

# 新分野創成利用課題報告

## ナノスケール実スピンデバイス開発に向けた新しい放射光利用

東北大学 電気通信研究所

大野 英男

名古屋工業大学 大学院工学研究科

壬生 攻

東京大学 大学院工学系研究科

千葉 大地

### Abstract

SPring-8をとりまく研究者間の横のつながりを強化することを目的に設置された「SPRUC 分野融合型研究グループ」の一つである「ナノデバイス科学」の理念を体現するため、2015B-2017A 期の4期・2年にわたり、新分野創成利用課題「ナノスケール実スピンデバイス開発に向けた新しい放射光利用」が実施された。トップダウン式の課題設定と研究者間の密接な情報交換を両輪に、最終的に9つの研究グループが7本のビームラインを有機的に活用し、スピントロニクスを中心としたナノデバイス科学と放射光研究の融合課題が推進された。異なるグループの研究者間の協力のもと、単一チームの発想に基づく従来のSPring-8一般課題では実施されなかったであろう課題や、SPring-8の利用や特定のビームラインの利用を強く検討していなかった研究グループの課題も実施され、いくつかの新しい成果が挙げられた。

### 1. はじめに

スピンと電荷の自由度を物質の多様な“機能”として活かすナノスピンドバイスの研究は、巨大磁気抵抗の発見とその磁気ヘッドへの応用に端を発し、不揮発性磁気メモリやマイクロ波発振器など多様な製品を産み出す学術基盤として日本が世界をリードしている。これらの研究では、最先端の計測技術を用いたナノ構造と機能の可視化が開発の進展を担う重要な要素である。この研究分野においては先端計測基盤技術であるSPring-8の利活用についていくつかの実績があるが、これまでの研究は各大学・研究機関における小規模かつ個別の研究に限定され、ナノスピンドバイス分野が求める計測基盤技術としての役割が不明瞭であった。

そこで、本研究課題では、SPRUC 分野融合型研究グループ「ナノデバイス科学」の設置理念とSPring-8新分野創成利用課題の方針を鑑み、これまでにない新しい試みとして、異なる研究グループ間の密接な情報交換と共通認識のもと、物質やデバイスに対して構

造・電荷・スピンを捉える種々の先端放射光ツールを駆使した包括的な解析アプローチを行うことを目的とした(図1)。一連の計測ツールとして、磁気コンプトン解析(BL08W)、核共鳴散乱解析(BL09XU)、表面界面薄膜X線回折(BL13XU)、オペランドナノ電子状態解析(BL25SU、BL39XU)、光電子分光(BL09XU、BL17SU、BL47XU)など、多岐にわたるビームラインを有機的に活用した。このように、個別の研究では実現し得ない情報の共有やノウハウの



図1 マルチビームライン利用によるスピントロニクス新分野創成のイメージ



図2 研究体制

蓄積によるシナジー効果の創出を目指し、「放射光による物質デザイン・ナノデバイス創成」という新しいアプローチを通じて、サステナブル社会の実現に対応する新規高性能機能性材料およびデバイスの実現に向けての研究を推進した。

## 2. 研究体制

本研究は2015B–2017A期の4期・2年間にわたり行われた。最終的な研究実施体制(図2)として、分担責任者の壬生攻が、壬生グループ、水口将輝(東北大)グループ、櫻井浩(群馬大)グループ、桜庭裕弥(NIMS)グループから構成される材料分野のチームを総括し、同じく分担責任者の千葉大地が、千葉グループ、大野英男グループ、小野輝男(京都大学)グループ、岡本聡(東北大学)グループ、遠藤哲郎(東北大学)グループから構成される物性科学分野のチームを総括した。さらに全グループには総計で40人以上の若手の研究者や大学院生が参画した。両チーム間の連携は、代表責任者(大野英男)のリーダーシップのもと、主として分担責任者および企画コーディネーターの小野輝男を通じて密接にとり行われた。なお、『期間内であればビームラインを追加でき、横断的に利用可能』、『実験責任者個人としてのみでなくグループとしても利用可能』という新分野創成利用課題ならではの特徴を活かし、以下のような取り組みを行った。(i) 分野の裾野の拡大を意識し、いくつかのグループに4期の実施期間の途中から参画いただいた。これにより、2015B期には5グループ・4ビームラインの利用であったが、最終的には9グループ

プ・7ビームラインへ利用を拡大した。(ii) いくつかのテーマは、複数グループの参画により行われた。このように、より有機的な研究成果を創成するための積極的な取り組みを行った。その他、5回にわたる公開の定例研究会を開催し、企業も含め分野内外の研究者にご参加いただき、本課題の取り組みを広く発信するとともに、研究者間の緊密な情報交換を行った。

## 3. 研究アプローチと成果

本課題の研究アプローチを図3(a)に示す。本課題では、放射光による実験がスピントロニクス分野における諸課題の解決を大きく促すと考えられるテーマをトップダウンで設定し、各グループがそれに向かって包括的に研究を進めるというアプローチをとった。特に、①スピントロニクスを支える材料の高性能化や背景物理現象の理解、②実用スピントロニクスデバイスの性能と電子状態の関連性理解、③スピントロニクス材料やデバイスの新たな軸での評価手法の開拓、といった3つの重要な柱をベースに研究を進めた。その結果、①については、スピントロニクス材料の放射光による系統的評価から高効率デバイスへの応用の指針を得ただけでなく、将来を担うスピントロニクス技術に成長すると期待される新規現象の背景物理を放射光で紐解く成果を挙げた。また、これらの研究の進展により、電流・電界印加オペランド分析技術の向上や、実験基盤技術の共通化を大きく前進させた。②や③についても、トップダウンでのテーマ設定が功を奏し、興味深い成果が挙げられた。以下、具体的な取り組みを紹介する。

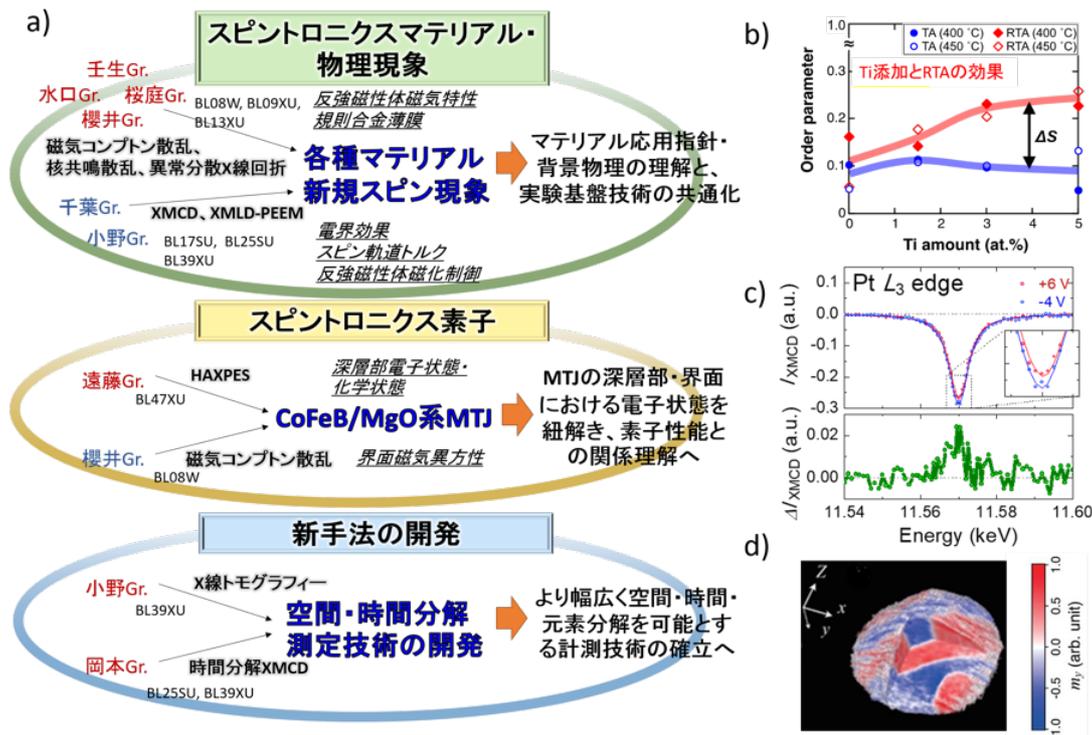


図3 (a) 本新分野創成利用課題の研究アプローチ。(b-d) 得られた成果の例。(b) Ti添加とRapid thermal annealing (RTA)によるFeNi系L1<sub>0</sub>型規則合金における規則化条件の促進<sup>[2]</sup>。(c) 誘導磁気モーメントを有するPtに対し、誘電層を介して電圧を印加した際のPt L<sub>3</sub>吸収端近傍のXMCDシグナル<sup>[9]</sup>。(d) GdFeCoマイクロディスク(直径約7 μm)のGd L<sub>3</sub>吸収端における磁気X線CTの結果<sup>[11]</sup>。図の色は磁化のy方向成分を表す。

### 3-1 スピントロニクス材料評価

スピントロニクスデバイスの構成要素として最近高いニーズがある反強磁性体薄膜の磁気特性を直接的に評価できる実験手法はそれほど多く存在しないが、放射光核共鳴散乱法はその中でも有力な実験手法であり、本研究課題では垂直磁気モーメントをもつ反強磁性薄膜の開発研究にこの手法を積極的に用いた<sup>[1]</sup>。また、スピントロニクスの材料開発にはしばしば規則合金薄膜の作製条件最適化が重要になるが、FeNi規則合金の研究グループとホイスラー型規則合金の研究グループが協力し、異常分散X線回折を用いた結晶規則度の系統的評価(図3(b))を通じた材料開発研究を推進した<sup>[2,3]</sup>。ホイスラー合金薄膜に対しては、磁気コンプトン散乱を用いた電子状態の探査も行った<sup>[4]</sup>。

### 3-2 スピントロニクス物理現象

磁性的電界効果・超高速な磁化操作が期待されるスピン軌道トルク・反強磁性体の磁化制御は、将来のスピンロニクスデバイスでの活用が特に検討されて

いるが、例えばその起源そのものに議論の余地が残されているなど、デバイス応用やその効率化を検討していくための方針を考えるには不足している事項が多かった。そこで、XAS・XMCD・XMLD-PEEMなどの各種放射光測定を駆使することで、これらの包括的理解を進めた。主な成果として、金属における磁性的電界効果の起源解明(図3(c))<sup>[5]</sup>・スピン軌道トルク効率向上とその起源の理解<sup>[6,7]</sup>・反強磁性体磁区のスピントルク制御の直接観察<sup>[8]</sup>が挙げられる。これらの成果により、各種現象の効率を向上させる指針を得たり、現象を可視化して理解する土台を築いた。

### 3-3 スピントロニクス素子

トンネル磁気抵抗 [Magnetic Tunnel Junction (MTJ)] 素子は、すでにMRAMやHDDの読み出しヘッドとして実用化されている代表的なスピントロニクスデバイスの一つである。本課題はMTJ構造に対して放射光を用い、構造や電子状態を明らかにし、その素子性能との関係を明らかにして、スピントロニ

クス素子の基盤技術を向上させた。本課題では、CoFeB/MgO 系 MTJ に焦点を絞って研究を進めた。同系は高い磁気抵抗比を示すことで知られ、最も幅広く研究が進んでいるだけでなく、実用素子としてのデファクトスタンダードともなっている。本 MTJ ではアニールにより界面垂直磁気異方性が上昇するとともに、磁気抵抗比が大きく向上することが知られている。HAXPES 測定を用いて同 MTJ の深層部の電子状態を調べた結果、アニールにより B (ホウ素) の酸化が起こる一方で、Co (コバルト)・Fe (鉄) の微酸化成分が還元されることが明らかとなった。また、CoFeB/MgO 系試料において、スピン選択磁化曲線・軌道選択磁化曲線を測定するだけでなく、磁気量子数別の磁化曲線を取得し、界面垂直磁気異方性や磁化反転挙動との関係について理解を深めた<sup>9)</sup>。

このような、同一マテリアル・構造に対し、異なるグループが異なる高度な測定法を用いて同時に取り組む研究アプローチは、本研究課題のトップダウン式の課題設定と、シナジー効果の典型例である。

### 3-4 新しい手法の開発による放射光技術の向上

上記の各種実験の高精度化・高効率化と、特に実用スピントロニクス素子の動作時の挙動や磁気構造の計測手法の拡大のために、多角的な新規放射光測定手法の開拓に挑んだ。その結果、GHz 帯での動作が要求されるスピントロニクス素子の動作の可視化実現に向け、スピン流・高周波磁場等で励起した磁性体の GHz 帯での元素選択・空間分解磁化ダイナミクスが計測可能な測定系を構築した<sup>10)</sup>。また、磁気 CT イメージング法を確立し、磁気マイクロ微粒子の 3 次元磁区像を取得することに成功した (図 3(d))<sup>11)</sup>。スピントロニクス素子のさらなる高度化への今後の応用が期待できる。

## 4. まとめ

本課題により、スピントロニクスの学術的価値を一層高め、スピントロニクスと放射光研究を統合する新分野が創成されたといえるだろう。また、代表者や分担責任者によるトップダウンの研究テーマの設定と、各研究者間の情報交換を通して、単一チームではなし得ない総合的な成果を挙げる事ができた。この取り

組みは、引き続き新分野創成利用課題 (研究代表者: 小野輝男) として継続して拡大しており、確固たる地位を築きつつある。

このような放射光を用いた新分野創成の取り組みは、スピントロニクス分野においても大きな注目を浴びており、実用デバイスへの拡大や、これまで放射光測定を経験してこなかった研究者の興味喚起と新規参加を促している。これは、今後のユーザーの拡大と最先端研究のさらなるレベルアップに大きく貢献するものであると考えている。

## 謝辞

本新分野創成利用課題は、京都大学の小野輝男教授、群馬大学の櫻井浩教授、東北大学の遠藤哲郎教授・水口将輝准教授・岡本聡准教授、物質・材料研究機構の桜庭裕弥氏、および各グループのスタッフやメンバーとの共同研究です。課題推進に際しては、京都大学の小野輝男教授、東京大学の原田慈久教授、JASRI/SPring-8 の中村哲也氏の多大なるご尽力をいただきました。皆様のご協力に感謝申し上げます。また、本課題は BL08W・BL09XU・BL13XU・BL17SU・BL25SU・BL39XU・BL47XU の 7 つのビームラインを用いて行われました (課題番号: 2015B0901-0904、2016A0901-0906、2016B0901-0907、2017A0901-0907)。各ビームライン担当者に深く御礼申し上げます。

## 参考文献

- [1] K. Mibu, K. Mikami, M. A. Tanaka, R. Masuda, Y. Yoda and M. Seto: *Hyp. Int.* **238** (2017) 92.
- [2] T. Tashiro, M. Mizuguchi, T. Kojima, T. Koganezawa, M. Kotsugi, T. Ohtsuki, K. Sato, T. J. Konno and K. Takanashi: *J. Alloy. Compd.* **750** (2018) 164-170.
- [3] S. Li, Y. K. Takahashi, Y. Sakuraba, N. Tsuji, H. Tajiri, Y. Miura, J. Chen, T. Furubayashi and K. Hono: *Appl. Phys. Lett.* **108** (2016) 122404.
- [4] K. Kumar, A. Dashora, N. L. Heda, H. Sakurai, N. Tsuji, M. Itou, Y. Sakurai and B. L. Ahuja: *J. Phys.: Cond. Matter* **29** (2017) 425805.
- [5] K. T. Yamada, M. Suzuki, A.-M. Pradipto, T. Koyama, S. Kim, K.-J. Kim, S. Ono, T. Taniguchi, H. Mizuno, F.

- Ando, K. Oda, H. Kakizakai, T. Moriyama, K. Nakamura,  
D. Chiba and T. Ono: *Phys. Rev. Lett.* **120** (2018) 157203.
- [ 6 ] Y. Hibino, T. Hirai, K. Hasegawa, T. Koyama and D.  
Chiba: *Appl. Phys. Lett.* **111** (2017) 132404.
- [ 7 ] K. Hasegawa, Y. Hibino, M. Suzuki, T. Koyama and D.  
Chiba: *Phys. Rev. B* **98** (2018) 020405(R).
- [ 8 ] T. Moriyama, K. Oda, T. Ohkouchi, M. Kimata and T.  
Ono: *Scientific Rep.* in press.
- [ 9 ] M. Yamazoe, T. Kato, K. Suzuki, M. Adachi, A.  
Shibayama, K. Hoshi, M. Itou, N. Tsuji, Y. Sakurai and H.  
Sakurai: *J. Phys.: Cond. Matter* **28** (2016) 436001.
- [10] N. Kikuchi, H. Osawa, M. Suzuki and O. Kitakami: *IEEE  
Trans. Magn.* **54** (2017) 6100106.
- [11] M. Suzuki, K.-J. Kim, S. Kim, H. Yoshikawa, T. Tono, K.  
T. Yamada, T. Taniguchi, H. Mizuno, K. Oda, M.  
Ishibashi, Y. Hirata, T. Li, A. Tsukamoto, D. Chiba and T.  
Ono: *Appl. Phys. Express* **11** (2018) 036601.

大野 英男 OHNO Hideo

東北大学 電気通信研究所  
〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2 丁目 1-1  
TEL : 022-217-5553  
e-mail : ohno@riec.tohoku.ac.jp

壬生 攻 MIBU Ko

名古屋工業大学 大学院工学研究科  
〒466-8555 愛知県名古屋市昭和区御器所町  
TEL : 052-735-7904  
e-mail : k\_mibu@nitech.ac.jp

千葉 大地 CHIBA Daichi

東京大学 大学院工学系研究科  
〒113-8656 東京都文京区本郷 7 丁目 3-1  
TEL : 03-5841-1165  
e-mail : dchiba@ap.t.u-tokyo.ac.jp