

スピン流に誘起される磁化ダイナミクス

Magnetization Dynamics under Spin Current

戸川 欣彦^{a, b}, 木村 崇^c, 原田 研^d, 明石 哲也^e, 外村 彰^{b, d}, 大谷 義近^{b, f}
 Yoshihiko Togawa, Takashi Kimura, Ken Harada, Tetsuya Akashi, Akira Tonomura and Yoshichika Otani

^a大阪府立大学ナノ科学・材料研究センター, ^b理化学研究所基幹研究所, ^c九州大学稲盛フロンティア

^d日立製作所, ^e日立ハイテクノロジーズ, ^f東京大学物性研究所

要旨 スピン流が誘起する磁化ダイナミクスは磁気記録素子や次世代スピントロニクス（磁気電子）素子の高集積化や低エネルギー消費化につながる有用な基盤技術を提供することから、学術的、産業的に大きな注目を集めている。スピン流と磁化の相互作用を説明するとともに、スピン流誘起磁化ダイナミクスの特性を解析するに電子線ホログラフィーやローレンツ法と電気計測を併用した透過型電子顕微鏡（TEM）その場観察法が有効であることを示す。その一例として、微視的知見に基づき開発されたスピン流を用いた磁化状態の制御技術を紹介する。

キーワード：スピン流、磁化ダイナミクス、TEM その場観察法、電子線ホログラフィー、ローレンツ法

1. はじめに—スピン流とは—

情報社会である現代社会において、電子素子は情報演算や情報通信を支える基盤技術としてあらゆる電気機器に組み込まれ世界中に膨大な数が普及している。それに伴い、電子素子が消費する総電力量も膨大になっており、技術革新によりその省エネルギー化を図ることは現代社会の重要な課題といえる。

磁性体が有する不揮発性を利用するハードディスクドライブ（HDD）や磁気ランダムアクセスメモリ（MRAM）などの磁気記録素子は、長期にわたり信頼性が高く大容量の情報を保存し高速に情報を処理できることから、重要な電子素子の一つとなっている。磁性体の不揮発性に加え電子が有するスピン自由度を利用するスピントロニクスと呼ばれる新しい技術を活用することにより、HDDやMRAMなどの大容量化や小型化を進め、単位面積当たりの情報量を増加させると同時に単位情報量当たりの消費電力を削減することが可能となる。また、スピントランジスタなどの次世代スピントロニクス（磁気電子）素子の開発により低エネルギー消費社会が実現されると期待されており、スピントロニクスは従来のエレクトロニクスを革新するものとして、学術的、産業的に注目を集めている¹⁾。

ここで、スピントロニクスにおいて重要な役割を担う、物質中を流れる電流について考えてみよう。電流は電子（伝導電子）の流れであり、電子は電荷とスピンの2つの性質をも

つ、従って、電流は電荷の流れ（電荷流）とスピンの流れ（スピン流）とみなすことができる。

常磁性体では、上向きスピンをもつ電子の数と下向きスピンをもつ電子の数が等しいために、電荷流は存在するがスピン流は差し引きされて、正味、零となる。一方、強磁性体では、物質が磁化していることを反映し、上向きスピンをもつ電子の数と下向きスピンをもつ電子の数が異なる。このため、強磁性体を流れる電流は電荷流に加えて有限のスピン流を伴う。このような電流をスピン偏極電流と呼ぶ。

近年、スピン流が引き起こす多様な物理現象が明らかにされつつある。その中で重要な研究課題の一つとして、スピン流のもとで生じる磁化ダイナミクスが挙げられる³⁾。これは電流を用いた磁化状態の制御や操作を可能とし、磁気記録素子やスピントロニクス素子において情報を書き換え、演算処理や高集積化に貢献する有用な基盤技術として活用される⁴⁾。ここで、磁性体における磁化とは、物質中に局在する電子（局在電子）の有するスピンが揃い巨視的に磁気モーメントが発現した状態を意味している。本研究で着目するスピン流誘起磁化ダイナミクスは、伝導電子に伴うスピン流と局在電子が示す巨視的なスピン秩序状態との相互作用により生じるものであり、ここでは、電子のもつスピンの中心的な役割を果たしていることを強調したい。

2. スピン流による磁化ダイナミクス

磁化が一様に揃った領域（磁区）が隣りあい磁壁と呼ばれる境界領域を含む強磁性細線に電流（スピン偏極電流）が流れる状況を考えよう（図1(a)）。電流を担う伝導電子のスピンは局在電子との強い交換相互作用により局在電子のスピン

¹⁾ 〒 599-8570 大阪府堺市中央区学園町 1-2

TEL & FAX: 072-254-8216

2010年5月15日受付

の向きに揃う性質をもつ。局在電子のスピンは磁壁を境に逆さとなるため、伝導電子は磁壁を通過する際に自らのスピンの向きを回転させる必要があり、スピン角運動量が変化する。この反作用で、局在電子のスピンを伝導電子のスピンの方に回転させるトルクが働き、磁壁は電子の流れに沿って駆動される。このようなスピン角運動量の受け渡しにもとづく運動機構はスピン（角運動量）トランスファーもしくはスピントルクと呼ばれ⁵⁻⁸、微細な試料においてこの効果による磁壁移動が観察されている^{9,10}。

図1(b)はパーマロイ細線にパルス電流を印加した際に観察される磁化状態の変化を示すローレンツ像である¹¹。細線端に沿って明暗のコントラスト線が現れており、黒三角印で示す領域を境にコントラストが上下入れ替わっている。その位置はパルス電流の印加により変化している。コントラストと磁力線の関係を考慮すると、磁化が対向する（N極が向き合う）head-to-head磁壁に対応していることがわかる。また、磁壁内には輝（暗）点が見出されており、磁壁内部構造として、この点を中心に時計（反時計）回りの磁気渦が形成されていることがわかる。磁壁は電子の流れに沿って移動しており、この振舞いはスピントルクによる描像と一致している。

しかしながら、スピン流は単純に磁壁を移動させるだけでなく、さまざまな磁化ダイナミクスを誘起することが明らか

かになってきた。例えば、磁壁は電子の流れに沿うだけでなく逆らっても移動することがある（図1(c)）^{11,12}。これは、スピン流による磁壁移動が確率的な性質をもつことを示唆しており、スピントルクに加えジュール熱などによる励起過程の影響が指摘されている。ナノ秒領域のパルス電流は磁壁を局所的に前後に振動させる¹³。また、磁化の励起状態はスピン流によっても誘起され（スピン流スピン波）、系を不安定化させ、自発的に磁壁や磁区を生成させる¹⁴⁻¹⁶。

このような磁化ダイナミクスを自在に制御し、操るには、その特性を十分に理解しなければならない。それには、磁気抵抗などの輸送特性や磁化特性による巨視的知見とイメージングによる微視的知見を相補的に比較検討することが重要であろう。我々はスピン偏極電流のもと磁化がどのような振舞いを示すかを探ることに焦点をあて、ローレンツ法や電子線ホログラフィーと電気抵抗の同時測定を通じ、磁性細線中の磁化状態が電流により変化する様子を系統的かつ微視的に調べてきた^{11,12,15,16}。さらに微視的知見にもとづき、数Oeの小さな磁場中でスピン流を用い磁化状態を自由に制御できることを実証した¹⁷⁻¹⁹。以下、観測したスピン流が誘起する磁化反転（磁区生成）現象とその制御方法を紹介する。

3. スピン流誘起磁化ダイナミクスのTEM観察

電気信号を試料に印加するためのTEMホルダーとTEM観察中に磁気抵抗などの輸送特性を計測するシステムを開発し、ローレンツ法や電子線ホログラフィーを用い²⁰、電流が誘起する強磁性体中の磁化状態の変化を観察した（図2(a)）。ローレンツ像では図左から暗点・輝点・暗点が見出されており、反時計・時計・反時計回りの順に並ぶ3つの磁気渦からなる磁壁が観察されている。細線端の暗コントラスト線から、これは磁化が磁壁から離れていく（S極が向き合う）tail-to-tail磁壁であることがわかる。電子線ホログラフィーによる干渉顕微鏡像（2倍位相増幅）では、磁力線が真空中から試料内部に侵入し、鎖状磁気渦磁壁を形成し、細線方向に沿って逆さに走り磁区を形成する様子が可視化されている。磁壁内部において、3つの磁気渦に加え、磁力線の局所的な湾曲などの複雑な構造があることがわかるが、ローレンツ像においてもそれに対応する歪曲した明暗のコントラスト線が観察されている。つまり、両者は磁化構造に関して、本質的に同様で詳細な情報を提供している。

電流による磁化状態の変化は大電流密度で起きるため、ジュール発熱を低減するように1 μ s以下のパルス電圧信号を用いる。パルス電圧を印加する際に試料に流れる電流値と試料の抵抗値は参照抵抗を用いオシロスコープにより実時間計測する。磁化状態の変化はそれらの関数として、微視的にその場観察を行う。また、高電流領域での抵抗曲線の折れ曲がりには強磁性転移温度、キュリー点（パーマロイ T_C : 850 K）に対応していること、さらに、低電流領域のほぼ一定の抵抗値は室温での抵抗値であることを利用し、抵抗値を温度に換算している。これによりジュール発熱の影響の評価

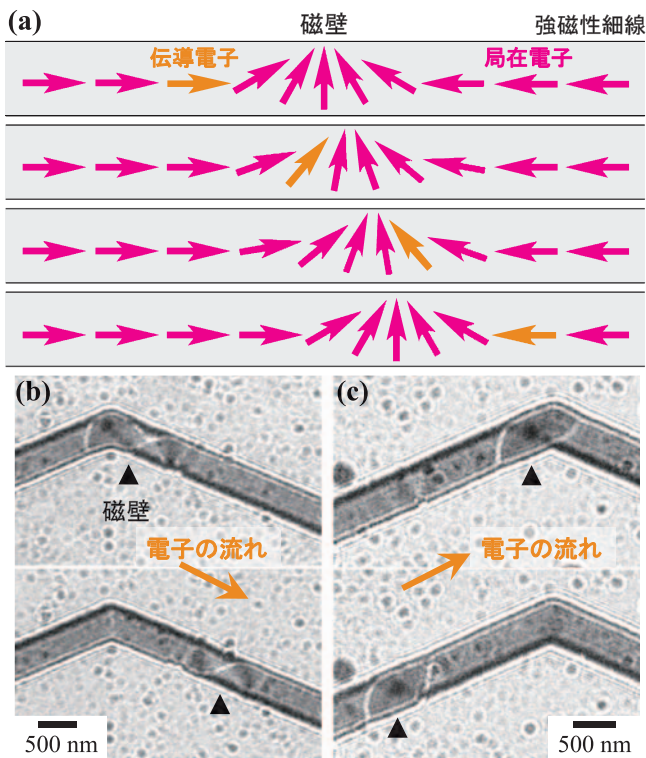


図1 スピン流による磁壁移動。(a) 磁壁はスピントルクにより電子の流れに沿い伝搬するかのよう移動する。(b) パルス電流の印加前後の磁化状態のローレンツ像。磁壁はスピン流に沿って移動している。(c) 磁壁は電子の流れに逆らって移動することもあり、スピン流による磁壁移動は確率的な性質をもつことがわかる。

を併せて行っている。

ビデオを用いたローレンツ法による実時間観察では、一秒ごとにパルス電流を印加し、パルス電流印加前後の磁化状態の変化を観察する^{12,16,19}。図2(b)は磁壁が細線中に存在する状態を初期状態とした時に観測される3つの特徴的な磁化状態の変化、(1)低電流領域での磁壁構造の微小振動と局所変形、(2)閾値電流 J_{th} での磁壁の移動、(3)磁壁の対消滅による磁化反転、を示している¹¹。例えば、図1(b,c)は(2)に対応する観察結果を示している。

本研究では300 kV電界放出型TEM(HF-3000X)を用いた実験を行っている。HF-3000Xでは対物レンズより上方に設けた3次元磁場印加機構²¹内に試料を入れ観察を行う。この位置では残留磁場が地磁気より小さく、試料は電磁レンズなどからの漏れ磁場による影響を受けない²²。

TEM観察用にジグザグ形状のパーマロイ細線($Ni_{80}Fe_{20}$, 幅500 nm, 厚さ30 nm)を電子線リソグラフィと電子線蒸着とリフトオフ法を用い、シリコン基板に支持された窒化シリコン薄膜の窓(窓領域300 μm 四方, 厚さ30 nm)の上に作製する。蒸着したパーマロイ細線は形状磁気異方性のため細線長手方向へ一様に磁化している。

一様に磁化した細線にパルス電流を繰り返し印加すると、図2(b)中の(3)に対応する電流密度で、鎖状磁気渦構造や対の磁壁が生成し逆向きの磁化をもつ領域が出現することが見出された¹⁵。つまり、パルス電流の印加により、細線中

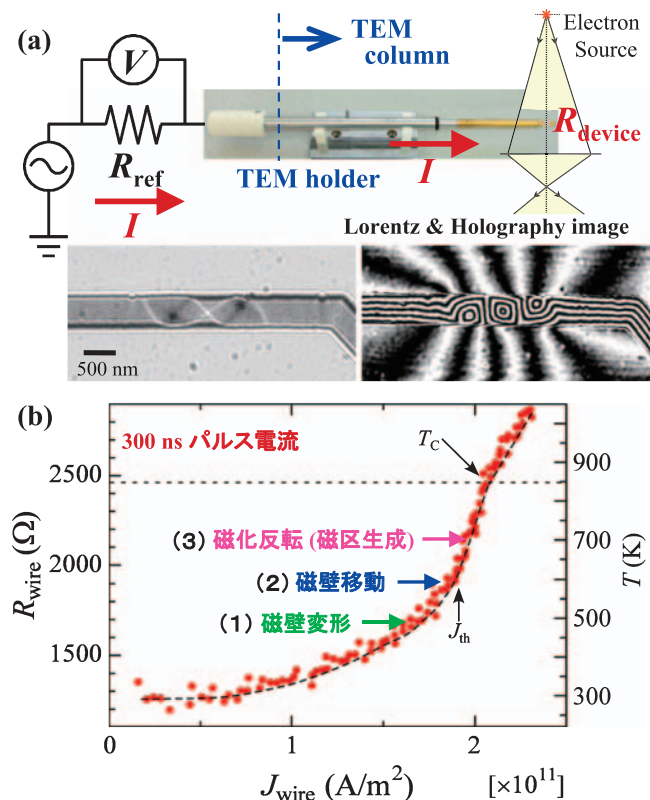


図2 (a) 電気信号印加用TEMその場観察システムの模式図。(b) TEM観察と同時に計測した電流密度と試料抵抗の関係。

の一部領域で磁化が反転する。

スピン流を流すことにより磁化状態を制御性良く反転し、消去することができれば、磁性細線において電流を用いた磁気記録の書き換えが可能となる。しかしながら、この磁化反転(磁区生成)は零磁場においては発生頻度が極めて少ない。2000回の繰り返しのパルス電流印加に対して、磁気渦状態(図3(b))が3%、反転磁区状態(図3(c))が0.5%と極めて低い確率で誘起された。また、いったん誘起された反転磁区状態は次のパルス電流の印加により90%の高い確率で消滅し一様磁化状態(図3(a))に戻る。このように発生確率が少ないことはスピン流誘起磁化反転を応用するにあたり大きな障害となる。

ところが、数Oe程度の小さな磁場を試料に印加してスピン流が誘起する磁化反転を調べると、その生成確率が劇的な変化を示すことが明らかになった¹⁸。図4(a-d)は磁場下でパルス電流($2.0 \times 10^{11} A/m^2$)を印加した際に観察される典型的な磁化状態を示している。零磁場では上述したようにごくわずかな確率でしか反転磁区状態は出現しないため、図4(a)では一様磁化状態が観察されている。小さな磁場のもとでパルス電流を印加すると、多数の磁気渦からなる磁壁構造(鎖状磁気渦状態)が現れる頻度が増える(図4(b))。磁場を増加させ、3.8 Oeのもとでパルス電流を印加すると、磁壁の位置や構造は変化するものの反転磁区の領域が安定して存在し続ける(図4(c))。一方、逆向きの磁場下(図4(d))では、1万回以上のパルス電流印加の試行に対し反転磁区状態が現れることはなかった。

図5(a)に電流密度 $2.0 \times 10^{11} A/m^2$ における磁化反転(磁区生成)確率の磁場依存性を示す。黒(赤)印は反転磁区(鎖状磁気渦)状態が現れる確率に対応している。また、塗(抜)印は磁場増加(減少)時を表している。数Oeの弱磁場印加により黒印の確率分布が0%から100%まで変化し、一様磁化状態から反転磁区状態に変化することがわかる。さらに、図5(b)に示すように、電流密度が減少すると確率分布の履

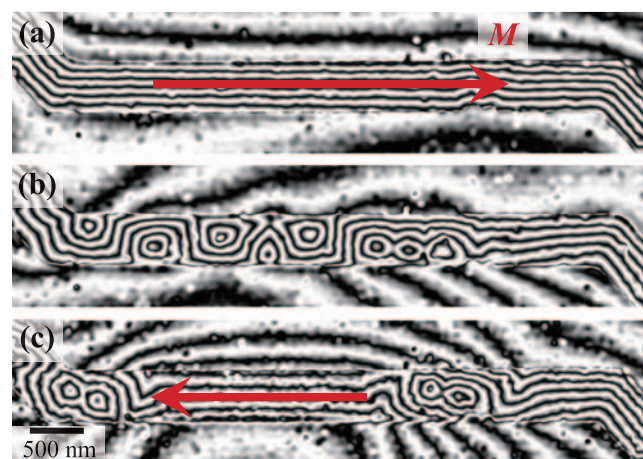


図3 スピン流に誘起される磁化反転(磁区生成)現象。(a) 一様磁化状態。(b) 鎖状磁気渦状態。(c) 反転磁区状態。

歴は拡大し、零磁場下において一様磁化状態と反転磁区状態を安定に切り替えることが可能となる。

図5(c)の磁気相図において、スピンを流し、一様磁化状態から磁化状態を切り替える手順を説明する。磁壁移動の閾値電流密度 J_{th} 以上の領域は(Ⅰ)反転磁区状態、(Ⅱ)一様磁化状態、(Ⅲ)準安定状態の3つの領域に分かれる。磁化を反転するには領域(Ⅰ)においてパルス電流を印加すればよい。スピンの流による磁壁移動を利用し、生成した反転磁区を磁壁移動により移動させるには領域(Ⅱ)においてパルス電流を印加する。反転した磁区領域を消去する場合は、領域(Ⅲ)においてパルス電流を印加すればよい。このように、磁気相図に従い、制御性良く磁化状態を操ることができる。

ここで特筆すべきは、印加する磁場は小さいため、パルス電流を印加しない限り、磁化状態を変化させることはないことである。磁場のみを用い、今回の細線試料の磁化を反転するには細線長手方向に60 Oeの面内磁場が必要である。また、磁性細線の折れ曲がり角に磁壁を導入するには細線長手方向と垂直に260 Oeの面内磁場が必要である。本手法で用いる磁場は大きくても10 Oe程度であり、これらに比べ格段に小さい。

スピン流誘起磁化反転を集積磁気メモリに応用することを考えてみよう¹⁷⁾。集積磁気メモリにおいて、コイルなどを用

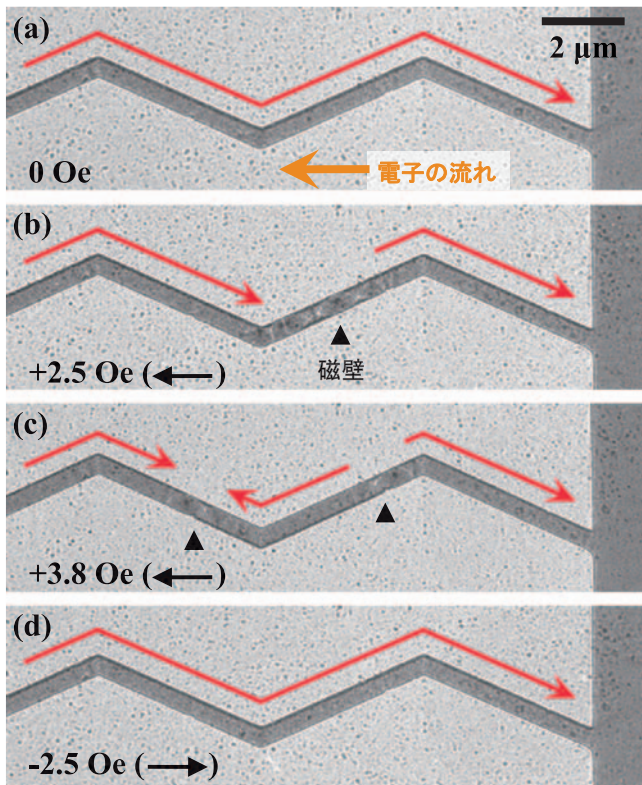


図4 磁場中におけるスピンの流に誘起される磁化反転(磁区生成)現象。(a)零磁場ではほとんどの場合、一様磁化状態が現れる。(c)左向きの磁場(3.8Oe)中でスピンの流を印加すると、左向きの磁区が安定に存在し続ける。(d)右向きの磁場では、一様磁化状態のみが現れる。パルス電流の大きさは $2.0 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ 、パルス幅は300 ns。

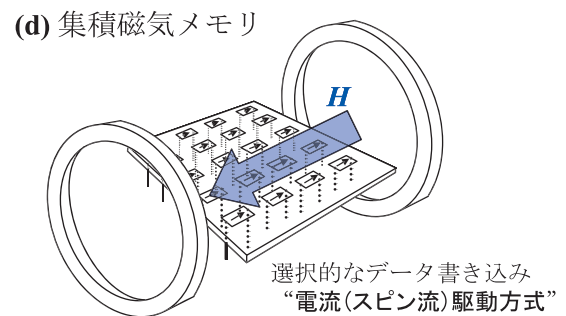
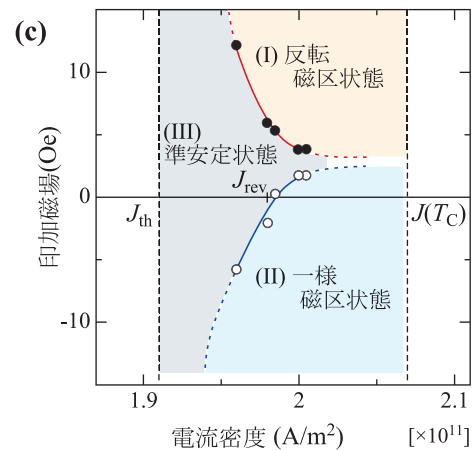
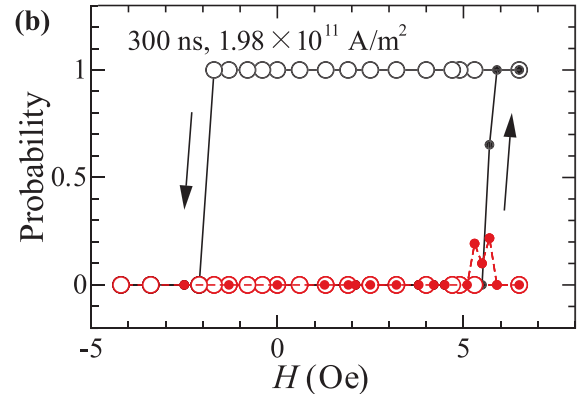
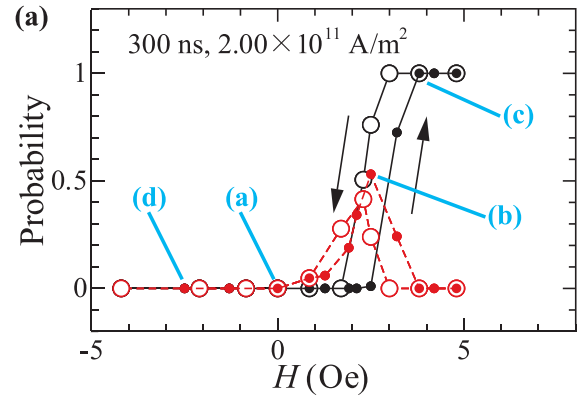


図5 スピン流による磁化反転(磁区生成)。(a, b)反転磁区状態の生成確率の磁場依存性。図中の(a~d)は図4に対応する。パルス電流の大きさは $2.0 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ 、パルス幅は300 ns。(b)パルス電流の大きさは $1.98 \times 10^{11} \text{ A/m}^2$ 、パルス幅は300 ns。(c)磁気相図。閾値電流 J_{th} 以上で磁場と電流密度に応じて3つの領域に区分される。(d)集積磁気メモリへのスピンの流誘起磁化反転技術の応用例。

い試料全体に所定の磁場を印加しておき、情報を書き換える磁気記録ビットのみにスピンを流すことで、選択的に確実にビット情報を書き換えることができる(図5(d)). 重要なことに、印加する磁場は小さいため、電流が流れないビットの情報は保持される。また、本方式では、磁場は各ビットに個別に印加するのではなくメモリ全体に様に印加することが可能となる。そのため、通常、ビット毎に用意される磁場印加機構は不要となり、素子構造が簡略化される。磁場を用い書き換えを行う現行の磁気記録素子は高密度化するにつれて、記録ビットの磁化反転に必要な磁場が大きくなり、操作すべき磁気記録ビット以外のビットに磁場の影響が生じ誤動作を起こす。磁場が長距離にわたり作用を及ぼすことは高集積化を目指す磁気メモリにおいて深刻な問題となっており、電流(スピンの流)駆動方式が有望な代替手法である。今回紹介した弱磁場下でのスピンの流を用いた磁化反転制御技術は制御性に優れており、磁気記録素子やスピントロニクス素子の高集積化や低消費エネルギー化を進める基盤技術として活用されることが期待される。

4. まとめと今後の展望

スピンの流(スピンの偏極電流)のもと磁壁移動や磁区生成など多様な磁化ダイナミクスが生じ、ダイナミクスが確率的な性質をもつことを微視的に示した。スピンの偏極電流はパルス信号であってもジュール加熱により試料温度を上昇させるため、スピンの流に加えて熱励起の影響を考慮しなければならぬ。スピンの流と熱励起によりスピンの波が励起されることで、多様な磁化状態が瞬時に絶えず誘起され、磁化ダイナミクスが複雑に変更される¹⁴⁾。このことはスピンの流誘起磁化ダイナミクスが示す確率的な性質の一因であり、今後、スピンの波励起や熱励起の効果をとりにれた数値計算や理論解析によりスピンの流誘起磁化ダイナミクスの理解が深まることを期待する。

さらに、数 Oe の磁場のもとスピンの流を用いた磁化反転の確率分布を制御し磁化状態を切り替えることに成功した。これはスピンの流を用い制御性良く直接的に磁化状態を操作することを可能にし、磁気記録素子や次世代スピントロニクス素子などの高集積化や省エネルギー消費化を進める基盤技術として活用されると期待される。

省エネルギーの観点からすると、スピンの偏極電流はジュール加熱を伴うため、エネルギー効率が優れない。磁化ダイナミクスの閾値電流値の低減が重要である。また、強磁性体と常磁性体の接合などにおいて生じる電荷の流れを伴わない純

スピンの流を用いた磁化の制御や操作が可能になれば革新的なスピントロニクス素子の開発が進むであろう。このような新しい物理現象を探索するにおいても、磁化状態を直接可視化する電気信号印加下での TEM その場観察法により得られる微視的知見の学術的、産業的価値は極めて高く、今後もスピントロニクス研究の進展に多に貢献するであろう。

文 献

- 1) 猪俣浩一郎(監修): スピンの流エレクトロニクスの基礎と最前線 Spinelectronics—Basic and Forefront—, シーエムシー出版(2004)
- 2) Maekawa, S. (Ed.): Concepts in Spin Electronics, Oxford University Press (2006)
- 3) Parkin, S.S.P., Hayashi, M. and Thomas, L.: *Science*, **320**, 190 (2008)
- 4) Parkin, S.S.P.: US patent 309, 6, 834, 005 (2004)
- 5) Berger, L.: *J. Appl. Phys.*, **55**, 1954 (1984)
- 6) Slonczewski, J.C.: *J. Magn. Magn. Mater.*, **159**, L1 (1996)
- 7) Berger, L.: *Phys. Rev. B*, **54**, 9353 (1996)
- 8) Tataru, G. and Kohno, H.: *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 086601 (2004)
- 9) Yamaguchi, A., Ono, T., Nasu, S., Miyake, K., Mibu, K. and Shinjo, T.: *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 077205 (2004)
- 10) Yamanouchi, M., Chiba, D., Matsukura, F. and Ohno, H.: *Nature*, **428**, 539 (2004)
- 11) Togawa, Y., Kimura, T., Harada, K., Akashi, T., Matsuda, T., Tonomura, A. and Otani, Y.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45**, L683 (2006)
- 12) <http://www.riken.jp/lab-www/nanomag/researchactivitiesmovie.html>
- 13) Thomas, L., Hayashi, M., Jiang, X., Moriya, R., Rettner, C. and Parkin, S.: *Nature*, **443**, 197 (2006)
- 14) Shibata, J., Tataru, G. and Kohno, H.: *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 076601 (2005)
- 15) Togawa, Y., Kimura, T., Harada, K., Akashi, T., Matsuda, T., Tonomura, A. and Otani, Y.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **45**, L1322 (2006)
- 16) <http://www.riken.jp/lab-www/nanomag/researchactivitiesmovie2.html>
- 17) 戸川欣彦, 原田 研, 松田 強, 大谷義近, 木村 崇: 特許出願 2007-186095, US 特許登録中 (US12/219238)
- 18) Togawa, Y., Kimura, T., Harada, K., Akashi, T., Matsuda, T., Tonomura, A. and Otani, Y.: *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 012505 (2008)
- 19) <http://www.riken.jp/lab-www/nanomag/researchactivitiesmovie3.html>
- 20) Tonomura, A.: *Electron Holography*, 2nd ed., Springer (1999)
- 21) Harada, K., Endo, J., Osakabe, N. and Tonomura, A.: *e-J. Surf. Sci. Nanotech.*, **6**, 29 (2008)
- 22) Togawa, Y., Harada, K., Akashi, T., Kasai, H., Matsuda, T., Nori, F., Maeda, A. and Tonomura, A.: *Phys. Rev. Lett.*, **95**, 087002 (2005)