

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 23 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2015

課題番号：25630148

研究課題名(和文)原子層制御技術によるスピン波プリズムの創成

研究課題名(英文)Realization of spin wave prism by atomic layer control techniques

研究代表者

安藤 裕一郎(Ando, Yuichiro)

京都大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：50618361

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性体のスピンの集団的歳差運動が波として伝搬するスピン波は省エネルギーな情報伝達手段として注目されている。スピン波技術が更に発展すれば、異なる波長のスピン波を同時に用いて並列演算を行う「多重波長スピン波」デバイスの実現も期待される。そこで本研究ではスピン波を波長ごとに分離(分波)する技術の確立を目指す。これまでにスピン波を輸送する母材として有望なホイスラー合金をレーザーMBE法を用いて成長することや、スピン波の長距離化が期待できるイットリウム鉄ガーネット膜の成長およびダンピング定数の低減方法の探索を行った。

研究成果の概要(英文)：Spin wave is the information transport technology of spin information with low energy consumption. Furthermore multiple spin information are expected to be transported by using multiple spin waves with different wave length. To establish the technology of multiple spin wave transport, deconvolution techniques of each spin wave is desired. The final goal of this study is to establish the deconvolution techniques by using the Snell's law of spin wave at the ferromagnetic material / ferromagnetic material interface. In this study, we investigated growth of ferromagnetic Heusler alloy and Yttrium Iron Garnet (YIG) which have a low Gilbert damping constant. We also investigate dominant factor of the Gilbert damping constant in YIG which enables long distance transport of the spin waves.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン波 ホイスラー合金

1. 研究開始当初の背景

強磁性体のスピンの集団的歳差運動が波として伝搬する「スピン波」は省エネルギーな情報伝達手段として注目されている。近年では強磁性体絶縁膜を用いたスピン波の長距離輸送や、光に於いてのフォトニック結晶に当たる「マグノン結晶」の提案など、次々世代デバイスの鍵技術として期待されている。スピン波技術が更に発展すれば、異なる波長のスピン波を同時に用いて並列演算を行う「多重波長スピン波」デバイスの実現も期待される。

2. 研究の目的

本研究ではスピン波を波長ごとに分離(分波)する技術の確立を目指す。その為のデバイスとして「スピン波プリズム」を実現する。スピン波は「スネルの法則」に従うという理論的予測がある。光に対するプリズムと同様に強磁性体 A の中に磁気特性の異なる強磁性体 B を 3 角形状に配置すると、強磁性体 B を透過するスピン波の方向は波長に強く依存する。これにより多重波長スピン波を分波することが可能となる。ここで要求される強磁性体 A/B ヘテロ接合への条件は、交換相互作用レベルで結合していること、および原子レベルで急峻であることである。

研究期間内に原子層レベルで急峻な界面を有するスピン波プリズムの形成手法を確立し、その動作実証を行う。強磁性体にはホイスラー合金を用いる。ホイスラー合金は X_2YZ という組成で表されるが、X、Y が遷移金属元素、Z が半導体もしくは非磁性金属元素で構成される。Y、Z 原子を別元素で置換すれば、結晶構造を維持したまま磁気特性を大きく変調することが可能である。また、スピン波の輸送を阻害するダンピング定数が比較的小さいと言う利点も有している。

3. 研究の方法

研究開始当初の研究内容を以下に示す。本研究の最終目標は膜面直方向にスピン波プリズムを形成し、膜面内方向に輸送されるスピン波の分波である。このような研究を初年度から実現するのは技術的飛躍が大きい為、まずは膜面内方向に強磁性体ヘテロ界面を形成し、膜面直方向にスピン波を輸送する実験から開始する。申請者はこれまで分子線エピタキシー(MBE)法を用いた強磁性体の結晶成長を行ってきたが、本研究ではレーザー分子線エピタキシー(MBE)法を用いる。本手法は従来の MBE 法と同様、強磁性体の単結晶成長が可能であるほか、ソースが大容量であり、交換も簡便であるという利点を有し、厚膜の強磁性体結晶成長に適している。

研究は安藤裕一郎(代表者)および仕幸英治(分担者)・大阪大学大学院基礎工学研究科・特任准教授(現・大阪市立大学大学院工学研究科・准教授)で分担する。安藤が主に強磁性体ヘテロ構造の結晶成長技術の確立

を担当し、仕幸がスピン波の検出技術の確立を担当する。それぞれの研究内容について下記に記す。

(1) 強磁性ホイスラー合金の単結晶成長技術:

Si(111)、Ge(111)基板上に強磁性ホイスラー合金(Fe_3Si 、 Co_2FeSi)を結晶成長する技術を確立する。これらの材料のダンピング定数は比較的小さいことを確認しており、スピン波の長距離輸送が期待できる。結晶成長温度、速度、組成等をパラメータとして単結晶成長可能な条件の探索を行う。結晶性の評価には反射高速電子線回折(RHEED)、X線回折(XRD)を用いる。ここで基板の面方位に(111)を選択した理由は、ダイヤモンド構造を有する Si、Ge 基板と BCC 構造を有するホイスラー合金との原子マッチングが良好であり、他の面方位と比較して遥かに良質な単結晶が得られるためである。また、強磁性体薄膜の積層成長も行う。上記の強磁性体薄膜(Fe_3Si 、 Co_2FeSi)成長に続き、組成変調(Fe 、 Co 、 Mn 等置換)をした強磁性体を in-situ で成長し、強磁性体積層膜を作製する。結晶性の評価には RHEED、XRD を用い、強磁性体ヘテロ接合の界面急峻性を評価するために断面透過型電子顕微鏡を用いる。

最終的には面直方向にプリズム形状を有する強磁性異種接合を形成する。その為に(100)基板の傾斜面である(111)面(傾斜(111)面と記載)を用いて強磁性薄膜の単結晶成長を行う。傾斜(111)面の形成には Si、Ge(100)基板を用いる。Si、Ge(100)は水酸化テトラメチルアンモニウム(TMAH)というエッチャントを用いてエッチングを行うと、(111)方向のみエッチング速度が遅く、傾斜(111)面を形成することが出来る。本研究はこの傾斜面にホイスラー合金を単結晶成長させる。

(2) スピン波生成・輸送技術:

シグナルジェネレータまたはネットワークアナライザを用いて金属細線に交流電流を印加し、発生した誘導磁界によりスピン波を生成する。スピン波の検出には2つの手法を用いる。1つ目は検出する強磁性体に金属細線を配置し、磁化の振動に起因する誘導電流を検出する手法である。もう一つは磁化の振動により非磁性体中に生成されるスピンを逆スピンホール効果により検出する手法である。磁化の振動に伴い強磁性体中に角運動量の変化が生じる為、隣接している非磁性体に余剰の角運動量を伝導電子のスピンの形で排出する(スピンポンピング効果)。生成したスピスが非磁性体中を輸送する際、スピンの向きと運動方向の外積方向に曲げられるという現象があり(逆スピンホール効果)、これにより生成したスピン流の多寡を電気信号として評価することが可能となる。積層強磁性体薄膜を用いて強磁性体ヘテ

口界面におけるスピン波の伝導現象について解明する。Si, Ge 基板の裏面にミリングにより穴をあけ, Au 細線を配置する。強磁性体との距離は数 10 ミクロン離れていても十分にスピン波を励起することが可能であると予想されるため, 裏面の Au 細線は高度な技術は必要としない。スピン波の輸送状況を詳細に評価する為, 試料上部には複数の検出電極を配置する。得られた信号をもとにヘテロ接合におけるスピン波の輸送について評価し, 理論との比較を行う。また強磁性体 A, B に用いるホイスラー合金の組成をシステムティックに変調し, スピン波の分布がどのように変調されるかを検討する。さらに面直方向スピン波プリズムを用いてスピン波の分波の実証を行う。スピン波検出電極を上下に 2 つ配置する。個々の電極に到達したスピン波を定量評価することにより, スピン波の輸送軌道の評価する。生成するスピン波の波長を変調し, 2 つの検出電極に検出される信号がどのように変調されるかを検討する。更に組成変調によりプリズムの磁気特性をシステムティックに変調し, スピン波の軌道がどのように変調されるかについても検討する。

4. 研究成果

得られた研究成果を以下に示す。

(1) レーザー-MBE 法を用いて Fe_3Si 薄膜を堆積したところ, 薄膜の中に数マイクロメートルのドロップレットが形成され, 単結晶成長することが困難だった。これは主にレーザー強度が強い時に起こる現象である為, パワー調整機構としてアッテネーターの取り付けを行った。その結果, 堆積レートのコントロールが可能となり, ドロップレットの密度の低減も可能となった。Si(111)上に形成した多結晶 Fe_3Si 膜について, 強磁性共鳴を用いてダンピング定数を評価したところ, ≈ 0.005 と比較的小さい値が得られた。その後, 単結晶成長の条件を探索しているが, 現在までに最適条件は確立できなかった。

(2) スピン波の生成実験についてはネットワークアナライザおよびシグナルジェネレータを用いて高周波磁界を発生させ, スピン波および強磁性共鳴を発生させた。これらを Au 細線を用いて, スペクトラムアナライザーで検出したところ, 誘導電流に起因する電圧信号を検出することに成功した。従って, スピン波の生成・検出技術は概ね確立されたとと言える。

(3) ホイスラー合金の成長技術の確立が当初の予定よりも時間がかかっていたため, スピン波輸送の材料として, フェリ磁性体イットリウム鉄ガーネット (YIG) を用いた実験に展開した。YIG はホイスラー合金よりも 1 桁ないし 2 桁程度ダンピングが小さく, スピン波の更なる長距離輸送が期待できる。そこ

で本研究では多結晶 YIG 膜を作製することにした。本研究では MOD (metal organic decomposition) 法を用いて, ガドリニウムガリウムガーネット (GGG) 基板上的 YIG 膜の作製を試みた。先ず始めに MOD による YIG 膜の作製条件の探索を行う為, GGG 基板上的 YIG 膜の作製を試みた, アセトン洗浄を行った GGG 基板に MOD 液をスピコートで塗布し, 乾燥アニール 150 3 分, プレアニール 450 5 分, アニール 850 60 分で行った。すべての処理は大気中で行った。X 線回折および透過型電子顕微鏡より GGG 上の YIG は単結晶成長していることが明らかとなった。また, 明瞭な FMR 信号および室温フェリ磁性を実現していることを確認している。

(4) YIG を用いた場合にもダンピングは小さいことが望ましい。そこで(3)で作製した YIG 膜におけるダンピングの支配因子の解明を行った。まず, GGG 基板上に作製した単結晶 YIG 薄膜に Pt 薄膜を形成した試料を用い, スピンポンピング実験を行った。まず, Pt/YIG における温度依存性を測定した処, 温度の低下と共にスピンポンピングに起因する逆スピンホール効果信号が減少することが明らかとなった (図 1)。このような挙動は一般的な強磁性体で ($\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ など) では確認されておらず, YIG 固有の特性であると言える。また強磁性共鳴信号を詳細に解析した処, 逆スピンホール効果信号の減少はダンピングの増大に起因することが判明した。そこで強磁性共鳴線幅の温度依存性を 2 種類のマイクロ波 (9.1 および 34GHz) を用いて評価した。通常の強磁性体における強磁性共鳴線幅は Q バンド > X バンドとなる。しかし, 本研究では低温において X バンド > Q バンドと逆転することが明らかとなった。このような逆転現象を YIG 中に不純物起因の局在磁気モーメントが存在し, YIG の磁化と相互作用をするモデルで上手く説明できることを示した。即ち, ダンピングのは不純物などの局在磁気モーメントの制御が重要であり, 局在磁気モーメントを持つ可能性のある不純物濃度は抑制し, 少なくとも試料間での不純物濃度を一定にしておく必要があることが判明した。ま

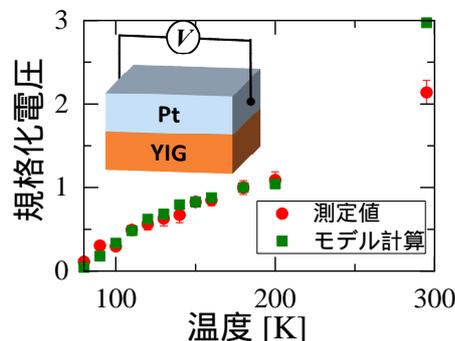


図1 Pt/YIG構造における逆スピンホール効果に起因する起電力の温度依存性。

た局在モーメントの影響の多寡は X バンドおよび Q バンドを用いた強磁性共鳴線幅の温度依存性から評価可能であることが判明した。

(5) YIG を用いた試料において試料間の精密比較のために、更に詳しい検討を行った。これまでの実験で試料の設置個所の僅かなズレにより、マイクロ波の吸収強度が大きく異なることが判明した。マイクロ波の吸収が少ない場合にはスピンポンピング効率は低下していることが懸念される。試料間や測定間での規格化の方法を確立する必要がある。本研究では複数の Pt/YIG 基板を用いて、規格化の手法について検討した。その結果、電子スピン共鳴装置を用いた評価に置いてはマイクロ波の吸収強度の 2 乗を用いて規格化することが正しいことを示した。本規格は検出信号がダイオード検出であることを鑑みると非常に理にかなった規格化方法である。これまでは規格化されていなかったり、吸収強度の絶対値で規格化したりと不適切な処理が多く見られていたが、本研究により正しい規格化の手法を確立することができた。

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 6 件)

Y. Ando, K. Ichiba, S. Yamada, E. Shikoh, T. Shinjo, K. Hamaya, and M. Shiraishi
“Giant enhancement of spin pumping efficiency from Fe₃Si ferromagnet”
Physical Review B **88**, 140406(R), pages 1-6, (2013).
<http://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.88.140406>

Ayaka Tsukahara, Yuichiro Ando, Yuta Kitamura, Eiji Shikoh, Michael P. Delmo, Teruya Shinjo and Masashi Shiraishi
“Self-induced inverse spin Hall effect in Py at room temperature”
Physical Review B, 89, 235317 (2014).
<http://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.89.235317>

Ryo Ohshima, Hiroyuki Emoto, Teruya Shinjo, Yuichiro Ando and Masashi Shiraishi
“Temperature Evolution of Electromotive Forces from Pt on Yttrium-Iron-Garnet under Ferromagnetic Resonance”
Journal of Applied Physics, 117, 17D136 (2015).
<http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/117/17/10.1063/1.4917064>

Akiyori Yamamoto, Yuichiro Ando, Teruya Shinjo, Tetsuya Uemura, and Masashi Shiraishi
“Spin transport and spin conversion in compound

semiconductor with non-negligible spin-orbit interaction”
Physical Review B **91**, 024417 (2015).
<http://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.91.024417>

Sergey Dushenko, Yukio Higuchi, Yuichiro Ando, Teruya Shinjo, and Masashi Shiraishi
“Ferromagnetic resonance and spin pumping efficiency for inverse spin-Hall effect normalization in yttrium-iron-garnet-based systems”
Applied Physics Express **8**, 103002 (2015).
<http://iopscience.iop.org/article/10.7567/APEX.8.103002/meta>

Ei Shigematsu, Yuichiro Ando, Ryo Ohshima, Sergey Dushenko, Yukio Higuchi, Teruya Shinjo, Hans Jürgen von Bardeleben, and Masashi Shiraishi
“Significant reduction in spin pumping efficiency in a platinum/yttrium iron garnet bilayer at low temperature”
Applied Physics Express **9**, 053002 (2016).
<http://iopscience.iop.org/article/10.7567/APEX.9.053002>.

[学会発表](計 9 件)

Y. Ando, E. Shikoh, K. Hamaya and M. Shiraishi
“Generation of spin current using ferromagnetic silicide”
Asia-Pacific Conference on Green Technology with Silicides and Related Materials, Japan, Ibaraki,
(July 27-29, 2013), 29-AM-VI-5

塚原文香, 安藤裕一郎, 北村雄太, 仕幸英治, 新庄輝也, 白石誠司
“スピンポンピングにおける強磁性体の逆スピンホール効果に起因する信号”
日本物理学会 2013 秋季大会, 徳島大学, 26pKF-13

Y. Ando and M. Shiraishi
“Room temperature spin transport in condensed matters induced by spin pumping”
SPIE2014, San Diego, U.S.A., (Aug. 9-13, 2014)

安藤裕一郎, 市場昂基, 山田晋也, 仕幸英治, 浜屋宏平, 新庄輝也, 白石誠司
“単結晶 Fe₃Si 薄膜を用いた動力的スピン注入における巨大信号の検出”
日本物理学会 2013 秋季大会, 徳島大学, 2013 年 9 月 25 ~ 28 日, 26pKF-14

塚原文香, 安藤裕一郎, 北村雄太, 仕幸英治, 新庄輝也, 白石誠司
“スピンポンピングにおける強磁性体の逆スピンホール効果に起因する信号”

日本物理学会 2013 秋季大会, 徳島大学,
26pKF-13

K. Ichiba, Y. Ando, E. Shikoh, T. Shinjo, K.
Hamaya, M. Shiraishi
“Spin injection efficiency from epitaxial Fe₃Si
into Pd”
PASPS18, P21, 大阪大学, 2013 年 12 月 9, 10
日

Y. Ando, K. Ichiba, S. Yamada, T. Shinjo, K.
Hamaya, and M. Shiraishi
“Significant enhancement of spin pumping
efficiency from a high quality single crystalline
Fe₃Si film into a silicon channel”
The 22nd International Colloquium on Magnetic
Films and Surfaces, Cracow, Poland (July 12-17,
2015)

E. Shigematsu, Y. Ando, R. Ohshima, S.
Dushenko, Y. Higuchi, H. J. von Bardeleben and
M. Shiraishi,
“Suppression of spin pumping efficiency at low
temperature in Pt/YIG thin films”, 第 76 応用物
理学会秋季学術講演会, 14p-2J-16, 名古屋, 9
月 13-16 日, 2015.

E. Shigematsu, Y. Ando, R. Ohshima, S,
Dushenko, Y. Higuchi, T. Shinjo, H. J. von
Bardeleben, and M. Shiraishi,
“Temperature evolution of spin pumping
efficiency in platinum / yttrium iron garnet”,
“Nano Spin Conversion Science”
Workshop in Kansai for Young Researchers, P-17,
Osaka, April 15, 2016.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況 (計 0 件)

該当なし

取得状況 (計 0 件)

該当なし

〔その他〕

ホ ム ペ ー ジ URL :
<http://cmp.kuee.kyoto-u.ac.jp/index.html>

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

安藤 裕一郎 (Yuichiro Ando)
京都大学・大学院工学研究科・助教
研究者番号 : 50618361

(2) 研究分担者

仕幸 英治 (Eiji Shikoh)
大阪市立大学大学院工学研究科・准教授
研究者番号 : 90377440

(3) 連携研究者

該当なし