

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 12 日現在

機関番号：17104

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2011～2013

課題番号：23681032

研究課題名(和文) スピン蓄積を利用した材料物性制御技術の開発

研究課題名(英文) study of magnetic properties in the vicinity of the spin accumulation interface

研究代表者

福岡 康裕 (Fukuma, Yasuhiro)

九州工業大学・若手研究者フロンティア研究アカデミー・准教授

研究者番号：90513466

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,900,000円、(間接経費) 6,270,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性体電極から非磁性体へと高効率にスピンを注入する技術確立し、従来の100倍以上のスピン量を銀中に蓄積することに成功した。その界面近傍における有効磁場の大きさは数テスラ以上に相当し、様々な材料物性の変化が期待できる。そこで、この蓄積されたスピンを酸化物や半導体へと注入させる技術を開発し、大きなスピンホール効果や磁気相転移温度近傍におけるスピンホール効果の符号変化を実現した。

研究成果の概要(英文)：We show that lateral spin valves with NiFe/MgO/Ag junctions enables efficient spin injection, which leads to the spin accumulation signal increasing 100-fold. The effective magnetic field of several Tesla in the vicinity of the interface may be a powerful tool to investigate and control spin-related phenomena in various materials. 5d iridium oxide IrO<sub>2</sub> and ferromagnetic semiconductor EuS are attached to the Ag with large spin accumulation and then spin current is injected into these materials. Large magnitude of spin Hall effect and a change of the sign of the conversion of spin current to charge current near its Curie temperature are observed.

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学 マイクロ・ナノデバイス

キーワード：スピン蓄積 スピン流 スピン注入 スピントロニクス スピンホール効果

### 1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスは、電子のもつスピン機能性を活用することで、高速・大容量・低消費電力の新しい電子素子の実現を目指す研究分野である。面内スピンバルブ素子の非局所スピン注入法を用いて、電流(電荷の流れ)とスピン流(スピン角運動量の流れ)を分離することができる。電流による情報伝送・処理には、ジュール熱によるエネルギー散逸を伴うが、純スピン流を用いることで散逸の少ない高効率な情報伝送および処理が期待できる。

非局所スピン注入法にて非磁性体中へと注入されたスピンは拡散し、減衰する。また、電気的なスピン注入では、強磁性体と非磁性体間のスピン抵抗不整合問題により、効率的なスピン注入が困難であった。このために、研究開始時の一般的な素子におけるスピン蓄積量(出力信号)は $1\mu\text{V}$ 程度であった。研究代表者は、強磁性体/非磁性体界面に比較的低抵抗な $\text{MgO}$ 層を挿入することで、非磁性体への効率的なスピン注入を実現し、 $10\mu\text{V}$ と大きなスピン蓄積を実現した(Y. Fukuma et al., APL 97, 012507 (2010))。

### 2. 研究の目的

$10\mu\text{V}$ のスピン蓄積量(フェルミ面近傍における上向きスピンと下向きスピンに対する電子化学ポテンシャルのエネルギー差)は、ゼーマン効果の有効磁場換算で $0.1\text{ T}$ 程度に相当する。このスピン蓄積による有効磁場は、ナノスケールかつ電気的な制御が可能である。更なるスピン蓄積の増大により、巨大な有効磁場を局所的に作用させることが可能になり様々な材料の物性変化が期待できる。このスピン蓄積の増大には、強磁性体電極から非磁性体中へと注入するスピン量の向上と非磁性体中におけるその注入されたスピンの緩和抑制が不可欠である。

### 3. 研究の方法

本研究では、上記の目的を達成するために3段階の研究計画を立案した。

- (1) 非磁性体中のスピン蓄積量を増大する。
- (2) そのスピン蓄積を対象となる材料に作用させ、効率的に有効磁場を作用あるいはスピン流を注入させる技術を開発する。
- (3) 酸化物や半導体を対象材料とし、スピン注入による物性の変化を検出する。

### 4. 研究成果

#### (1) 非磁性体中のスピン蓄積量の増大

スピン蓄積量の増大には、まず強磁性体電極から非磁性体中へのスピン注入効率の向上が必要である。このために、強磁性体 $\text{NiFe}$ と非磁性体 $\text{Ag}$ 間に誘電体 $\text{MgO}$ 界面層を挿入し、スピン注入に対する界面の影響を調べた。 $\text{NiFe/Ag}$ 金属結合の素子においては、数 $\mu\text{V}$ のスピン蓄積信号であった。これは、 $\text{Ag}$ の

スピン抵抗が $\text{NiFe}$ よりも一桁程度大きく、 $\text{NiFe}$ 中で生成されたスピン流の一部しか $\text{Ag}$ 中へ注入されずに、そのほとんどは界面で消失するためである。 $\text{MgO}$ 界面層の厚さを連続的に変化させ、そのスピン蓄積信号を調べた。 $\text{MgO}$ 層の界面抵抗が $\text{NiFe}$ のスピン抵抗値と一致するとスピン注入効率が向上し始めて、スピン蓄積信号が増加する。界面抵抗の増加と共にスピン蓄積信号は増大し、 $\text{Ag}$ のスピン抵抗の10倍程の界面抵抗をもつ $\text{MgO}$ 層では $\text{NiFe}$ と $\text{Ag}$ 間のスピン抵抗不整合を完全に克服できることを明らかにした。この実験結果は素子構造を考慮した1次元のスピン拡散モデルによる解析値と非常によく一致を示した。作製した $\text{NiFe/MgO/Ag}$ 接合は通常のトンネル接合よりも界面抵抗が数桁小さく、スピン注入効率の大きなバイアス依存性はみられない。このために、 $3\text{ mA}$ の電流印加により $200\mu\text{V}$ 以上のスピン蓄積信号を実現した。界面を用いたスピン注入効率の改善により、2桁程度のスピン蓄積量の向上に成功した。

面内スピンバルブ素子は多層膜構造素子と比較して、高い素子設計自由度を有している。そこで、素子構造によるスピン蓄積量の更なる増大を試みた。 $\text{MgO}$ 界面層による高効率スピン注入手法に加え、スピン注入用の界面数を増やし、かつ拡散する純スピン流の方向を制限することでスピン蓄積素子の出力信号を $500\mu\text{V}$ まで向上させることに成功した。この新しい素子構造では、従来の一つのスピン注入用電極と一つのスピン検出用電極をもつ素子構造と比較して純スピン流の生成効率およびスピン蓄積量を4倍まで向上できることを明らかにした。

- (2) そのスピン蓄積を対象となる材料に作用させ、効率的に有効磁場を作用あるいはスピン流を注入させる技術の開発

上述の研究により、界面におけるスピン蓄積およびスピン流の効率的な生成にはスピン抵抗を考慮しなければならないことが分かった。スピン抵抗は、材料の抵抗値とスピン緩和長に依存する。そこで、非磁性体中のスピン緩和とその非磁性体に接触する材料の影響について調べた。

面内スピンバルブ素子を用いて、非局所スピン注入により非磁性体細線中にスピンを蓄積し、そのスピンに対して垂直方向の磁場を印加して歳差運動を誘起した(図1)。この手法は、ハンル効果測定と呼ばれている。拡散伝導においては、検出側電極に到達する集団スピンの回転角度は印加磁場の強度に比例して増加し、到達する集団スピンの向きの分散は増大する。本研究では、拡散距離の増加と共にこの分散が低減して、外部磁場に応答して一斉に回転することを明らかにした。これらスピンの集団回転運動は、これまでに報告されている金属や半導体、グラフェン等の全ての物質中で普遍的な現象であった。グラフェンにもスピン注入を行い、その

スピン緩和長は室温で数 $\mu\text{m}$  と銀や銅等の一般的な金属材料と比較して一桁程度長いことが分かった。グラフェンは抵抗も大きいことから、スピン蓄積を増大させる材料として非常に有望である。

また、ハンル効果測定を用いて、スピン蓄積した非磁性体から接触する材料へと流れ込むスピン流の定量的評価技術の確立に成功した。効率よく磁性体（接触材料）へとスピン流を注入するためには、磁性体の磁化と非磁性体中のスピンが同方向でない方が好ましく、かつ磁性体と非磁性体の界面抵抗は小さい方が好ましいことを明らかにした。

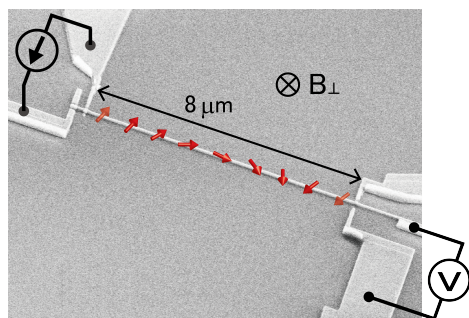


図1 作製した面内スピバルブ素子の走査型電子顕微鏡像とハンル効果測定概念図。左側電極がスピン注入側 NiFe/MgO/Ag 接合、右側がスピン蓄積検出用 NiFe/(MgO)/Ag 接合。

### (3) 酸化物や半導体を対象材料とし、スピン注入による物性変化の検出

強磁性体電極から非磁性体中へのスピン注入効率の向上に成功し、比較的長い十 $\mu\text{m}$ もの非磁性体にスピンを蓄積する技術確立した。また、スピン蓄積した非磁性体に接触する材料へとスピン流を流し込む実験条件も明らかになった。そこで、スピン蓄積を利用した材料物性制御技術の開発対象として、強いスピン軌道相互作用をもつ材料として特徴的な 5d 遷移金属酸化物であるイリジウム酸化物  $\text{IrO}_2$  および典型的なハイゼンベルク型強磁性体（磁性半導体）として知られる硫化ユーロピウム  $\text{EuS}$  を選び、それら材料に対してスピン注入実験を行った。

元素周期表の第 6 周期に属する遷移元素（5d 遷移金属）からなる導電性酸化物では、s 軌道と比較して空間的な対称性が低く軌道同士の重なり合いが小さい d 軌道が電気伝導を担う。そこでは、電子が他の軌道に飛び移ることができる確率が低くなるため、電気抵抗率は白金等の重金属と比較して 1 桁から 2 桁大きい値を示す。更に、軌道角運動量の大きい 5d 軌道ではスピン軌道相互作用も極めて強くなることから、スピン依存散乱も重金属と同程度かそれ以上に強くなることを期待できる。このような材料中では、注入されたスピン流が整流されて電流へと変換するスピンホール効果の観測が期待できる。図 2

のような素子を作製し、Ag 中に蓄積したスピンを  $\text{IrO}_2$  へと流し込み、 $\text{IrO}_2$  細線の両端の電圧を検出した。スピンホール効果に起因した明瞭な電圧信号を観測できた。その大きさは、これまでに報告されている金属や半導体材料と比較して大きく、スピン流の電気的な（電圧）検出材料として極めて有望なことを明らかにした。

$\text{EuS}$  においても、スピンホール効果に起因した電圧信号の検出に成功した。 $\text{EuS}$  は 8 K 程度のキュリー温度をもつ強磁性絶縁体であるが、Gd の添加により導電性と共にその強磁性 常磁性転移温度も大きく変化する。2%程度の添加でキュリー温度が 80 K 程度まで増加した。そのスピンホール効果は、磁気相転移近傍で符号が反転することを見出した。その起源はまだ明らかではなく、今後注入スピン量の影響等を詳細に調べる必要がある。

以上、酸化物や半導体等の様々な材料にスピン蓄積やスピン流を作用させる技術確立した。これら手法は、新しいスピン物性を探索する手法として非常に有望である。

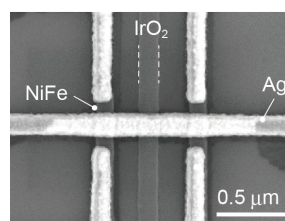
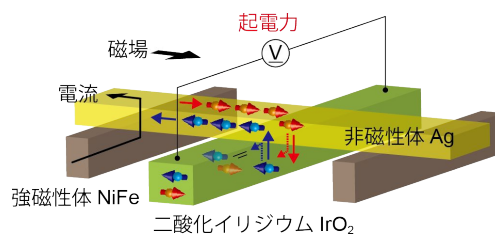


図 2 二酸化イリジウムの細線（線幅  $0.17 \mu\text{m}$ 、厚さ  $0.015 \mu\text{m}$ ）にスピン流を注入し、逆スピンホール効果により細線両端に生じる電圧を測定した。Ag 中に蓄積したスピンは  $\text{IrO}_2$  へと流れ込み、スピンホール効果により電流へと変換される。

### 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 10 件)

H. Idzuchi, Y. Fukuma, S. Takahashi, S. Maekawa, Y. Otani, “Effect of anisotropic spin absorption on the Hanle effect in lateral spin valves”, *Physical Review B (Rapid Communications)*, vol. 89, pp. 081308 1-5 (2014). 査読有

DOI: 10.1103/PhysRevB.89.081308

K. Fujiwara, Y. Fukuma, J. Matsuno, H. Idzuchi, Y. Niimi, Y. Otani, H. Takagi, “5d iridium oxide as a material for spin-current detection”, *Nature Communications*, vol. 4, pp. 2893 1-6 (2013). 査読有  
DOI: 10.1038/ncomms3893

H. Idzuchi, S. Karube, Y. Fukuma, T. Aoki, Y. Otani, “Impact of interface properties on spin accumulation in dual-injection lateral spin valves”, *Applied Physics Letters*, vol. 103, pp. 162403 1-4 (2013). 査読有  
DOI: 10.1063/1.4824897

Y. P. Liu, H. Idzuchi, Y. Fukuma, O. Rousseau, Y. Otani, “Spin injection properties in trilayer graphene lateral spin valves”, *Applied Physics Letters*, vol. 102, pp. 033105 1-4 (2013). 査読有  
DOI: 10.1063/1.4776699

H. Idzuchi, Y. Fukuma, L. Wang, Y. Otani, “Towards coherent spin precession in pure spin current”, *Scientific Reports*, vol. 2, pp. 628 1-5, (2012). 査読有  
DOI: 10.1038/srep00628

J. Tarun, S. Huang, Y. Fukuma, H. Idzuchi, Y. Otani, N. Fukata, K. Ishibashi, S. Oda, “Temperature evolution of spin-polarized electron tunneling in Silicon nanowire-Permalloy lateral spin valve system”, *Applied Physics Express*, vol. 5, pp. 045001 1-3 (2012). 査読有  
DOI: 10.1143/APEX.5.045001

H. Idzuchi, Y. Fukuma, Y. Otani, “Spin relaxation mechanism in silver nanowires covered with MgO protection layer”, *Applied Physics Letters*, vol. 101, pp. 022415 1-4 (2012). 査読有  
DOI: 10.1063/1.4737001

Y. Fukuma, L. Wang, H. Idzuchi, S. Takahashi, S. Maekawa, Y. Otani, “Giant enhancement of spin accumulation and long-distance spin precession in metallic lateral spin valves”, *Nature Materials*, vol. 10, pp. 527-531 (2011). 査読有  
DOI: 10.1038/nmat3046

F. Fohr, S. Kaltenborn, J. Hamrle, H. Schultheib, A. A. Serga, H. C. Schneider, B. Hillebrands, Y. Fukuma, L. Wang, Y. Otani, “Optical detection of spin transport in nonmagnetic metals”, *Physical Review Letters*, vol. 106, pp. 226601 1-4 (2011). 査読有  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.068103

L. Wang, Y. Fukuma, H. Idzuchi, G. Yu, Y. Jiang, Y. Otani, “Effect of annealing on interfacial spin polarization and resistance in Permalloy/MgO/Ag lateral spin valves”, *Applied Physics Express*, vol. 4, pp. 093004 1-3 (2011). 査読有  
DOI: 10.1143/APEX.4.093004

〔学会発表〕(計 30 件)

Y. Fukuma, H. Idzuchi, Y. Otani, “Long distance spin precession to characterize dynamic properties (invited)”, *Euro-Asian Symposium:Trends in Magnetism, Vladivostok Russia, 09/20/2013.*

Y. Fukuma, “Giant enhancement of spin accumulation and long-distance spin precession in lateral spin valves (invited)”, *Workshop on Innovative Nanoscale Devices and Systems, Hawaii USA, 12/04/2012.*

Y. Fukuma, H. Idzuchi, Y. Otani, “Efficient generation of pure spin current in lateral spin valves (invited)”, *4th WUN international conference on spintronics, Sydney Australia, 07/24/2012.*

福間康裕, 井土宏, 大谷義近, “非磁性金属細線中のスピン緩和(招待講演)”, *日本磁気学会 第 183 回研究会・第 39 回 スピンエレクトロニクス専門研究会, 中央大学, 2012 年 3 月 7 日.*

Y. Fukuma, “Giant spin accumulation and long-distance spin precession in metallic lateral spin valves (invited)”, *APS March Meeting 2012, Boston USA, 02/29/2012.*

福間康裕, “純スピン流やスピン蓄積を用いた新機能性デバイスの創製に向けて(招待講演)”, *IDEMA JAPAN 合同部会, 日立金属高輪和彊館, 2011 年 12 月 2 日.*

福間康裕, 王楽, 井土宏, 大谷義近, “NiFe/MgO/Ag 接合を用いた面内スピンバルブ構造におけるスピン蓄積信号の増大(招待講演)”, *情報記録・情報ストレージ研究会、電気通信情報学会、磁気学会、映像情報メディア学会共催, 柏崎, 2011 年 10 月 13 日.*

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.kyutech.ac.jp/professors/iizuka/i-12/i12-2/entry-1140.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福間 康裕 (FUKUMA, Yasuihro)

九州工業大学・若手研究者フロンティア研究アカデミー・准教授

研究者番号: 90513466