

令和 6 年 6 月 6 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18935

研究課題名（和文）スピン流アンプの学理

研究課題名（英文）Spin current amplifier

研究代表者

林 将光（Hayashi, Masamitsu）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・准教授

研究者番号：70517854

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究ではスピン流アンプの作製を目指して、キャリアの移動度が大きく、かつ多数キャリアが電子（n型）とホール（p型）のスピン流源として、Bi₂Te₃とSb₂Te₃を作製することに成功した。スピン流の大きさは電流誘起磁気光学効果を利用して評価した。さらに、Bi₂Te₃/Sb₂Te₃ヘテロ構造（np接合）を作製し、それぞれの単層とは異なる電流誘起磁気光学効果を観測した。これは接合界面の特異な電子状態を反映している可能性がある。今後は、界面でのスピン生成、拡散、緩和をより詳細に調べ、将来的にはスピン流を増幅できるスピン流アンプの作製に繋げていきたい。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では半金属や狭ギャップ半導体を用いて、pn接合の作製した。試料は多数キャリアが電子のBi₂Te₃と、ホールのSb₂Te₃を組み合わせて作製した。Bi₂Te₃、Sb₂Te₃どちらも移動度が大きく、有意なスピン流が生成されることを確認した。Bi₂Te₃/Sb₂Te₃接合を作製した結果、接合特有のスピン流の検出に成功した。スピンが関与するpn接合の作製はこれまでほとんど行われておらず、学術的意義が大きい。今後、スピン流を増幅できるスピンアンプに展開できる可能性があり、本成果を土台に研究が大きく発展することを期待する。

研究成果の概要（英文）：We have succeeded in developing n-type and p-type spin sources with high carrier mobility. The sources are Bi₂Te₃ and Sb₂Te₃ thin films, respectively. Current induced magneto-optical Kerr effect was used to determine the efficiency of spin current generation. Moreover, a Bi₂Te₃/Sb₂Te₃ bilayer was formed to study the effect of the np interface on the spin transport properties. We find a current induced magneto-optical signal unique to the bilayer, which indicates contributions from the interface state on the spin current generation. Further studies are required to determine how the pn and np junction contributes to generation, diffusion and relaxation of spin current, which are essential to develop a spin current amplifier.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン流 半導体 接合

1. 研究開始当初の背景

スピン流は互いに逆向きのスピンを持つ電子がそれぞれ逆方向に移動する電子の流れであり、スピン角運動量を運搬する。スピン流を強磁性体に注入すると、強磁性体の磁化の向きを制御することができる。また、スピン流を利用した熱電変換素子に関する研究も盛んに行われている。これらスピン流を使った技術の開発には、大きなスピン流を生成できる物質、機構の確立が必須である。

スピン流はスピン軌道相互作用が大きい金属に電流を流すことで生成できる。この現象は「スピンホール効果」として知られている。スピン流の生成効率は物質の電子状態に大きく依存し、スピン軌道相互作用が大きい物質で大きな効果が得られる。我々は最近、特異な電子構造を有する半金属や狭ギャップ半導体で大きなスピン流生成効率が得られることを見出した[1]。これらの物質では、線形な分散関係を有する「ディラック電子」が、スピン流生成効率に大きな影響を与えることが示唆されている[2]。

スピン流は電流と比較してジュール発熱などの散逸が少ない利点があり、スピン流を使ったコンピューティング素子などの超省エネ技術に利用できるとして期待されている。一方でスピン流はスピン依存散乱などによって減衰することが知られており、その減衰長は長くても数 μm である。現状、スピン流を増幅する手段がない。

2. 研究の目的

本研究ではスピン流生成効率が大きい半金属や狭ギャップ半導体を用いて、スピン流を増幅できる「スピン流アンプ」の開発につながる基盤技術を構築する。ディラック電子を有する半金属や狭ギャップ半導体は、元素置換によってキャリアの種類（電子か正孔）を制御できることが報告されている[3]。キャリアをドーブした薄膜を用いることで、半金属や狭ギャップ半導体からなる pn 接合やバイポーラ型のヘテロ構造が作製でき、増幅器に展開できる可能性がある。そこで本研究ではヘテロ構造を形成するために必要となる n 型、p 型の半金属、狭ギャップ半導体を作製し、そのスピン輸送特性を評価する。

3. 研究の方法

本研究では n 型、p 型の半金属、狭ギャップ半導体として、 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sbx})_2\text{Te}_3$ 化合物に着目する。 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sbx})_2\text{Te}_3$ はトポロジカル絶縁体であることが報告されているが[4]、エネルギーギャップの大きさは通常の半導体より小さく、バルクの輸送特性は縮退半導体に近い。 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sbx})_2\text{Te}_3$ の表面状態は平衡スピン流が流れているとされているが、膜厚が大きくなるとバルクの寄与が大きくなるため、バルクのスピン輸送特性が重要となる本研究では膜厚の大きい領域に着目する。

試料の作製には分子線エピタキシー法を用いた。基板はサファイア c 面を用い、基板温度を適切に設定し

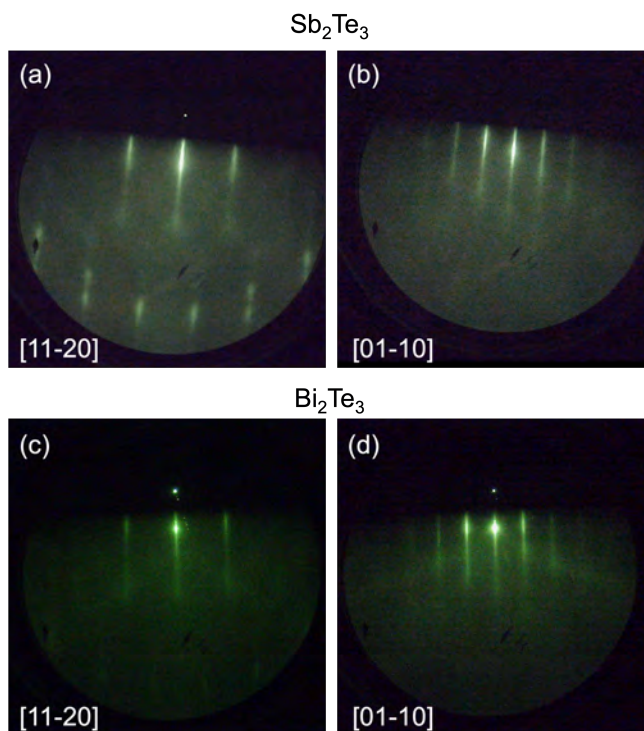


図 1. Sb_2Te_3 と Bi_2Te_3 薄膜の RHEED 像。

て $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 化合物薄膜やヘテロ構造を成膜した。Bi, Sb, Te はそれぞれ Knudsen セルから飛ばし、各材料のレートを制御して薄膜の組成を調整した。成膜中に反射型高速電子回折(RHEED)像を測定し、試料表面の結晶性と平坦性の評価に用いた。試料全体の結晶性を調べるため、作製した試料を X 線回折装置に導入して、回折スペクトルを測定した。また、X 線反射スペクトル測定を通して試料の膜厚を決定した。

試料の輸送特性を調べるため、作製した薄膜はフォトリソグラフィと Ar イオンエッチングを用いてホール素子に加工した。電極はリフトオフ法を用いて形成した。ホール素子は幅が 0.4 mm、長さが 7 mm 程度の細線をチャンネルとした。ホール素子の縦抵抗とホール抵抗の磁場依存性を調べ、キャリア密度、移動度を求めた。

スピン輸送特性は磁気光学効果を利用した方法を用いて評価した[5]。従来はスピン輸送特性を調べるのに強磁性体をはり合わせたヘテロ構造用いることが多かったが、この手法は強磁性体を必要としないため、より正確な測定ができる。

4. 研究成果

Bi_2Te_3 と Sb_2Te_3 薄膜の反射高速電子線回折 (RHEED) 像を図 1 に示す。それぞれの膜において、ストリークパターンが観測されており、表面の平坦性が高いことが示唆される。 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ においても同様のパターンが得られており、作製した試料の表面の平坦性は高い。

図 2 に $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜の X 線回折スペクトルを示す。Sb の濃度 x を変えて作製した薄膜すべてにおいて、(001)配向した膜の作製に成功しているのがみて取れる。一方、濃度 x を変えると高次のピークの強度が変化した。例えば、 $x=0\%$ (Bi_2Te_3) では(009)ピークが消失している一方、 $x=100\%$ (Sb_2Te_3) では大きな(009)ピークが観測された。これらの結果は、ピーク強度比が $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜の組成と関連していることを示唆している。そこで、(009)ピークと、全ての試料で最も大きなピーク強度を持つ(0015)ピークの強度比を図 2(b)に黒四角でプロットした。Sb 濃度が大きくなるほど、(009)/(0015)ピークの強度比が増加していることがわかる。この傾向は理論的にも再現でき、図 2(b)の青線は計算結果を示す。実験結果は理論曲線と概ね一致しており、(009)/(0015)ピーク強度比から化合物の組成が決定できることがわかった。

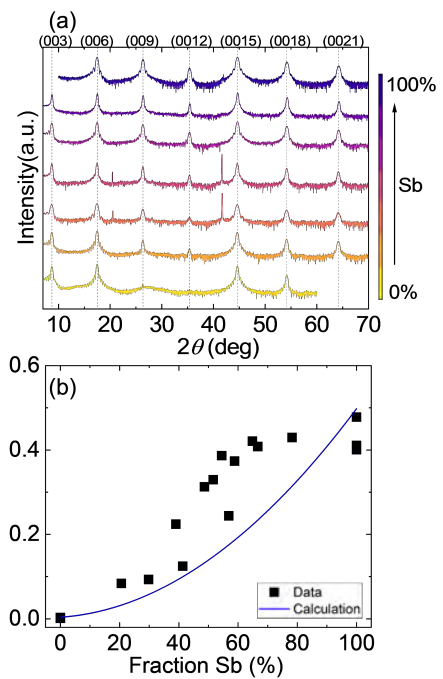


図 2. (a) $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜の X 線回折スペクトル. (b) (009)と(0015)ピークの強度比. 青線は計算値.

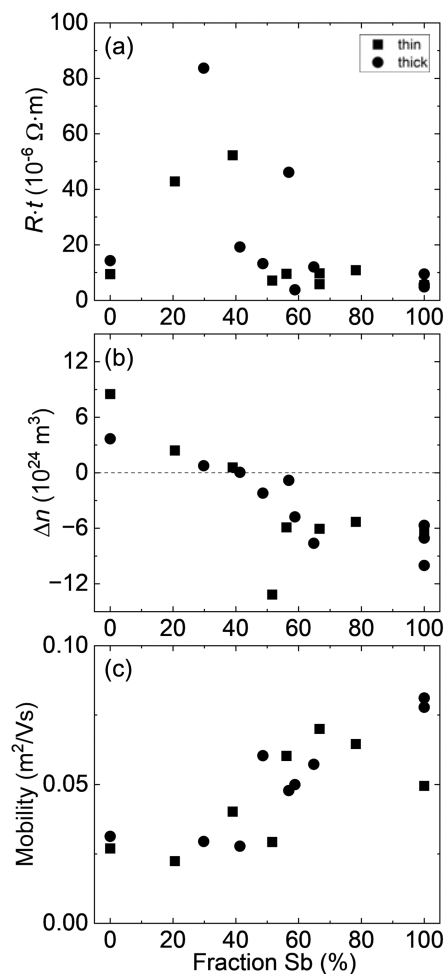


図 3. (a-c) $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜の抵抗(R)と膜厚(t)の積(a), 電子と正孔のキャリア数の差 Δn (b), 移動度(c)の Sb 濃度依存性.

次に $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜の輸送特性の結果を図 3 に示す。図 3(a)に抵抗(R)と膜厚(t)の積、図 3(b)に電子と正孔のキャリア数の差(Δn)、図 3(c)に移動度の Sb 濃度(x)依存性をプロットした。なお、 Rt は膜の抵抗率に比例する量である。 Rt の x 依存性から、抵抗率は Sb 濃度が 30-40%程度で最大となることがわかる。この結果は、電子と正孔のキャリア数の差(Δn)の x 依存性と一致する。 Δn は伝導に実質的に寄与するキャリア密度を反映しており、 Sb 濃度が 30-40%程度で最小値をとる。抵抗率が 30-40%程度で最大となるのは、 Δn が最も小さくなるからである。また、 x が 30%より小さい時は Δn が正、大きい時は Δn が負となっている。つまり、 $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜において、 Bi -rich (x が小さい) 時は多数キャリアが電子、 Sb -rich (x が大きい) 時は多数キャリアが正孔である。このようなキャリア密度の Sb 濃度依存性は他のグループからも報告されており[3]、バルク中のキャリアが伝導特性を決定していることを示唆するものであるとされている。

なお、トポロジカル絶縁体の表面状態は、 $x \sim 90\%$ 程度で Δn の符号が反転することが報告されている[6]。一方、移動度と Sb 濃度の関係は Rt や Δn のそれと異なる。移動度は x が大きくなるに従って増加する傾向にある。この原因はまだわかっていない。

最後に試料のspin輸送特性の結果について述べる。測定は磁気光学効果のうち、縦 Kerr 効果を利用した方法を用いた。図 4 に測定系の模式図を示す[5]。試料面直から 45 度傾いた方向から直線偏光のレーザーを照射する。ここでは波長が 633 nm の HeNe レーザーを用いた。試料から反射した光の偏光角と楕円率をバランスドフォトディテクターを用いて測定した。なお、試料には交流電流(周波数: 2kHz 程度)を印加し、電流と同期した反射光を、ロックインアンプを使って取り出した。

Bi_2Te_3 と Sb_2Te_3 薄膜の電流誘起縦 Kerr 効果の電流密度依存性を図 5(a)と図 5(c)に示す。赤丸が Kerr 回転角の変化、青四角が楕円率の変化を表している。変化率は 10^{-9} rad のオーダーであり、非常に小さな信号の検出に成功しているのがわかる。これまでの研究から、回転角 θ と楕円率 η の大きさは、DC スピンホール伝導度とspin拡散長、抵抗率の 2 乗と交流スピンホール伝導度のエネルギー微分に比例することが、モデル計算を用いて予想されている[5]。また、 θ と η の符号は誘電率や交流スピンホール伝導度の位相に依存するため、必ずしもスピンホール効果の符号を反映するものではない。しかしながら、 Bi_2Te_3 と Sb_2Te_3 薄膜では、楕円率 η の符号のみが明確に反転してお

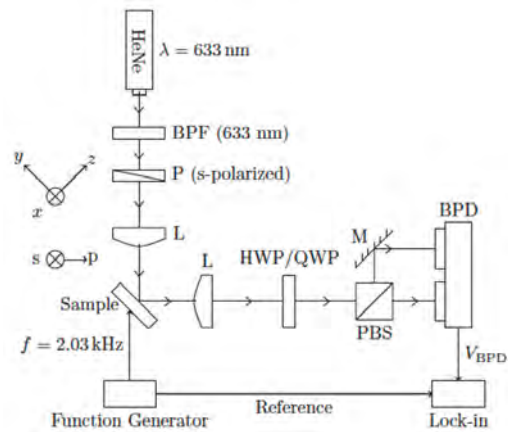


図 4. 縦 Kerr 効果を利用した電流誘起 spin 蓄積の測定系[5].

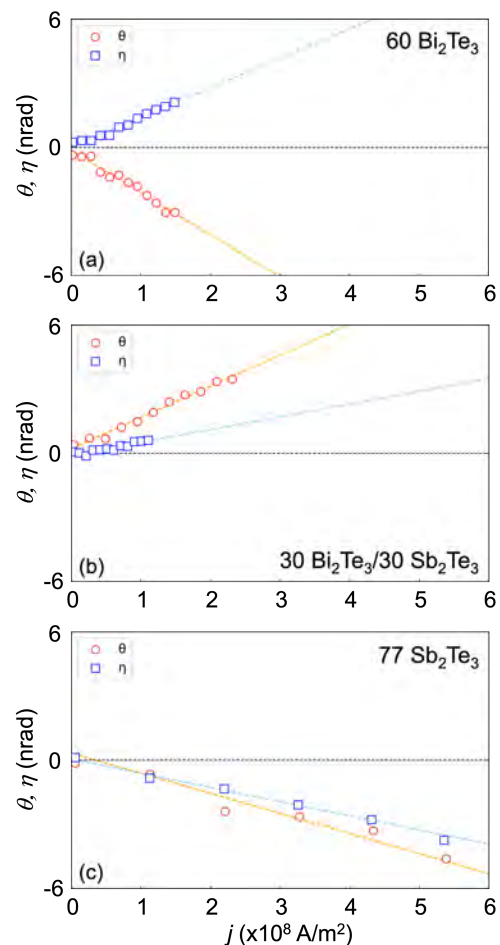


図 5. (a-c) $(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2\text{Te}_3$ 薄膜の抵抗(R)と膜厚(t)の積 (a), 電子と正孔のキャリア数の差 Δn (b), 移動度(c)の Sb 濃度依存性.

り、スピホール効果の影響を表している可能性が高い。 θ と η の大きさは Bi_2Te_3 と Sb_2Te_3 薄膜でほぼ同じオーダーであることが見て取れる。

図3の結果から Bi_2Te_3 と Sb_2Te_3 薄膜は多数キャリアがそれぞれ電子と正孔であることがわかった。そこで、本研究では、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{Sb}_2\text{Te}_3$ ヘテロ構造を作製し、スピン輸送特性を評価した。ヘテロ構造の総膜厚は 60 nm であり、 Bi_2Te_3 と Sb_2Te_3 薄膜と同程度に設計してある。ヘテロ構造作製時、 Bi_2Te_3 層、 Sb_2Te_3 層それぞれで明瞭な RHEED ストリークが観測されており、平坦な膜が形成されている。図5(b)に $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{Sb}_2\text{Te}_3$ ヘテロ構造 (np 接合) において、電流誘起縦 Kerr 効果の電流密度依存性を測定した結果を示す。 θ と η の大きさは Bi_2Te_3 と Sb_2Te_3 薄膜と比較して同程度である一方、 η の符号が Sb_2Te_3 と異なっている。ヘテロ構造の最表面は Sb_2Te_3 であるため、表面状態を検出する縦 Kerr 効果では、 Sb_2Te_3 と類似の結果が予想される。しかしながら、 η の符号が異なるという結果が得られた。その理由として考えられるのは、np 接合の界面状態の寄与である。波長 633 nm における Sb_2Te_3 薄膜の光の進入長は、およそ 10-20 nm 程度あることがエリプソメータ測定からわかっている。進入長が比較的大きいため、 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{Sb}_2\text{Te}_3$ ヘテロ構造の界面近傍まで光が進入している可能性はある。

今後は、界面でのスピン生成、拡散、緩和をより詳細に調べ、将来的にはスピン流を増幅できるスピン流アンプの作製に繋げていきたい。

【参考文献】

1. Z. Chi, Y.-C. Lau, X. Xu, T. Ohkubo, K. Hono, and M. Hayashi, *Science Advances* **6**, eaay2324 (2020).
2. Y. Fuseya, M. Ogata, and H. Fukuyama, *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 093704 (2012).
3. G. Mussler, *Physica Status Solidi B-Basic Solid State Physics* **258**, 2000007 (2021).
4. J. S. Zhang, C. Z. Chang, Z. C. Zhang, J. Wen, X. Feng, K. Li, M. H. Liu, K. He, L. L. Wang, X. Chen, Q. K. Xue, X. C. Ma, and Y. Y. Wang, *Nat. Commun.* **2**, 6, 574 (2011).
5. Y. Marui, M. Kawaguchi, S. Sumi, H. Awano, K. Nakamura, and M. Hayashi, *Phys. Rev. B* **108**, 144436 (2023).
6. K. N. Okada, N. Ogawa, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **93**, 4, 081403 (2016).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Masamitsu Hayashi
2. 発表標題 Spin and orbital currents in Dirac semimetals and topological insulators
3. 学会等名 8th International Conference on Superconductivity and Magnetism (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 宮崎稜大, 河口真志, 林将光
2. 発表標題 キャリアドープしたディラック半金属における円偏光誘起電流
3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Wang, Y. Marui, M. Kawaguchi, M. Hayashi
2. 発表標題 Current-induced magneto-optical Kerr effect in topological insulator thin films
3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Mao, S. Wang, M. Kawaguchi, M. Hayashi
2. 発表標題 Current direction dependent transverse signal in topological insulator/ferromagnet heterostructures
3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Wang, Y. Marui, M. Kawaguchi, M. Hayashi
2. 発表標題 トポロジカル絶縁体薄膜における電流誘起磁気光学Kerr効果
3. 学会等名 PASPS-27
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 宮崎稜大, 河口真志, 林将光
2. 発表標題 ディラック半金属およびトポロジカル絶縁体における円偏光誘起電流
3. 学会等名 PASPS-27
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>林研究室ホームページ http://qspin.phys.s.u-tokyo.ac.jp/jp/index.html</p>
--

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
研究分担者	河口 真志 (Kawaguchi Masashi) (90792325)	東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・助教 (12601)	

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
---------	---------