

「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する
革新材料・プロセス研究」
平成 20 年度採択研究代表者

前川 禎通

東北大学金属材料研究所・教授

数値シミュレーションによる新材料・新機能の開発

§ 1. 研究実施の概要

電子は電荷とスピンの2つの内部自由度を持つ。電荷は電気のもとであり、その流れが電流である。一方、スピンは磁気のもとでありその流れをスピン流と呼ぶ。スピン流は電流と違って、普通1 μm 程度以下で減衰するため、ナノ領域でのみ利用可能な量である。また、スピンの効果は電子間相互作用及びデバイスのナノ構造に強く依存する。そのため、その研究には数値シミュレーションが有力な手段である。本研究では、様々な電子状態計算手法を駆使して数値シミュレーションを行い、スピンと電荷のそれぞれの流れおよび相互変換を制御し、「スピンエレクトロニクス」、「強相関エレクトロニクス」、「量子コンピューティング」における従来のエレクトロニクスをはるかに越えるナノデバイスの新原理、新機能を提案するとともに、そのための新材料の設計を行う。

平成 21 年度では、(1)「スピン熱電対」の開発、(2)トンネル接合による「スピン起電力」の開発、(3)酸化物界面制御のためのシミュレーション、(4)スピン起電力デバイスのための要素技術であるシミュレーションツールの開発を行った。今後は、これらの成果をベースにし、より効率的な「スピン熱電対」、「スピン起電力デバイス」等の開発、及びそれらのための材料探索を行う。

§ 2. 研究実施体制

(1) 金研グループ

- ① 研究分担グループ長: 前川 禎通 (東北大学、教授)
- ② 研究項目

1. 量子モンテカルロ法を用いた磁性半導体、酸化物磁性体等の高機能化に向けた材料設計

2. 磁性体における熱・スピン効果の研究と熱スピン流の高効率生成に向けた物質探索
3. 磁性半導体、磁性金属等を用いたスピントロニクスデバイスにおける一般化ファラデーの法則に基づく新機能創出
4. 強磁性／超伝導体ナノデバイスに向けた量子伝導機構と量子コンピューティングデバイス動作原理の創出

(2) 理研グループ

① 研究分担グループ長: 柚木 清司 ((独)理化学研究所、准主任研究員)

② 研究項目

1. モンテカルロ法を用いたマンガン酸化物ヘテロ界面の電子状態の研究
2. 酸化物ヘテロ構造体デバイスの輸送特性理論の構築、及び、それらを用いたシミュレーションコードの整備
3. 磁性体におけるスピンの運動と緩和過程を伴う輸送方程式のシミュレーション

(3) 日立グループ

① 研究分担グループ長: 市村 雅彦 (日立製作所、主任研究員)

② 研究項目

1. 磁化反転電流低減に向けたスピントルク、磁化ダイナミクスシミュレーションの整備
2. スピン起電力解析のためのアルゴリズムの構築
3. デバイス集積化、高密度化のための検討

§ 3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(4-1)に対応する)

(A) スピン流生成:

電子は電気と磁気を併せ持っている。電気のみを利用してきた従来のエレクトロニクスに磁気も積極的に取り入れることで、新しい機能や特性の創出を目指す試みが世界的規模で盛んに行われている。現在の IT 社会を支えているハードディスクの磁気ヘッドや MRAM (磁気ランダムアクセスメモリ) などの磁気デバイス技術の更なる発展には、スピン流を自在に制御することが非常に重要な課題となっており、スピン流生成技術の開拓が急務となっている。我々はこれまで、強磁性金属において、スピンゼーベック効果、及びスピン起電力によるスピン流生成法を確立してきた。以下に述べるように、平成 21 年度はこれらの成果を応用発展させると共に、新たにスピン波スピン流という概念を提唱し、その理論構築と実証実験を行った。

磁気渦スピン起電力 — デバイス開発の分野では、磁性多層膜におけるスピン注入磁化反転や、細線における電流駆動磁壁移動など、試料に直接電流を流すことでナノサイズの磁化構造を操作する技術が実証され、実用化に向けたデバイス応用、機能向上が試みられている。この効果

はスピン移行トルクと呼ばれ、これを利用した新しい磁気ランダムアクセスメモリなどが提案されている。スピン移行トルクは、試料に電氣的な外場を与えたときのスピンの応答として理解できるが、最近この逆効果、すなわちスピン運動による電氣的応答である「スピン起電力」と呼ばれる現象が提唱され注目を集めている。我々は、(1)スピン起電力の一般化、(2)任意の強磁性物質・材料形状におけるスピン起電力を求める数値計算のアルゴリズムの開発、(3)磁気ディスク中に形成される磁気渦のダイナミクスによるスピン起電力の計算、(4)磁気渦コアの分極の情報を電場によって読み出す新しいスピントロニクスデバイスの提案、を行った¹¹⁾。

スピン起電力の大きさは、磁化構造の空間・時間微分に比例することから、急峻な構造をもった磁化が早い運動をしている場合、より大きなスピン起電力が得られると考えられる。そのような磁化の運動が得られる例として、磁気渦の運動に注目した。磁気渦構造は磁気ナノディスクで得られ、これに振動磁場を印加することで磁気コアが回転運動することが実験的にも示されている(図1)。計算により、電場はコアの運動と垂直方向に現れ、誘起される電場は kV/m と非常に大きいことが明らかになった。また、コア分極方向の違いをスピン起電力によって読み取ることが可能であることを示し、新しいスピントロニクス素子の提案を行った。

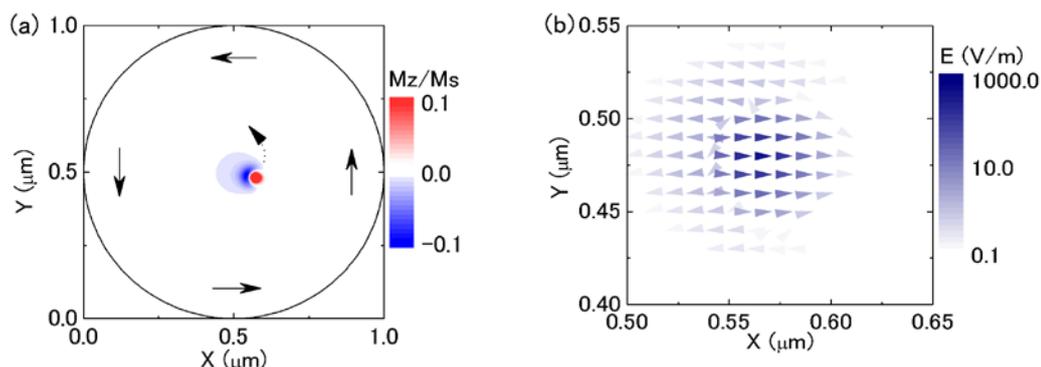


図1:(a)磁気渦構造。実線矢印は磁化の向きを表している。磁化の面直成分をカラープロットしており、点線矢印はコアの運動の軌跡を表している。(b)コア付近に発生するスピン起電力。

スピン波スピン流 — スピン流(スピン磁気モーメントの流れ)を自在に操ることは、次世代の磁気記録媒体を開発する上で必須の技術である。このスピン流の物理を議論する際、従来の研究では、伝導電子によって運ばれるスピン流(伝導電子スピン流)しか議論されてこなかった。しかし本年度、我々はこの常識を打ち破り、スピン波という価電子帯の磁気励起(図2)によって運ばれるスピン流(スピン波スピン流)が存在し、重要な寄与をもたらすことを明らかにした²⁷⁾。このスピン波スピン流の利点は、その特徴的な長さスケールにある。一般に伝導電子スピン流が数十ナノメートルから数マイクロメートルの短距離で減衰してしまうのに対して、スピン波スピン流はその1000~10000倍となる遠距離まで減衰せず到達するため、これを用いることでスピン流の効率的な伝達が可能となる。

実際に、我々は実験グループとの共同研究で、イットリウム鉄ガーネット(YIG)という磁性絶縁体

と白金からなる複合素子を作成し、白金から注入したスピン流が、YIG 中のスピン波スピン流を通して、数ミリメートル離れた別の白金にまで伝搬する事をデモンストレーションした。この結果は、効率的なスピン流の伝達方法として更なる研究を刺激するものと期待される。

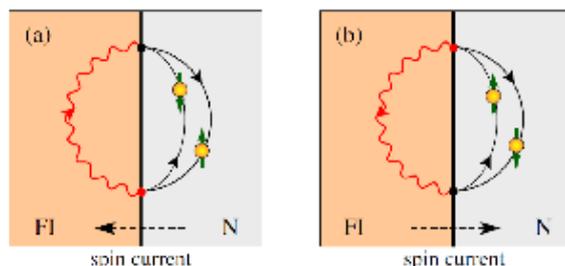


図 2: 強磁性絶縁体(FI)層／非磁性体(N)層界面におけるスピン流の伝搬様式の模式図. (a)が左向き, (b)が右向きに流れるスピン流に対応. 波線が FI 層におけるスピン波の伝搬を表し, 実線が N 層における電子の伝搬を表す.

(B) 酸化物界面制御

遷移金属酸化物を中心としたいわゆる強相関電子材料を用いた新機能を備えたナノデバイス設計に向けて、マンガン酸化物を用いたヘテロ接合界面で現れる、バルク物質では見られない、新しい電子状態・スピン状態を大規模数値計算シミュレーションにより調べた。数値計算シミュレーションは、多軌道二重交換模型に対するモンテカルロ法を用いたもので、本研究では、以前我々が開発したバルク物質に対する計算機コードをヘテロ構造体に拡張した。まず、 $\text{BiFeO}_3/\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ などのスピンの完全に打ち消し合った反強磁性体／強磁性体界面に対する磁化曲線で最近観測された exchange bias の起源として、これらのヘテロ構造界面で本質的に有効な Dzyaloshinskii-守谷相互作用(界面スピン間の異方的な交換相互作用)によるものであることを理論的に提案した¹⁰⁾。さらに、二つの反強磁性絶縁体 $\text{LaMnO}_3/\text{SrMnO}_3$ で構成されたマンガン酸化物ヘテロ構造界面で実現する三つの異なる状態(ハーフメタル強磁性体、A 型反強磁性金属、CE 型反強磁性絶縁体)を明らかにした⁹⁾。

今年度は、理研に8ノード・64コアの計算機クラスターを新たに購入・設置した。まず、この計算機クラスターに適した計算機コードのチューニングを行った。この計算機クラスターでは、主に、個々のデバイス界面に固有の電子状態・量子輸送現象を解明するために、第一原理バンド計算を用いた数値計算シミュレーションが行われる。新しい熱電材料設計を目指し、今年度後半より、近年 CuNi/Au 接合体において観測された巨大ペルティエ係数の起源を解明するために、第一原理バンド計算を用いた輸送係数のシミュレーションを非磁性状態に対して開始した。今後、強磁性状態まで数値シミュレーションを拡張し、巨大ペルティエ係数の起源を明らかにすると同時に、新たな熱電材料設計を行う。

(C) スピン起電力シミュレーション:

スピン起電力は、系の磁気的エネルギーの分布が移動することで誘起される。スピン起電力デバイスシミュレーション技術の構築するためには、磁気的エネルギー分布の詳細な解析が必須の要素技術である。磁気的エネルギーの分布は、入力電流に応じたスピントルクを導き、スピントルクを反映した磁化ダイナミクスを追跡することで、時々刻々の磁化配置に対し得られる。

われわれは、任意の磁化配置に対するスピントルクの計算手法、およびスピントルクを反映した磁化ダイナミクスの解析方法を確立した²³⁾。これら要素技術の定量的検証のため、スピントルク型磁性ランダムアクセスメモリ(SPRAM)の磁化反転を対象とした。この系の特徴は、磁化自由層に積層フェリ磁性(SyF)層を有することで、SyF層のスピントルクおよび磁化ダイナミクスは詳しく調べられていない。図3のF1、F2がSyF層を構成する2つの磁性層である。ここで、左端に位置する固定層に対しF1、F2の磁化は任意の角度を有するものとする。入力電流に応じたスピントルクを反映した磁化ダイナミクスを追跡することで、磁化反転に必要な臨界電流密度を解析した結果が図4(a)である。図4(b)は、日立基礎研の実験グループにより行われた、図4(a)に対応する実験である。構築した要素技術は、実験を定量的に再現し、図4のいずれも、磁化自由層に単一磁性層を用いた場合に比べ、SyF層を用いた方が臨界電流密度を約半分に低減される。さらに、工学的には、2つの磁性層の間に働く交換相互作用を強磁性的に制御すれば、臨界電流密度はさらに低減可能であることが示唆された。

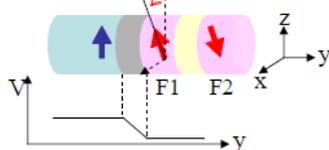


図3: SyF フリー層の構成。

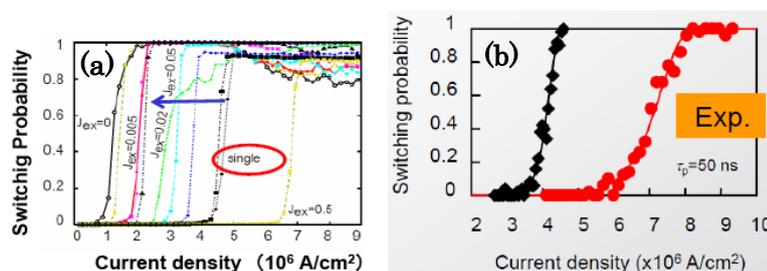


図4: (a) 磁化反転確率の計算、(b) 対応する実験。

§ 4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

● 論文詳細情報

1. J. Ohe and S. Maekawa, "Spin motive force in magnetic nanostructures", J. Appl. Phys. 105, 07C706 (2009).
2. L. Vidmar, J. Bonca, S. Maekawa, "Optical conductivity in the t-J Holstein model", Phys. Rev. B 79, 125120 (2009).
3. Y. Tomoda, N. Bulut, S. Maekawa, "Inter-impurity and impurity-host magnetic correlations in semiconductors with low-density transition-metal impurities", Physica B condensed matter 404, 1159 (2009).

4. J. Xiao, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, and Arne Brataas, “Charge pumping and the colored thermal voltage noise in spin valves”, *Phys. Rev. B* 79, 174415 (2009).
5. J. Ieda, S. Maekawa, S. E. Barnes, “Current-Induced Domain Wall Creep in Magnetic Wires”, *Proceedings of the ISQM-Tokyo `08*, ed. by S. Ishioka and K. Fujikawa, (World Scientific, Singapore, 2009), 134-137.
6. K. Ando, J. Ieda, K. Sasage, S. Takahashi, S. Maekawa, and E. Saitoh, “Electric detection of spin wave resonance using inverse spin-Hall effect”, *Appl. Phys. Lett.* 94, 262505 (2009).
7. J. Ohe, Y. Tomoda, N. Bulut, R. Arita, K. Nakamura, and S. Maekawa, “Combined Approach of Density Functional Theory and Quantum Monte Carlo Method to Electron Correlation in Dilute Magnetic Semiconductors”, *J. Phys. Soc. Jpn.* 78, 083703 (2009).
8. M. Ye. Zhuravlev, Y. Wang, S. Maekawa, and E. Y. Tsymbal, “Tunneling electroresistance in ferroelectric tunnel junctions with a composite barrier” *Appl. Phys. Lett.* 95, 052902 (2009).
9. R. Yu, S. Yunoki, S. Dong, and E. Dagotto, “Electronic and Magnetic Properties of RMnO₃/AMnO₃ heterostructures”, *Phys. Rev. B* 80, 125115 (2009).
10. S. Dong, K. Yamauchi, S. Yunoki, R. Yu, S.H. Liang, A. Moreo, J.M. Liu, S. Picozzi, and E. Dagotto, “Exchange Bias Driven by the Dzyaloshinskii-Moriya Interaction and Ferroelectric Polarization at G-Type Antiferromagnetic Perovskite Interfaces”, *Phys. Rev. Lett.* 103, 127201 (2009).
11. J. Ohe, S. E. Barnes, H. W. Lee, and S. Maekawa, “Electrical measurements of the polarization in a moving magnetic vortex”, *Appl. Phys. Lett.* 95, 123110 (2009).
12. S. Maekawa, “Magnetism: A flood of spin current”, *Nature Mat.* 8, 777 (2009).
13. S. Dong, R. Yu, S. Yunoki, J.M. Liu, and E. Dagotto, “Double-Exchange Model Study of Multiferroic RMnO₃ Perovskites”, *Eur. Phys. J. B* 71, 339 (2009).
14. L. Vidmar, J. Bonca, S. Maekawa, and T. Tohyama, “Bipolaron in the t-J model coupled to longitudinal and transverse quantum lattice vibrations”, *Phys. Rev. Lett.* 103, 186401 (2009).
15. M. Mori, N. A. Shooshtary, T. Tohyama, and S. Maekawa, “Nuclear quadrupole frequency in multilayered cuprates”, *J. Phys. Soc. Jpn.* 78, 123704 (2009).
16. W. Koshibae, N. Furukawa and N. Nagaosa, “Real-Time Quantum Dynamics of Interacting Electrons: Self-Organized Nanoscale Structure in a Spin-Electron Coupled System”, *Phys. Rev. Lett.* 103, 266402 (2009).
17. B. Gu, N. Bulut, T. Ziman, and S. Maekawa, “Possible d⁰ ferromagnetism in MgO doped with nitrogen”, *Phys. Rev. B* 79, 024407 (2009).

18. S. H. Chen, S. Maekawa, M. H. Liu, and C. R. Chang, Mirror symmetry and exchange of magnetic impurities mediated by electrons of Rashba spin-orbit interaction in a four-terminal Landauer setup, *J. Phys. D Appl. Phys.* 43, 015003 (2010).
19. J. Ohe, Y. Tomoda, N. Bulut, R. Arita, K. Nakamura, and S. Maekawa, "Magnetic properties of diluted magnetic semiconductors: Quantum Monte Carlo approach", *J. Magn. Magn. Mater.* 322, 1192 (2010).
20. J. Ieda, H. Sugishita, S. Maekawa, "Current-induced domain wall motion in magnetic nanowires with spatial variation", *J. Magn. Magn. Mater.* 322, 1363 (2010).
21. S. R. Dunsiger, J. P. Carlo, T. Goko, G. Nieuwenhuys, T. Prokscha, A. Suter, E. Morenzoni, D. Chiba, Y. Nishitani, T. Tanikawa, F. Matsukura, H. Ohno, J. Ohe, S. Maekawa, and Y. J. Uemura, "Spatially homogeneous ferromagnetism of (Ga,Mn)As", *Nature Materials* 9, 299 (2010).
22. B. Gu, J.-Y. Gan, N. Bulut, G.-Y. Guo, N. Nagaosa, and S. Maekawa, "Orbital-dependent Kondo effect for Fe in Au: Combined approach of density functional theory and quantum Monte Carlo method", *J. Phys.: Conf. Ser.* 200, 062007 (2010).
23. M. Ichimura, H. Hamada, H. Imamura, S. Takahashi, and S. Maekawa, "Angular dependence of spin transfer torque on magnetic tunnel junctions with synthetic ferromagnetic free layer", *J. Phys.: Conf. Ser.* 200, 062008 (2010).
24. S. Takahashi, E. Saitoh, and S. Maekawa, "Spin current through a normal-metal/insulating-ferromagnet Junction", *J. Phys.: Conf. Ser.*, 200, 062030 (2010).
25. M. Hatami, G.E.W. Bauer, S. Takahashi, and S. Maekawa, "Thermoelectric spin diffusion in a ferromagnetic metal", *Solid State Commun.* 150, 480 (2010).
26. K. Uchida, T. Ota, K. Harii, S. Takahashi, S. Maekawa, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, "Spin-Seebeck effects in Ni₈₁Fe₁₉Pt films", *Solid State Commun.* 150, 524 (2010).
27. Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, and E. Saitoh, "Transmission of electrical signals by spin-wave interconversion in a magnetic insulator", *Nature*, 464, 262 (2010).