

高周波スピンのコヒーレンスを用いた

スピン流制御法の開発

東京大学物性研究所

木俣 基

要旨

正味の電荷電流を伴わない純スピン流は、ジュール発熱の無い情報伝達に寄与する可能性があるため、基礎・応用の両面から注目を集めている。本研究では、これまでほとんど着目されて来なかった、高周波スピンのコヒーレンスに着目し、それを利用する事で将来のスピン流制御技術へと繋がる基盤構築を目指した。スピン流を注入する物質として有機半導体を用いた点も本研究の特色である。一連の研究の中で、これまで未解明であった有機半導体中におけるスピンの輸送・緩和メカニズムを解明し、またコヒーレンス制御の第一歩として、強磁性体の磁化と有機半導体中の電子スピンの歳差周波数が等しくなる条件を確認した。しかし、スピンのコヒーレンス制御の決定的証拠は現時点では得られていない。今後、素子構造と計測技術の改善によって、スピンのコヒーレンス制御を実現したいと考えている。

1. 背景と目的・目標

近年、電子スピンの持つスピン自由度の流れであるスピン流が、基礎・応用の観点から注目を集めている。その中でも特に、電流を伴わないスピン角運動量のみ流れである「純スピン流」は、ジュール発熱を伴わない情報伝達に有用であると考えられることから、基礎・応用の観点から注目を集めている。これまでに、純スピン流の生成・検出法に関する研究は数多く行われており、いくつかの確立した手法が報告されている。その一方で、将来重要となるスピン流制御の方法についてはあまり研究が進んでいない。本研究提案ではスピンポンピングと呼ばれる方法によって注入された純スピン流の高周波成分に着目し、そのコヒーレンスの制御を通して、スピンの伝搬距離(スピン拡散長)やスピン注入効率の制御を最終目的としている。

またスピン流を注入する対象として、有機半導体に着目している点も本研究提案の特色である。有機半導体はスピン軌道相互作用が小さいことから、長いスピン拡散長とスピン寿命が期待されるため、将来のスピンエレクトロニクス材料として注目を集める物質群である。また、軽量性や柔軟性など、従来の金属材料にはない特性を併せ持つ点も大きい。本研究では有機半導体の持つ長いスピン寿命に着目し、スピンのコヒーレンスの効果が顕著に現れるのではないかと考え研究を行った。

2. 結果及び考察

本研究ではまず、スピンポンピング法によって有機半導体へのスピン注入が可能かどうかを検証するために、図 1(a)の様な積層型素子を用いて研究を行った。本研究では、有機半導体としてドーブした導電性高分子 PEDOT:PSS を用いている。PEDOT:PSS は大きさ数十 nm のグレインが凝集して薄膜を形成しており、電気伝導はグレイン間のホッピングによって支配される。図 1 (b)の素子構造では強磁性パーマロイ ($\text{Fe}_{19}\text{Ni}_{81}$: Py) から注入され

たスピン流は PEDOT:PSS 層を透過し Pt 層に吸収され、Pt の逆スピンホール効果によって電圧信号として検出される。図 1 (c) に Py の強磁性共鳴 (Ferromagnetic resonance: FMR) 信号と、Pt において検出された電圧信号を示す。図から分かる様に、Py の FMR に伴って、Pt の電圧信号にもピーク信号が観測されている。スピンプンピングによるスピン注入では強磁性磁化の歳差運動の振幅が最も大きくなった時にスピン流も最大となるため、Pt の逆スピンホール効果による電圧信号も FMR 共鳴磁場において最大値を取る。そこで本研究では、図 1(c) に示した電圧信号を共鳴磁場に対して対称な成分と非対称な成分に分離し、対称な成分のみの大きさを逆スピンホール電圧信号として扱っている。

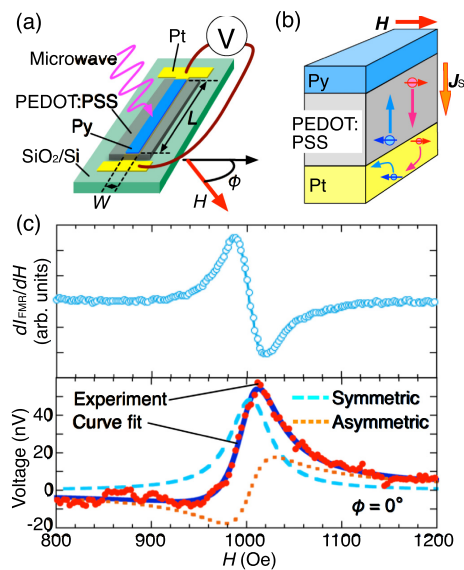


図 1

このような一連の測定を様々な PEDOT:PSS 膜厚を持つ素子に対して行い、プロットした物が図 2(a) である。逆スピンホール電圧信号は膜厚の増加に伴って減少しており、この減衰から、PEDOT:PSS 中におけるスピン拡散長を求める事ができる。図中の実線と点線は本研究におけるデバイス構造に対して、一次元スピン拡散を仮定した場合の計算結果から予想される振る舞いであり、このフィッティングからスピン拡散長が約 140 nm である事が明らかになった。また、より詳しいスピン伝導機構を調べるために、電気抵抗率測定を行ったところ、電子が一回のホッピングによって移動する距離 (ホッピング長: L_m) よりもスピン拡散長の方が 5-6 倍長く、スピンの情報がホッピングに対して保存される事が明らかになった。ホッピング伝導においては、ホッピングによってスピン情報が失われるかどうかはこれまでの議論における焦点の一つであったが、今回の結果はそれに対する一つの回答となっており国際的評価も高い。本研究によって得られた結果を基に、PEDOT:PSS 中におけるスピン流の伝導機構を示した模式図が図 2(b) である。

次に、PEDOT:PSS 中のコヒーレントなスピン流を検証する目的で、スピン注入する強磁性磁化の歳差周波数と PEDOT:PSS 中の伝導電子のスピン歳差周波数を一致させる実験を行った。この実験では図 3(a) に示す様な Py/PEDOT:PSS の二層構造を用い、磁場角

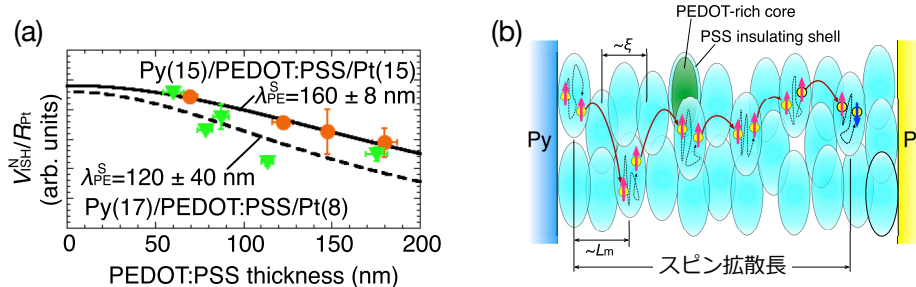


図 2

度を変化させる事によって Py 薄膜中の有効磁場を制御し、強磁性磁化の歳差周波数を変化させている。図 3(a)は Py/PEDOT:PSS 二層膜の Py の FMR および、PEDOT:PSS の EPR 共鳴磁場の角度依存性である。Py の FMR 共鳴磁場は大きな角度依存性を示すのに対して、PEDOT:PSS は常磁性体であるため、EPR 共鳴磁場はほとんど磁場角度依存性を示さない。また、 $\theta = 70$ 、 110 付近で両者の共鳴磁場が一致しており、ここで両者の歳差周波数が等しくなっていると考えられる。そこで、この付近において、PEDOT:PSS 中のスピニコヒーレンスが変化しているかどうかを詳細に調べた。スピニコヒーレンスは電子スピンの集団としての位相であり、もしスピニコヒーレンスに変化があれば、PEDOT:PSS のスピン位相緩和、すなわち ESR 線幅に変化が現れると考えられる。図 3(b)

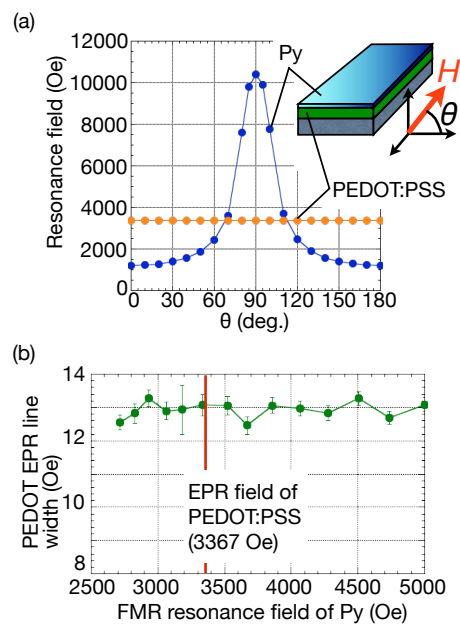


図 3

は縦軸に PEDOT:PSS の EPR 線幅、横軸にの Py の FMR 共鳴磁場をプロットした図である。PEDOT:PSS の EPR 共鳴磁場角度に依存せず 3367 Oe であるため、Py の FMR 磁場が 3376 Oe に一致した点が両者の歳差周波数が一致した点である。しかし、その付近において、EPR 線幅の明確な変化を観測する事は出来なかった。その理由として、今回の実験では PEDOT:PSS の EPR 信号強度を稼ぐためにマイクロメートル程度の厚い膜を用いている点が挙げられる。スピン注入の効果はスピン拡散長程度で減衰してしまうと考えられるため、より薄い PEDOT:PSS 膜を使用する事が有効であると考えられる。

3. まとめと課題

本研究では、有機半導体薄膜中の高周波スピン流の高周波成分に着目し、そのコヒーレンスを変化させる事によるスピン流制御を最終目標とした。一連の研究の中で、スピンポンピングを用いた導電性高分子薄膜へのスピン注入に成功し、純スピン流の伝導、および緩和メカニズムの解明に成功した。また、磁場角度を精密に変化させた実験から、強磁性磁化と有機半導体中のスピンの歳差周波数が一致する条件を確認した。今回の実験では有機半導体膜が比較的厚いため、コヒーレンスの変化を観測する事が出来なかったと考えられる。今後、有機半導体膜をスピン拡散長程度まで薄くした試料の測定を行う事で、スピン注入によるコヒーレンスの制御が観測出来ると期待される。そのためには、非常に薄い有機半導体膜からの微弱な EPR 信号を検出する必要があり、測定手法の改良が必要と考えられる。

研究成果

○論文

- [1] **M. Kimata**, D. Nozaki, Y. Niimi, H. Tajima, Y. Otani
 “Spin relaxation mechanism in a highly doped organic polymer film”
Phys. Rev. B **91**, 224422 (2015).

○学会発表等

[2] 木俣基、新見康洋、大谷義近：日本物理学会第 70 会年次大会 2015/3/21-24
21pPSA-14 “伝導電子スピン流の電子スピン共鳴”

[3] M. Kimata, Workshop on “New Perspectives in Spintronic and Mesoscopic Physics,” Kashiwa,
Japan. 2015/6/1-19

“Spin transport and relaxation mechanism in disordered organic film” [招待講演]

[4] M. Kimata, SPIE, San Diego, USA. 2015/8/9-13

“Spin injection and relaxation in a highly doped organic polymer film” [招待講演]

[5] M. Kimata, EMN Polymer Meeting, Hong Kong, China. 2016/1/12-15 (予定)

“Spin relaxation and transport mechanism in highly doped polymer film” [招待講演]