

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年5月30日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K14077

研究課題名(和文) 界面物性を利用したスピン流の透過特性制御

研究課題名(英文) Control of spin current transport by using the interface

研究代表者

近藤 浩太 (Kondou, Kouta)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・上級研究員

研究者番号：60640670

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)：酸化物と金属の界面は空間反転対称性が破れている。このような界面を用いたスピン流の変換機能の探索およびその発現機構の理解についての研究を行った。これまでに金属とビスマス酸化物の界面を用いることで高効率なスピン流変換が可能であることを示している。そこで、まずこの発現機構について、第一原理計算と実験結果を比較し、これらの界面における変換現象が、ラッシュバ効果由来であることを明らかにした。そして、界面付近の電荷分布の形状が変換効率に大きく影響する可能性を示した。また、これらの知見をもとに、白金やビスマスなどの重元素よりも軽い元素の酸化物と金属界面においても、従来以上の高効率なスピン流生成に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピン流の生成および検出は、磁気メモリなどのスピントロニクス素子を駆動するために重要な現象である。従来までは、金、白金、タンタルなどの貴金属や重元素を用いることで、その変換効率の向上がなされてきた。今回、物質界面における表面準位に着目することで、これまで注目されてこなかった材料を用いても、従来の変換効率を超えることができることを実験的に実証した。これらの研究成果は、金、白金などの貴金属を用いないスピントロニクス素子の実現に役立つことが考えられる。

研究成果の概要(英文)：Interface between oxide and metal materials has broken space inversion symmetry. We investigated the material development of efficient spin current conversion interface and understanding the expression mechanism. So far, we found the efficient spin current conversion at metal/Bismuth-oxide interfaces. At first, we compared between experimental results and first principle calculation and found that the spin conversion at the interface is caused by Rashba effect. Interestingly the amplitude of Rashba effect strongly depend on shape of electric distribution at interfaces. Based on these findings, we succeeded in efficient spin conversion even at using light-element oxide and metal interfaces.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン流生成 スピン流変換 ラッシュバ効果

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

スピン流は磁気メモリ素子などの駆動源として利用できるため、その生成効率の向上が望まれている。これまでに白金などのスピン軌道相互作用の大きな重元素におけるスピンホール効果を用いた実証実験がなされてきた。しかしその変換効率は最大で数 10%程度である。2013年に金属界面およびトポロジカル絶縁体界面におけるスピン分裂した表面準位を用いた電流-スピン変換現象(エデルシュタイン効果)のが実験的に実証された。原理的には、スピン分裂の大きな材料では、白金などの遷移金属よりも高効率なスピン流生成やスピン流の電氣的検出が可能となる。その後、光電子分光法で、スピン分裂準位があることが示されている材料界面を中心にスピン流-電流変換現象の観測が行われ、スピン流の生成において界面を用いる優位性が示されてきた。我々も同時期に、界面におけるスピン流電流変換現象の研究を始め、金属/酸化物界面におけるスピン流変換現象を発見した。

2. 研究の目的

1. の研究背景でも示したように、スピン流の生成に用いられるスピンホール効果を示す材料(遷移金属)の選択性は非常に限られている。本研究では、近年発見した非磁性金属/酸化物界面におけるスピン流変換現象の発現メカニズムの解明と、それに基づく材料選択性の拡大・高効率なスピン流生成の実現を目的とした。

3. 研究の方法

本研究では図 1 示すような強磁性層/非磁性層/酸化物の三層膜を用いた。測定試料は、フォトリソ描画装置・電子線蒸着装置・マグネトロン・スパッタリング装置を用いたリフトオフ法で作製した。試料に用いた三層膜細線は、線幅が $10\ \mu\text{m}$ 、長さ $200\ \mu\text{m}$ である。細線横に交流磁場発生用のコプレーナ・ウェーブガイド(Coplanar Waveguide: CPW)を作成した。

金属/酸化物界面におけるスピン流-電流変換の検出には、スピンプンピング法によるスピン流注入を用いた。CPW に GHz の交流電流を印加すると強磁性層に対して面直方向の交流磁場が発生する。XY 面内に磁場を印加しながら交流磁場を印加することで、強磁性共鳴を誘起することができる。これによりスピン流が、強磁性層から隣接する金属層および金属/酸化物界面へと注入される。もし、スピン流から電流への変換が誘起されれば、強磁性共鳴の磁場付近で電圧信号を検出することができる。そして検出された電圧信号からスピン流-電流変換効率を算出することが可能である。

また逆効果である電流-スピン流変換も同様の三層膜を用いる。細線幅は $10\text{-}20\ \mu\text{m}$ 、長さ $60\text{-}100\ \mu\text{m}$ である。この測定では CPW を三層膜細線の両端に接続してある。試料の大きさは、インピーダンスマッチングを考慮して設計を行った。この CPW に交流電流(GHz)と直流電流を印加する。交流電流は強磁性共鳴の励起、直流電流は直流スピン流の生成を担う。直流電流により生成したスピン流が強磁性層に注入されると、強磁性層の磁化にトルクを与え、磁気緩和(有効磁気ダンピング定数)を変調することができる。この変調量を計測することで、強磁性層に注入されたスピン流を見積り、電流-スピン流の変換効率の導出を行う。

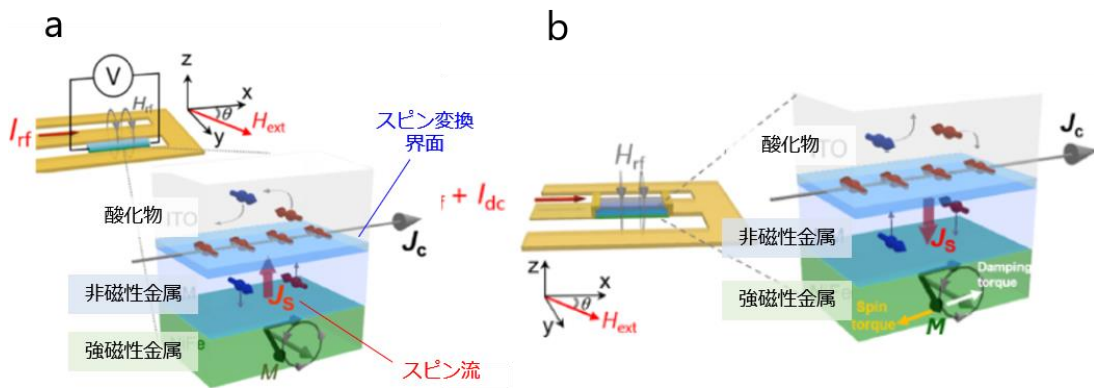


図 1 試料概念図と測定回路

a, スピンプンピング法を用いたスピン流-電流変換計測

b, 電流誘起スピン流を用いた磁気ダンピング定数の変調計測

4. 研究成果

(1) ビスマス酸化物/非磁性金属界面におけるスピンの変換機構の解明

近年、著者らは銅(Cu)とビスマス酸化物界面において白金と同程度の効率的なスピン流-電流変換が誘起されることを発見した。そこで、これらの発見メカニズムを理解するため、非磁性金属の材料を銅(Cu)から銀(Ag)、金(Au)、アルミニウム(Al)に変えることでスピン流-電流変換信号の変化について調べた。金属層のスピンの軌道相互作用が重要な場合は、Auにおいて最も大きな信号が得ることが予想される。図2にスピンポンピングによる結果を示す。検出された電圧信号は予想とは異なり、AgとCuで大きくAuでは小さくなること分かった。さらに興味深いことに単体のAgとCuでは異符号の電圧信号が観測された。この異符号に関しては、表面準位におけるスピンの方向が反転していることが推測される。

これらの実験結果を理解するため、これらの非磁性金属/酸化物界面におけるポテンシャル勾配と電荷分布の第一原理計算を行った。その結果、界面付近の電荷分布が非磁性金属の種類によって変化することが分かった。その結果、スピン流-電流変換の信号強度だけでなく、変換符号も反転することを示した。

これらの実験結果と第一原理計算の結果は、金属/酸化物界面におけるスピン変換現象は、界面を構成する元素のスピンの軌道相互作用の強さよりも、界面付近の電荷分布がより重要なパラメータであることを示しており、スピン流変換材料の探索に新たな指針になることが期待される。本成果は *Scientific reports* に掲載された。

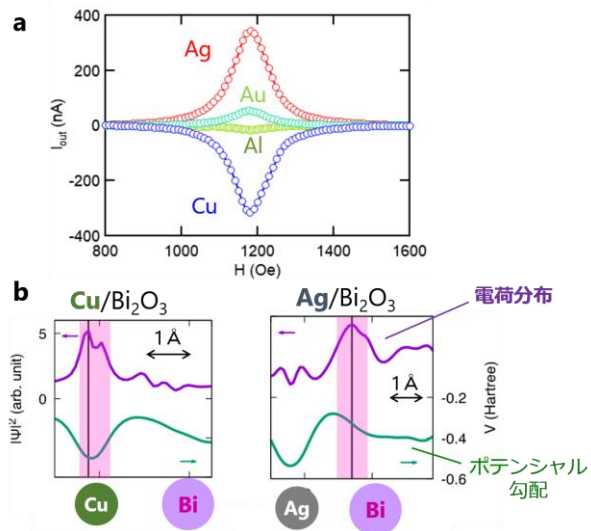


図 2 a, 非磁性金属/ビスマス酸化物界面におけるスピン流-電流変換信号の非磁性材料依存性 b 非磁性金属/ビスマス酸化物界面における電荷分布(紫ライン)とポテンシャル勾配

(2) インジウム・スズ酸化物/非磁性金属における高効率スピン流生成

(1)で得られた知見から、界面における電荷分布の変調効果に着目したスピン流変換材料の探索を試みた。(1)の研究から、界面を構成する元素のスピンの軌道相互作用が小さくても、電荷分布が類似であれば、高効率なスピン流変換の可能性があると推測される。そして、電荷分布は界面の仕事関数と相関があることが予想されるため、ビスマス酸化物と同程度の仕事関数を有するインジウム・スズ酸化物(Indium Tin Oxide: ITO)と非磁性金属界面を用いて、スピン流生成現象を測定した。

図 3a に電流印加による強磁性層の磁気ダンピング定数の変調実験の結果を示す。磁気ダンピング定数の変調量が大きい(傾きが大きい)ほど、生成されたスピン流が多いことに対応する。非磁性金属/ITO 界面を有する試料では、非磁性層がない試料に比べて明確な変調が観測された。この測定結果から、スピン流の出しやすさの指標であるスピン流伝導度(伝導度×変換効率)を算出した結果を図 3b に示す。Ag/ITO 界面におけるスピン流伝導度は、遷移金属で最大値を示す Pt よりも大きくなること分かった。これらの結果は、非磁性金属/酸化物界面を用いることで、ビスマスや白金などの重元素を用いることなく、スピン流を効率的に生成することができるということを実験的に実証した。本成果は *APL Materials* に掲載された。

さらに、最近では酸化物以外にも金属表面の電荷分布の変調が期待できる極性分子材料を用いたスピン流-電流変換にも成功した。本成果は *IEEE Trans. Magn.* に掲載された。

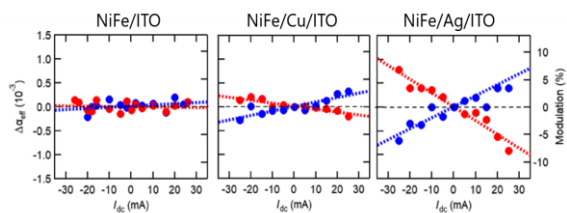


図 3 a, 非磁性金属/ビスマス酸化物界面における電流-スピン流変換に由来した磁気ダンピング定数の変調測定

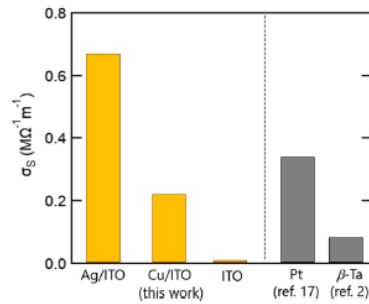


図 3 b, スピン流の生成しやすさを示すスピン流伝導度 今回示した非磁性金属/ITO 界面では白金 (Pt)よりも大きなスピン流伝導度を示す

(3) 表面弾性波を用いたスピンプンピングの観測

強磁性体は図 1 に示したように交流磁場を印加することで、強磁性共鳴を励起することができる。今回、圧電基板上に励起できる表面弾性波による格子ひずみを利用した強磁性共鳴とそれによるスピン流生成を試みた。試料は圧電基板である LiNbO_3 上に強磁性体 (Ni)/Cu/ビスマス酸化物を成膜して作成した。表面弾性波で励起された強磁性共鳴により、隣接する Cu/ビスマス酸化物界面にスピンの注入される。その結果得られた出力電圧の値から生成されたスピン流の大きさを見積もった。その結果、(1)の CPW を用いた交流磁場によるスピン流生成と同程度以上のスピン流生成が可能であること示した。この測定技術は、磁気弾性結合の強度などの計測技術としての利用も期待できる。本成果は *Phys. Rev. B* に掲載された。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 7 件)

- ① H. Tsai, S. Karube, K. Kondou, N. Yamaguchi, F. Ishii and Y. Otani.
“Clear variation of spin splitting by changing electron distribution at non-magnetic metal/ Bi_2O_3 interfaces” *Scientific Reports* 査読有 8 巻,(2018) 5564(1)-(8), DOI 10.1038/s41598-018-23787-4
- ② M. Xu, J. Puebla, F. Auvray, B. Rana, K. Kondou and Y. Otani
Inverse Edelstein effect induced by magnon-phonon coupling *Phys. Rev. B* 査読有 97 巻,(2018)180301(R) (1)-(4) DOI <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.180301>
- ③ S. Takizawa, K. Kondou, H. Isshiki, K. Shimose, T. Kawabe, S. Miwa, Y. Otani,
“Enhanced spin relaxation and spin-to-charge conversion at the surface of Cu thin film decorated with molecules” *IEEE Trans. Magn.* 査読有 54 巻 (2018). 4100304(1)-(4) DOI 10.1109/TMAG.2018.2846364
- ④ K. Kondou, H. Tsai H. Isshiki and Y. Otani
“Efficient spin current generation and suppression of magnetic damping due to fast spin ejection from nonmagnetic metal/Indium-tin-oxide interfaces” *APL Materials* 査読有 6 巻,(2018) 101105(1)-(8)

[学会発表] (計 36 件)

- ① K. Kondou, M. Kimata, H. Chen, S. Sugimoto, P. K. Muduli, M. Ikhlas, Y. Omori, T. Tomita, A. H. MacDonald, S. Nakatsuji & Y. Otani,
“Observation of magnetic spin Hall effect and magnetic inverse spin Hall effect in a chiral antiferromagnet Mn_3Sn ”,
Topological Phases and Functionality of Correlated Electron Systems(TPFC), 2019/3/19 University of Tokyo
- ② K. Kondou,
“Spin-charge conversion in metal/oxide interfaces and topological material”, One-Day Symposium on Spintronic Properties of Graphene and Related 2D Materials, 2018/11/22. 東京大学
- ③ K. Kondou, H. Tsai & Y. Otani,
“Efficient charge-spin interconversion phenomena in various nonmagnetic metal/oxide interfaces”, 5th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies (IcAUMS2018), 2018/6/7 Jeju, Korea
- ④ 近藤 浩太, H. Tsai, J. Puebla, 大谷 義近
“金属/酸化物界面を用いたスピン流生成および検出”
日本磁気学会 第 80 回ナノマグネティックス専門研究会, 東京大学, 2018 年 5 月.
- ⑤ K. Kondou

“Charge-Spin current interconversion phenomena using materials interfaces”
IGER International Symposium on Science of Molecular Assembly and Biomolecular
Systems 2017/12/8

- ⑥ K. Kondou, S. Nakatsuji and Y. Otani,
”Charge-spin conversion in topological material and interfaces”
Progress In Electromagnetic Research Symposium (PIERS) 2017/11

- ⑦ 近藤浩太
“界面におけるスピンスピン分裂を用いた電荷-スピンスピン変換”
第78回 応用物理学会秋季学術講演会 2017年9月

[図書] (計 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

○取得状況 (計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

所属研究機関名：

部局名：

職名：

研究者番号 (8桁)：

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：

ローマ字氏名：

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。