

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 13 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25600010

研究課題名(和文) マイクロスピンプンピング法を用いた有機半導体単結晶におけるスピン輸送

研究課題名(英文) Spin transport in an organic semiconductor single crystal by using micro spin-pumping

研究代表者

関 剛斎 (SEKI, Takeshi)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：40579611

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ユビキタス元素である炭素をベースとする有機半導体単結晶を用いたスピントロニクスデバイスの開発を目指し、マイクロスピンプンピングという微小磁性体の磁化ダイナミクスを利用する手法により有機半導体および非磁性金属におけるスピンの注入、輸送および検出を試みた。その結果、微小強磁性電極の磁化ダイナミクスを制御できる素子構造の最適化に成功し、マイクロスピンプンピングによるCu細線へのスピン注入、およびCuにPtを接合させることによるスピンの蓄積量の変化を観測した。さらに、有機半導体単結晶であるルブレンと磁性電極の複合化し、ゲート電圧印加下での強磁性共鳴の評価に成功した。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research project is to develop spintronic devices utilizing organic semiconductor single crystals basically consisting of carbon which is an ubiquitous element. We used a micro spin-pumping method as a technique to inject spins into organic semiconductors and nonmagnetic metals, and the injection, the transport and the detection of spins were examined experimentally. We successfully controlled the magnetization dynamics in the microfabricated magnetic element, and injected spins into the Cu nanowire due to the micro spin-pumping. We also observed the change in the spin accumulation in Cu by attaching the Pt wire with Cu. In addition, we fabricated the device with the junction of Rubrene single crystal and ferromagnetic electrode, and evaluated the magnetization dynamics under the gate voltage application.

研究分野：磁性材料学

キーワード：スピデバイス 有機スピントロニクス 磁化ダイナミクス

### 1. 研究開始当初の背景

電子の持つ電荷とスピンという二つの性質を同時に利用するスピントロニクスは、情報の不揮発性という従来の半導体エレクトロニクスには無い魅力を有しており、低消費電力かつ高性能な電子デバイスを実現できる有力候補である。代表的な次世代スピントロニクスデバイスの一つに、ソースおよびドレイン電極を磁性体に置き換えたスピン電界効果型トランジスタ(FET)がある。この構造では、スピン角運動量の流れであるスピンを非磁性半導体チャンネルに注入することができ、スピンの歳差運動をゲート変調することによるON/OFF動作や、FET自身に記憶素子の機能を付与できるなどの特徴がある。しかしながら、現状では従来のFETを置き換えるほどの性能を実現するには至っていない。また、環境調和や資源確保の観点では、GaやAsなどを含む無機半導体の代替となるチャンネル材料の探索も重要となる。そこで本研究では、チャンネル材料として従来の無機半導体ではなくユビキタス元素である炭素に着目し、炭素をベースとする有機半導体単結晶を用いたスピントロニクスデバイスの開発に着想した。

### 2. 研究の目的

本研究課題では、有機半導体単結晶におけるスピン注入・輸送・検出の機構を解明することを見据え、単結晶の結晶配向性を利用することで、結晶方位に依存した異方的なスピン輸送特性を調べ、高いスピン注入効率、長距離スピン拡散、ゲート電界によるスピン制御の実現を目指した基盤技術開発を行った。

本研究を遂行する上でのキーポイントは、単結晶の利点を活かしたスピン輸送の系統的な研究、およびナノ構造体におけるスピン注入・輸送・検出を効率よく行うための手法の構築である。そのため、マイクロスピンプンピングという微小磁性体の磁化ダイナミクスを用いる手法を提案し、有効性を検討した。スピンプンピングとは、磁化ダイナミクスの緩和過程を利用して強磁性体から非磁性体へとスピンの注入される現象である。

具体的には、「(1)微小磁性電極の磁化ダイナミクスの制御」、「(2)ナノ構造素子におけるマイクロスピンプンピングに起因したスピン蓄積の検出」、「(3)有機半導体単結晶と磁性電極の複合化による界面伝導評価とスピン注入・検出」、および「(4)有機半導体単結晶中でのスピン制御」を研究項目として設定し、本研究課題を遂行した。

### 3. 研究の方法

まず、「(1)微小磁性電極の磁化ダイナミクスの制御」および「(2)ナノ構造素子におけるマイクロスピンプンピングに起因したスピン蓄積の検出」に関しては、微小なAuコプレーナ導波路上にマイクロメータサイズのFeNi合金(パーマロイ)の矩形素子(図1)

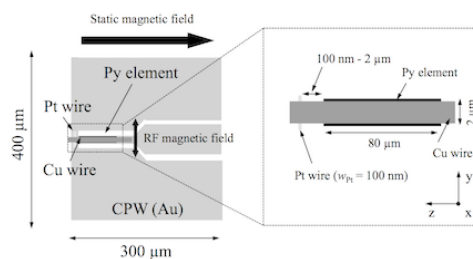


図1 微小磁性体の磁化ダイナミクスを評価するために用いたAuコプレーナ導波路上にマイクロメータサイズのFeNi合金(パーマロイ)の矩形素子を配置した素子の模式図。

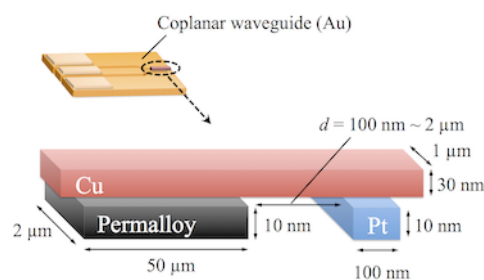


図2 パーマロイ電極とPt電極をCu細線で接続させた素子の模式図。強磁性共鳴の共鳴線幅の変化より、マイクロスピンプンピングによるスピン蓄積の有無を評価することが可能である。

を微細加工により作製し、高周波磁場により誘起される磁化ダイナミクスの解明と制御を試みた。磁化ダイナミクスの測定には、ベクトルネットワークアナライザをコプレーナ導波路に接続し、磁化運動に起因したインダクタンス変化を高周波電圧の反射率変化として検出する手法を用いた。さらに、パーマロイ電極とPt電極をCu細線で接続させた素子(図2)を作製し、強磁性共鳴の共鳴線幅の変化よりマイクロスピンプンピングによるスピン蓄積の有無を評価した。

「(3)有機半導体単結晶と磁性電極の複合化による界面伝導評価とスピン注入・検出」および「(4)有機半導体単結晶中でのスピン制御」に関しては、「(1)および(2)で得られた知見および最適化された素子デザインをもとに、有機半導体単結晶と金属強磁性電極のナノ接合素子を作製した。本研究課題では、有機半導体単結晶として高い移動度が期待できるルブレンを選択し、コプレーナ導波路上に作製したパーマロイ電極とルブレン単結晶とを接合させた。この素子の強磁性共鳴スペクトルを測定することにより、スピン注入、輸送および検出の可能性を調べた。さらに、ルブレン単結晶にゲート電圧を印加することにより、トランジスタ特性等の伝導特性の

評価を行い、ルブレン単結晶へのスピン注入に対するゲート印加の影響について調べた。

本研究課題では、熱酸化シリコン基板上にイオンビームスパッタ法を用いて薄膜試料を作製した。素子作製時の微細加工には、電子線リソグラフィおよび Ar イオンミリングを使用した。

#### 4. 研究成果

「(1)微小磁性電極の磁化ダイナミクスの制御」に関して、まずマイクロメータサイズに微細加工したパーマロイ矩形素子の磁化ダイナミクスを調べた。図3に、強磁性共鳴スペクトルの磁場依存性を示す。複数の共鳴ピークが観測されており、磁気モーメントが均一に歳差運動する一斉モードの他に、微細加工素子特有のスピン波の閉じ込め効果のため、量子化された静磁表面波のスピン波モードも励起されることが明らかとなった。このスピン波モードの励起は、マイクロスピンプンピングにおけるスピン注入効率の向上を妨げる恐れがある。そこで、パーマロイ矩形素子をコプレーナ導波路から電気的に孤立させた構造へと最適化したところ、励起用高周波磁場の均一化に起因してスピン波モードを抑制することに成功した。

次に、「(2)ナノ構造素子におけるマイクロスピンプンピングに起因したスピン蓄積の検出」について、パーマロイ矩形電極に Cu 細線を接続させスピンプンピングによる Cu へのスピン注入を調べた。パーマロイ電極の磁化歳差運動により、スピン角運動量がパーマロイから Cu 細線へと受け渡される。ここで、Cu 細線の先端にスピン軌道相互作用の大きい Pt 細線を繋げると、Cu 内のスピン緩和が促進されることになる。このスピン緩和の違いは強磁性共鳴線幅に反映され、スピン

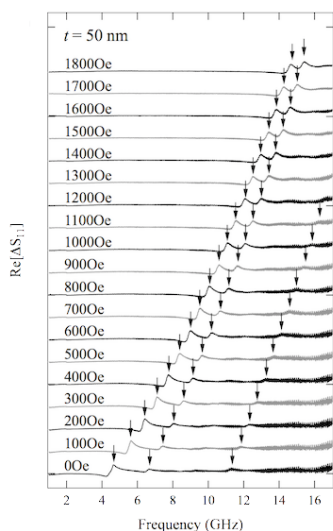


図3 マイクロメータサイズのパーマロイ矩形素子における共鳴スペクトルの外部磁場依存性。パーマロイ厚は 50 nm とした。

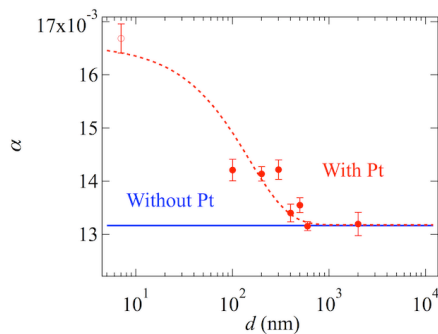


図4 パーマロイと Pt 細線を Cu で架橋した素子において、パーマロイ-Pt 細線間距離( $d$ )に依存したダンピング定数( $\alpha$ )の変化。

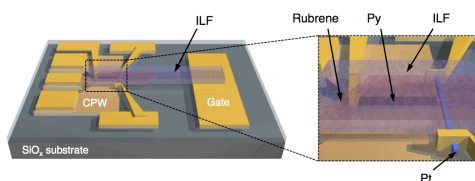


図5 パーマロイ(Py)電極と Pt 細線をルブレン単結晶で架橋する素子構造の模式図。イオン液体フィルム(ILF)をゲート絶縁体として用いることでルブレンに対し高いゲート電圧を印加できる構造とした。

緩和の指標となるダンピング定数( $\alpha$ )を用いてスピン注入の有無を評価することが可能となる。そこで、パーマロイ電極と Pt 細線間の距離( $d$ )を変化させた素子において、 $\alpha$  野変化を調べた。図4に、パーマロイ電極における  $\alpha$  の  $d$  依存性を示す。 $d$  が小さい領域では、Pt 細線を接続していない Cu と比較して大きな  $\alpha$  が得られており、 $d$  の増加にともない  $\alpha$  が低下する傾向が観測された。これは、Pt 細線のスピン軌道相互作用によって Cu 細線内のスピン蓄積の状況が変化していることを示唆しており、Cu へスピンが注入されていることを意味している。よって、本研究では、マイクロスピンプンピングによりスピンを注入および蓄積させることが可能であることが実験的に示された。

「(3)有機半導体単結晶と磁性電極の複合化による界面伝導評価とスピン注入・検出」に関しては、図5に模式的に示した素子構造を作製した。この素子では、上記 Cu の代わりにルブレン単結晶でパーマロイ電極と Pt 細線を架橋する構造となっており、さらにイオン液体フィルムをゲート絶縁体として用いることでルブレンに対し高いゲート電圧を印加できる。この素子のトランジスタ特性を測定したところ、マイナスのゲート電圧を印加すると伝導度が増加する半導体の振舞が

観測され、トランジスタとして動作することが確認された。続いて、強磁性共鳴スペクトルを測定したところ、ルブレ単結晶を接続させたパーマロイ電極においても明瞭な共鳴ピークが現れ、磁場に依存したピーク周波数の変化が観測された。

この素子を用いて、「(4)有機半導体単結晶中でのスピン制御」を検討した。ゲート電圧を印加しながら強磁性共鳴スペクトルを測定したところ、1 V、0 Vおよび-1 Vにおいて若干のスペクトル形状の変化が観測された。しかしながら、スペクトル形状の変化をスピン注入の変調と結論付けるためには効果が小さく、変化の傾向も複雑であるため、その起源については未だわかっていない。

以上より、本研究課題では、磁化ダイナミクスの制御、マイクロスピンポンピングによるスピン蓄積の確認、および有機半導体単結晶と磁性電極の複合化に成功し、ゲート電圧印加下での強磁性共鳴測定を可能とする素子を作製した。しかしながら、今回用いた素子では、ルブレ単結晶にゲート電圧を印加する界面とスピンポンピングによってスピンが注入されると考えられる界面とが空間的に分離していたため、スピン注入をゲート変調することが困難であることが明らかとなった。そのことが、ゲート電圧によるスペクトルの変化が微小であったことの一因であると推察される。これらの結果を踏まえた今後の研究展開としては、ゲート配置の変更など素子構造の最適化の方針を熟考することにより、電界効果の増強やスピン制御の実現に繋がるものと期待される。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

1. 著者名 : T. Yamamoto, T. Seki, S. Ono, and K. Takanashi  
論文標題 : Characterization of spin pumping effect in Permalloy/Cu/Pt microfabricated lateral devices  
雑誌名 : J. Appl. Phys. Vol. 115, pp. 17C505-1-3 (2014). 査読有

2. 著者名 : T. Yamamoto, T. Seki, S. Ono, and K. Takanashi  
論文標題 : Observation and suppression of quantized spin waves in microfabricated permalloy elements  
雑誌名 : Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 53, pp. 04EM01-1-4 (2014). 査読有

[学会発表] (計 7 件)

1. 発表者名 : 山本竜也、関剛斎、高梨弘毅

発表標題 : 微細加工素子を用いた非磁性物質へのスピンポンピング効果の評価.

第 38 回日本磁気学会学術講演会, 2014 年 9 月 2 日, 慶応義塾大学日吉キャンパス (横浜).

2. 発表者名 : T. Yamamoto, T. Seki, S. Ono, K. Miwa, and K. Takanashi,  
発表標題 : Ferromagnetic Resonance Study on Microfabricated Permalloy Elements with an Organic Semiconductor.  
IEEE International Conference on Microwave Magnetics 2014, 2014 年 7 月 1 日, 仙台国際センター (仙台).

3. 発表者名 : T. Yamamoto, T. Seki, and K. Takanashi  
発表標題 : Nonlinear Characteristics of Spin Pumping in Microfabricated Ni81Fe19/Pt Bilayers.  
Intermag 2014, 2014 年 5 月 5 日, Dresden (Germany).

4. 発表者名 : T. Yamamoto, T. Seki and K. Takanashi,  
発表標題 : Nonlinear effect of spin pumping in microfabricated devices with Permalloy/Pt.  
第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 2014 年 3 月 17 日, 神奈川工科大学 (神奈川).

5. 発表者名 : T. Yamamoto, T. Seki and K. Takanashi  
発表標題 : Spin pumping in nanometer-sized lateral devices consisting of Permalloy/Cu/Pt.  
58th Annual Magnetism & Magnetic Materials Conference (The 58th MMM conference), 2013 年 11 月 5 日, Denver (USA).

6. 発表者名 : T. Yamamoto, T. Seki and K. Takanashi  
発表標題 : Characterization of spin pumping effect in nanometer-sized lateral devices.  
2013 International Conference on Solid State Devices and Materials (2013 SSDM), 2013 年 9 月 25 日, Hilton Fukuoka Sea Hawk (福岡).

7. 発表者名 : T. Yamamoto, T. Seki, and K. Takanashi  
発表標題 : Spin injection in a nanometer-sized lateral device by spin pumping.  
第 74 回応用物理学会秋季学術講演会, 2013 年 9 月 20 日, 同志社大学京田辺キャンパス (京都).

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://magmatelab.imr.tohoku.ac.jp>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

関 剛斎 (SEKI, Takeshi)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：40579611

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

小野 新平 (ONO, Shimpei)

(一財) 電力中央研究所・材料科学研究  
所・主任研究員

研究者番号：30371298

好田 誠 (KOHDA, Makoto)

東北大学・工学研究科・准教授

研究者番号：00420000