東京大学大学院 新領域創成科学研究科 基盤科学研究系 物質系専攻

平成26年度

修士論文

## スピン吸収法を用いた

強磁性体の正逆スピンホール効果の測定

2015年1月27日提出 指導教員:大谷義近教授

47-136007: 大森 康智

Copyright © 2015, 大森 康智.

# 目次

第1章	序論	1
1.1	概念	1
	1.1.1 スピントロニクス	1
	1.1.2 スピンホール効果と逆スピンホール効果	2
	1.1.3 異常ホール効果	3
1.2	目的と本論の構成................................	3
笛っ音	其礎理論	5
オフィン フロ		5
2.1	人ビノ侃	כ ר
	2.1.1 人ビン似仔電流	5
	2.1.2 スピン畜積と拡散万程式	6
2.2	非局所スピン注入・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	6
2.3	非局所スピンバルブ測定	7
2.4	スピン吸収法	9
第3章	実験方法	11
3.1	試料作製	11
	3.1.1 リフトオフ法	12
	3.1.2 電子線リソグラフィー	12
	3.1.3 堆積法	13
3.2	測定方法	14
第4章	閉回路における逆スピンホール効果	16
4 1	素子設計	16
4.2	(1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1) (1)	18
4.2	天歌和不 • • • • • • • • • • • • • • • • • • •	10
4.5	わ示	17
	4.3.1 1 (人口)[年初]	17 71
		/ 1
	4.3.2 3 (次元牌桁	21

目次

4.4	小活と	と今後の展望	. 22
第5章	金属引	<u> 歯磁性体パーマロイのスピンホール効果</u>	23
5.1	素子詞	設計	. 23
5.2	結果と	と考察	. 23
5.3	ホーノ	ル抵抗率の理論的考察...............................	. 29
	5.3.1	異常ホール抵抗率	. 29
	5.3.2	スピンホール抵抗率	. 30
	5.3.3	逆スピンホール抵抗率	. 30
	5.3.4	各ホール効果の関係..............................	. 31
5.4	補足爭	実験	. 32
	5.4.1	磁場角度依存性	. 32
	5.4.2	印加電流依存性	. 33
	5.4.3	印加電流方向不変性............................	. 33
5.5	小括と	と今後の課題	. 34
第6章	総括		35
参考文献	<u>.</u>		36
謝辞			39

2\_\_\_\_\_

## 第1章

# 序論

## 1.1 概念

#### 1.1.1 スピントロニクス

現代社会におけるエレクトロニクスは、様々な情報技術の根幹を担う重要な役割を果たして いる。より高速、高集積なエレクトロニクスデバイスが求められる一方で、従来の技術の延長 では物理的限界が近づいていると考えられている。また、高度なエレクトロニクスデバイスに 付随する大きな消費電力は、今後のエネルギー社会において避けがたい問題である。これらエ レクトロニクス技術の抱える課題への一つの解答として注目を浴び、盛んに研究されるのがス ピントロニクスという分野である。スピントロニクスは電子の持つ更なる自由度である「スピ ン」を利用しエレクトロニクスに組み合わせることで従来のデバイスを凌駕するデバイス応用 を目標とする分野である。スピン自由度を積極的に用いるスピントロニクスは、従来のエレク トロニクスに比較して、電流に付随する消費電力や、メモリの揮発性、動作速度といった課題 を克服できる可能性から、近年盛んに研究され、応用の期待される一分野に成長している。ス ピンは、一つの電子に対して、アップスピン↑またはダウンスピン↓の2種類の状態を持つ。 電子スピンは物質中の磁性の起源であり、磁気工学は磁性を利用した応用分野に相当する。電 子に付随する電荷とスピンを統一的に理解し、利用しようとする、スピントロニクス分野は、 A. Fert らや P. Grunberg らによって独立に発見された巨大磁気抵抗効果 (GMR) [1, 2] に端を 発したといわれ、彼らには 2007 年ノーベル物理学賞が贈られた。この発見が可能となったの は近年の微細加工技術の向上により、物質中で電子の流れに付随してスピンを保持できる長さ スケールの系を作製できるようになったことによると考えられる。この長さスケールはスピン 緩和長あるいはスピン拡散長などと呼ばれ、金属中で典型的には数ナノメートル〜数百ナノ メートル程度である。このような長さスケールにおいては、電子に付随するスピンの流れを考 えることができる。このスピン自由度の流れは、今日ではスピン流と呼ばれる新たな概念とし て成立している [3]。スピン流という概念そのものは、基礎物理的観点からも興味が持たれ、 また、現在スピントロニクス研究では、スピン流の効率的な創出や検出、制御の手法を開拓す

ることが重要となっている。本研究では特に、創出及び検出を可能とすることから重要視さ れるスピンホール効果 (SHE) に注目した。スピンホール効果は、Dykonov と Perel によって 1971 年に最初に予見され [4]、さらに後に Hirsch によって再提案された [5] 効果であり、スピ ンと電荷を変換する効果として利用できる。

### 1.1.2 スピンホール効果と逆スピンホール効果

物質中を運動する電子はスピン軌道相互作用の影響を受ける。伝導電子がスピン軌道相互作 用によって運動の変化を受ける機構は様々にあるが、Karplus & Luttinger が異常ホール効果に おいて、スピン軌道相互作用による効果を初めて議論した [6]。これは内因性機構と呼ばれ、 バンド構造に起因して特定のバンド中の電子が受ける効果が提唱されている。他にも、Smit や Berger によって、外因性機構と呼ばれる不純物散乱による skew 散乱機構 [7] 及び side jump 機構 [8] が提唱された。機構は様々にあるが、伝導電子がスピン軌道相互作用を通じて受ける 散乱はスピンに依存するため、横方向への伝導度がスピンによって異なる。これがスピンホー ル効果 (SHE: Spin Hall Effect) の起源である。一方でスピンホール効果の逆効果を考えること も可能で、逆スピンホール効果 (ISHE: Inverse Spin Hall Effect) と呼ばれる [9, 10, 11]。スピ



図 1.1. (a) スピンホール効果及び (b) 逆スピンホール効果の模式図。

ンホール効果は図 1.1(a) のように、物質中に電流を流すと電流とスピン量子化軸の外積方向 にスピン流が生じる効果である [5, 12, 13]。試料端にはスピン蓄積が生じる。以下ではスピン ホール効果のことを、逆スピンホール効果と区別して特に DSHE (Direct Spin Hall Efect) と書 くことがある。最初にスピンホール効果が検出されたのは半導体 GaAs において、試料端のス ピン蓄積が、カー効果を用いた光学的手法によって測定された [14] というものである。スピ ンホール効果の着目すべき点として、非磁性体においては磁化も磁場も無いところに純スピン 流を生成できる点にある。また、逆スピンホール効果の模式図を図 1.1(b) に示す。逆スピン ホール効果は入力としてなんらかの方法でスピン流を注入したときに、スピンホール効果と同 等の機構によって今度はスピン流とスピン量子化軸の外積方向に電流が生じるというものであ る。試料端には電荷蓄積が生じ、電圧として測定可能になる [9, 10, 11]。このことから、逆ス ピンホール効果はスピン流を電気的に測定する方法として様々に応用されている。スピンホー ル効果によって電流からスピン流に変換される変換率をスピンホール角といい、

$$j_{\rm S} = \alpha_{\rm H} j \tag{1.1}$$

と書く。また、逆スピンホール効果によるスピン流から電流への変換率も通常は区別せずスピンホール角 *α*<sub>H</sub> と書く。

### 1.1.3 異常ホール効果

強磁性体中では、電流と磁化の外積方向に電圧が生じる異常ホール効果が知られている。異 常ホール効果の起源もスピン軌道相互作用を介した伝導電子の運動の変化によるものである と考えられており、スピンホール効果の機構として提唱される skew 散乱、side jump、内因 性機構は、いずれも歴史的には異常ホール効果を説明する機構として提案されたものであっ た [6, 7, 8]。強磁性体においてもスピンホール効果が観測されることが最近明らかになってき ており [15, 16, 17, 18]、異常ホール効果との関連を明らかにすることは、本研究での主要な目 的の一つである。

## 1.2 目的と本論の構成

本研究は金属中でのスピンホール効果に着目し、スピン吸収法と呼ばれる手法を用いて測定 を行った。まず第2章では金属中の伝導電子を介したスピン輸送の基礎的な理論を紹介する。 その理論を基にスピン吸収法の概要を述べ、解析解の導出を行う。第3章では、本研究におけ る実験方法を述べる。繰り返しリフトオフ法による実際のデバイス作製手順及び測定系につい て説明する。続く第4、5章では本研究で得られた結果を示し、その結果に対する考察を述べ る。第4章は、本論の主要な目的と外れるが、逆スピンホール効果によって実際に閉回路内に 電流を得る実験を試み、一定の成果を得たので、ここに紹介する。第5章が本論の主要な部分 である。近年強磁性体中で逆スピンホール効果が検出できることが明らかになってきている。 本研究ではスピン吸収法によって正逆両方のスピンホール効果の測定を行い、強磁性体のスピ ンホール効果の発現機構に迫ることを目的に実験を行った。第4、5章の実験で得られた結果 をまとめると以下のようになる。

(1) 閉回路における逆スピンホール効果の研究(4章)。逆スピンホール効果によって電流が 実際に得られることを検証することを目的に実験した。逆スピンホール効果はスピン流 を電流に変換する効果であると考えられているため、スピンホール効果を有する物質を リング状にしてスピン流を注入すると、ループ電流が流れると考えられる。しかし、実 験的な電流の検証はこれまでに行われておらず、本研究によってループ電流が生じるこ とが初めて実証され、また、定量的に表現された。なお、本研究成果は、Appl. Phys. Lett. 誌において報告したものである[19]。 (2) 強磁性体のスピンホール効果の研究 (5章)。強磁性体中で生じるスピンホール効果の研究はまだ始まったばかりである。現在鉄ニッケル合金であるパーマロイ (Py) や 3d 遷移金属強磁性体において最近スピンホール効果が報告され始めたが [15, 16, 17, 18]、定量的な理解や機構に関する知見は乏しい。強磁性体をスピンホール効果の研究の舞台として広げるとともに、実験的にその機構に迫りたいと考えた。本研究では、スピン吸収法を用いた、Pyの正及び逆スピンホール効果の測定を行った。また、低温においてスピンホール効果と異常ホール効果はスピン偏極率を介して関係付けられることを明らかにした。一方で高温ではスピンホール効果に特異な振る舞いが見られた。高温側でスピンホール効果だけに生じた温度依存性の理解については、今後の課題となる。

## 第2章

# 基礎理論

## 2.1 スピン流

スピン流は、スピン角運動量の流れとして定義される。スピン流には大きく分けて、スピン 波によって作られるスピン波スピン流と、伝導電子がスピンの流れを運ぶ伝導電子スピン流が あるが、本項では後者のみを取り扱う。

#### 2.1.1 スピン依存電流

物質中を流れる電子には↑と↓の2 チャネルが存在することを仮定する [20]。各物理量は チャネル毎に定義される。以下、添字 σ は↑または↓を表す。

スピン依存電流密度  $j_{\sigma}$  は、電場 E によって駆動される成分とキャリア密度の平衡状態からの変化分  $\delta n_{\sigma}$  によって駆動される拡散流の和で表され、

$$\boldsymbol{j}_{\sigma} = \sigma_{\sigma} \boldsymbol{E} - e \boldsymbol{D}_{\sigma} \nabla \delta \boldsymbol{n}_{\sigma} \tag{2.1}$$

と書ける。ここで、 $\sigma_{\sigma}$ は各チャネルの電気伝導度、 $D_{\sigma}$ は拡散定数、eは電子の素電荷である。 ここでは簡単のため等方的な電気伝導度を仮定する。キャリア密度の変分  $\delta n_{\sigma}$ は、線形応答 が成り立つ範囲において、 $\delta n_{\sigma} = N_{\sigma}\delta\epsilon_{\sigma}$ と書ける。ここで  $N_{\sigma}$ はスピン依存バンドの状態密度 であり、 $\delta\epsilon_{\sigma}$ は化学ポテンシャルの平衡からの変分量である。さらに、アインシュタインの関 係式

$$\sigma_{\sigma} = e^2 N_{\sigma} D_{\sigma} \tag{2.2}$$

を用いて、スピン依存電流密度  $j_{\sigma}$  は

$$\boldsymbol{j}_{\sigma} = -(\sigma_{\sigma}/e)\nabla\mu_{\sigma} \tag{2.3}$$

と変形できる。ここで、 $\mu_{\sigma}$ は電気化学ポテンシャル $\mu_{\sigma} = \epsilon_{\sigma} + e\phi$ であり、 $\phi$ は静電ポテンシャルである。この時、電流密度 *j* 及びスピン流密度 *j*<sub>S</sub> は、それぞれ

$$\boldsymbol{j} = \boldsymbol{j}_{\uparrow} + \boldsymbol{j}_{\downarrow} \tag{2.4}$$

$$\mathbf{j}_{\mathbf{S}} = \mathbf{j}_{\uparrow} - \mathbf{j}_{\downarrow} \tag{2.5}$$

と定義できる。通常、非磁性体中では各物理パラメータにスピン依存性は無いので、 $j_{\uparrow} = j_{\downarrow}$ となり、 $j_{S} = 0$ である。一方強磁性体中では電気伝導度にスピン依存性が生じ、通常は電流と同時にスピン流も流れている。このような状況はスピン偏極電流と呼び、スピン偏極率 p を、

$$p = \frac{\sigma_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow}}{\sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow}} = \frac{j_{\uparrow} - j_{\downarrow}}{j_{\uparrow} + j_{\downarrow}}$$
(2.6)

と定義すると、強磁性体中でスピン流は、 $j_{S} = p \cdot j$ と表せる。また非磁性体においても特殊な 条件下ではスピン流を創り出すことができる。特にj = 0かつ $j_{S} \neq 0$ の場合、スピンだけの流 れが生じており、これを純スピン流と呼ぶ。

#### 2.1.2 スピン蓄積と拡散方程式

定常状態において、電流密度、及びスピン流について連続の式

$$\nabla \cdot (\mathbf{j}_{\uparrow} + \mathbf{j}_{\downarrow}) = 0 \tag{2.7}$$

$$\nabla \cdot (\mathbf{j}_{\uparrow} - \mathbf{j}_{\downarrow}) = -e \frac{\delta n_{\uparrow}}{\tau_{\uparrow\downarrow}} + e \frac{\delta n_{\downarrow}}{\tau_{\downarrow\uparrow}}$$
(2.8)

が成り立つ。ここで、 $au_{\sigma\sigma'}$ は  $\sigma$  から  $\sigma'$  へとスピンが反転する散乱時間である。さらに、定常 状態において詳細釣合の式  $N_{\uparrow}/\tau_{\uparrow\downarrow} = N_{\downarrow}/\tau_{\downarrow\uparrow}$ を考えると、電気化学ポテンシャルについての拡 散方程式

$$\nabla^2 (\sigma_{\uparrow} \mu_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow} \mu_{\downarrow}) = 0 \tag{2.9}$$

$$\nabla^2(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) = \lambda_{\rm sf}^{-2}(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) \tag{2.10}$$

が成り立つ。 $\lambda_{sf}$ をスピン拡散長と呼ぶ。ただし、 $\lambda_{sf} = \sqrt{D\tau_{sf}}$ であり、 $\tau_{sf}^{-1} = \frac{1}{2}(\tau_{\uparrow\downarrow}^{-1} + \tau_{\downarrow\uparrow}^{-1}),$  $D^{-1} = (N_{\uparrow}D_{\downarrow}^{-1} + N_{\downarrow}D_{\uparrow}^{-1})/(N_{\uparrow} + N_{\downarrow})$ である。

ここで、スピン蓄積  $\mu_{s} = \mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}$  と定義すると、スピン蓄積に関して拡散方程式が成り立つ。金属中のスピン伝導は、適切な境界条件下で上式を解くことによって得られる [21]。

## 2.2 非局所スピン注入

スピントロニクスではスピン流をいかにして創出するかが一つの重大な課題となっている。 本研究では強磁性体から非磁性体に電流を注入することによるスピン注入法を用いる。他のス ピン流生成機構として、スピンポンピング [10, 22, 23, 24] やスピンゼーベック効果 [25, 26] な どが提案されているが、本稿では割愛する。

強磁性体から非磁性体に電流を流すと、強磁性体のスピン偏極電流が非磁性体中に注入され、非磁性体内にスピン蓄積を誘起することができる。このスピン蓄積は、式 (2.10) に従い、およそスピン拡散長のスケールで減衰し、拡散流としてスピン流が生じる。ここで、図 ??(a) のように電流を流すと、電流を流した左方向だけでなく、右方向にもスピン流が生じる。これ は電荷の流れを伴わないため純スピン流となり、、図 2.1(b) のように拡散する。本研究ではこ



図 2.1. (a) 非局所スピン注入の模式図。(b) 電気化学ポテンシャルの分布。

のように生成した純スピン流を利用してスピンホール効果の研究を行う。以下でまず非局所ス ピンバルブと呼ばれるスピン流の電気的測定方法を述べる。続いて未知の物質のスピン拡散長 やスピンホール角を測定するのに用いる、スピン吸収法と呼ばれる手法を説明する。

## 2.3 非局所スピンバルブ測定

上述の非局所スピン注入の素子に更に強磁性体細線を加え、図 2.2(a) のような、強磁性体 (F<sub>1</sub>) /非磁性体 (N)/強磁性体 (F<sub>2</sub>) という構造を考える。2.2 節と同様に F<sub>1</sub> から非磁性体 N に 電流を流すと、スピン蓄積が非磁性体中を拡散する。スピン蓄積がもう一方の N/F<sub>2</sub> 界面まで 消失せず残っていた場合、スピン蓄積は F<sub>2</sub> 中にも拡散していき、純スピン流が流れる。強磁 性体中では電気伝導度のスピン依存性があるために、電気化学ポテンシャルの収束値が非磁 性体細線の場合と異なり、図 2.2(a) の素子配置で測定を行うと、有限の電圧差が生じる。こ こで、両強磁性体の磁化の向きに依存して信号が変化することに注意する必要がある。F<sub>1</sub> の 磁化の向きにスピンの量子化軸を固定すると、F<sub>2</sub> 磁化が平行の場合と反平行の場合で F<sub>2</sub> の 電気伝導度のスピン依存性は反転する。結果、図 2.2(b) に示すように生じる電圧差も反転す る。実際の測定においては、平行・反平行で得られる電圧差  $\Delta V_{NLSV}$  を印加電流 *I* で割った、  $\Delta R_{NLSV} = \Delta V_{NLSV}/I$ をスピン蓄積信号と定義する。この測定は、図 2.2(c) のような 1 次元モ デルを考えて、拡散方程式 (2.9), (2.10) を解析的に解くことによって定量的に評価できること が知られている。そのとき、境界条件は、

- 各界面での電気化学ポテンシャル μ<sub>σ</sub> が連続であること。
- スピン依存電流  $j_{\sigma}$  が保存されること。



図 2.2. (a) 非局所スピンバルブ素子の模式図。 (b) 電気化学ポテンシャルの様子。(c) 等価な 1 次元モデル。

を課す。計算には、スピン抵抗と呼ばれる量を定義すると便利である。スピン抵抗は

$$R_{\rm S} = \frac{1}{(1-p^2)} \frac{\rho \lambda_{\rm sf}}{A} \tag{2.11}$$

と定義される。ここで、*ρ* は物質の電気抵抗率であり、*A* はスピン流に対する断面積である。 スピン抵抗は通常の電気抵抗と同じ次元を持ち、スピンの流れにくさや、注入しにくさを表 す。以上から拡散方程式を解くと、

$$\Delta R_{\rm NLSV} = \frac{4p_{\rm F_1}p_{\rm F_2}Q_{\rm F_1}Q_{\rm F_2}R_{\rm S}^{\rm N}e^{-L/\lambda_{\rm N}}}{(1+2Q_{\rm F_1})(1+2Q_{\rm F_2})-e^{-2L/\lambda_{\rm N}}}$$
(2.12)

と書ける。ここで、 $F_1$ 、 $F_2$ 、Nの添字は各物質を表し、 $Q_X = R_S^X/R_S^N$ である (X= $F_1$ ,  $F_2$ )。実際



図 2.3. (a) 非局所スピンバルブ測定の端子配置と印加磁場方向。 (b) 非局所スピンバルブ測定 信号。

の測定では図 2.3(a) のような端子配置で電圧を測定する。2 つの強磁性細線の形状変えること によって、強磁性体細線の長軸方向の磁化が反転する磁場を調整することで、 [27, 28] 長軸方 向に磁場を掃引すると、初めの平行状態から、片方の細線磁化が反転することで反平行状態が 実現される。両細線の磁化が反転したとき平行に戻り図 2.3(b) のような信号が得られる。

## 2.4 スピン吸収法



図 2.4. (a) スピン吸収法による逆スピンホール効果及び非局所スピンバルブ測定の素子配置と印 加磁場方向。(b) 非局所スピンバルブ測定の測定信号。(c) 逆スピンホール効果測定の測 定信号。

上述までの図 2.2(a)の構造で、さらに強磁性体間にスピン軌道相互作用の強い金属 M を加

えた構造 (図 2.4(a)) を用いると、純スピン流を金属 M に吸収させることができる。この手法 によって、電流による効果に阻害されることなく金属 M 中でのスピン流による効果を調べる ことができる。図 2.2(a) で V<sub>NLSV</sub>、H<sub>NLSV</sub> の素子配置、磁場方向を用いて測定すると、金属 M に吸収されずに残ったスピン蓄積を検出することができる。金属 M が挿入されていない場合 に比べて信号は小さく、図 2.2(b) のような信号が得られる。強磁性体の物理パラメータを既知 とすれば、この測定から金属 M のスピン抵抗が求まる。別途電気抵抗率を測定することによ り、スピン拡散長が得られる。

また、金属 M において逆スピンホール効果が発現する場合、図 2.2(a) で  $V_{\text{ISHE}}$  の素子配置 と  $H_{\text{ISHE}}$  方向への磁場掃引によって逆スピンホール効果による電圧信号を検出することができ る。磁場方向をこのようにするのは、スピン流のスピン量子化軸方向を制御するためである。 逆スピンホール信号は図 2.2(c) のようになる。磁場を掃引すると、電流注入側の強磁性体の磁 化が飽和する飽和磁場 ( $H_{\text{S}}$ ) で信号  $R_{\text{ISHE}}$  も飽和する。図 2.2(c) のように逆スピンホール抵抗  $\Delta R_{\text{ISHE}}$  を定める。

# 第3章

# 実験方法

## 3.1 試料作製

本項では面内スピンバルブ素子の作製手法について述べる。面内スピンバルブ素子はサブミ クロンスケールでの微細加工が必要である。本研究では電子線リソグラフィー (EBL) 及び蒸 着やスパッタ法を駆使し、試料作製を行った。



図 3.1. ポジティブ型レジストを用いたリフトオフ法の概略図。(a) 基板に対してレジストを塗布 し、(b) 露光して現像を行うことにより、(c) 必要とするパターンの余白部分にのみレジ ストが残る。(d) 金属を堆積させた後に、レジストを除去することにより、(e) 微細加工 された金属を得る。

#### 3.1.1 リフトオフ法

本研究で試料作製に用いた手法はリフトオフ法と呼ばれ、図 3.1 に概要を示す。まず基板上 に、電子線に感度を持ったレジストを塗布する。次に電子線リソグラフィーを行い、パターン を描画する。これを現像液に浸すことによって、描画した部分のみレジストを除去することが できる。続いて金属を堆積させ、溶媒を用いてレジストを除去することにより、目的の金属パ ターンが得られる。この工程を繰り返すことにより、面内スピンバルブ素子を作製することが できる。以下に本研究で行った詳細な手順を述べる。

#### 3.1.2 電子線リソグラフィー

電子線リソグラフィーとは、10 nm スケールまで絞った電子線を走査することによってレジ スト上にパターンを描く手法である。本研究ではエリオニクス社の ELS-7700 を用いて描画を 行った。また描画パターンは CAD を用いて作製した。

- (1) 位置合わせマークの付いた Si/SiO<sub>2</sub> 基板を用意する(位置合わせマークもフォトリソグ ラフィーと電子線リソグラフィーを用いて繰り返しリフトオフ法で作製されるが、本稿 では割愛する)。基板はアセトン溶媒中で1分間超音波洗浄した。
- (2) レジストを塗布する。
  - (a) PMMA

電子線蒸着や抵抗加熱蒸着によって蒸着する場合は PMMA を用いた。PMMA を スピンコーターで塗布した後、180 ℃ で 5 分間ベークした。ただし、基板上に CuBi がある場合には熱による劣化を防ぐため、90 ℃ で 10 分間ベークに変更した。

(b) ZEP

スパッタリングによって蒸着する場合は ZEP を用いた。ZEP をスピンコーターで 塗布した後、室温から始めて 180 ℃ に至るまでの昇温時間を含めて 6 分間ベーク した。

- (3) 電子線リソグラフィー
  - (a) PMMA の場合、ドーズ量が 8.8 C/m<sup>2</sup> となるよう描画した。
  - (b) ZEP の場合はドーズ量が 2.2 C/m<sup>2</sup> となるよう描画した。
- (4) 現像
  - (a) PMMA の場合、MIBK と IPA を 1:3 で混合した現像液に 30 秒浸し、IPA によっ てリンスした。
  - (b) ZEP の場合は、現像液に酢酸ペンチルを用い 30 秒浸した。まず MIBK と IPA を 9:1 で混合した溶液でリンスし、続いて IPA によってリンスした。



図 3.2. 電子線蒸着の模式図。

#### 3.1.3 堆積法

電子線リソグラフィーによってパターンを形成したら、線材となる物質毎に適した方法によ り堆積を行った。以下に述べるように、電子線蒸着、抵抗加熱蒸着、スパッタリングをそれぞ れ使い分けた。目的の物質を積んだ後、リフトオフを行った。レジストが PMMA の場合、リ フトオフにアセトンを用いた。試料にアセトンに浸しシェイカーに載せ 3 時間置いてレジスト を除去し、IPA でリンスした。ZEP の場合は 1-メチル 2-ピロリドンをリフトオフに用い、シェ イカーに載せて 3 時間置いた。リンスはアセトン、IPA の順に行った。

#### 電子線蒸着

強磁性体 Py、Ni、Fe、Co 及び Pt の蒸着には、図 3.2 に示す真空蒸着装置を用いた。本装置では電子線加熱により線材を加熱し蒸着する。蒸着前の到達真空度は、メインチャンバーが $1 \times 10^{-9}$  Torr、ロードロック・チャンバー(Load lock chamber : 以下 LL)が $1 \times 10^{-8}$  Torr であった。主排気系はそれぞれ、クライオポンプとターボ分子ポンプである。

#### 抵抗加熱蒸着

非磁性体 Cu の蒸着は、図 3.3 の真空蒸着装置を用いて行った。本装置では抵抗加熱によっ て線材を加熱し蒸着する。本装置は LL チャンバーにおいて Ar イオンミリングを行うことが 可能となっている。Ar イオンミリングによって、Py や各 SHE 物質と Cu との界面を清浄化す る。600 V、12 mA で 30 秒のミリングを行った。メインチャンバーの主排気系はターボ分子 ポンプであり、蒸着前の真空度は  $4 \times 10^{-9}$  Torr であった。



図 3.3. 抵抗加熱蒸着装置の模式図。

#### スパッタ法

CuBi 合金はスパッタ法によって堆積を行った。スパッタ法とは、Ar など不活性ガスに高電 圧をかけるなどしてプラズマ化し、ターゲットに衝突させることで、ターゲットを構成する粒 子がはじき出されるスパッタリング効果を用いた堆積技術である。スパッタ法はターゲットの 融点を選ばない点や、大面積に均一な堆積が可能な点など有利な点が多い。一方で、堆積の指 向性が悪い点や、プラズマによってサンプルが汚染される可能性がある点が欠点として挙げら れる。本研究では CuBi の堆積のほかに、素子の劣化を防ぐために行う Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> によるキャッピ ングにもスパッタ法を用いて行った。

### 3.2 測定方法

測定は室温から 10 K の領域において電気的測定を行った。数 10 nV の微小信号であるため ノイズの影響を除去するために、全実験を通じてロックイン法によって測定を行った。冷却に は図 3.4(a) のようなクライオスタットを用い、液体 <sup>4</sup>He の連続的な流入と排気により冷却し、 ヒーターによって温度制御を行った。クライオスタット外部に電磁石を設置し、磁石が回転す ることによって印加磁場方向を制御した。また、図 3.4(b) に示すようなセットアップでロック イン測定を行った。ロックイン周波数は 173 Hz とした。





## 第4章

# 閉回路における逆スピンホール効果

スピンホール効果と逆スピンホール効果は、電流とスピン流を互いに変換する効果であると して知られる。従来の研究ではスピンホール効果を有する物質にスピン流を注入し、逆スピン ホール効果によって試料端に生じた電圧を測定する。通常の試料端がある条件では境界条件の ために電流が生じることはできず、逆スピンホール効果による起電力を打ち消すだけの電場を 生成するよう電荷蓄積が生じ、電荷蓄積による電圧を測定するのである [9, 10, 11]。本研究で はリング状のスピンホール物質に、スピン流を注入し逆スピンホール効果を起こすことで、リ ング内に電流が生じると考えた。実験は、面内スピンバルブ構造を用いたスピン吸収法によっ てスピン流をリングに注入し、電圧降下を測定することで電流の評価を行った。本章の内容は 既に Appl. Phys. Lett. 誌において報告しているものである [19]。

## 4.1 素子設計

図 4.1 に示すスピンホール素子を作製した。Py、リング、Cu の順にリフトオフ法によって 細線を作製した。Cu 細線の作製の際には、同時に Cu によって電極も取り付けた。素子の劣 化を防ぐため Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> によってキャッピングした。各細線の寸法及びパラメータは表 4.1 に示



図4.1. スピンホールリング素子の概念図。

表 4.1. スピンホールリングに用いた Py、Cu、Cu<sub>99.5</sub>Bi<sub>0.5</sub>、Pt の寸法、及び、T = 10 K での電 気抵抗率 $\rho$ 、スピン拡散長 $\lambda$ 、スピンホール角 $\alpha_{H}$ 。添字の (1D と 3D) はそれぞれ 1 次 元モデル及び 3 次元モデルに基づいて算出された値を示す。 $\lambda_X^{1D/3D}$  と $\alpha_H^{1D/3D}$ の値は文献 値に基づく [29, 30].

	物質 (X)				
パラメータ	Py (F)	Cu (N)	Cu <sub>99.5</sub> Bi <sub>0.5</sub> (M)	Pt (M)	
$w_{\rm X}$ (nm)	100	100	250	200	
t <sub>X</sub> (nm)	30	100	20	20	
$\rho_{\rm X} \left( \mu \Omega \cdot {\rm cm} \right)$	19	1.5	11	14	
$\lambda_{\rm X}^{\rm 1D/3D}$ (nm)	5	1300	32/45	11/10	
$lpha_{ m H}^{ m 1D/3D}$		~ 0	-0.24/-0.12	0.024/0.021	



図 4.2. (a)、(b) CuBi を用いたリング素子、及び開口端素子の電子顕微鏡像。 (c)、(d) リング 素子及び開口端素子のスピンホール信号。

す。また、Py からリングまでの長さは、細線の中心間で 500nm とした。リングに用いる物質 としては、Cu<sub>99.5</sub>Bi<sub>0.5</sub> または Pt を用いた。これらはスピンホール角が大きく信号が得られや すいと考えられ、また符号が互いに異なるため信号がスピンホール効果に由来することを検証 できると考えた。



図 4.3. (a) スピンホール信号の電極間距離 (L) 依存性。(b) スピンホール信号のリング周長 (L<sub>M</sub>) 依存性。

## 4.2 実験結果

図 4.2 に本研究で作製した代表的なサンプルとその測定結果を示す。図 4.2(a) に示したリン グ素子のリングの周長 *L*<sub>M</sub> は 11 µm である。リングになっているものでは測定電極に応じて 測定信号に変化がみられることがわかる。一方開口端素子では電極間距離によって信号は変化 しない。リング素子での信号がループに生じた電流の電圧降下によるものであるなら、信号は 電極間の距離に依存するはずである。

図 4.3(a) に CuBi と Pt で測定したスピンホール信号の電極間距離依存性を示す。明らかな 比例関係がみられ、電流による電圧降下であると結論付けた。また、生じた電流の向きは各物 質のスピンホール角の符号 (表 4.1) から予想される向きと一致した。このことから、本信号が 確かに逆スピンホール効果によって得られていることが示唆される。

また、この傾きからリング内に得られた電流を計算すると、CuBi では -0.18 nA、Pt では 0.04 nA と分かった。一方で図 4.3(b) はスピンホール信号のリング周長 ( $L_{\rm M}$ ) 依存性である。 リングには CuBi を用いた。それぞれ直線でフィッティングすると、生じる電流は  $L_{\rm M}$  によっ て異なることが分かる。また、各直線を、長さ  $L_{\rm M}$  まで延長したところでの  $\Delta R_{\rm ISHE}$  の値は開 口端の場合の値とおよそ一致した。

### 4.3 考察

上述の実験結果を考察する。図 4.3(a) の傾きからリング内に生じた電流 *I*<sub>loop</sub> を求めると、 CuBi の場合-0.18 nA、Pt の場合 0.04 nA であった。ここで、注入した電流 *I* = 0.58 mA であ る。(2.3) と同様にして 1 次元解析によってリングに注入されるスピン流を求めると

$$\overline{\frac{I_{\rm S}}{I}} = \frac{\lambda_{\rm M}}{t_{\rm M}} \frac{(1 - e^{-t_{\rm M}/\lambda_{\rm M}})^2}{1 - e^{-2t_{\rm M}/\lambda_{\rm M}}} \frac{2p_{\rm F}Q_{\rm F}e^{d/\lambda_{\rm N}}}{(2Q_{\rm M} + 1)(2Q_{\rm F} + 1)e^{2d/\lambda_{\rm N}} - 1}$$
(4.1)

と計算される。ここで、 $\overline{I_{S}}$ は、リングに注入されるスピン流 $I_{S}$ の積分平均であり、

$$\overline{I_{\rm S}} = \frac{1}{t_{\rm M}} \int_0^{t_{\rm M}} I_{\rm S}(z) \tag{4.2}$$

と表される。F、N、M の添字はそれぞれ強磁性体 (Py)、非磁性体 (Cu)、リング (CuBi また は Pt) を表す。強磁性体とリングの距離を dとする。各物質のパラメータを代入すると、例え ば CuBi の場合  $\overline{I_S} = 5.5\mu$ A となった。スピン流から逆スピンホール効果によって変換された 電流がリング中に全て流れるとすると、 $I_{loop} = \frac{I_M}{v_N} \alpha_H \overline{I_S}$  で  $I_{loop} = -31$ nA となり実験結果と 2 桁異なる。したがって、実際にリング中に生じる電流は逆スピンホール効果によって変換され る電流に比べて大きく抑制されていることが分かる。また、スピン流から逆スピンホール効果 によって変換された電流がリング中に全て流れるとすると、リング中に生じる電流はリングの 周長によらないことになるが、図 4.3(b) の結果は明らかに周長 ( $L_M$ ) 依存性を示している。

以上の結果を理解するために単純な1次元回路を考えた解析、及び有限要素法に基づいたシ ミュレーションを行った。

#### 4.3.1 1次元解析

図 4.4 に示すように逆スピンホール効果によって生成される電流を *I*<sub>C</sub> と書くと、スピンホー ル角の定義 (式 1.1) から

$$I_{\rm C} = \frac{t_{\rm M}}{w_{\rm N}} \alpha_{\rm H} \overline{I_{\rm S}}$$
(4.3)

と表される。開口端構造の場合、回路中に電流が流れることはできないので、 $I_C$ は $I_1$ 、 $I_2$ に よって打ち消され、 $I_C = I_1 + I_2$ となる。ここで、shunting 効果と呼ばれる、リング中で生じた



 図 4.4. (a) リング素子と (b) 開口端素子の 1 次元回路の模式図。区間 AB 部分は Cu 直下の部分 を表し、抵抗を r で表す。r<sub>Cu</sub> は 1 次元解析をする上での Cu の実効的な抵抗である。I<sub>C</sub> は逆スピンホール効果によって生じる電流を表し、I<sub>1</sub>、I<sub>2</sub>、I<sub>loop</sub> は電圧降下を伴う Ohmic な電流である。

電流の一部が、架橋している Cu にも流れてしまう効果を考える。

$$x = \frac{r_{\rm Cu}}{r + r_{\rm Cu}} \tag{4.4}$$

と定義される shunting factor x [31] を用いることで、電流の見積もりを修正する必要がある。 測定で得られる電圧  $\Delta V_{ISHE} = \Delta R_{ISHE} I$  は電圧降下分から

$$\Delta V_{\rm ISHE} = rI_1 = r_{\rm Cu}I_2 = \frac{\rho_{\rm M}}{w_{\rm M}}\alpha_{\rm H}^{1D}x\overline{I_{\rm S}}$$
(4.5)

リングの場合にはリング中に電流 Iloop が流れる。同様に解くと、

$$I_{\text{loop}} \approx \frac{t_{\text{M}}}{L_{\text{M}}} \alpha_{\text{H}} x \overline{I_{\text{S}}}.$$
 (4.6)

と書ける。ここで、簡単のため  $L_{\rm M} \gg w_{\rm N}$  とした。ここで x は [31] から  $x \approx 0.36$ 、  $t_{\rm M} = 20$  nm、  $L_{\rm M} = 6, 11, 19 \,\mu{\rm m}$  とわかっていて、 $L_{\rm M}$  が膜厚に対して大きいために  $I_{\rm loop}$  が抑制されてい たことが分かる。実際、本実験で用いた各パラメータを式 (4.6) に代入すれば  $I_{\rm loop}$  が計算で き、 $L_{\rm M} = 11 \,\mu{\rm m}$  の場合、CuBi では  $I_{\rm loop} = -0.20$  nA、Pt では  $I_{\rm loop} = 0.06$  nA とわかり、実 験から求まった電流値とスピンホール角の誤差範囲で一致する。また、図 4.3(b) の結果も 式 (4.6) によって説明することができる。式 (4.6) によれば得られる電流  $I_{\rm loop}$  は  $L_{\rm M}$  に反比例 し、図 4.3(b) において  $L_{\rm M}$  に依存して傾きが異なることが分かる。更にリング 1 周分の電圧降 下は  $\frac{\rho_{\rm M}L_{\rm M}}{w_{\rm MM}} I_{\rm loop} = \frac{\rho_{\rm M}}{\omega_{\rm M}} \alpha_{\rm H}^{1D} x \overline{I_{\rm S}}$  であり、開口端において測定される電圧 (式 (4.5)) に一致すること が分かる。



図 4.5. (a) 開口端素子 (b) リング素子の SpinFlow 3D を用いた有限要素法による 3D シミュレーションによる電位 V<sub>ISHE</sub> のカラープロット。(c) は (b) 点線部の断面図。(d)~(f) は (c) の拡大図。赤い矢印は逆スピンホール効果によって生成される電流密度 j<sub>C</sub>、青い矢印は電圧降下を伴う Ohmic な電流密度 j を表す。

## 4.3.2 3次元解析

また、実際の電流分布がスピンホール素子中でどうなっているかを詳細にしらべるために 3 次元シミュレーションを用いた解析を行った。なお、物質としては Pt を仮定している。シ ミュレーションには Valet-Fert のスピン輸送モデル [32] を基とした、SpinFlow 3D と呼ばれる 商用の解析ソフトを用いた。開口端素子の場合には電位は素子の両側で異なるが、それぞれの 側で電位に位置依存性はない (図 4.5(a))。一方でリング素子の場合にはリング中で電位に勾配 が生じていることが分かる (図 4.5(b))。実験結果と比べてみると、、図 4.2(c)、(d) の結果にあ るように、開口端の場合には電流は生じず、測定端子の位置依存性がなく、リング素子の場合 にはリング内に生じる電流  $I_{loop}$  の電圧降下によって測定端子の位置依存性が生じるという理 解を支持している。更にリングで電流が生じていることを明瞭に示すために Cu とリングの界 面直下での電流密度分布を図 4.5(c)~(f) に示す。jは 1 次元解析における  $I_1$ 、 $I_2$ 、 $I_{loop}$  に対応 しており、 $j_C$  は  $I_C$  に対応している。1 次元解析で述べたように、 $j_C$  は大部分が Ohmic 電流 jによって打ち消されているが、わずかに一部リング中に流れていることが分かる。

#### 4.3.3 定常状態に至る過程

ここでは、定常状態に至り、*I*<sub>1</sub>、*I*<sub>2</sub>、*I*<sub>loop</sub>が生じるまでの過程を考えてみたい。初期状態では リング中の電位は一定であるとする。そこにスピン流が拡散してリング中に注入されると、逆 スピンホール効果によってリングの周方向に電子が速度を持つ。注意すべきは、逆スピンホー ル効果は Cu 直下部分のみで起こるということである。速度を持った電子の一部は Cu 直下部 分から外に出てリング中に入るが、そこでは電子に駆動力は働かないため、平均自由行程程度 で逆スピンホール効果によって得た速度を失い、蓄積電荷が生じる。生じた蓄積電荷はリング 内に電場を作り出し、それが *I*<sub>1</sub>、*I*<sub>2</sub>、*I*<sub>loop</sub>の駆動力となると考えられる。蓄積電荷が増えるに つれて *I*<sub>1</sub>、*I*<sub>2</sub>、*I*<sub>loop</sub>が増大していき、*I*<sub>C</sub>と釣り合ったところで定常状態に至ると考えられる。

## 4.4 小活と今後の展望

本研究で、リング素子にスピン流を注入することによって逆スピンホール効果によってリン グ内に電流を生じさせることに成功した。これは、逆スピンホール効果によって実際に電流を 得た最初の実験である。

生じる電流はオームの法則に従う電流として理解することができ、電流の大きさはリングの 持つ電気抵抗や、シャンティング効果によって強く制限されることが分かった。今後の展望と しては、リングを超伝導体にすることによって、電気抵抗、シャンティング効果を克服し、大 きな電流を得ることを狙う。さらに超伝導性が保たれれば、オームの法則に従わない超伝導電 流が生じることが期待される。スピンホール効果によって超伝導パラメータにどのような影響 が及ぼされるか、興味が持たれる。別の視点から本研究を眺めると、作製したリングはメゾス コピックスケールであり、Ballistic 伝導など通常のオームの法則が成り立たない領域で、生成 された電流がどのように振る舞うか興味が持たれる。

# 第5章

# 金属強磁性体パーマロイのスピン ホール効果

スピンホール効果の研究は非磁性体において盛んに研究されてきたが、ニッケルと鉄の合金 である強磁性体パーマロイ (Py: Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>)においても、スピンホール効果が生じることが近 年報告された [15, 16, 17, 18]。パーマロイは軟磁性体としてスピントロニクス研究に広く活用 されている物質であるだけにその物性を理解することは不可避の課題である。先行研究ではス ピンポンピング [16, 17, 18] またはスピンゼーベック効果 [15] を用いてスピン流を創出し、逆 スピンホール効果による電圧信号を測定している。これらの研究では強磁性金属中でのスピン ホール効果の発現機構は明らかになっていない。以上をふまえ本研究ではパーマロイのスピン ホール効果の定量的な測定を行い、その機構に迫ることを目指した。強磁性体では異常ホール 効果も起こることから、スピンホール効果及び異常ホール効果の温度依存性などを詳細に測定 することによって、これらの関係を調べることを考えた。

## 5.1 素子設計

図 2.4(a) のようなスピンホール素子を、金属 M としてパーマロイを用いて作製した。設計 を表 5.1 に示す。この素子を用いて ISHE、DSHE の測定を行い、スピンホール効果やその温 度依存性や膜厚依存性,を調べた。

## 5.2 結果と考察

まず図 5.1(a) に示す端子配置で、10 K において Py の逆スピンホール効果を測定した。測定 した信号 (図 5.1(b)) の正負高磁場の領域をみると、逆スピンホール効果によると考えられる差 異がみられる。低磁場において見られる異常な振る舞いはスピン注入、検出に用いた 2 つの パーマロイの磁化過程に由来するものだと考えられるが、詳細は明らかでない。同一素子、同 一条件化では、低磁場の振る舞いも再現されるが、素子毎の違いや磁場の角度の変化に敏感で

	物質 (X)				
パラメータ	Py (F)	Cu (N)	Py (M)		
$w_{\rm X}$ (nm)	100	100	200		
$t_{\rm X}~({\rm nm})$	30	100	20/10/5		
$\rho_{\rm X} \left( \mu \Omega \cdot {\rm cm} \right)$	19	1.5	19/32/95		
$\lambda_{\rm X}$ (nm)	5	1300	5		
$lpha_{ m H}$	0.01	~ 0	0.01/0.006/0.001		

表 5.1. スピンホール素子に用いた Py、Cu の寸法、及び、T = 10K での電気抵抗率 $\rho$ 、スピン 拡散長  $\lambda$ 、スピンホール角  $\alpha_{\rm H}$  真ん中に挿入した Py には添字 M、それ以外の Py に添字 F、Cu に添字 N を割り当てている。



図 5.1. (a) パーマロイの逆スピンホール効果の測定素子の電子線顕微像と端子配置。(b) 逆スピンホール抵抗。(c) 逆スピンホール効果測定の概念図。

あった。以上の点を踏まえ本研究では低磁場異常部分は無視し、強磁性体の磁化が飽和した状態での信号のみを用いて議論する。

強磁性体中に注入されるスピン流は式 (4.1) と同様に表される。ここで、スピン注入細線と 検出側の細線の線間距離 d = 500 nm である。添字 F、M、N はそれぞれ表 5.1 に対応する。ス ピンホール抵抗率  $\rho_{SHE} = \alpha_{H}\rho$  は、4 章の開口端における 1 次元解析で用いた式 (4.5) を用いて 実験で得られた値を代入すると、10 K では  $\rho_{SHE} = 0.23(\pm 0.04) \mu\Omega$ ·cm、 $\alpha_{H} = 0.01(\pm 0.002)$  が 得られた。

図 5.2(a) に示すように、ISHE 測定の電流端子と電圧端子を交換した配置 ( $V_+ \leftrightarrow I_+, V_- \leftrightarrow I_-$ ) で測定することで、Py の正スピンホール効果 (DSHE) によって生じたスピン流をスピン蓄積 信号として検出することができる [31]。得られた DSHE 信号は ISHE 信号と一致した。この ことは、正スピンホール効果と逆スピンホール効果が Onsagar の相反関係を保っていることを 示している [33]。



図 5.2. (a) DSHE の端子配置。(b) DSHE と ISHE の測定信号。(c) スピンホール効果測定の概 念図。



図 5.3. (a) ホールバーの模式図。(b) 10 K におけるパーマロイの異常ホール効果の測定。

本研究ではスピンホール効果に加えて、図 5.3(a) のようなホールバーを作製し異常ホー ル効果の測定も行った。ホールバーの膜厚 t はスピンホール素子に揃え、20 nm とした。 図 5.3(b) に示すのは 10 K において測定したものである。測定電圧  $V_{AHE}$  を印加電流で割った、  $R_{AHE} = V_{AHE}/I$ をプロットすると、高磁場領域では明確な直線性が見られ、これはホール効 果に由来するものであると考えられる。正負両側でそれぞれ直線でフィッティングし、H = 0(Oe) まで外挿したとき、その切片の差分から異常ホール抵抗  $\Delta R_{AHE}$  を求める (図 5.3(b)) 。また、低磁場領域での大きな変化はプラナーホール効果によるものであると考えられ、 5000 Oe 付近の急激な変化は磁化がフリップする過程で生じる、プラナーホール効果 [34, 35] の変化をとらえたものと思われる。異常ホール抵抗率  $\rho_{AHE}$  は  $\rho_{AHE} = t\Delta R_{AHE}$  から求まり、  $\rho_{AHE} = 0.052(\pm 0.004) \mu\Omega$ ·cm であった。

次に、スピンホール効果と異常ホール効果それぞれについて温度依存性の測定を行った。各 温度でスピンホール抵抗率、異常ホール抵抗率を求めると、図 5.4 が得られた。スピンホール 抵抗率 (図 5.4(a)) は 100 K 近傍から変化し始め、温度とともに劇的に変化していることが分



図 5.4. パーマロイの(a) スピンホール抵抗率及び(b) 異常ホール抵抗率の温度依存性。



図 5.5. (a) スピン偏極率とスピンホール効果の積と異常ホール効果の同時プロット。(b) スピン ホール効果と異常ホール効果の関係の概念図。

かる。一方で異常ホール抵抗率 (図 5.4(b)) も同様に 100 K 近傍から変化するが、スピンホー ル抵抗率ほど大きな変化はみられない。特に注目すべきは、スピンホール抵抗率は 200 K~ 250 K の間に符号を変えるのに対して、異常ホール抵抗率は符号を変えるほどの大きな変化は していないという点である。この事実は、スピンホール効果と異常ホール効果の機構が、高温 側では異なることを示唆している。

詳細は後述するが理論的な考察により、一定の条件下では伝導電子のスピン偏極率 p を用

いて、

$$\rho_{\rm AHE} = p \cdot \rho_{\rm SHE} \tag{5.1}$$

という関係式が成り立つことが示唆されている。そこで、図 5.5(a) のように、スピンホール抵 抗率とスピン偏極率の積をプロットした。100 K 以下の低温側で  $\rho_{AHE} = p \cdot \rho_{SHE}$  が支持され ているのが分かる。直観的、この式は図 5.5(b) のように理解される。例えばこの図の場合、強 磁性体中のスピン偏極電流を構成する伝導電子数は、アップスピン ↑ の電子 3 に対しダウンス ピン ↓ が 2 である。この時、スピン偏極率  $p = \frac{3-2}{3+2} = \frac{1}{5}$  である。伝導電子がスピン軌道相互作 用など何らかの機構によって曲げられ、スピンホール効果と異常ホール効果を発現させている とする。スピンホール効果ではスピン蓄積に着目するため、蓄積した電子の持つスピンの差を 見ると、3 - (-2) = 5 であるのに対し、異常ホール効果では電荷の蓄積に着目するので、蓄積 した電子の電荷の差に着目し、3 - 2 = 1 である。スピンホール効果と異常ホール効果による 蓄積の比をみると、

$$\frac{(異常ホール効果)}{(スピンホール効果)} = \frac{3-2}{3+2} = \frac{j_{\uparrow} - j_{\downarrow}}{j_{\uparrow} + j_{\downarrow}} = p$$
(5.2)

であり、スピンホール効果と異常ホール効果がスピン偏極率 *p* によって関係づけられることが 理解される。この描像がどのような条件で成り立つか以下 5.3 節で述べるが、まとめると次の ようになる。

- (1) Mott の 2 流体モデルが成り立つ [20]。
- (2) ↑と↓でそれぞれのスピンの横抵抗率と縦抵抗率の比が、符号が異なり大きさが等し い。すなわち

$$\frac{\rho_{yx}^{\uparrow}}{\rho_{xx}^{\uparrow}} = -\frac{\rho_{yx}^{\downarrow}}{\rho_{xx}^{\downarrow}}$$
(5.3)

である。Mott の 2 流体モデルは Ni などの遷移金属強磁性体でよく成り立つことが知られてい る。第 2 の条件は、直観的には、伝導電子がホール効果を与えるハミルトニアンから得る異常 速度が、スピンに対して反対称であることを表す。金属中で発現するスピンホール効果の起源 には、Karplus & Luttinger の内因性機構 [6] や、不純物ポテンシャルによる skew 散乱 [7] 及び side jump [8] の外因性機構があるが、散乱体のスピン依存性を考えないなら、これらの機構に よるスピンホール効果は条件 (5.3) を満たすと考えられる。また、パーマロイの異常ホール効 果は先行研究で、エピタキシャル成長によって作製され、結晶方位の揃った薄膜によって詳細 に調べられており、低温では外因性異常ホール効果による寄与が支配的であると考えられてい る [41]。以上のことから、低温では外因性機構が支配的にスピンホール効果を起こしていると 考えられる。

高温部分に議論を戻そう。図 5.4(a) の実験結果は、高温領域で式 (5.1) が明らかに成り立た ないことを示している。このことから、スピンホール効果に大きく寄与するが、異常ホール効 果にはあまり表れない、なんらかの機構が存在すると考えられる。Mott の 2 流体モデルが成 立していると仮定すると、上述の第 2 の条件が破られていることが示唆される。弱強磁性体 である NiPd について、キュリー点近傍でのスピンホール効果の発散的振る舞いが 2012 年に 報告されている [36]。ここでは、局在磁化がキュリー点近傍で揺らぐことによって Bloch 電 子が揺らぎに対して受ける散乱を考えると、スピンによって散乱の大きさが異なることでスピ ンホール効果が生じたと理解されている。本研究においては、室温領域は Py のキュリー点に 比べて十分に小さいと考えられるため、温度変化による磁化揺らぎに対する散乱を考えるのは 合理的でないと思われる。強磁性体に特有な散乱機構として、例えばマグノンによる散乱が挙 げられる。磁気的な散乱体では、散乱の伝導電子スピンに対する対称性が破れ得ると考えら れる。



図 5.6. パーマロイのスピンホール抵抗率の膜厚依存性。

さらに、真ん中に挿入したパーマロイの膜厚を変化させ、それぞれスピンホール効果の温度 依存性を測定した (図 5.6)。膜厚が減少するに従い、温度依存性が抑制されていることが分か る。この膜厚依存性は、高温側でマグノンがスピンホール効果に寄与しているという解釈を支 持する。なぜなら、本研究で用いたような細線型の強磁性体では、反磁場による効果が大きく なり、静磁エネルギーによるマグノンが生じると考えられるからである。反磁場の大きさは形 状によって異なり、面内に磁場をかける場合には、膜厚を小さくすると反磁場も小さくなるこ とが知られている。すなわち、膜厚が小さくなるごとに反磁場は弱くなり、マグノンが励起し にくくなることが、スピンホール抵抗率に反映されたものと解釈することが可能である。

また、先行研究との比較を行いたい。スピンポンピングやスピンゼーベック効果を用いた先 行研究では室温の測定であり、正のスピンホール抵抗率が得られている [15, 16, 17]。本研究 の結果 (図 5.4(a)、図 5.6) と矛盾しているようにみえるが、これも上述の膜厚依存性から理解 されると考えられる。先行研究では膜厚は数 nm から数十 nm と、本研究と同程度であるが、 膜厚に比べ非常に広い膜を用いている。反磁場はアスペクト比で決まるため、先行研究で用い られている構造は膜厚の薄い極限に相当すると考えられる。図 5.6 の 5 nm の結果よりもさら に温度依存性は抑制され、室温に至るまでスピンホール抵抗率は正になると考えられる。

図 5.6 の膜厚依存性が反磁場によるものであるならば、細線のアスペクト比によって決定さ

れるはずであるから、今後の課題として、細線の線幅を変えた測定も行う必要がある。また、 異常ホール効果にも本研究で考えた、反磁場による影響が生じ得る。そこで、ホールバーを面 内に磁化させた時に生じる膜厚方向の異常ホール効果の測定を行いたい。さらにスピンホール 効果の機構について議論するために、膜厚依存性をより詳細に調べ、スピンホール効果がどの ようにスケーリングされるか調べたいと考えている。

## 5.3 ホール抵抗率の理論的考察

本節では Mott の 2 流体モデルに基づき、異常ホール抵抗率、スピンホール抵抗率の導出を しよう。Mott の 2 流体モデルにおいて、アップスピンとダウンスピンの電子はそれぞれ独立 に流れるため、各スピンに独立に、ホール伝導度を考慮した線形応答の式

$$\begin{pmatrix} J_x^{\sigma} \\ J_y^{\sigma} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx}^{\sigma} & \sigma_{xy}^{\sigma} \\ -\sigma_{xy}^{\sigma} & \sigma_{xx}^{\sigma} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} F_x^{\sigma} \\ F_y^{\sigma} \end{pmatrix}$$
(5.4)

を考えることができる。ただし、等方的な伝導を仮定した。ここで、上付き添え字の  $\sigma$  はアップスピン↑または↓を表す。また、スピン依存の場  $F^{\sigma} \equiv -\frac{1}{e} \nabla \mu^{\sigma}$ を定義する。また、また、伝導度の逆行列をもとに抵抗率

$$\begin{pmatrix} \rho_{xx}^{\sigma} & -\rho_{yx}^{\sigma} \\ \rho_{yx}^{\sigma} & \rho_{xx}^{\sigma} \end{pmatrix} \equiv \begin{pmatrix} \sigma_{xx}^{\sigma} & \sigma_{xy}^{\sigma} \\ -\sigma_{xy}^{\sigma} & \sigma_{xx}^{\sigma} \end{pmatrix}^{-1} = \frac{1}{\sigma_{xx}^{\sigma^{2}} + \sigma_{xy}^{\sigma^{2}}} \begin{pmatrix} \sigma_{xx}^{\sigma} & -\sigma_{xy}^{\sigma} \\ \sigma_{xy}^{\sigma} & \sigma_{xx}^{\sigma} \end{pmatrix}$$
(5.5)

を定義すると、

$$\begin{pmatrix} F_x^{\sigma} \\ F_y^{\sigma} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{xx}^{\sigma} & -\rho_{yx}^{\sigma} \\ \rho_{yx}^{\sigma} & \rho_{xx}^{\sigma} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{J}_x^{\sigma} \\ \mathbf{J}_y^{\sigma} \end{pmatrix}$$
(5.6)

と書ける。また、電場 E 及びスピン流に働く駆動場(スピン圧とも呼ばれる) $E^{s}$ を、スピン 依存場  $F^{\sigma}$ を用いて表すと、

$$\sigma_{xx}\boldsymbol{E} = \sigma_{xx}^{\uparrow}\boldsymbol{F}^{\uparrow} + \sigma_{xx}^{\downarrow}\boldsymbol{F}^{\downarrow}$$
(5.7)

$$\sigma_{xx}\boldsymbol{E}^{\mathrm{s}} = \sigma_{xx}^{\uparrow}\boldsymbol{F}^{\uparrow} - \sigma_{xx}^{\downarrow}\boldsymbol{F}^{\downarrow}$$
(5.8)

と書ける。ただし、電気伝導度  $\sigma_{xx} = \sigma_{xx}^{\uparrow} + \sigma_{xx}^{\downarrow}$  である。

#### 5.3.1 異常ホール抵抗率

異常ホール効果を考える。x 方向に電流を流している状況を考え、y 方向へのホール抵抗率 を導出しよう。y 方向のスピン依存電流 j<sup>w</sup> の定常状態における境界条件から、

$$j_{y}^{\uparrow} = j_{y}^{\downarrow} = 0 \tag{5.9}$$

である。これと、式 (5.5) を用いて、y 方向のスピン依存場は

$$F_y^{\sigma} = \frac{\sigma_{xy}^{\sigma}}{\sigma_{xx}^{\sigma}} F_x^{\sigma}$$
(5.10)

と表せる。

ここで、*x* 方向に定常電流を流しているので、*x* 方向への電場  $E_x$  を用いて、 $F_x^{\uparrow} = F_x^{\downarrow} = E_x$ である。よって式 (5.7) から、

$$E_y = \frac{1}{\sigma_{xx}} (\sigma_{xx}^{\uparrow} F_y^{\uparrow} + \sigma_{xx}^{\downarrow} F_y^{\downarrow})$$
(5.11)

$$=\frac{\sigma_{xy}^{\uparrow} + \sigma_{xy}^{\downarrow}}{\sigma_{xx}}E_x$$
(5.12)

となる。すると、異常ホール抵抗率  $\rho_{AHE} \equiv \frac{E_y}{j_x^1 + j_x^1}$  は、式 (5.6)、(5.9) から

$$\rho_{AHE} = \frac{\sigma_{xy}^{\uparrow} + \sigma_{xy}^{\downarrow}}{\sigma_{xx}} \left( \frac{1}{\rho_{xx}^{\uparrow}} + \frac{1}{\rho_{xx}^{\downarrow}} \right)$$
(5.13)

と表される。抵抗率を用いて書き下し、 $\rho_{yx}^{\sigma}/\rho_{xx}^{\sigma}$ の1次で近似すると、2流体モデルに基づいた 異常ホール抵抗率の表式

$$\rho_{\text{AHE}} \equiv \frac{E_y}{j_x^{\uparrow} + j_x^{\downarrow}} = \left(\frac{\rho_{xx}^{\downarrow}}{\rho_{xx}^{\uparrow} + \rho_{xx}^{\downarrow}}\right)^2 \rho_{yx}^{\uparrow} + \left(\frac{\rho_{xx}^{\uparrow}}{\rho_{xx}^{\uparrow} + \rho_{xx}^{\downarrow}}\right)^2 \rho_{yx}^{\downarrow}$$
(5.14)

が得られる。

### 5.3.2 スピンホール抵抗率

次にスピンホール効果について考える。スピンホール効果は状況が異常ホール効果と同一で あり、x方向に定常電流を流していると考える。y方向の境界条件 (5.9) から式 (5.10) は成り 立つ。よってy方向のスピン圧  $E_y^s$  は、式 (5.8) から

$$E_y^{\rm s} = \frac{\sigma_{xy}^{\uparrow} - \sigma_{xy}^{\downarrow}}{\sigma_{xx}} E_x \tag{5.15}$$

と書け、異常ホール抵抗率と同様にして、スピンホール抵抗率 $\rho_{SHE} \equiv \frac{E_y}{f_{+r_z}}$ は、

$$\rho_{\text{SHE}} \equiv \frac{E_y^{\text{s}}}{j_x^{\uparrow} + j_x^{\downarrow}} = \left(\frac{\rho_{xx}^{\downarrow}}{\rho_{xx}^{\uparrow} + \rho_{xx}^{\downarrow}}\right)^2 \rho_{yx}^{\uparrow} - \left(\frac{\rho_{xx}^{\uparrow}}{\rho_{xx}^{\uparrow} + \rho_{xx}^{\downarrow}}\right)^2 \rho_{yx}^{\downarrow}$$
(5.16)

#### 5.3.3 逆スピンホール抵抗率

最後に逆スピンホール効果について考える。逆スピンホール効果では、x 方向に定常純スピン流を流していると考える。y 方向の境界条件 (5.9) は同様に成り立ち、式 (5.10) が得られる。 x 方向に定常純スピン流が流れているとき、x 方向の電場 *E*<sub>x</sub> = 0 であるから、式 (5.7) より

$$\sigma_{xx}^{\uparrow}F_{x}^{\uparrow} = -\sigma_{xx}^{\uparrow}F_{x}^{\uparrow} \tag{5.17}$$

これと、式 (5.10) から y 方向の電場 Ey は

$$E_y = \left(\frac{\sigma_{xy}^{\uparrow}}{\sigma_{xx}^{\uparrow}} - \frac{\sigma_{xy}^{\downarrow}}{\sigma_{xx}^{\downarrow}}\right) \frac{\sigma_{xx}^{\uparrow} F_x^{\uparrow}}{\sigma_{xx}}$$
(5.18)

と書ける。逆スピンホール抵抗率  $\rho_{\text{ISHE}} \equiv \frac{E_y}{j_x^1 - j_x^1}$ を抵抗率を用いて書き下し、、 $\rho_{yx}^\sigma / \rho_{xx}^\sigma$ の1次を取ると、

$$\rho_{\text{ISHE}} \equiv \frac{E_y}{j_x^{\uparrow} - j_x^{\downarrow}} = \left(\frac{\rho_{xx}^{\downarrow}}{2(\rho_{xx}^{\uparrow} + \rho_{xx}^{\downarrow})}\right) \rho_{yx}^{\uparrow} - \left(\frac{\rho_{xx}^{\uparrow}}{2(\rho_{xx}^{\uparrow} + \rho_{xx}^{\downarrow})}\right) \rho_{yx}^{\downarrow}$$
(5.19)

と書ける。

#### 5.3.4 各ホール効果の関係

各スピンチャネルのホール角 $a_{\rm H}^{\sigma}$ を、

$$\alpha_{\rm H}^{\sigma} = \frac{\rho_{yx}^{\sigma}}{\rho_{xx}^{\sigma}} \tag{5.20}$$

と定義する。今、二つのチャネルのホール角の間に、

$$\alpha_{\rm H}^{\uparrow} = -\alpha_{\rm H}^{\downarrow} = \alpha_{\rm H}(\rho) \tag{5.21}$$

という関係が成り立つとする。すると、各ホール抵抗率 (5.14)、(5.16)、(5.19) は、

$$\rho_{\text{AHE}} = p \left( \frac{1}{\rho_{xx}^{\uparrow}} + \frac{1}{\rho_{xx}^{\downarrow}} \right)^{-1} \alpha_{\text{H}}(\rho)$$
(5.22)

$$\rho_{\text{SHE}} = \rho_{\text{ISHE}} = \left(\frac{1}{\rho^{\uparrow}}_{xx} + \frac{1}{\rho^{\downarrow}_{xx}}\right)^{-1} \alpha_{\text{H}}(\rho)$$
(5.23)

と表せ、

$$\rho_{\rm AHE} = p \cdot \rho_{\rm SHE} = p \cdot \rho_{\rm ISHE} \tag{5.24}$$

が得られ、異常ホール抵抗率とスピンホール抵抗率が関係づけられた。最後に、上述のホール 角に関する仮定 (5.21) を考えたい。例えば Karplus & Luttinger モデル [6] に基づき、伝導電 子が結晶中で周期ポテンシャル V 及び、スピン軌道相互作用によって散乱されているとする と、以下のようなハミルトニアンで記述される。

$$H = V \sum_{i} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{i}) + \eta_{so} \sigma \cdot \left[ \nabla V(\mathbf{r}) \times \frac{1}{i} \nabla \right]$$
(5.25)

また、各チャネルの伝導度は、

$$\sigma_{xx}^{\sigma} = \frac{e^2 n^{\sigma} \tau_{xx}^{\sigma}}{m} \sigma_{xy}^{\sigma} = \frac{e^2 n^{\sigma} \tau_{xy}^{\sigma}}{m}$$
(5.26)

と書ける。強磁性体において、伝導電子の数密度は異なるため、

$$n^{\uparrow} \neq n^{\downarrow} \tag{5.27}$$

であるが、ポテンシャル V による縦緩和時間はスピンに対して不変であり、

$$\tau_{xx}^{\uparrow} = \tau_{xx}^{\downarrow} \tag{5.28}$$

スピン軌道相互作用  $\eta_{so}\sigma \cdot \left[ \nabla V(\mathbf{r}) \times \frac{1}{i} \nabla \right]$  による横緩和時間は、スピンに反対称であり、

$$\tau_{xy}^{\uparrow} = \tau_{xy}^{\downarrow} \tag{5.29}$$

よって、 $\alpha_{\rm H}^{\sigma}(\rho)$ は、

$$\alpha_{\rm H}^{\uparrow}(\rho) = \frac{\sigma_{xy}^{\uparrow}}{\sigma_{xx}^{\uparrow}} = \frac{\tau_{xy}^{\uparrow}}{\tau_{xx}^{\uparrow}}, \quad \alpha_{\rm H}^{\downarrow}(\rho) = \frac{\sigma_{xy}^{\downarrow}}{\sigma_{xx}^{\downarrow}} = \frac{\tau_{xy}^{\downarrow}}{\tau_{xx}^{\downarrow}}$$
(5.30)

$$\alpha_{\rm H}^{\uparrow}(\rho) = -\alpha_{\rm H}^{\downarrow}(\rho) \tag{5.31}$$

が得られる。

## 5.4 補足実験

5.2 節において得られたスピンボール信号が、確かにスピンホール効果に由来することを裏 付けるため、いくつか補足的に測定を行ったので以下に記す。

### 5.4.1 磁場角度依存性



図 5.7. (a) 10 K と (b) 300 K におけるパーマロイのスピンホール効果の磁場角度依存性。

図 5.7 は、10 K、300 K それぞれにおいて印加磁場の角度依存性を測定したものである。信号は、ISHE、DSHE ともに cosθ に比例していることが分かる。この結果は、本研究で得られ

た信号が、今回測定した温度領域において、スピンホール効果に由来することを支持する。何 故なら、印加磁場の向きはパーマロイの磁化方向を制御するものであり、スピン流のスピンの 向きを決定するものである。スピンホール効果は、スピンの向きと流れる方向の外積方向に生 じるものであるから、印加磁場の方向に対して、信号が cosθ に比例することになる。

### 5.4.2 印加電流依存性

また、ナノスケールのデバイスではジュール熱が生じやすい。このことから、ジュール熱由 来の熱流による異常ネルンスト効果を検出しているのではないかという批判が可能である。



図 5.8. スピンホール抵抗の印加電流依存性。

ジュール熱による熱流は、印加電流の2乗に比例していると考えられる。図 5.8 に示すよう に測定信号の印加電流依存性を調べた。スピンホール抵抗は印加電流に依存していない、すな わち測定電圧が印加電流に比例していることがわかる。このことは、本実験が線形領域内で行 われていることを保証するものである。

#### 5.4.3 印加電流方向不変性

最後に、高温側において基板を通じた熱流や電流による効果を否定するため、図 5.9 のよう に、印加電流の経路を変えて測定を行った。A、B、Cの測定で検出側のパーマロイに注入さ れるスピン流は全て同じものになるはずであり、確かに測定信号に変化はない。また、Dの場 合には、Pyの DSHE によるスピン流の発生があるが検出にも逆スピンホール効果を用いるこ とから、信号は小さく検出は難しい。測定信号も確かにほとんど見られない。基板を通じて検 出側のパーマロイに電位差を生むのであれば、これらの測定において違いがみられるはずであ る。本結果は本実験が基板を通じた信号を取り除いていることを保証するものである。



図 5.9. スピンホール抵抗の印加電流方向不変性。

## 5.5 小括と今後の課題

強磁性体パーマロイにおいてスピンホール効果及び逆スピンホール効果の測定を行った。低 温では異常ホール効果とスピンホール効果の間に、 $\rho_{AHE} = p \cdot \rho_{SHE}$ という関係が成り立つこと が示唆された。また、この関係式を理論的に考察した。一方で高温側では明らかにこの関係式 は成り立たず、スピンホール効果は温度変化が著しい。しかし、膜厚を薄くすると、高温側で の著しい温度変化が抑えられることが分かった。このことは、高温側での温度変化が、反磁場 に起因して生じたマグノンによるものであることを支持する。異常ホール効果についても同様 に、マグノンによる効果が生じ得る。そのため、今後は面内に磁化させたときの膜厚方向の異 常ホール効果を測定する必要がある。また、膜厚や線幅を詳細に変化させ、機構に迫りたい。

## 第6章

# 総括

本研究では面内スピンバルブ構造を用いたスピン吸収法によって、スピンホール効果に関す る実験を行った。

第一には、逆スピンホール効果によってスピン流から電流が得られることを、初めて実験的 に観測した。実験では、リング型の素子を作製することにより、試料内に電流が生じ得る構 造にした。スピン流を注入することによって逆スピンホール効果を介してリング内に電流が 生じ、電流に伴う電圧降下を測定した。得られた電流はリング自身の持つ抵抗、及びスピン 吸収部分におけるシャンティングによって強く制限されることがわかった。この手法の最も 興味深い点は、閉じたリングに直流電流を誘起することができることである。リング型の金 属中では、電子の波動関数の位相が重要な役割を果たす。Aharonov-Bohm 効果 [37] や永久電 流 [38, 39, 40] などの現象が知られている。また超伝導体では超伝導波動関数の位相干渉が起 こる。リング内に直流電流を誘起することにより、これら位相干渉効果に起こる影響に興味が 持たれる。

第二には、強磁性体パーマロイのスピンホール効果を定量的に測定した。強磁性体における スピンホール効果の温度依存性を測定した初めての実験である。さらに異常ホール効果との関 係を議論した。低温においてスピンホール角の大きさは $\alpha_{\rm H} = 0.01$ 程度であり、スピンホール 効果の大きいことで知られる Pt 等に比べても無視できない大きさであった。100 K 以下の低 温においてはスピンホール効果と異常ホール効果の間に $\rho_{\rm AHE} = p \cdot \rho_{\rm SHE}$ の関係がみられ、低 温では異常ホール効果と同様の機構によって生じており、外因性機構が支配的であると結論付 けた。100 K から室温に至るまでの高温においては、スピンホール効果に強い温度依存性がみ られた。異常ホール効果には顕に出てこない何らかの機構が働いていることは明らかである。 また、膜厚を小さくすると温度変化が抑えられたことから、高温でのスピンホール効果の要因 として、電子-マグノン散乱等が予想される。強い温度依存性は、現在考えられる機構では説 明できないが、今後、膜厚や線幅などのより詳細な依存性を測定するとともに、他の強磁性体 の研究や理論的な考察により機構を解明したいと考えている。

# 参考文献

- M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, "Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices," Phys. Rev. Lett. 61, 2472 (1988).
- [2] G. Binasch, P. Grunberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, "Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange," Phys. Rev. B 39, 4828 (1989).
- [3] S. Maekawa, Concepts in Spin Electronics (Oxford University Press, Oxford, 2006).
- [4] M. I. Dyakonov and V. I. Perel, "Possibility of Orienting Electron Spins with Current," JETP Lett. 13, 467 (1971).
- [5] J. E. Hirsch, "Spin Hall Effect," Phys. Rev. Lett. 83, 1834 (1999).
- [6] R. Karplus and J. M. Luttinger, "Hall Effect in Ferromagnetics," Phys. Rev. 95, 5, 1154 (1954).
- [7] J. Smit, "The spontaneous hall effect in ferromagnetics II," Physica. 24, 1-5, 39 (1958).
- [8] L. Berger, "Side-Jump Mechanism for the Hall Effect of Ferromagnets," Phys. Rev. B, 2, 11, 4559 (1970).
- [9] S. O. Valenzuela and M. Tinkham, "Direct electronic measurement of the spin Hall effect," Nature (London) 442, 176 (2006).
- [10] E. Saitoh, M Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara, "Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-Hall effect," Appl. Phys. Lett. 88, 182509 (2006).
- [11] O. Mosendz, J. E. Pearson, F. Y. Fradin, G. E. W. Bauer, S. D. Bader, and A. Hoffmann, "Quantifying Spin Hall Angles from Spin Pumping: Experiments and Theory," Phys. Rev. Lett. **104**, 046601 (2010); O. Mosendz, V. Vlaminck, J. E. Pearson, F. Y. Fradin, G. E. W. Bauer, S. D. Bader, and A. Hoffmann, "Detection and quantification of inverse spin Hall effect from spin pumping in permalloy/normal metal bilayers," Phys. Rev. B **82**, 214403 (2010).
- [12] S. Zhang, "Spin Hall Effect in the Presence of Spin Diffusion," Phys. Rev. Lett., 85, 393 (2000).
- [13] S. Takahashi and S. Maekawa, "Hall Effect Induced by a Spin-Polarized Current in Super-

conductors," Phys. Rev. Lett., 88, 116601 (2002).

- [14] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard and D.D. Awschalom, "Observation of the Spin Hall Effect in Semiconductors," Science 306, 1910, (2004).
- [15] B. F. Miao, S. Y. Huang, D. Qu, and C. L. Chien, "Inverse Spin Hall Effect in a Ferromagnetic Metal," Phys. Rev. Lett., 111, 066602 (2013).
- [16] A. Tsukamoto, Y. Ando, Y. Kitamura, H. Emoto, E. Shikoh, M. P. Delmo, T. Shinjo, and M. Shiraishi "Self-induced inverse spin Hall effect in permalloy at room temperature," Phys. Rev. B, 89, 235317 (2014).
- [17] C. Du, H. Wang, F. Yang, and Hammel, "Systematic variation of spin-orbit coupling with d-orbital filling: Large inverse spin Hall effect in 3d transition metals," Phy. Rev. B, 90, 140407(R) (2014).
- [18] H. Wang, C. Du, P. C. Hammel, and F. Yang "Spin current and inverse Spin Hall effect in ferromagnetic metals probed by  $Y_3Fe_5O_{12}$ -based spin pumping Appl. Phys. Lett., **104**, 202405 (2014).
- [19] Y. Omori, F. Auvray, T. Wakamura, Y. Niimi, A. Fert, and Y. Otani "Inverse spin Hall effect in a closed loop circuit," Appl. Phys. Lett., **104**, 242415 (2014).
- [20] N. F. Mott, "The electrical conductivity of transition metals," Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences, 153, 699 (1936).
- [21] S. Takahashi and S. Maekawa, "Spin injection and detection in magnetic nanostructures," Phys. Rev. B, 67, 052409 (2003).
- [22] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, G. E. W. Bauer and B. I. Halperin, "Nonlocal magnetization dynamics in ferromagnetic heterostructures," Rev. Mod. Phys., 77, 1375 (2005).
- [23] A. Brataas, Y. V. Nazarov, G. E. W. Bauer, "Finite-Element Theory of Transport in Ferromagnet-Normal Metal Systems," Phys. Rev. Lett., 84, 3481 (2000).
- [24] A. Brataas, Y. Tserkovnyak, G. E. W. Bauer and B. I. Halperin, "Spin battery operated by ferromagnetic resonance," Phys. Rev. B, **66**, 60404(R) (2002).
- [25] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa and E. Saitoh "Observation of the spin Seebeck effect," Nature 455, 778 (2008).
- [26] G. E. W. Bauer, E. Saitoh and B. J. van Wees "Spin caloritronics," Nat. Mater., 11, 391 (2012).
- [27] Y. Otani and T. Kimura "Spin current related phenomena in metallic nano-structures", Physica E, 43, 735 (2011).
- [28] F. J. Jedema, A. T. Filip and W. B. Van, "Electrical spin injection and accumulation at room temperature in an all-metal mesoscopic spin valve," Nature, 416, 713 (2002).
- [29] Y. Niimi, Y. Kawanishi, D. H. Wei, C. Deranlot, H. X. Yang, M. Chshiev, T. Valet, A. Fert, and Y. Otani, "Giant spin Hall effect induced by skew scattering from Bismuth impurities inside thin film CuBi alloys," Phys. Rev. Lett., **109**, 156602 (2012).

- [30] Y. Niimi, D. Wei, H. Idzuchi, T. Wakamura, T. Kato, and Y. Otani, "Experimental verification of comparability between spin-orbit and spin-diffusion lengths," Phys. Rev. Lett., 110, 016805 (2013).
- [31] Y. Niimi, M. Morota, D. H. Wei, C. Deranlot, M. Basletic, A. Hamzic, A. Fert, and Y. Otani, "Extrinsic spin Hall effect induced by Iridium impurities in Copper," Phys. Rev. Lett.m 106, 126601 (2011).
- [32] T. Valet and A. Fert, "Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers," Phys. Rev. B, **48**, 7099 (1993).
- [33] L. Onsager, "Reciprocal Relations in Irreversible Processes. II," Phys. Rev., 38, 2265 (1931).
- [34] K. L. Yau and J. T. H. Chang, "The planer Hall effect in thin foils of Ni-Fe alloy," J. Phys. F: Metal Phys., 1, 38 (1971)
- [35] M. Volmer and J. Neamtu, "Hall effect in Permalloy-based thin films and magnetic multilayers," J. Magn. Magn. Mater., 272, 1881 (2004).
- [36] D. H. Wei, Y. Niimi, B. Gu, T. Ziman, S. Maekawa, and Y. Otani, "The spin Hall effect as a probe of nonlinear spin fluctuations," Nature Commun. 3, 1058 (2012).
- [37] Y. Aharonov and D. Bohm, "Significance of Electromagnetic Potentials in the Quantum Theory," Phys. Rev. **115**, 485 (1959).
- [38] L. P. Levy, G. Dolan, J. Dunsmuir, and H. Bouchait, "Magnetization of mesoscopic copper rings: Evidence for persistent currents," Phys. Rev. Lett. 64, 2074 (1990).
- [39] V. Chandrasekhar, R. A. Webb, M. J. Brady, M. B. Ketchen, W. J. Gallagher, and A. Kleinsasser, "Magnetic response of a single, isolated gold loop," Phys. Rev. Lett. 67, 3578 (1991).
- [40] D. Mailly, C. Chapelier, and A. Benoit, "Experimental observation of persistent currents in GaAs-AlGaAs single loop," Phys. Rev. Lett. 70, 2020 (1993).
- [41] Y. Q. Zhang, N. Y. Sun, R. Shan, J. W. Zhang, S. M. Zhou, Z. shi and G. Y. Guo, "Anoumalous Hall effect in epitaxial permalloy thin films," J. Appl. Phys. 114, 163714 (2013).

# 謝辞

本研究を遂行するにあたって大谷義近教授、新見康洋助教、木俣基助教には、終始適切に助 言、ご指導いただいたこと、心から感謝いたします。特に新見助教におかれましては研究室に 入った当初より、サンプルの作製プロセスから測定方法に至るまで研究の直接的ご指導や、研 究態度の模範として、大変お世話になりました。大谷教授がチームリーダーを兼任しておられ る理化学研究所量子ナノ磁性チームの皆様、研究室の先輩後輩の皆様にはミーティングにおい て多くの助言いただきました。本研究室のインターン生であった Florent Auvray は本研究を 遂行するにあたり、Pt を用いたサンプル作製や解析において多くの協力をいただきました。パ リ第 11 大学の Albert Fert 教授には、本研究を遂行するにあたって適切な助言をいただきまし た。異常ホール効果の測定においては、理研量子ナノ磁性チームにおいて PPMS を使用させ ていただきました。強磁性体のスピンホール効果と異常ホール効果の理論的な考察において は、日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター前川禎通センター長、量子物性理論研究グ ループ Bo Gu 氏には多くの有益な議論をしていただきました。試料作製においては物性研究 所の家泰弘教授、勝本信吾教授には電子線描画装置を使用させていただきました。リーディン グ大学院プログラム「統合物質科学リーダー養成プログラム (MERIT)」においては大学院生 活を送る上での金銭的な支援をいただきました。最後に、私が病気により研究生活を離脱した 時、お世話になった家族や友人に心から感謝申し上げます。

大森 康智