OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Studies on electrical spin injection and spin transport in organic materials
Author(s)	神谷, 建
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/61795
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　神　谷　建　）	
論文題名	Studies on electrical spin injection and spin transport in organic materials （有機材料における電気的スピン注入およびスピン輸送に関する研究）

論文内容の要旨

炭素、窒素などの軽元素から構成される有機材料は、スピン軌道相互作用が小さく、電子スピンの緩和時間が大きいことが知られている。2004年に有機材料を利用した巨大磁気抵抗効果が報告されて以来、有機材料における電子スピンの注入・輸送特性に関する研究が積極的になされてきた。近年では、磁性体電極を用いたスピンバルブ素子の電気的な評価に加え、光学的または動力学的手法を用いて有機材料にスピンを注入しその輸送現象を調べるなど、有機材料スピントロニクスの研究範囲が広がってきている。一方、有機材料におけるスピン注入・輸送の研究が進むことで、従来の積層型2端子スピンバルブの実験で得られる素子特性は、有機材料のスピン輸送特性だけでなく、i)スピン注入界面での磁気抵抗効果、ii)スピン注入に依らない磁気抵抗効果、iii)電極/有機層の非急峻な界面によるスピン散乱効果の複合効果であることが議論されてきた。有機材料および有機スピントロニクス素子の適切な評価のためには、これらの要因を個々に議論することが求められる。本研究では、横型4端子スピンバルブの作製によって有機材料内のスピン輸送特性のみを検出することと、上記複合効果のうちスピン注入界面での磁気抵抗効果に焦点をあてた2種の実験を行い、有機材料におけるスピンの振る舞いを記述している。

まず、有機材料中において、電荷の流れである電流とスピンの流れであるスピン流を空間的に分離できる素子を作製した。互いに分離された電流とスピン流が示す磁気抵抗効果をそれぞれ測定することで、上記三つの要因を排除し、有機材料中のスピン輸送の観測および議論が可能になる。具体的には、有機導体α-$(BEDT\text{-}TTF)_2I_3$の板状単結晶を、プラスチック基板上に成膜した8端子の微細な磁性電極上に配置し、電流端子の接続に対して測定端子の接続を回路的に切り離すことで、電流とスピン流の分断を実現した。プラスチック基板上の微細加工技術、デバイスへの静水圧印加、磁性体/有機界面の保護層の導入および適切な磁性体と有機材料の選択により、素子作製における従来の技術的問題点を解決した。実験では、有機材料内を拡散するスピン流が拡散距離に応じてスピン緩和していくようすを、距離に依存した磁気抵抗効果として解析することで、スピン拡散長、スピン緩和時間およびスピン軌道相互作用を算出した。また、運動量緩和時間とスピン緩和時間の比を単層・多層グラフェンと比較することで、α-$(BEDT\text{-}TTF)_2I_3$単結晶の層状構造が材料内部におけるスピン緩和を軽減していることを議論した。この結果は将来の分子設計に対する指針となる。

次に、磁性体/有機界面における電子スピンに依存した界面磁気抵抗効果を選択的に検出する実験を行った。具体的には、磁性体/有機/非磁性体からなる片側磁性電極の素子を作製するうえで、磁性体の支持基板である$SrTiO_3$単結晶基板の面方位が、磁性体/有機界面のトンネル異方性磁気抵抗効果（TAMR効果）に与える影響を調べた。片側磁性電極の構造によってスピン輸送および散乱に関わる効果を排除することに加えて、磁性電極そのものによる異方性磁気抵抗効果が無視できる程度に小さいことを示すことで、得られた素子特性がTAMR効果の影響を強く反映していることを議論している。結果として、基板選択によって誘起された磁性電極の結晶歪みが、低磁場下において界面に大きなTAMR効果を生じさせることを示した。通常、面内磁場によるTAMR効果は、面内磁場の角度変化および強度変化に対して磁気抵抗比に大きな変化を示さないが、本実験では、低磁場下における大きなTAMR効果の存在によって、TAMR効果の面内磁場角度依存性と強度依存性の間に一桁程度の磁気抵抗比の差異が現れた。この結果は、磁性体の結晶歪みによって低磁場下で磁性体/有機界面に面外磁化成分が現れることに起因すると考えられ、今後、有機/磁性体界面の磁気異方性を積極的に制御することでより大きなTAMR効果の発現が期待される。

様式7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　神谷　建　）	
論文審査担当者	（職）　氏名 主査　教授　夛田博一 副査　教授　鈴木義茂 副査　教授　吉田博

論文審査の結果の要旨

有機材料は金属材料に比べ電子スピンの緩和時間が長いため、スピントロニクス分野において新規材料として期待され、電子スピンの輸送特性が活発に研究されている。一般に、材料におけるスピン輸送特性を調べるためには、磁性電極を用いた4端子非局所測定法による実験が必要とされる。しかしながら、有機材料では、安定した磁性電極界面の作製が困難であることや、有機材料の高い抵抗率のために4端子素子の作製が困難であった。そのため、従来の研究では積層型2端子素子によって有機材料のスピン輸送特性が議論されてきた。2端子測定法では、有機材料の本質的なスピン輸送特性に加え、有機材料と磁性電極の界面効果、磁性電極自体の特性などが複雑に混在するため、スピン輸送の議論が困難となる。本論文では、有機材料のスピン輸送特性および磁性電極との界面効果を個別に議論することを目的とし、測定手法を工夫して計測を行い、有機材料のスピン輸送に関する新しい知見を導出している。

スピン輸送特性の研究では、支持基板、有機材料、磁性電極構造を適切に選択することおよび、微細加工技術や圧力下の測定手法を用いることで従来の技術的困難を解決し、4端子非局所測定法の開発を実現した。本論文では層状構造の擬二次元導体であるα-(BEDT-TTF)$_2$I$_3$単結晶を試料とし、そのスピン拡散長、スピン緩和時間およびスピン軌道相互作用を定量的に評価している。また、グラフェンにおける先行研究と比較することで、α-(BEDT-TTF)$_2$I$_3$単結晶の層状構造が、スピン輸送特性に有利に働いていることを議論し、将来の分子設計の指針を示した。磁性電極との界面効果の研究では、磁性体/有機/非磁性体からなる片側磁性電極の素子を作製することで、界面効果に焦点をあてた解析を行っている。その上で、磁性電極を結晶成長させる際の支持基板の面方位によって、有機材料と磁性電極の界面効果が変化することを示し、将来的に有機－磁性体界面の磁気異方性の制御によって界面効果を強めることが可能であることを議論した。これらの結果は、有機スピントロニクスの進展に寄与するものであり、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。