

動力学的スピンの注入法を用いたペンタセン蒸着膜のスピンの輸送

仕幸英治、谷 泰雄、手木芳男*
(阪市大院工、*阪市大院理)

Spin transport in thermally-evaporated pentacene films by using a dynamical spin injection method

E. Shikoh, Y. Tani, Y. Teki*

(Osaka City Univ. Eng., *Osaka City Univ. Sci.)

はじめに

近年、純スピン流を用いた分子材料のスピンの輸送の研究が注目され、これまでにスピコート法で作製された高分子薄膜等においてスピンの輸送が達成されている^{1,2)}。本研究では応用展開の観点から、一般的な真空蒸着法で成膜可能な低分子量材料のスピンの輸送に注目する。ペンタセン分子(分子構造を Fig. 1. に示す)の薄膜は蒸着法による膜でも高い結晶性を有し、比較的高い導電性を有する³⁾。これまでにスピン偏極電流を用いたペンタセン薄膜のスピンの輸送が試みられたことがあるが⁴⁾、外的要因の排除が困難だった。本研究では純スピン流を生成可能で、且つ、異種材料界面でのコンダクタンスミスマッチ⁵⁾が無視できるとされるスピンポンピング(動力学的スピンの注入法)を用い、ペンタセン蒸着膜のスピンの輸送特性を室温で評価した⁶⁾。

実験方法

電子ビーム蒸着法および抵抗加熱蒸着法を用いて Fig. 1 に示す「パラジウム Pd(膜厚 10 nm)/ペンタセン(d)/Ni₈₀Fe₂₀(25 nm)」の三層構造試料を作製した。強磁性共鳴 FMR を用いたスピンポンピングにより Ni₈₀Fe₂₀ からペンタセンへ純スピン流 J_S が生成され、その J_S は Pd へと吸収される。吸収された J_S は Pd 中で逆スピンホール効果 ISHE⁷⁾により起電力 E に変換される。そのため、Ni₈₀Fe₂₀ の FMR 下において、Pd の ISHE による起電力が観測されればペンタセン薄膜のスピンの輸送達成の証拠になる。FMR の励起には電子スピン共鳴装置を、起電力の検出にはナノボルトメータを用いた。評価は全て室温で実施した。

実験結果

Fig. 2 に $d = 50$ nm 試料の(a)FMR スペクトルと(b)FMR 磁場付近における Pd からの出力電圧特性を示す。高周波の出力は 200 mW である。FMR 磁場付近において、静磁場 H に対する反転対称性を示す出力電圧特性が観測されている。また、観測された出力電圧は高周波出力に比例した。一方、比較のために Pd の代わりに、スピン軌道相互作用の小さな Cu を用いたところ、その試料からは明確な起電力が得られなかった。以上により観測された出力電圧は Pd の ISHE による起電力と結論した。すなわち、ペンタセン蒸着膜のスピンの輸送に成功、しかも室温で達成した⁶⁾。更に起電力のペンタセン膜厚依存性の評価により、ペンタセン蒸着膜のスピンの拡散長を約 42 nm と見積もった⁶⁾。学会時には以上の詳細と併せて薄膜の結晶性の影響についても議論する。

参考文献

- 1) S. Watanabe, *et al.*, Nature Phys. **10**, 308 (2014).
- 2) M. Kimata, *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 224422 (2015).
- 3) H. Cheng, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **90**, 171926 (2007).
- 4) T. Ikegami, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **92**, 153304 (2008).
- 5) G. Schmidt, *et al.*, Phys. Rev. B **67**, R4790 (2000).
- 6) Y. Tani, Y. Teki, E. Shikoh, Appl. Phys. Lett. **107**, 242406 (2015).
- 7) E. Saitoh, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **88**, 182509 (2006).

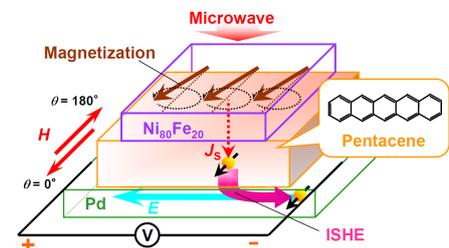


Fig. 1. Sample structure and evaluation method.

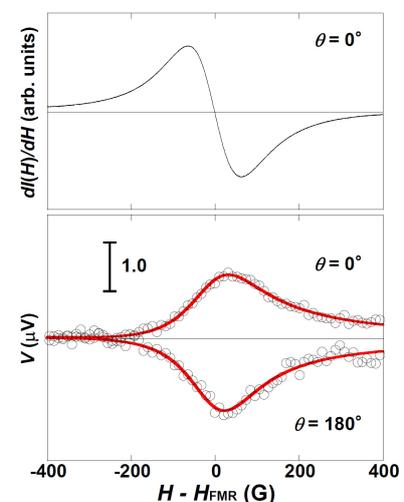


Fig. 2. (a) An FMR spectrum. (b) Output voltage property under the FMR.

CoFeAl 薄膜の熱伝導特性と高効率熱スピンの注入

野村竜也^A, 有木大晟^A, 植松銀河^A, 木村崇^{A, B}

(九大物理^A, スピン物性セ^B)

Thermal transport and efficient thermal spin injection in CoFeAl film

T. Nomura^A, T. Arika^A, G. Uematsu^A, T. Kimura^{A, B}

(^ADept. of Physics, Kyushu Univ., ^BResearch Center for Quantum Nano-spin Sciences.)

はじめに

電気の代わりに熱を利用する熱スピン注入現象(1)は、新奇な熱電素子やワイヤレス給電など、新しいスピンドバイスへの展開を期待させる興味深い現象である。我々は、CoFeAl 合金が熱スピン注入に適したバンド構造を有しているため、極めて効率的にスピン流を熱励起できることを実証した(2)。これらの実験においては、Fig.1 に示すように、熱スピン注入により発生したスピン蓄積を、スピンプルブ効果を用いて電氣的に検出することにより評価しており、検出端子の磁化と熱流の相互作用により生じるスピン流と無関係な疑似信号を完全に排除でき、信頼性の高い評価が可能になる。今回は、高い熱スピン注入効率を確実に有している CoFeAl 薄膜と Pt 薄膜で構成される二層膜に外部熱源を接続した熱電素子を試作し、その発電性能を評価した。

実験方法

試作した素子の模式図と検出された磁場依存性の信号を図 2(a)に示す。素子は、CoFeAl/Pt 二層膜の上部に SiO₂ を成膜し、電氣的に絶縁した後に、加熱用の Pt 電極を最上部に作製した。ここで、上部の Pt 電極に大電流を流すことで、ジュール熱を発生させ、CoFeAl/Pt 界面に熱流を引き起こす。これにより、CoFeAl から Pt への熱スピン注入が生じる。外部磁場を図のように印加することで、Pt 層に逆スピホール効果に起因した電圧が発生する。そのスピホール電圧のヒーター電流依存性、及び温度依存性などを調べ、熱電素子の性能を評価した。ここで、電圧端子間の抵抗は 80 Ω である。

実験結果

図 2(b)に、検出されたスピホール電圧のヒーター電流依存性を示す。図に示すように、電圧変化は、ヒーター電流の二乗に比例して変化しており、熱起因の信号であることが確認できる。ここで得られた信号は、単位長さあたりに換算すると、1 V/m であり、単位抵抗あたりに換算すると、7.5 μV/Ω である。この値は、これまでに報告されている同型の発電素子に比べて、非常に大きい値であり、素子性能の高さを示唆している。

参考文献

- 1) F. L. Bakker, J. Flipse, A. Siachter, D. Wagenaar, and b. J. van Wees. Phys. Rev. Lett. **108**, 167602 (2012)
- 2) S. Hu, H. Itoh and T. Kimura. NPG Asia Mater. **6**, e 127 (2014)

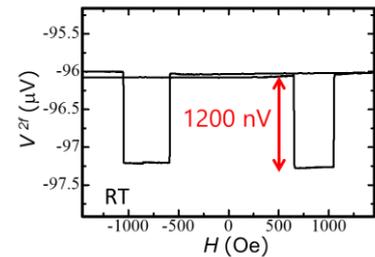


Fig.1 Thermal spin signal using a CoFeAl/Cu lateral spin valve.

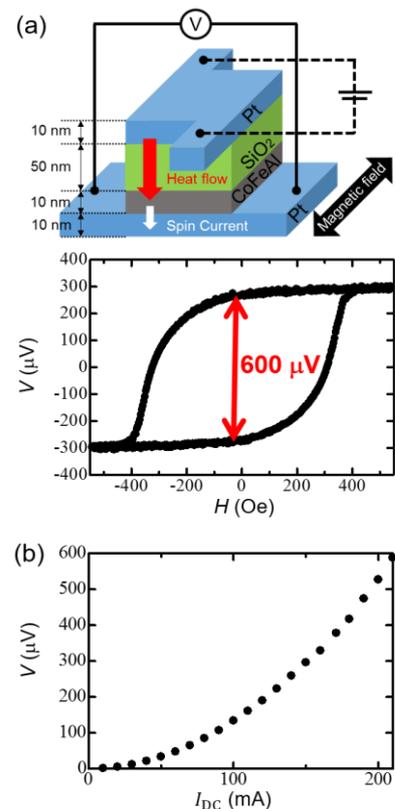


Fig.2 Schematic illustration of the fabricated sample, field dependence of the output voltage(a) and bias-dependence of the output voltages at 77 K.(b)

強磁性共鳴による熱励起スピン注入の高効率化

山野井一人^A, 横谷有紀^A, 木村崇^{A, B}
(九大物理^A, スピン物性セ^B)

Development of efficient dynamical thermal spin injection based on FMR heating

K. Yamanoi^A, Y. Yokotani^A, T. Kimura^{A, B}

(^ADept. of Physics, Kyushu Univ., ^BResearch Center for Quantum Nano-spin Sciences.)

はじめに

強磁性体/非磁性体構造の接合界面に熱勾配が存在すると、ゼーベック係数のスピン依存性から非磁性体中へ熱スピン注入(スピン依存ゼーベック効果)を介したスピン流が生成される⁽¹⁾。一方で、これまでに我々は、マイクロ波照射により強磁性共鳴(FMR)が励起された強磁性体が発熱することを確認し、さらにその温度上昇を定量的に評価することに成功している⁽²⁾。さらに、この加熱機構を熱スピン注入技術へと拡張し、逆スピンホール効果と組み合わせることで、マイクロ波エネルギーを直流電力に変換可能になることも示している。この技術は、ワイヤレス給電技術へと高度化が可能であり、共鳴周波数制御により周波数選択性を持たせた発電が可能であるため、様々な応用が期待できる。今回我々は、同技術の更なる高性能化を実現するべく、高周波化による発熱効果の増大とそれに付随した熱励起スピン流の増大、また、熱伝導率の向上による熱スピン注入効率の増大を目指して実験を行ったので報告する。

実験結果

FMRにより生じる強磁性体へのエネルギーの吸収は、照射するマイクロ波周波数に比例して増大することが知られており、高周波化に伴いFMRヒーティング効果の増大、更には動的熱スピン注入の高効率化に有効であると予測される。そこで我々は、すでに確立しているFMR発熱効果の定量的評価法を用いて、発熱量と周波数の関係を調べた。Fig 1に、FMR発熱効果による温度上昇の周波数依存性を示す。予想通り、FMR時の温度変化はマイクロ波周波数の高周波化に伴い、線形に増大した。

次に、動的熱スピン注入の高効率化を実現するため、CoFeB/Ta素子におけるスピンホール電圧のマイクロ波周波数依存性を評価した。Fig 2(a)に各周波数でのスピンホール電圧の磁場依存性を示す。FMR時に得られる電圧の変化は、マイクロ波周波数の増加と共に増大し、Fig 2(b)に示すように、その依存性は線形であった。このことは、得られたスピンホール電圧が熱スピン注入駆動のスピン流に起因していることを示しており、同様の二層膜構造において現れるスピンプンピングによるスピン流注入に比べて支配的であることを示唆している。

発表では、上述の実験結果に加えて、熱伝導率の大きな物質、素子構造を最適化した実験結果についても紹介し、動的熱スピン注入の更なる高効率化に関して議論する予定である。

参考文献

- 1) S. Hu, H. Itoh and T. Kimura. NPG Asia Mater. **6**, e 127 (2014).
- 2) K. Yamanoi, Y. Yokotani and T. Kimura. Applied Physics Letters. **107**, 182410 (2015).

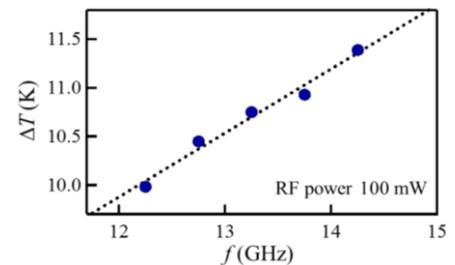


Fig. 1) Frequency dependence of FMR heating effect.

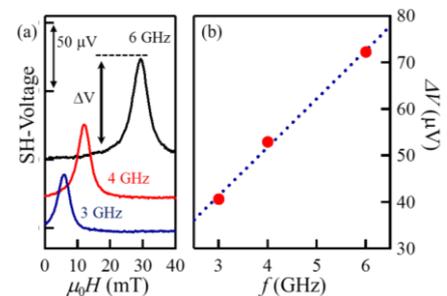


Fig. 2(a) Dynamical thermal spin injection induced by FMR heating effect in CoFeB/Ta. (b) Frequency dependence of dynamical thermal spin injection.

Co/Ni エピタキシャル多層膜における異常ネルンスト効果

鈴木英伸、水口将輝、高梨弘毅
(東北大)

Anomalous Nernst Effect in Epitaxial Co/Ni Multilayer Thin Films

H. Suzuki, M. Mizuguchi, K. Takanashi
(Tohoku Univ.)

目的

熱流からスピン流が生じるスピンゼーベック効果の発見を契機として、スピンカロリトロニクス分野が注目を集めている。我々は、熱磁気効果の一つとして知られる異常ネルンスト効果に着目して研究を行ってきた。特に、巨大な異常ネルンスト効果の発現を目指し、同効果と様々な物性との関係を調べて来た^{2,3)}。しかしながら、界面を有する多層膜などにおける異常ネルンスト効果については、ほとんど研究がなされていない。本研究では、分子線エピタキシ(MBE)を用いて作製した垂直磁気異方性を有するエピタキシャル Co/Ni 多層膜について、異常ネルンスト効果の系統的な測定を行い、特に磁気異方性との相関について調べた。

実験方法

MBEを用いて、MgO(111)基板上に Co 層および Ni 層を交互に室温でエピタキシャル成長した。積層する膜の厚さを 12 nm、Co および Ni の膜厚の比率を 1:2 と一定にした上で、Ni と Co の膜厚を変化させた試料を作製した。作製した試料に Au ワイヤをはんだ付けし、ヒーターで任意の温度勾配を試料に与えられる試料ホルダにマウントした。物理特性測定システム(PPMS)内に試料面直方向に磁場、面内方向に温度勾配がかかるように試料ホルダを配置し、磁場と温度勾配のそれぞれに対して垂直な方向に出力されるネルンスト電圧を測定した。磁場は±7T まで印加し、測定温度は 20 K~室温とした。

結果

ネルンスト電圧は常温で磁化曲線に対応したループを示し、このループは 100 K~室温までの温度範囲で確認された。図 1 に、Ni 1 層と Co 1 層の膜厚の和と横ゼーベック係数 (S_{xy}) との関係を示す。膜厚が小さい領域で、 S_{xy} が顕著に増加している傾向が見られた。図 2 に多層膜の磁気異方性と横ゼーベック係数の関係を示す。面内磁化多層膜では、磁気異方性定数 (K_u) の増加に従い、 S_{xy} が増加する一方、垂直磁化多層膜では、 S_{xy} が減少することが分かった。これらは、多層膜における界面磁気異方性が異常ネルンスト効果と強い相関があることを示唆する結果である。

本研究の一部は、科学研究費補助金・基盤(S) (25220910)および JST-CREST の支援を受けた。

参考文献

- 1) K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Nature* **455**, 07321 (2008).
- 2) M. Mizuguchi, S. Ohata, K. Hasegawa, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, *Appl. Phys. Express* **5**, 093002 (2012).
- 3) K. Hasegawa, M. Mizuguchi, Y. Sakuraba, T. Kamada, T. Kojima, T. Kubota, S. Mizukami, T. Miyazaki, and K. Takanashi, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 252405 (2015).

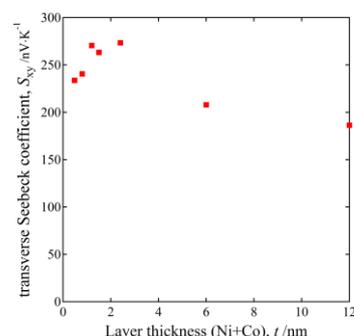


Fig. 1 The relationship between transverse Seebeck coefficient and (Ni+Co) layer thickness.

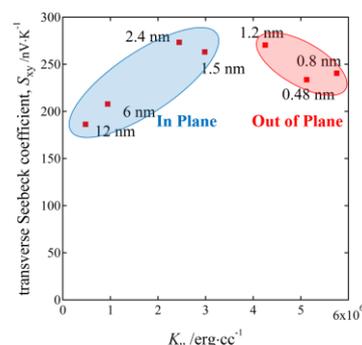


Fig. 2 The relationship between transverse Seebeck coefficient and uniaxial magnetic anisotropy constant K_u

擬単結晶 Fe₄N 薄膜における異常ネルンスト効果の結晶方位依存性

○磯上慎二, 水口将輝*, 高梨弘毅*
(福島高専, 東北大・金研)

Dependence of anomalous Nernst effect on crystal orientation in pseudo mono-crystalline Fe₄N thin films

Shinji Isogami, Masaki Mizuguchi, Koki Takanashi*
(Fukushima National College of Technology, *Tohoku Univ. IMR)

1. はじめに Fe₄N はフェルミレベルにおける状態密度の分極率が $P_{\text{DOS}} = -0.6$ であるため, いわゆるハーフメタルではないが, 伝導率のスピンの偏極率が $P_{\sigma} = -1.0$ であることから, マイノリティスピンが伝導を支配する強磁性材料として知られている¹⁾. 以上のように興味深い材料特性をスピントロニクスデバイスに有効活用する研究が盛んに行われ, 筆者はこれまでに種々の成果を報告してきた²⁻⁴⁾. その中でも Fe₄N/Pt 二層膜におけるスピンプンピング過程で検出された高いインバーススピンホール起電力³⁾に関しては, 界面磁性や界面結晶配向性の観点から解明を試みている. しかし一方で, 磁化歳差運動で自己発熱した Fe₄N 薄膜中で発生する起電力成分の重畳も考慮しなければならない⁵⁾. そこで本研究では, Fe₄N 薄膜で得られる異常ネルンスト効果⁶⁾の定量評価を目的として実験を行った. その結果, 温度勾配 (∇T) と結晶軸の方位関係によって異なる値が得られたので報告する.

2. 実験方法 試料の膜構成は, MgO(100)単結晶基板/ Fe₄N 100 nm とした. 成膜にはマグネトロンスパッタリング装置と赤外線加熱機構を用いた. X線構造解析により, Fe₄N は γ' 単相の擬単結晶膜であることを確認した. 異常ネルンスト起電力の測定は, 矩形型に切り出した試料の 3×6 mm 範囲を PPMS を用いて室温にて行った. 面直方向へ印加する最大磁場強度は 5.0 T, 掃引速度は 10 mT/s, 試料長手方向にかけた ∇T は 0.35 K/mm, 起電力端子間隔は 1.5 mm とした.

3. 実験結果 Fig. 1 は ∇T を Fe₄N 面内結晶方位 [100] および [110] に向けて室温にて測定された, 異常ネルンスト起電力 (V_{ANE}) の外部磁場 (H) 依存性を示す. ここで $\mu_0 H = 2$ T の飽和磁場は, 膜面直方向に測定された磁化曲線と一致することを別途確認している. また, Fe₄N 膜面内 [100] および [110] 方位はそれぞれ, 磁化容易軸および困難軸に対応する. V_{ANE} は [100] で 0.6 μV , [110] で 1.2 μV となり明瞭な面内異方性が得られた. 異常ネルンスト係数はそれぞれ + 0.65 $\mu\text{V}/(\text{T}\cdot\text{K})$, および + 1.3 $\mu\text{V}/(\text{T}\cdot\text{K})$ と見積られ, 符号は L1₀-FePt と同一であった^{7,8)}. このような異常ネルンスト係数の面内異方性の解釈は未だ明確ではないが, 講演会では Fe₄N 擬単結晶膜の異常ホール伝導度, スピンドYNAMIKS の観点から議論を行う予定である.

4. 謝辞 本研究は東北大学金属材料研究所, 平成 28 年度共同利用研究プログラム (課題: 16K0089) の支援を受けて行われた.

参考文献

- 1) S. Kokado, *et al.*, *Phys. Rev. B* **73**, 172410 (2006).
- 2) S. Isogami, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **3**, 103002 (2010).
- 3) S. Isogami, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **6**, 063004 (2013).
- 4) S. Isogami, *et al.*, *IEEJ. Trans.* **9(s1)**, S73 (2014).
- 5) 山野井一人ら, 第 39 回日本磁気学会学術講演会 10aE-6 (2015).
- 6) W. Nernst, *Ann. Phys.* **267**, 760 (1887).
- 7) M. Mizuguchi, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **5**, 093002 (2012).
- 8) K. Hasegawa, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 252405 (2015).

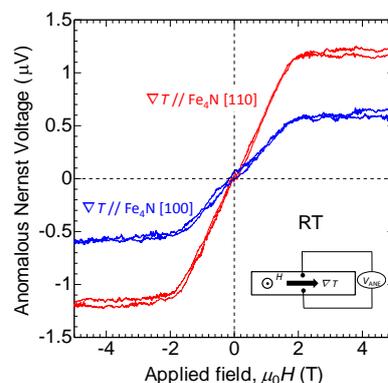


Fig. 1 Anomalous Nernst voltage measurements as a function of the applied field, where the temperature gradient points to [100] and [110] of the Fe₄N crystal.