

平成 30 年 5 月 30 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2013～2017

課題番号：25220605

研究課題名(和文) 純スピン流注入による磁気相転移の選択的制御と革新的ナノスピndeバイスへの応用

研究課題名(英文) Selective control of magnetic transition using pure spin current injection and development of innovative nanospin devices

研究代表者

木村 崇 (Kimura, Takashi)

九州大学・理学研究院・教授

研究者番号：80360535

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 122,800,000円

研究成果の概要(和文)：熱を用いて効率的に純スピン流を生成する技術を開発するとともに、強磁性共鳴を用いて同技術をワイヤレス・スピン注入技術へと高度化した。また、磁性金属酸化物接合を用いた高精度な横型ナノ抵抗スイッチング素子の動作を実証するとともに、観測される相転移現象の電氣的制御メカニズムの解明に成功した。更に、磁性絶縁体におけるスピン流伝導機構について、実験的に調べ、効果的なスピン吸収が生じることを見出した。これら一連の成果は、スピン流による効率的な物性制御技術の開拓に極めて有効である。

研究成果の概要(英文)：We have found an excellent material for the thermal spin injection and developed an innovative wireless spin injection technique based on the efficient thermal spin injection with the ferromagnetic resonance. We have also demonstrated that a laterally configured resistive switching nano device and clarified the switching mechanism. In addition, we investigate the spin transport on a magnetic insulator and found that the magnetic insulator is a strong spin absorber. We believe that these findings open the avenue for the efficient control of material property using spin current.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：純スピン流 金属-絶縁体転移 反強磁性体

1. 研究開始当初の背景

磁石の不揮発特性と巨大磁気抵抗効果などのスピン依存伝導現象を絡めて電子デバイスを動作させるスピントロニクスは、消費電力・集積度・動作速度・書き換え回数など、さまざまな面で魅力的なポテンシャルを有しており、次世代のナノエレクトロニクス・デバイスの最有力候補の一つである。中でもスピンRAMは、次世代の省エネルギー不揮発メモリとして、最有力候補であり、現在、量産・製品化に向けた最終段階に入っている。スピンドバイスの主役は、強磁性トンネル接合であり、近年の目覚ましい関連技術の進展により、現在では、室温で抵抗変化100%を超える素子の量産が可能になっている。最近では、更に大きな抵抗変化も観測されており、スピン情報を電気信号で読み取るための十分な抵抗変化は得られている。しかし、抵抗変化100%とは言え、抵抗が2倍になる程度であり、半導体トランジスタなどのようにゲート電圧で電気抵抗が数桁変化する素子と比べると、スピンドバイスの抵抗変化率は、まだまだ圧倒的に小さい。そのため、最新のスピンドバイスの回路アーキテクチャにおいても、トランジスタは欠くことのできない存在となっている。その結果、スピンRAMなどでは、不揮発記憶効果により低消費電力化が可能であるが、集積度の限界は、半導体RAMと同様、トランジスタの微細化限界で決まってしまうのが現状である。

一方で、近年、ある種の金属酸化物に電界を印加すると電気抵抗が大きく変化する抵抗スイッチング現象が知られており、抵抗変化型メモリやメモリストタなどの次世代のナノエレクトロニクスの観点からも大いに期待されている。この抵抗変化メカニズムに関しては、金属イオンの移動による界面での化学反応などのモデルが挙げられているが、十分な解明はなされていない。そのため、素子特性のばらつきなどの高精度な制御が困難となっており、微視的な起源を解明し、それらを効果的に制御できるブレークスルー技術が必要とされている。ここで、このようなスイッチング現象を示す酸化物がGdOx, NiO, Co-doped TiOなど磁性を持つ原子で構成されている場合が多いが、これらの抵抗スイッチング現象においてスピンの役割は全く注目されていない。

そこで本研究では、代表者が有する独創的な純スピン流制御技術を用いて、磁性酸化物へのスピン注入効果を明らかにし、スピン間の相互作用を活用した相転移現象を誘起する。さらに、同現象を用いて、数桁の電気抵抗変化を引き起こす革新的スピンドバイスを創出する。

2. 研究の目的

本研究の目的は、スピン間の相互作用により生み出される相転移現象を解明し、それら

を用いて、高効率に大きな電気抵抗変化を引き起こす革新的スピンドバイスを創出することである。具体的には、代表者のシーズ技術である高効率・純スピン流制御技術を、更に高度化することで、高効率な巨大・純スピン流の生成技術を確立し、更に、磁性酸化物などの電気的絶縁性を示す物質へのスピン注入技術を開発する。更に、同技術を用いて、スピン流による巨大な有効磁界を磁性酸化物や反強磁性体などの強相関電子系に作用させることで、金属-絶縁体転移やメタ磁性転移などの相転移現象を選択的に引き起こす技術を開発する。また、金属酸化物における電界誘起相転移現象に伴うスピン構造の変化を解明し、スピン注入相転移を効果的に引き起こすことができるスピン配向状態や素子構造を探求する。本技術により、スピンRAMの更なる高密度化・高性能化のみならず、革新的ナノスピンドバイスの創成が可能となる。

3. 研究の方法

本研究では大別して、高効率な純スピン流生成源の開発、磁性絶縁体への純スピン流注入技術の開発、磁性酸化物の相転移特性評価技術、スピン流注入による相転移制御の研究で構成される。前半に記載の項目で得られた成果をもとに、後半の課題に臨むスタイルとした。

(1) 高効率な純スピン流生成源の開発

ナノサイズでの柔軟な素子構造が実現するため、リフトオフ法での素子作製が極めて有力である。本課題では、リフトオフ法で作製可能な強磁性電極と構造を開発することを目的とする。本課題では、アモルファル的な多結晶CoFe系合金とナノピラー型の多端子スピン注入源を用いて、極めて巨大な純スピン流を高効率に生成することに成功した。更に、同物質では、電流の代わりに熱を用いることでも、極めて効率的に純スピン流が生成できることも実証した。

(2) 磁性絶縁体へのスピン流注入技術の開発

純スピン流は電荷の流れを含まないため、絶縁体でも注入可能と考えられているが、それらの実証実験例は極めて少ない。本課題では、磁性酸化物が拡散型の純スピン流においても吸収体として働くかを実証し、更に、それによりスピン状態がどのように変化するかを調べた。

(3) 磁性酸化物の相転移特性評価技術

本課題では磁性酸化物の相転移を電気抵抗や磁化測定を用いて評価した。また、特殊環境下(高圧や強磁場下、及びスピン注入下)における相転移検出技術を開発することを目的として、特殊な試料ホルダー、及び二次元電子ガスをを用いた超高感度磁場センサーの作製に成功した。また、スピン吸収効果を用いた新しい相転移検出技術も確立した。

(4) スピン流注入による相転移制御

(1)~(3)の要素技術を結集して、スピン流制御型の高効率なスイッチング素子を実現する。相転移（抵抗スイッチング）が生じる素子において、スピン、及びスピン流がどのような影響を及ぼすかを実験的に解明するとともに、より効果的に相転移が誘起できる電極材料や構造について探索する。また、熱スピン注入による相転移誘起も試み、高性能な革新デバイスの創出も目指す。

4. 研究成果

以下に各課題の研究成果を説明する。

(1) 高効率な純スピン流生成源の開発

計画当初は、構造改善のみでの巨大スピン流の生成を計画していたが、CoFeに微量のAl不純物の添加により、電子の平均自由行程を著しく短くすることで、スピン偏極していない伝導電子(sp-like電子)の寄与を抑制し、d電子のスピン依存性を強く反映させた伝導状態が実現できることを見出した。これにより、純スピン流の生成効率は、10倍以上向上した(図1)。高スピン偏極の強磁性電極を作製するには、通常は、ホイスラー合金などの単結晶薄膜を用いるのが主流であるが、今回、確立した技術では、アモルファスな多結晶構造であり、任意の基板上に容易に作製が可能であり、またスパッタなどの量産技術にも適用可能であるため、大きな利点である。同物質を用いて、当初予定のナノピラー型の多端子スピン流生成技術を確認し、極めて巨大な純スピン流を生成することに成功した。巨大純スピン流生成を示す実証実験として、ナノピラー構造を用いた厚さ10nmのCoFeAlナノドットの純スピン流注入磁化反転を実証した。更に、本物質では、ゼーベック係数がスピンの向きに依存して符号が変化することを見出し、極めて効率的な熱スピン注入物質として振る舞うことを見出した。本技術は、熱スピン注入の可能性を大きな知見である。それと同時に、強磁性体を加熱する手

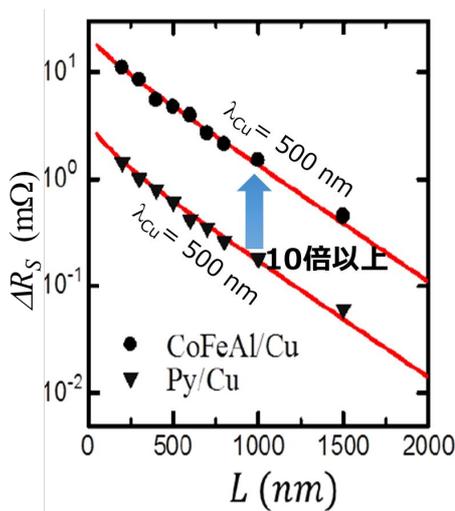


図1. CoFeAl電極によるスピン注入効率の改善

段の一つとして、マイクロ波照射による強磁性共鳴ヒーティング効果を見出し、選択的且つワイヤレスで制御できる技術の創出に成功した。

(2) 磁性絶縁体へのスピン流注入技術の開発

磁性酸化物上に直接強磁性体を作製した構造において、強磁性共鳴などを用いてスピン注入現象を評価していたが、この場合、磁性層が直接交換結合しているため、スピン流とは関係のない相互作用が働き、実際にスピン流が吸収されたか否かの明確な結果をえることができなかった。そこで、本研究では、磁性酸化物であるNiO薄膜上に横型スピンバルブ素子を作製して、Cuチャンネル中に生成された拡散スピン流が、実際にNiOに吸収されるかを調べることで、スピン吸収効果を評価した。その結果、純スピン流の著しい減衰が観測され、磁性酸化物においても、拡散型の純スピン流は効果的に吸収されることを見出した。

また、スピン注入下のNiOのスピン状態の変化を交換磁気異方性を用いて評価し、注入するスピン流の増大に伴い交換磁気異方性が低下する現象を確認した。本現象は、反強磁性へのスピン注入効果を表す極めて重要な結果である。更に、2つの強磁性体薄膜をNiOを介して接続し、両磁性体からのスピン流の往来により強磁性共鳴が同期し、ダンピング定数が著しく低下する現象を発見した。

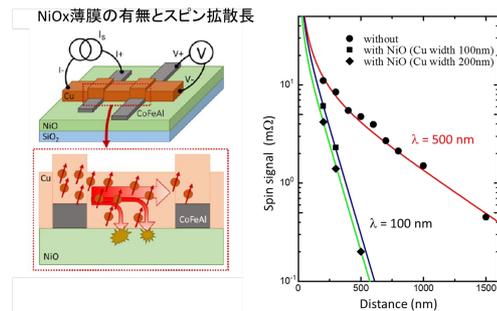


図2. NiO表面におけるスピン吸収効果

(3) 磁性酸化物の相転移特性評価技術

NiOやGdOなどの磁性酸化物薄膜における電界誘起相転移に関して、積層縦型構造における電気抵抗のスイッチング現象を明瞭に観察するとともに、同技術を横型構造に拡張することでも、同様のスイッチング現象の明瞭な観察に成功した。ここで、電極としては、CoFeB電極を用いることで、効果的なスイッチング現象が観測された。

更に、ナノサイズの磁性酸化物ドットの相転移を別の観点から検出するべく、二次元電子ガスを用いて、高感度磁場センサーを試作した。実際に、磁気渦や磁壁などのナノ磁性体の微小な磁区構造変化の検出が高精度に可能であることを実証した。

この他、純スピン流吸収効果を用いて相転移を検出する新奇な手法を開発し、実際に超伝導体の相転移を検出することに成功した。

本技術は、電気抵抗では検出できない界面近傍のスピン状態を高感度に検出できるため、極めて有力である。

(4) スピン流注入による相転移制御

前項の実験において、CoFe系の合金電極を用いることで、効果的に電界誘起相転移が引き起こされることを見出したが、相転移過程におけるスピンの影響や役割については、十分理解できていない。

そこで、放射光(XMCD)を用いて、金属磁性体電極/磁性酸化物界面における磁気特性を元素選択的に評価し、界面状態の詳細な解明を試みた。その結果、磁性酸化物界面の磁化は強磁性的な振る舞いを示し、逆に、強磁性体、特にFeの成分は、酸化している傾向があることを見出した。このことは、酸化物中の酸素イオンが金属側に移動したものと考えられ、この酸素イオンの移動が、相転移現象に大きく関与している可能性がある。

そこで、CoFeB/NiO二層膜ナノ構造を作製し、通電時の発熱現象を用いて、酸素イオンの移動を制御を試み、更に、それに伴う伝導特性の変化について詳細に調べた。その結果、図3に示すように、 \pm 約1V程度の閾値電圧にて効果的に電気抵抗が大きく変化する抵抗スイッチング現象の観測に成功した。同様の抵抗変化現象は、金属電極としてTaを採用した試料でも認められたが、Ptを用いた試料では確認できなかった。CoFeBおよびTaが酸化しやすく、Ptが酸化し難い材料であることから、これらの結果は、狭窄部分における高電流密度により生じる電極の発熱によって、酸化物であるNiOと金属電極との間で酸素イオンが交換された結果、狭窄電極における電気伝導機構が大きく変調されたことを示唆する。

このように発熱が界面の酸素イオンの移動を効果的に制御し、電気的特性、磁気的特性を大きく変化させることが可能であることが分かった。で述べたように、我々は、強磁性体にマイクロ波を照射して、強磁性共

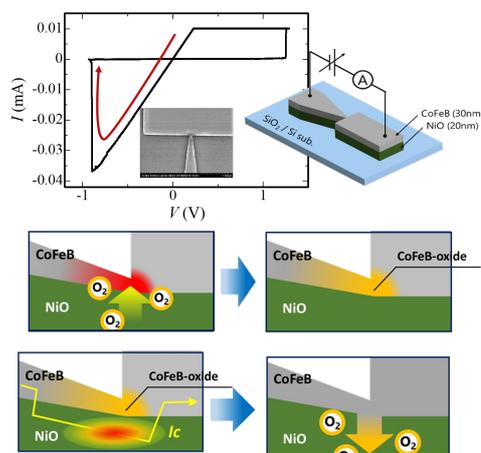


図3. 通電加熱による酸素移動機構を用いたナノ構造抵抗スイッチング素子

鳴を誘起することで、強磁性体を効果的に加熱できることを見出しており、この技術は、ワイヤレスで選択的な加熱技術として活用できるため、前述の相転移現象と融合させることで、新奇な抵抗スイッチング素子の実現も期待できる。

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27件)

1. 野村 竜也, 木村 崇 : 「スピン依存ゼーベック効果によるスピン流の生成とその可能」まぐね Vol.12, No.5(2017), p.231~235 (解説記事). (査読有)
2. K. Yamanoi, Y. Yokotani and T. Kimura: "Dynamical spin injection based on heating effect due to ferromagnetic resonance." Phys. Rev. Appl. **8**, 054031 (2017). (査読有)
3. T. Nomura, T. Arika, S. Hu and T. Kimura : "Efficient thermal spin injection in metallic nanostructures." J. Phys. D: Appl. Phys. **50**, 465003 (2017). (査読有)
4. S. Hu, X. Cui, T. Nomura, T. Min and T. Kimura: "Nonreciprocity of electrically excited thermal spin signals in CoFeAl-Cu-Py lateral spin valves." Phys. Rev. B (Rapid Comm.) **95**, 100403 (2017). (査読有)
5. T. Arika, T. Nomura, K. Ohnishi and T. Kimura: "Effective suppression of thermoelectric voltage in nonlocal spin-valve measurement." Appl. Phys. Exp **10**, 063004 (2017). (査読有)
6. T. Nomura, K. Ohnishi, and T. Kimura: "Geometrical dependence of spin current absorption into a ferromagnetic nanodot." J. Appl. Phys. **120**, 142121 (2016). (査読有)
7. T. Nomura, K. Ohnishi, and T. Kimura: "Large spin current injection in nano-pillar-based lateral spin valve." AIP Conf. Proc. **1763**, 020011 (2016). (査読有)
8. S. Hu, T. Nomura, G. Uematsu, N. Asam, and T. Kimura : "First- and second-harmonic detection of spin accumulation in a multiterminal lateral spin valve under high-bias ac current." Phys. Rev. B **94**, 014416 (2016). (査読有)
9. M. Kawakita, K. Okabe, and T. Kimura: "Laterally configured resistive switching device based on transition-metal nano-gap electrode on Gd oxide." Appl. Phys. Lett. **108**, 023101 (2016). (査読有)
10. X. Cui, S. Yakata, and T. Kimura: "Directional dependence of vortex core resonance in a square-shaped

- ferromagnetic dot.*" Physica E **75**, 28-32 (2016). (査読有)
11. K. Yamanoi, Y. Yokotani, X. Cui, S. Yakata, and T. Kimura: "Stability of standing spin wave in Permalloy thin film studied by anisotropic magnetoresistance effect." J. Appl. Phys. **118**, 233909 (2015). (査読有)
 12. K. Yamanoi, Y. Yokotani, and T. Kimura: "Heat dissipation due to ferromagnetic resonance in a ferromagnetic metal monitored by electrical resistance measurement." Appl. Phys. Lett. **107**, 182410-1-4 (2015). (査読有)
 13. X. Cui, S. Hu, M. Hidegara, S. Yakata, and T. Kimura: "Sensitive detection of vortex-core resonance using amplitude-modulated magnetic field." Sci. Rep. **5**, 17922 (2015). (査読有)
 14. X. Cui, S. Yakata, and T. Kimura: "Detection of vortex core oscillation using 2nd harmonic voltage detection technique." IEEE Trans. Magn. **15**, 0018-9464 (2015). (査読有)
 15. A. Pfeiffer, S. Hu, R. M. Reeve, A. Kronenberg, M. Jourdan, T. Kimura, and M. Klaui: "Spin currents injected electrically and thermally from high spin polarized Co₂MnSi." Appl. Phys. Lett. **107**, 82401 (2015). (査読有)
 16. K. Ienaga, H. Takata Y. Onishi, Y. Inagaki, H. Tsujii, T. Kimura, and T. Kawae: "Spectroscopic study of low-temperature hydrogen absorption in palladium." Appl. Phys. Lett. **106**, 021605-1-4 (2015). (査読有)
 17. S. Hu, and T. Kimura: "Significant modulation of electrical spin accumulation by efficient thermal spin injection." Phys. Rev. B **90**, 134412 (2014). (査読有)
 18. T. Kimura: "Lateral Spin Transport (Diffusive Spin Current)." Handbook of Spintronics, (2014). (査読有)
 19. Y. Kanda, T. Nomura, T. Kimura, and M. Hara: "Geometrical optimization of a local ballistic magnetic sensor." Appl. Phys. Lett. **104**, 142408 (2014). (査読有)
 20. 木村 崇: 「金属ナノ構造における純スピンの高効率制御」 ("Efficient control of pure spin currents in metallic nanostructures.") 応用物理 **83**, 213-217 (2014). (査読有)
 21. S. Hu, H. Itoh, and T. Kimura: "Efficient thermal spin injection using CoFeAl nanowire." NPG Asia Mater. **6**, e127 (2014). (査読有)
 22. K. Ohnishi, Y. Ono, T. Nomura, and T. Kimura: "Significant change of spin transport property in Cu/Nb bilayer due to superconducting transition." Sci. Rep. **4**, 6260 (2014). (査読有)
 23. X. Cui, S. Hu, and T. Kimura: "Detection of a vortex nucleation position in a circular ferromagnet using asymmetrically configured electrodes." Appl. Phys. Lett. **105**, 082403 (2014). (査読有)
 24. S. Yakata, T. Tanaka, K. Kiseki, K. Matsuyama, and T. Kimura: "Wide range tuning of resonant frequency for a vortex core in a regular triangle magnet." Sci. Rep. **3**, 3567 (2013). (査読有)
 25. S. R. Bakaul, S. Hu, and T. Kimura: "Thermal gradient driven enhancement of pure spin current at room temperature in nonlocal spin transport devices." Phys. Rev. B **88**, 184407 (2013). (査読有)
 26. C. Mu, S. Hu, J. Wang, and T. Kimura: "Thermo-electric effect in a nano-sized crossed Permalloy/Cu junction under high bias current." Appl. Phys. Lett. **103**, 132408(2013). (査読有)
 27. T. Matsunaga, K. Furukawa, Y. Kanda, M. Hara, T. Nomura, and T. Kimura: "Detection of edge magnetic state by a ballistic bend resistance measurement." Appl. Phys. Lett. **102**, 252405(2013). (査読有)
- [学会発表](計 18 件(招待講演のみ記載))
1. T. Kimura, Generation of large spin current in metallic nanostructures and its application, Energy Materials Nanotechnology east meeting (Invited), 2013 年, Beijing, China
 2. T. Kimura, Highly efficient thermal spin injection using CoFeAl injector, EMN fall meeting (Invited), 2013 年, Orland, USA
 3. 木村崇, 強磁性-常磁性複合ナノ構造におけるスピンの電氣的、及び熱的制御, 応用物理学会・応用電子物性分科会(招待講演)2014 東京
 4. 木村崇, 横型スピンバルブ素子における熱流の影響と熱流を用いた高効率スピン流生成, 日本応用磁気学会分科会(招待講演), 2015 東京
 5. T. Kimura, Highly efficient thermal spin injection using CoFeAl injector, Nano S&T (Invited), 2014, China
 6. T. Kimura, Excellent Material for Thermal Spin Injection and Its Application, EMN meeting (Invited), 2015, Phuket, Thai
 7. T. Kimura, Highly efficient thermal spin injection using CoFeAl injector, Intermag 2015 (Invited), 2015, Beijing, China
 8. T. Kimura, Large spin-dependent thermoelectric effects using CoFe-based alloy, International Conference and Exhibition on Mesoscopic & Condensed Matter Physics (Invited), 2015, Boston,

USA

9. T. Kimura, Geometry and material optimization for efficient thermal spin injection, Spin Energy Materials (Invited), 2015, Sendai, Japan
10. T. Kimura, Efficient Spin Injection and Absorption Using CoFe-Based Alloys and Its Application, 2nd International Symposium on Frontiers in Materials Science (Invited), 2015, Tokyo, Japan
11. T. Kimura, Efficient spin injection in metallic hybrid structure, ICSM 2016 (Invited), 2016, Turkey
12. T. Kimura, Efficient spin injection in metallic hybrid structure, ICEM 02016 (Invited), 2016, Singapore
13. T. Kimura, Modulation of spin current using ferromagnetic spin absorber, Collaborative Conference on Materials Research (Invited), 2017, Korea
14. T. Kimura, Spin Absorption Effects due to Various Functional Materials, 3rd Frontier in Material Science (Invited), 2017, Germany
15. T. Kimura, Resistive switching with ferromagnetic electrode and metal/metal oxide bilayer planar system with low voltage operation, EMN Meeting on Memristive (Invited), 2017, Italy
16. T. Kimura, Spin Absorption Effects due to Various Functional Materials, International Conference on Advanced Materials and Devices, (Invited), Korea (2017).
17. T. Kimura, Efficient thermal spin injection in metallic hybrid nanostructures, 6th JSPS Core-to-Core Workshop on "New-Concept Spintronics Devices" (Invited), 2017, Sendai, Japan.
18. 木村 崇, ナノ磁性金属薄膜を用いた高効率熱スピン注入とその応用, 電気学会全国大会 (招待講演), 2017, 福岡

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計0件)

取得状況 (計1件)

名称: ワイヤレススピン流励起
発明者: 木村 崇, 胡少杰, 山野井 一人
権利者: 国立大学法人 九州大学
種類:
番号: 2016-66796(P2016-66796A)
取得年月日: 平成 26 年 9 月 18 日
国内外の別: 国内

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

木村 崇 (KIMURA, Taakshi)
九州大学・理学研究院 教授
研究者番号: 80360535

(2)研究分担者

河江 達也 (KAWAE, Tatsuya)
九州大学・工学研究院・准教授
研究者番号: 30253503

原 正大 (HARA, Masahiro)
熊本大学・大学院先端科学研究部 (理)・
准教授
研究者番号: 50392080

(3)連携研究者

山田 和正 (YAMADA, Kazumasa)
九州大学・理学研究院・助教
研究者番号: 30380562

大西 紘平 (OHNISHI, Kohei)
九州大学・理学研究院・助教
研究者番号: 30722293