) 実験が行われておらずスピン流生成効率が不明であったので、強磁性電子共鳴 (FMR) を用いてスピンポンプ実験を行い、スピン流生成効率を評価した。この結果は J. Appl. Phys 109 (2011) 073915 に掲載されている。

(2) 本研究で最も重要な成果は、金属 Pt と絶縁体強磁性の YIG の二層膜でスピン注入とスピンポンプの実験に成功したことである。

Pt/YIG系でPtに電流を流しYIG中にスピン注入（この場合はスピン波注入）を行った場合にYIG中の ^{57}Fe 核の核磁気緩和に異常がみられることを発見した。下図にスピン注入時の横緩和時間の変化の様子を示す。



スピンポンプに関する実験は下図-1に示す如く、ジグザグ配線が施された、スピン流をアンプできる試料を用いて行った。YIGは多結晶の $1\text{cm} \times 1\text{cm} \times 1\text{mm}$ の大きさで、表面にPt10nmとAu100nmで配線を施してある。磁場は電磁石を用い、RFの周波数は固定して磁場掃引で実験を行った。この実験の問題点はYIGが大きい為に、共振回路のチューニング周波数が磁場に対して、劇的に変化してしまうことである。（下図-2）そのため、0磁場で測定周波数にチューニングをあわせても全くNMR信号が観測されない場合が生じた。右上図は磁場掃引で測定したNMRスペクトルを示す。赤の実線は53.8MHzで共鳴が最も大きくなるように磁場を調節

し、そこでチューニングをあわせた後、磁場掃引でNMRスペクトルを測定したものである。緑、青、の実線は同様の方法で、周波数を53.7、53.6MHzでチューニングを取ったものである。線幅も変化しているが、一般的に、強磁性体のFNRの線幅は磁場に依存しない。実際、磁場をある値に固定し、周波数掃引のNMRスペクトルを、いろいろな磁場の大きさで測定したが、線幅は磁場の大きさに依存しないことを確認した。下図-3に見られる線幅の磁場依存性は本質的なものではなく、チューニングが磁場に対して変化してしまうために起こったものと解釈できる。

低磁場のスペクトルがシャープなのは、低磁場側でチューニングの変化が大きいため、サンプルにRFが入る磁場範囲が狭いためである。下図-4はCWのRFを印加し、磁場掃引で電圧を測定したもので、100回ほどアベレーシングしてある。赤、青、黒は53.8MHz、1kGの共鳴条件でチューニングをあわせ、53.8MHzのRFを印加したものである。（右上赤実線のNMRスペクトルに対応）

磁場方向 0° 、 90° 、 180° に対して、起電

力は正、0、負となり逆スピンホール効果の対称性を反映している。この結果を見たときはついに出了かと思ったが、チューニングを共鳴条件から外してあわせた場合でも信号が出てしまい問題であった。それが緑の実線で、53.8MHz、3kGにチューニングをあわせたものである。この比較実験が意味するところは、共鳴条件で信号が出る訳ではなく、チューニングをあわせたところ

で信号が出るというもので、おそらく、チューニングをあわせたところでコイルにRFが入り、誘電吸収でコイルを固めている樹脂が発熱したことによるスピンゼーベック効果を見ているものと考えられる。紫の実線は53.6MHz、3kGの共鳴条件でチューニングあわせた場合であるが、緑の線を全く同じ信号が見えており、共鳴、非共鳴に関係なく信号が見えている。

図-1: YIGにおける ^{57}Fe 核スピンポンプ

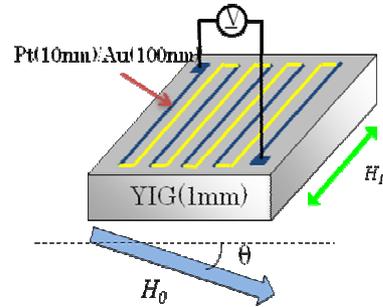


図-2: 共鳴回路の周波数の磁場依存性

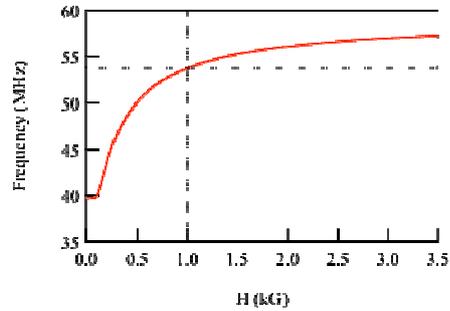


図-3: YIG中の ^{57}Fe FNR線幅の磁場依存性

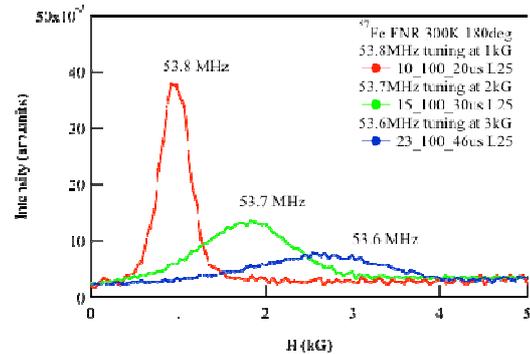
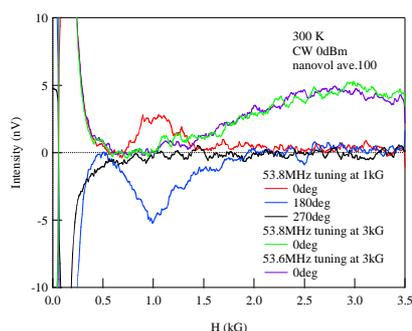


図-4 : Pt 層に誘起された DC 電圧」



本実験では、核スピンプンプを示す実験結果は直接は得られなかったが、1nV 程度の信号でもとらえられるほど、実験系の完成度は高いと考えている。今後は EB リソグラフィーで微細加工を施し、よりスピン流をアンプした試料で実験をおこなう予定である。また、スピンゼーベックを除外する方法が問題であるが、メジャーサイトとマイナーサイトで起電力の向きが逆向きに出てくれば、解決できると期待している。

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 1 件)

- ① H. Chudo, K. Ando, K. Saito, S. Okayasu, R. Haruki, Y. Sakuraba, H. Yasuoka, K. Takanashi, and E. Saitoh, *Journal of Applied Physics*, 109, 073915 (2011) 査読有
<http://dx.doi.org/10.1063/1.3556433>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

安岡 弘志 (YASUOKA HIROSHI)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・
先端基礎研究センター・非常勤嘱託
研究者番号：50026027

(2) 研究分担者

徳永 陽 (TOKUNAGA YO)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・
先端基礎研究センター・研究主幹
研究者番号：00354902

中堂 博之 (CHUDO HIROYUKI)
独立行政法人日本原子力研究開発機構・
先端基礎研究センター・任期付研究員
研究者番号：30455282

(3) 連携研究者
なし