

令和 4 年 6 月 8 日現在

機関番号：24402

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K22172

研究課題名（和文）有機半導体におけるスピンの直接観測に向けた二重磁気共鳴計測手法の開発

研究課題名（英文）Development of a double magnetic resonance measurement technique for direct observation of spin currents in organic semiconductors

研究代表者

鐘本 勝一（Kanemoto, Katsuichi）

大阪市立大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：40336756

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：強磁性電極をXバンドの強磁性共鳴でスピンポンピングしてスピン流を発生させ、伝播後のスピン分極の蓄積状態を、Xバンドとは異なる共鳴周波数でアンテナから直接励起できるポンブプローブ型二重磁気共鳴スピン流観測のシステムを構築した。そのアンテナからのマイクロ波励起が実際に行えることを確認した。強磁性電極1/常磁性層/強磁性電極2の素子にて、Xバンドのマイクロ波とアンテナからのマイクロ波が干渉せず、二重共鳴実験が可能であることが確認できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年スピン分極状態の空間伝播を意味する“スピン流”に関する研究が注目されているが、その伝播を直接観測することは難しかった。この研究では、そのスピン流を発生させるマイクロ波照射システムと、スピン流の到達を検出できるマイクロ波吸収観測システムを組み合わせ、スピン流の伝達を評価できる計測系の構築に取り組み、実際に両方のマイクロ波が干渉せず、実験が行えることを確認できた。今後スピン流物性の検証に活用できる。

研究成果の概要（英文）：We have constructed a pump-probe type dual magnetic resonance spin current observation system in which a ferromagnetic electrode is spin pumped by ferromagnetic resonance in the X band to generate a spin current, and the accumulated state of spin polarization after propagation can be excited directly from an antenna at a resonance frequency different from the X band. We confirmed that microwave excitation from the antenna can actually be performed. We also confirmed that the double resonance experiment is possible without interference between the X band microwaves and the microwaves from the antenna in the device consisting of ferromagnetic electrode 1/paramagnetic layer/ferromagnetic electrode 2.

研究分野：スピン物性物理

キーワード：スピン流 磁気共鳴 二重共鳴

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年スピン分極状態の空間伝播を意味する“スピン流”に関する研究が注目されており、中でも有機半導体の場合、小さいスピン軌道相互作用によりスピン流伝播が有利と期待されているがその研究は十分に進展していない。その最大要因は効果的な評価技術が確立されていないためである。従来のスピン流計測では、スピン流伝播に伴って発生が期待される素子界面の電圧を計測するが、その場合スピン分極状態の姿は直接観測されない。

### 2. 研究の目的

この研究では、強磁性電極を強磁性共鳴でスピンポンピングしてスピン流を発生させ、伝播後のスピン分極の蓄積状態を、異なる共鳴周波数で直接観測できるポンププローブ型二重磁気共鳴スピン流観測のシステムを構築する。そのような実験系はこれまで実現例が報告されていないため、まずは実験系の設計を行い、その系が実際に信号を計測できる感度をもつかを検証する。検証により確認できた後は、実際に最適な実験系を模索し、二重共鳴計測に取り組む。ここでは、常磁性層を異種の強磁性電極層で挟んだ素子構造を用い、その中をスピン流が実際に伝搬するかを調べる。特に、一般に強磁性層に隣接した常磁性（非磁性）層にて外部電源から電流を流すと電流と垂直な方向にスピン流が発生し、スピンホール効果と呼ばれるが、その際、常磁性層にて発生したスピン流が強磁性層に流入し、その強磁性層の FMR 信号強度を変化させることが知られている（スピン流誘起磁化反転）。本研究では、その現象をヒントに、強磁性 1/常磁性/強磁性 2 の 3 層構造素子に対して、強磁性 1 層の FMR 励起でスピン流を発生させ、そのスピン流が常磁性層を通過し、強磁性 2 層に到達したことを強磁性 2 層における FMR 信号の変化から実測する FMR 二重共鳴計測が可能かの検証を行う。

### 3. 研究の方法

構築する二重共鳴型計測系は、従来からある X バンドマイクロ波キャビティを利用したマイクロ波増幅システムと、アンテナを利用したマイクロ波励起システムを組み合わせるものである。素子系としては、強磁性電極 1/常磁性層/強磁性電極 2 からなる三層構造素子をメインとする。X バンドキャビティからのマイクロ波による強磁性電極 1 に対する強磁性共鳴(FMR)を計測しながら、アンテナからのマイクロ波による励起を強磁性電極 1 に対して行い、強磁性電極 1 における FMR の応答を調べる。この場合、X バンドマイクロ波キャビティは従来からのシステムを用いることができるため、計測系構築において心臓部となるのは、アンテナ型マイクロ波励起システムの構築である。

### 4. 研究成果

(1) まず、励起用のアンテナを設計し、さらに励起に適するマイクロ波アンプなどを選定することで実験系を構築した。素子近傍での様子を図 1 に示す。X バンド側のマイクロ波による磁場とアンテナのマイクロ波による磁場が干渉しないように直交した配置としている。

(2) 強磁性電極 1/常磁性層/強磁性電極 2 として、Fe/Pt/Permalloy (Py)を用いた。マイクロ波の波長が可変で出力できるシンセサイザの出力をマイクロ波アンプとつなげ、アンテナからのマイクロ波励起用の系を構築した。その励起系が働くことを調べるために、Fe, Py それぞれに対するアンテナ励起後の起電力を調べた。この起電力は強磁性層における自己起電力に起因するもので、励起ができていれば発生する。図 2 は得られた結果である。Fe, Py は共鳴位置が異なるため、それぞれに対する励起の効果は区別できる。結果では、ともにその励起に由来する起電力が確認できている。この結果から、このアンテナ励起系が実際に完成したことがわかった。

(3) 続いて 上述の三層素子に対して、X バンドのマイクロ波励起とアンテナ励起を組み合わせを行った実験の結果を図 3 に示す。この結果では X バンドの励起による強磁性共鳴 (FMR) の測定が示されている。FMR で用いられる X バンドのマイクロ波周波数は約 9.1GHz である。680Gauss 付近にピークを持つのが Fe の FMR 信号で、1050Gauss 付近にピークを持つのが Py の FMR 信号であり、共鳴位置の違いはそれぞれの物質の性質による違いを反映している。この結果を考えると、Py の共鳴位置である 1050Gauss 付近にて Fe を励起するには  $9.1 \times 1050 / 680 = 14\text{GHz}$  付近の周波数のアンテナ励起を行えばよいことになる。そのため、その周波数近傍のマイクロ波に対してアンテナ励起を行い、その励起に伴って Py の FMR 信号が変化するかを確かめた。しかし 14GHz

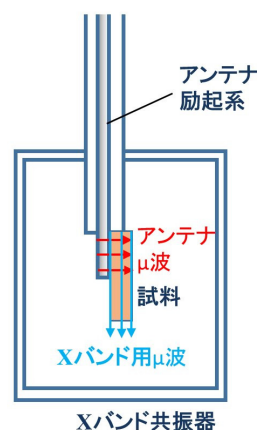


図 1 作成した X バンド励起用マイクロ波キャビティとアンテナマイクロ波励起系からなる二重共鳴システム

近傍の励起では明確な変化が観測できなかつた。ただしここでは、図3に示される通り、11GHz から 13GHz のマイクロ波を照射した場合の結果を示す。重要な点は、Fe 側の FMR 信号にはほとんど変化が見られないが、Py 側の FMR 信号では特に 12 GHz の時にスペクトルが高磁場側にシフトし信号強度がやや減少しているのがわかる。その傾向は 12 GHz の時だけが顕著でありこれは複数の測定においても再現した。

この実験において目的とするものは、Py における FMR 信号が、Fe 側の励起によって変動するかどうかであるが、その意味は、Fe を励起した際に、その励起に伴ってスピンの流が発生し、そのスピンの流が Pt 側を伝播した後に Py 側まで到達すると、Py 側の FMR 信号が変化すると期待されるためである。なお実際には、到達スピンの流の磁化が逆向きの場合、その磁化が到達することにより Py の磁化が減少し、その場合には FMR における Kittel の式に従い、信号が高磁場側に移動ことになる。図3の結果では、Fe 側では変化が観測されなかつたため、x バンドのマイクロ波自体は変化がなかつたとみなすことができる。その意味では Py 側の変化は 12GHz のアンテナマイクロ波を照射したことによる影響だと断定できる。また特に、Py 側には、高磁場側にピークが移動したと同時に信号もわずかに減少しており、スピンの流が到達したことによる変化を観測していると期待できる結果である。しかし 14 GHz

にて変化が観測されなかつた原因が現時点では不明である。またこの実験を、FMR 測定における磁場掃引時間を変えて測定したところ、FMR 信号の変化量が掃引時間が遅いほど増加することがわかつた。アンテナ励起を行った際の効果としては、その応答は励起後速やかに起こると期待している。その意味では、応答が遅いという結果は、アンテナ励起を行った際に温度上昇が起これ、その寄与が信号に重なっていることが推定される。

以上を考えると、明確な二重共鳴応答が観測されたとは言えない結果と結論した。原因としては、今回は常磁性層に、これまでスピンのホール効果の観測例が報告されている Pt を利用したが、明確な応答が観測できなかつたのは、Pt 層でのスピンの流伝搬距離が短く、スピンの流が強磁性層 2 まで伝搬されなかつたためだと考えている。装置の故障なども多く、計測に十分な時間がとれなかつたが、今後の方針としては、スピンの流伝搬距離が長い金属系の試料を用いるか、当初の目的である有機物質をスピンの流伝搬層と用いる計画である。

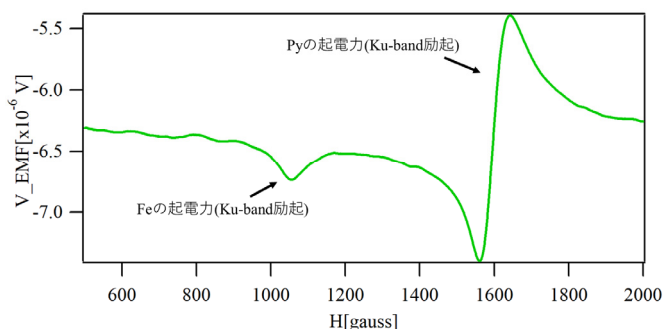


図2 アンテナマイクロ波励起 (Ku-band: 13.8GHz) での Fe/Pt/Permalloy における起電力測定の結果

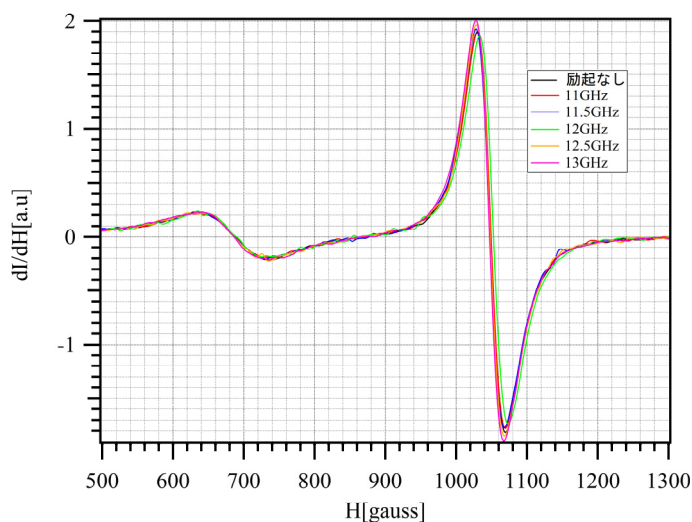


図3 Fe/Pt/Permalloy に対する X バンドの FMR スペクトルにおけるアンテナマイクロ波励起の効果。アンテナ励起がない場合及び 11-13GHz のアンテナマイクロ波照射の結果。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kenta Nakahashi, Kohei Takaishi, Takayuki Suzuki, and Katsuichi Kanemoto	4. 巻 14
2. 論文標題 Power-Dependent Characteristics of Spin Current Transfer in Metal Bilayer Devices under High-Power Pulse Excitation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 21217-21223
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaami.2c03418	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kenta Nakahashi, Kohei Takaishi, Takayuki Suzuki, Katsuichi Kanemoto	4. 巻 3
2. 論文標題 Quantifying Power Flow Processes Mediated by Spin Currents	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Electronic Materials	6. 最初と最後の頁 1663-1670
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsaem.0c01138	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kousuke Iwamoto, Yuto Hayakawa, Shuto Hatanaka, Takayuki Suzuki, and Katsuichi Kanemoto	4. 巻 123
2. 論文標題 Electron-Hole Pairs Generated in the Crystalline Phase of Polymer Diodes Studied by Electrically Detected Magnetic Resonance Techniques	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 26116-26123
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.9b07796.	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 鐘本 勝一, 鈴木 貴之	4. 巻 1
2. 論文標題 有機半導体素子に対するEDMRおよびODMR	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 応用物理学会誌	6. 最初と最後の頁 25-29
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11470/oubutsu.89.1_25	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 高石晃平, 鐘本勝一, 鈴木貴之
2. 発表標題 磁気共鳴による強磁性金属/有機導体界面相互作用の検証
3. 学会等名 日本物理学会・2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Katsuichi Kanemoto, Kohei Takaishi, Takayuki Suzuki
2. 発表標題 Quantifying Power Flow Processes Mediated by Spin Currents in Metal Bilayer Devices
3. 学会等名 ISMAR APNMR NMRSJ SEST 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高石晃平, 鐘本勝一, 鈴木貴之
2. 発表標題 強磁性金属/有機導体界面におけるスピン伝達
3. 学会等名 電子スピンサイエンス学会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 鐘本勝一
2. 発表標題 有機半導体素子における磁場効果と磁気キャパシタンス
3. 学会等名 日本磁気学会第224回研究会 磁気キャパシタンス効果の新展開 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Katsuichi Kanemoto, Kousuke Iwamoto, Shuto Hatanaka, Takayuki Suzuki
2. 発表標題 Origin of Electrically-Detected Magnetic Resonance Signals in Organic Semiconductor Diodes
3. 学会等名 13th Japanese-Russian International Workshop on Open Shell Compounds and Molecular Spin Devices (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 中橋 健太, 鐘本 勝一, 鈴木 貴之
2. 発表標題 高強度マイクロ波パルス照射下における逆スピンホール効果
3. 学会等名 応用物理学会 2019年秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鐘本勝一, 中橋健太, 鈴木貴之
2. 発表標題 高強度マイクロ波パルス照射下における逆スピンホール効果
3. 学会等名 電子スピンサイエンス学会年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鐘本勝一, 中橋健太, 鈴木貴之
2. 発表標題 高強度 $\mu$ 波パルス照射下における逆スピンホール効果
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 スピン流デバイス測定システム及びスピン流デバイス測定方法	発明者 鐘本勝一、鈴木貴之	権利者 日本電子株式会社
産業財産権の種類、番号 特許、特願2020-142653	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	鈴木 貴之  (Suzuki Takayuki)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------