

分子/金属界面におけるスピン流・電流変換のゲート電界効果の研究

物質系専攻 47-186037 中田 真史
指導教員：大谷 義近（教授）

キーワード：分子、界面、スピン流・電流変換、Edelstein 効果、ゲート電界効果

角運動量の流れであるスピン流は、局在スピン(磁化)に効率良く回転力を与えることから、磁化反転を利用した超低消費電力不揮発性メモリなどへの応用の点で注目を集め、スピン流の生成および検出はスピントロニクス分野で重要な課題となってきた。スピン流は、物質中の電子を媒介として電流、熱流などに相互に変換されることが知られており、スピン変換現象と呼ばれている。中でも、電流・スピン流相互変換はスピン流を電氣的に直接生成・検出できるため、スピントロニクスとエレクトロニクスを橋渡しする存在であり非常に重要である。電流・スピン流変換には主として、物質のスピン軌道相互作用に起因するスピンホール効果や Edelstein 効果が用いられている。Edelstein 効果は Rashba 界面のようなスピン分裂を伴う界面に電流を流した際に非平衡スピン蓄積が生じる現象である。非平衡なスピン蓄積が生じた界面では、隣接した金属伝導層に界面と直交する方向に拡散流としてスピン流が生成される。Edelstein 効果はスピンホール効果よりも高効率に電流をスピン流に変換できることから近年研究が盛んに行われ、実際に金属/酸化物、絶縁体/絶縁体等の界面で観測されてきた[1], [2].

近年のスピントロニクスにおいて、分子は離散的なエネルギー準位や自己集積性などの特徴を持つことから新たなスピントロニクス材料として注目されている。スピン変換に関しては、分子/金属界面（鉛(II)フタロシアニン/銅：PbPc/Cu）界面におけるスピン流・電流変換が報告されている[3], [4]。図1に先行研究[3], [4]で使用された分子である PbPc の構造を示す。同界面では、PbPc 中の重い Pb 原子の大きなスピン軌道相互作用がスピン流・電流変換に対して重要な役割を果たしていると考えられている。また、図2に PbPc/Cu 界面でのスピン流・電流変換の概念図を示す。

PbPc は鉛(Pb)が平面型のフタロシアニン(Pc)の中心部に配位した有機金属分子であり、シャトルコック型の分子である。このため PbPc はフタロシアニン平面と垂直な方向に電気分極を持つことが知られている。したがって、PbPc/Cu 界面に電場をかけると PbPc が歪み、界面と Pb との距離が変化すると考えられる。また、界面での Rashba 分裂の大きさは Pb の位置に依存すると考えられるため、PbPc/Cu 界面でのスピン流・電流変換効率をゲート電場により変調できることが予想される。そこで、本研究では、電場を PbPc/Cu 界面に印加することによりスピン流・電流変換効率を変調することができるとを実験的に検証することを目的とした。

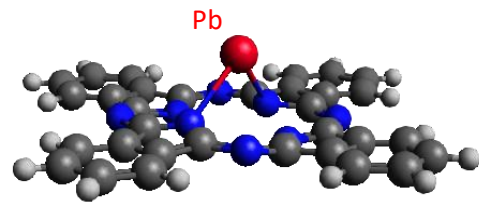


図1：鉛(II)フタロシアニン(PbPc)

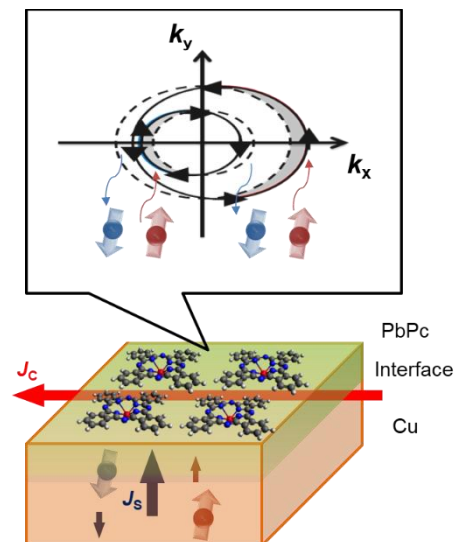


図2：PbPc/Cu 界面でのスピン流・電流変換の概念図.PbPc/Cu 界面では Rashba 効果によるスピン分裂が発生し、界面に注入されたスピン流は逆 Edelstein 効果により電流に変換される。

図 3 にスピンプンピング測定セットアップと素子の概略図を示す。PbPc/Cu 界面にゲート電場を印加するため、まず多層膜試料を作製した。その後、試料を矩形状に加工し、界面に発生する起電力を測定するため電極と接続した。さらに試料中の強磁性体の強磁性共鳴 (FMR) を誘起するため、GSG 導波管を矩形状試料近傍に設置することでスピンプンピング測定素子を作製した。次にスピンプンピング測定の概要について示す。まず導波管に交流発生器を接続し高周波電流を印加した。この高周波電流により発生した交流磁場は PbPc/Cu 界面に対して垂直となるため、外部から PbPc/Cu 界面面内方向に静磁場を印加することで $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ の FMR を誘起することができる。誘起された FMR はスピンプンピングにより Cu 層及び PbPc/Cu 界面にスピン流を注入する。PbPc/Cu 界面に注入されたスピン流はその後、逆 Edelstein 効果により電流に変換されるため矩形状試料に起電力が生じるためこの起電力を測定した。すべての測定を室温で行った。

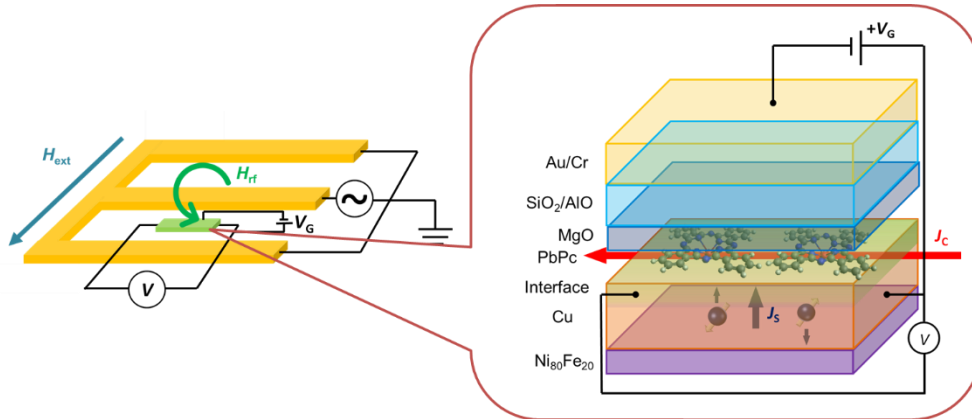


図 3：スピンプンピング測定セットアップと PbPc/Cu 界面での逆 Edelstein 効果の概念図

本研究では、まずゲート絶縁層及びゲート電極が付加された試料においても先行研究[3], [4]の結果を再現するかを確かめた。図 4 は $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{PbPc}/\text{MgO}/\text{SiO}_2/\text{Cr}/\text{Au}$ (幅 $5\ \mu\text{m}$ ・長さ $20\ \mu\text{m}$) 及び $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{PbPc}/\text{MgO}/\text{AlO}_x(8\ \text{nm})/\text{Cr}/\text{Au}$ (幅 $5\ \mu\text{m}$ ・長さ $15\ \mu\text{m}$)、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{H}_2\text{Pc}/\text{MgO}/\text{SiO}_2/\text{Cr}/\text{Au}$ (幅 $5\ \mu\text{m}$ ・長さ $15\ \mu\text{m}$) の膜構成の試料において $9.0\ \text{GHz}$ 、振幅 $20.0\ \text{dBm}$ の大きさの高周波電流を印加してスピンプンピングを行った結果である。図 4 より PbPc/Cu 界面を含む素子においてはピークを持つ信号が出ていることが確認できる。またスピンプンピングにより得られる信号は強磁性共鳴磁場 H_{res} に対して対称な成分 (V_{Sym}) と反対称な成分 (V_{Asym}) をもち、以下の式でフィッティングできることが知られている。

$$V(H) = V_{\text{Sym}} \frac{\Delta H^2}{(H - H_{\text{res}})^2 + \Delta H^2} + V_{\text{Asym}} \frac{(H - H_{\text{res}})\Delta H}{(H - H_{\text{res}})^2 + \Delta H^2} + \text{Const.}$$

本研究で用いた実験配置の場合には、逆 Edelstein 効果によるスピンプンピング信号は H_{res} に対して対称に出力される ($V_{\text{Sym}} = V_{\text{IEE}}$) ことが知られており、観測された値は先行研究で得られた値と定量的に一致することが確かめられた。

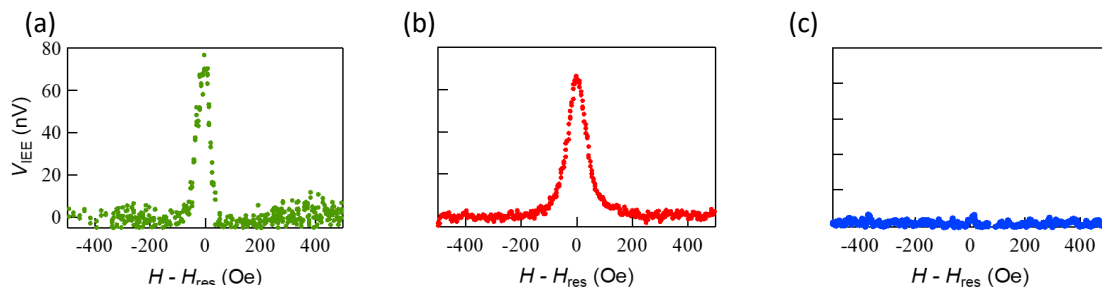


図 4：各膜構成でのスピンプンピング信号 (a) $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{PbPc}/\text{MgO}/\text{SiO}_2/\text{Cr}/\text{Au}$ (b) $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{PbPc}/\text{MgO}/\text{AlO}_x(8\ \text{nm})/\text{Cr}/\text{Au}$ (c) $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{H}_2\text{Pc}/\text{MgO}/\text{SiO}_2/\text{Cr}/\text{Au}$

次に PbPc/Cu 界面にゲート電場を印加してスピンプンピング測定を行った。試料は、 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{PbPc}/\text{MgO}/\text{AlO}_x$ (8 nm)/Cr/Au (幅 $5\ \mu\text{m}$ ・長さ $15\ \mu\text{m}$)の膜構成のものを用い、9.0 GHz、振幅 22.5 dBm の大きさの高周波電流を印加して測定を行った。図 5 にゲート電圧印加下でのスピンプンピング測定の結果を示す。図 5 中での横軸は PbPc/Cu 界面にかかる電場である。また、縦軸に示す値は、測定された V_{IEE}

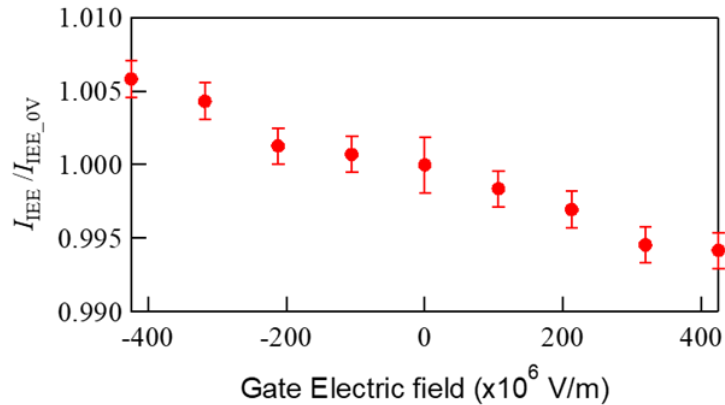


図 5 : $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{PbPc}/\text{MgO}/\text{AlO}_x$ (8 nm)/Cr/Au (幅 $5\ \mu\text{m}$ ・長さ $15\ \mu\text{m}$)の試料における逆 Edelstein 効果に起因するスピンプンピング信号のゲート電場依存性

を試料抵抗で除することで逆 Edelstein 効果による電流 I_{IEE} を求め、さらに各電場での I_{IEE} の値をゲート電圧無印加時での出力電流 I_{IEE_0V} で除することにより、ゲート電場による I_{IEE} の変化率を表したものである。図 5 より逆 Edelstein 効果によるスピンプンピング信号がゲート電場に依存することが確かめられた。Nagano らによる、Rashba 分裂の大きさを表す Rashba パラメーターの計算では、原子核近傍(0.05 nm 以内)における電場と電荷密度分布が Rashba パラメーターに寄与することが報告されている[5]。本研究の場合にはゲート電場による分子変形を通して界面電荷密度分布と Pb 間の距離が変化したと考えられる。その結果として Rashba パラメーターも変化し、ゲート電場により PbPc/Cu 界面でのスピンプン・電流変換が変調されたと考えられる。

本研究では、PbPc/Cu 界面にゲート電圧を印加することにより、スピンプン・電流変換を変調できることを実験的に示した。この変調は分子変形に伴う Pb-Cu 層間距離の変化に由来すると考えられる。分子/金属界面では分子が持つ電気双極子や柔軟性等の分子特有の性質を利用して、スピンプン・電流変換に新たな機能性を付与することができることがわかった。

- [1] K. Shutaro, K. Kouta, and O. YoshiChika, “Experimental observation of spin-to-charge current conversion at non-magnetic metal/Bi 2 O 3 interfaces,” *Appl. Phys. Express*, vol. 9, no. 3, p. 33001, 2016.
- [2] E. Lesne *et al.*, “Highly efficient and tunable spin-to-charge conversion through Rashba coupling at oxide interfaces,” *Nat. Mater.*, vol. 15, no. 12, pp. 1261–1266, 2016.
- [3] S. Takizawa *et al.*, “Spin Relaxation Enhanced by Decorating Cu Surfaces with Lead (II) Phthalocyanine Molecules,” *IEEE Trans. Magn.*, vol. 54, no. 11, pp. 1–4, 2018.
- [4] H. Isshiki *et al.*, “Realization of Spin-dependent Functionality by Covering a Metal Surface with a Single Layer of Molecules,” *Nano Lett.*, vol. 19, no. 10, pp. 7119–7123, 2019.
- [5] M. Nagano, A. Kodama, T. Shishidou, and T. Oguchi, “A first-principles study on the Rashba effect in surface systems,” *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 21, no. 6, 2009.

【論文・学会発表】

1. 中田真史 *et al.*, 「PbPc/Cu 界面における逆エデルシュタイン効果測定の銅キャッピング層厚依存性」, 第 74 回日本物理学会春季年会 (九州大学伊都キャンパス)
2. 中田真史 *et al.*, 「Inverse Edelstein effect measurement at PbPc/Cu interface as a function of Cu capping layer thickness」, 平成 30 年度 ナノスピンプン変換年次報告会 (東北大学 材料科学高等研究所)