

前川 禎通

独立行政法人日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター・センター長

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 $1\mu\text{m}$ 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。特に、スピン流を用いた「スピン起電力デバイス」、「スピン熱電対」及び「強磁性ジョセフソン共鳴デバイス」を開発し、そのための新しい酸化物磁性体と磁性半導体を設計する。平成 22 年度では、平成 21 年度までに開発した材料及びデバイス開発のための数値計算プログラムを利用し、下記の研究を行った。

§2. 研究実施体制

(1)「原研」グループ

① 研究分担グループ長: 前川 禎通 (日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター・センター長)

② 研究項目

・スピンエレクトロニクスデバイス機能の創出及び材料設計

(2)「理研」グループ

① 研究分担グループ長: 柚木 清司 (理化学研究所 基幹研究所・准主任研究員)

② 研究項目

・スピン・熱交差効果を用いた新機能の創出及び材料設計を加速するシミュレーション

(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 基礎研究所・主任研究員)

② 研究項目

・スピントルク及びスピン起電力による論理素子の設計を加速するシミュレーション

§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、スピントラップ効果、及びスピン波スピン流という概念を確立してきた。以下に述べるように、平成 22 年度はこれらの成果を融合させることで、「フォノンドラッグ・スピントラップ効果」という新原理の創出を図った(A-11,A-12,A-15,A-21,A-22)。また、超伝導体へのスピン注入に世界で初めて成功した(A-1)。

フォノンドラッグ・スピントラップ効果 —金属や半導体に温度差を付けると、温度の勾配に沿って電圧が発生する。この現象はゼーベック効果と呼ばれ、この効果を用いれば排熱などから電気を生成する熱電変換素子を構築可能である。この現象の発見以来 200 年近くにわたって世界中で盛んに研究が行われており、現在特にクリーンで信頼性の高いエネルギー源の候補として期待されている。一方で、電子は「電気」と「磁気(スピン)」の2つの性質を持つが、温度差を付けた磁性体中にスピンの流れが生じる「スピン版のゼーベック効果」が存在することを2008年に本研究グループにおいて明らかにした。この現象のメカニズムはその発見以来謎であったが、最近の我々の研究において、格子振動が熱を流す過程でスピン流を生成する「フォノンドラッグ・スピントラップ効果」というプロセス(図1)が重要である事を理論的に予言した。この理論に従えばスピントラップ効果は低温で著しく増大することになるが、この予言はその後の複数のグループの実験で実証されており、理論主導でスピントラップ効果の背後にある原理を解明したと言える。またフォノンドラッグ・スピントラップ効果の概念は、温度勾配のある物体の表面に磁性体と非磁性金属の薄膜を貼付けるだけで熱電発電が可能である事を示している。これは、例えばコンピュータチップに熱電変換素子を貼付けるなど、従来型の熱電変換素子がカバー出来なかった部分にスピントラップ効果が応用出来る可能性を示唆しており、今後この方向にそった研究が進展する事が期待される。

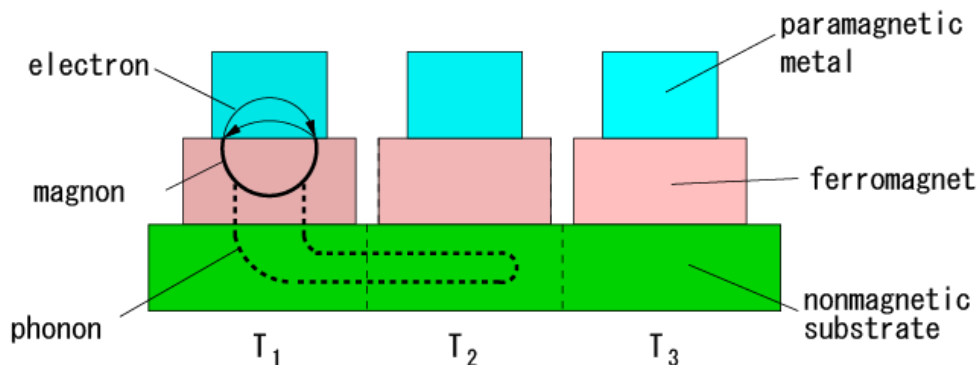


図 1 フォノンドラッグによるスピントロニクス効果の概念図。最下部基板中の温度勾配により駆動された音波(phonon)が相互作用を介して下部強磁性体(NiFe, (Ga,Mn)As 等)におけるスピントロニクス流(magnon)を励起し、上部非磁性電極(Pt 等)にスピントロニクス流を注入する。

超伝導体へのスピントロニクス注入 超伝導体は電気抵抗がゼロの材料だが、磁気的に弱いという性質を持つと考えられてきたため、超伝導体に磁気(スピン)を注入するスピントロニクスデバイスはいまだに開発されてこなかった。1999年、本研究グループにおいて、超伝導を直接弱めないように強磁性体と超伝導体の間に薄い絶縁体膜を挿入した二重障壁のトンネル接合デバイス(図2)では、強磁性電極の磁化の向きが反平行のとき、電圧をかけて強磁性体から超伝導体へスピントロニクスを注入できること、またスピントロニクスは超伝導体中に長時間滞在して大きな抵抗変化(トンネル磁気抵抗効果)を引き起こすことが理論的に予言されており、その実験的な検証が待ち望まれていた。

今回の成果では、超伝導体としてアルミニウム(Al)、強磁性電極としてコバルト鉄(CoFe)、トンネル障壁として酸化マグネシウム(MgO)を用いて、高品質の 2 重トンネル接合デバイス(CoFe/MgO/Al/ MgO/CoFe)を開発した(図2)。このデバイスの電気的特性を示すトンネルコンダクタンス(電気抵抗の逆数)とそれから得られるトンネル磁気抵抗の変化率(TMR)を精密に測定したところ(図3a、b)、低温では理論的に予測されていたトンネル磁気抵抗の大きな振動的な振る舞いが明瞭に観測された。これは、磁化が反平行のとき、注入されたスピントロニクスが長時間にわたって安定に保たれていることを示している。従来、超伝導と磁気(スピン)は相容れないと考えられてきたが、超伝導状態に注入されたスピントロニクスは安定に存在し続けられることを明らかにしたもので、従来の考えを修正し、スピントロニクスの新しい応用の可能性を示すものである。

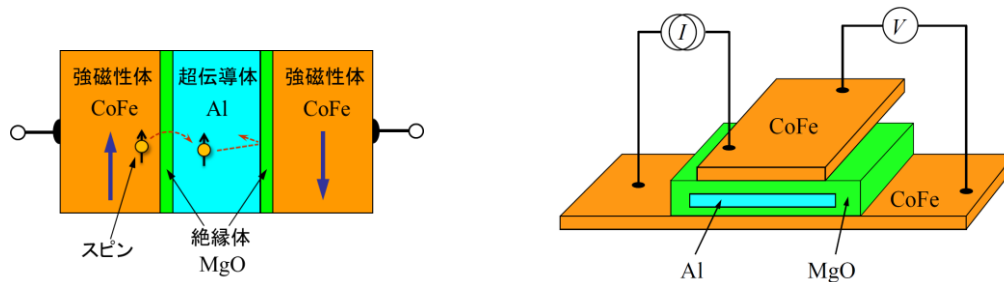


図2 二重トンネル接合デバイスの概念図(左図)。左右の強磁性電極(CoFe)の磁化の向き(青色矢印)を互いに反平行の配置にすることで、スピンを超伝導体に注入し、長い時間保持することができる。今回、作成した二重トンネル接合デバイスの構造(右図)。

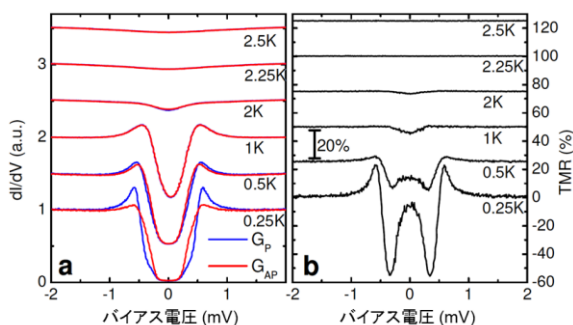


図3 今回作成した二重トンネル接合における電気抵抗の逆数(左図)とトンネル磁気抵抗(TMR)変化率(右図)のバイアス電圧依存性。

(B) 酸化物界面・表面制御およびスピン・熱交差効果の数値シミュレーション

酸化物表面・界面の電子状態 一遷移金属酸化物を中心とす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、様々な遷移金属酸化物に対するバルク、表面およびヘテロ接合界面で現れる電子状態および磁気状態を数値計算シミュレーションにより調べた。まず、マンガ酸化物を用いたヘテロ構造体における格子定数ミスマッチの効果を、電子・格子相互作用を考慮した多軌道二重交換模型に対するモンテカルロ法を用いて調べた。その結果、電気抵抗の異方性の起源を電子状態の違いにより明らかにした^{B-1)}。

次に、二つの反強磁性絶縁体 $\text{LaFeO}_3/\text{LaCrO}_3$ で構成された酸化物ヘテロ構造体で実現する磁気状態を第一原理電子状態計算により調べた。その結果、ヘテロ構造のスタッキング方向および鉄・クロム層数の違いにより、様々な磁性状態が可能であることが分かった。特に、 $[110]$ 方向に 2:2 の割合でスタックした場合、E タイプ磁気秩序が実現し、同時に強誘電性を示すことを明らかにした。この結果は、酸化物ヘテロ構造体を用いてマルチフェロイック物質を設計する新しい指針を与えるものと期待される。

さらに、 HfO_2 の表面電子状態を第一原理電子状態計算により系統的に調べた。その結果、表面の終結の仕方により磁性が現れる可能性があることが明らかになった。特に、過剰酸素

が存在する場合、表面強磁性状態が現れることが分かった。これは、磁性イオンを全く含まない酸化物での磁性出現のひとつの起源を示唆するものであり、今後、その他の比較的単純な酸化物に対して系統的に調べる予定である。

近年、5d 遷移金属酸化物において興味深い電子状態および磁気的性質が実験的に観測されている。我々は、5d 遷移金属酸化物の典型物質として Sr_2IrO_4 をとりあげ、その電子状態を数値的変分法により調べた。その結果、5d 遷移元素に特徴的な大きなスピン軌道相互作用が、モット絶縁体・金属転移に本質的であることを明らかにした^{B-3)}。今後、スピン軌道相互作用が大きい 5d 遷移金属酸化物の量子輸送現象を数値シミュレーションにより明らかにしていく。

電子・スピン結合系の外場応答とその実時間ダイナミクス数値シミュレーション —磁性体の磁気モーメントは古典的な運動方程式に従う側面を持つ。磁気モーメントの起源は、電子スピンと電子間相互作用にあり、古典的自由度として振舞う磁気モーメントと電子は互いに影響を及ぼしあう。この電子・スピン結合系の、電場、磁場、熱、光などの外場に対する応答を調べるため、本計画では量子・古典ハイブリッド系の実時間ダイナミクスのシミュレーションを可能とする数値計算の手法およびその可視化アプリケーションを開発している。

下に示した図 4 は、現在開発中のアプリケーションを用いた電子・スピン結合系の励起と緩和の実時間シミュレーションの結果である。計算には、理研に導入された8ノード・64コアの計算機クラスターを用いた。本アプリケーションは高度に並列化チューニングが施されており、64 並列を越えた大規模並列計算にも耐えうる設計となっている。図4の左は初期状態の反強磁性絶縁体を示す。これを振動電場により励起すると、反強磁性絶縁体状態が溶けて終状態には強磁性金属状態が現れる。このアプリケーションは、電子励起による電子・スピン構造相転移のような、平衡から遠く離れた励起状態とその緩和過程の実時間ダイナミクスに耐えうるものである。これは、新機能の創出及び材料設計を目的としたシミュレーションを可能とする、計算機アプリケーションのプロトタイプとなる。

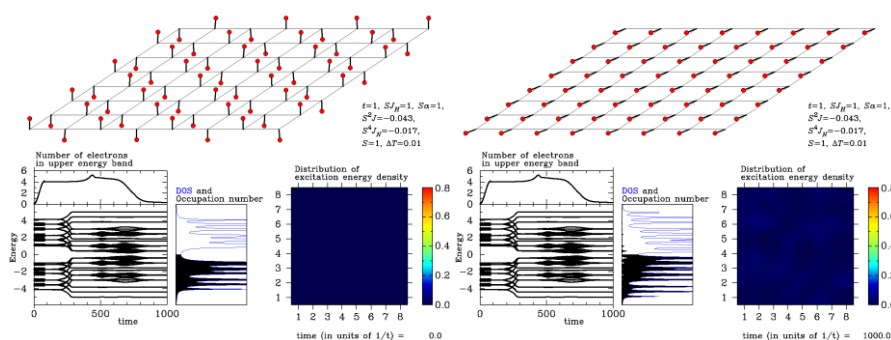


図 4 現在開発中のアプリケーションを用いた電子・スピン結合系の励起と緩和の実時間シミュレーションの実施例。

(C) スピン起電力シミュレーション:

スピン起電力は、系の磁氣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のシミュレーション技術を構築するためには、磁氣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。磁氣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^{C-1)}。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) 層を有することである。図 5 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 の磁化は任意の角度を有し、F1、F2 間に挟んだ非磁性層を介した層間交換結合に応じ、F2 の磁化が決まる。層間交換結合の大きさに対し、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 6 である。図 6 から、磁化反転速度の速い (adiabatic) 領域から比較的遅い (thermal activation) 領域にいたる全域において、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、臨界電流密度を低減できることが理解される。ここで構築した要素技術は、実験を定量的に再現することが確かめられた。

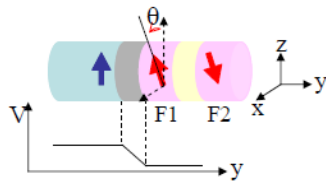


図 5: SyF フリー層の構成。

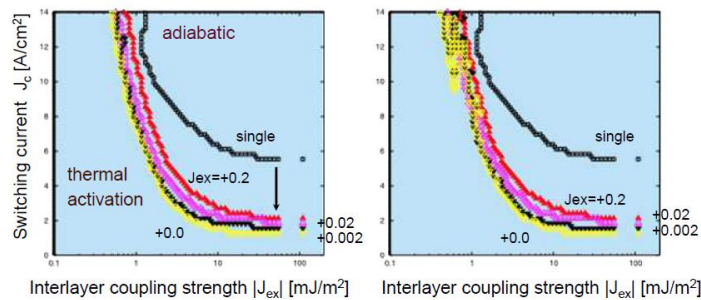


図 6: F1 (左) と F2 (右) の層間交換結合に対する臨界電流密度。

上記スピントルクの解析は、図 5 左端の固定層から SyF 層へスピン分極電流が流れるバイアス方向に限ったものであったが、逆バイアスの解析も可能な手法を構築した^{C-2)}。ここで用いた手法は、強結合近似でモデル化した電子状態を基礎におくため、量子ドットなどの実空間で構造が変調されたナノ構造や、一層ごとに磁化が変調する反強磁性体などの解析に有効である。

§4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

●論文詳細情報

A-1. H. Yang, S.H. Yang, S. Takahashi, S. Maekawa, S.S.P. Parkin, “Extremely long quasiparticle spin lifetimes in superconducting aluminium using MgO tunnel spin injectors,” *Nature Materials* 9, 586, 2010 (DOI: 10.1038/nmat2781)

A-2. B. Gu, J.-Y. Gan, N. Bulut, T. Ziman, G.-Y. Guo, N. Nagaosa, and S. Maekawa, “Quantum Renormalization of the Spin Hall Effect,” *Phys. Rev. Lett.* 105, 086401, 2010 (DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.086401)

A-3. J. Xiao, G. E. W. Bauer, K. Uchida, E. Saitoh, and S. Maekawa, “Theory of magnon-driven spin Seebeck effect,” *Phys. Rev. B* 81, 214418, 2010 (DOI: 10.1103/PhysRevB.81.214418)

A-4. M. Ye. Zhuravlev, S. Maekawa, and E. Y. Tsymbal, “Effect of spin-dependent screening on tunneling electroresistance and tunneling magnetoresistance in multiferroic tunnel junctions,” *Phys. Rev. B* 81, 104419, 2010 (DOI: 10.1103/PhysRevB.81.104419)

A-5. 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 (10.1088/0022-3727/43/1/015003)

A-6. 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. Mat.* 322, 1192, 2010 (DOI: 10.1016/j.jmmm.2009.06.037)

A-7. J. Ieda, H. Sugishita, and S. Maekawa, “Current-induced domain wall motion in magnetic nanowires with spatial variation,” *J. Magn. Magn. Mat.* 322, 1363, 2010 (DOI: 10.1016/j.jmmm.2009.09.026)

A-8. G.E.W. Bauer, A.H. MacDonald, and S. Maekawa, “Spin Caloritronics,” *SOLID STATE COMMUNICATIONS* 150, 459, 2010 (DOI: 10.1016/j.ssc.2010.01.022)

A-9. M. Hatami, G.E.W. Bauer, S. Takahashi, and S. Maekawa, “Thermoelectric spin diffusion in a ferromagnetic metal,” *SOLID STATE COMMUNICATIONS* 150, 480, 2010 (DOI: 10.1016/j.ssc.2009.12.013)

A-10. K. Uchida, T. Ota, K. Harii, S. Takahashi, S. Maekawa, Y. Fujikawa, E. Saitoh, “Spin-Seebeck effects in Ni₈₁Fe₁₉/Pt films,” *SOLID STATE COMMUNICATIONS* 150, 524, 2010 (DOI: 10.1016/j.ssc.2009.10.045)

A-11. K. Uchida, J. Xiao, H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, J. Ieda, T. Ota, Y. Kajiwara, H. Umezawa, S. Maekawa, E. Saito, “Spin Seebeck Insulator,” *Nature Materials* 9,

894–897 (2010) (DOI:10.1038/nmat2856)

A-12. K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, and E. Saitoh, “Observation of longitudinal spin-Seebeck effect in magnetic insulators,” *Appl. Phys. Lett.* 97, 172505(1-3) (2010). (DOI: 10.1063/1.3507386)

A-13. B. Gu, J.-Y. Gan, N. Bulut, T. Ziman, G.-Y. Guo, N. Nagaosa, and S. Maekawa, “Quantum Renormalization of the Spin Hall Effect,” *Phys. Rev. Lett.* 105, 086401(1-4) (2010). (DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.086401)

A-14. G. Khaliullin, M. Mori, T. Tohyama, and S. Maekawa, “Enhanced pairing correlations near oxygen dopants in cuprate superconductors,” *Phys. Rev. Lett.* 105, 257005 (2010) (DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.257005)

A-15. H. Adachi, K. Uchida, E. Saitoh, J. Ohe, S. Takahashi, and S. Maekawa, “Gigantic enhancement of spin Seebeck effect by phonon drag,” *Appl. Phys. Lett.* 97, 252506 (2010) (DOI: 10.1063/1.3529944)

A-16. B. Gu, I. Sugai, T. Zaiman, G. Guo, N. Nagaosa, T. Seki, H. Takanashi, S. Maekawa, “Surface-assisted Spin Hall Effect in Au Films with Pt Impurities,” *Phys. Rev. Lett.* 105, 216401 (2010) (DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.216401)

A-17. S. Hikino, M. Mori, S. Takahashi, and S. Maekawa, “Geometrical dependence of Josephson current induced by ferromagnetic resonance in ferromagnetic Josephson junctions,” *Physica C* 470, S819 (2010) (DOI: 10.1016/j.physc.2009.10.092).

A-18. S. Hikino, M. Mori, S. Takahashi, and S. Maekawa, “Microwave-induced supercurrent in a ferromagnetic Josephson junction,” *Supercond. Sci. Technol.* 24, (2011) (DOI: 10.1088/0953-2048/24/2/024008)

A-19. S. E. Barnes, M. Aprili, I. Petkovic, and S. Maekawa, “Ferromagnetic resonance with a magnetic Josephson junction,” *Supercond. Sci. Technol.* 24, 024020 (2011) (DOI: 10.1088/0953-2048/24/2/)

A-20. Bo Gu, T. Ziman, G-Y. Guo, N. Nagaosa, and S. Maekawa, “Giant spin Hall effect of Au films with Pt impurities: Surface-assisted skew scattering,” *J. Appl. Phys.* 109, 07C502 (2011) (DOI: 10.1063/1.3540676)

A-21. H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, and S. Maekawa, “Linear-response theory of spin Seebeck effect in ferromagnetic insulators,” *Phys. Rev. B* 83, 094410 (2011) (DOI: 10.1103/PhysRevB.83.094410)

A22. J. Ohe, H. Adachi, S. Takahashi, and S. Maekawa, “Numerical study on the spin Seebeck effect,” *Phys. Rev. B* 83, 115118 (2011) (DOI: 10.1103/PhysRevB.83.115118)

B-1. S. Dong, S. Yunoki, X. Zhang, C. Sen, J.-M. Liu, and E. Dagotto, “Highly anisotropic resistivities in the double-exchange model for strained manganites,” *Phys. Rev. B* 82, 035118 (2010) (DOI: 10.1103/PhysRevB.82.035118)

- B-2. Y. Sun, X.-Q. Chen, S. Yunoki, D. Li, and Y. Li, “New family of three-dimensional topological insulators with antiperovskite structure”, *Phys. Rev. Lett.* 105, 216406 (2010) (DOI: 0.1103/PhysRevLett.105.216406)
- B-3. H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Microscopic Study of a spin-orbit-induced Mott insulators in Ir oxides”, *Phys. Rev. Lett.* 105, 216410 (2010) (DOI: 10.1103/PhysRevLett.105.216410)
- B-4. T. Kajitani, Y. Miyazaki, K. Hayashi, K. Yubuta, X.Y. Huang, and W. Koshibae, “Thermoelectric Energy Conversion and Ceramic Thermoelectrics”, *Materials Science Forum* 671, 1 (2011). (DOI: 10.4028/www.scientific.net/MSF.671.1)
- B-5. T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “Variational cluster approximation study on Mott transition with strong spin-orbit coupling”, *J. Phys.: Conf. Ser.* 273, 012148 (2011) (DOI: 10.1088/1742-6596/273/1/012148)
- B-6. H. Watanabe, T. Shirakawa, and S. Yunoki, “Variational Monte Carlo study of two-dimensional strong spin-orbit coupling system: Novel Mott insulating state in Ir oxide”, *J. Phys.: Conf. Ser.* 273, 012143 (2011) (DOI: 10.1088/1742-6596/273/1/012143)
- B-7. L. Wang, T. Shirakawa, H. Watanabe, and S. Yunoki, “A numerical study for two-dimensional spin 1/2 antiferromagnets: a generalization of Entanglement Perturbation Theory to two-dimensional systems”, *J. Phys.: Conf. Ser.* 273, 012131 (2011) (DOI: 10.1088/1742-6596/273/1/012131)
- C-1. R. Sugano, M. Ichimura, S. Takahashi, and S. Maekawa, "Effect of Interlayer Coupling of Synthetic Ferrimagnetic Free Layer on Current Induced Magnetization Switching in MTJs", *IEEE Trans. Mag.* 46, 2136 (2010) (DOI: 10.1109/TMAG.2010.2042149)
- C-2. M. Ichimura, T. Hamada, H. Imamura, S. Takahashi, and S. Maekawa, “Spin-Transfer Torque in MTJs with Synthetic Ferrimagnetic Layers – Keldysh approach”, *J. Appl. Phys.* 109, 07C906 (2011) (DOI:10.1063/1.3549437)

(4-2) 知財出願

- ① 平成22年度特許出願件数(国内 1 件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 1 件)