

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 28 日現在

機関番号：33924

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630137

研究課題名(和文)アモルファス磁性細線磁壁駆動スピンの発電高出力化への挑戦

研究課題名(英文)Challenge to enlargement of the spin electromotive force using amorphous Rare-Earth Transition-Metal magnetic wire

研究代表者

栗野 博之(Awano, Hiroyuki)

豊田工業大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：40571675

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：FeNi磁性細線上の磁壁を磁界で動かすことにより逆スピントルク効果が生じ、微弱ではあるが発電することが報告された。しかし、この出力は小さく、これを大幅に改善するのが本研究の目的である。そこで、スピン軌道相互作用の大きな希土類元素を含む希土類・遷移金属合金からなるTbFeCo磁性細線を試作した。すると、スピン発電量はFeNiの45倍にもなった。ただし、この磁性細線のカバー層に用いた重金属Ptには、大きなスピン軌道相互作用が生じ、スピンホール効果やジャロシンスキー守谷相互作用などのスピンオービトロニクス効果のスピン発電への影響も考えられ、スピン発電メカニズム解明が今後の課題である。

研究成果の概要(英文)：From a lot of spintronics research, spin electromotive force of FeNi magnetic wire has been reported. However, it is very small. In order to improve it, spin electromotive force of the Rare Earth Transition Metal (RE-TM) which has a large spin orbital interaction has been evaluated. As a result, the electromotive force of the RE-TM magnetic wire is 45 times larger signal compared to that of the FeNi magnetic wire. On the other hand, the RE-TM magnetic wire is covered with Pt thin layer to prevent from oxidation. Recently, it has been found that spin orbital torque effect due to the Pt layer is very large and effective to the magnetic domain wall motion. Therefore, we have studied the spin orbitronics effect to the domain wall motion of the RE-TM magnetic wire. By using these result, more larger spin electromotive force of the RE-TM magnetic wire would be realized in near future.

研究分野：スピントロニクス、光・磁気記録

 キーワード：スピン起電力 磁性細線 希土類・遷移金属合金 磁壁駆動 スピン軌道相互作用 スピントルク ス
 ピンオービタルトルク ヘテロ界面

1. 研究開始当初の背景

伝導電子のスピントルクを使って磁性細線上の磁壁を駆動する磁性細線メモリの研究が活発に行われている。この検証は保磁力が小さく磁壁が動きやすい FeNi 合金で行われ、電流密度 $1 \times 10^{12} \text{A/m}^2$ で駆動できることが報告された。しかし、この電流密度の低減が課題であった。そこで、我々は飽和磁化の小さなフェリ磁性 TbFeCo 細線を用い、細線上の磁壁を室温にて世界最小の電流密度で移動させることに成功した (室温動作世界最小: Appl. Phys. Express 2011)。これは FeNi に比べて 100 分の 1 と小さく、Tb の大きなスピン軌道相互作用や、フェリ磁性で飽和磁化が小さいことによる効果と考えられる。

逆に、細線上の磁壁を外部磁界で強制的に移動した場合、細線両端には効率よく発電できる可能性が考えられる。例えば、図 1 に示すように、磁性細線内の磁壁は磁壁抗磁力以上の外部磁界で動かすことができ、磁性細線に電流を印加した場合には、伝導電子のスピントルクの影響で磁壁を動かせる。そのようなアイデアは既に前川、家田らにより提案され、FeNi 磁性細線を用いた発電実験で確認されている。しかし、その発電は極くわずかなサブマイクロボルトと小さく、この増大が課題であった。この発電量向上には保磁力の大きな材料が良いという理論があったが、その後検証実験は行われていなかった。そこで、保磁力が FeNi よりも桁違いに大きなアモルファス TbFeCo 合金磁性細線によるスピン発電の実験を行うことにした。また、この希土類元素である Tb は重元素である点がスピン発電に及ぼす影響の報告もないため、これも明らかにする必要がある。また、我々は TbFeCo 細線の積層構造で磁壁駆動方向を制御できることや (Appl. Phys. Express 2012)、TbFeCo 細線上に n 個の磁壁を形成することで磁気抵抗を n 倍化できることを報告しており (ICM2012: J. Korean Phys. Soc. 2012)、これを応用して磁壁枚数を増やすことで発電量増大を狙うこともできる。

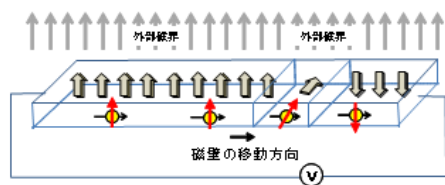


図 1 磁性細線上に 1 枚の磁壁があり、これを外部磁界で駆動すると、これに伴う角運動量変化分だけ伝導電子を動かすことができ、磁性細線両端に電力が発生する。

2. 研究の目的

本研究では、スピン軌道相互作用の大きな希土類元素を含んだ希土類・遷移金属合金あるいは希土類/遷移金属多層膜を用いて磁性細線を作成し、この磁性細線上の磁壁駆動に

よるスピン発電出力の増大を目的とする。

3. 研究の実験方法

試料の作製方法を説明する。まず初めに表面を強制酸化した Si 基板を作成し、この上にレジストを塗布して、所望の演算パターンを電子線露光する。これを現像して細線パターンのレジストを除去し、超高真空マグネトロンスパッタ装置のロードロック室の基板ホルダーにセットする。真空排気が所望の真空度に達したところでゲートバルブを開いて基板をスパッタ室に移動し TbFeCo 合金または Tb/Co 多層膜を Ar ガス 1mTorr の条件下スパッタパワー 50W で所望の膜厚になるまでスパッタする。更に、この上に表面保護のため Pt を 2nm 成膜する。これを取り出してリフトオフしてから電極を形成する。この試料に外部磁界あるいはレーザーを用いて磁壁を導入し、外部磁界で磁壁を駆動する際に生じるスピン起電力を測定する。ただし、この際、外部磁界の時間変化による誘導起電力が生じる。これを除去するため、磁壁のない磁性細線で同じ実験を行い、両者の差をとることで有効なスピン起電力を求める。

また、磁性細線の下地層やカバー層の材料が重金属の場合、この重金属層内を電流が流れるとスピンホール効果が生じ、このヘテロ界面にはジャロシンスキー守谷相互作用が発生して磁壁構造が従来のブロッホ磁壁からネール磁壁に変化する。これらの影響はスピン発電にも影響すると考えられるため、この影響も調べる。更に、磁性細線を成膜する際のスパッタガスが Ar の場合、反跳原子による磁性細線へのダメージがある。そこで、スパッタガスを Xe に変えて反跳原子の影響を低減した磁性細線の磁壁駆動にも着目した。加えて、磁性細線を前述エッチング法で作成すると磁性細線のエッジが荒れるため、磁壁移動の障害となる。これを回避する方法としてプラスチック基板を使ったナノインプリント法を提案している。これを使った磁壁移動についても検討を行った。

4. 研究成果

図 2 には、作成した TbFeCo 磁性細線と電極の偏光顕微鏡写真を示す。細線長さは $50 \mu\text{m}$ 、細線幅は $6 \mu\text{m}$ 、TbFeCo 膜厚は 7.3nm、保護膜には Pt 層を 2nm 積層してある。Pt 層がこの程度の薄さであれば、光が十分透過するため偏光顕微鏡で TbFeCo 磁性細線上の磁区の状態を観察することができる。

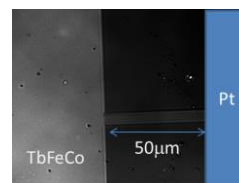


図 2 TbFeCo 磁性細線の偏光顕微鏡写真

この磁気特性を調べるため波長 690nm の赤色レーザーを使った極磁気光学 Kerr 効果測定装置を用いた。測定結果を図 3 に示す。外部磁界が 0 の状態でも大きな残留磁化状態を示しており、しかも角型比が 1 の垂直磁化膜である。保磁力は 3kOe 程度、磁壁のピニング磁界は約 2.5kOe である。すなわち、この磁壁を磁界で駆動するにはこのような大きな外部磁界を必要とする。

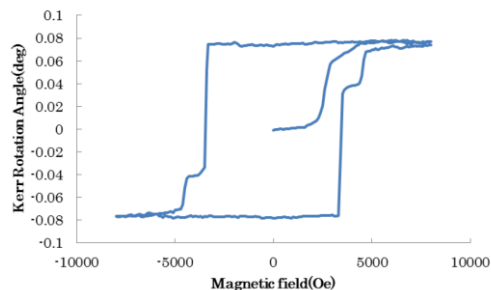


図 3 TbFeCo 磁性膜の極磁気光学カー効果測定装置で測定したヒステリシスループ

さて、スピン起電力の実験報告例は極めて少ないが、ここでは FeNi 面内磁化膜合金が使われていた。この保磁力は数 0e から数 10 0e と極めて保磁力が小さく、磁壁を動かしやすい。そのためスピン起電力が測定しやすと考えられた。一方、本研究で使用した TbFeCo は図 2 からわかるように、極めて大きな保磁力を有しており磁壁は安定している。そのため、スピン起電力の測定が困難であった。しかし、Ieda によればスピン起電力は印加磁界の大きさに比例しており、FeNi の場合には保磁力は小さく大きな磁界を印加した実験ができない。そのためスピン起電力は小さいと説明している。この理論からすると本研究の TbFeCo の場合には、実験は難しいが大きな外部磁界を印加できるため、大きなスピン起電力創生が期待できる。そこで、小さな磁気ヨークからなる電磁石を用い、これにパルス電流を印加して磁壁を駆動する実験を試みた。図 4 にはパルス電流印加時の発生磁界の立ち上がり波形をデジタルオシロスコープで観察した時の波形を示す。

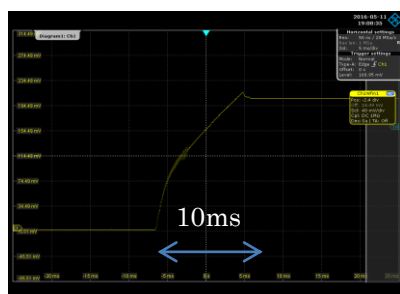


図 4 発生磁界の立ち上がり特性

発生磁界測定には高速応答可能なホール素子を用いた。このマグネットの DC 電流による最大磁界は 1T である。図 4 からパルス電流印加から 10msec で 3kOe まで磁界が発生していることがわかる。磁性細線にあらかじめ作成しておいた磁壁は磁壁抗磁力 2.5kO 以上の磁界で駆動できるため、この 3kOe の外部磁界で磁壁を駆動でき、この大きな外部磁界による FeNi よりも大きなスピン起電力発生が期待できる。この実験系を図 5 に示した。オシロスコープで出力波形を観察するため 30dB のアンプを利用した。出力値はこの増幅分を考慮してある。

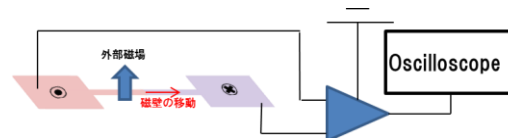


図 5 スピン起電力測定系ブロック図

この実験では、磁性細線に急激に磁界を印加するため測定系出力信号に誘導起電力が重畳することが予想できる。まず初めに、この誘導起電力の影響を調べるために、着磁した磁性細線に磁界を印加した時の信号変化を測定した。測定結果を図 6 に示す。磁界印加直後に出力信号が 15 μ V 程度上昇していることがわかる。磁界の時間変化は図 4 から 10msec 程度であることがわかっており、10msec 後はその寄与が減るはずである、しかし、出力信号は元に戻っていない。これは外部磁界が保磁力を超えると磁化反転が起こりその急激なスピン変動が発熱を生じ、磁性細線を温めて細線の抵抗値が増加したためと考えることができる。

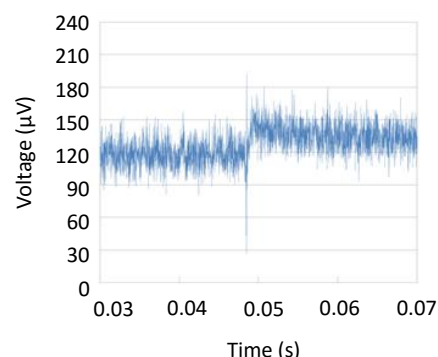


図 6 磁壁を持たない着磁された磁性細線に磁界を印加した時の磁性傾瀨両端に現れる電圧の時間変化

次に、この磁性細線に磁壁を 1 枚形成し、これに外部磁界を印加した時の出力電圧の時間変化を図 7 に示した。

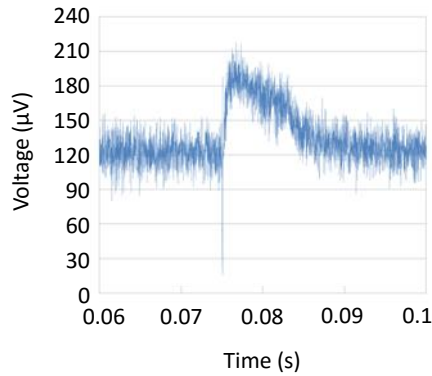


図7 磁性細線に磁壁を1枚形成し、これに外部磁界を印加した時の出力電圧時間変化

図7では、磁界印加後に急激に出力電圧が上昇し、その後出力が減少に転ずる。急激に生じた信号の大きさは $60\mu\text{V}$ 程度であり、磁壁がない場合の信号に増加量 $15\mu\text{V}$ を引くと $45\mu\text{V}$ 程度のスピン発電を観察できたと考えることができる。この $45\mu\text{V}$ の出力は、既報告の FeNi 磁性細線の出力の 45 倍である。ただし、波形の意味を完全に理解することはできていないため、更なる検証が必要である。

ところで、本実験には酸化膜 SiO_2 つき Si 基板を用いた。磁性細線は $\text{SiO}_2/\text{TbFeCo}/\text{Pt}$ の積層構造になっている。近年、重金属である Pt は、大きなスピン軌道相互作用を有しているため電流が Pt 層を通ると大きなラシュバ効果、スピンホール効果を磁性層にもたらしスピンオービタルトルク (SOT) が注目され始めた。更に、Pt と TbFeCo の界面にはジャロシンスキー守谷相互作用が作用している。従来 TbFeCo の磁壁はブロッホタイプであると考えられていたが、これらの効果により磁壁にネール成分が含まれていることが予想される。これを確認するため磁性細線方向面内に外部磁界を印加し、電流による磁壁駆動効果を確認した。実験結果を図8に示す³⁾。

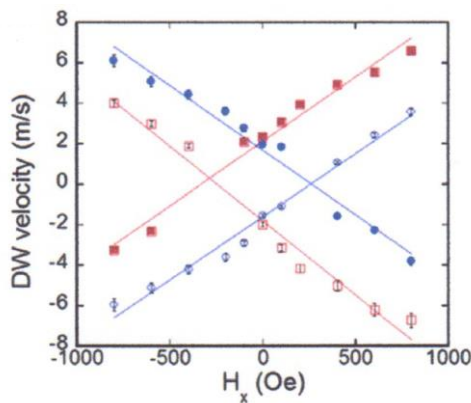


図8 Tb/Co 磁性細線方向面内に外部磁界を印加した時の磁壁移動速度観察結果。

図8において、四角シンボルは細線上磁壁の左側が下向き、右側が上向きの状態を、丸

シンボルは磁壁左側が上向き、右側が下向きの場合を示す。また、黒塗りシンボル、白抜きシンボルは印加電流の正負に対応している。もしも、磁壁がブロッホタイプであればこれら直線は面内磁界 (H_x) に対して対称であるべきだが、それぞれ左右にシフトしている。これはジャロシンスキー守谷相互作用による等価磁界を意味しており、磁壁にネール成分が含まれていることを示唆している。また、このネール型磁壁にスピンホール効果が作用して磁壁を電流方向に駆動していると考えられる。したがって、これらスピンオービタルトルク (SOT) のスピン起電力への影響も考えなければならない。

本研究では、世界で初めて TbFeCo 磁性細線におけるスピン起電力の実験結果を得ることができた。しかもその値は FeNi の 45 倍と大きく、本研究開始前の予想を大幅に超えるものであった。当初、TbFeCo 磁性細線における発電量は FeNi のせいぜい数倍程度と予想していたため磁壁枚数で出力を増大させる計画であったが、希土類・遷移金属合金または希土類/遷移金属合金の電流磁壁駆動の物性研究を深めることにより予想よりも大幅な出力を得ることができた。上記のように SOT の物理現象が把握できてきた^{1)~9)} ので、今後はこの知見を活かして希土類・遷移金属磁性細線のスピン起電力の物理現象を明らかにし、スピン起電力の更なる高出力化を目指す。

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 8 件)

- (1) 栗野博之、鷺見聡、黒川雄一郎、Do Bang, “重金属 Pt 層と希土類・遷移金属合金層からなる磁性細線における電流磁壁駆動”, 信学技報 IEICE Technical Report MR2016-6 (2016) 査読なし
- (2) Yuichiro Kurokawa, and Hiroyuki Awano, “Current -induced domain wall motion attributed to spin Hall effect and Dzyaloshinsky Moriya interaction in Pt/GdFeCo (100nm) magnetic wire”, Jpn. J. Appl. Phys., 55, (2016) 査読あり
- (3) Do Bang, Jiawei Yu, Xuepeng Qiu, Yi Wang, Hiroyuki Awano, Aurelien Manchon, and Hyunsoo Yang, “Enhancement of spin Hall effect induced

torques for current-driven magnetic domain wall motion: Inner interface effect”, *Physical Review B*, 93, 174424 (2016) 査読あり

- (4) Do Bang, and Hiroyuki Awano, “High efficiency of the spin-orbit torques induced domain wall motion in asymmetric interfacial multilayered Tb/Co wires”, *Journal of Applied Physics*, 117, 17D916 (2015) 査読あり
- (5) Masaaki Tanaka, Hiroki Kanazawa, Sho Sumitomo, Syta Honda, Ko Mibu, and Hiroyuki Awano, “Current-induced dynamics of bubble domains in perpendicularly magnetized TbFeCo wires”, *Applied Physics Express*, 8, 073002 (2015) 査読あり
- (6) Hiroyuki Awano, “Investigation of domain wall motion in RE-TM magnetic wire towards current driven memory and logic”, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 383, 50 (2015) 査読あり
- (7) Do Bang, Hiroyuki Awano, “Domain Wall Motion in Tb/Co multilayer wires with a large domain wall de-pinning field”, *J. Appl. Phys.* 115, 17D512 (2014) 査読あり
- (8) 栗野博之「電流駆動磁壁移動を用いた積層型 3 次元メモリ」日本磁気学会誌 トピックス, Vol.9, No.6, 275 (2014) 査読なし

[学会発表] (計 9 件)

- (1) 栗野博之、鷲見聡、黒川雄一郎、Do Bang, “重金属 Pt 層と希土類・遷移金属合金層からなる磁性細線における電流磁壁駆動”、電子情報通信学会磁気記録情報ストレージ研究会 招待講演 IEICE Technical Report MR2016-6、東北大学電気通信研究所(宮城県仙台市)(2016年6月9日)

- (2) 「貴金属/希土類遷移金属多層膜細線における電流駆動磁壁移動」黒川雄一郎、栗野博之、物理学会、東北学院大学(宮城県仙台市)、(2016年3月19日)
- (3) 「Pt/GdFeCo(150nm)磁性細線におけるジャロシンスキー守谷相互作用とスピノービットトルクによる電流誘起磁壁駆動」黒川雄一郎、栗野博之、IEEE Magnetic Society 名古屋支部若手研究会、名古屋大学(愛知県、名古屋市)(2016年2月3日)
- (4) “Current induced domain wall motion in magnetic wire sputtered under different condition of the gas” Tetsuhiro Shibata, Yuichiro Kurokawa, and Hiroyuki Awano, The 13th Magnetism and Optics Research International Symposium, Penang, Malaysia, Tu-P-17 (2015年12月1日).
- (5) “Current induced domain wall motion attributed to spin Hall effect and Dzyaloshinsky Moriya interaction in Pt/GdFeCo (100nm) magnetic wire” Yuichiro Kurokawa, Masaya Kawamoto, and Hiroyuki Awano, The 13th Magnetism and Optics Research International Symposium, Penang, Malaysia, Tu-P-19 (2015年12月1日).
- (6) (Invited) Hiroyuki Awano, Do Bang, and Yuichiro Kurokawa, “Current driven domain wall memory and logic operation with Rare-Earth Transition Metal magnetic wire”, International Workshop Nanotechnology and Nanomaterials, Da Nang, Vietnam (2015年11月4日)
- (7) “Improvement of current induced domain wall motion in TbFeCo wire on plastic substrates” Tsukasa Asari, Atsushi Takeuchi, and Hiroyuki

Awano, International Conference Magnetism, Barcelona, Spain, TH-F-P23 (2015年7月9日).

- (8) “Enhancement of spin Hall effect-induced torques for current driven magnetic domain wall motion” Do Bang, and H. Awano, IEEE International Magnetic Conference, Beijing, China (2015年5月13日).
- (9) “Flexible magnetic wire fabrication process with nanoimprint lithography for current driven domain wall memory” Atsushi Takeuchi, Tsukasa Asari, and Hiroyuki Awano, 59th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, (2014年11月7日).

6. 研究組織

- (1) 研究代表者 栗野 博之 (Hiroyuki Awano)
豊田工業大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号 : 40571675

- (2) 研究分担者 バン ド (Do Bang)
豊田工業大学・大学院工学研究科・研究員

研究者番号 : 40624804