

光-スピン変換による界面のスピン分裂バンドの計測と スピン流の自在生成

Light-spin conversion to probe spin-split interface states and to generate spin current

(応用物理学会推薦)

代表研究者	東京大学大学院理学系研究科	林 将光	The University of Tokyo	Masamitsu HAYASHI
協同研究者	東京大学大学院理学系研究科	河口 真志	The University of Tokyo	Masashi KAWAGUCHI
協同研究者	東京大学大学院理学系研究科	ラウ ヨンチャン	The University of Tokyo	Yong-Chang LAU

The spin-split electronic states at interfaces in thin film heterostructures are attracting significant interest as they are possibly responsible for variety of fascinating effects that were discovered recently. As such interface states are typically buried inside the heterostructure, it is difficult to probe their state with established techniques. We have studied helicity dependent photocurrent in thin film heterostructures to investigate such interface states. Using front and back light illumination, we show that the helicity dependent photocurrent can provide measures of the interface state. We also find that the helicity dependent photocurrent increases with increasing film thickness of a semi-metal (Bi) layer, suggesting that a spin current is created via irradiation of circularly polarized light. These results pave way to exploit photocurrent to probe interface states and circularly polarized light to generate spin current in semi-metals, both of which are essential for the development of Spintronics and, more broadly, condensed matter physics.

研究目的

近年の物性物理学では、物質のトポロジーに端を発する新規現象が次々に提唱、発見されている。これらの物質中では、スピン分裂した「ディラック型」や「ラシュバ型」のバンド構造の影響を受けて、電子が従来の性質とは全く異なる特性を有しており、量子コンピューティングなどへの応用が期待されている。これまで多くの実験は単結晶試料の表面、あるいはバルクそのものの状態に関するものがほとんどであった。今後はより革新的な現象・効果を求め、またデバイス化も見据えると、薄膜ヘテロ構造などの擬2次元構造や異種物質間の界面の状態に研究の中心がシフトすることが予想される。そのため、ヘテロ構造内部や界面の電子構造を特定できる手法の確立が必要不可欠となる。

本研究では、電子スピンとフォトンの相互作用を利用して、薄膜ヘテロ構造におけるスピン分裂した界面のバンドを計測できる手段を確立することを目指す。物質の電子構造を反映した光-スピン変換現象

を利用して、界面の電子構造をプローブする。大きな光-スピン変換効率を有する系を探索し、光を用いてスピンの向きが決まった電子の流れ、いわゆる「スピン流」を自在に生成できる物質・構造を明らかにする。

研究経過

試料作製・実験手法

スパッタリング法を用いてシリコン基板、または石英基板上に薄膜を成膜した。膜構成は基板/下地層(2)/Bi(*t*)/MgO(2)/Ta(1)である。()内の数字は各層の膜厚を表しており、単位はナノメートル(nm)である。MgO(2)/Ta(1)層はBi層を保護するためのキャップ層として用いた。下地層は(i)なし、(ii)Cu、(iii)Ag、(iv)W、(v)Ptを用いた。成膜する際、基板と母材(ターゲット)の間にメタルマスクを挿入し、メタルマスク上に形成した穴の形を利用して、パターンニングされた薄膜を基板上に作成した。本研究で用いたメタルマスクにはムカデ状の細線が数本並んだ穴が形成

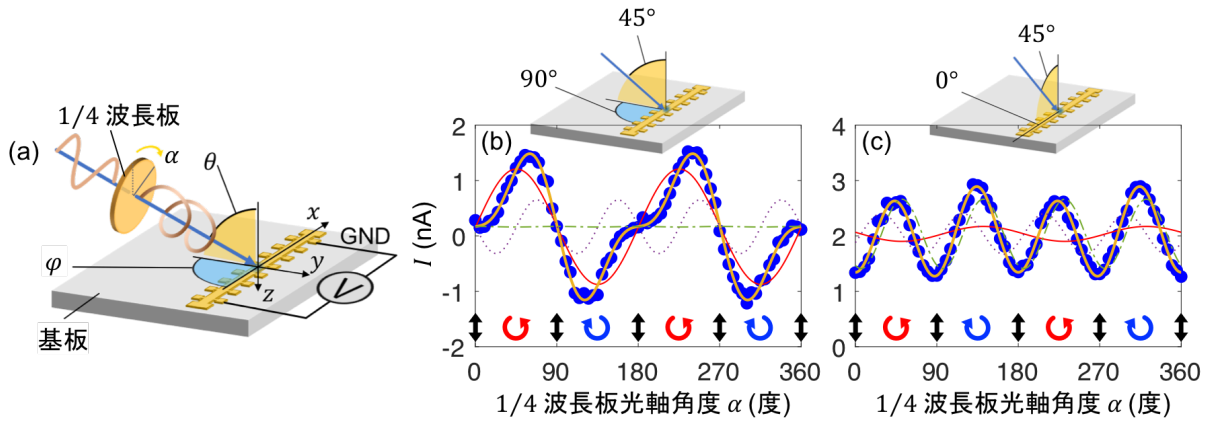


図 1. (a) 実験の模式図。黄色のムカデ状の細線が金属/Bi 2 層構造の素子を表す。光の入射角 θ と φ の定義を示す。(b,c) 下地層なしの Bi 薄膜における光起電流 (I) と $\lambda/4$ 波長板光軸角度 (α) の関係。 α を変えることで偏光を制御している。光の入射角度 φ が 90 度と 0 度の時の結果をそれぞれ (b) と (c) に青丸で示す。 θ はどちらも 45 度。オレンジの線は式(1)によるフィッティング結果であり、赤、緑、紫の線は式(1)の C 、 L_1 、 L_2 項の寄与を示す。

されている。基板上に成膜された薄膜の模式図を図 1(a) に示す。

光起電流の測定は室温、大気中で行った。試料 (ムカデ状の細線の中央部) にレーザー光を照射し、細線の両端の電圧を測定した。レーザー光には市販の半導体 CW レーザーを用いた。レーザーと試料の間には $\lambda/4$ 波長板を置き、試料に入射する光の偏光を制御した。具体的には、 $\lambda/4$ 波長板の光軸と光の入射面との角度を α と定義し、 α が 45 度、225 度の時に左回り円偏光、135 度、315 度の時に右回り円偏光が試料に照射されるように設定した (α が 0、90、180、270 度の時は直線偏光)。試料に入射する光の角度 (θ と φ) は図 1 に示すように定義した。レーザー光はチョッパーで 300 Hz 程度で変調し、試料で発生する起電力をロックインアンプで測定した。測定した電圧を試料抵抗で割り、光起電流 (I) を求めた。

実験結果

図 2(b,c) に下地層なしの Bi 薄膜における光起電流と $\lambda/4$ 波長板の光軸角度 α の関係を示す。光の入射角度 θ は 45 度に固定し、 φ が 90 度と 0 度の時の結果をそれぞれ (b) と (c) に示す。光起電流の α 依存性が φ の値によって大きく変わることが見て取れる。光起電流の特徴を定量化するため、以下の式でデータをフィッティングした。

$$I = C \sin 2\alpha + L_1 \sin 4\alpha + L_2 \cos 4\alpha + I_0 \quad (1)$$

フィッティングの結果は図 1(b,c) のオレンジの線で示す。各項の寄与を分析すると、 φ が 90 度の時は C 項

が支配的であるのに対し、 φ が 0 度の時は L_2 項の寄与が大きいのに対し、 φ が 0 度の時は L_2 項の寄与が大きいのに対し、前者は入射光が円偏光の時、その旋回性 (右回りか左回りか) で光起電流が変化することを示している。本研究ではこのような偏光依存光起電流の特性に着目した。以下、光の入射角度は θ を 45 度、 φ を 90 度に固定する。

図 2 に下地層なしの Bi 薄膜における光起電流 C 項の Bi 膜厚依存性を示す。Bi 膜厚の増加とともに C が大きくなり、飽和することが見て取れる。 C が飽和するのに必要な Bi 膜厚は数十 nm である。図 2 の挿入図には同薄膜の光の透過率の Bi 膜厚依存性を示す。この結果から Bi の光の進入長を見積もることができ、およそ 10 nm 程度であることがわかった。Bi は半金属であり、金属と比較すると進入長は大きい。

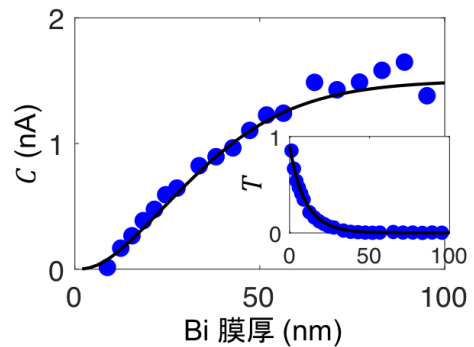


図 2. 下地層なしの Bi 薄膜における偏光依存光起電流 (C) の Bi 膜厚依存性。黒線はモデル計算結果を示す。挿入図: Bi 薄膜の光の透過率 (T) の膜厚依存性。

この値は C が飽和するのに必要な Bi 膜厚と比較すると小さい。これらの結果から、光の進入長とは異なる長さスケールを持つ現象が光起電流 C 項に寄与していることがわかる。 C 項の光の入射角度 (θ) 依存性、物質依存性 (BiSb 合金など) から (ここでは結果を割愛する)、偏光依存光起電流 (C 項) は光誘起スピン流と逆スピンホール効果が発関していることが明らかになった。その様子を図 3(a)に模式的に表わした。左周りの円偏光を照射すると、 $-y$ 方向のスピンを持つキャリアが表面近傍に誘起される。(右回りの円偏光を照射すれば、 $+y$ 方向のスピンを持つキャリアが表面近傍に誘起される。) 光の強度は進入長程度で減衰するため、スピンの向きが揃ったキャリア数も減衰し、スピンの濃度勾配を生む。この濃度勾配により、 $+z$ 方向にスピン流が流れる (図 3(a) オレンジ太矢印)。発生したスピン流は Bi 薄膜中で、逆スピンホール効果を通して電流に変換される (図 3(a)青点線矢印)。右回りの円偏光照射によって、スピンの向きが $+y$ 方向を向いている場合は、逆スピンホール効果によって流れる電流は図 3(a)青点線矢印と逆向きになる。円偏光の旋回性によって発生する電流の符号が反転するため、 C 項に寄与する。詳細は割愛するが、光誘起スピン流と逆スピンホール効果が誘起する電流をモデル化し、計算した結果が図 2 の黒線である。モデル計算が実験結果をよく再現す

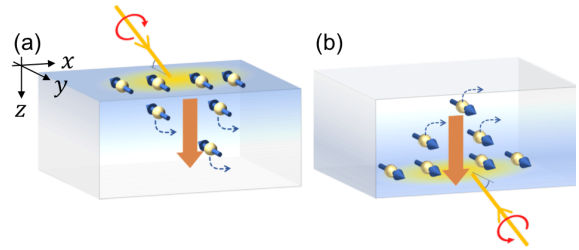


図 3. 光起電流が生成されるメカニズムの模式図。光誘起スピン流 (オレンジの太矢印) が発生、逆スピンホール効果によってスピン流が電流に変換される様子を青い点線の矢印で示す。表面入射と背面入射で生成される電流の向きは同じである。

ることが見て取れる。

次に、下地層と Bi 層界面の電子構造を評価するため、表面入射と背面入射による偏光依存光起電流を調べた。図 3 に示すように、表面入射 (図 3(a)) は $-y$ 方向から、背面入射 (図 3(b)) は $+y$ 方向から光を斜めに照射する (図 4(a)参照)。上述の光誘起スピン流は表面入射も背面入射も同じ方向に流れるため、 C 項は同じ大きさ、同じ符号を持つことが予想される。

($+y$ 方向のスピンを持つキャリアが $-z$ 方向に流れる場合と、 $-y$ 方向のスピンを持つキャリアが $+z$ 方向に流れる場合、流れるスピン流はどちらも同じである。)

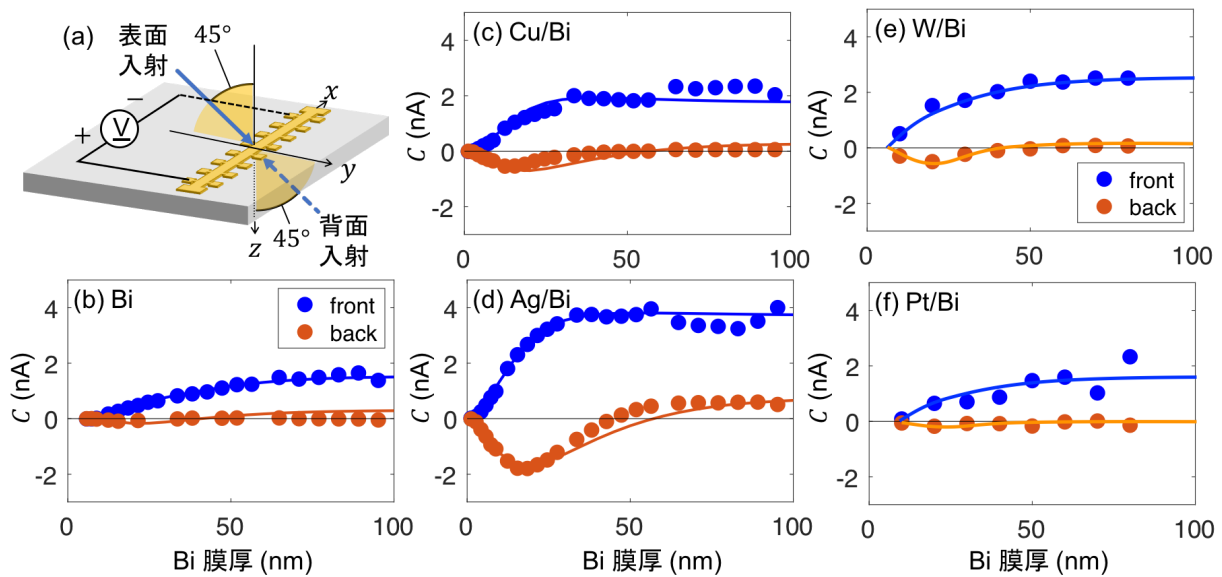


図 4. (a) 表面入射と背面入射の実験の模式図。(b-f) 偏光依存光起電流(C)の Bi 膜厚依存性。(b) Bi 薄膜、(c) Cu/Bi 薄膜、(d) Ag/Bi 薄膜、(e) W/Bi 薄膜、(f) Pt/Bi 薄膜。青丸は表面入射、オレンジ丸は背面入射の結果。(b-d)の青線、オレンジ線はモデル計算の結果。(e,f)の青線、オレンジ線はガイド。

図 4 に、各試料に円偏光を表面入射した場合（青丸）と背面入射（オレンジ丸）した場合の C 項の大きさを Bi 膜厚に対してプロットした結果を示す。まず下地層なしの Bi 薄膜の結果（図 4(b)）を見ると、背面入射の場合、 C は全膜厚領域でほぼゼロである。表面入射に着目すると、Bi 膜厚が ~10 nm 程度まで C がゼロであり、基板と接する側の Bi 薄膜とその上に積層されている Bi 薄膜の光応答が異なることが示唆されている。図 2 の挿入図に示したように、Bi の光の進入長は 10 nm 程度であるため、背面入射で C がゼロになっているのは、基板と接する側の薄膜で光誘起スピン流が生成されなかったためと考えられる。

下地層に金属を用いた場合、背面入射で C の符号が負となる領域がある。 C の符号変化は図 3 のモデルでは説明できない。下地層と Bi 層の界面でスピン分裂バンドが形成されてスピン流の吸収が発生し、光誘起スピン流の分布が変調された結果、 C の符号が変化したと考えられる。界面の効果を取り入れた計算結果を図 3(b-d) の実践で示す。(Pt/Bi、W/Bi 薄膜はモデル計算をするための材料定数が取得できなかったため、ガイド線を示した。) モデル計算と実験結果で良い一致が見られた。これらの結果から、背面入射の負の C が大きいほど、スピン流が強く吸収されていることが示唆される。図 4 の結果を見ると、Ag/Bi 界面で強いスピン流吸収が起きていることがわかり、スピン分裂バンドが形成されている可能性が高い。

考察

今後は、光誘起スピン流と界面でのスピン吸収の微視的機構の解明が重要な課題である。これらの現象の理解は、埋もれた界面の電子構造の評価や、スピン流を介した光駆動磁化制御技術への展開が期待される。

研究の発表

口頭発表

1. 林 将光, スピン軌道ヘテロ構造の電子物性, 東北大学電気通信研究所 共同プロジェクト研究会, 2018 年 11 月 1 日, 茂庭荘, 仙台.
2. 河口真志, 廣瀬葉菜, 丸井幸博, 林 将光, スピン軌道ヘテロ構造におけるスピン変換現象, 第 220 回研究会/第 36 回光機能磁性デバイス・材料

専門研究会, 2018 年 11 月 22 日, 中央大学, 東京.

3. 林 将光, スピン軌道相互作用が誘起するスピン物性, 応用物理学会: 強制的秩序とその操作に関わる研究グループ 第 8 回研究会, 2019 年 1 月 4 日, 東京大学, 東京.
4. H. Hirose, N. Ito, M. Kawaguchi, M. Hayashi, Optically induced spin transport in semi-metal heterostructures, 第 66 回応用物理学会春季学術講演会, 2019 年 3 月 12 日, 東京工業大学, 大岡山.
5. 廣瀬葉菜, 河口真志, 林将光, 金属/半金属ヘテロ構造における界面とバルクのスピン軌道相互作用の分離, 第 74 回日本物理学会年次大会, 2019 年 3 月 16 日, 九州大学, 福岡.
6. M. Hayashi, Spin conversion effects in spin orbit materials. Spin Caloritronics X, 5/22/2019, Groningen, The Netherlands.
7. 廣瀬葉菜, 河口真志, 林将光, スピン軌道物質における光-スピン変換現象, 第 86 回ナノマグネティクス専門研究会, 2019 年 7 月 5 日, 東京大学, 本郷キャンパス.
8. H. Hirose, M. Kawaguchi, M. Hayashi, Light-spin conversion through interfacial spin-momentum locked states in semimetal heterostructures, 64th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 11/5/2019, Las Vegas, NV.
9. 河口真志, 丸井幸博, 廣瀬葉菜, 川田拓弥, 梶山陸, 林将光, 光で見るスピン軌道相互作用, 応用物理学会スピントロニクス研究会・日本磁気学会スピンエレクトロニクス専門研究会, 2019 年 11 月 22 日, 中央大学, 駿河台記念館.
10. 林将光, スピン軌道物質の光-スピン結合, 日本磁気学会第 41 回光機能磁性デバイス・材料専門研究会, 2020 年 1 月 30 日, 長岡技術科学大学, 東京サテライト.

誌上発表

1. H. Hirose *et al.*, Interface contribution to the helicity dependent photocurrent in metal/semimetal bilayers. 投稿準備中.
2. M. Kawaguchi *et al.*, Giant light induced spin density in Dirac semimetals. 投稿準備中.