

スピン流を用いた高効率電気通信技術の創製

Development of novel spintronic devices to realize high-efficiency electrical communication



新見 康洋(Yasuhiro Nimi, Ph. D.)

大阪大学大学院理学研究科 准教授

(Graduate School of Science, Osaka University, Associate Professor)

日本物理学会、アメリカ物理学会

受賞：第8回日本物理学会若手奨励賞(領域3)第11回ISSP 学術奨励賞(2014年) 科学技術分野の文部科学大臣表彰若手科学者賞(2015年) 第23回丸文学術賞(2020年)

研究専門分野：低温物理、メゾスコピック物理、スピントロニクス

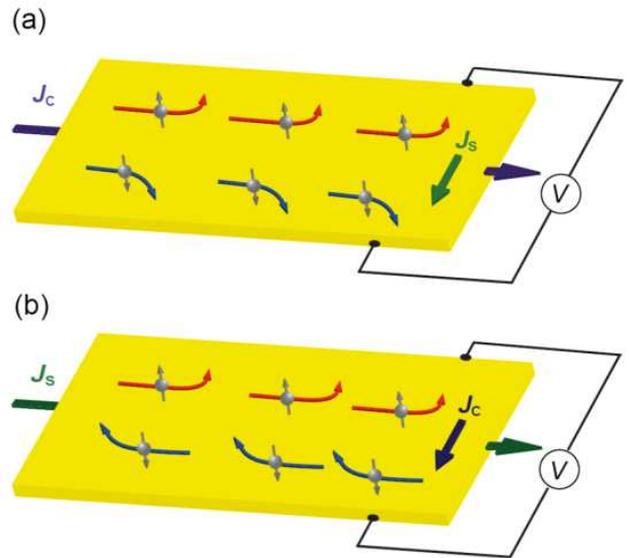
あらまし

本研究課題では、スピントロニクス研究で重要な役割を果たすスピン流を用いた、高効率スピン流電流変換現象の開拓とその応用を目指した。その舞台となるのが、原子層物質である。例えば、原子層物質の典型であるグラフェンは、スピン軌道相互作用が弱く、長距離に渡って、スピン流を伝搬でき、さらに電界による制御も可能である。一方、スピン軌道相互作用が強い物質を用いれば、高効率なスピン流電流変換が得られる。特に本研究では、スピン軌道相互作用が強い原子層物質の中でも超伝導を示す物質に着目した。スピン流を超伝導体に注入すると、準粒子流が生じる。これを用いて、変換効率の劇的な上昇を目指した。また超伝導現象は一般に低温に限られるため、デバイス応用を目指す際には、温度がより高い方が望ましい。そこで新しい原子層超伝導物質として、高温超伝導デバイスの作製を行った。さらにスピン流注入源となる強磁性体に関しても、原子層物質の開発を行った。これらの研究を進展させることで、スピン流を用いた高効率電気通信デバイスの基礎を築くことが可能となる。

1. 研究背景

スピントロニクスとは、電子の持つスピンの自由度を用いてエレクトロニクスを創出する新しい研究分野であり、今世紀に入って急進展している。その根幹を担うのが、スピン角運動量の流れ「スピン流」である。スピン流は電荷の流れを伴わないため、次世代低消費電力デバイスへの応用が期待され、さまざまな分野で研究が進んでいる。

スピン流の生成と検出を可能にするのがスピンホール効果である[1,2]。スピンホール効果とは、スピン軌道相互作用の強い非磁性体金属や半導体に電流 J_C を流すと、スピナップとスピンドアウンの電子が、 J_C とスピンの向きに直交する方向に散乱されて、スピン流 J_S を生成する現象のことである。逆に J_S を流すと J_C



に変換されるため、スピン流の電氣的検出が可能となる(図1参照)。

図1：スピンホール効果を用いた(a)電流 J_C -スピン流 J_S 変換、及び(b)スピン流 J_S -電流 J_C 変換の概念図。

これまでの研究では、このスピン流電流変換に、主に白金 Pt のスピンホール効果が用いられてきた[3]。しかし Pt は希少貴金属であること、さらに Pt での変換効率は高々数%であり、従来のエレクトロニクスデバイスを凌駕するためには、効率をさらに 10 倍以上にする必要がある。またトランジスタのような増幅の機

スピン流を用いた高効率電気通信技術の創製

Development of novel spintronic devices to realize high-efficiency electrical communication

能を付け加えることも重要な課題である。

2015年に筆者らは、超伝導体を用いて、スピンホール効果の信号を劇的に大きくすることに成功した[4]。具体的には、超伝導転移温度 $T_c = 10$ K の窒化ニオブ NbN にスピン流を注入することで、電気信号が常伝導状態に比べ 2000 倍近く増強することを見出した。しかしながら、超伝導転移は一般的に低温に限られ、実用のデバイスとして用いるためには、まだ大きな隔りがある。従って、超伝導体を用いた革新的なスピントロニクスデバイスを創製するためには、系統的な学理の構築とともに、応用への道筋をつける必要がある。

2. 研究目的

上述した研究背景に基づいて、本研究では超伝導転移する 2 次元原子層物質に着目した。2 次元原子層超伝導体を用いる利点は、電界で T_c を制御できること[5]、また劈開性のある高温超伝導体のように、元々 T_c の高い超伝導体を扱えることがある。これにより、先述の巨大スピンホール効果がもっと高温で発現し、よりデバイス応用しやすくなる。

また研究開始当初は予定されていなかったが、2017年に絶縁体の原子層強磁性体[6]が、2018年には金属の原子層強磁性体[7]が相次いで発見された。これにより、筆者が想定していた超伝導スピントロニクスデバイスを、全て原子層物質で作製することが可能となった。そこで、本研究課題では、スピン流準粒子流変換物質に原子層超伝導体、スピン輸送部分にグラフェンを、そしてスピン流発生源に原子層強磁性体を用いた原子層超伝導スピントロニクスデバイスの創製を目的とし、以下の手順で研究を遂行した。

- ① $T_c = 7.2$ K の層状超伝導体 NbSe₂ を薄膜化して、2 次元原子層超伝導体巨大スピンホール効果を観測する。
- ② $T_c = 80$ K の高温超伝導体 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} を用いた 2 次元原子層高温超伝導体デバイスを作製する。
- ③ 強磁性転移温度が室温を超える強磁性体 Fe₃GeTe₂ を用いて、2 次元原子層強磁性体デバイスを作製する。

- ④ 最終的に、これらをすべて組み合わせた原子層超伝導スピントロニクスデバイスの創製し、微小磁化のダイナミクスを、高感度で検出できるセンサを開発し、スピン流を用いた高効率電気通信技術の基礎を築く。

3. 研究方法と研究成果

本研究課題を達成するためには、(1) 薄膜超伝導を得ること、(2) 薄膜超伝導体をサブマイクロメートルスケールのスピン輸送デバイスに組み込むことが必要になる。以下にその手法を説明し、(3) 原子層 NbSe₂ 薄膜におけるスピンホール効果の測定、(4) 原子層高温超伝導体薄膜デバイスの作製、(5) 原子層強磁性体薄膜デバイスの作製の順に結果を示す。

(1) 原子層超伝導体薄膜の作製

本研究では、2004年に Novoselov ら[8]によって初めてグラフェンが作製されたのと同じ「スコッチテープ法」で超伝導薄膜を得た。層状超伝導体である NbSe₂ (もしくは Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}) 結晶を、スコッチテープを用いて剥離し、スコッチテープ同士を何度か重ね合わせる。この過程で薄い NbSe₂ 薄膜がスコッチテープ内に作られる。このスコッチテープをシリコン基板に擦りつけることで、NbSe₂ 薄膜を基板に転写できる。NbSe₂ は原子層レベルで薄い、厚みおよそ 300 nm の酸化膜 (SiO₂) をもつシリコン基板を用いれば、基板から反射する光と NbSe₂ 薄膜表面から反射する光との干渉効果を利用することで厚みを特定できる[9]。具体的には、金属顕微鏡で得られるカラー画像を、RGB (赤緑青) に分解し、基板からの反射光の Green 成分の強度と、NbSe₂ 薄膜からの反射光の Green 成分の強度とのコントラスト比を求め、さらに NbSe₂ 薄膜の厚みを原子間力顕微鏡で測定することで、色と厚みを関係付けた。ただし、NbSe₂ 薄膜は数十 nm 以下になると、大気暴露に非常に敏感であることが分かった。そこで、上述の劈開作業及び金属顕微鏡での確認は全て、アルゴンで満たされたグローブボックス内で行った。

スピン流を用いた高効率電気通信技術の創製

Development of novel spintronic devices to realize high-efficiency electrical communication

その後、得られた原子層超伝導体に電極を取り付けるため、グローブボックス内で基板にレジストを塗布して、グローブボックスから取り出し、電子線描画装置を用いて電極パターンを描画した。その後、再びグローブボックス内に基板を戻して、現像後、グローブボックスに隣接する蒸着機に移し、電極を蒸着した。アセトンでリフトオフすることにより、所望のデバイスを得ることができる。

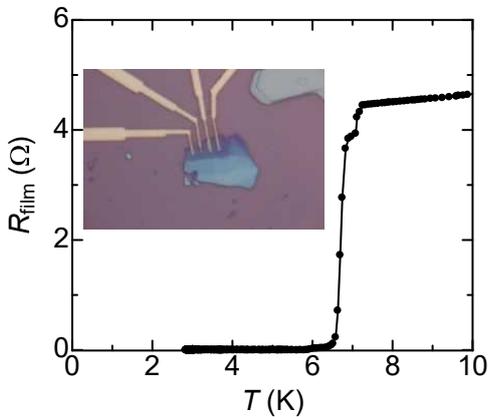


図 2 : NbSe₂ 薄膜 (6 原子層) の抵抗の温度依存性。挿入図は基板上的 NbSe₂ の顕微鏡写真。

図 2 に NbSe₂ 薄膜 (6 原子層) で得られた超伝導薄膜デバイスの温度依存性を示す。バルクの NbSe₂ 結晶の超伝導転移温度 $T_C = 7.2$ K に比べて若干 T_C は低い (~6.5 K)、明瞭な超伝導転移を観測した。高温超伝導体 Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} についても同様の結果を得ているが、詳細については、(4) で説明する。さらに NbSe₂ 薄膜については、スピン輸送素子に取り込むために、Ar ミリングを用いて、幅 300~400 nm 程度の細線に加工した。

(2) 原子層超伝導体薄膜を用いたスピン輸送の作製

原子層超伝導体薄膜を用いてスピンホール効果を測定するため、図 3(a)に示すようなスピンホール素子を作製した。強磁性体から非磁性体に電流を図 3(a)のように流すと、スピナップとスピンドアウン電子の電気化学ポテンシャルが界面で連続につながるために、図

3(b)に示すようにスピンの蓄積状態が実現する。

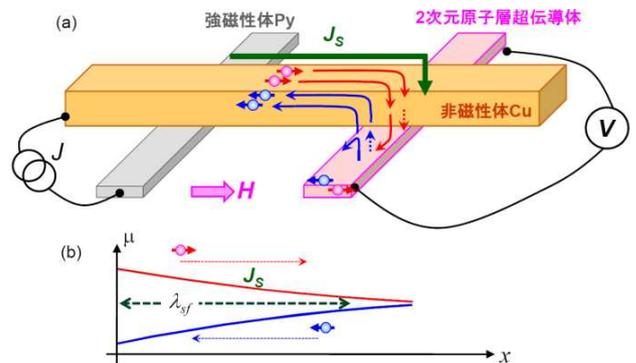


図 3 : (a) スピンホール素子の模式図。(b) 強磁性体 Py と非磁性体 Cu の界面における電気化学ポテンシャルの分布。界面付近では非磁性体にもかかわらず、スピナップとスピンドアウンの電気化学ポテンシャルに有限の差 (スピン蓄積) が生じている。スピン蓄積が緩和する過程でスピン流が流れ、その緩和長は「スピン拡散長 λ_{sf} 」と呼ばれる。

このスピン蓄積状態は、スピン拡散長 λ_{sf} と呼ばれる長さ程度で指数関数的に減衰する。スピン拡散長は物質のスピン軌道相互作用の大きさに反比例するため、スピン流を遠くまで伝搬させるためには、スピン軌道相互作用の弱い物質がよい。一方、電流とスピン流の相互変換を可能にするスピンホール効果を発現するためには、逆にスピン軌道相互作用の強い物質がよい。本研究では超伝導を発現し、スピン軌道相互作用が強い層状超伝導体である NbSe₂ を選択した。NbSe₂ のスピン軌道相互作用が強いため、スピン流は、NbSe₂ 細線に垂直方向に吸収される。その際、図 1 に示したスピン流電流変換現象を通じて、電荷蓄積が NbSe₂ 細線長手方向に生じ、電圧信号として検出される。強磁性体には Ni と Fe の合金であるパーマロイ Py (Ni₈₁Fe₁₉)、スピン流を伝搬させるスピン軌道相互作用の弱い非磁性体には Cu を選択した。Py 細線の幅は 100 nm、膜厚は 30 nm、Cu 細線の幅・膜厚ともに 100 nm とした。Py の成膜には電子線ビーム蒸着装置を、Cu の成膜には抵抗加熱蒸着装置を用い、さらに Cu の蒸着の前には、Ar ミリング装置を用いて Py 細線及び NbSe₂ 表面のクリーニングを行った。

(3) NbSe₂ 薄膜におけるスピンホール効果の測定

スピン流を用いた高効率電気通信技術の創製

Development of novel spintronic devices to realize high-efficiency electrical communication

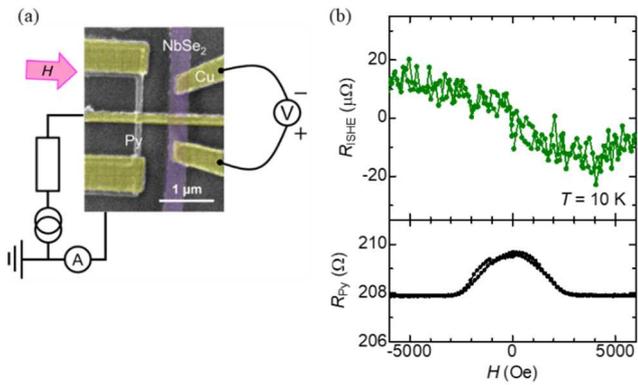


図4：(a) NbSe₂細線を組み込んだスピンホール素子。(b) $T = 10$ KにおけるNbSe₂細線の逆スピンホール効果（上図）とPy細線の異方性磁気抵抗（下図）。この図からNbSe₂のスピンホール効果の符号が負であることが分かる。

図4(a)に示すスピンホール素子を用いて、まずは超伝導転移温度以上の $T = 10$ K でスピンホール効果の測定を行った。その結果を図4(b)に示す。外部磁場 H を図4(a)の矢印の方向に印加したとき、Py細線の磁化が+2500 Oe以上で正、-2500 Oe以上で負に飽和していることが異方性磁気抵抗の結果（図4(b)下図）から分かる。その磁化状態に応じてNbSe₂細線の逆スピンホール信号が正の磁場では負、逆に負の磁場では正となっている。このことはNbSe₂のスピンホール効果の符号が、単体Nb[3]やNbN[4]と同様に負であることを表しており、スピン軌道相互作用の強いNb原子が、スピンホール効果の発現に重要な役割を果たしていることが分かった。

さらに温度を下げて、NbSe₂細線を超伝導転移させようと試みたが、 $T = 2$ Kまで超伝導転移しなかった。原因の一つとして、アルゴンミリングを用いた加工により、NbSe₂の結晶性が悪くなり、超伝導転移しなかったことが挙げられる。これを回避するためには、反応性イオンエッチングを用いた手法が有効であると考えられる。

(4) 高温超伝導体薄膜デバイスの作製

上述の研究では、超伝導状態におけるスピンホール効果は測定できなかったが、今後細線加工の問題が解決した際に、より高温で超伝導体におけるスピンホ

ール効果を実現できるように、薄膜加工可能な原子層超伝導体の種類を増やすことを目指した。そこで着目したのが、劈開性のある高温超伝導体Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} (Bi2212)である。本研究では、NbSe₂薄膜と同様の手法を用いて、Bi2212原子層超伝導デバイスの作製を行った。ただし電極材料に関しては、遷移金属ダイカルコゲナイド薄膜で広く用いられているTi/Auでは接触抵抗が高く、ゼロ抵抗状態を示すデバイスを作製することができなかった。そこで、様々な種類の電極材料を試したところ、AgとAuを50 nmずつ成膜し、さらに酸素を流しながら電気炉で350℃、30分間アニールすることにより、接触抵抗が下がることが分かった[10]。

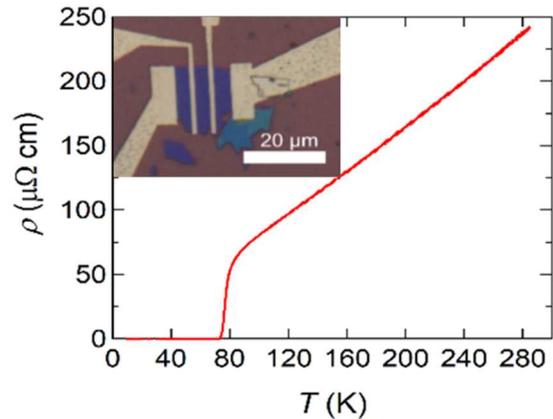


図5：高温超伝導体Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ}を用いた原子層デバイス（7原子層）の温度依存性[10]。挿入図はデバイスの光学顕微鏡像。

図5に典型的なBi2212デバイスの光学顕微鏡像と、抵抗の温度依存性を示す。本研究で使用したBi2212は酸素を過剰にドーピングしており、バルクでの T_c は80 Kである。バルクの T_c に比べると、7原子層膜でおよそ1割程度、超伝導転移温度の減少が見られたが、図5に示すように、明瞭な超伝導転移温度を観測した。さらに電流電圧曲線から臨界電流密度を求めることができる。図5のデバイスでは、およそ 2×10^{10} A/m²程度となり、バルクのBi2212とほぼ同等の臨界電流密度を得た。また、超伝導転移を示したデバイスについて、断面透過電子顕微鏡像を取得したところ、表面から1~2原子層に渡って、Agの拡散が見られ、Agの拡散が導通に寄与していることが分かった[10]。

スピン流を用いた高効率電気通信技術の創製

Development of novel spintronic devices to realize high-efficiency electrical communication

(5) 原子層強磁性体薄膜デバイスの作製

さらに本研究課題では、原子層強磁性体デバイスの作製も行った。原子層強磁性体には、室温でも強磁性を示す Fe_5GeTe_2 を用いた。

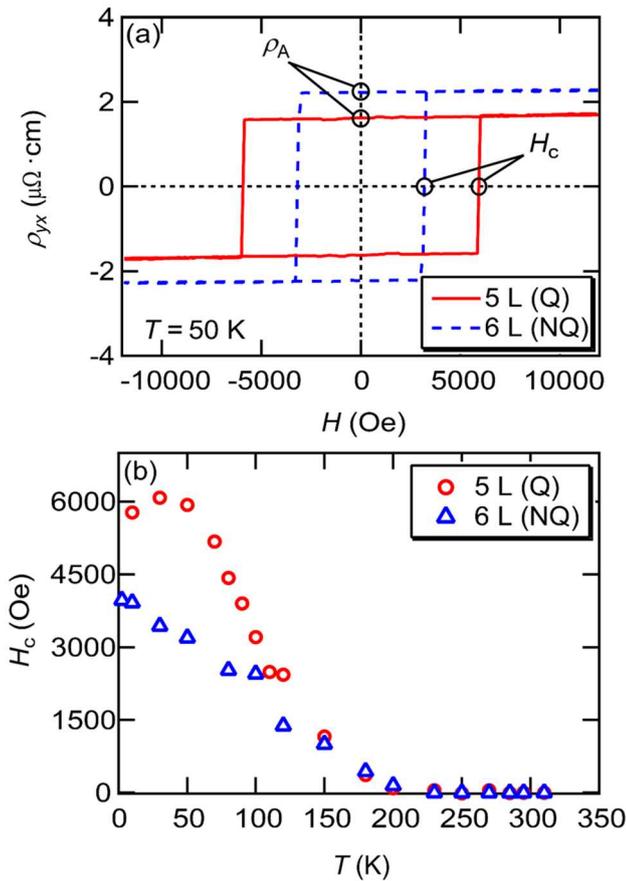


図 6 : (a) Fe_5GeTe_2 薄膜(Q/NQ)の $T = 50 \text{ K}$ での異常ホール効果と (b) 保磁力 (H_c) の温度依存性[12]。L は層数。

図 6 に、 Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスの異常ホール効果の結果を示す。結晶作製時に急冷した試料 (Q:quench) と徐冷した試料 (NQ:non-quench) で結晶構造が異なることが知られている[11]が、どちらの素子も室温付近から異常ホール効果が観測され、 200 K 以下では垂直磁気異方性を持つことを確認した。注目すべきは異常ホール効果から見積もられた保磁力 H_c で、垂直磁気異方性は薄膜ほど顕著であり、さらに Q 薄膜素子の方が NQ 薄膜素子に比べて 2 倍大きな H_c を持つことが分かった[12]。

4. 将来展望

本研究では、上述の原子層超伝導体と原子層強磁性体、さらに長距離スピン輸送を可能にするグラフェンを用いて、図 7 のようなデバイスを作製することが最終目標であったが、研究期間内に終了することができなかった。その理由の一つとして、これらの原子層物質を細線加工する際に行うエッチングに伴う試料の劣化があった。しかし、この問題は反応性イオンエッチングを行うことで解決できると考えられる。これにより、わずかな磁化ダイナミクスを、スピン流を用いて検出できる磁気センサを開発し、さらに T_c の高い高温超伝導体を用いることで、実際に電気通信に役立つ形で貢献できると考えている。

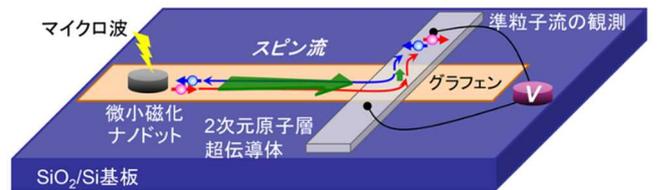


図 7 : 原子層スピンホール素子を利用した超高感度磁気センサの模式図。

おわりに

本研究課題では、2 次元原子層超伝導体とスピン流を組み合わせ、非常に大きなスピン流電流変換効率を生み出すこと、さらに超伝導転移温度の高い高温超伝導体を用いて、スピン流電流変換効率をさらに増幅させることを目指して素子作製、及びその特性評価を行った。当初の目的通り、原子層超伝導体である NbSe_2 薄膜を、スピン流素子に組み込むために、 NbSe_2 薄膜を細線にすること、さらにスピン流注入の素子を作製し、実際にスピンホール効果の測定を行い、超伝導転移温度以上ではあるものの、 NbSe_2 を用いて初めて逆スピンホール効果の測定に成功した。また超伝導転移温度が 80 K の原子層高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCuO}_{8+\delta}$ デバイス、及び原子層強磁性体 Fe_5GeTe_2 デバイスの作製も行うことができた。今後は、これらの原子層デバイスを重ね合わせた超伝導スピントロニクスデバイスを作製し、次世代電気通信技術に資する超高感度磁気

スピン流を用いた高効率電気通信技術の創製

Development of novel spintronic devices to realize high-efficiency electrical communication

センサの開発を行う予定である。

参考文献

- [1] J. Sinova *et al.*, Rev. Mod. Phys. **87**, 1213 (2015).
- [2] Y. Niimi and Y. Otani, Rep. Prog. Phys. **78**, 124501 (2015).
- [3] M. Morota *et al.*, Phys. Rev. B **83**, 174405 (2011).
- [4] T. Wakamura *et al.*, Nat. Mater. **14**, 675 (2015).
- [5] J. Shiogai *et al.*, Nat. Phys. **12**, 42 (2016).
- [6] C. Gong *et al.*, Nature **546**, 265 (2017).
- [7] Y. Deng *et al.*, Nature **563**, 94 (2018).
- [8] K. S. Novoselov *et al.*, Science **306**, 666 (2004).
- [9] P. Blakea *et al.*, Appl. Phys. Lett. **91**, 063124 (2007).
- [10] S. Suzuki *et al.*, Appl. Phys. Express **11**, 053201 (2018).
- [11] A. F. May *et al.*, ACS Nano **13**, 4436 (2019).
- [12] T. Ohta *et al.*, Appl. Phys. Express **13**, 043005 (2020).

この研究は、平成 27 年度 SCAT 研究助成の対象として採用され、平成 28~30 年度に実施されたものです。