

令和 4 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K15160

研究課題名（和文）超低温スピントロニクスの開拓

研究課題名（英文）Development of low temperature spintronics

研究代表者

巻内 崇彦（Makiuchi, Takahiko）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・特任研究員

研究者番号：70869453

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究はミリケルビンの温度領域におけるスピントロニクス実験を開拓することを目的とし、磁性絶縁体の効果的冷却方法、ノイズ低減、低温マイクロ波実験の技術を構築した。発熱を抑えたロックイン測定ノウハウを蓄積し、キャント反強磁性と強い電子スピン-核スピン結合を有する磁性絶縁体の核スピンゼーベック効果の実証に成功した。同様の低温測定技術は白金ナノリングに対するアハラノフ-ボーム振動の観測にも繋がった。強磁性体のパラメトリック励起における位相状態の観測、磁化状態トモグラフィー、核・電子スピンの磁場分散の低温マイクロ波分光法など、スピントロニクスマイクロ波測定でも成果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピントロニクスは電子のスピン自由度を活用した物理原理やデバイスを創生することを目的としており、その研究領域を低温で顕著に現れる核スピン物理や量子効果に広げることは学術的にも産業的にも重要である。本研究は室温の1/1000倍の低温におけるスピントロニクス実験技術確立することを目標とした。核スピンによる熱電変換、スピントロニクスに欠かせないスピン流-電流変換物質である白金の量子干渉効果、磁性体の性質を直接調べることができるマイクロ波分光法などで成果をあげた。これらの成果は実社会に役立つスピントロニクス現象の発見や、磁性材料の性質を調べることに繋がると期待できる。

研究成果の概要（英文）：We investigated experimental methods for low temperature spintronics in millikelvin temperature ranges. We realized an effective cooling method for insulating magnetic materials, a noise reduction method, and a low temperature microwave spectroscopy. We observed the nuclear-spin Seebeck effect in a canted antiferromagnet with strong hyperfine interaction by using a lock-in technique without significant heating effect. The method was also applied to the observation of quantum interference in Pt nanorings. We also contributed to development of microwave techniques, including the phase state measurement of parametrically excited magnetization dynamics in a ferromagnet, the magnetization state tomography, and the low temperature microwave spectroscopy for spintronics materials.

研究分野：物性物理学

キーワード：低温物理学 スピントロニクス 磁気共鳴 マイクロ波 物性物理学 希釈冷凍機

### 1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスは電子のスピンを積極的に利用しようとする学問領域で、ハードディスクドライブなどの現代に欠かせない磁気デバイスや、角運動量の流れであるスピン流などの豊富な物理現象を創出してきた。研究開発当初、核スピンを利用したスピントロニクスである核スピントロニクス[Y. Shiomi et al. “Spin pumping from nuclear spin waves.” Nat. Phys. **15**, 22 (2019).]やスピントロニクスの量子効果の学術・応用両面における研究がにわかに始まりつつあった。これらの舞台となるのはおおよそ 1 K (ケルビン) から数十 mK (ミリケルビン) までの極低温である。この温度領域はヘリウム 3 - ヘリウム 4 希釈冷凍法という確立された手法で到達することが可能だが、低温における確実な冷却・発熱対策・ノイズ対策とこれまで比較的高温で行われてきたスピントロニクス実験とをつなぐ定石と言える手法はほとんど存在しなかった。

### 2. 研究の目的

本研究では冷凍機技術、低温環境の熱伝導、微小信号測定、マイクロ波測定技術の総合的な知見に基づき、低温スピントロニクス実験の温度領域を 1 K から希釈冷凍機温度、超低温まで拡張することを目的とした。これらの技術により、従来の実験温度領域では到達できなかったスピントロニクス現象を実現し、学問領域を広げる足がかりを作ることができる。特に熱から核スピンの流れを作る核スピンゼーベック効果、スピントロニクスで広く使われるスピン流-電流変換金属の低温で現れる量子干渉効果、スピンドायナミクスを制御観測するための低温マイクロ波技術を重要な実験目標と定め、研究を行った。

### 3. 研究の方法

低温実験では熱流入、発熱、熱接触に注意しなければならない。これらのバランス(定常状態)が崩れると、温度計が示す温度より試料の温度が高い状態で測定してしまうことがありうる。1 K 以上のスピントロニクス実験では、冷却効率のいいヘリウムガスフローによる冷却や、高温の高い熱伝導度が功を奏してこれらの点があまり問題にならなかった。しかし希釈冷凍機では試料を真空断熱し固体(銅をよく使う)との接触による熱伝導でのみ冷却する。また試料空間が限られていることから、ノイズ対策のためのケーブルの本数にも限度がある。冷凍機のグラウンドループにより容易にノイズが載る可能性もある。本研究ではこれらの点に配慮した実験を行った。

核スピンゼーベック効果を実証するために、核スピンの制御性が良い  $\text{MnCO}_3$  を用いた希釈冷凍機実験を行った。この物質は Mn サイトの核スピンと電子スピンの超微細相互作用により強く結合したキャント反強磁性体であり、温度によって核スピンの偏極の大きさを、磁場によって電子と核スピンの偏極方向をコントロールすることができる。電子スピンの自由度が凍結する 1 K 以下の温度において  $\text{MnCO}_3$  に温度勾配を作り有意なスピンゼーベック電圧を観測することができる。核スピンゼーベック効果を実証になる。極低温領域であえて発熱させなくてはならないため、温度勾配がつく試料の低温側は熱伝導度が大きい無酸素銅に熱接触させる試料ホルダーを作製し用いた。また限られた試料空間での低ノイズ測定のため、銅ツイストペアを超伝導マグネット中心の高さまで導入し、冷凍機との機械的固定と熱接触を向上させ、断線の危険性も低減させた。実験では冷凍機のグラウンドと測定回路のグラウンドを一致させながらノイズを低減するためのプリアンプやフィルターを用い、低周波数のロックイン測定を行った。試料としては Pt ナノワイヤを配したバルク  $\text{MnCO}_3$  結晶を用いた。

同様の希釈冷凍機のセットアップは Pt における量子干渉効果の実験でも活用した。Pt はスピン軌道相互作用が大きい常磁性金属であり、スピントロニクスではスピン流-電流変換やスピンポンピングのために広く使用されている。低温では電子波動関数のコヒーレンス長が増すため、ナノメートルスケールのメソスコピックデバイスでは量子干渉効果が期待できる。直径が数百 nm の Pt ナノリングを微細加工と成膜により作製し、磁気抵抗測定を行った。測定は数十 mK の温度で発熱が顕著でないことを確認した上で行った。

1-10 GHz 程度のマイクロ波を低温に導入することは、量子コンピュータなどの量子センシングでは通常行われている。磁性体中のスピンドાયナミクスの励起にもマイクロ波を使用するが、これをスピントロニクスの低温実験で使用するためには、マイクロ波パルス制御や高周波信号測定のノウハウが必要である。本研究ではまず室温において微細デバイス化した強磁性薄膜中のパラメトリック励起による磁性体位相ビットの実証測定と、磁化歳差の状態を測定する磁化状態トモグラフィーのマイクロ波測定を行った。さらに低温における磁性体の内部自由度を反映した磁気励起分散を直接測定できる低温マイクロ波スペクトロスコピーの手法も確立させた。この測定には 1 K まで到達できる超伝導マグネットと高周波対応セミリジッド同軸ケーブルを用い、高マイクロ波パワーの発熱の影響も調べた。

## 4. 研究成果

### (1) 核スピンゼーベック効果の実証

MnCO<sub>3</sub> に温度勾配をつけることによって生じるスピンゼーベック電圧を発熱量で規格化した量 ( $V/I_{\text{rms}}^2$ ) が電子スピンの反強磁性秩序を示す約 30 K 以下から観測され始め、100 mK の低温まで増大しつづけることが測定により明らかになった。1 K 以下のミリケルビン領域でも試料の温度が温度計の温度と同等であることは、発熱量に対する電圧の線形性を確かめることで担保した。線形領域で測定するためには、低温であればあるほど発熱を抑える必要があったため、低温のスピンゼーベック電圧はノイズレベルに迫ったが、ノイズ低減したロックイン測定により確かなデータを取得することができた。低温でも増大し続け、かつ 10 T ほどの強磁場に向かって緩やかに減少するスピンゼーベック電圧は、電子によるスピンゼーベック電圧では説明できない。MnCO<sub>3</sub> 中の核スピンとフォノン、および Pt 中の電子スピンの界面コリンハ機構を考慮した理論と磁場依存性が定量的に一致することも確認した。以上から核スピンゼーベック効果を観測したと結論づけることができた。

極低温の熱電変換現象である核スピンゼーベック効果の原理は、熱電エネルギー変換や温度センサーへの応用が期待できる。本成果は Nature Communications 誌に掲載された。[T. Kikkawa, TM, et al. "Observation of nuclear-spin Seebeck effect." Nature communications **12**, 4356 (2021).]

### (2) 白金ナノリングにおける量子干渉効果

スピン軌道相互作用が大きい Pt において、Aharonov–Bohm (AB) 振動を初めて観測することに成功した。Pt では電子のコヒーレンス長が短いのでリングの直径は 250 nm 程度に小さくし、50 mK の極低温環境下において抵抗測定を行った結果、弱逆局在と抵抗の量子振動を観測した。量子振動は Pt ナノリングの微細な欠陥による低周波数の universal conductance fluctuation と AB 振動それぞれの寄与を含み、これをフーリエ変換することで  $h/e$  の周期に現れる AB 振動によるピークを観測した。

本成果は Applied Physics Letters 誌に Editor's Pick (注目論文) として掲載された。[R. Ramos, TM, et al. "Observation of quantum interference conductance fluctuations in metal rings with strong spin-orbit coupling." Applied Physics Letters **117**, 242402 (2020).]

### (3) 磁性体ドットパラメトロン<sup>0</sup>/ $\pi$ 位相状態

面内に磁化した強磁性薄膜をパラメトリック励起 (周波数  $2f$  のマイクロ波) すると、磁化歳差 ( $1f$ ) の位相は  $0$  または  $\pi$  のどちらかを取る。我々はイットリウム鉄ガーネット/白金二層膜をディスク形状に加工した磁性体パラメトロンにおいて、AC スピンポンピングと逆スピンホール効果による約 2 GHz の AC 電圧の位相を測定するマイクロ波回路を構築し、 $0/\pi$  位相状態を観測することに成功した。 $0/\pi$  位相はパラメトリック励起後にランダムに選ばれた。高いマイクロ波パワーでは位相状態が遷移する非線形領域に至り、その遷移頻度がポアソン分布に従うこと、また外部から入れたバイアスマイクロ波によって遷移の確率を制御できることを実証した。

マイクロ波による磁化位相状態の観測と制御の知見は、低温マイクロ波実験でも重要になる。

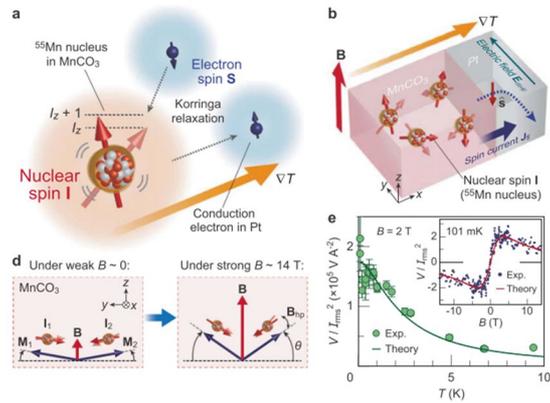


図 1. (a) 核スピンゼーベック効果の概念図。(b) 実験配置。(c) 外部磁場によるスピン偏極の制御。(d) 核スピンゼーベック効果を示す電圧。(DOI: 10.1038/s41467-021-24623-6 より抜粋)

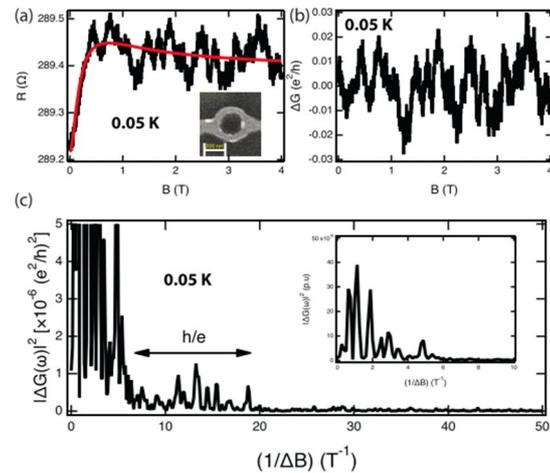


図 2. (a) Pt ナノリングの抵抗の量子振動。赤線は弱逆局在のフィッティング。(b) 弱逆局在を差し引いた伝導度。(c) フーリエ変換したコンダクタンス。  $h/e$  の矢印の範囲にあるピークは AB 振動による。(DOI: 10.1063/5.0031708 より抜粋)

本成果は Applied Physics Letters 誌に Editor's Pick (注目論文)として掲載された。[TM, et al. "Parametron on magnetic dot: Stable and stochastic operation." Applied Physics Letters **118**, 022402 (2021).]

#### (4) 磁性体ドットパラメトロンの磁化状態トモグラフィー

磁化歳差運動のゆらぎを取り入れた測定として、量子光学などでよく用いられるトモグラフィーを取り入れた。AC スピンポンピングと逆スピンホール効果による AC 電圧をダウンコンバートし、ロックインアンプでホモダイン検波することによって、歳差する磁化の横成分に対応する交流電圧のローカルオシレーター (LO) 位相依存性を取得し、磁化歳差運動の回転座標系で見たウィグナー関数を構築した。0 状態または  $\pi$  状態のウィグナー関数はコヒーレント状態と同じガウス分布となっており、0/ $\pi$  遷移状態では2つのピークがある混合状態となることが確認された。

磁化状態をゆらぎまでふくめて測定することができる本手法は、非自明な磁化状態を測定する技術として低温において重要である。本成果は Physical Review B 誌に Letter として掲載された。[T. Hioki, TM, et al. "State tomography for magnetization dynamics." Physical Review B **104**, L100419 (2021).]

#### (5) 低温マイクロ波スペクトロスコピー

反強磁性体  $\text{MnCO}_3$  は  $^{55}\text{Mn}$  の電子スピンのキャントした反強磁性秩序を示すことに加え、 $^{55}\text{Mn}$  の核スピンの超微細相互作用で電子スピンと強く結びつくため、その磁気励起は多様な内部自由度を反映した分散を描く。分散はスピン系のモデルハミルトニアンから導出することができ、実験は理論に沿った解析を行うことで磁気パラメータを決定するというのが昔のアプローチだった。本研究では低温における広帯域なマイクロ波反射測定を行うことで  $\text{MnCO}_3$  の磁場分散を直接測定することに成功した。さらに従来は1次元だった情報が周波数と磁場の2次元マップの情報になったことで、静磁モードや非線形効果も明瞭に観測することが可能となった。

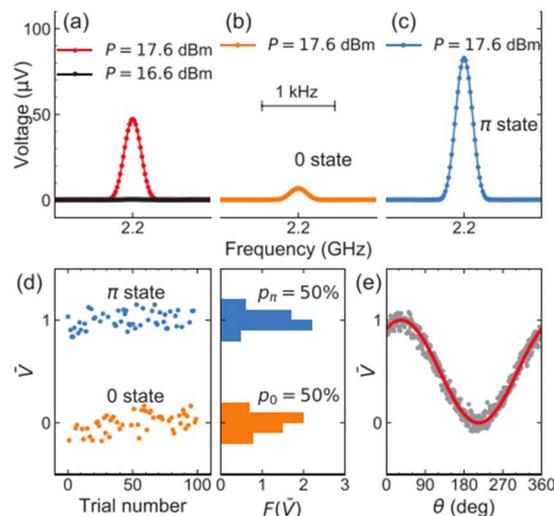


図 3. (a) 磁性ドットパラメトロンのパラメトリック励起による電圧スペクトル。(b,c) 0 状態と  $\pi$  状態に相当する電圧の観測。(d) パラメトリック励起後の 0/ $\pi$  状態実現ヒストグラム。(e) 補助マイクロ波の位相に対する電圧の変化。(DOI: 10.1063/5.0038946 より抜粋)

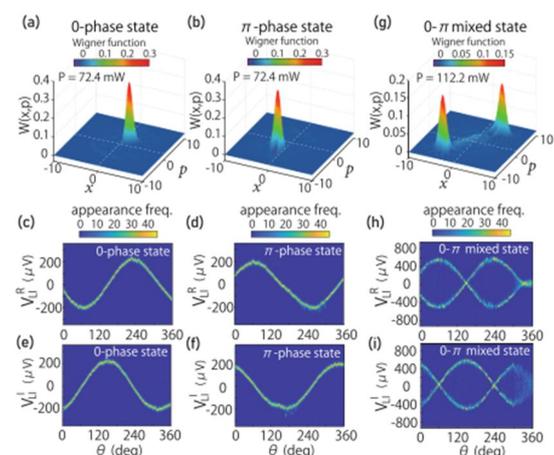


図 4. (a-c) 0 状態、 $\pi$  状態、0/ $\pi$  混合状態のウィグナー関数。(d-f) a-c のウィグナー関数に対応する周辺分布関数。 $\theta$  は LO の位相である。(DOI: 10.1103/PhysRevB.104.L100419 より抜粋)

## 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 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ramos R., Makiuchi T., Kikkawa T., Daimon S., Oyanagi K., Saitoh E.	4. 巻 117
2. 論文標題 Observation of quantum interference conductance fluctuations in metal rings with strong spin-orbit coupling	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 242402 ~ 242402
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0031708	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 Makiuchi Takahiko, Hioki Tomosato, Shimazu Yoshiki, Oikawa Yasuyuki, Yokoi Naoto, Daimon Shunsuke, Saitoh Eiji	4. 巻 118
2. 論文標題 Parametron on magnetic dot: Stable and stochastic operation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 022402 ~ 022402
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0038946	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 Kikkawa T., Reitz D., Ito H., Makiuchi T., Sugimoto T., Tsunekawa K., Daimon S., Oyanagi K., Ramos R., Takahashi S., Shiomi Y., Tserkovnyak Y., Saitoh E.	4. 巻 12
2. 論文標題 Observation of nuclear-spin Seebeck effect	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 4356
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-021-24623-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する
1. 著者名 Hioki Tomosato, Shimizu Hiroki, Makiuchi Takahiko, Saitoh Eiji	4. 巻 104
2. 論文標題 State tomography for magnetization dynamics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L100419
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.L100419	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5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 吉川貴史, D. Reitz, 伊藤宏陽, 巻内崇彦, 杉本宜陽, 恒川翔, 大門俊介, 大柳洸一, R. Ramos, 高橋三郎, 塩見雄毅, Y. Tserkovnyak, 齊藤英治
2. 発表標題 核スピンゼーベック効果の観測
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 吉川貴史, D. Reitz, 伊藤宏陽, 巻内崇彦, 杉本宜陽, 恒川翔, 大門俊介, 大柳洸一, R. Ramos, 高橋三郎, 塩見雄毅, Y. Tserkovnyak, 齊藤英治
2. 発表標題 核スピンの基づくゼーベック効果の観測
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 巻内崇彦, 日置友智, 嶋津慶紀, 追川康之, 横井直人, 大門俊介, 齊藤英治
2. 発表標題 磁性ドットパラメトロン of 定常および確率的動作
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 日置友智, 清水祐樹, 巻内崇彦, 齊藤英治
2. 発表標題 磁性ドットパラメトロンにおける磁化状態トモグラフィ法
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 巻内崇彦, 吉川貴史, シッチャヌギリツ タナポーン, 沼田淳希, 高橋三郎, 齊藤英治
2. 発表標題 キャント反強磁性体 MnCO <sub>3</sub> のマイクロ波スペクトロスコピー
3. 学会等名 第13回低温科学研究センター研究交流会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔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

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