

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654100

研究課題名(和文)局所励起・検出 ESR を用いたスピン液体状態における長距離スピン伝導の検証

研究課題名(英文) Verification of long-distance spin transport in spin liquid state using local excitation and detection of electron spin resonance

研究代表者

木俣 基 (Kimata, Motoi)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：20462517

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000 円、(間接経費) 870,000 円

研究成果の概要(和文)：本研究では局所的なスピン状態の励起が、比較的電気抵抗率の高い有機物質においてもスピン伝導を研究する上でのスピン流源になり得るかどうかが、またスピン流がどの程度の距離伝搬するかを研究した。第一段階として強磁性体にパーマロイ(Py)、有機物に導電性高分子(PEDOT:PSS)を用いて強磁性/有機物接合を作成し、Pyを強磁性共鳴によって励起してスピン流を生成する手法(スピンポンピング)に着目して実験を行った。スピン流の検出はPEDOT:PSS膜の反対側に配置した白金(Pt)の逆スピンホール効果を測定する事で行った。その結果、PEDOT:PSSの室温でのスピン拡散長として140nm程度の値を得た。

研究成果の概要(英文)：We have verified that the local excitation of the spin states can be a spin current injector for high-resistivity materials, e.g., organic materials. We have also investigated the spin transport length of organic materials. As the first step, we have fabricated ferromagnet/organic junction using permalloy (Py) ferromagnet and PEDOT:PSS organic polymer, and then, performed spin pumping experiment. In this experiment, the spin states of organic layer is locally excited via exchange interaction at the Py/PEDOT:PSS interface. The transmitted spin current is detected by the inverse spin Hall effect of the Platinum (Pt) layer located at the opposite of the PEDOT:PSS film. The obtained spin diffusion length of PEDOT:PSS film is approximately 140 nm.

研究分野：物理学

科研費の分科・細目：物性II

キーワード：電子スピン共鳴 スピン流 有機薄膜デバイス

1. 研究開始当初の背景

スピン間に強い磁氣的相互作用が働いているにもかかわらず、極低温まで磁気秩序が観測されない「スピン液体」と呼ばれる特異な時期状態が注目を集めている。スピンの幾何学的配置に起因する幾何学的スピンプラストラーションは磁気秩序を抑制するとされる要因の一つであり、その典型例が三角格子にスピンの配置した二次元三角格子磁性体である。現実の物質としては、近年、二次元三角格子を持ついくつかの有機反強磁性体において、スピン液体的な振舞いが低温で実際に観測されている。例えば $S=1/2$ を持つ量子スピン液体の候補である $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ (以下 $\text{EtMe}_3\text{Sb-dmit}$ 塩) では、絶縁体にも関わらず金属並みに大きい残留熱伝導度が報告されており、仮にこれをスピン自由度に起因する物と考え、磁気励起の平均自由行程は $1\mu\text{m}$ 程度(隣接スピン間隔の約 1000 倍)にも達し、長距離に及ぶ磁気励起の伝搬が示唆されている。このような特筆すべき熱伝導現象は、磁気秩序が無いにも関わらず長距離にわたってスピン相関が発達しているスピン液体状態に特徴的な物であると考えられる。しかし一般に、熱伝導度は励起の速度と平均自由行程の積に比例するため熱伝導度の測定からそれらを独立に決める事は出来ない。実際、前述の平均自由行程も励起の速度(即ち分散関係)を仮定した上での概算であり、励起の平均自由行程が実際にどの程度の長さであるかは未解明の問題である。

2. 研究の目的

上述のように本研究の目的は有機磁性体中におけるスピンの伝搬特性を直接的に調べる事である。そして長距離におよぶスピン伝導が本当に存在するかどうかを検証する。

3. 研究の方法

それを実現するために本研究では試料一部の微小領域のみを電子スピン共鳴(ESR)によって励起し、それを空間的に離れた場所で検出する方法を提案した。この手法の特徴は試料のスピン自由度のみを選択的に励起できるため、熱伝導度測定のように、格子等の自由度による寄与の影響を受けない点である。本研究では最終的には上記の様なスピン液体状態の解明を目指す、その第一歩として、有機物質におけるスピン伝導の機構を調べる手法として、局所的なスピンの励起および検出が有効であるかどうかをまず確認する必要がある。

4. 研究成果

本研究では、有機物質の様な抵抗率の高い試料について、局所的なスピンの励起がスピン伝導を調べる上での必須となるスピン注入源となり得るかどうかを研究した。具体的には強磁性金属と有機物の接合を作成し、強

磁性体を強磁性共鳴(FMR)によって励起する事で、強磁性体との界面近傍のスピン状態を励起した。この手法は強磁性体/常磁性体界面における交換相互作用を通じて常磁性体のスピンを局所的に励起する方法で、スピンプンピングとして知られている。有機物としては比較的容易に薄膜が得られる導電性高分子(PEDOT:PSS)を用いた。また、伝搬してきたスピンの検出は膜の反対側に白金(Pt)を成膜する事により行った。Ptは強いスピン軌道相互作用を有する物質であり、スピン角運動量の流れ(スピン流)に対して垂直方向に電場が生じる逆スピンホール効果を大きく示す典型物質として知られている。従って、Pt電極の両端に生じる電圧信号を測定する事でスピン流を検出する事ができる。また、強磁性体としてはニッケル-鉄合金であるパーマロイ(Py)を用いた。図1に本研究で用いた素子の概略図を示す。

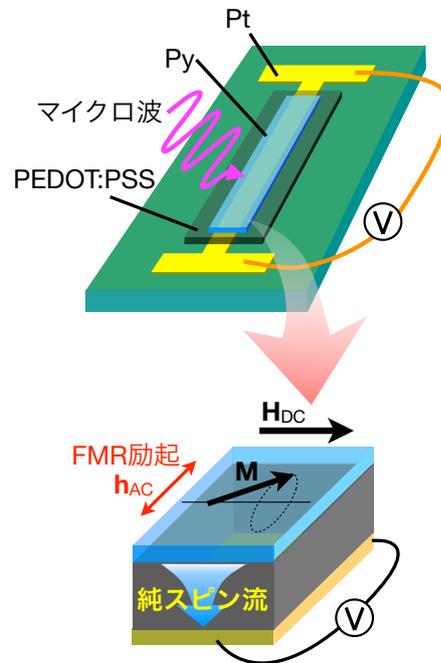


図1：本研究で用いた試料の概略図。

図2に Py/PEDOT:PSS/Pt 三層構造素子の FMR スペクトルを示す。マイクロ波の周波数は約 9.45GHz (X-band) である。共鳴磁場および線幅は Py 単体の物と概ね一致しており、観測された FMR が Py 由来の物であることを示している。この時もし、Py/PEDOT:PSS 界面において局所的にスピンの励起され、PEDOT:PSS にスピン流が誘起されるとすると、PEDOT:PSS 膜の反対側に配置した Pt 膜にもスピン流が流れ込むため、逆スピンホール効果による電圧信号が観測される事が期待される。図3には FMR 測定と同時に測定した Pt に生じる電圧信号を示している。図から分かるように FMR の共鳴磁場とほぼ同じ磁場にピーク構造を持つ電圧が観測されてい

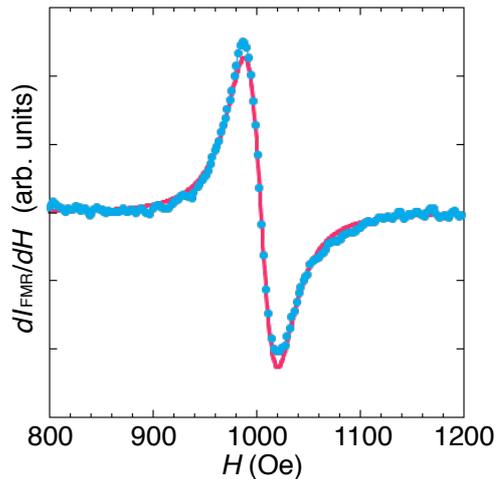


図 2 : Py/PEDOT:PSS/Pt 三層構造素子における Py の FMR 信号。実線はローレンツ関数の一次微分によるフィッティング。

る。スピンポンピング効果によってスピン流が生じる場合、誘起されるスピン流は FMR 共鳴磁場で最大となるため、Pt に生じる電圧信号は共鳴磁場を中心として左右対称な形状を示す事が期待される。そこで、観測された電圧信号を共鳴型と分散型のローレンツ関数の和を用いてフィッティングし、対称成分のみを抽出して逆スピンホール効果による信号として分離した。それらのフィッティングの結果は図 3 中の実線で、また吸収型と分散型それぞれの関数の寄与は破線と点線によって示してある。これらの結果によって、局所的なスピンの励起が比較的電気抵抗率の高い有機物質中にスピン流を誘起するのに有効である事、かつその励起が伝搬（拡散）する事を示す事が出来た。

次に、誘起されたスピン流がどの程度の距

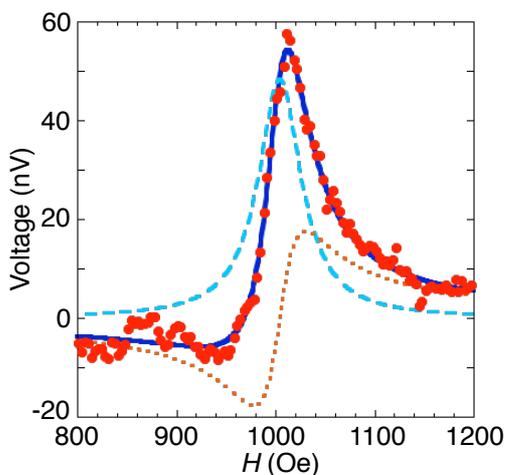


図 3 : Pt 電極の両端に生じた電圧信号。破線と点線はそれぞれ共鳴型と分散型のローレンツ関数の寄与。実線はそれらの和を用いたフィッティング。

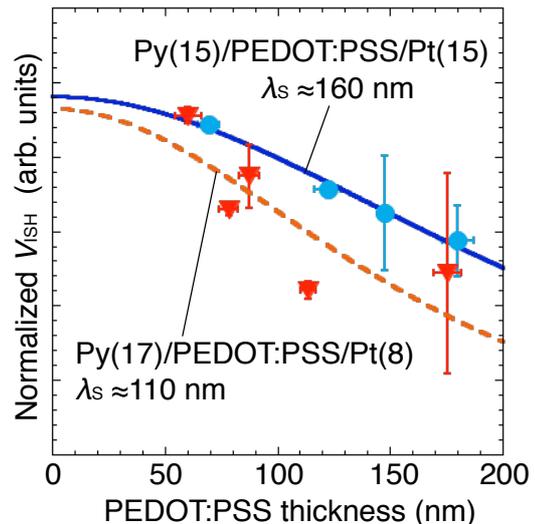


図 4 : 規格化した逆スピンホール電圧の PEDOT:PSS 膜厚依存性。

離まで拡散するかを調べる目的で、PEDOT:PSS の膜厚を様々に変化させた素子を作成し、Pt に生じる電圧信号の変化を測定した。図 4 に規格化した逆スピンホール電圧の PEDOT:PSS 膜厚依存性を示す。図から分かるように、PEDOT:PSS の膜厚が大きくなるにつれて逆スピンホール電圧が小さくなっている事が分かる。この事は PEDOT:PSS 中のスピン緩和のために膜厚が大きくなるにつれて Pt に到達するスピン流の大きさが小さくなると考えると定性的に理解することができる。今回、この振る舞いを理解するために次元のスピン拡散方程式を解き、PEDOT:PSS/Pt 界面におけるスピン流の大きさを算出しそれを用いてフィッティングを行ったのが図 4 中の実線と破線である。図にはそれぞれ Py と Pt の膜厚の異なる二種類の試料の結果を示してある。その結果 PEDOT:PSS の膜垂直方向のスピン拡散長として平均で 140nm 程度の値を得た。

本研究によって局所的なスピン状態の励起が、比較的抵抗率の大きな有機物質に対してもスピン流を誘起するために有効な方法である事が明らかになった。またその結果得られた導電性高分子 PEDOT:PSS 膜のスピン拡散長は約 140nm である。

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)

[学会発表] (計 3 件)

- ① 木俣基、野崎大輔、新見康洋、大谷義近、田島裕之

“Spin-pumping spin injection into organic polymer PEDOT:PSS film”

(口頭発表)

58th Annual conference on magnetic

materials (MMM2013)

2013年11月8日、デンバー（米国）

- ② 木俣基、野崎大輔、新見康洋、大谷義近、
田島裕之
「スピンプンピングによる導電性高分子
膜へのスピン注入」（口頭発表）
日本物理学会 2013 年秋季大会
2013年9月26日、徳島大学（徳島県）
- ③ 野崎大輔、木俣基、新見康洋、大谷義近、
田島裕之
「分子性薄膜における横型スピンプンピ
ングの試み」（ポスター発表）
日本物理学会 2013 年秋季大会
2013年9月25日、徳島大学（徳島県）

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.riken.jp/lab-www/nanomag/indexjpn.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木俣 基 (KIMATA, Motoi)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：20462517

(2) 研究分担者 なし

()

研究者番号：

(3) 連携研究者 なし

()

研究者番号：