

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 27 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2015

課題番号：25706017

研究課題名(和文)磁性ヘテロ接合の巨大なスピン軌道相互作用現象の解明と革新的な磁化制御技術の確立

研究課題名(英文)Giant spin orbit effects in magnetic heterostructures and their use for efficient control of magnetization

研究代表者

林 将光(Hayashi, Masamitsu)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性材料ユニット・主任研究員

研究者番号：70517854

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,100,000円

研究成果の概要(和文)：スピンホール磁気抵抗効果を利用し、5d遷移金属のスピンホール角の大きさを調べた結果、スピンホール角は5d遷移金属の構造に大きく依存し、多くの材料でアモルファス構造が大きな値をもつことがわかった。また、スピンホール磁気抵抗の温度依存性からスピンホール角を正確に決めるためには、強磁性金属層への縦スピン吸収を考慮しなければならないことを明らかにした。さらに、電流誘起有効磁場のベクトル分解測定とその温度依存性から、非磁性/強磁性界面におけるスピンミキシングコンダクタンスが特異な値を持つことがわかった。さらにこの界面では、物質の組み合わせによってジャロシンスキー守谷相互作用を制御できることがわかった。

研究成果の概要(英文)：We have studied the spin Hall angle of 5d transition metals using the spin Hall magnetoresistance effect and found that the angle depends on their structure. In many materials, a large spin Hall angle was found when the metal forms an amorphous-like phase. We reported that it is important to take into account the absorption of the longitudinal spin current to a metallic ferromagnet in order to properly describe spin Hall magnetoresistance. Using harmonic Hall voltage measurements, we have studied the origin of current induced torques that arise in thin film heterostructures. In such systems, we found that the spin mixing conductance takes an anomalous value. Finally, in similar heterostructures, we demonstrated that the chirality of the magnetic structure can be controlled by the selection of the non-magnetic material that faces the ultra-thin magnetic layer.

研究分野：電子スピン物性、磁性

キーワード：スピントロニクス

### 1. 研究開始当初の背景

電子のスピン向きを情報の記憶ビットとして用いるスピントロニクス素子は、高性能の不揮発性メモリや不揮発性論理演算素子へ応用できるとして期待が高まっている。スピントロニクス素子の根幹を成すのは、電気的に磁化を制御する技術である。当初、電流磁場を用いて行っていた情報の「書き込み」技術は、磁性ナノ素子に電流を直接印加して磁化を制御できるスピントルクと呼ばれる量子力学的効果の発見によって、スケール、効率、熱安定性などの指標が大きく改善され、MRAM と呼ばれる磁気ランダムアクセスメモリや、磁壁移動メモリと呼ばれるストレージクラスメモリの開発に大きく貢献している。

しかしながら、スピントルクを利用して上記のデバイス開発には課題があり、特に磁壁移動メモリにおいては要求される電流密度が大きく、問題となっている。一方で最近、各層の膜厚が数原子層程度の極薄積層膜において、膜面水平方向に電流を印加することで強磁性層の磁化を効率的に制御できるとする報告が相次いでいる。たとえば、膜厚が 0.6 nm の Co を Pt と Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> で挟んだ積層膜において、電流印加によって高速で移動する磁壁移動現象や、低電流で誘起できる磁化反転現象が確認されている。これらの結果は、構造反転対称性が破れた積層膜における Rashba・Edelstein 効果(電流印加によって伝導電子がスピン分極する現象)によって生成されたスピン蓄積や、スピンホール効果によって生成されたスピン流による効果であるされているが、その全容は明らかになっていない。

### 2. 研究の目的

そこで本研究は、代表者らが世界に先駆けて確立した電流誘起有効磁場のベクトル分解測定を用いて、薄膜ヘテロ構造で生成されたスピン流・スピン蓄積がトルクを誘起するメカニズムを明らかにし、さらに高効率の磁化反転機構確立へ展開していくことを目指す。具体的には、電流印加によって生成されるスピン流・スピン蓄積の大きさが、ヘテロ構造を構成する物質やその膜厚によってどのような影響を受けるかを解明する。また、生成されたスピン流・スピン蓄積が磁性層に拡散した場合、界面でどのような(スピン)トルクを誘起するかを調べ、界面を構成する物質の組み合わせがトルクにどのような影響を及ぼすかを明らかにする。最後に、電流印加で誘起されたトルクの温度依存性などを評価することで、スピン流・スピン蓄積の生成機構解明につなげることを目指す。

### 3. 研究の方法

電流誘起有効磁場はヘテロ構造から作製したホールバーに交流電流を印加し、発生するホール電圧の基本波と第 2 高調波の印加磁

場依存性から得る。垂直磁化膜の場合、電流と平行な面内磁場(縦磁場)と、電流と直交する面内磁場(横磁場)を印加した時のホール電圧の変化から、damping-like と field-like な有効磁場を決定する。

### 4. 研究成果

初年度は、薄膜ヘテロ構造における電流誘起有効磁場の評価方法について、その詳細を再検討した。まず、ホール電圧の高調波測定から有効磁場を求める際、これまではホール電圧には異常ホール効果による寄与のみを考慮してきた。異常ホール効果以外のホール電圧(例えばプレーナーホール効果などによる影響など)が含まれる場合、有効磁場を正確に導出する方法が確立されていなかった。そこで本研究では、プレーナーホール効果がホール電圧に含まれる場合の有効磁場を導出する方法を求め、その解析解が簡単な式で表せることを示した。さらに、これまでのホール電圧高調波測定は磁化が膜面垂直方向を向いた垂直磁化膜のみで適用可能であったが、本研究では面内磁化膜でも同様に damping-like と field-like な有効磁場を導出できることを報告した。この手法を使って得られた有効磁場は、他の手法(磁化反転に必要な閾値電流の外部磁場依存性から求めた有効磁場など)で得られたそれとほぼ同等の値であった。これにより、様々な積層構造における電流誘起有効磁場測定が可能となった(Hayashi *et al.*, Phys. Rev. B 89, 144425 (2014))。

2 年度目にはホール電圧の高調波測定から電流誘起有効磁場の温度依存性を求めた。薄膜ヘテロ構造には Ta/CoFeB/MgO と TaN/CoFeB/MgO を用いた。その結果、damping-like な有効磁場と field-like な有効磁場の温度変化が異なることがわかった。測定温度をあげると、damping-like 有効磁場が減少するのに対し、field-like 磁場は exponential 的に増加した。理論モデルとの比較から、これらの結果は Ta や TaN から CoFeB 層に進入する電子スピンの界面における反射率、いわゆる「スピンミキシングコンダクタンス」の温度依存性に起因していることを見出した(Kim *et al.*, Phys. Rev. B 89, 174424 (2014))。また、得られたスピンミキシングコンダクタンスの値が、これまでに報告されている値と比較して大きく異なることがわかった。この原因としては、スピンホール効果によって生成されたスピン流が界面に対して斜めに入射することによる寄与と、これまでに明らかになっていない他の効果の寄与の両方が考えられる。更なる実験、モデル計算が必要である。

また、薄膜ヘテロ構造の界面では、積層構造を構成する物質の組み合わせによって、ジャロシンスキー守谷相互作用を制御できることがわかった。強磁性体に CoFeB を用い、その下地層に重遷移金属である Hf、Ta、TaN、

Wを用いると、ジャロシンスキー守谷相互作用の大きさと符合が変化した。特にW/CoFeBでは大きなジャロシンスキー守谷相互作用が誘起され、CoFeB内に旋回性の統一された磁区構造が発現することを見出した (Torrejon *et al.*, Nat. Commun. 5, 4655 (2014))。これらの結果は、細線内の磁壁の位置を電流で制御し、その高速性を利用したメモリの開発に向けて重要な指針を与えるものである。

最終年度には強磁性層と、有限なスピンホール効果を有する非磁性金属層の2層構造において発現するスピンホール磁気抵抗効果が、薄膜ヘテロ構造における非磁性層のスピンホール角を定量的に評価できる手法として有用であることを見出した。特に強磁性層が金属の場合でも、非磁性膜厚依存性から、非磁性層のスピンホール角とスピン拡散長を決定する手法を、実験結果とモデル計算の比較から確立した。特に、スピンホール磁気抵抗率の温度依存性から、スピンホール磁気抵抗を利用して非磁性金属のスピンホール角を正確に決めるためには、強磁性層への縦スピン吸収を考慮しなければならないことを明らかにした (Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. 116, 097201 (2016))。

この手法を利用し、本研究では5d遷移金属(Hf, Ta, W, Reなど)のスピンホール角の大きさを調べた。その結果、スピンホール角は5d遷移金属の構造に大きく依存し、多くの材料でアモルファス構造が大きなスピンホール角を有していることが明らかになった。また、得られた非磁性層のスピンホール角と抵抗率からスピンホール伝導率を求めた。スピンホール伝導率は電子の散乱などによるスピンホール効果への外因的な寄与を除外した物理量であり、材料を比較するにあたっては有用である。調べた5d遷移金属の中では、Wのスピンホール効果が一番大きく、スピンホール角は0.27程度、スピンホール伝導率は $\sim 2 \times 10^{-3} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$ であった。アモルファス構造に限った場合、スピンホール伝導率は5d電子数に大きく依存しており、スピンホール効果の起源が内因的なものであることが示唆される結果が得られた (Liu *et al.*, Appl. Phys. Lett. 107, 232408 (2015))。また、多くの5d遷移金属は膜厚が大きくなると構造相転移が誘起され、結晶化することがわかった。Wやレニウム(Re)はそれぞれbcc、hcp構造に結晶化すると、抵抗率とスピンホール角が大きく下がった。これらの結果は非磁性層の構造がスピンホール効果を決定する上で重要な役割を果たしていることを示しており、今後さらに大きなスピンホール角を有する材料探索に当たって重要な知見となる。

また、最終年度にはTa/CoFeB/MgOヘテロ構造において、TaがCoFeBのボロン(B)を吸収する様子を電子顕微鏡を用いて解析し、Bの拡散がCoFeB/MgOの界面磁気異方性に大きな影響を及ぼすことを明らかにし

た (Sinha *et al.* J. Appl. Phys. 117, 043913 (2015))。また、垂直磁気異方性を有するCoFeB/MgOヘテロ構造において、面内電流印加による磁化反転を調べたところ、従来の報告と異なり、外部磁場がない場合でも磁化反転を誘起できることを示した。その詳細を調べたところ、ヘテロ構造成膜条件によって、垂直磁気異方性が膜面垂直方向からわずかに(1-2度)傾くことがわかり、それによってゼロ磁場でも磁化反転を誘起できることを理論計算などを通して明らかにした (Torrejon *et al.* Phys. Rev. B 91, 214434 (2015))。

## 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 7件)

1. J. Kim, P. Sheng, S. Takahashi, S. Mitani, and M. Hayashi, Spin Hall Magnetoresistance in Metallic Bilayers, Phys. Rev. Lett. 116, 097201 (2016). 査読あり . DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.097201
2. J. Liu, T. Ohkubo, S. Mitani, K. Hono, and M. Hayashi, Correlation between the spin Hall angle and the structural phases of early 5d transition metals, Appl. Phys. Lett. 107, 232408 (2015). 査読あり . DOI: 10.1063/1.4937452
3. J. Torrejon, F. Garcia-Sanchez, T. Taniguchi, J. Sinha, S. Mitani, J.-V. Kim, and M. Hayashi, Current-driven asymmetric magnetization switching in perpendicularly magnetized CoFeB/MgO heterostructures, Phys. Rev. B 91, 214434 (2015). 査読あり . DOI: 10.1103/PhysRevB.91.214434
4. J. Sinha, M. Gruber, M. Kodzuka, T. Ohkubo, S. Mitani, K. Hono, and M. Hayashi, Influence of boron diffusion on the perpendicular magnetic anisotropy in Ta|CoFeB|MgO ultrathin films, J. Appl. Phys. 117, 043913 (2015). 査読あり . DOI: 10.1063/1.4906096
5. J. Torrejon, J. Kim, J. Sinha, S. Mitani, M. Hayashi, M. Yamanouchi, and H. Ohno, Interface control of the magnetic chirality in CoFeB/MgO heterostructures with heavy-metal underlayers, Nat. Commun. 5, 4655 (2014). 査読あり . DOI: 10.1038/ncomms5655
6. J. Kim, J. Sinha, S. Mitani, M. Hayashi, S. Takahashi, S. Maekawa, M. Yamanouchi, and H. Ohno, Anomalous temperature dependence of current-induced torques in CoFeB/MgO heterostructures with Ta-based underlayers, Phys. Rev. B 89, 174424 (2014). 査読あり . DOI: 10.1103/PhysRevB.89.174424
7. M. Hayashi, J. Kim, M. Yamanouchi, and H.

Ohno, Quantitative characterization of the spin-orbit torque using harmonic Hall voltage measurements, Phys. Rev. B 89, 144425 (2014).  
査読あり .  
DOI: 10.1103/PhysRevB.89.144425

〔学会発表〕(計 16 件)

1. 林 将光, 薄膜ヘテロ構造におけるスピ  
ン軌道効果, 第 71 回物理学会春季大会,  
東北学院大学, 仙台, Mar. 21, 2016
2. M. Hayashi, Electrically and thermally  
generated spin current in heavy metals, 13th  
RIEC International Workshop on Spintronics,  
東北大学, 仙台, Nov. 11, 2015
3. 林 将光, 薄膜ヘテロ構造におけるスピ  
ン軌道効果と電流駆動磁気デバイス, 第  
76 回応用物理学会秋季講演会, 名古屋国  
際会議場, Sep. 15, 2015.
4. M. Hayashi, Control of spin current and  
magnetism in magnetic heterostructures,  
International Center for Nano-Systems  
(ICNS) Opening Workshop, Cambridge, UK,  
Jul. 13, 2015.
5. M. Hayashi, Spin Hall effect and chiral  
magnetism in metallic heterostructures,  
International Conference on Magnetism  
(ICM), Barcelona, Spain, Jul. 7, 2015.
6. M. Hayashi, J. Torrejon, J. Kim, P. Sheng, S.  
Mitani, Controlling spin transmission and the  
Dzyaloshinskii-Moriya interaction at  
interfaces in magnetic heterostructures, 第 62  
回応用物理学会春季講演会, 東海大学湘  
南キャンパス, 湘南, Mar. 14, 2015
7. M. Hayashi, Spin orbit torques and chiral  
magnetism in ultrathin magnetic  
heterostructures, 59th Annual Magnetism &  
Magnetic Materials Conference (MMM),  
Honolulu, Nov. 4, 2014.
8. M. Hayashi, Spin orbit torques in magnetic  
heterostructures, IUMRS-ICA, Fukuoka,  
Japan, Aug. 25, 2014.
9. M. Hayashi, Spin orbit torques and chiral  
magnetic texture in magnetic heterostructures,  
SPIE Spintronics VII, San Diego, Aug. 20,  
2014.
10. M. Hayashi, Spin orbit effects in ultrathin  
magnetic heterostructures, 8th International  
Conference on Physics and Applications of  
Spin Phenomena in Solids (PASPS VIII),  
Washington DC, Jul. 29, 2014.
11. M. Hayashi, J. Torrejon, J. Kim, J. Sinha, S.  
Mitani, S. Takahashi, S. Maekawa, M.  
Yamanouchi, H. Ohno, Current induced spin  
orbit torques and chiral magnetic texture in  
magnetic heterostructures, The 12th RIEC  
International workshop on Spintronics, Sendai,  
Japan, Jun. 25, 2014.
12. J. Kim, J. Sinha, S. Mitani, M. Hayashi, S.  
Takahashi, S. Maekawa, M. Yamanouchi, H.  
Ohno, Temperature dependence of current  
induced spin-orbit torques, Dresden, Germany,  
May 8h, 2014.
13. J. Torrejon, J. Kim, J. Sinha, S. Mitani, M.  
Hayashi, M. Yamanouchi, H. Ohno, Control  
of domain wall chirality in ultrathin  
CoFeB/MgO heterostructures by using  
different heavy metal underlayers, Dresden,  
Germany, May 8h, 2014.
14. M. Hayashi, 磁性ナノヘテロ構造における  
スピ  
ン軌道トルク, 第 61 回応用物理学会  
春季講演会, 青山学院大学, 相模原, Mar.  
18, 2014.
15. M. Hayashi, Spin orbit torques in  
Ta|CoFeB|MgO magnetic heterostructures,  
Annual Conference on Magnetism and  
Magnetic Materials (MMM), Denver, CO,  
Nov. 7, 2013.
16. M. Hayashi, Spin orbit torques and current  
induced domain wall motion in magnetic  
heterostructures. Concepts in Spintronics,  
Kavli Institute for Theoretical Physics, Santa  
Barbara, CA, Oct. 19, 2013.

〔図書〕(計 2 件)

1. 林 将光, 界面ジャロシンスキー・守谷相  
互作用と旋回性磁区構造の発現機構 ス  
ピンホールトルク駆動磁壁移動素子への  
展開 日本磁気学会誌「まぐね」, vol.10,  
no.4, pp. 186-191 (2015).
2. J. Torrejon and M. Hayashi, Spin Hall  
torque driven chiral domain walls in  
magnetic heterostructures, Magnetic  
Nano- and Microwires: Design,  
synthesis, properties and applications,  
pp. 313-331, Woodhead publishing,  
Elsevier, Cambridge, UK (2015).

〔その他〕

ホームページ等

[http://www.nims.go.jp/mmu/index\\_j.html](http://www.nims.go.jp/mmu/index_j.html)

6 . 研究組織

(1)研究代表者

林 将光 (HAYASHI, Masamitsu)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性  
材料ユニット・主任研究員

研究者番号：70517854