

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 14 日現在

機関番号：11301  
研究種目：若手研究(B)  
研究期間：2014～2015  
課題番号：26790038  
研究課題名(和文) 酸化物スピントロニクスとスピン流トランジスタへの展開

研究課題名(英文) oxide spintronics and application

研究代表者  
キュウ 志勇 (Qiu, Zhiyong)  
東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・助教

研究者番号：30516414

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、スピン流 - 電流変換とスピン流輸送の学理を究明し、その高効率化を実現するものである。

金属や半導体に限られていたスピン流 - 電流変換材料の舞台をさらに広げるため、酸化物及び磁性体薄膜の作製・界面処理技術を駆使することで、様々な材料におけるスピン流の生成・検出を調査し、その効率を格段に向上させることを試みた。そして、関連するスピン流物性の学理の構築にも貢献した。  
新材料・新プロセスに基づく次世代の省エネルギースピndevice技術を切り拓き、スピン流素子の実現に試みた。

研究成果の概要(英文)：In this work, spin-charge conversion and spin transport have been investigated from the viewpoint of physics and experiment. The final goal of our research is the realization of the new energy saving information process device.

Investigation of spin current has been limited to metals and semiconductors. In this work, we tried to expand the stage of spintronic materials. Many new materials, including conductive oxide, have been studied. The conversion efficiency between spin and charge has been improved by both material science and processing technique. Those results also contributed for the understanding of the physics of spin-charge conversion.

By using the new materials and processes, some new type spintronics devices were developed and investigated.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス スピン流 磁性

### 1. 研究開始当初の背景

エレクトロニクスは現代のIT社会を支える技術であり、その中核は電子の電荷の流れ「電流」である。電流により情報の伝送・処理を行う一方、それに伴う膨大なジュール熱損失は深刻な問題になってお流。従って、次世代の省エネルギー情報演算素子の開発は急務となっている。そこで、電子の磁気の流れ[スピン流]が中心となるスピントロニクス分野は期待された。特に電流の全く存在しない絶縁体中でも流れるスピン流は、ジュール熱による損失を限りなく抑えることができるため省エネルギー情報演算素子開発の鍵となる。

### 2. 研究の目的

本研究は、スピン流 - 電流変換とスピン流輸送の学理を究明し、その高効率化を実現するものである。

金属や半導体に限られていたスピン流 - 電流変換材料の舞台をさらに広げる。そのため、申請者がこれまでに蓄積した酸化物及び磁性体薄膜の作製・界面処理技術を駆使することで、様々な材料におけるスピン流の生成・検出効率を格段に向上させ、それに関連するスピン流物性の学理を体系化する。これにより、新材料・新プロセスに基づく次世代の省エネルギースピndeバイステクノロジーを切り拓き、スピン流素子の実現を目指す。

### 3. 研究の方法

本研究の目標を達成するため、材料作製、界面制御技術を駆使して、導電酸化物中のスピン流—電流変換現象及びスピン輸送過程を明らかにすることはキーポイントとなる。

電子ビーム蒸着法やスパッタリング法、PLD法、LPE法など様々な薄膜素子作製の技術を用い、薄膜サンプルを作成する。また、XRD、TEM、AFMなど様々な評価手段で材料物性を評価する。

さらに逆スピンホール効果検出の基本手法を確立して、スピンポンピングやスピンゼーベック効果によって、材料のスピン輸送過程を調査する。その結果に基づいて、高効率なスピン流—電流変換材料を開発する。

さらに、スピン流輸送効率を向上させるため、デバイス作製プロセスを細かく検証し、最適なデバイス構成とプロセスを洗い出す。

### 4. 研究成果

本研究費の支持のもとで、以下の成果を達成した。

#### I. 一年目

初年度の目標は、研究環境の整備と界面効果の解明であった。この目標に基づき、以下の成果を達成した。

1. 所有していた逆スピン測定装置を改良し、より効率よく、測定するシステムを構築した。従来の高周波導波管を用いた励起法から、高周波 Waveguide を中心とした磁性共鳴励起

システムに改良した。目標のとおり、精度、再現性が良く、周波数幅が広いシステムを構築できた。改良した測定システムを用いて、スピン流研究の基礎の一つとなるスピンポンピング素子を作製し、材料開発の面でスピン流輸送特性を調べた。その結果、数ナノメートルの厚さを持つ YIG で出来たデバイスでも、効率よく鮮明な共鳴スペクトルの観測することができた[14, 図1]。

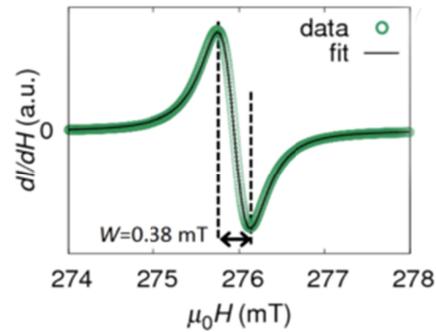


図1 YIG 薄膜の磁気共鳴スペクトル

2. 改良した測定システムを用いて、スピンゼーベック、スピンポンピング、スピン磁気抵抗などの手法を駆使し、スピン流輸送効率に対し、最も重要な要因の一つである界面効果について系統的に研究を行った。それらの結果、すべてのスピン流輸送現象に対し、界面状態は、輸送効率に支配的な影響を与えることを確認した。高温でのスピン磁気抵抗実験より、重要な界面パラメータとしたミキシングコンダクタンスを定量的に評価し、界面定数の温度変化における指針を作った[11]。さらに、中間層を挿入することで、界面状態がスピンゼーベック効果に与える影響を系統的に調査した[6]。そして、界面の結晶性を向上させることや極薄の強磁性金属層を挿入することでスピン流の輸送の効率化を果たした[10]。

3. 以上の結果に加えて、強磁性・常磁性デバイスにおける界面依存な新奇な磁気抵抗効果も発見し、報告した[15, 図2]。

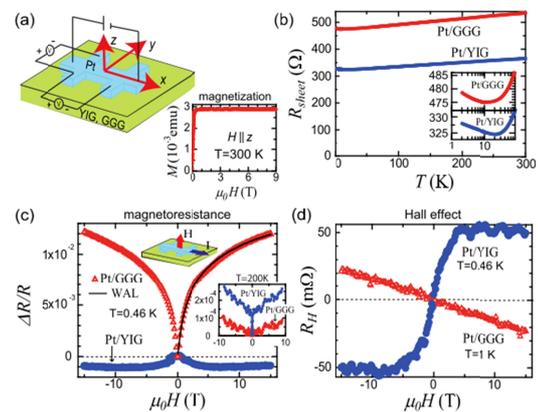


図2 界面依存の磁気抵抗効果

4. スピン流を発生させる方法として、光、熱を利用するのは一般的であるが、その他の方法でスピン流を発生させることも試みた。その結果、音波やプラズマを利用して、スピン流を発生できることが確認した[5,13,図3,図4]。

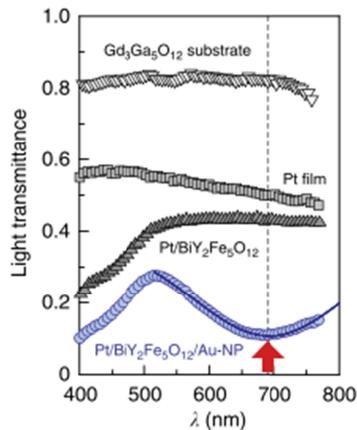


図3 プラズマによるスピン流の発生

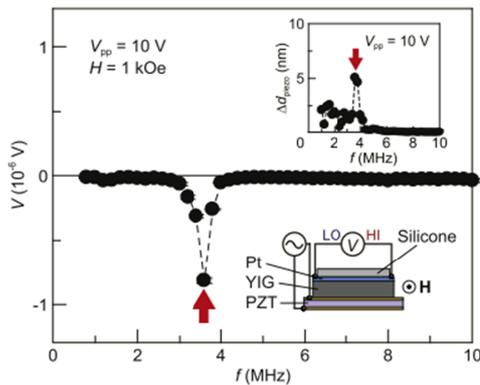


図4 音波によるスピン流の発生

## II. 二年度目

本研究の最終目標は、次世代の省エネルギースピndeバース技術の開発である。新材料・新プロセスの開発やスピン流-電流変換とスピン流輸送の学理の究明はその最終目標を達成するための不可欠な基礎となる。二年度目では、材料とプロセスを続けて進化させた一方、スピン輸送現象の基礎学理についても熱心に研究した。さらに、それらの技術と知識をスピン流情報素子への応用も試みた。

年次目標に基づき、以下の成果を達成した。

1. 巨大なスピンホール角持つ材料の探索するため、酸化物に限らず、有機物や合金も視野に入れた。酸化イリジウムとYIGを用いて、世界初全酸化物でスピンゼーベック素子を実現した[9,図5]。さらに、有機物[12]、合金[7]系についてもスピン流-電流の変換現象を観察された。スピントロニクス機能材料を開拓することで、様々な状況に応じたデバイスを開発することが可能になる。

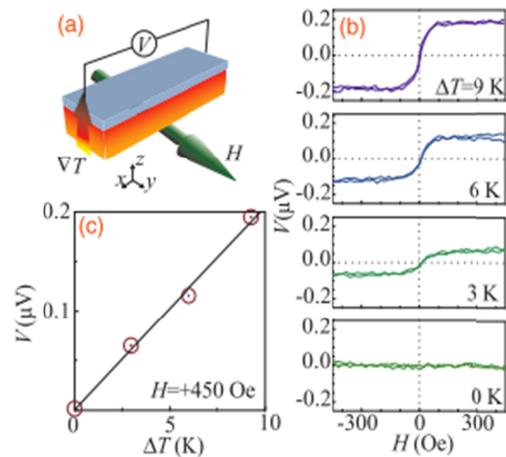


図5 全酸化物スピンゼーベック

2. スピンゼーベック、スピンポンピング、スピン磁気抵抗などはスピン輸送・変換現象と密接に関わる。これらの現象を物理的に解明することはスピントロニクスの学理構築に重要な貢献になる。特に、スピンゼーベックとは熱によりスピン流発生する現象であり、未解明な物理要素が多数存在する。そこで、高磁場という極端な状況でスピンゼーベックを研究することで、スピンゼーベックと熱マグノンとの関係を明らかにした[2]。さらに、界面磁化がスピン流の発生への影響も実験と理論両方から議論した[4]。

3. スピントロニクス材料はスピン流-電流変換する非磁性の他、スピン流を発生する磁性材料もある。我々はフリー磁性(GdIG)からスピンゼーベック効果を始めて観察した[1]。さらに、磁気補償温度(265K)と低温の80K付近で二回のスピンゼーベック符号変化が発見した。これはスピンゼーベック現象の複雑性を示した一方、新たな応用の可能性も示唆した。

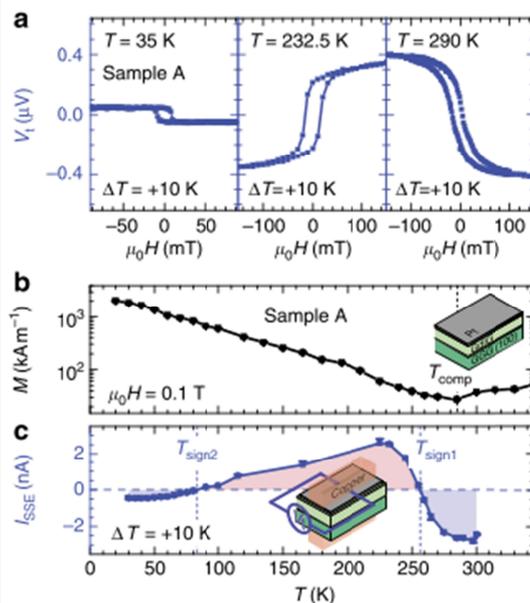


図6 GdIGのスピンゼーベック効果

4.スピントロニクス分野において、研究の出発点は殆ど材料開発や物理解明にあった。我々は、逆の出発点でもいい研究が生まれると思った。スピントロニクス・スピン流物理学を発展させるのではなく、スピントロニクスを材料や物性研究に応用させることを考えた。そこで、スピン流による反強磁性超薄膜の磁気転移を感知することを試みた。磁性・反強磁性・常磁性三層のデバイスを設計した。このデバイスを用いて、スピンプンピングにより反強磁性超薄膜にスピン流を注入し、その反対側から透過したスピン流を逆スピンホール効果により検出した。その結果、反強磁性におけるスピン流の輸送効率は反強磁性スピン揺らぎに支配することが分かった。今まで困難で中性子のような大型装置しかできない反強磁性揺らぎや相転移の調査は卓上の電気測定で実現可能になった。スピントロニクスにとっても、材料研究にとっても大きな進歩だと考えられる。

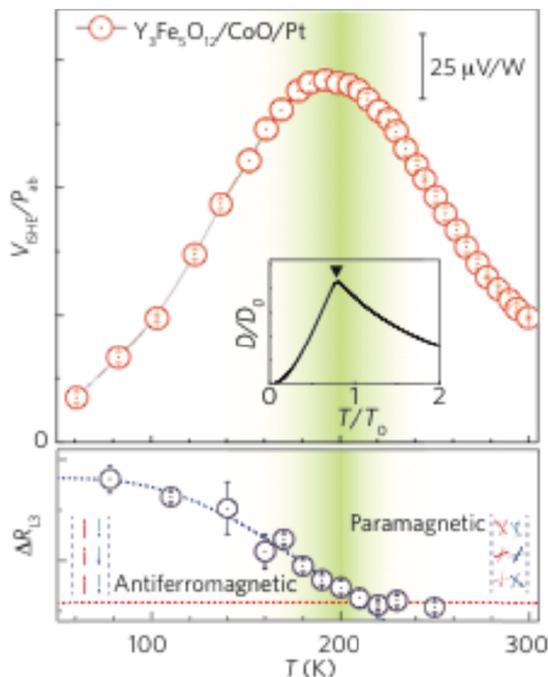


図7 反強磁性のスピン輸送効率の温度依存

本研究費の支持のもとで、二年渡って材料開発とプロセス開発をしつつ、次世代のスピントロニクス素子の実現へ挑戦した。基礎研究から応用研究までたくさん成果が残した。その結果は論文として多く出版された。この二年間で、論文15篇、学会発表が10回できた。また、未発表の結果も多数存在する。我々これからの研究の良い基礎を築いた一方、社会へ積極的に発信することで、世界の科学技術の進歩にも貢献できた。

## 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15件)

1. S. Geprägs, A. Kehlberger, F. Della Coletta, Z. Qiu, E.-J. Guo, T. Schulz, C. Mix, S. Meyer, A. Kamra, M. Althammer, H. Huebl, G. Jakob, Y. Ohnuma, H. Adachi, J. Barker, S. Maekawa, G. E. W. Bauer, E. Saitoh, R. Gross, S. T. B. Goennenwein, and M. Kläui, 'Origin of the spin Seebeck effect in compensated ferrimagnets', Nat. Commun. **7**, 10452 (2016). 査読有
2. T. Kikkawa, K. Uchida, S. Daimon, Z. Qiu, Y. Shiomi, and E. Saitoh, 'Critical suppression of spin Seebeck effect by magnetic fields', Phys. Rev. B **92**, 064413 (2015). 査読有
3. K. Uchida, T. Kikkawa, T. Seki, T. Oyake, J. Shiomi, Z. Qiu, K. Takanashi, and E. Saitoh, 'Enhancement of anomalous Nernst effects in metallic multilayers free from proximity-induced magnetism', Phys. Rev. B **92**, 094414 (2015). 査読有
4. K. Uchida, J. Ohe, T. Kikkawa, S. Daimon, D. Hou, Z. Qiu, and E. Saitoh, 'Intrinsic surface magnetic anisotropy in Y3Fe5O12 as the origin of low-magnetic-field behavior of the spin Seebeck effect', Phys. Rev. B **92**, 014415 (2015). 査読有
5. K. Uchida, H. Adachi, D. Kikuchi, S. Ito, Z. Qiu, S. Maekawa, and E. Saitoh, 'Generation of spin currents by surface plasmon resonance', Nat. Commun. **6**, 5910 (2015). 査読有
6. Z. Qiu, D. Hou, K. Uchida, and E. Saitoh, 'Influence of interface condition on spin-Seebeck effects', J. Phys. D: Appl. Phys. **48**, 164013 (2015). 査読有
7. T. Seki, K. Uchida, T. Kikkawa, Z. Qiu, E. Saitoh, and K. Takanashi, 'Observation of inverse spin Hall effect in ferromagnetic FePt alloys using spin Seebeck effect', Appl. Phys. Lett. **107**, 092401 (2015). 査読有

8. T. Ma, X. Liu, M. Yan, C. Wu, S. Ren, H. Li, M. Fang, Z. Qiu, and X. Ren, ‘Suppression of martensitic transformation in Fe<sub>50</sub>Mn<sub>23</sub>Ga<sub>27</sub> by local symmetry breaking’, Appl. Phys. Lett. **106**, 211903 (2015). 査読有
9. Z. Qiu, D. Hou, T. Kikkawa, K. Uchida, and E. Saitoh, ‘All-oxide spin Seebeck effects’, Appl. Phys. Express **8**, 083001 (2015).
10. D. Kikuchi, M. Ishida, K. Uchida, Z. Qiu, T. Murakami, and E. Saitoh, ‘Enhancement of spin-Seebeck effect by inserting ultra-thin Fe<sub>70</sub>Cu<sub>30</sub> interlayer’, Appl. Phys. Lett. **106**, 082401 (2015). 査読有
11. K. Uchida, Z. Qiu, T. Kikkawa, R. Iguchi, and E. Saitoh, ‘Spin Hall magnetoresistance at high temperatures’, Appl. Phys. Lett. **106**, 052405 (2015). 査読有
12. Z. Qiu, M. Uruichi, D. Hou, K. Uchida, H. M. Yamamoto, and E. Saitoh, ‘Spin-current injection and detection in  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br’, AIP Adv. **5**, 057167 (2015). 査読有
13. K. Uchida, Z. Qiu, T. Kikkawa, and E. Saitoh, ‘Pure detection of the acoustic spin pumping in Pt/YIG/PZT structures’, Solid State Commun. **198**, 26 (2014). 査読有
14. J. Lustikova, Y. Shiomi, Z. Qiu, T. Kikkawa, R. Iguchi, K. Uchida, and E. Saitoh, ‘Spin current generation from sputtered Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> films’, J. Appl. Phys. **116**, 153902 (2014). 査読有
15. Y. Shiomi, T. Ohtani, S. Iguchi, T. Sasaki, Z. Qiu, H. Nakayama, K. Uchida, and E. Saitoh, ‘Interface-dependent magnetotransport properties for thin Pt films on ferrimagnetic Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>’, Appl. Phys. Lett. **104**, 242406 (2014). 査読有

〔学会発表〕(計10件)

1. Zhiyong Qiu, “Electric probe for spin transition and fluctuation”, APS March 2016, 2016/3/27, Baltimore (USA)

2. Zhiyong Qiu, “Electric probe for spin transition and fluctuation”, AMIS2016, 2016/2/23, Tohoku university (Sendai, Miyagi)
3. Zhiyong Qiu, “Electric detection of spin fluctuation”, EMNHongkong2015, 2015/12/11, Hongkong (China)
4. Zhiyong Qiu, “Electric probe for spin transition and fluctuation”, PASPA20, 2015/9/27, Tohoku university (Sendai, Miyagi)
5. Zhiyong Qiu, “Electric detection of spin fluctuation”, CPS2015, 2015/09/12, Changchun (China)
6. Zhiyong Qiu, “Electric Néel temperature determination of an antiferromagnetic insulator film”, InterMag 2015, 2015/5/14, Beijing (China)
7. Zhiyong Qiu, “Electric Néel temperature determination of an antiferromagnetic insulator film”, AMIS2015, 2015/2/18, Tohoku university (Sendai, Miyagi)
8. Zhiyong Qiu, “Investigation of inverse spin-Hall effect of bismuth oxide”, IcAUMS2014, 2014/10/30, Haikou (China)
9. 邱志勇, 「全酸化物系におけるスピンゼーベック効果」, 応用物理 2014 秋大会, 2014/9/09, 中部大学 (名古屋市)
10. Zhiyong Qiu, “Inverse spin Hall effect for conductive oxides”, AMDP2014, 2014/7/19, Busan (Korean)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕  
○出願状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況(計0件)

名称：  
発明者：

権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

キユウ 志勇 (Qiu Zhiyong)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構

・助教

研究者番号 30516414

### (2)研究分担者

( )

研究者番号：

### (3)連携研究者

( )

研究者番号：