

QSTにおけるスピントロニクス材料研究の 展開

量研 量子ビーム科学部門

境 誠司

次世代放射光ナノ光電子分光ワークショップ2019 2019.10.2



1990

2000

2020

2030

2040

情報技術 エレクトロニクス スピントロニクス



パソコン



磁気ディスク



スパコン



スピンメモリ



モバイル

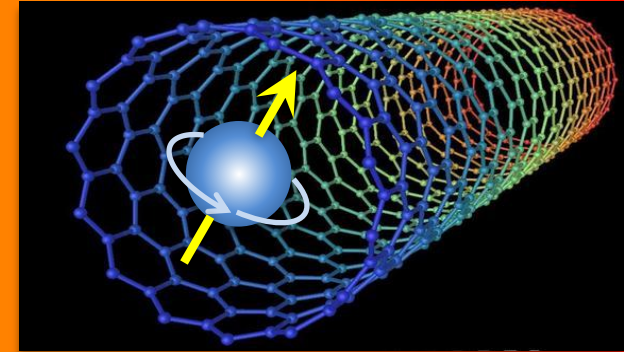


スピンロジック



クラウド

量子テクノロジー時代



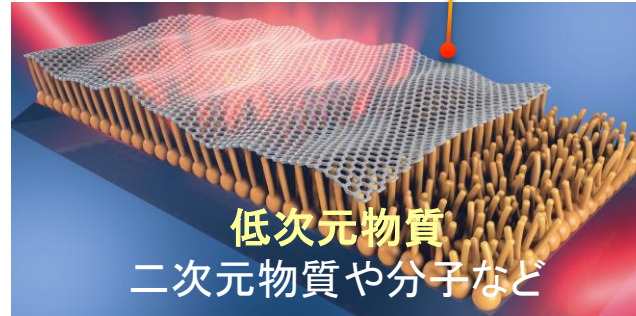
材料技術

電子機能材料

量子機能材料



三次元物質
半導体や金属など



低次元物質
二次元物質や分子など

量子スピントロニクス

- ・ 二次元物質スピントロニクス
- ・ スピンオービトロニクス
- ・ スピンフォトンクス, バレートロニクス 等

情報技術と材料科学が
量子スケールで融合

I. 量子スピントロニクス材料の研究

II. 先端量子ビーム計測技術の開発

QSTにおけるスピントロニクス材料研究

I. 量子スピントロニクス材料の研究

深さ分解XMCD分光による

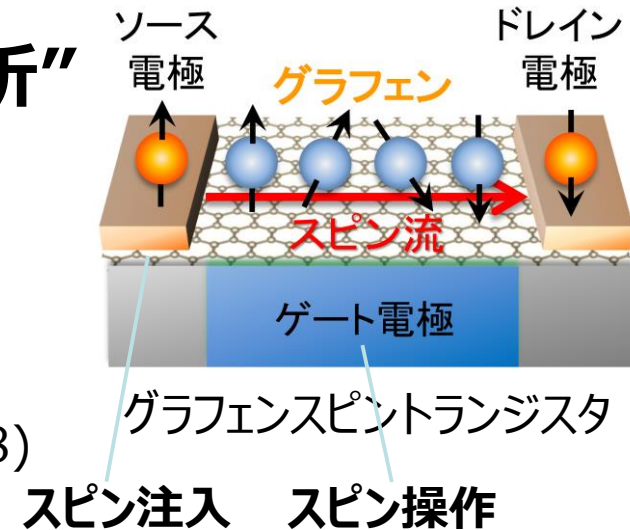
“グラフェン/ホイスラー合金ヘテロ構造の分析”

李他, Advanced Materials (to be accepted)

スピン偏極Heビームで

“磁性絶縁体YIGの近接効果を解明”

境他, Advanced Functional Materials 28, 1800462 (2018)



II. 先端量子ビーム計測技術の開発

深さ分解放射光メスバウアー分光により

“鉄表面にスピンのさざ波を発見”

三井他, Physical Review Letters (10月投稿予定)



深さ分解XMCD分光による グラフェン/ホイスラー合金ヘテロ構造の分析

S. Li, P. B. Sorokin, Y. Sakuraba, P. Avramov, K. Amemiya, S. Sakai *et al.*, Adv. Mater., *to be accepted*

グラフェン/ホイスラー合金ヘテロ構造の創製

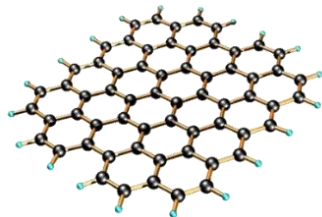
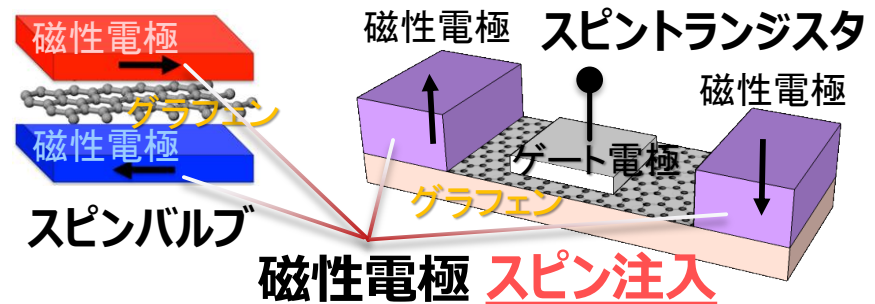
グラフェンスピンデバイス - 磁性電極によるスピン注入の低効率

- ・従来の磁性電極 - Ni, Co, NiFe等

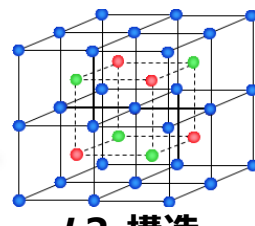
低スピン偏極率(40%)

- ・グラフェン/磁性体界面

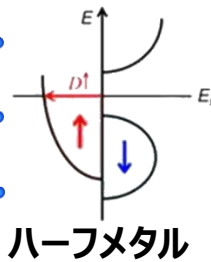
磁性やスピン偏極率が低下



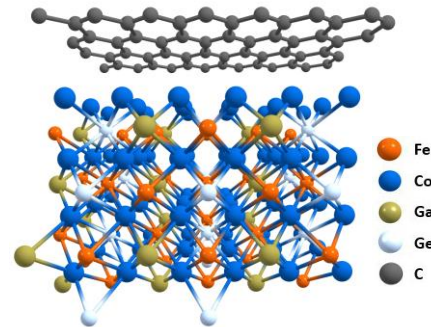
グラフェン



L₂₁構造
ホイスラー合金



ハーフメタル



グラフェン/ホイスラー合金ヘテロ構造

グラフェンとホイスラー合金(CFGG)の複合化に成功

高スピン偏極率(100%)

CFGG: $\text{Co}_2\text{FeGe}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}$

グラフェン/CFGG界面 - 深さ分解XMCD分光で分析

深さ分解XMCD分光

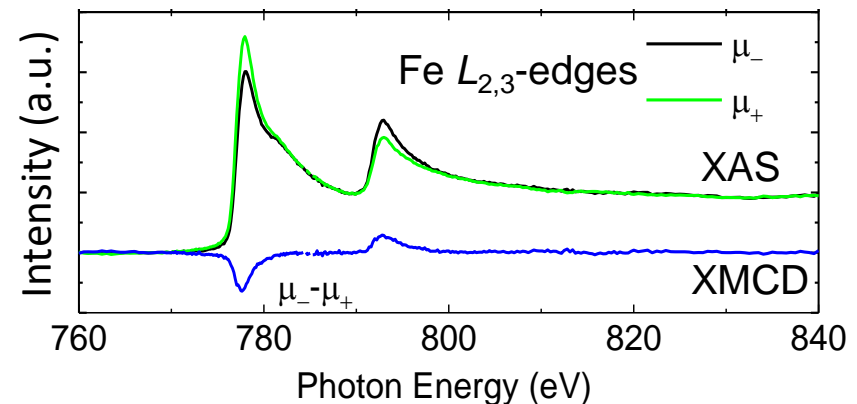
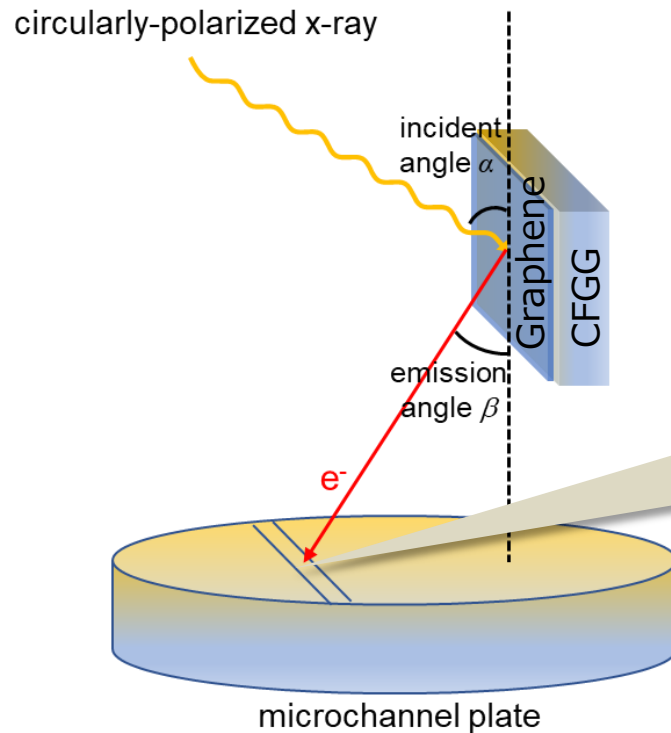
K. Amemiya, Phys. Chem. Chem. Phys. 14, 10477 (2012)

XMCD分光 – 元素選択的な電子・磁気状態の計測手法



KEK-PF BL7A

部分電子収量法をベースに深さ分解測定を実現



検出深さに依存したXAS/XMCDスペクトル

平均検出深さ : 0~2 nm

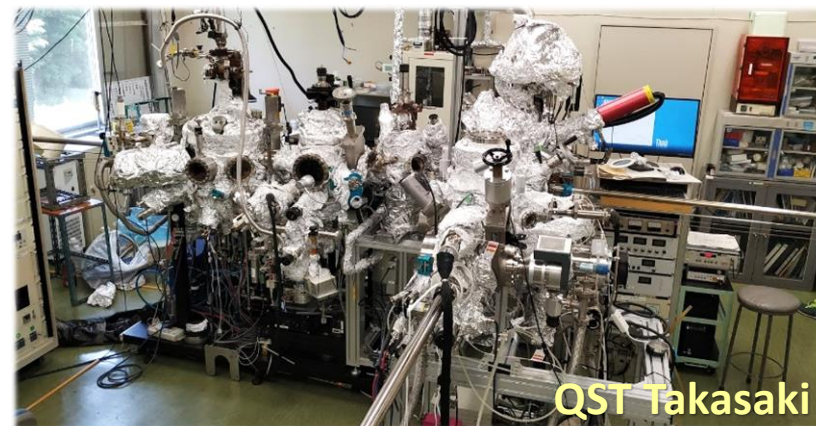
X線吸収に伴う放出電子を角度分解して検出

二次元物質/磁性体ヘテロ構造の研究に利用

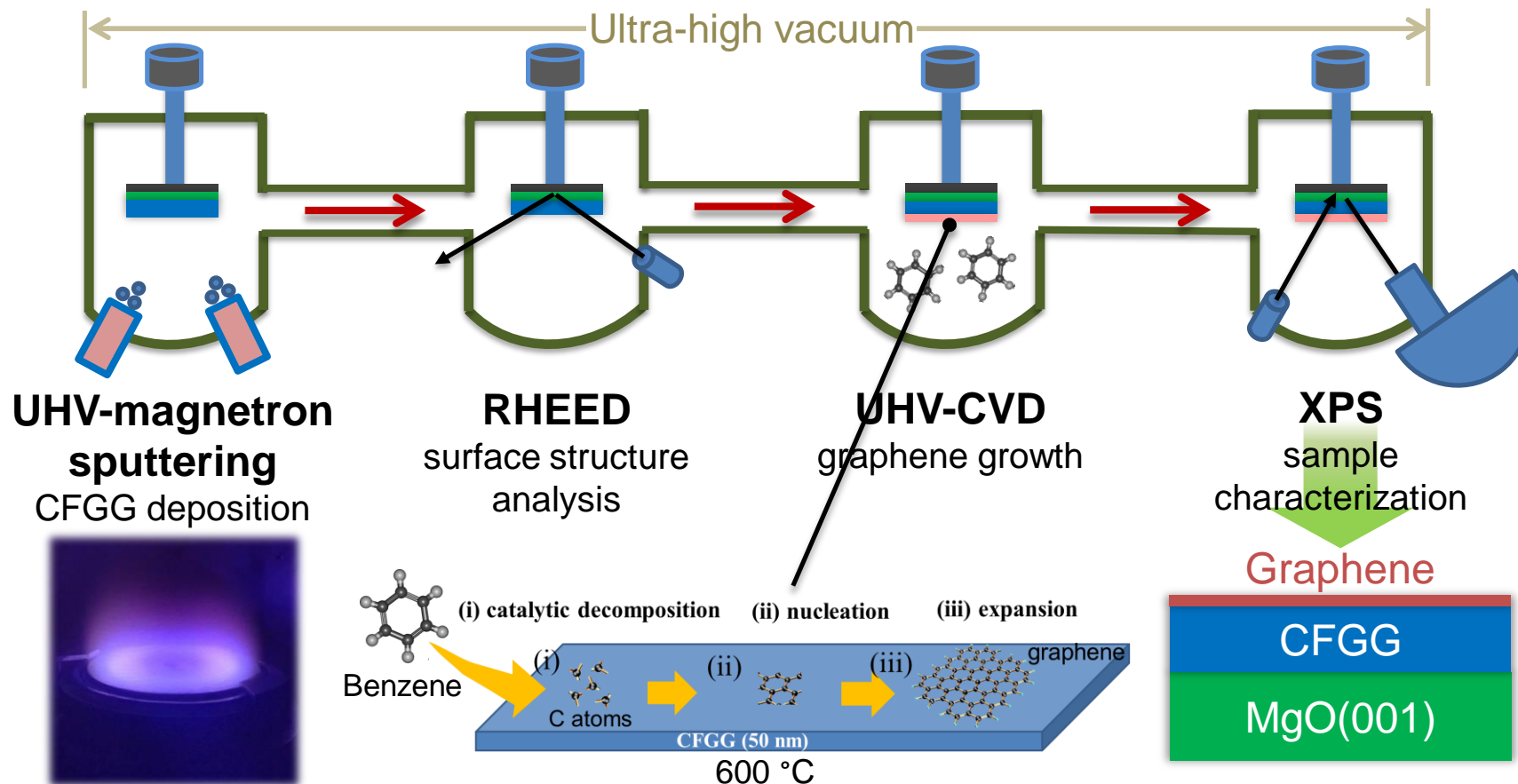
超高真空その場成膜装置

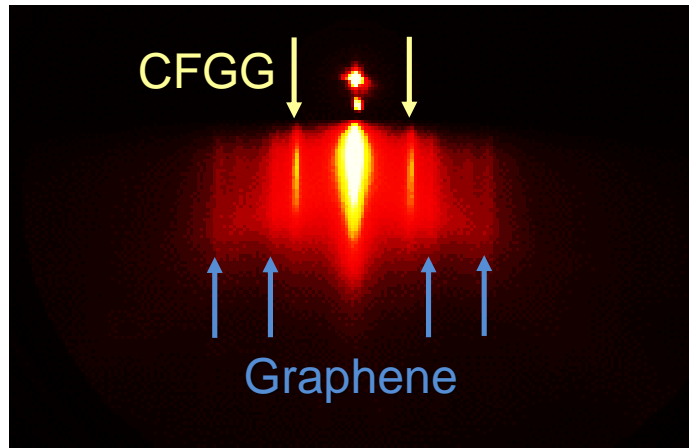
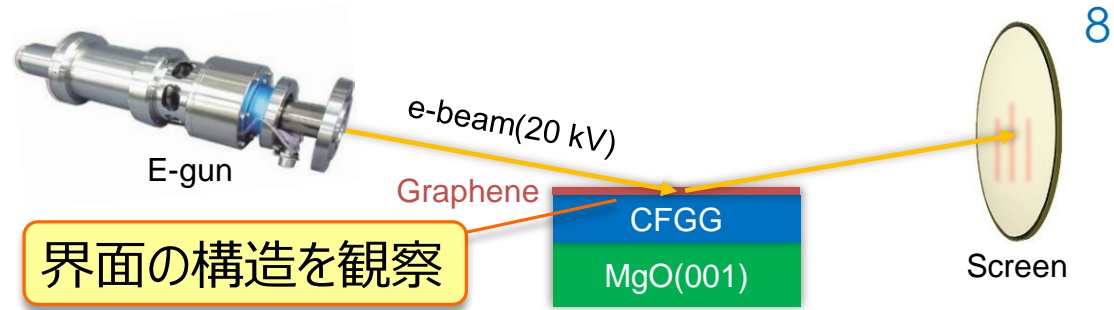
超高真空ベースの成膜・評価技術を組み合わせた
その場複合薄膜作製システム

グラフェン/CFGGヘテロ構造を作製

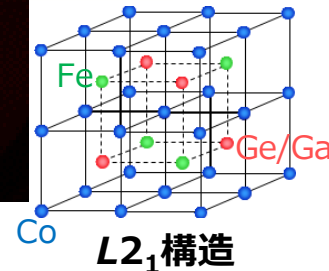
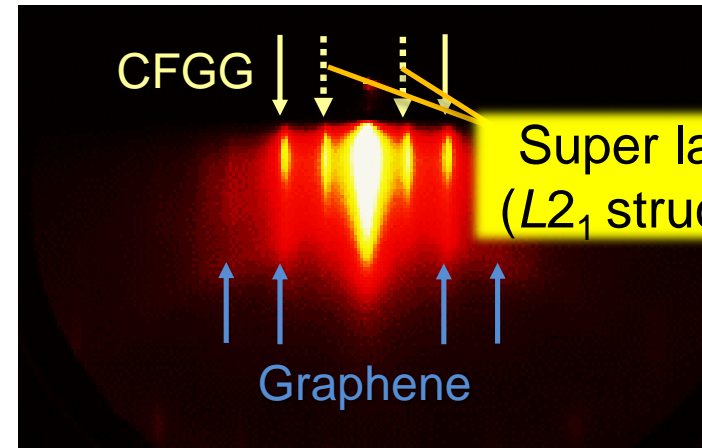


7





//CFGG[100]



RHEEDパターン

- ・ グラフェン/CFGG界面の高い平坦性
- ・ CFGGの $L2_1$ 構造(~ハーフメタル性)が保たれている
- ・ グラフェンはランダムな面内配向(多結晶)

深さ分解XMCD分光

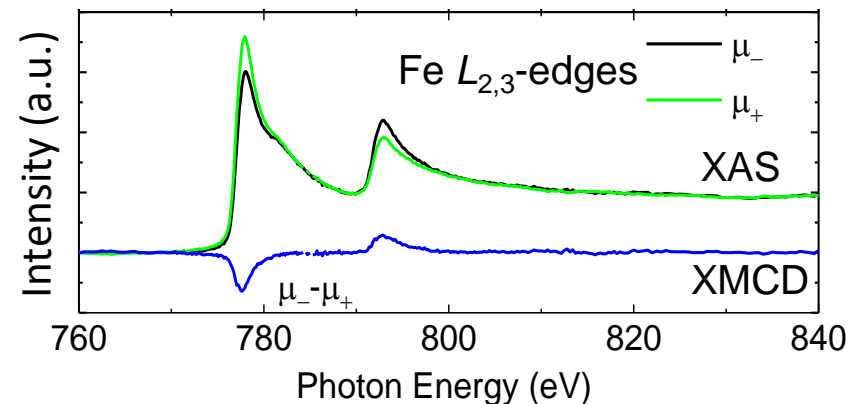
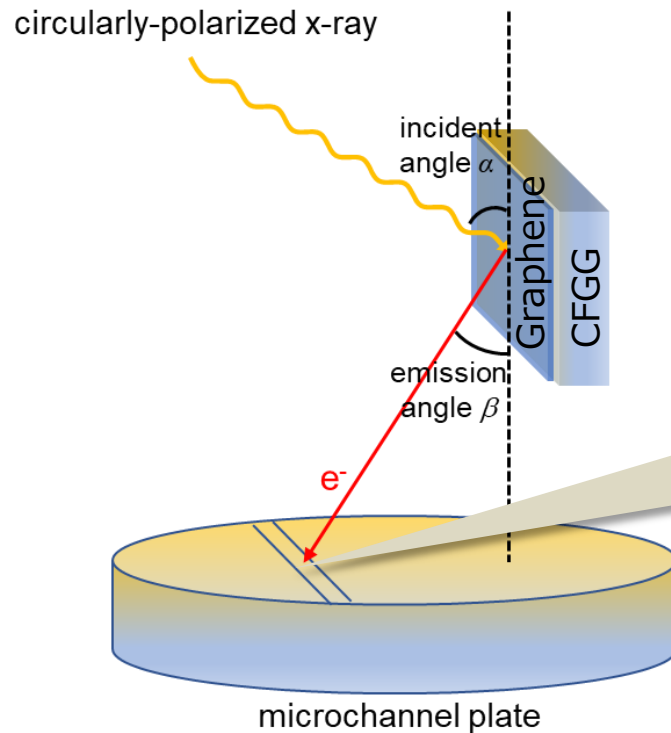
K. Amemiya, Phys. Chem. Chem. Phys. 14, 10477 (2012)

XMCD分光 – 元素選択的な電子・磁気状態の計測手法



KEK-PF BL7A

部分電子収量法をベースに深さ分解測定を実現



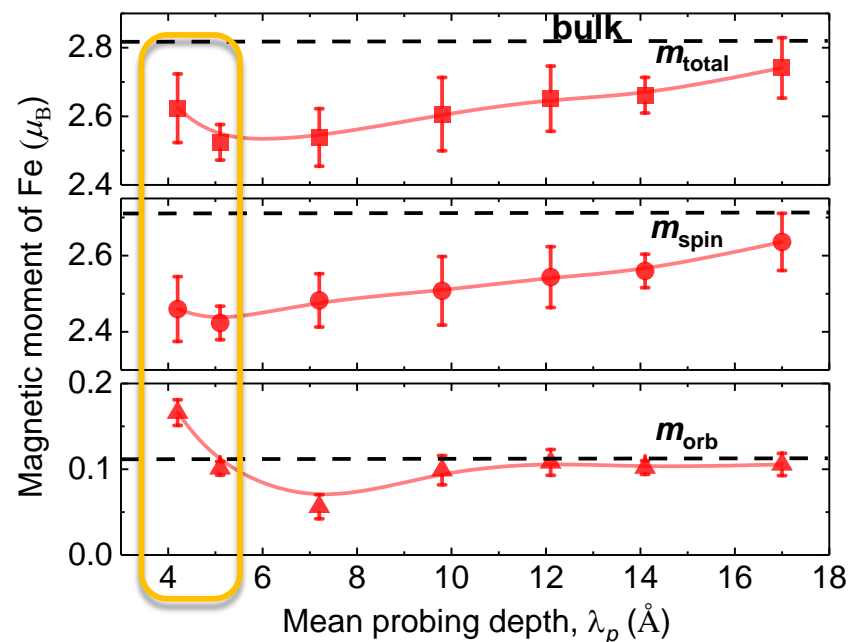
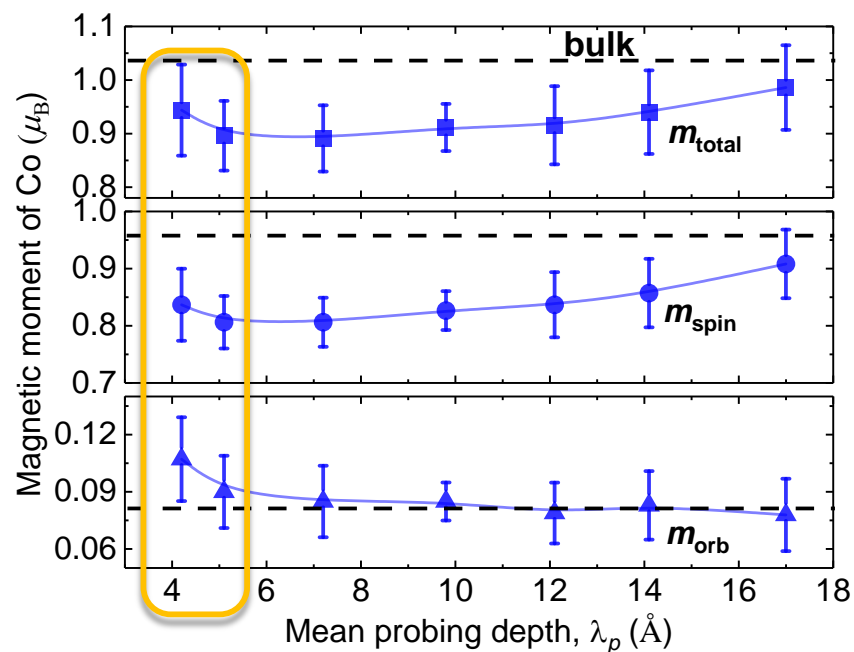
検出深さに依存したXAS/XMCDスペクトル

平均検出深さ : 0~2 nm

X線吸収に伴う放出電子を角度分解して検出

二次元物質/磁性体ヘテロ構造の研究に利用

グラフェン/CFGGヘテロ構造の深さ分解XMCD分光

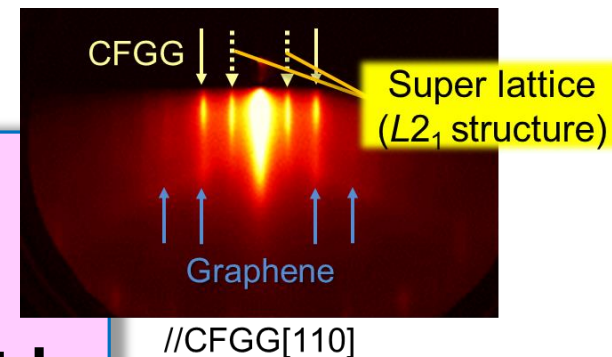


Co, Feの磁気モーメントの検出深さによる変化

磁化方向：面内

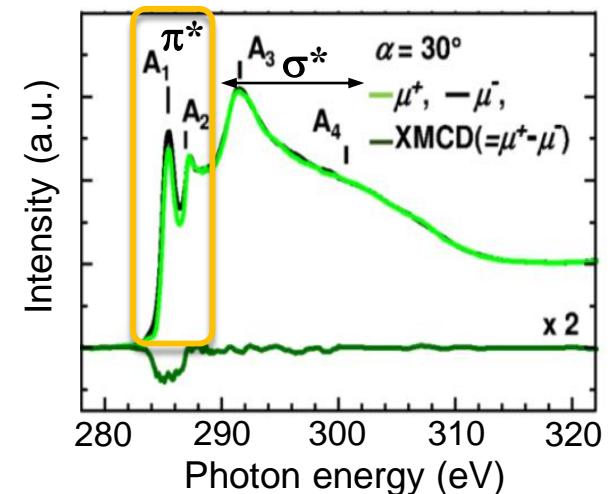
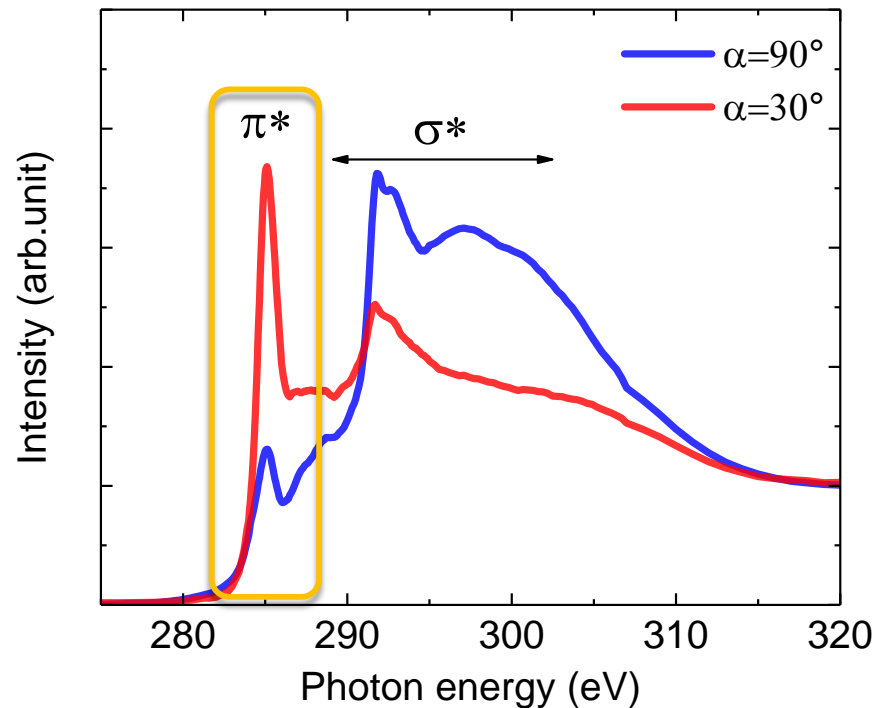
CFGG

- ・ 界面付近でもバルクに近い磁気モーメントを保持
- ・ 界面直下でスピンモーメントと軌道モーメントが増大



グラフェン/CFGGヘテロ構造の深さ分解XMCD分光

11



参考. グラフェン/Ni(111)

Y. Matsumoto *et al.*, J. Mater. Chem. C 1, 5533 (2013)

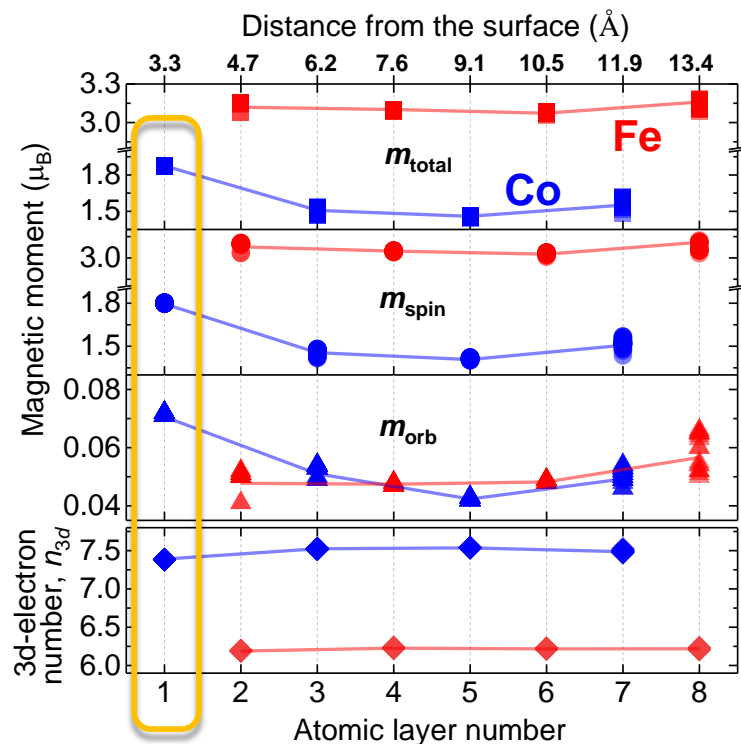
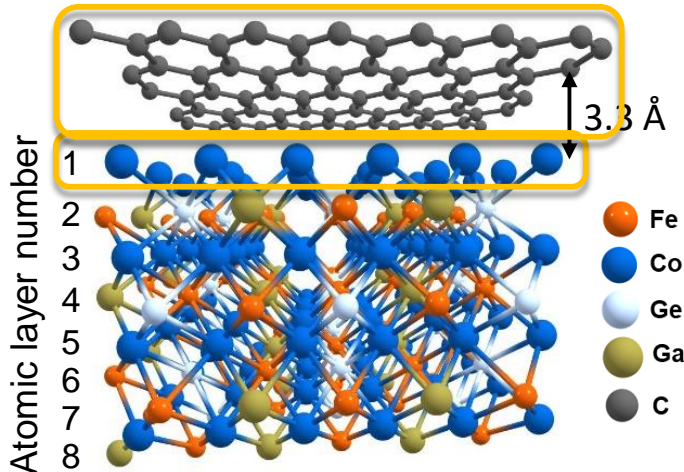
C K-吸収端 XASスペクトル

X線入射角度 $\alpha = 30^\circ, 90^\circ$

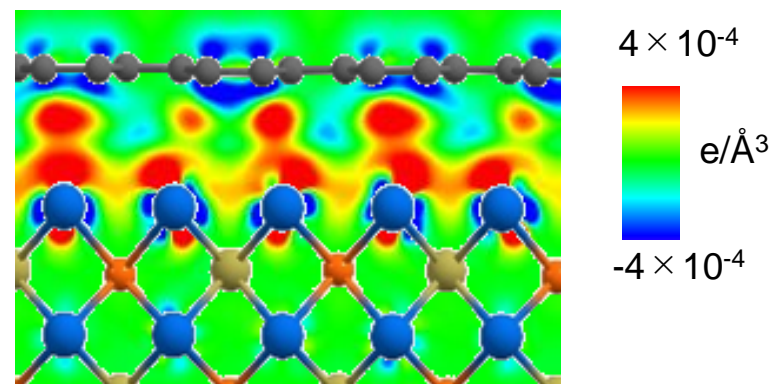
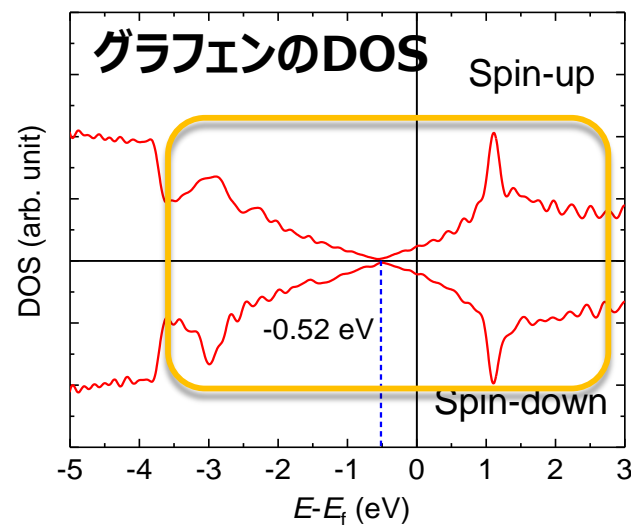
グラフェン

- ・ グラファイトやグラフェン/Cuと類似のシャープな π^* ピーク
- グラフェン/磁性金属と異なり電子状態の変調が少ない

考察



各原子層の磁気モーメント



グラフェン/CFGG界面の相互作用
ファンデルワールス結合 & 電荷分極

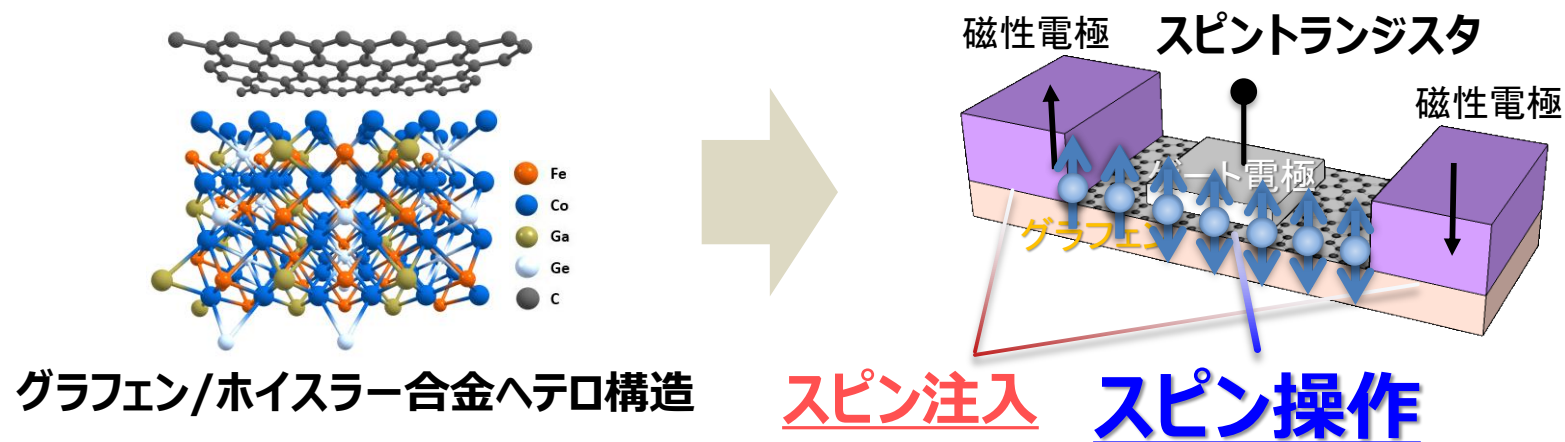
特徴的な界面相互作用がグラフェンとCFGGの性質を保護

結論

グラフェン/CFGGヘテロ構造の深さ分解XMCD分光

- ・ 界面近傍におけるCFGGの磁氣的ロバストネスや高スピン偏極率
- ・ グラフェンのスピン輸送を司る π バンド(ディラックコーン)の維持

グラフェンデバイスのスピン注入の効率化が期待



スピン偏極Heビームで 磁性絶縁体YIGの近接効果を解明

S. Sakai, Y. Yamauchi, Y. Yamada, P. Sorokin, P. Avramov, K. Ando *et al.*,
Adv. Funct. Mater. 28, 1800462 (2018)

グラフェンスピンデバイスの課題

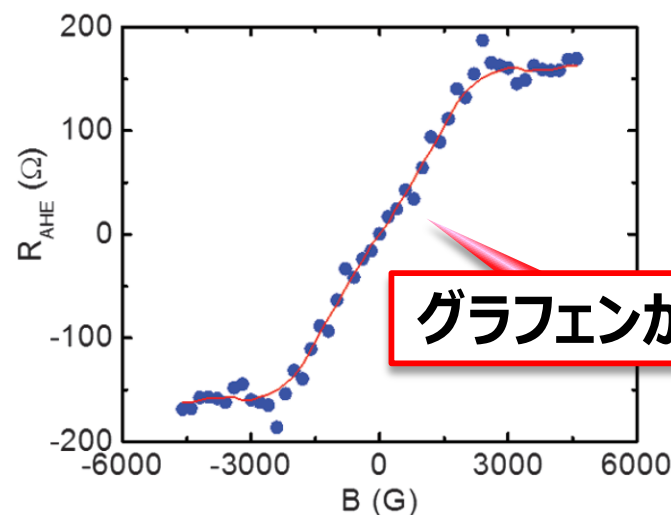
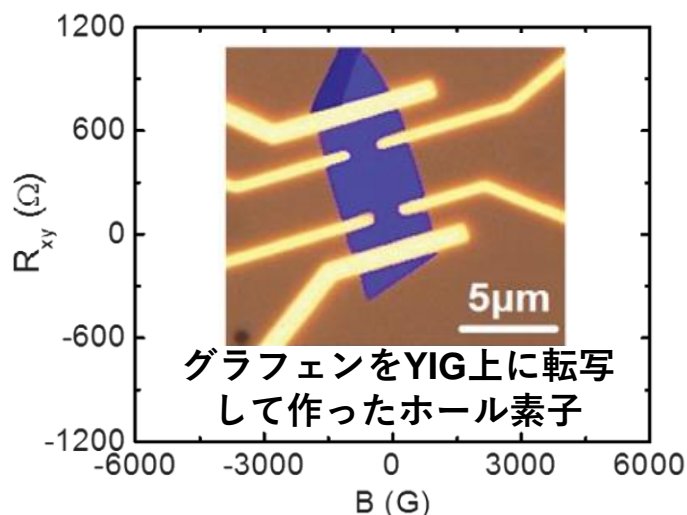
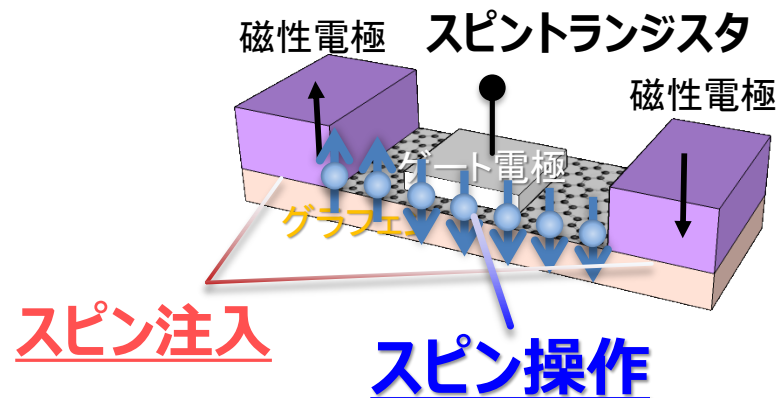
- ・磁性電極(金属)によるスピン注入の低効率

ホイスラー合金で解決できそう！

- ・ゲート電極(絶縁体)によるスピン操作

・・・スピン軌道相互作用は有効でない

磁気近接効果によるスピン操作



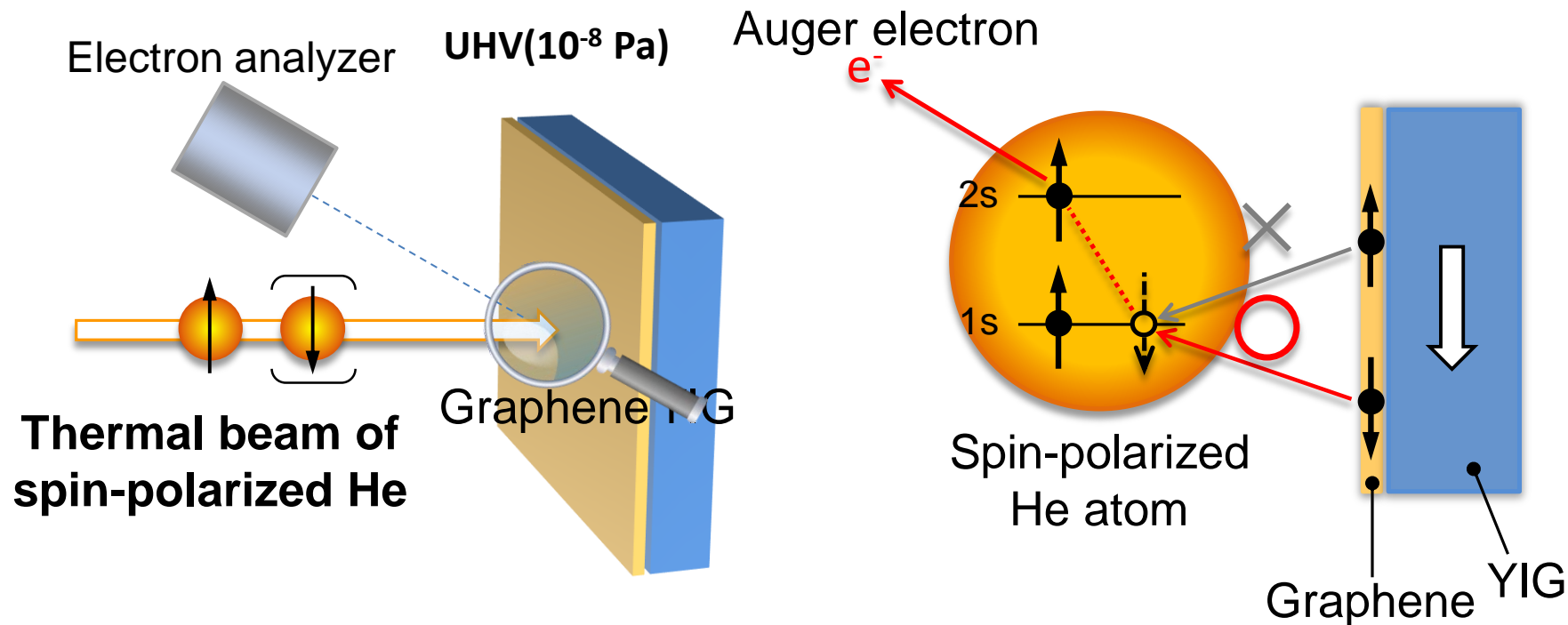
グラフェン/YIGヘテロ構造の異常ホール効果

Z. Wang, Phys. Rev. Lett. 114 016603 (2015)

グラフェンのスピン分極状態 – スピン偏極Heビームで観測

スピン偏極準安定He脱励起分光(SPMDS)

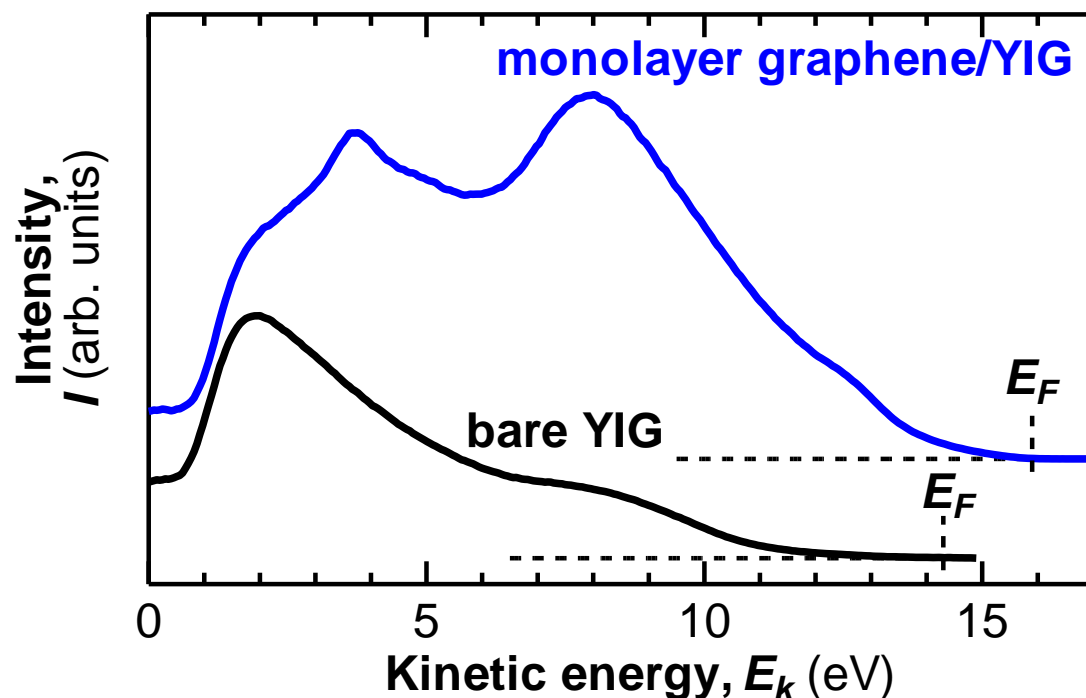
16



最表面にある原子層だけを観測

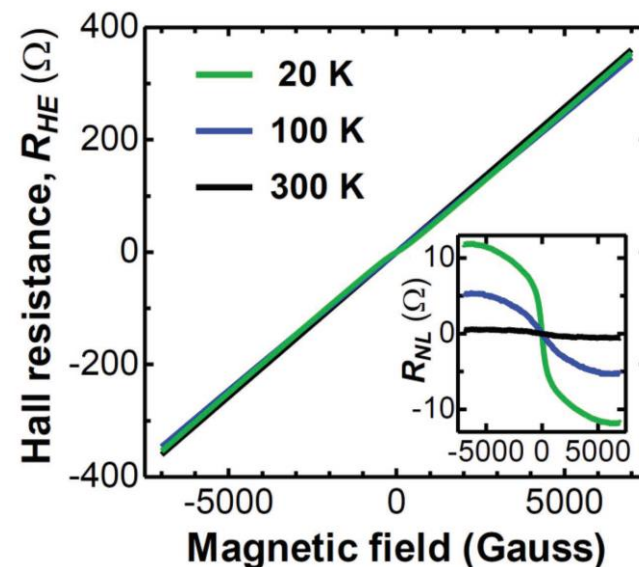
- ✓ オージェ電子のエネルギースペクトル(MDSスペクトル) → 状態密度
- ✓ スピンに依存した強度変化(スピン非対称率スペクトル) → スピン偏極

グラフェン/YIGヘテロ構造のSPMDS



グラフェン/YIGとYIGのMDSスペクトル

測定温度: 室温



ホール効果の測定結果

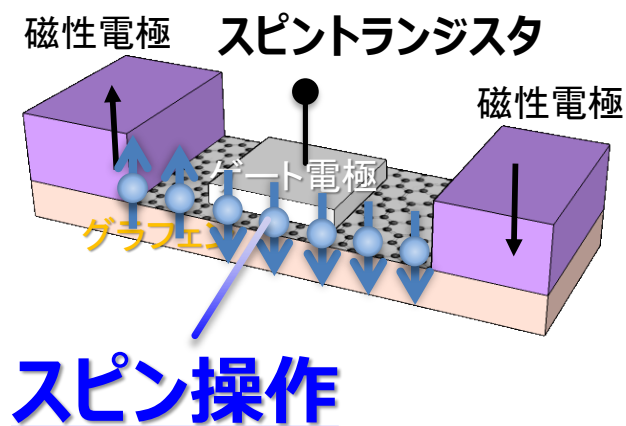
異常ホール効果を確認

グラフェンは、バンド構造を維持しつつ、
YIGの近接効果によりディラックコーンがスピン分裂

結論

グラフェン/YIGヘテロ構造のSPMDS

磁性絶縁体とのヘテロ構造を用いることで、
グラフェンのバンド構造を保ちつつスピン偏極状態を制御できる！



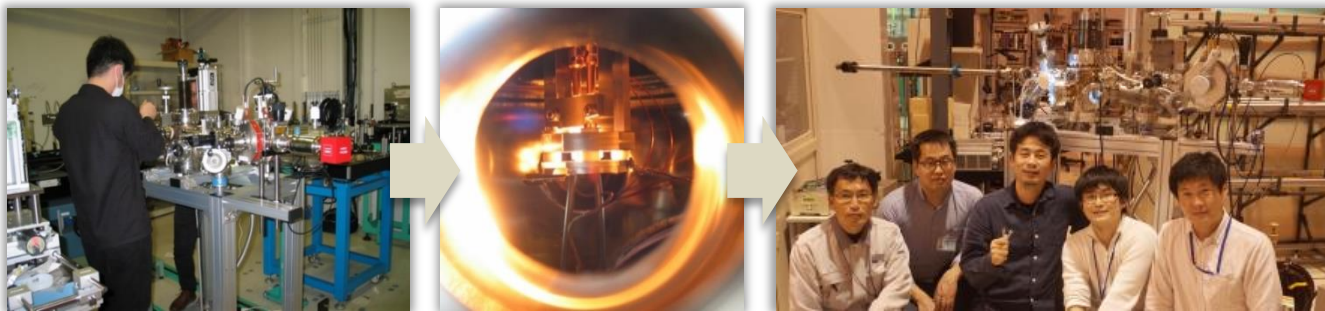
グラフェンスピントランジスタのスピン操作等への応用

深さ分解放射光メスバウアー分光により 鉄表面にスピンのさざ波を発見

T. Mitsui, S. Sakai, M. Seto, H. Akai *et al.*, Phys. Rev. Lett., *to be submitted*

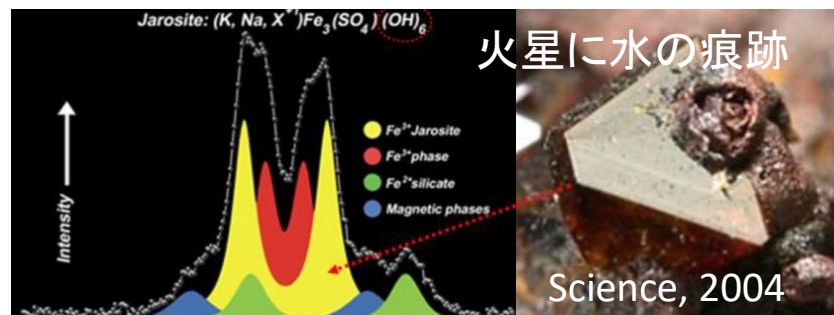
深さ分解放射光メスバウアー分光の開発

2017 深さ分解計測技術を開発 – 世界初の超高真空in situ実験装置



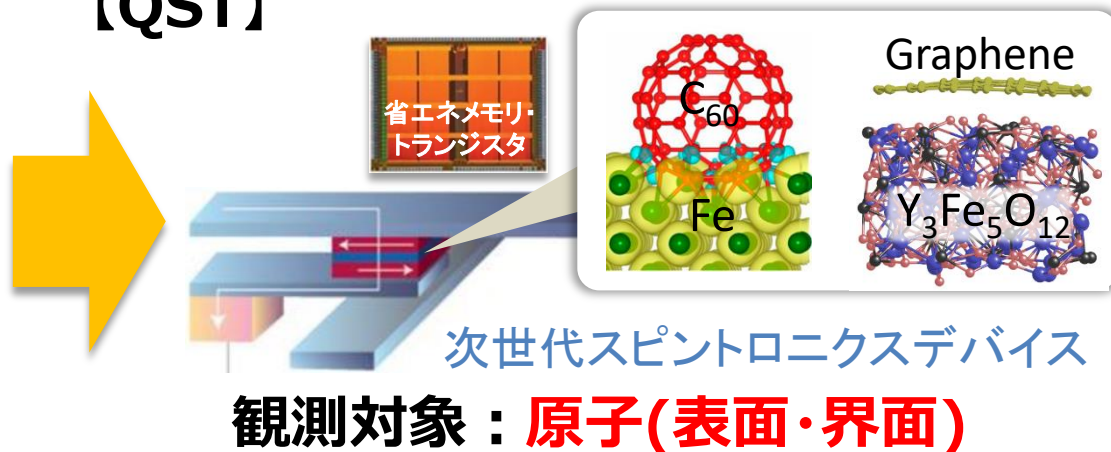
2018 超単色放射光のマイクロビーム化 – 高感度化,顕微測定を可能に

【従来】



観測対象：塊(バルク)

【QST】



材料・デバイス内の量子スケールのスピンの振る舞いが計測可能に

鉄表面にスピンのさざ波を発見

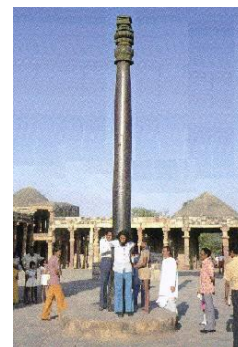
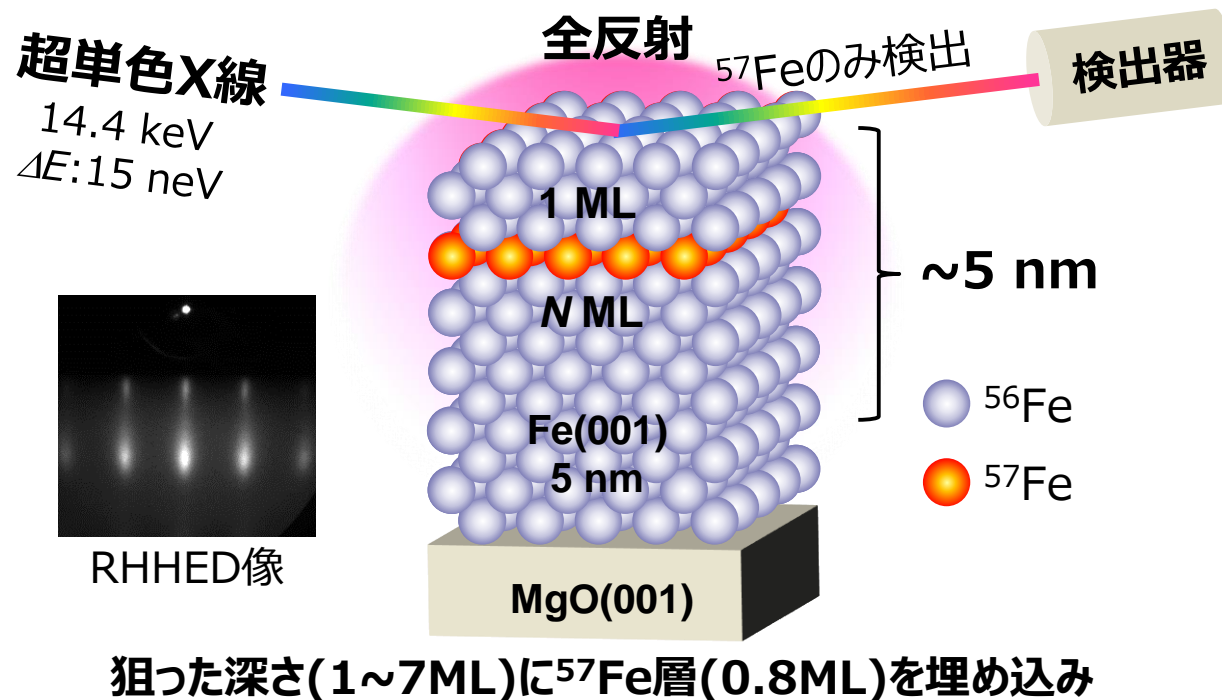
T. Mitsui, S. Sakai, M. Seto, H. Akai *et al.*, Phys. Rev. Lett., *to be submitted*

鉄(Fe)

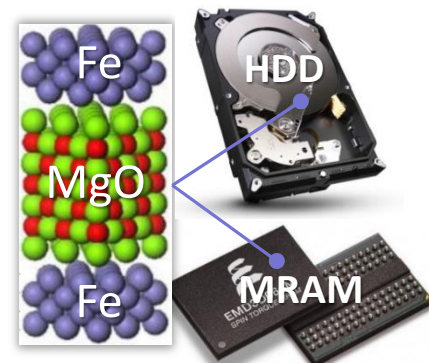
代表的な磁性元素、スピントロニクスデバイスで多用
デバイス開発 - 界面の制御が鍵

Fe表面(真空/Fe界面)の性質は古来の謎

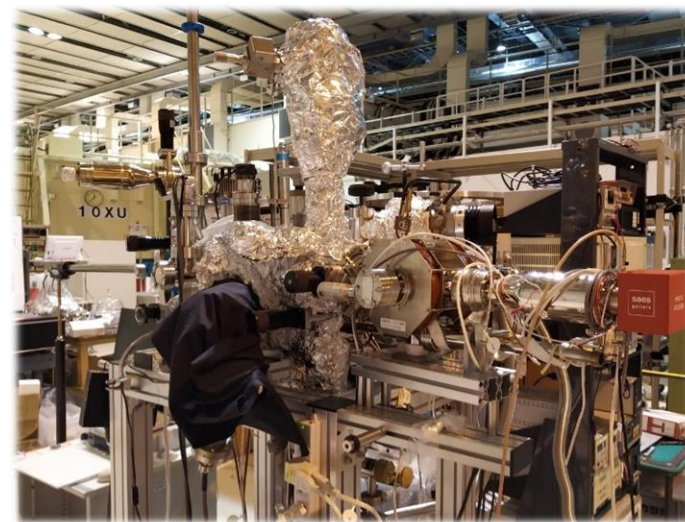
原子分解能深さ分解メスバウアー分光



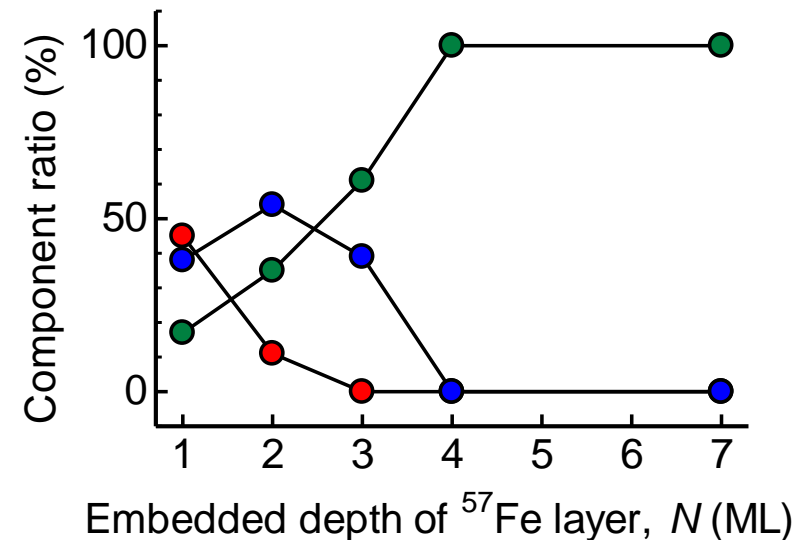
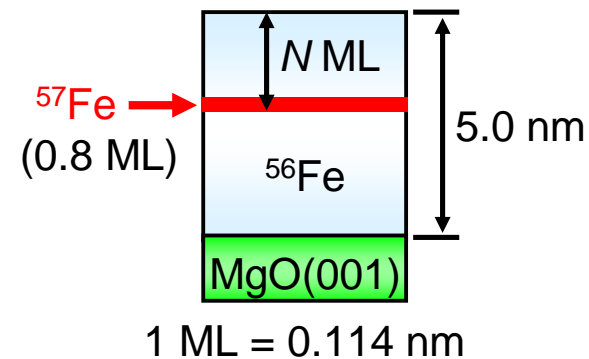
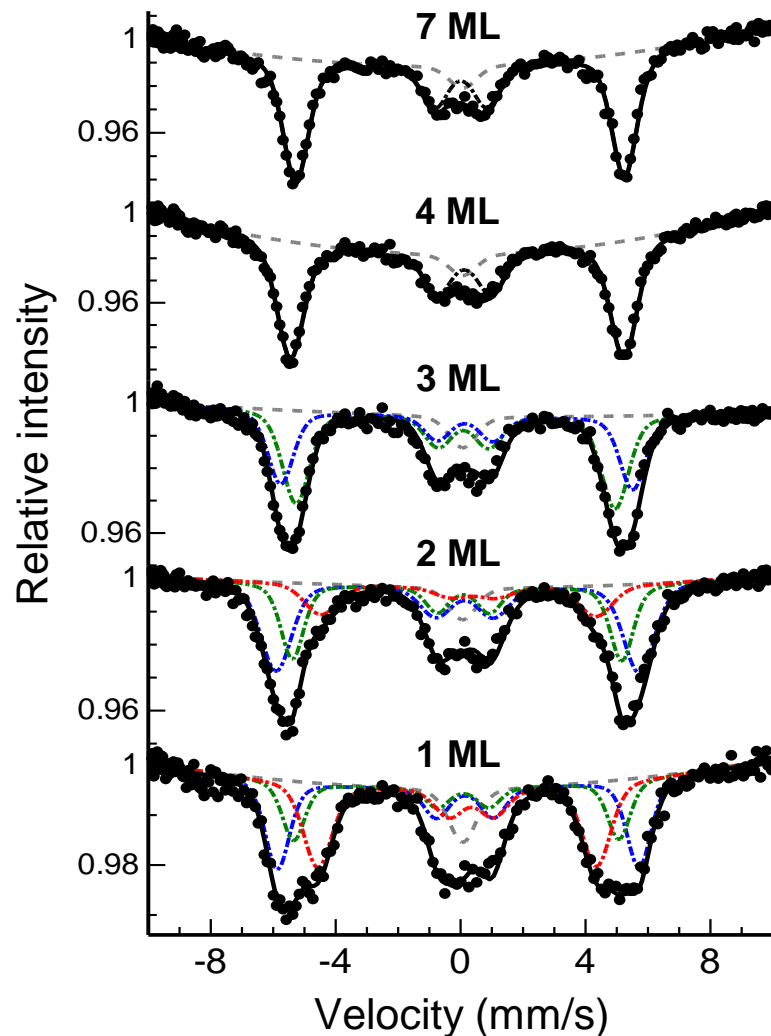
デリーの鉄柱
紀元415年



スピントロニクスデバイス
紀元2019年



超高真空深さ分解メスバウアー分光装置
Spring-8 QST専用BL(BL11XU)

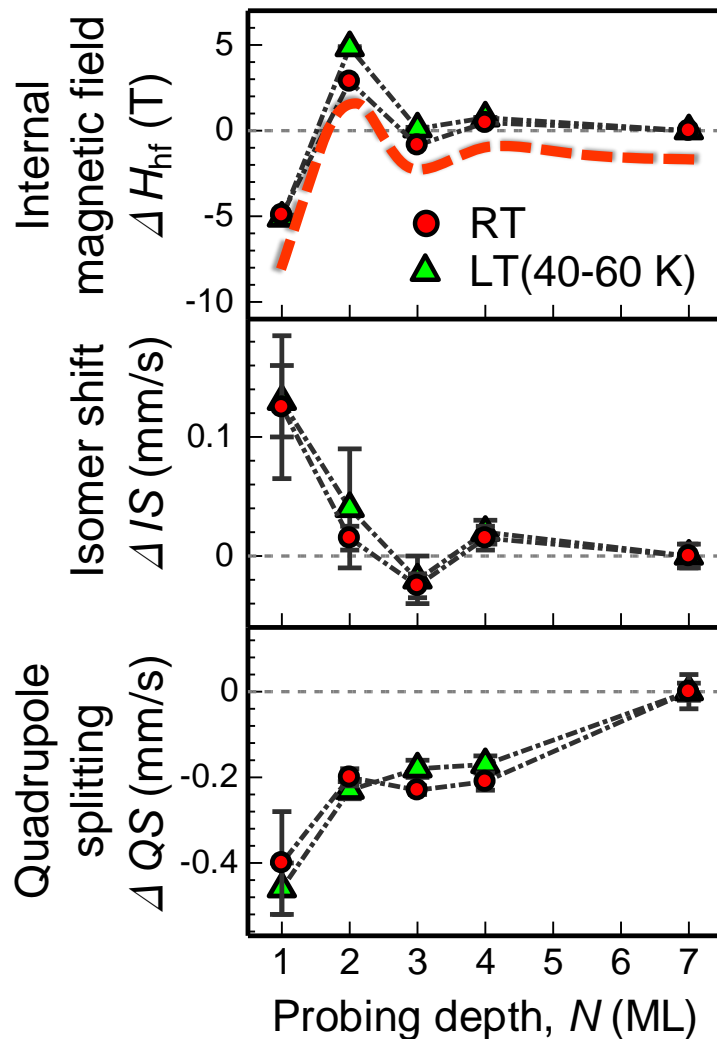


^{57}Fe 層の埋め込み深さによるメスバウアースペクトルの変化

右図：各成分の相対強度の埋め込み深さ依存性

表面に近づくにつれてスペクトルが複数成分に分離

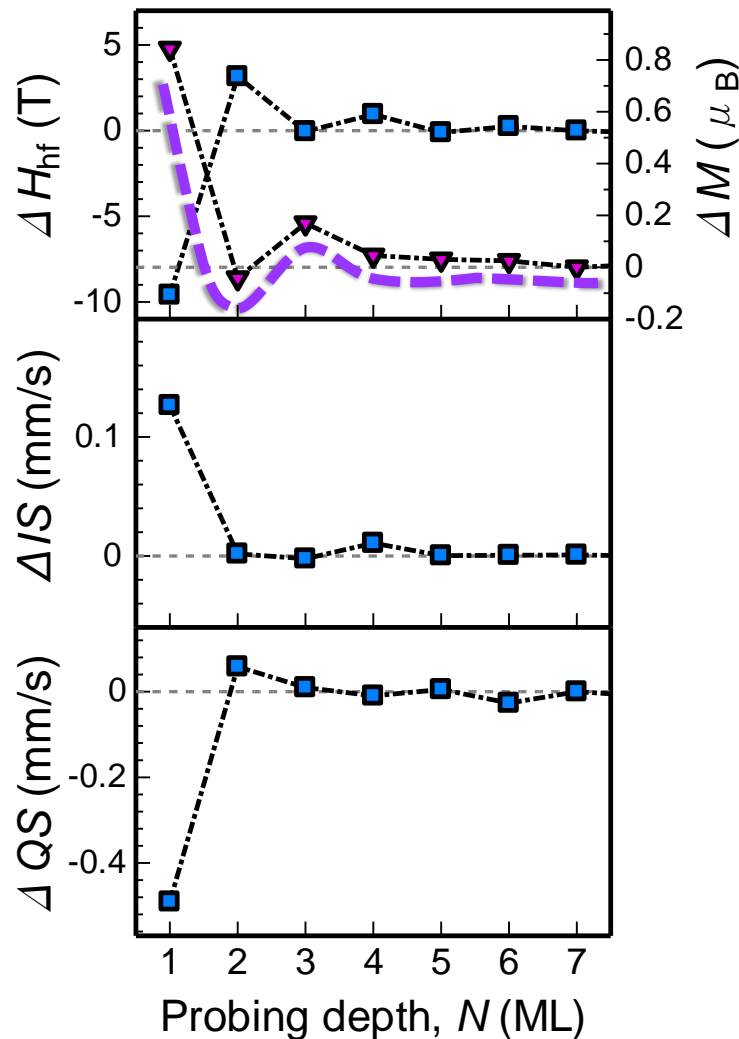
赤 - 1原子層目, 青 - 2原子層目, 緑 - 3原子層目以上



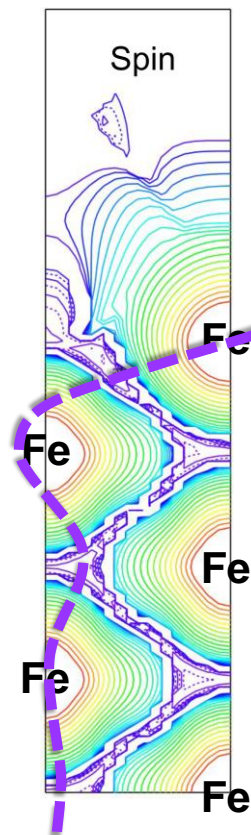
解析結果

内部磁場, アイソマーシフト, 四極子分裂の深さ依存性

モデル計算 - 磁気モーメント ΔM を併記。各データはバルクとの差を表す。



モデル計算



鉄表面に原子層単位の磁気フリーデル振動が存在！

結論

- ・ 原子層分解能の深さ分解放射光メスバウアー分光技術を開発
- ・ 鉄表面に磁気フリーデル振動の存在を発見
理論的予測 - C. S. Wang & A. J. Freeman, PRB (1981)

深さ分解放射光メスバウアー分光

真の深さ分解計測 - 見たい深さだけの情報が得られる

情報の豊富さ、複雑な材料での有効性

- サイト毎などの局所的な原子構造、電子状態やモーメントの配列

多様な計測環境 - 磁場, 電場/電流, 光, 雰囲気など(オペランド計測が容易)

磁気ヘテロ構造界面・磁性体表面研究の新ツール

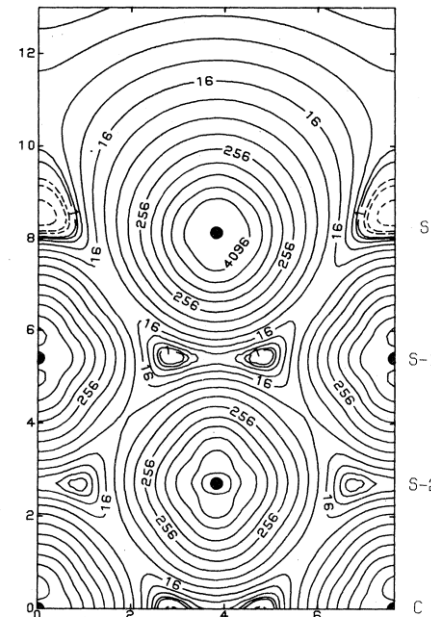


FIG. 5. Self-consistent spin-density map of seven-layer of Fe(001) in units of 0.0001 a.u. on the (110) plane. Each contour line differs by a factor of 2. The dashed lines indicate negative spin density.

Wang & Freeman (1981)

QSTにおけるスピントロニクス材料研究

I. 量子スピントロニクス材料の研究

深さ分解XMCD分光による

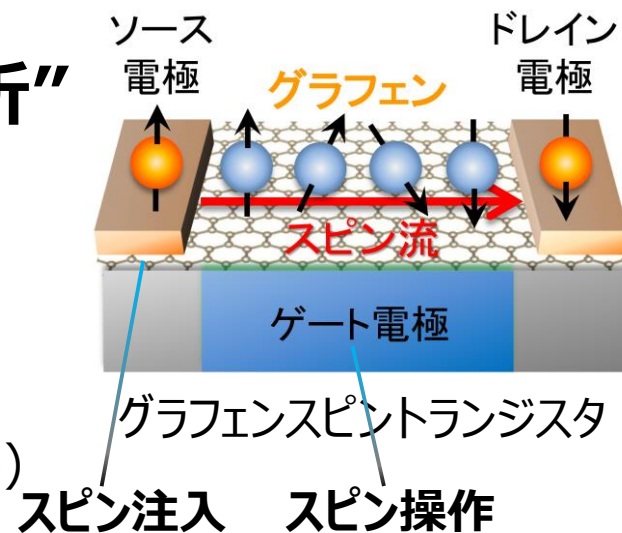
“グラフェン/ホイスラー合金ヘテロ構造の分析”

李他, Advanced Materials (to be accepted)

スピン偏極Heビームで

“磁性絶縁体YIGの近接効果を解明”

境他, Advanced Functional Materials 28, 1800462 (2018)



II. 先端量子ビーム計測技術の開発

深さ分解放射光メスバウアー分光により

“鉄表面にスピンのさざ波を発見”

三井他, Physical Review Letters (10月投稿予定)



量子ビーム計測技術群でスピントロニクスの発展に貢献

謝辞

QST 李 松田, 三井 隆也, 上野 哲朗, 綿貫 徹 他

MISiS(Russia) Pavel B. Sorokin 他

NIMS 山内 泰, 桜庭 裕弥

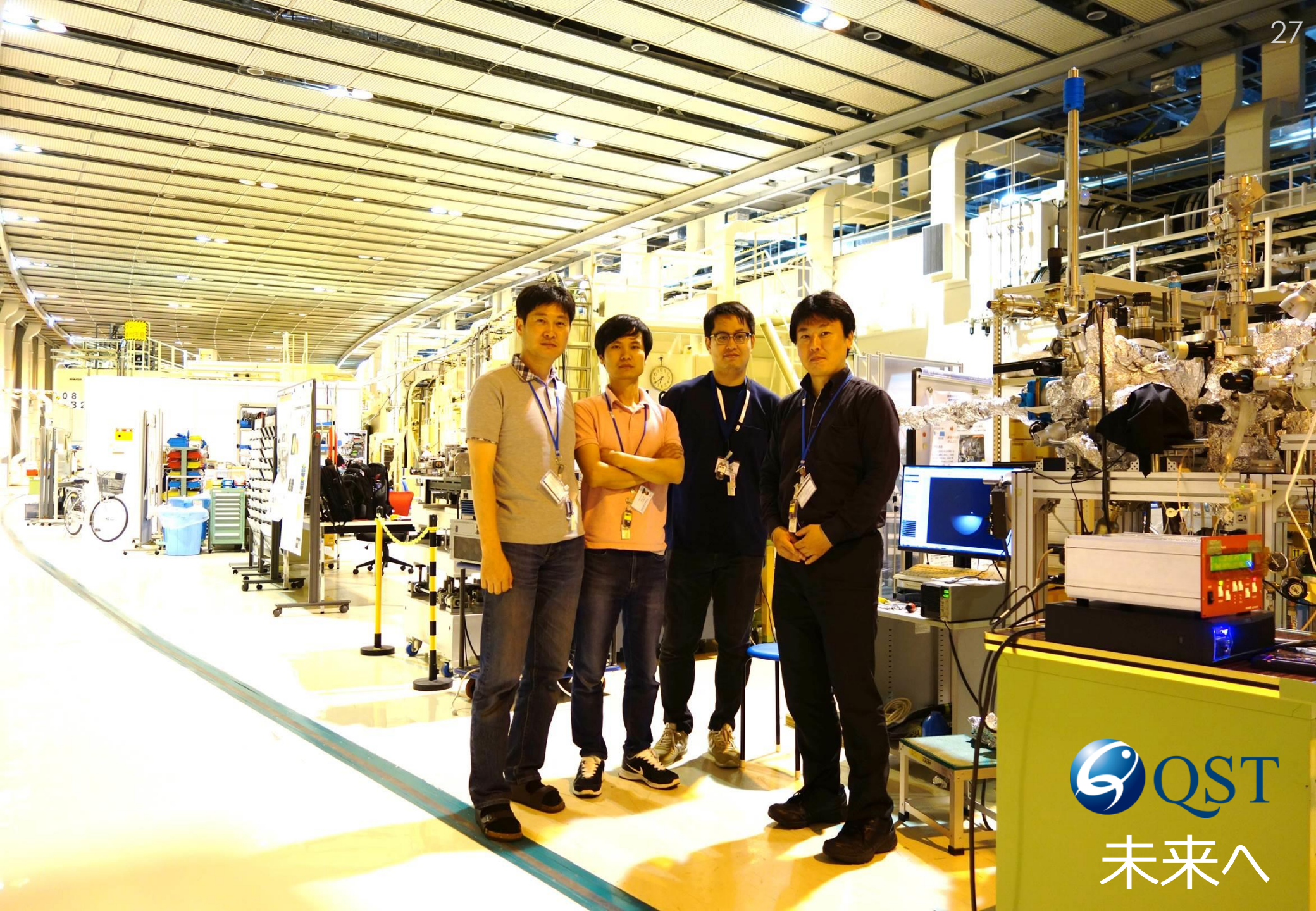
東大物性研 赤井 久純

京大 瀬戸 誠 他

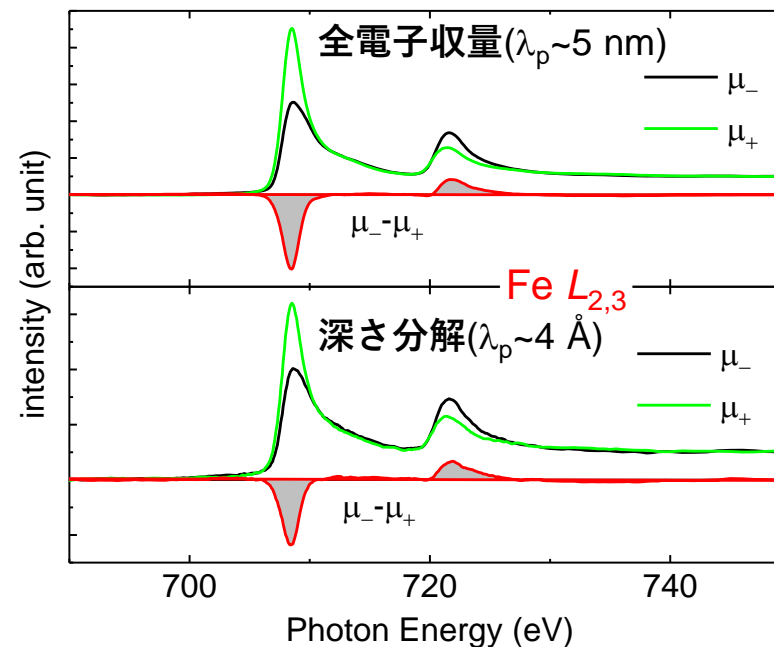
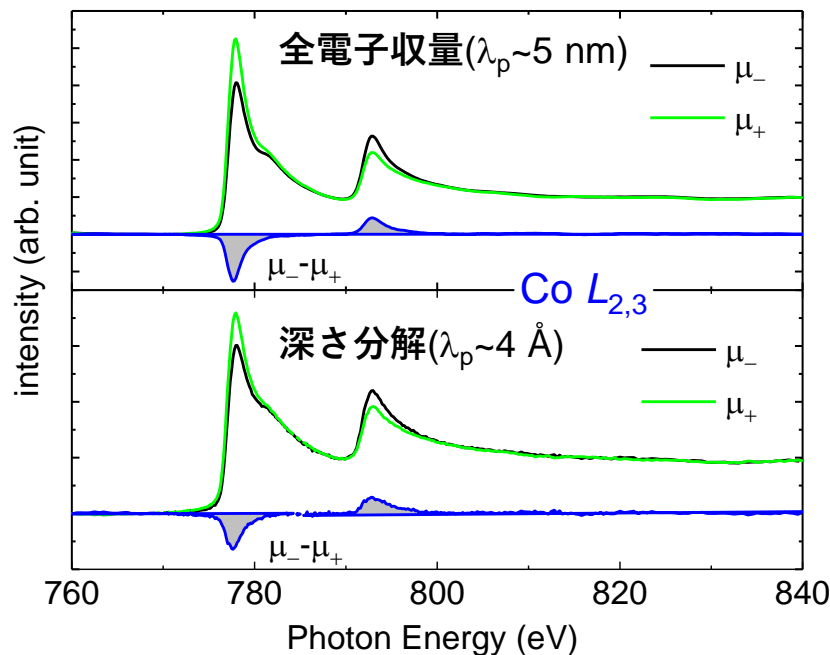
慶北大(韓国) Pavel V. Avramov

筑波大 山田 洋一 他

KEK 雨宮 健太



グラフェン/CFGGヘテロ構造の深さ分解XMCD分光

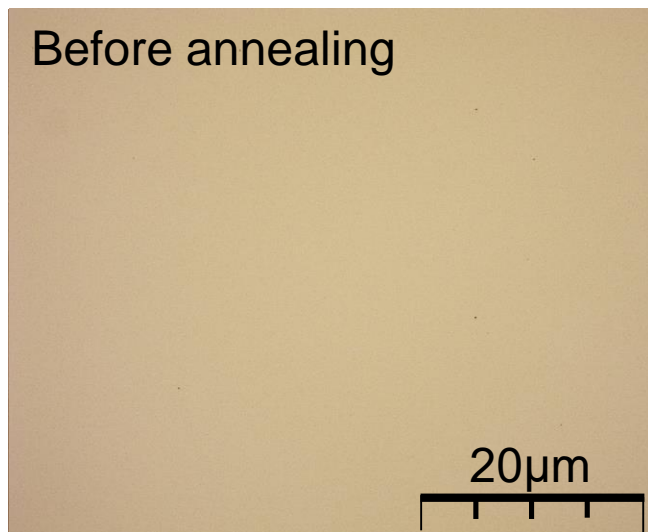


Co, Fe $L_{2,3}$ -吸収端 XAS・XMCDスペクトル

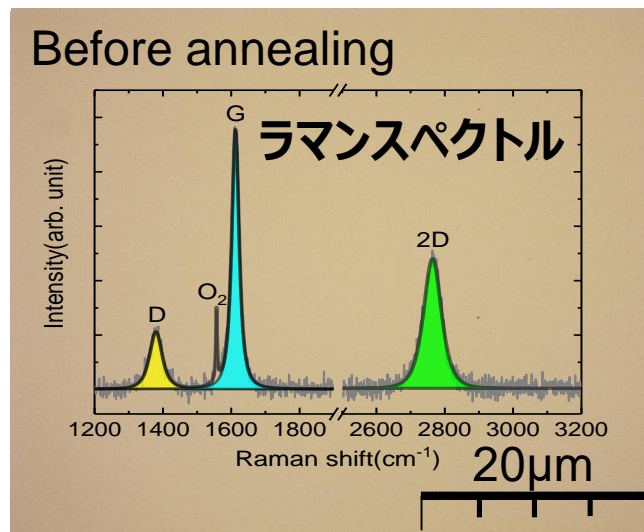
磁化方向：面内 ($\alpha = 30^\circ$)、温度：室温

- ・ グラフェン/CFGG界面付近に酸化物やカーバイドは存在しない
- ・ 界面直下でも強磁性を維持(保磁力あり)

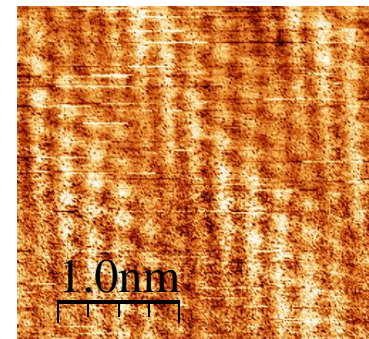
グラフェン/CFGGヘテロ構造のキャラクタリゼーション



without optimization
(50% coverage)



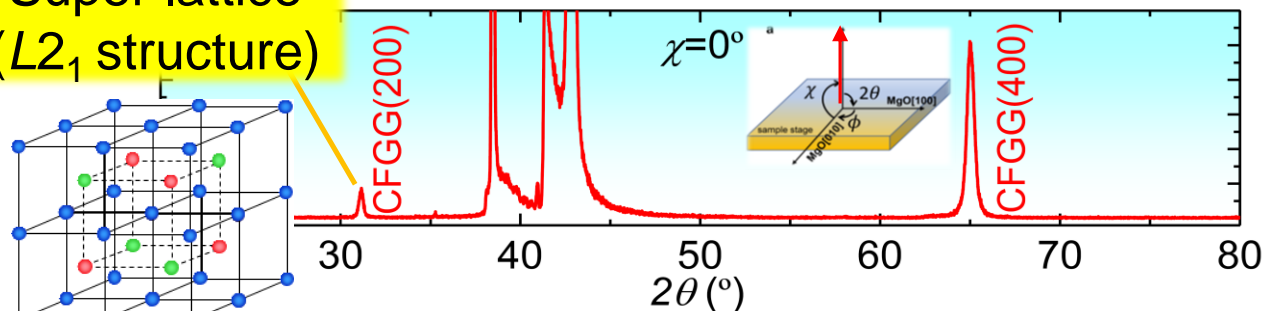
with optimization
(100% coverage)



STM像

大気中アニールによる色の変化

Super lattice
($L2_1$ structure)



XRDパターンの例

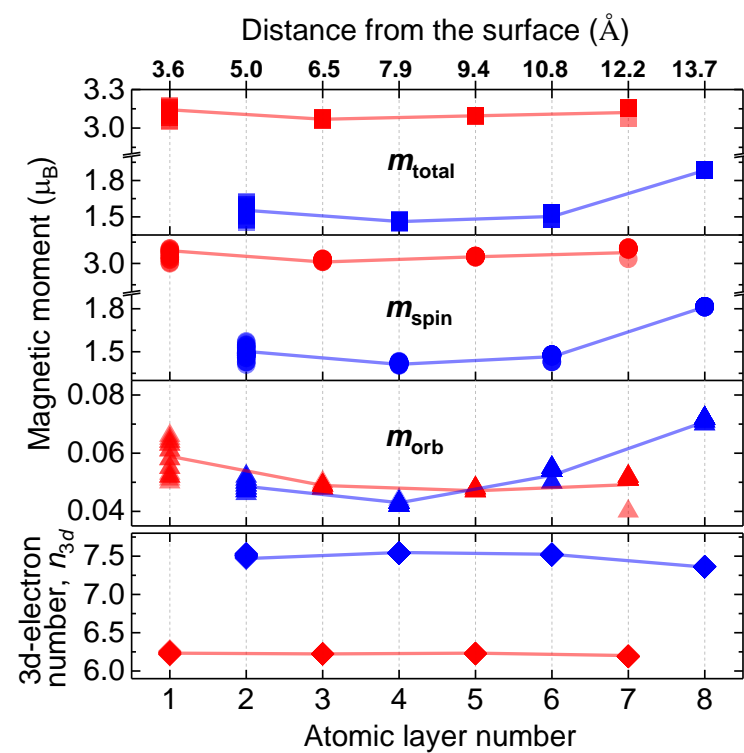
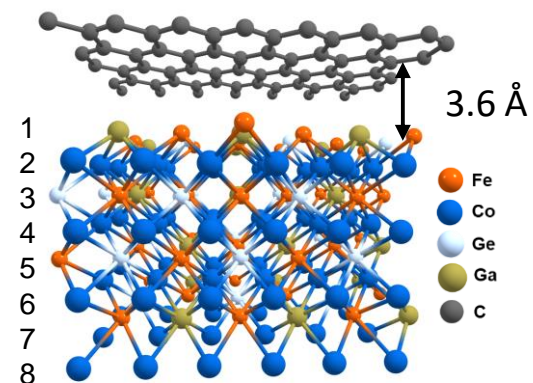
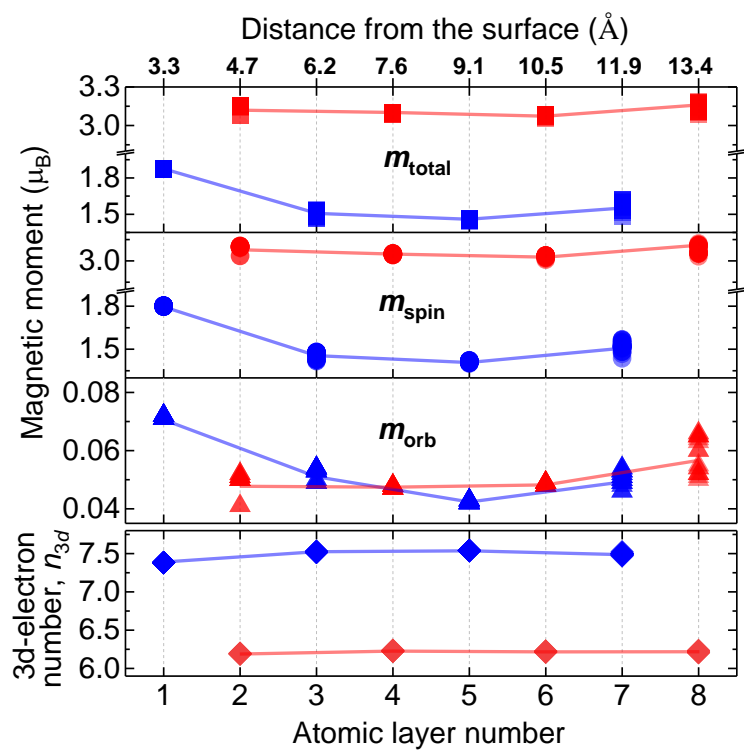
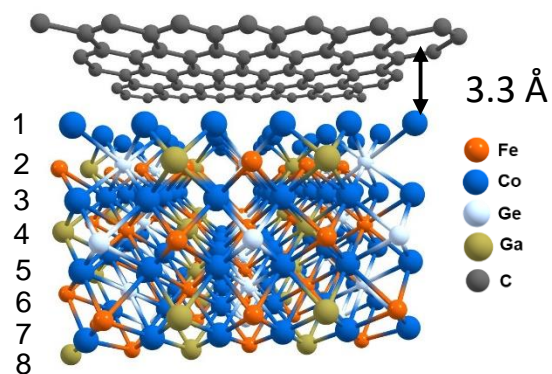
$L2_1$ 規則度 = 70%

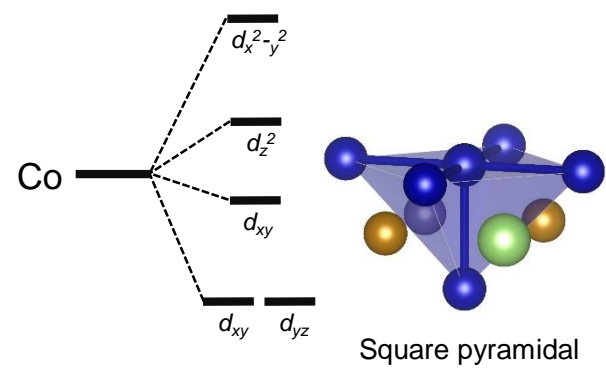
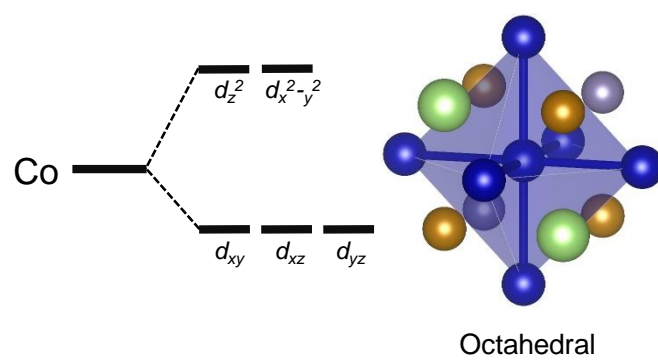
Grp/CFGG interface

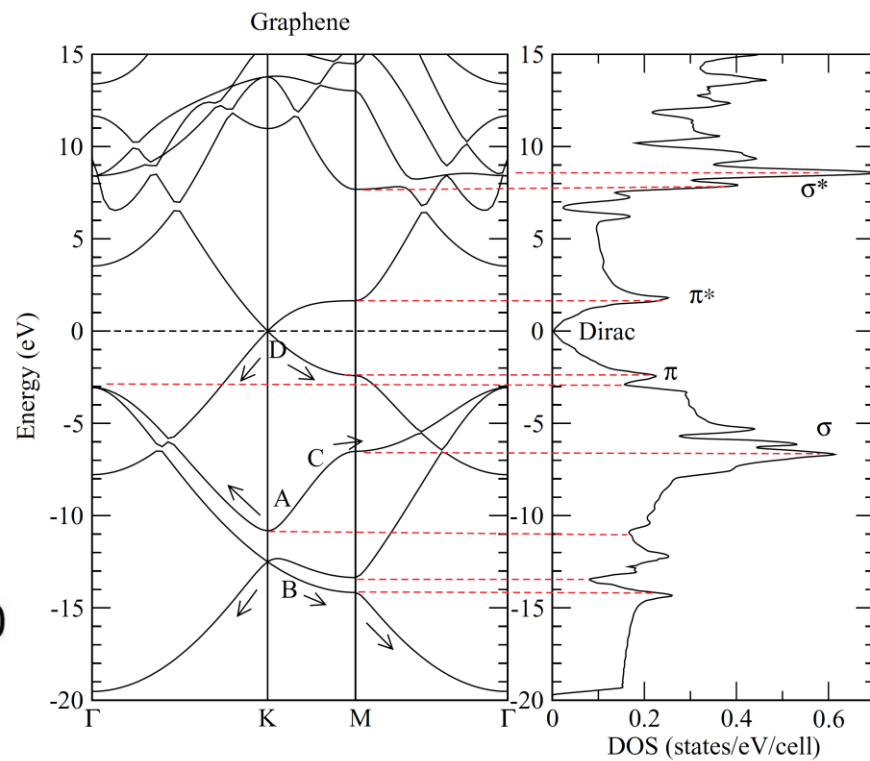
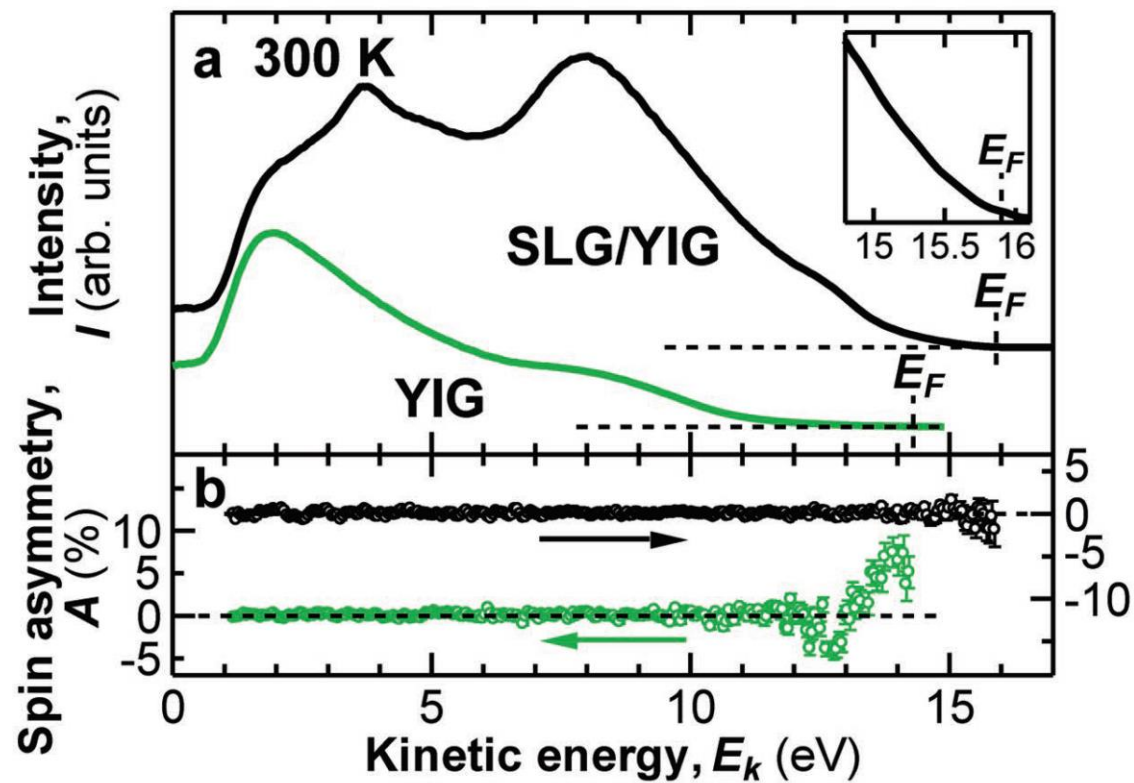
Graphene

$L2_1$ ordered CFGG
(40 nm)

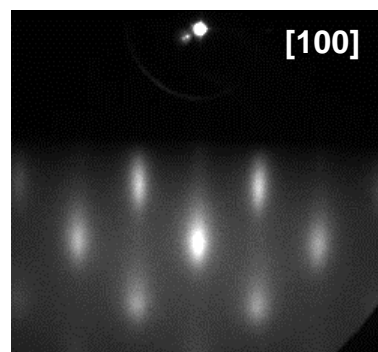
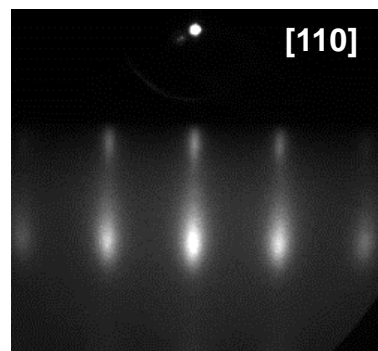
MgO(001)



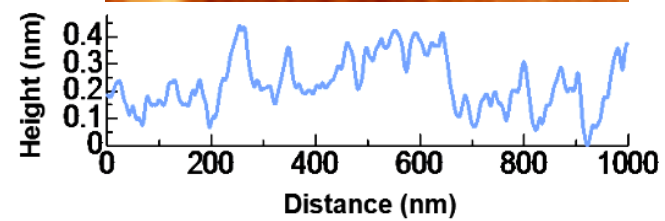
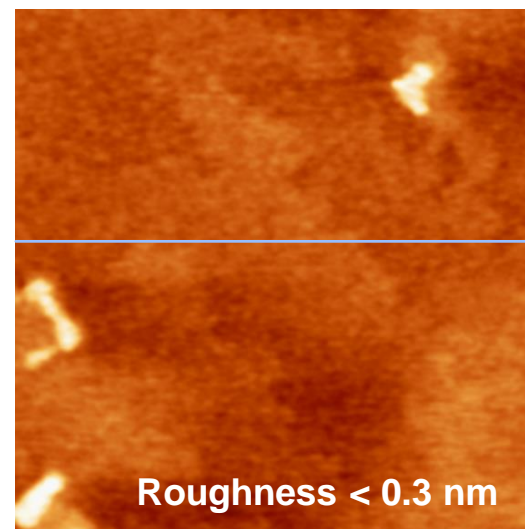




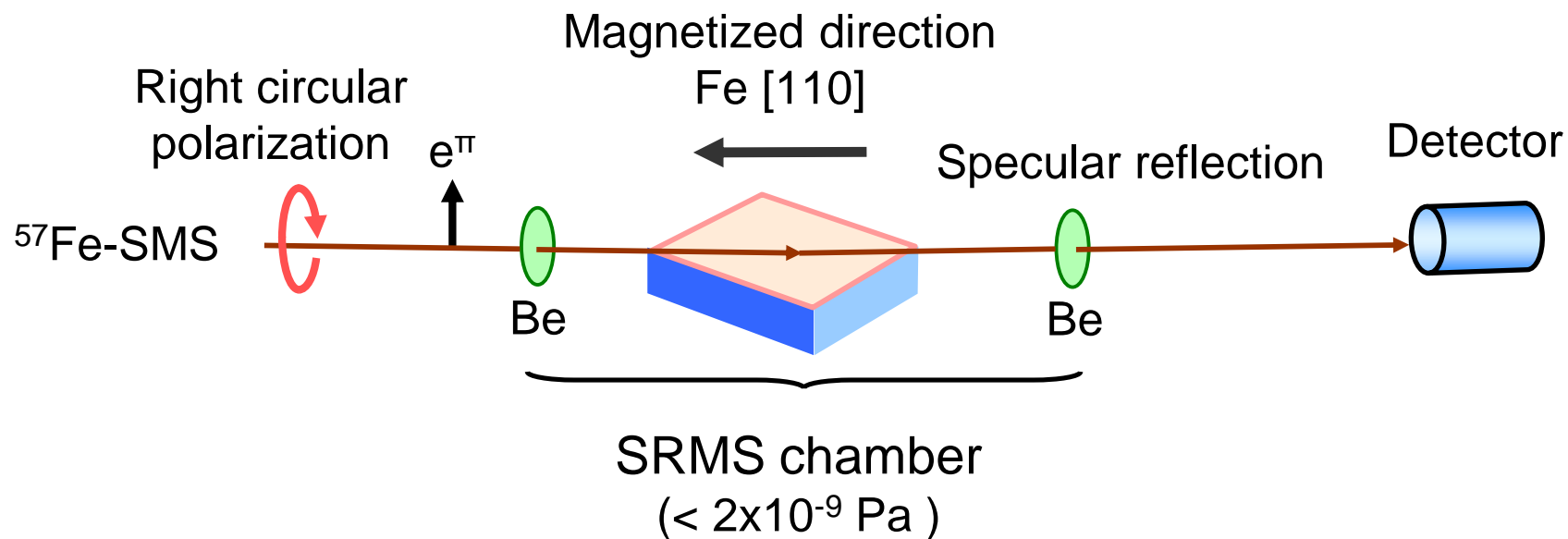
L. Zhang PRB 86 245430 (2012)



RHEED像(in situ)



AFM像(ex situ)



^{57}Fe probe layer (0.114 nm ~ 0.8 ML)

