



令和2年10月13日

報道機関 各位

東北大学金属材料研究所

巨大なスピンホール効果を示す非平衡銅合金を発見 ～低消費電力スピノートロニクス素子へ道～

【発表のポイント】

- 非磁性合金におけるスピンホール効果(電流を流すと横方向にスピンの流れる現象)を、効率的なコンビナトリアル実験手法を活用して広い組成領域で一括評価。
- 銅とイリジウムの合金において、巨大なスピンホール効果が現れる非平衡合金が存在することを発見。
- エレクトロニクス素子製造プロセスとの相性が良いCu基合金において、これまでの重金属を主とするスピンホール効果材料に匹敵する性能を実証。

【概要】

スピンの流れ(スピン流(※1))を積極的に利用し、磁石の方向で情報を記憶するスピントロニクス素子が次世代デバイスとして期待を集めています。

東北大学金属材料研究所の関剛斎准教授および高梨弘毅教授の研究グループは、物質・材料研究機構 磁性・スピントロニクス材料研究拠点の内田健一グループリーダーの研究グループと共同で、材料の高速スクリーニング手法とスピンホール効果の定量評価技術を駆使し、新しいスピンホール効果(※2)材料を探索し、単体元素では極めて小さなスピンホール効果しか示さない銅(Cu)とイリジウム(Ir)から構成される Cu-Ir 合金で、これまで見過ごされてきた組成領域にスピンホール効果材料の代表格である Pt に匹敵するほどの大きなスピンホール効果を出す非平衡合金(※3)が存在することを発見しました。

今回の成果は、非平衡合金の新たな可能性を切り拓いたことと、エレクトロニクス素子の製造プロセスとの相性が良い Cu 基合金において大きなスピンホール効果を実現できたことがポイントであり、スピンホール効果を動作原理とするスピノートロニクス素子の低消費電力化に貢献でき、素子開発がより加速するものと期待されます。

本研究は、Communications Materials に 10 月 14 日にオンライン公開されます。

【詳細な説明】

○研究背景

磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)に代表されるスピントロニクス素子は、磁石の性質を持つ強磁性体の分極(磁化方向)で情報を記憶し、スピン角運動量の流れであるスピン流を利用して、情報の書き込みや読み出しを行います。これらの特徴から、半導体をベースとした従来のエレクトロニクスでは困難な「不揮発性・超高集積化・低消費電力化・高速性・高信頼性」を実現できるポテンシャルがあり、次世代エレクトロニクスの中核を担う素子として研究開発が進められています。メモリ応用を視野に入れたスピントロニクス素子には、大きく分けて2端子構造素子と3端子構造素子があり、各々に利点と課題があります。3端子構造では、情報の書き込みと読み出しを行う電流経路を分離できるため、誤書き込みを抑制できる、書き込みの速度を高められる、などのメリットがあります。一方で、情報書き込み時の低消費電力化が課題です。情報書き込みには、電流からスピン流を創り出し、スピン流を記憶層となる強磁性体の磁化に作用させて磁化方向をスイッチングさせますが、低消費電力動作のためには効率良く電流からスピン流へ変換させなくてはなりません。

現在のところ、電流からスピン流、あるいは逆にスピン流から電流へと変換する手法として、磁石の性質を持たない非磁性体の中で生じるスピンホール効果を利用することが検討されています。スピンホール効果における変換効率の指標となるのが、電流とスピン流の比率を表すスピンホール角です。スピンホール効果は物質の持つスピン軌道相互作用に関係した現象であるため、PtやTa、Wなどの重金属元素では大きなスピンホール角(数%から数10%)が得られることが知られています。最近では、トポロジカル絶縁体と呼ばれる特殊な材料を用いることもスピンホール角を増大させるためには有効だと報告されています。しかしながら、実用の観点からは、エレクトロニクス素子製造プロセスとの相性が良い元素をベースとして大きなスピンホール角を実現することが望ましく、新しいスピンホール効果材料の発見が急務です。

○成果の内容

東北大学金属材料研究所の関剛斎准教授、増田啓人大学院生、Yong Chang Lau 特任助教、高梨弘毅教授の研究グループは、物質・材料研究機構 磁性・スピントロニクス材料研究拠点の内田健一グループリーダー、Rajkumar Modak NIMS ポスドク研究員、井口亮主任研究員、桜庭裕弥グループリーダーと共同で、材料の高速スクリーニング手法と高精度なスピンホール効果の定量評価技術を駆使し、新しいスピンホール効果材料の探索に取り組みました。

今回研究グループは、単体元素としては極めて小さなスピンホール効果しか示さない銅(Cu)とイリジウム(Ir)に着目し、広範なCu-Irの合金組成においてスピンホール効果の大きさを調べました。研究グループはまず、コンビナトリアル成膜技術によって組成傾斜膜(図1(a))を作製し、動的熱イメージング技術を用いてスピンペルチェ効果(※4)を可視化しました。スピンペルチェ効果によって生じる温度変化(図1(b))は、スピンホール効果によって出来たスピン流に比例するため、温度変調が大きくなっている領域において大きなスピンホール効果が発現している可能性があります。図2(a)がスピンペルチェ効果によって生じた温度変調の熱画像(温度変化の振幅像と位相像)です。今回用いた動的熱イメージング技術では、交流電流を印加し温

度変調をロックイン検出しているため、電流によるジュール熱の効果を排除した熱画像が得られます。電流方向に依存して位相像が反転しており、スピンペルチェ効果による温度変化であることが確認されました。この熱画像から得た Cu-Ir 合金組成に対する温度変調プロファイルを図 2(b)に示します。縦軸はスピンホール効果の大きさに比例する量であり、Ir 濃度が 25%付近においてスピンホール効果が増大している可能性が示唆されました。そこで研究グループは、高調波ホール電圧測定という手法を用いて、Ir 濃度を 24%とした $\text{Cu}_{76}\text{Ir}_{24}$ 合金薄膜におけるスピンホール角を定量評価しました。その結果、今回発見した $\text{Cu}_{76}\text{Ir}_{24}$ 合金が 6.3%のスピンホール角を有し、大きなスピンホール効果を示す材料であることが明らかとなりました。

今回の成果におけるポイントは、「Ir 濃度 25%の Cu-Ir 合金は、バルク試料の熱平衡状態図では安定ではない非平衡合金である」という点です。Cu-Ir の二元系合金の固溶限(※5)は 10%程度と狭く、例えば Ir 濃度 25%のバルク試料では Cu リッチ相と Ir リッチ相に二相分離をしてしまいます。ところが、薄膜の作製プロセスは気相からの急冷過程であるために非平衡合金を作り出し易いことに着目し、実際に全組成域において強制固溶体ができていることを確認しました。今回の研究では広範な合金組成において特性を評価する必要性がありましたが、「コンビナトリアル成膜+熱イメージング」に基づくスピン流-電流変換能の一括評価技術(K. Uchida *et al.*, *Sci. Rep.* **8**, 16067 (2018).)が強力な実験ツールとなり、今回の非平衡合金の発見に至りました。

表1に、今回発見した $\text{Cu}_{76}\text{Ir}_{24}$ 非平衡合金と Cu、Ir、および代表的なスピンホール効果材料である Pt におけるスピンホール角を比較しました。前述のように Cu と Ir はほとんどスピンホール効果を示さない元素であるにも関わらず、それらを合金化することで Pt に匹敵するほどの大きなスピンホール効果が発現していることがわかります。

○意義・課題・展望

今回の成果により、非平衡合金の持つスピントロニクス機能にスポットライトをあてることができました。今後も、これまで探索されてこなかった非平衡相に着目することで、新しいスピンホール効果材料が発見される可能性が大いにあります。

また、配線材料である Cu をベースとする Cu-Ir 非平衡合金は、重金属元素やトポロジカル絶縁体などと比較して、エレクトロニクス素子の製造プロセスとの相性が良いと言えます。3 端子構造の素子ではスピンホール効果材料で配線を形成することになるため、Cu-Ir 非平衡合金には製造上のアドバンテージがあります。本研究成果はスピンホール効果を書き込みの動作原理とするスピンオービトロニクス素子の低消費電力化に貢献でき、本研究を契機に素子開発がより加速するものと期待されます。

○発表論文

タイトル: Large spin-Hall effect in non-equilibrium binary copper alloys beyond the solubility limit

全著者: Hiroto Masuda, Rajkumar Modak, Takeshi Seki, Ken-ichi Uchida, Yong Chang Lau, Yuya Sakuraba, Ryo Iguchi, and Koki Takanashi

雑誌名: Communications Materials

DOI: 10.1038/s43246-020-00076-0

公開日時: 2020年10月14日 18:00 (日本時間)

○専門用語解説(注釈や補足説明など)

※1 スピン流

スピン角運動量の流れ。電子スピンは自転しており、(スピン)角運動量を持っている。この電子スピンを上向きスピンと下向きスピんに区別すると、上向きスピンの流れ J_{\uparrow} と下向きスピンの流れ J_{\downarrow} を用いて電流は $J_{\uparrow} + J_{\downarrow}$ と表すことができる。一方で、スピン流は $J_{\uparrow} - J_{\downarrow}$ で表される。 J_{\uparrow} と J_{\downarrow} が異なる強磁性体では電荷の流れを伴うスピン流が生じ、上向きスピンと下向きスピンの数が同数存在する非磁性体では J_{\uparrow} と J_{\downarrow} が逆方向に流れることにより $J_{\uparrow} - (-J_{\downarrow})$ の純スピン流を生成することができる。

※2 スピンホール効果

スピン軌道相互作用の大きな非磁性体に電流を流すと、電流の横方向にスピン流が生じる現象。非磁性体を流れる電流はスピン分極していないが(上向きスピンと下向きスピンの数は同数で $J_{\uparrow} - J_{\downarrow} = 0$ となるが)、スピン軌道相互作用により上向きスピンと下向きスピンの数が逆方向に散乱されることにより、電流の横方向に $J_{\uparrow} - (-J_{\downarrow})$ のスピン流を発生できる。これは電荷の流れを伴わない純スピン流となる。

※3 非平衡合金

2種類以上の元素から構成される合金は、その組成や温度、圧力によって安定に存在する状態(固体か液体か)や結晶の構造が変わり、それらは相と呼ばれる。平衡状態でどのような相が現れるかを表した図が平衡状態図であり、本研究では平衡状態図に存在しない相を非平衡合金と呼んでいる。

※4 スピンペルチェ効果

図1(b)に模式的に示したように、スピンホール効果を示す金属に電流を流すとスピンホール効果により電流の直交方向にスピン流が現れる。そのスピン流と磁性絶縁体である $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 基板の磁化とが相互作用すると、面垂直方向に温度勾配が生じる。この温度勾配は、スピン流の方向と $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 基板の磁化の方向によって決まるため、例えば電流方向を反転する(スピ

ン流の方向が反転する)と、温度勾配の符号が反転する。

※5 固溶限

固体として第二成分が溶け込む限度。

○共同研究機関および助成

今回の成果は、東北大学金属材料研究所の関剛斎准教授、増田啓人大学院生、Yong Chang Lau 特任助教、高梨弘毅教授の研究グループと、物質・材料研究機構 磁性・スピントロニクス材料研究拠点の内田健一グループリーダー、Rajkumar Modak NIMS ポスドク研究員、井口亮主任研究員、および桜庭裕弥グループリーダーとの共同研究により得られたものです。当該共同研究成果は「NIMS-TOHOKU 戦略的共同研究パートナー」制度を最大限に活用し、人材交流と最先端研究設備の共有を促進することで得られました。

本研究は、科学研究費助成金・基盤研究(S) (課題番号:18H05246)、基盤研究(B) (課題番号:19H02585)、基盤研究(A) (課題番号:20H00299)および JST CREST "ナノスケール・サーマルマネージメント基盤技術の創出" (課題番号:JPMJCR17I1)の一部として行われました。

表1 スピンホール角の比較

材料	スピンホール角 (%)	
Cu	~ 0	
Ir	1	Y. Ishikuro <i>et al.</i> , PRB 99, 134421 (2019).
Pt	> 5.6	L. Liu <i>et al.</i> , PRL 106, 036601 (2011).
Cu₇₆Ir₂₄ (本研究)	6.3	

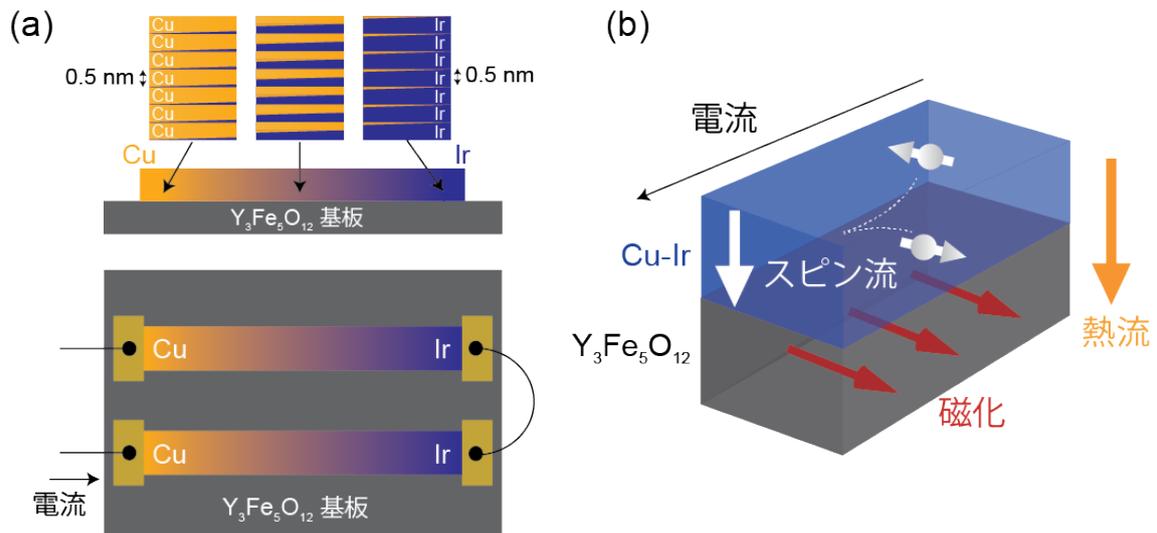


図 1 (a) コンビナトリアル成膜技術によって作製した組成傾斜膜の模式図。Cu および Ir のウェッジ膜を交互に積層させることで、膜面内での組成傾斜を実現している。この組成傾斜膜から成る 2 本のワイヤーを準備した。(b) スピンペルチェ効果の模式図。Cu-Ir 合金に電流を流すと、スピントール効果により電流と直交方向にスピンの流が現れる。このスピンの流と今回用いた $Y_3Fe_5O_{12}$ 磁性絶縁体基板の磁化とが相互作用することでワイヤーの面垂直方向に熱流が生じる。スピントール効果による温度変化の大きさはスピントール角に比例している。

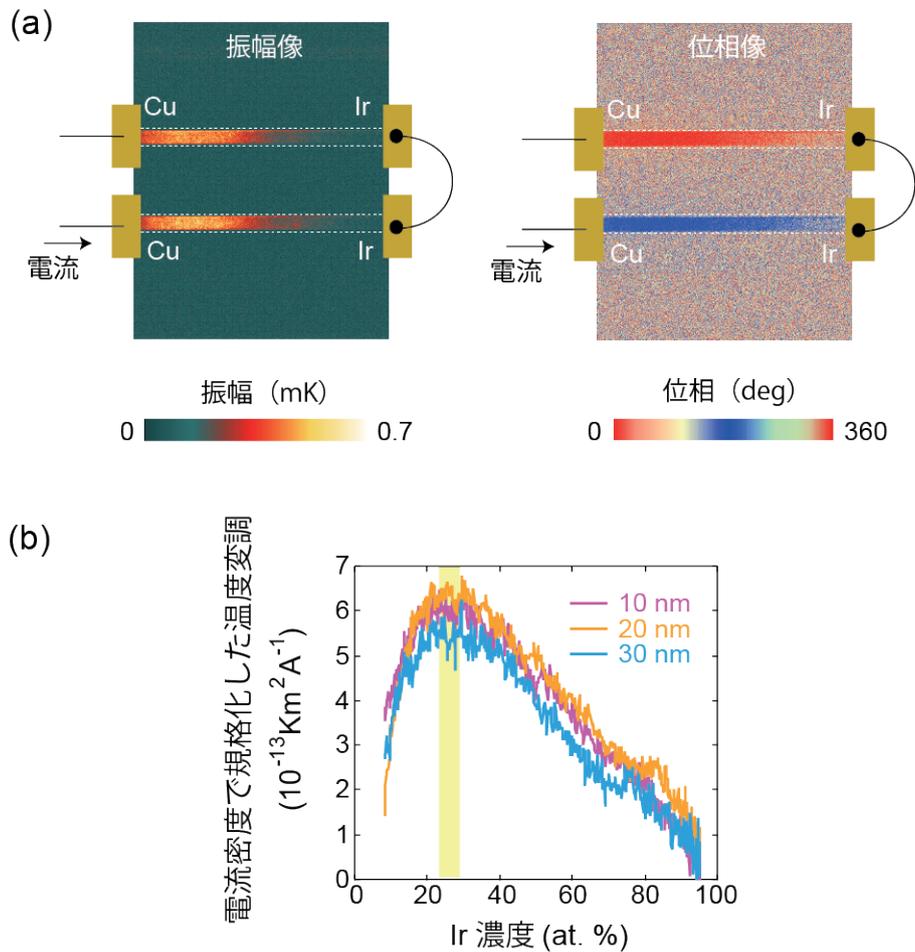


図 2 (a) 2 本の Cu-Ir 組成傾斜膜のワイヤーに交流電流を印加し、動的熱イメージング技術で検出した温度変化の振幅像と位相像。上下のワイヤーで電流方向が逆になっており、電流方向によって位相が反転している(上のワイヤーでは発熱、下のワイヤーでは冷却が生じている)ことから、スピネルチェ効果による温度変化である。(b) 印加した電流密度で企画化した温度変調の Ir 濃度依存性。ワイヤーの総膜厚を 10、20 および 30 nm とした試料の結果であり、縦軸はスピンホール効果の大きさに比例する量である。Ir 濃度が 25% 付近においてスピンホール効果が増大している。

本件に関するお問い合わせ先

◆研究内容に関して

東北大学金属材料研究所

磁性材料学研究部門

関 剛斎

TEL:022-215-2097

Email:go-sai@imr.tohoku.ac.jp

◆報道に関して

東北大学金属材料研究所 情報企画室広報班

TEL:022-215-2144 FAX:022-215-2482

Email:pro-adm@imr.tohoku.ac.jp