

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 19 年度

修士論文

金属ナノ構造における非局所スピン伝導

2008年1月29日提出
指導教員：大谷 義近 (印)

66124 : 佐藤孝哉

目次

1. 序論

- 1.1 スピントロニクス
- 1.2 スピン依存伝導
 - 1.2.1 2 電流モデル
 - 1.2.2 スピン流
 - 1.2.3 スピン注入とスピン蓄積
 - 1.2.4 スピン拡散現象
 - 1.2.5 スピン流、スピン蓄積効果の回路的取り扱い
- 1.3 非局所注入法と非局所測定法
 - 1.3.1 非局所注入法
 - 1.3.2 非局所測定法
- 1.4 スピンバルブ
 - 1.4.1 非局所面内スピンバルブ素子
 - 1.4.2 トンネル接合型面内非局所スピンバルブ
- 1.5 スピンホール効果
 - 1.5.1 スピンホール効果
 - 1.5.2 逆スピンホール効果
 - 1.5.3 スピンホール伝導度
 - 1.5.4 スピンホール効果と異常ホール効果
- 1.6 目的

2. 実験方法

- 2.1 試料作製方法
- 2.2 測定方法

3. 実験結果

- 3.1 Py/Cu/Py 面内スピンバルブ
 - 3.1.1 スピンバルブ測定
 - 3.1.2 温度依存性
 - 3.1.3 膜厚依存性
 - 3.1.4 距離依存性
 - 3.1.5 小括
- 3.2 Py/Al/Py 面内スピンバルブ
 - 3.2.1 スピンバルブ測定

- 3.2.2 温度依存性
- 3.2.3 小括
- 3.3 スピンホール効果
 - 3.3.1 逆スピンホール効果
 - 3.3.2 スピンホール効果
 - 3.3.3 温度依存性
 - 3.3.4 スピンホール伝導度
 - 3.3.5 異常ホール効果
 - 3.3.6 小括

4. まとめ

- 4.1 総括
- 4.2 今後の課題

参考文献

論文・学会発表

謝辞

1 序論

1.1 スピントロニクス

電流の担い手である電子は、素電荷 $-e$ 以外に、上向き \uparrow および下向き \downarrow で表されるスピン角運動量(以下 \uparrow スピンおよび \downarrow スピン)を持っている。これまでのエレクトロニクス素子においては、専ら非磁性体からなり、伝導特性に対するスピンの影響は無視されてきた。近年の微細加工技術の進展により電気伝導物性に対し、スピンの性質を反映した物性が観測されるようになった。

代表的な現象として知られているものに1988年に発見された巨大磁気抵抗効果と呼ばれる現象がある。この巨大磁気抵抗効果は、1nm程度の強磁性薄膜と非磁性薄膜を重ねた多層膜において発現する[1][2]。これは強磁性層の相対的な磁化配向の変化によって大きく抵抗値が変化するという現象であり、伝導電子のスピンの非常に重要な役割を果たす。

巨大磁気抵抗効果の代表的な応用例としてはハードディスクドライブの読み取りヘッドがある。巨大磁気抵抗効果の利用により読み取りヘッドの信号が増加し、ハードディスクドライブの容量を飛躍的に増大させた。さらにこの巨大磁気抵抗効果の原理を利用したMRAM (Magnetic Random Access Memory) と呼ばれる不揮発性メモリも考案され、積極的な開発・研究が進んでいる。

このように、伝導電子の電荷の自由度だけでなく、スピンの自由度を積極的に応用しようという分野のことをスピントロニクスと呼ぶ。

1.2 スピン伝導特性

1.2.1 2 電流モデル

強磁性体中ではスピンの依存した伝導特性が現れることが知られている。そこでスピンの向きで分別することで伝導特性を考えるモデルがある。これを2電流モデルという[3]。強磁性体中において電子のスピンの向きによって抵抗値が異なる。この抵抗の違いはバンド構造によるものであると考えられている。スピンによって抵抗値が異なるため、強磁性体中でFig.1.1.1のような並列回路図を考え、スピンの向きによって異なる経路をとる仮想的な回路を考える。強磁性体中では抵抗値の違いからスピンの向きによって電流量が異なることになる。つまり、強磁性体に電位差 V を印加した場合には、伝導電子の \uparrow スピンによる電流を I_{\uparrow} 、 \downarrow スピンによる電流を I_{\downarrow} とすると

$$\begin{cases} I_{\uparrow} = \frac{V}{R_{\uparrow}} \\ I_{\downarrow} = \frac{V}{R_{\downarrow}} \end{cases} \quad (1.2.1)$$

となる。 $I_{\uparrow} + I_{\downarrow} = I$ という関係があるため、強磁性体の抵抗 R は通常の並列回路と同様に R_{\uparrow} と R_{\downarrow} を用いて

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{R_{\uparrow}} + \frac{1}{R_{\downarrow}} \quad (1.2.2)$$

と書ける。強磁性体中では $I_{\uparrow} \neq I_{\downarrow}$ であり、伝導電子の状態密度がスピンの向きによって異なり、Fig.1.1.2 のように伝導電子の状態密度はスピン偏極している。強磁性体中の伝導電子のスピンの偏り具合を表す定数はスピン偏極率(P)と呼ばれ、次式で定義される。

$$P = \frac{I_{\uparrow} - I_{\downarrow}}{I_{\uparrow} + I_{\downarrow}} = \frac{\sigma_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow}}{\sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow}} \quad (1.2.3)$$

また、2 電流モデルではスピンの向きにより 2 電流に分けて扱っているが、スピンの向きが反転するスピン反転散乱も存在する[4][5]。 \uparrow スピンから \downarrow スピンへの反転散乱による緩和時間を $\tau_{\uparrow\downarrow}$ 、 \downarrow スピンから \uparrow スピンへ反転散乱による緩和時間を $\tau_{\downarrow\uparrow}$ とすると、このスピン反転散乱が発生したときも電子数が保存しなければならない。その条件は次式のように表現することができる。

$$\begin{cases} \frac{1}{e} \nabla \cdot \vec{i}_{\uparrow} = -\frac{\delta n_{\uparrow}}{\tau_{\uparrow\downarrow}} + \frac{\delta n_{\downarrow}}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \\ \frac{1}{e} \nabla \cdot \vec{i}_{\downarrow} = -\frac{\delta n_{\downarrow}}{\tau_{\downarrow\uparrow}} + \frac{\delta n_{\uparrow}}{\tau_{\uparrow\downarrow}} \end{cases} \quad (1.2.4)$$

$\delta n_{\uparrow,\downarrow}$ は平衡状態からの粒子数のずれである。また、フェルミ面においては平衡状態にならなければならないため、フェルミ面における状態密度と緩和時間の間には次のような関係式が成り立つ。

$$\frac{N_{\uparrow}(E_F)}{\tau_{\uparrow\downarrow}} = \frac{N_{\downarrow}(E_F)}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \quad (1.2.5)$$

これらの関係式はスピン蓄積の拡散を論ずる際に重要になる ($\Rightarrow 1.2.4$)。

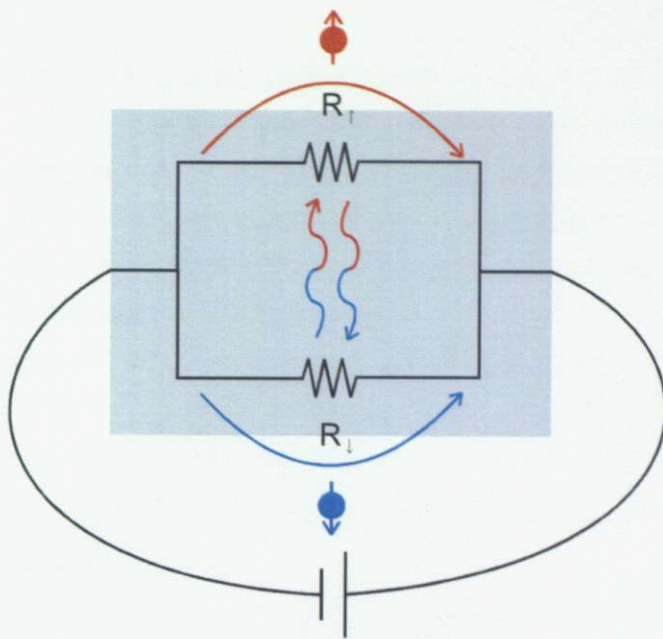


Fig.1.1.1.2 電流モデルの仮想回路図

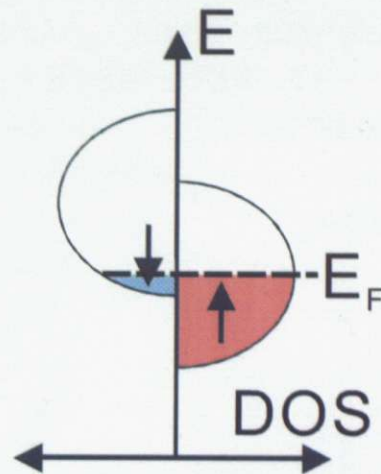


Fig.1.1.2 伝導電子の状態密度

1.2.2 スピン流

強磁性体中ではスピンの偏極しているために電流と共にスピンの流れも同時に存在する。このスピンの流れはスピン流 (\$I_s\$) と呼ばれ、次式で定義される。

$$I_s = I_{\uparrow} - I_{\downarrow} \quad (1.2.6)$$

\$I_{\uparrow}\$、\$I_{\downarrow}\$はそれぞれのスピンを持つ電流である。強磁性体中では Fig.1.2.3 に示すように伝導電子の状態密度がスピン偏極しているため

$$I_{\uparrow} \neq I_{\downarrow} \Leftrightarrow I_s \neq 0 \quad (1.2.7)$$

となり、電流と共にスピン流も同時に流れている。スピン偏極率を用いると強磁性体中のスピン流の大きさは

$$I_s = P I_c \quad (1.2.8)$$

と簡単に表わすことができる。

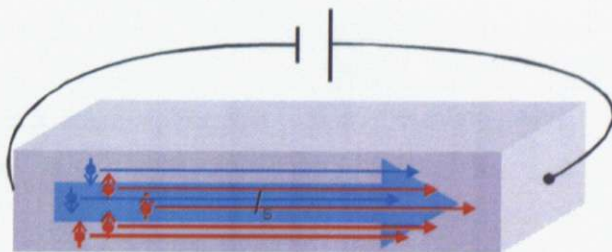


Fig.1.2.3 強磁性体中の伝導電子

1.2.3 スピン注入とスピン蓄積

強磁性体のスピン偏極電流を用いることでスピン蓄積を起こすことができる。強磁性 (F) /非磁性 (N) の接合界面に電流を流すことで強磁体中のスピン偏極電流が非磁性体中に流

れ込み (Fig1.2.4)、接合界面近傍においてスピンの向きによって化学ポテンシャルが異なる値をとり分裂し (Fig1.2.5)、非磁性体にスピンの蓄積が起こる。このスピンの蓄積状態は非平衡状態であるため、必ずスピンの蓄積に拡散(緩和)が起こり平衡状態へと緩和していく。拡散の原因の代表的な原因はフォノンによる散乱であると考えられている[6]。拡散距離の尺度はスピン拡散長と呼ばれる特性長で記述され、物質に依存する特性長である。スピン拡散長は代表的な非磁性体ではサブミクロンスケール程度であり、そのためスピンの蓄積効果はサブミクロンスケール以下の領域で現れる現象である[7]。

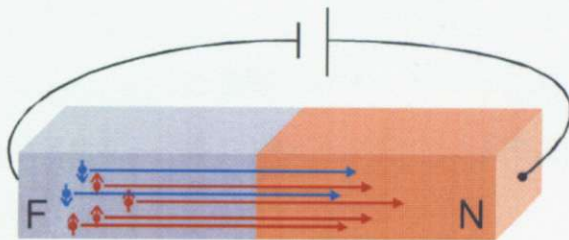


Fig.1.2.4 スピン注入

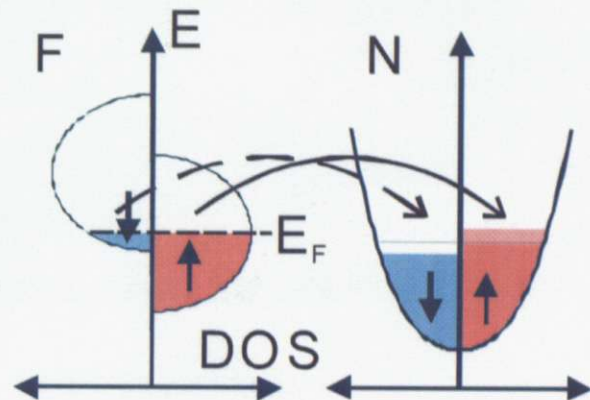


Fig.1.2.5 スピン注入時の電子の状態密度

1.2.4 スピン拡散現象

スピン拡散現象はスピンの蓄積現象において基本的なものであり、非常に重要なものである。スピンの蓄積状態は非平衡状態にあるため、スピンの蓄積の拡散が起こる[4][5]。スピンの蓄積 $\delta\mu$ の拡散状態の記述の際に基礎となるものは(1.2.4)式である。式(1.2.4)、(1.2.5)とアインシュタインの関係式

$$\begin{cases} \sigma_{\uparrow} = e^2 N_{\uparrow}(E_F) D_{\uparrow} \\ \sigma_{\downarrow} = e^2 N_{\downarrow}(E_F) D_{\downarrow} \end{cases} \quad (1.2.9)$$

(σ : 電気伝導度、 D : 拡散係数) を用いることで

$$\begin{cases} D\nabla^2\delta\mu = \frac{\delta\mu}{\tau_{SF}} \\ \delta\mu = \mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow} \\ D = \frac{D_{\uparrow}D_{\downarrow}(N_{\uparrow}(E_F) + N_{\downarrow}(E_F))}{D_{\uparrow}N_{\uparrow}(E_F) + D_{\downarrow}N_{\downarrow}(E_F)} \\ \frac{1}{\tau_{SF}} = \frac{1}{\tau_{\uparrow\downarrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \end{cases} \quad (1.2.10)$$

という拡散方程式が得られる。 $\mu_{\uparrow}, \mu_{\downarrow}$ はそれぞれのスピンの電気化学ポテンシャルである。電気化学ポテンシャルは

$$\begin{cases} \mu_{\uparrow} \equiv \mu_{\uparrow}^F - eV \\ \mu_{\downarrow} \equiv \mu_{\downarrow}^F - eV \\ \mu_{\uparrow}^F, \mu_{\downarrow}^F \text{は伝導電子のフェルミエネルギー} \end{cases} \quad (1.2.11)$$

で定義され、電子の流れを拡散による影響と電場による影響を考慮したものである。さらに $\sqrt{D\tau_{SF}} = \lambda$ と置くことで

$$\nabla^2\delta\mu = \frac{\delta\mu}{\lambda^2} \quad (1.2.12)$$

の拡散方程式を得る。この λ はスピン拡散長と呼ばれる定数である。スピン拡散長は一般に物質に依存する定数であり、数 nm から数 μm 程度のオーダーの定数である。そのためスピン蓄積効果は極微小な領域で緩和してしまい、スピン蓄積効果を観測するためには同程度の大きさの形状を持つ試料を作製する必要がある。このスピン蓄積拡散を図示化すると Fig.1.2.6 のようになり、化学ポテンシャルの差 $\delta\mu$ が接合界面から離れるに従って小さくなっていることがわかる。電気化学ポテンシャルを用いるとそれぞれのスピンの向きを持つ電流密度は

$$\begin{cases} i_{\uparrow} = \frac{\sigma_{\uparrow}}{e} \nabla\mu_{\uparrow} \\ i_{\downarrow} = \frac{\sigma_{\downarrow}}{e} \nabla\mu_{\downarrow} \end{cases} \quad (1.2.13)$$

と表される。そのためスピン蓄積が存在し緩和していくと、 $\mu_{\uparrow} \neq \mu_{\downarrow}$ であるために

$$I_s = I_{\uparrow} - I_{\downarrow} \neq 0 \quad (1.2.14)$$

となり、Fig.1.2.6 のように拡散伝導の影響によるスピン流が発生していることが分かる。また緩和してスピン蓄

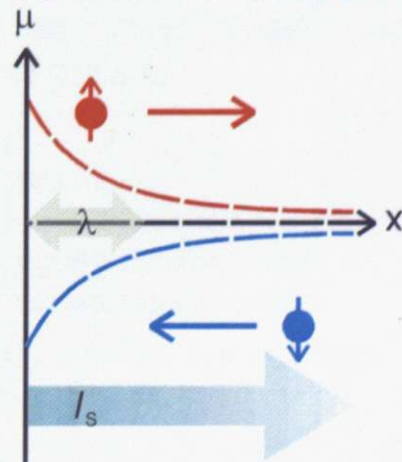


Fig.1.2.6 スピン拡散の例

積が小さくなるに従い、電気化学ポテンシャルの勾配が減少し、スピンの流が弱まっていく。

1.2.5 スピン流、スピン蓄積効果の回路的取り扱い

これらのスピン流、スピン蓄積効果の取り扱いを仮想的な回路を考えることで、通常の回路図のように取り扱うことができる[8]。スピン流の発生源となるのはスピン蓄積の緩和である。すなわちスピンに依存した化学ポテンシャルの分裂が原因である。スピン蓄積は強磁性/非磁性接合界面に電流を流すことで発生させることができる。上述したようにこのスピン蓄積が緩和していくことでスピン流が発生する。そのため、このスピン蓄積電圧 ΔV ($=\delta\mu/e$) を通常の回路における電位差、スピン流を電流と見立てることでスピン流を回路図のように扱うことができる。スピン流に対する通常の抵抗のようなものもあり、これをスピン抵抗と呼ぶ。スピン抵抗 R_s は次式で定義される。

$$R_s = \rho \frac{2\lambda}{(1-P^2)S} \quad (1.2.15)$$

ここで ρ は抵抗率、 λ は拡散長、 P は偏極率、 S は断面積である。スピン抵抗はスピン流の吸い込まれやすさを示している。また、拡散長が分子にあるため定性的にはスピン抵抗の大きな材料ほど緩和が弱い材料であるといえることができる。これらをまとめると次のようになる。

通常の回路 \leftrightarrow スピン流仮想回路
 電位差 $V \leftrightarrow$ スピン蓄積電圧 ΔV
 電流 $I_c \leftrightarrow$ スピン流 I_s
 抵抗 $R \leftrightarrow$ スピン抵抗 R_s

Fig.1.2.4 のように強磁性と非磁性体が直列につながり合わせた場合に対し、このような対応付けを行い、Fig.1.2.7 のような仮想的な並列回路を考えることでスピン流を扱うことができる。これは強磁性/非磁性接合界面にスピン蓄積 ΔV が発生するため、強磁性体と非磁性体が並列につながった状態であると考えることができるからである。



Fig.1.2.7 強磁性/非磁性接合面の仮想回路図

またスピン抵抗を用いることで、通常の電流と同じようにスピン蓄積電圧 ΔV が存在する場所においてスピン流は

$$I_s = \frac{\Delta V}{R_s} \quad (1.2.16)$$

と表すことができる。

しかし、通常の回路と違いスピン蓄積は拡散を必ず伴うので、その取り扱いが重要である。すなわち、ある距離離れた接合部でのスピン蓄積やスピン流を考えるとこの拡散を必ず考慮しなければならないということである。この緩和は上述の拡散方程式 (1.2.12) を解くことによって求められ、Fig.1.2.8 のように 2 つの異なる物質（それぞれスピン抵抗 R_{s1}, R_{s2} , 拡散長 λ_1, λ_2 ）がスピン蓄積の存在する場所に接合された場合において、スピン抵抗 R_{s1} 、拡散長 λ_1 の試料をスピン蓄積が伝播していくときのスピン蓄積の緩和は次のようになる。

$$\frac{\Delta V_1}{\Delta V_0} = \frac{R_{s2}}{R_{s1} \sinh \frac{d}{\lambda_1} + R_{s2} \cosh \frac{d}{\lambda_1}} \quad (1.2.17)$$

このように単純な構造素子の場合においても接合部でのスピン吸収の影響が加わることで、スピン緩和の影響の結果は単純なものにはならない。

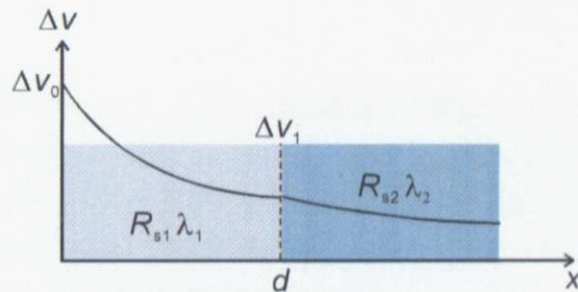


Fig.1.2.8 スピン拡散の簡単な例

1.3 非局所注入法と非局所測定法

1.3.1 非局所注入法

スピン流を発生させる技術の一つに非局所注入法と呼ばれている技術がある。この技術はスピン拡散現象を利用することで電流の流れていない場所にスピン流を発生させることができるという技術である[9]。一般に強磁性体中において、伝導電子はスピン偏極している。そのため強磁性体と非磁性体を接合し、電流を流すことで強磁性体中のスピン偏極電流が非磁性体に流れ込み強磁性/非磁性接合界面に強磁性体中のスピン偏極電流に依存したスピン蓄積が発生する。スピン蓄積した状態は非平衡状態にあるため、この接合界面近傍でスピン蓄積の緩和が発生し、その結果拡散伝導によるスピン流が発生する。拡散伝導は電流が存在しない場所においても現れる。強磁性体から非磁性体に電流を流す際、Fig.1.3.1のように右方に電流を流さずに左方に流した場合においても、強磁性/非磁性接合界面にス

ピン蓄積が現れるため左方にも右方にも拡散伝導に起因したスピンの流が発生する。そのため右方には電流が存在せず、スピン流のみが存在することになる。このように電流を流さない部分にスピン蓄積を伝播させる手法を非局所注入法と呼ぶ。

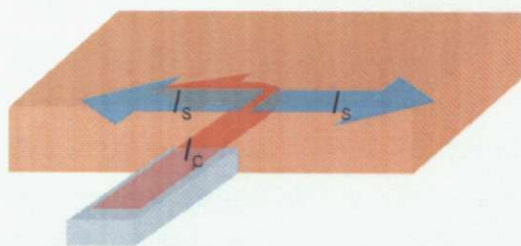


Fig.1.3.1 非局所スピン注入

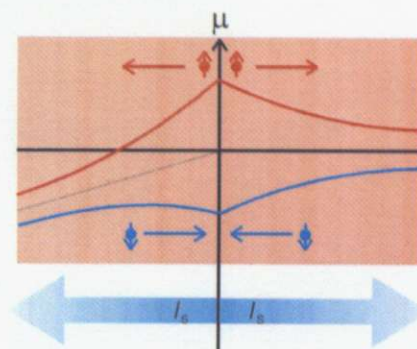


Fig.1.3.2 非局所スピン注入時における電気化学ポテンシャル

1.3.2 非局所測定法

一般に伝導電子のスピン蓄積効果に起因する現象による信号は伝導電子の電荷に起因する現象の信号に比べ非常に小さい。そのためスピン蓄積効果に依存した信号を測定するためには、電荷に依存した信号の部分の除去ができれば測定が容易になる。そこで電荷の情報を除去し、スピンの情報を効率的に測定する方法に非局所測定法と呼ばれる測定法がある。この方法は非局所注入法を用い、Fig.1.3.3 のような端子配置で測定を行う。図中において電流を測定する部分には流さず、左方に逃がしてやることで測定系には拡散伝導によるスピン流（スピン蓄積効果）のみを流すことができる。その結果スピン蓄積効果に起因する現象のみを測定でき、スピン蓄積効果に起因する現象の効率的な測定を行うことができる。

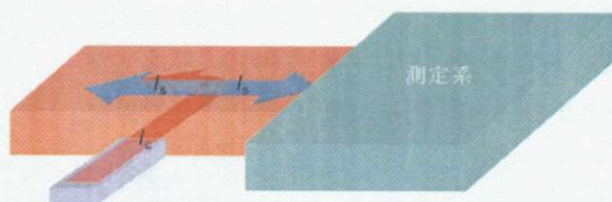


Fig.1.3.3 非局所測定法

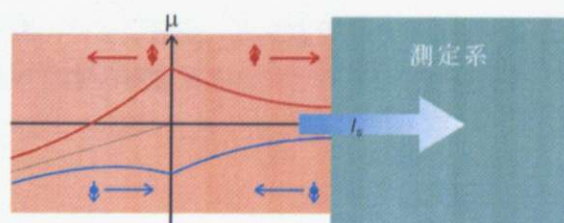


Fig.1.3.4 非局所測定法における電気化学ポテンシャル

1.4 スピンバルブ

スピンバルブとは強磁性/非磁性/強磁性の基本構造をもつ素子のことである。この構造において強磁性体の磁化配向に依存した電気伝導特性が現れることが知られている。

1.4.1 面内スピンバルブ素子

面内スピンバルブ素子は Fig.1.4.1.1 のように注入用と検出用の 2 本の強磁性体を横切るように非磁性体が接合された構造を持つ素子のことである。この素子は 2 本の磁化状態を反映した伝導現象が現れることが知られている。

片側の強磁性体から非磁性体に電流を印加することでスピン注入を行うと、強磁性体から非

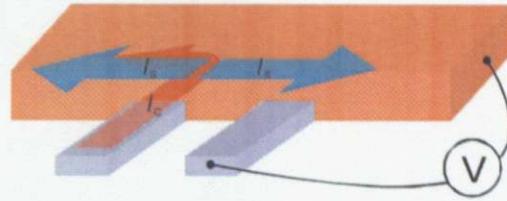


Fig.1.4.1.1 面内スピンバルブ素子

磁性体にスピン偏極電流が流れ込み、強磁性/非磁性接合界面にスピン蓄積が起こる。このスピン蓄積の緩和によって他方の強磁性体の方にスピン流（スピン蓄積効果）が伝播する。強磁性体中と非磁性体中ではスピン蓄積の緩和のされ方が異なるため、スピン蓄積により分裂した電気化学ポテンシャルの収束値が異なり、その結果強磁性体と非磁性体の両端に電位差が現れる。強磁性体中においてはさらに磁化の向きによって緩和が異なるため、電位差に磁気依存性が現れる。特に 2 つの強磁性体の向きが相対的に平行の時と反平行の時にもっと大きな差が現れ、この最大差をスピン蓄積信号と呼ぶ。電圧端子に現れるスピン蓄積信号の大きさはスピン吸収影響もあるため試料の形状にも依存する。Fig.1.4.1.1 の面内スピンバルブの試料形状の場合には (1.2.12) の拡散方程式を解くことで、次のようなスピン蓄積信号 ΔR が現れる。

$$\Delta R = \frac{P^2 \left(\frac{R_{SF}}{R_{SN}} \right)^2 R_{SN}}{2e \frac{d}{\lambda_N} \frac{R_{SF}}{R_{SN}} \left(2 + \frac{R_{SF}}{R_{SN}} \right) + 4 \sinh \frac{d}{\lambda_N}} \quad (1.4.1)$$

ここで R_{SF} 、 R_{SN} はそれぞれ強磁性体、非磁性体のスピン抵抗、 P は強磁性体のスピン偏極率、 λ_N は非磁性体のスピン拡散長、 d は強磁性体間の距離である。このスピン蓄積信号は検出端子の強磁性体と非磁性体の接合界面のスピン蓄積に比例する。

$$\Delta R = \frac{P \delta \mu}{e I_C} \quad (1.4.2)$$

これも拡散方程式を解くことで得ることができる。そのためこの測定法で接合界面でのスピン蓄積を直接電氣的に測定することができる。

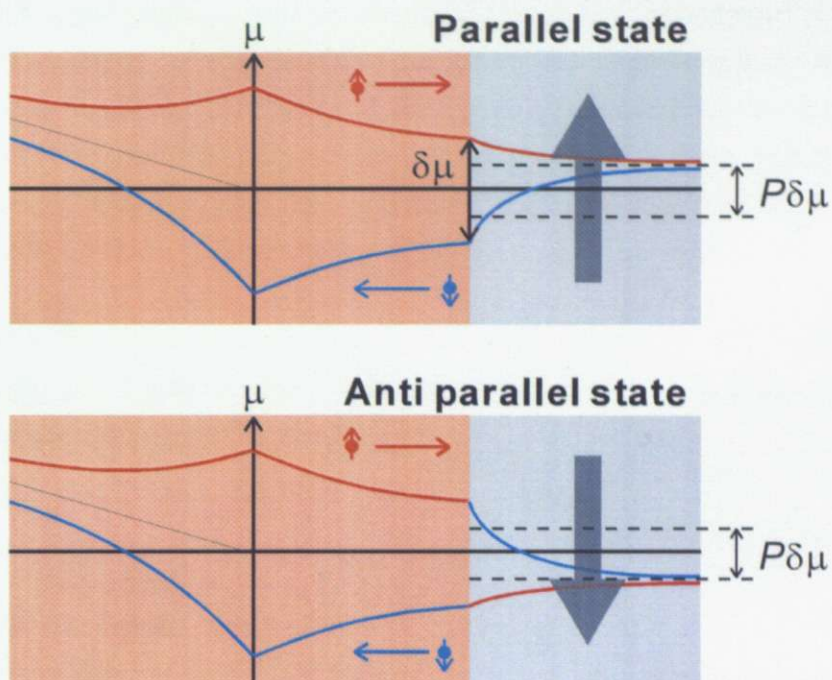


Fig.1.4.1.2 面内スピンプルにおける電気化学ポテンシャル
 (上) 双方の磁化が平行状態のとき
 (下) 双方の磁化が反平行状態のとき

典型的な非局所スピンプルズの測定結果を Fig.1.4.1.3 に示す。図中の実線は磁場を負から正に掃印した場合、破線は磁場を正から負に掃印した場合の電位差の変化を表している。測定結果には強磁性体のヒステリシスを反映した平行状態、反平行状態の電位が現れる。 ΔR が強磁性体の相対関係が平行と反平行になった際の最大差であり、スピン蓄積信号である。

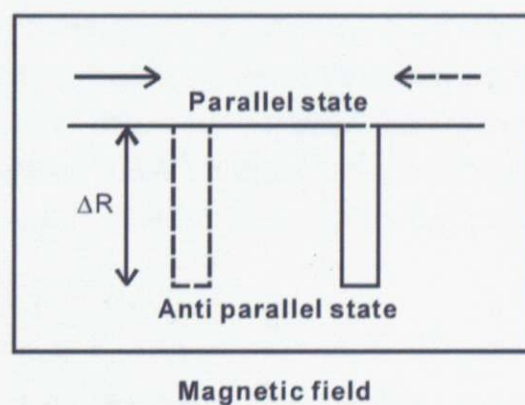


Fig.1.4.1.3 非局所スピンプルズ素子の磁場依存性

1.4.2 トンネル接合型面内スピンプルズ

強磁性/非磁性接合界面をトンネル接合の場合にはトンネル型スピンプルズ素子と呼ばれている。トンネル接合型スピンプルズにおいても磁化に依存した抵抗変化が現れることが

1995年に発見された[10][11]。このトンネル接合型スピンプバルブは金属接合型のスピンプバルブと比べに高いMR比（2つの磁化状態での抵抗の差 $R_{AP}-R_P$ を平行状態での抵抗値 R_P で割った比）をもつことが知られており、非常に注目され活発に研究されている[12]。

非局所面内スピンプバルブ素子においてもスピンプ蓄積信号が現れるが、金属接合の場合と異なる点がある。それはトンネル接合であるために強磁性/非磁性接合界面においてスピンプの吸収効果が無くなるということである。そのため(1.4.1)式が簡素化され

$$\Delta R = R_{SN} p^2 e^{-\frac{L}{\lambda_N}} \quad (1.4.3)$$

となり、単純にスピンプ蓄積の減衰項（拡散方程式に起因する項）のみが効いた式の形になり、単純に指数関数的に減衰する形で表される。

1.5 スピンプホール効果

1.5.1 スピンプホール効果

スピンプホール効果とは電流と垂直な方向にスピンプ流が発生する現象のことである（Fig.1.5.1）。この現象はスピンプ軌道相互作用に起因する現象である[13]。スピンプ軌道相互作用により電流の向きと垂直な方向に電子が曲げられる。スピンプ軌道相互作用により電子の軌道が曲げられる散乱機構は2種類あり、サイドジャンプとスキュー散乱と呼ばれている。サイドジャンプは電子波の状態にスピンプ軌道相互作用が加わることで横にずれるという量子力学的な効果であり、スピンプの向きによって異なる方向にずれる。スキュー散乱はスピンプ軌道相互作用によって散乱された電子の散乱方向の確率分布がスピンプの向きに依存して変化するというものである。その確率分布の違いから伝導に対しスピンプに依存した差が現れる。これら双方とも散乱される方向は

$$\vec{k}_s' \propto \vec{s} \times \vec{k}_s \quad (1.5.1)$$

となりスピンプの向きと進行方向に対して垂直な方向に散乱される。そのため電流と垂直な方向にスピンプ流が現れる。またこれらの散乱機構の影響は抵抗率に依存することが知られていて

$$\begin{cases} \rho_{SS} \propto \rho \\ \rho_{SJ} \propto \rho^2 \end{cases} \quad (1.5.2)$$

とスキュー散乱とサイドジャンプはそれぞれ抵抗率の1次と2次に比例することが知られ

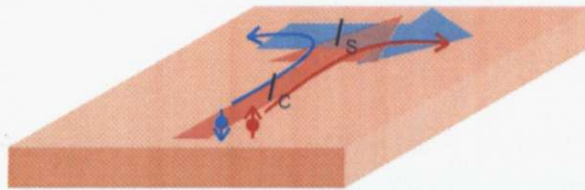


Fig.1.5.1 スピンプホール効果

ている[14][15]。近年、微細加工技術の進展により金属中におけるスピントール効果を実験的に観測できるようになり活発に研究されている[16][17]。

1.5.2 逆スピントール効果

逆スピントール効果とはスピントール効果とは逆でスピント流に垂直な方向に電流が発生する現象である (Fig.1.5.2)。基本的な現象としてはスピントール効果と全く同じでスピント軌道相互作用が原因となって起こる現象である。スピントール効果と逆スピントール効果を合わせることで電流 \leftrightarrow スピント流の相互変換を行うことができる。

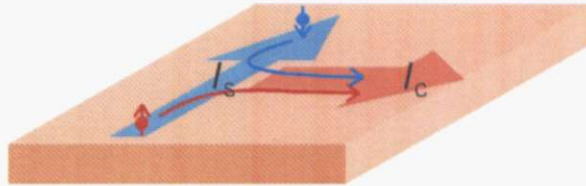


Fig.1.5.2 逆スピントール効果

1.5.3 スピントール伝導度

スピントール効果を定量的に評価するパラメータにスピントール伝導度というものがある[18]。スピントール伝導度は電流の起電力である電場とスピント流の起電力であるスピント蓄積を用いて次のように定義される。

$$\begin{pmatrix} i_{c,x} \\ i_{s,y} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma & -\sigma_{\text{SHE}} \\ \sigma_{\text{SHE}} & \sigma \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ -\frac{1}{e} \frac{\partial \delta \mu}{\partial y} \end{pmatrix} \quad (1.5.3)$$

この σ_{SHE} をスピントール伝導度という。

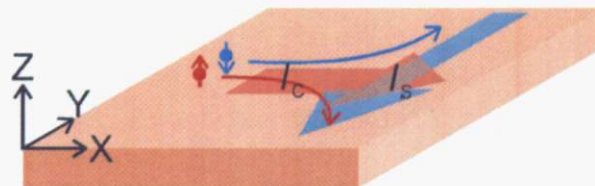


Fig.1.5.3 スピントール伝導度

1.5.4 スピントール効果と異常ホール効果

異常ホール効果もスピントール効果と同じ起源をもっている。異常ホール効果とは電流方向と強磁性体の磁化方向に垂直な向きに電流が発生する現象である。これもスピント軌道相互作用によるサイドジャンプとスキュー散乱が原因となっている。非磁性体中でも同様

にスピン軌道相互作用による影響があるが、ここで重要であることは強磁性体中で伝導電子がスピン偏極している点である。このスピンの不均衡が原因となり、スピンによって異なる方向に曲げられる電子が相殺されず電流が現れる (Fig.1.5.4)。逆に非磁性体中では伝導電子にスピン偏極が無いため、電子の流

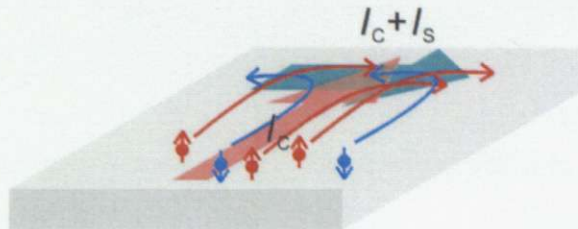


Fig.1.5.4 異常ホール効果

れが相殺され電流は現れない。この発生する電流と共にスピン流も流れていることになる。異常ホール効果によって発生する電流がスピン軌道相互作用によるスキュー散乱とサイドジャンプが原因であることを考えると、発生する電流の抵抗率依存性は

$$\rho_{xy} = a\rho + b\rho^2 \quad (1.5.4)$$

となる。 $a\rho$ の項はスキュー散乱による影響である、 $b\rho^2$ はサイドジャンプによる影響を表している。

1.6 目的

近年、このようなスピンに依存した電気伝導特性が基礎・応用ともに注目され活発に研究が行われている。

このようなスピン依存伝導特性において最も基本的な 1 つの現象はスピン蓄積効果とその緩和挙動である。これらのスピン蓄積に関する現象はスピン流に起因する効果の実験的観測や、またハードディスクドライブの読み取りヘッドに利用されている GMR (Giant magneto resistance) 素子や TMR (Tunnel magneto resistance) 素子に対しても基礎を与える現象であるため、磁性体の電気伝導物性に対する基礎・応用の両面に対し非常に重要なものである。

一方、スピンホール効果も近年の微細加工技術の進展により、実験的に観測できるようになり、今後のスピントロニクスにとって基礎科学としても現在非常に注目されている現象である。

そこで、今回微細加工技術を用い、非局所スピンバルブ素子、スピンホール効果素子を作製することでそのスピン依存伝導特性を主にスピン蓄積効果とその緩和挙動、スピンホール効果について調べることを目的とする。

2 実験方法

2.1 試料作製方法

本実験で用いた全ての試料は、リフトオフ法により作製された。Fig.2.1.1 に作製過程を図示化したものを示す。まず、基板にレジストと呼ばれる樹脂（処理をしたくない場所のみを選択的に保護する樹脂）を塗布し、試料のパターンに沿って電子線で描画（感光）する。その後、描画した箇所のレジストを有機溶媒を用いて現像する。引き続き、基板全体に蒸着を行い、最後に剥離剤に数時間浸して残った箇所のレジストを除去することで微細構造を得ることができる。この手法を用いることでサブミクロンスケールの微細加工を行うことができる。

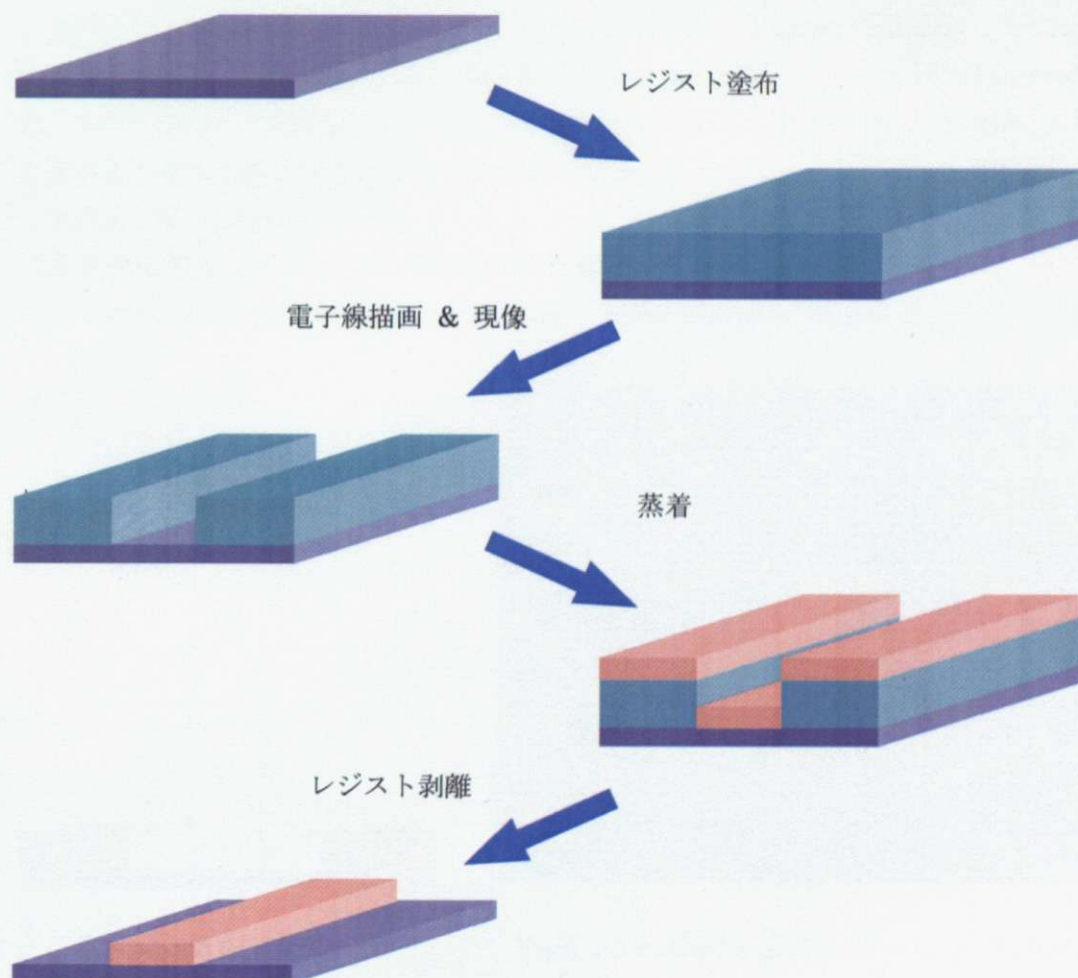


Fig.2.1.1 試料作製方法

本実験では、電子線に対する感光度の異なるレジストを2層積載した2層レジストを用いた。電子線描画の際には電子線露光装置としてエリオニクス社のELS-6600を用いた。2層レジストに電子線描画を行うと現像をした際にレジストに差異が現れる。下方に感度の良いレジストを用いるとFig.2.1.2のように下方のレジストが上方のレジストに比べて過剰に削られる。このような2層レジストを用いる利点として、1) 上層のレジストを障壁として使うことにより複雑な構造の試料パターンを1度のリフトオフ過程で作製できることや、2) レジスト全体の剥離の最終工程の際に剥離が容易になることなどが挙げられる。今回作製した試料の1つの走査型電子顕微鏡 (SEM) 像をFig.2.1.3に示す。

この試料はPy/Cu/Pyの非局所スピンプルプの試料である。この試料の破線部の構造はFig.2.1.4のような蒸着手順によって作製した。まず、2層レジストに電子線描画を行い現像する。次にPy (パーマロイ) を図のように傾けた方向から蒸着を行う。次に別の方向 (鉛直方向) からCu (銅) の蒸着を行なうことで上手く障壁を利用することでPyとは異なった箇所にCuを蒸着する。最後にレジストの剥離を行なう。この様な手順を踏むことでSEM像の構造を持つ試料が作製される。本実験における試料の多くはこの手法を用いて作製した。なお、使用した蒸着装置はFig2.1.5のような構造を持つ装置である。蒸着膜を作製する際に電子線加熱式と抵抗加熱式の2種類の方法を用いた。

本研究で用いた材料のうちAl (アルミニウム) とCuは抵抗加熱式でPyは電子線加熱式で蒸着を行った。メインチャンバーと試料交換室は両方ともターボ分子ポンプで真空引きされており、真空度はそれぞれ 2×10^{-9} (Torr)、 2×10^{-7} (Torr)まで到達することができる。

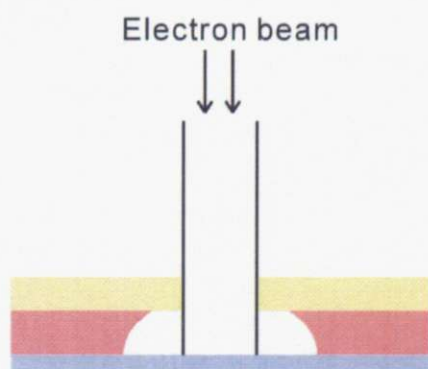


Fig.2.1.2 2層レジスト

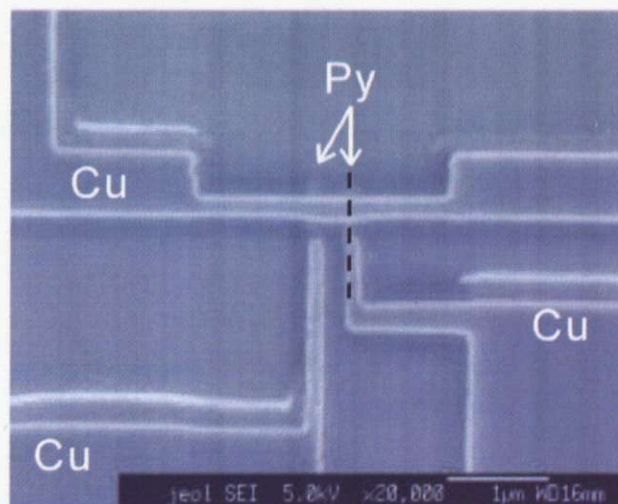


Fig.2.1.3 Py/Cu/Py 面内スピンプルプのSEM像

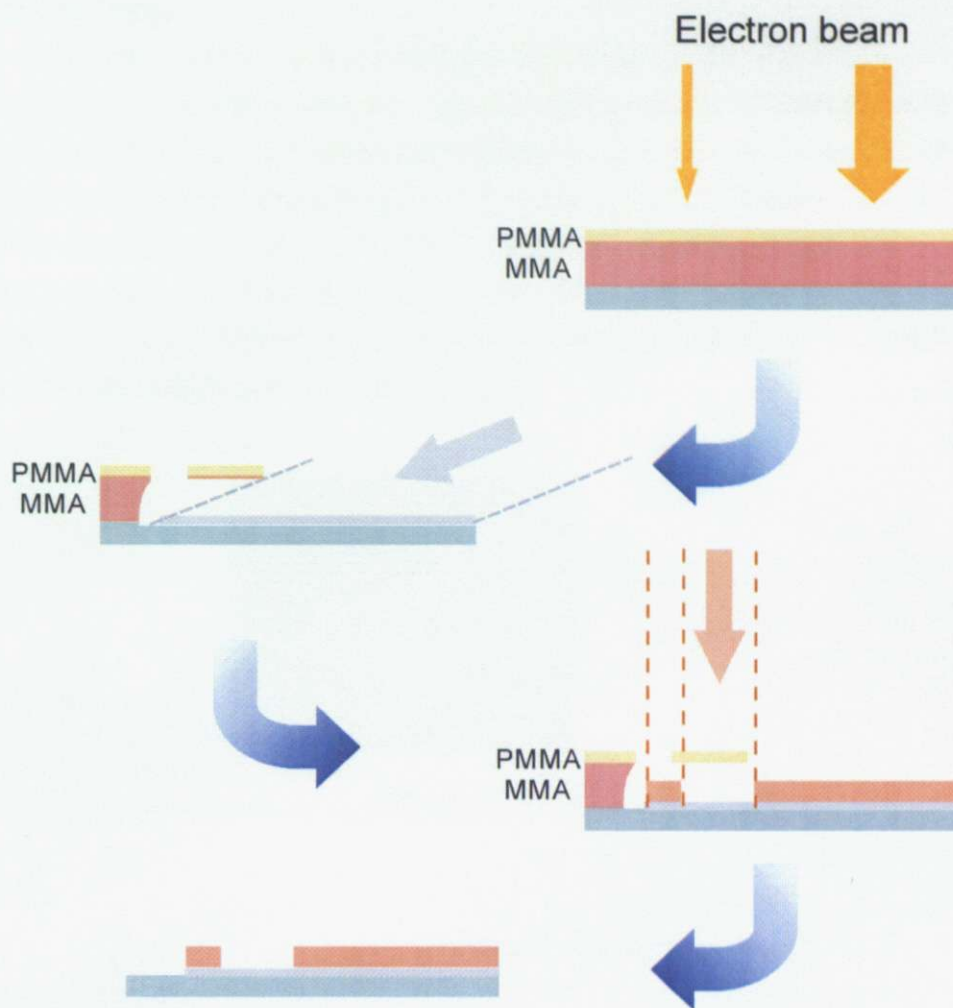


Fig.2.1.4 Py/Cu/Py 面内スピナルブ試料の作製手順

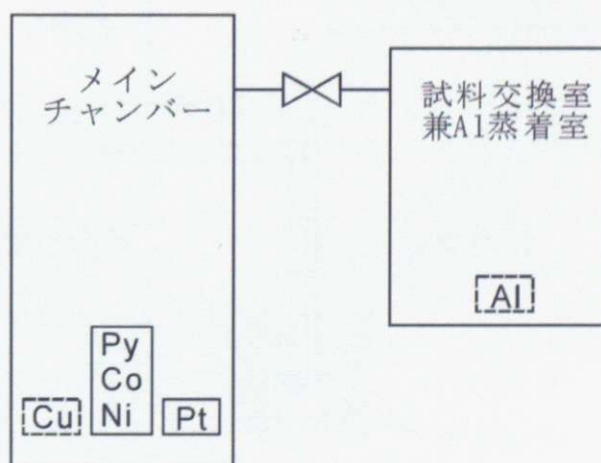


Fig.2.1.5 蒸着装置 (実線は電子線加熱式、破線は抵抗加熱式)

2.2 測定方法

スピン蓄積に起因する信号は非常に微小な信号であるため、測定にはロックインアンプを利用した。また磁場依存性を調べるために電磁石を用い、その電位差の磁場応答を測定した。非局所スピンバルブ測定の測定回路図例を Fig.2.2.1 に示す。本測定の多くは非局所スピン注入法を用いて測定を行っているため Fig.2.2.1 のように試料に電流端子と電圧端子が 2 つずつ取り付けられていて、測定する電圧端子間に電流が直接流れていないことが特徴である。また、本実験の温度依存性の測定の際には液体 He を用い、5K から室温の温度範囲で行なった。測定時には Fig2.2.2 のように構成される装置を用い、電磁石で磁場をかけ、液体 He を循環させながら測定を行った。

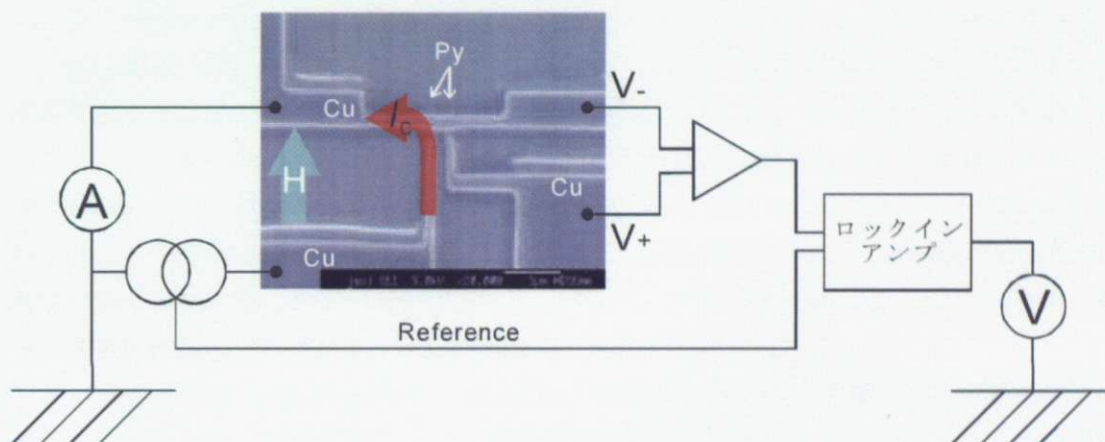


Fig.2.2.1 非局所スピンバルブ測定回路図

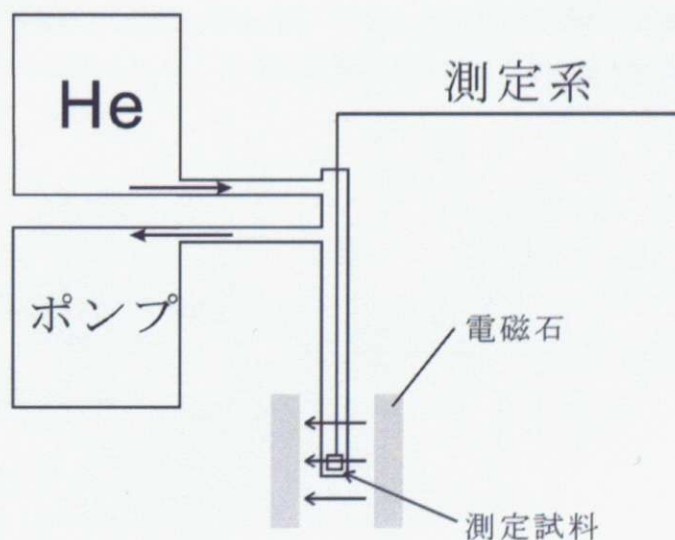


Fig2.2.2 低温磁気伝導測定装置図

3 測定結果

3.1 Py/Cu/Py 面内スピバルブ

3.1.1 スピバルブ測定

本測定に用いた試料の SEM 像を Fig.3.1.1.1 に示す。スピバルブ素子の作製にあたって非磁性層に Cu、強磁性層に Py を用いた。試料の基本構造は SEM 像のように 2 本の Py 細線を跨ぐように Cu の細線が取り付けられている。試料中の Cu、Py の膜厚はそれぞれ 320nm と 20nm であり、作製にあたって二層レジストを用い、斜め蒸着技術を用いて一回のリフトオフ過程で作製した。そのため Cu/Py の接合界面は作製段階で真空中に保たれており、不純物の混入は通常の 2 回のリフトオフ工程を経る場合に比べて少量であると考えられる。不純物の混入が接合界面で少量であればスピン注入効率も上昇すると考えられる。

スピン蓄積信号を測定するために Fig.3.1.1.2 に示すような端子配置を用いた。このとき観測される電位差は Py 内のスピン蓄積が緩和し収束した結果と Cu 内のスピン蓄積が緩和し収束した結果の差である。Fig.3.1.1.4 の様に Py 中では伝導電子がスピン偏極しているために緩和していく過程でスピン蓄積の中心線から外れた電位で収束する。この際、磁化の向きによって緩和のされ方が異なる。一方、Cu 内では伝導電子のスピン偏極がないため均等に緩和しスピン蓄積の中心線に収束していく。そのため電位差が現れる。また強磁性体中に差異が現れるため測定電位差に外部磁場（磁化）依存性が現れる。

この電位差の測定時に外部磁場は強磁性体の形状磁気異方性容易軸方向にあたる矩形の長軸方向に印加し、印加磁場を双方の強磁性体の磁化反転磁場にまたがるように掃印することにより磁化の平行状態、反平行状態が明瞭に現れるようにした。この測定の室温での電位差の磁場依存性を Fig.3.1.1.3 に示す。このグラフ中の赤線は磁場が正方向への印加、青線は負方向への印加時の測定結果を表している。グラフ中の赤線、青線共に明瞭な平行、反平行の磁化状態を反映した 2 つの電位状態が現れていることが分かる。この電位差がスピン蓄積信号の式 (1.4.1)

$$\Delta R = \frac{p^2 \left(\frac{R_{SF}}{R_{SN}} \right)^2 R_{SN}}{2e^{\frac{d}{\lambda_N}} \frac{R_{SF}}{R_{SN}} \left(2 + \frac{R_{SF}}{R_{SN}} \right) + 4 \sinh \frac{d}{\lambda_N}} \quad (3.1.1)$$

に対応する (Fig.3.1.1.4)。

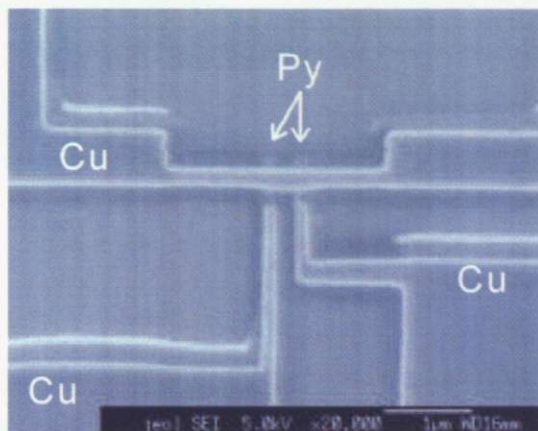


Fig.3.1.1.1

Py/Cu/Py 面内スピンプルプ素子の SEM 像

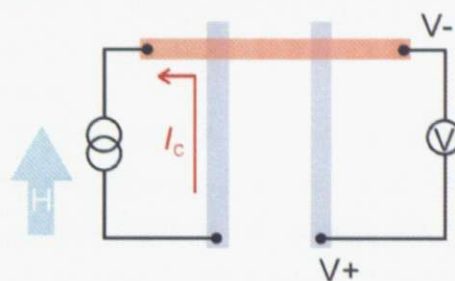


Fig.3.1.1.2 スピン蓄積信号の測定回路図

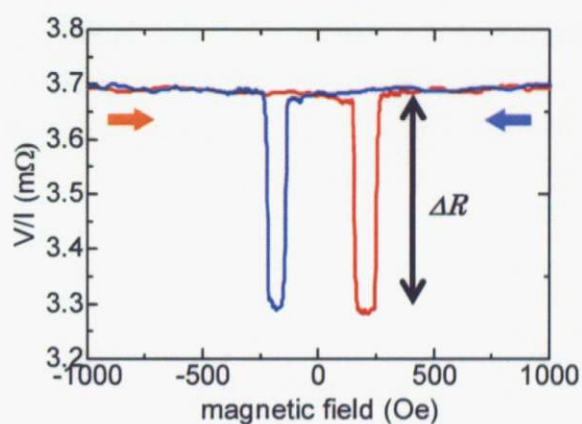


Fig.3.1.1.3 スピン蓄積信号の測定結果

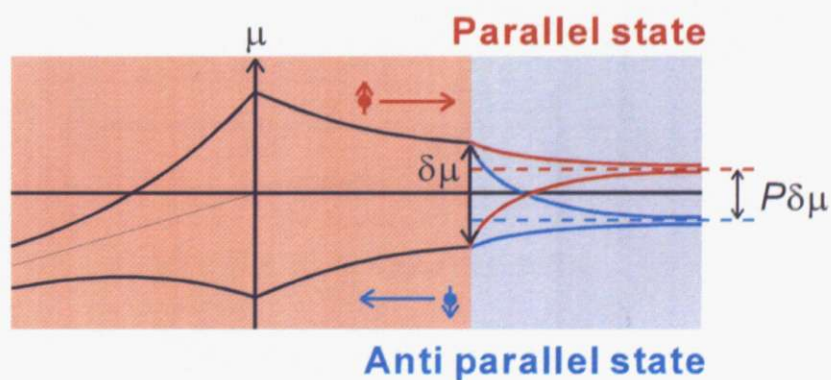


Fig.3.1.1.4 スピン蓄積信号測定時の電気化学ポテンシャル

3.1.2 温度依存性

スピン拡散の温度依存性を調べるために非局所スピンプルズ測定の温度依存性を測定した。スピン蓄積信号の温度依存性をプロットしたものが Fig.3.1.2.1 のグラフである。このグラフから分かるスピン蓄積の温度依存性の特徴は次の 2 点が挙げられる。

- ・ 温度が室温を冷却するにつれスピン蓄積信号は大きくなる。
- ・ 40K 付近において一度スピン蓄積信号は極大を取る。

この 2 つの現象は異なるスピン拡散現象を考えることで説明することができる。前者はフォノン散乱の減少により起こるスピン拡散長の増大が原因であると考えられる。スピン拡散長が増加することで Cu/Py (検出端子) の接合界面でのスピン蓄積も増大し、その結果として現れるスピン蓄積信号も大きくなったものであると考えられる。

しかし、フォノン散乱のみが原因であればある温度領域に達するところでフォノン散乱によるスピン反転散乱が飽和し、その結果スピン蓄積信号はある温度を境に極大を取らず、飽和してしまうはずである。そこで考えられることは低温領域ではフォノン散乱が減少し平均自由行程が伸び、そのため表面酸化層の散乱の影響が大きくなるということである。表面散乱によるスピン反転確率がフォノン散乱によるスピン反転確率よりも大きければ、低温においてフォノン散乱より表面酸化層による散乱が支配的になることでよりスピン反転が促進され、スピン蓄積信号は減少するものであると考えられる (Fig.3.1.2.2)。

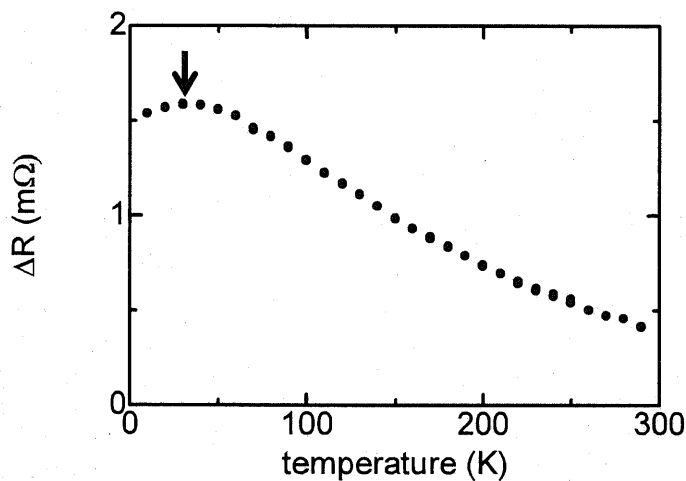


Fig.3.1.2.1 スピン信号 ΔR の温度依存性

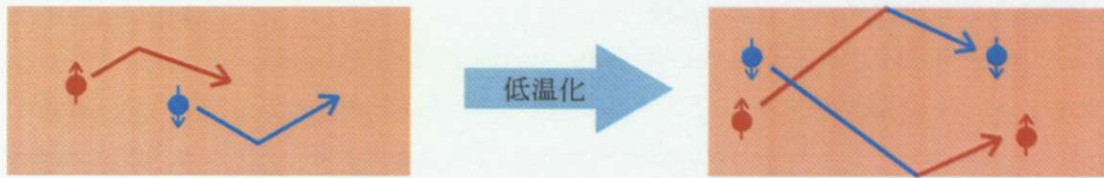


Fig.3.1.2.2 散乱過程の温度変化

3.1.3 膜厚依存性

スピン蓄積の緩和に対し表面酸化層による散乱の影響があるとするならば Cu の膜厚を変化させ同様の非局所スピナルブ測定を行うことで測定されるスピン蓄積信号の大きさや温度依存性に変化が現れることが予測される。そこで、同様の構造を持つスピナルブ素子を Cu の膜厚を変化させ、同構造を持つ 4 種類の試料の作製を行った。Cu の膜厚は 30nm、60nm、120nm、320nm である。Fig.3.1.3.1 と Fig.3.1.3.2 は Cu の膜厚が 30nm、60nm、120nm、320nm の面内スピナルブ素子に対するスピン蓄積信号の温度依存性である。グラフは生のスピン蓄積信号をプロットしたグラフ (Fig.3.1.3.1) と 10K のスピン蓄積信号で割ることによって規格化し、温度依存性を比較しやすくしたグラフ (Fig.3.1.3.2) の 2 種類ある。この測定結果から膜厚に依存してスピン蓄積信号が明瞭に変化している様子が確認できる。測定結果から分かることは以下の 2 点が挙げられる。

- ・ スピン蓄積信号の大きさが Cu の膜厚が薄くなるに従い極端に減少する。
- ・ スピン蓄積信号の極大温度が Cu の膜厚が厚くなるに従い低温側へ推移する。

これら 2 点の問題も Cu 酸化層による表面散乱の寄与を考えることで説明することができる。基本的に考えていることはフォノンによるスピン反転確率に比べて、Cu 酸化層による散乱

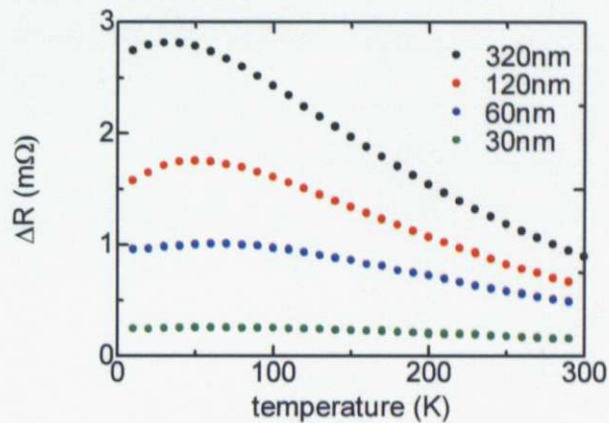


Fig.3.1.3.1 各膜厚におけるスピン蓄積信号の依存性

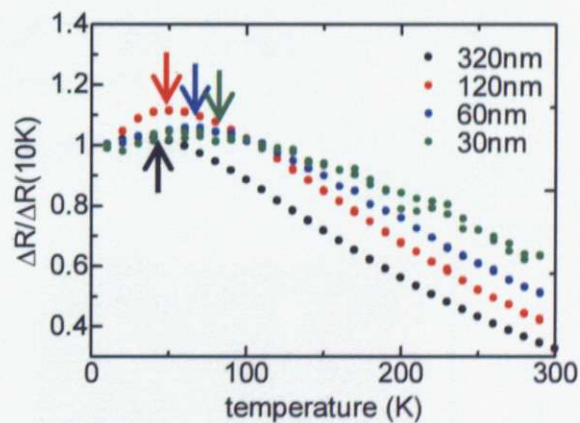


Fig.3.1.3.2 各膜厚におけるスピン蓄積信号の依存性 (規格化)

のスピンの反転確率が大きいということである。Cyの膜厚が薄くなれば酸化層による散乱の寄与が大きくなり、その結果Cuの膜厚の薄い試料ほどスピンの反転確率が大きくなり、スピン蓄積信号は小さくなると考えられる。そのため1点目の「スピン蓄積信号の大きさがCuの膜厚が薄くなるに従い極端に減少する。」という特徴はこの影響によるものであると考えられる。また2点目の「スピン蓄積信号の極大温度がCuの膜厚が厚くなるに従い低温側へ推移する。」という特徴は温度変化に伴う伝導電子の平均自由行程の変化による影響であると考えることができる。つまり、温度の減少によってフォノン散乱が減少し、伝導電子の平均自由行程が増加する。この際、Fig.3.1.3.4のように膜厚の薄い試料の方がより高温領域で表面酸化層散乱の寄与が効いてくると考えられ、その結果として極大温度の高温側に推移するものであると考えられる。

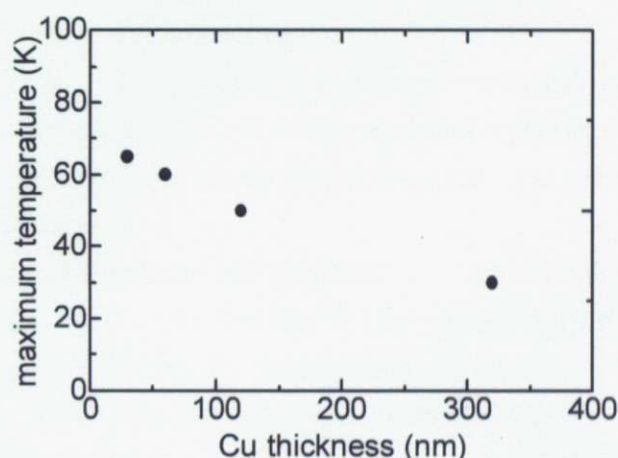


Fig.3.1.3.3 極大温度の膜厚依存性

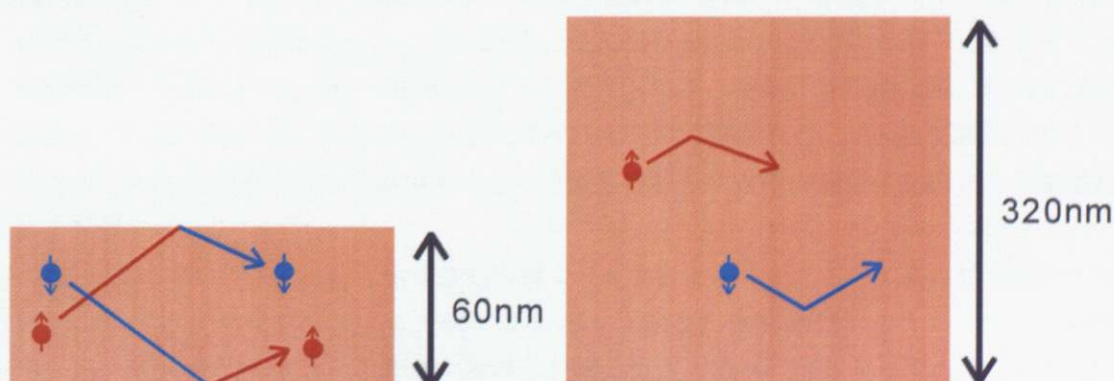


Fig.3.1.3.4 散乱過程の膜厚依存性 (80K 近傍における電子の振る舞い)

3.1.4 距離依存性

スピン蓄積信号の距離依存性を測定することで Cu 内のスピン拡散についてより詳細に調べることができる。具体的にはスピン拡散長をフィッティング曲線を用いることによって見積もることができる。そこで、Cu の膜厚が 60nm、320nm の試料を Py-Py の端子間距離を変化させ測定を行った。測定で得られたスピン蓄積信号の温度依存性の測定結果を Fig.3.1.4.1、Fig.3.1.4.2 に示す。膜厚依存性の時と同様に生じたスピン蓄積のデータと 10K のスピン蓄積の値で割ることで規格化したグラフの双方を下に示した。双方の測定結果において共通の結果として Py-Py 間の距離が増加することでスピン蓄積信号が減少していることが分かる。これは単にスピン蓄積の緩和が Cu 内で起こるため距離が離れるに従い、スピン蓄積が減少することに対応する。測定結果から分かる膜厚が変化することで現れる明瞭な変化としては

- ・ Cu の膜厚の厚い素子の方のスピン蓄積信号が大きい。
- ・ スピン蓄積信号の取る極大温度特性の違い。
 - Cu の膜厚が 60nm の試料の温度依存性においては明瞭な極大温度の距離依存性が現れる。Cu の膜厚が厚くなるに従い極大温度は低温側に推移する。
 - Cu の膜厚が 320nm の試料の温度依存性においては極大温度に明瞭な距離依存性が観測されなかった。

が挙げられる。スピン蓄積信号に Cu の膜厚差によって違いが明瞭に現れているため、この原因として考えられることは Cu 表面酸化層による散乱の寄与であると考えられる。

スピン注入された電子の拡散伝導の軌道を考えると、Fig.3.1.4.3 のように Py/Cu の接合界面付近ではスピン抵抗の不釣り合いにより軌道に鉛直成分の寄与が入ってくると考えられる。Py/Cu の接合界面から離れることで次第に緩和され、水平成分が強くなる。軌道の鉛直成分が強ければ表面散乱の寄与が大きくなることが予想される。よって、Fig.3.1.4.3 のように表面散乱の寄与が大きい部分とバルク散乱の寄与が大きい部分に分別することができる。Py/Cu の注入端子・検出端子間距離が近ければ表面酸化層散乱が支配的になり、遠くなれば逆にバルク散乱が支配的になる。その結果、注入端子・検出端子間距離の違いによりスピン蓄積信号の温度依存性に違いが現れてくると考えられる。両端子間距離が短い状態では表面散乱の効果が強く効いてくるため極大温度が高温側に推移する。この表面散乱が強くなることで高温側へ極大温度が推移するという結果は膜厚依存性の場合に観測された測定結果と一致する。

また、Cu の膜厚が 320nm と平均自由行程よりも十分に厚くなることによって表面酸化層散乱の影響が端子間距離によらず弱くなりバルク散乱が支配的になるため、Cu の膜厚 320nm の試料の測定結果には距離に依存した極大温度の推移はほとんど現れなくなるものと考えられる。

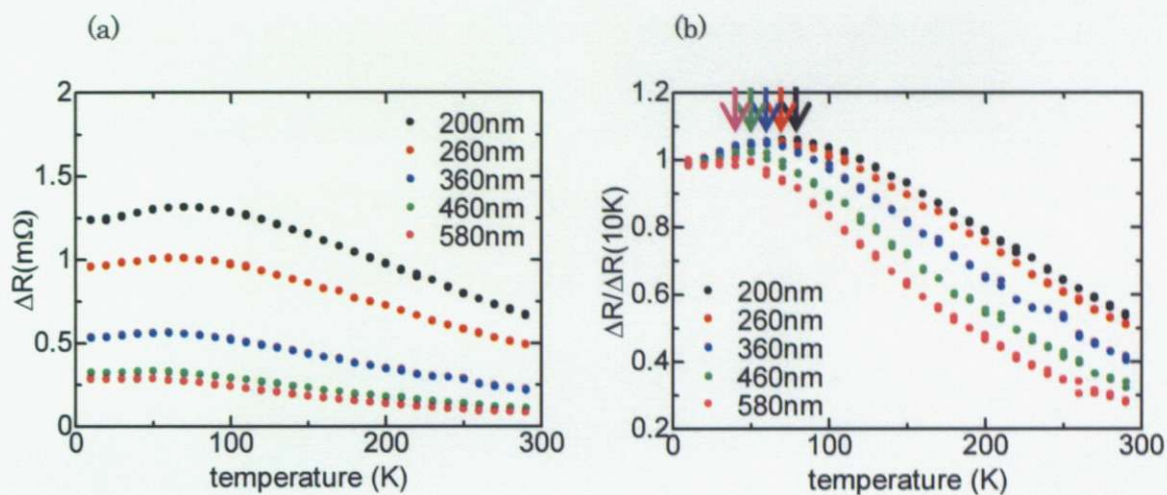


Fig.3.1.4.1 各距離におけるスピン蓄積信号の温度依存性 (Cu 膜厚 60nm)

(a)測定結果、(b)規格化した値

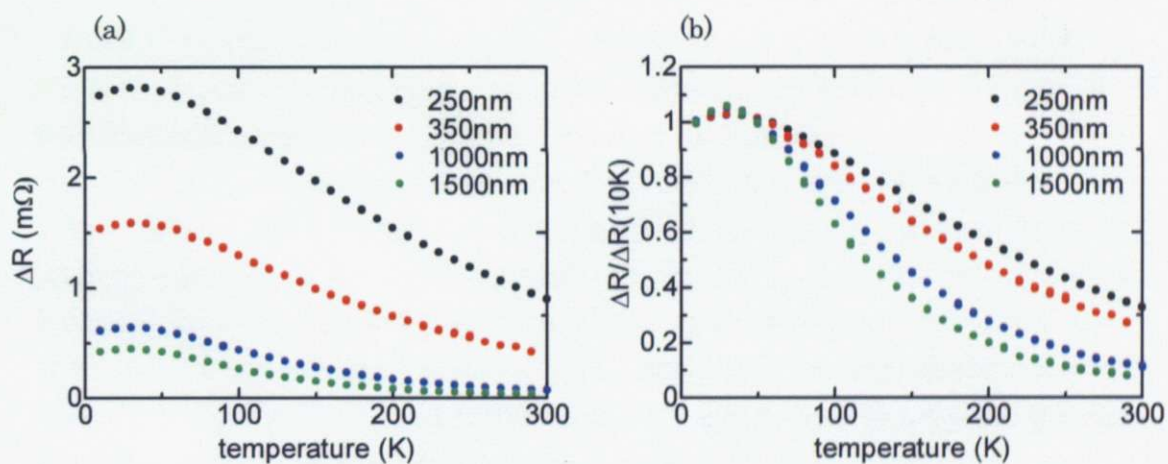


Fig.3.1.4.2 各距離におけるスピン蓄積信号の温度依存性 (Cu 膜厚 320nm)

(a)測定結果、(b)規格化した値

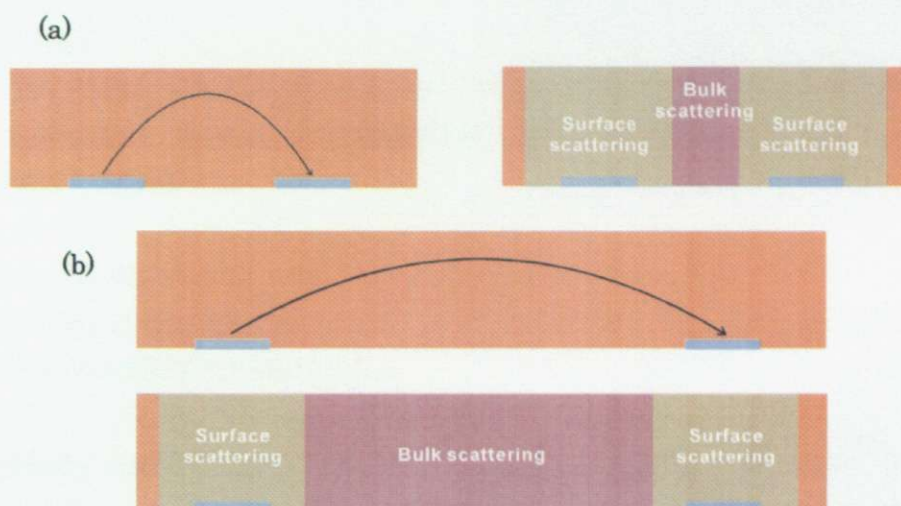


Fig.3.1.4.3 注入電子の拡散伝導軌道と散乱状態

(a) 強磁性体間距離の短い場合

(b) 強磁性体間距離の長い場合

距離依存性の測定結果に対しフィッティングを用いることでスピンドiffusion長を求めることができる。Fig.3.1.4.4は温度290K、Cuの膜厚が60nmにおける試料のスピンス蓄積信号と強磁性体間距離の関係をプロットしたものである。これを式(3.1.1)でフィッティングを行うことによってCu中のスピンドiffusion長を求めることができる。グラフ中の青線は式(3.1.1)を用いて実際フィッティングを行った曲線である。このフィッティング曲線からCuのスピンドiffusion長が153nmであるということを見積もることができる。この手法を用いた見積もりを各温度において行った結果をFig.3.1.4.5に示す。温度の減少に伴いスピンドiffusion長が増大していることがフィッティング結果から分かる。低温においてもスピンドiffusion長が増大している原因は距離が長いスピンス蓄積の影響が混ざっているためバルク散乱の影響が強く見積もりの際に加わっている為だと考えられる。

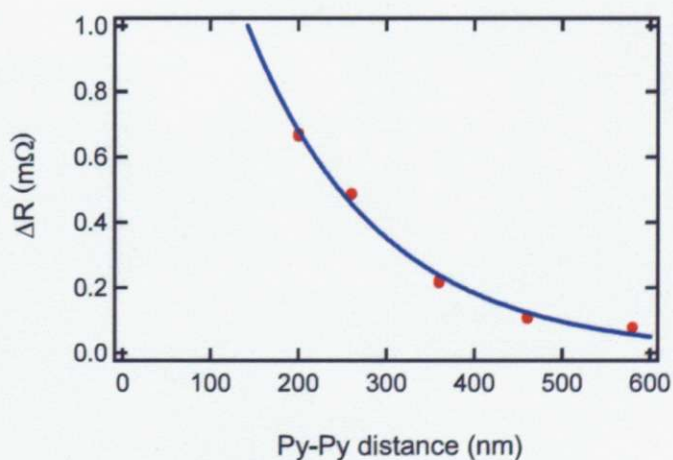


Fig.3.1.4.4 スピンス蓄積信号の距離依存性

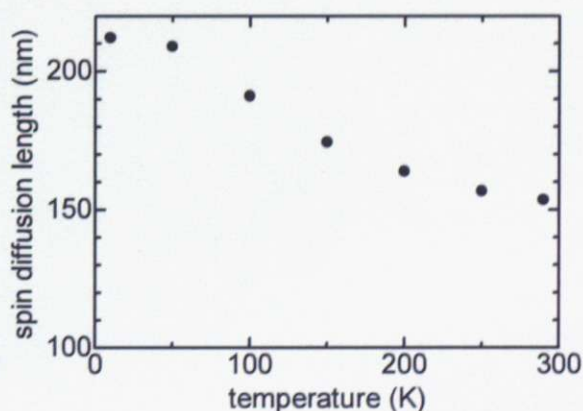


Fig.3.1.4.5 スピンドiffusion長の温度依存性

3.1.5 小括

本項では Py/Cu/Py 非局所スピバルブの測定を行う事で、スピン蓄積信号の測定を行った。温度依存性、膜厚依存性、強磁性体間距離依存性を調べることでスピン蓄積のスピン拡散現象を直接調べた。

- ・ Py/Cu/Py 非局所スピバルブ素子の作製の際斜め蒸着技術を用いることで、接合界面の不純物が少量となる試料を作製した。そのス非局所スピバルブ測定を行うことで明瞭なスピン蓄積信号を観測した。
- ・ Py/Cu/Py 面内スピバルブ素子のスピン蓄積信号の温度依存性、膜厚依存性、距離依存性の測定を行った。測定結果から表面酸化膜層がスピン蓄積緩和に対し重要であるということが分かった。

3.2 Py/Al/Py 面内スピバルブ

3.2.1 スピバルブ測定

Py/Cu/Py 非局所スピバルブと同様の測定を Py/Al/Py 非局所スピバルブについても行った。試料作製にあたっては斜め蒸着法を用い、Al の蒸着後 Al 膜を酸化させ、トンネル接合型のスピバルブを作製した。Fig.3.2.1.1 は測定試料の SEM 像である。基本構造は Py/Cu/Py のスピバルブ試料と同様の構造であり 2 本の Py 強磁性細線を横切るように Al の非磁性細線が取り付けられている。

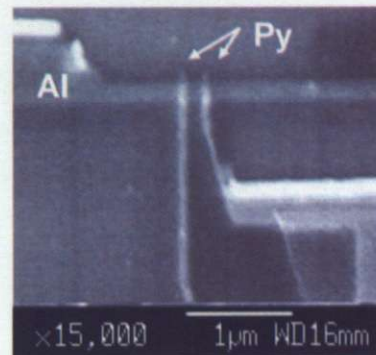


Fig.3.2.1.1 Py/Al/Py トンネル型非局所スピバルブの SEM 像

Py/Cu/Py のスピバルブと同様に Fig.3.2.1.2 のような端子配置でスピン蓄積信号の測定を行った。10K におけるこの端子配置で行った測定結果が Fig.3.2.1.3 である。通常のスピバルブ測定と同様に測定結果から磁化が平行状態、反平行状態に対応する明瞭な信号の変化があることが分かる。トンネル型スピバルブの場合には注入、検出端子においてスピン吸収が起きないためにスピン蓄積信号の式が簡単に表され、(1.4.3) 式

$$\Delta R = R_{\text{SN}} p^2 e^{\frac{L}{\lambda_N}} \quad (3.2.1)$$

となる。

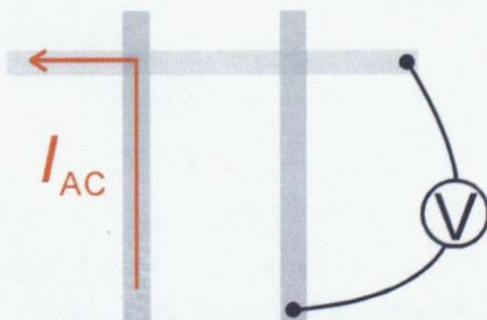


Fig.3.2.1.2 非局所スピバルブの測定回路図

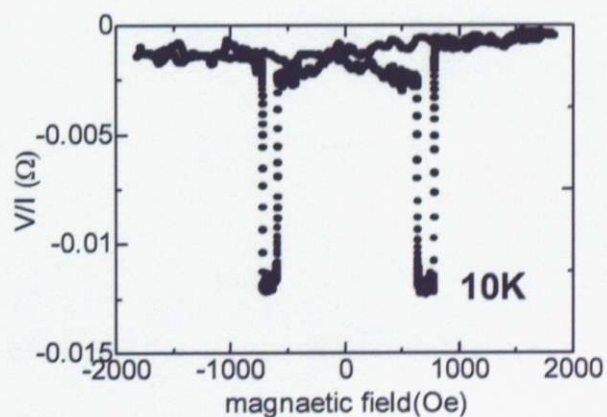


Fig.3.2.1.3 Py/Al/Py 非局所スピバルブの測定結果

3.2.2 温度依存性

Py/Cu/Py のスピバルブの測定時に表面散乱の影響が重要であると考えられることを示した。Al に対しても Al 膜を薄くすることでその影響が現れることが予想される。Py/Cu/Py のスピバルブの際には表面酸化膜の影響は温度依存性に対しても現れた。そこで Py/Al/Py スピバルブ素子の温度依存性の測定を行った。

Fig.3.2.2.1 にスピ蓄積信号の温度依存性を示す。測定結果は Py/Cu/Py の場合とは異なり、スピ蓄積信号は極大を取ることはなく、温度の減少に伴い単純増加をしていることが分かる。これはスピ蓄積に Al 酸化層の存在により Cu 酸化層に比べてスピ反転確率が少なく、バルク散乱のスピ反転の影響のみが効いている結果であると考えられる。そのため Cu の場合とは異なる温度依存性をとると考えられる。

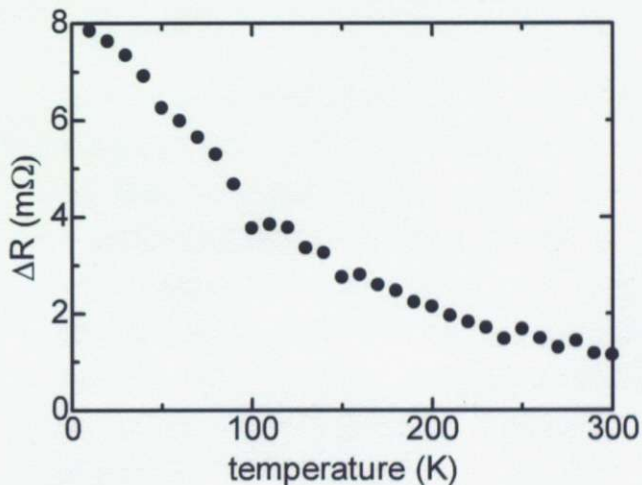


Fig.3.2.2.1 スピ信号の温度依存性

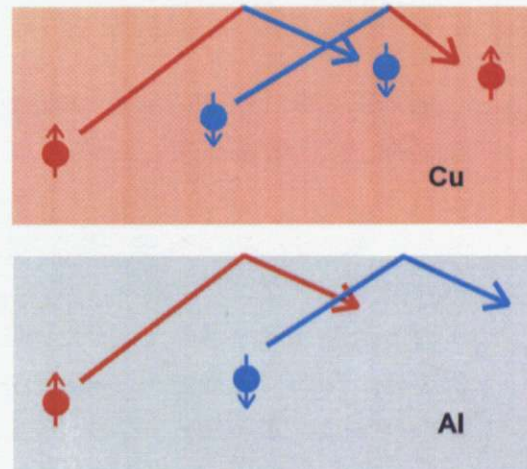


Fig.3.2.2.2 Cu・Al の表面散乱

3.3 小括

本項では Py/Al/Py トンネル型スピバルブ素子を作製することで、表面に絶縁膜がある状態のスピ拡散の温度依存性を調べた。

- Py/Al/Py 非局所スピバルブ素子を同様に作製し、スピ蓄積信号の測定を行った。測定結果は Py/Cu/Py 非局所スピバルブ素子と異なった。Al 酸化膜が絶縁膜になることで Cu の場合のスピ蓄積緩和と異なる結果が現れた。

3.3 Py 細線中のスピントール効果

3.3.1 逆スピントール効果

本実験で使用したスピントール効果用の試料の基本構造は Fig.3.3.1.1 の様な構造を持つ試料である。基本構造としては強磁性体細線が 2 本あり、その 2 本の強磁性体細線を横切るように非磁性体細線が 1 本取り付けられている。逆スピントール効果の測定時には Fig.3.3.1.1 の端子配置で測定を行った。この端子配置では右方の強磁性細線の逆スピントール効果の測定を行うことができる。電流を流す事で左方の強磁性/非磁性接合界面に強磁性体中のスピン偏極電流が流れ込み、スピン蓄積が起こる。そのスピン蓄積の緩和により右方の強磁性/非磁性接合界面へスピン流が流れこむ。接合界面に流れこんできたスピン流の一部が右方の強磁性体細線の方へ流れ込んでいく。この際、細線の厚みを非磁性体の厚みに比し十分薄くしておくことで Fig.3.3.1.2 のように鉛直方向に流れ込むことが予想される。そのため外部磁場を水平方向へ印加することで

$$\vec{I}_C \propto \vec{s} \times \vec{I}_S \quad (3.3.1)$$

というスピン軌道相互作用によってスピン流から変換された電流が発生し (Fig.3.3.1.3)、Fig.3.3.1.1 のように電圧端子を配置することで逆スピントール効果を測定することができる。測定では外部磁場を掃印し、電位差の測定を行った。

上記の方法で測定した強磁性体 Py の逆スピントール効果の測定結果を Fig.3.3.1.5 に示す。この測定に用いた試料作製にあたってスピントール素子と同様に非磁性層に Cu 強磁性層に Py を用いた。作製試料は Fig.3.3.1.4 の SEM 像の試料であり、膜厚はそれぞれ Py10nm、Cu80nm である。このグラフで重要な点は印加された外部磁場の方向により指し示す電位差の値が異なるという点である。これは外部磁場の向きに応じて強磁性体の磁化の向きが変化することでスピンの向きが

$$\vec{s} \leftrightarrow -\vec{s} \quad (3.3.2)$$

と反転していることに対応している。スピンの向きが反転することで変換される電流の向きも

$$\vec{I}_C \propto \vec{s} \times \vec{I}_S \leftrightarrow \vec{I}_C \propto -\vec{s} \times \vec{I}_S \quad (3.3.3)$$

と反転し、その結果グラフのように外部磁場方向に依存した電位差が現れる。この外部磁場方向に依存した電位差が明瞭に現れていることでスピン流⇒電流への変換を確認することができる。

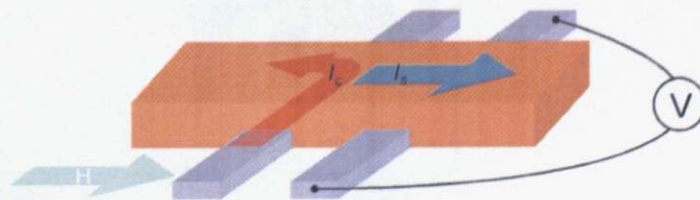


Fig.3.3.1.1 逆スピントール効果の測定回路図

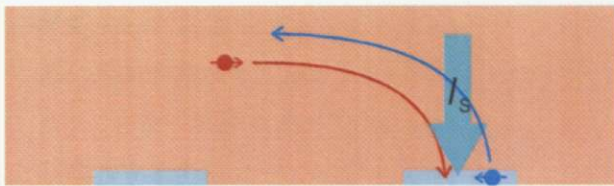


Fig.3.3.1.2 スピン流の流れ

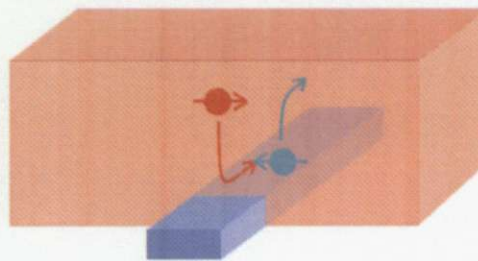


Fig.3.3.1.3 スピンホール効果

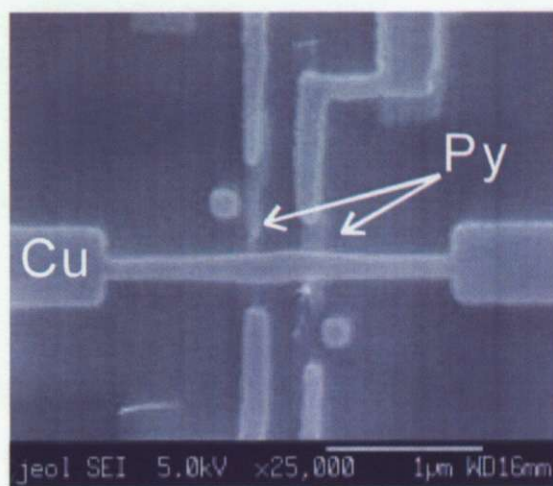


Fig.3.3.1.4 Py/Cu/Py スピンホール効果用試料の SEM 像

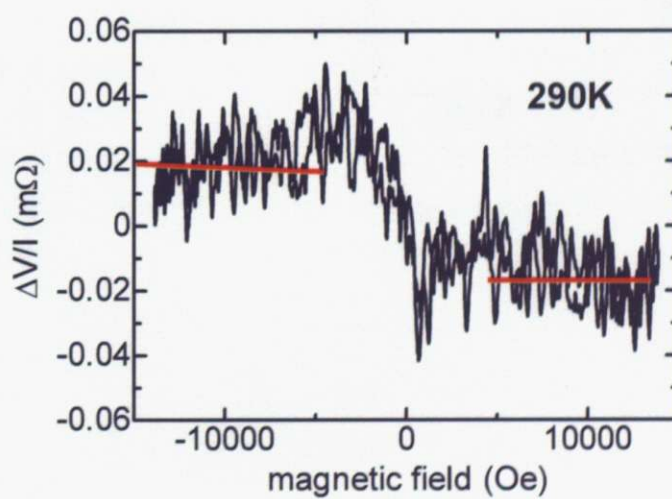


Fig.3.3.1.5 逆スピンホール効果の測定結果

3.3.2 スピンホール効果

逆スピンホール効果と同一の試料を用いた場合のスピンホール効果の測定回路図を Fig.3.3.2.1 に示す。この端子配置で左方の Py 細線に電流を流すことで、左方の Py 細線中でスピンホール効果が起これば電子のスピンの向きに応じ電流と垂直な方向にスピン流が発生する。

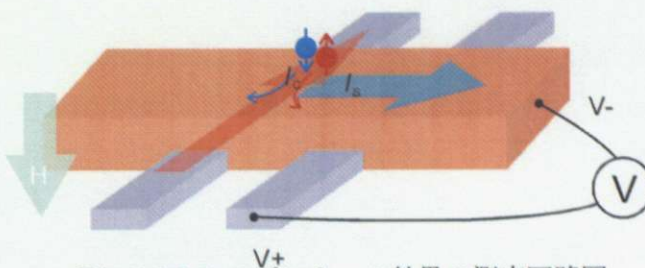


Fig.3.3.2.1 スピンホール効果の測定回路図

Fig.3.3.2.1 のように鉛直方向に外部磁場を印加することで Cu 細線に沿う方向にスピン流が発生する。このスピン流によって Cu 細線中にスピン蓄積が起これ、拡散しながら右方の Cu/Py 接合面までスピン蓄積（スピン流）が伝播する。このスピン蓄積を非局所スピンバルブ測定と同じ方法でスピン蓄積信号を測定することでスピンホール効果の有無を測定することができる。つまり、強磁性体 Py 端子と非磁性体 Cu 端子の間の電位差を測定しスピン蓄積を測定する。スピンホール効果が発生していれば磁化状態に応じて Py-Cu 間の電位差に変化が現れるはずである。

上記の方法で測定した 290K における電位差の磁場依存性を Fig.3.3.2.2 に示す。グラフ中に外部磁場の正負によって電位差が異なり、明瞭な磁場依存性が発生していることが分かる。この明瞭な電位差の磁場依存性からスピンホール効果によるスピン流が Py 細線中に発生し、Cu 内にスピン蓄積が存在することが確認できる。

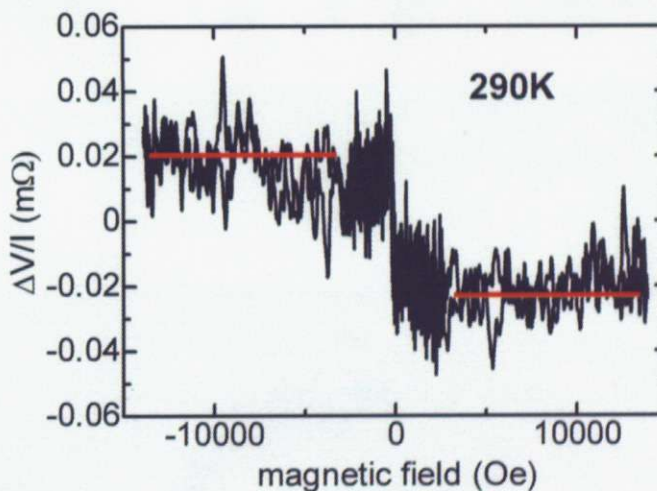


Fig.3.3.2.2 スピンホール効果の測定結果

3.3.3 温度依存性

スピン軌道相互作用による散乱の温度依存性を調べるためにいくつかの温度で逆スピンホール効果の測定を行った。逆スピンホール効果の 290K、200K、5K における測定結果を Fig.3.3.3.1 に示す。グラフから分かることは 290K の測定データと 5K の測定データで電位差の符号反転が起こっているということである。290K においては磁場が正の状態時の電位が磁場が正の状態時の電位に比べて低電位状態にあるのに対し、5K においては磁場が負の状態の電位が磁場が正の状態時の電位に比べ低電位状態にある。また、200K の測定データからは磁場に依存した明瞭な電位の磁場依存性を観測することができない。この結果は ΔR の温度依存性をみることで滑らかに変化している様子が分かる。

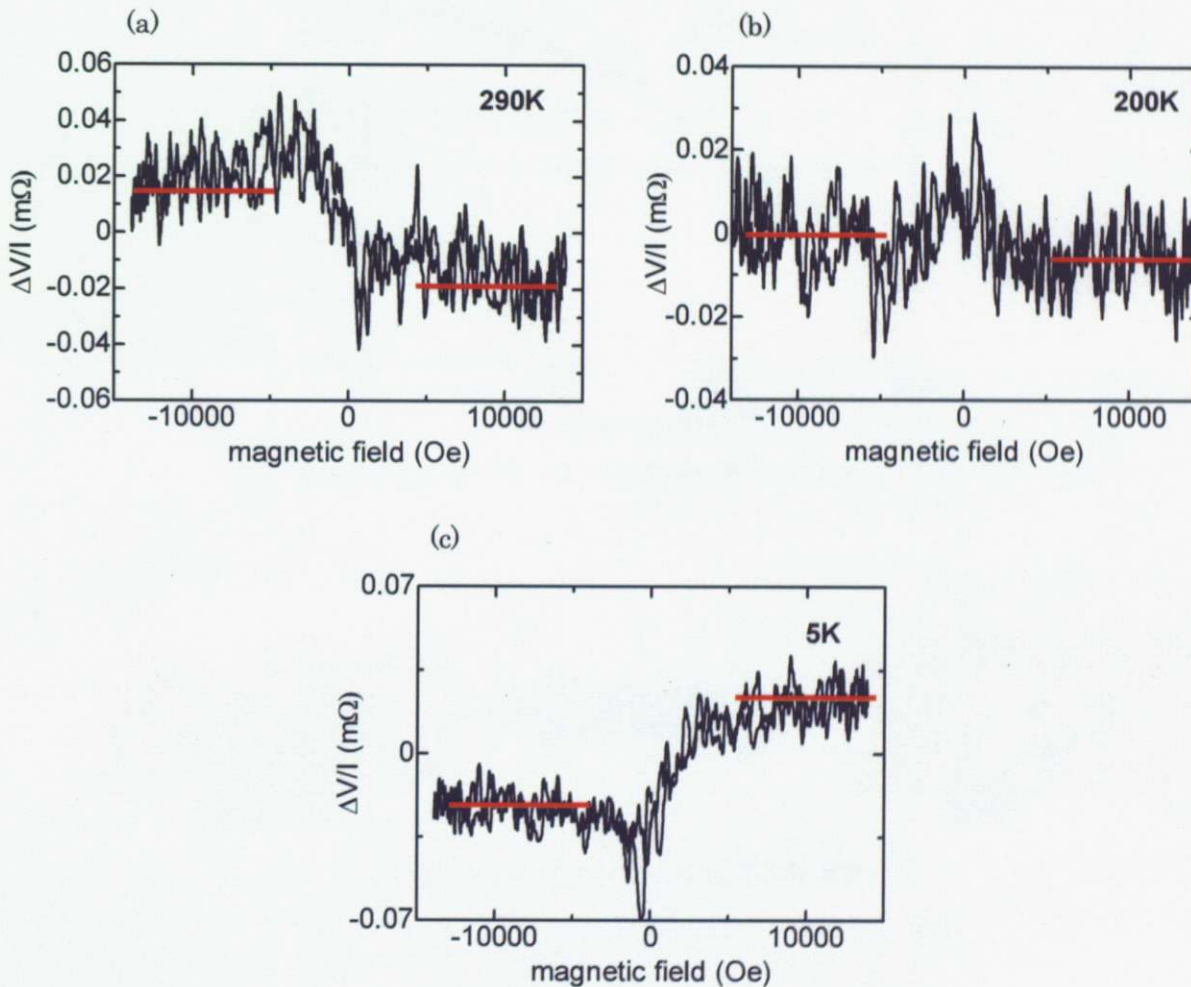


Fig.3.3.3.1 各温度での逆スピンホール効果の測定結果
(a)290K、(b)200K、(c)5K

逆スピンホール効果の測定結果における ΔR の温度依存性を Fig.3.3.3.2 に示す。グラフの縦軸の ΔR は磁化の向きが正負のときの電位差を表している。グラフ中から分かることは上述した通り室温での電位差と低温状態での電位差に符号反転が見られるということである。この符号反転は 200K 近傍で起こり、Fig.3.3.3.3 のような散乱方向の変化に対応すると考えられる。スピン軌道相互作用による散乱機構はスキュー散乱とサイドジャンプの二種類あり、これらの散乱の温度依存性の競合によりこのような差異が生じてくるものであると考えられる。

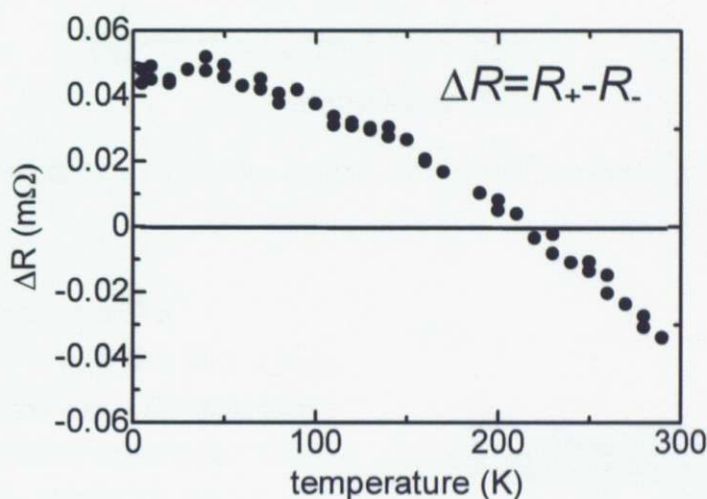


Fig.3.3.3.2 逆スピンホール効果の温度依存性



Fig.3.3.3.3 スピンホール効果の軌道変化

スピンホール効果と逆スピンホール効果の比較を行うために温度依存性をスピンホール効果についても測定した。スピンホール効果と逆スピンホール効果の温度依存性の測定結果を Fig.3.3.3.4 のグラフに示す。測定結果から明らかに同様の温度依存性を持っていることが分かる。これは同様のスピン緩和過程、スピン軌道相互作用による散乱が起きているということを考えると納得のいく結果であると考えられる。

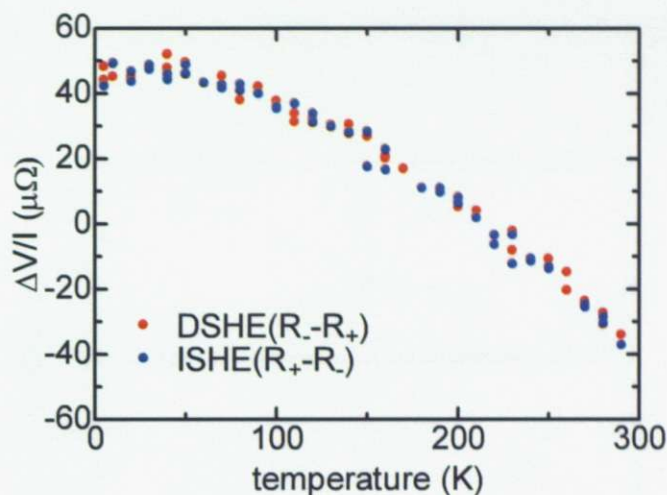


Fig.3.3.3.4 スピンホール効果、逆スピンホール効果の温度依存性

3.3.4 スピンホール伝導度

スピンホール伝導度を異なる試料 (Py5nm、Cu80nm) の測定結果を用いて求めた。この試料における逆スピンホール効果の測定結果を Fig.3.3.4.1 に示す。なお、グラフ中のデータはバックグラウンドに定数を差し引きし、比較しやすいようにまとめている。Py の膜厚 10nm の試料と同様に電位差の符号反転が起こることがグラフ中から分かる。5K 付近の低温状態では磁場が正の状態の場合の方が電位が高い事が確認され、温度上昇に従いこの差は一度減衰し、200K においては電位差がほとんど確認できない。さらに昇温すると今度は磁場が負の状態の電位の方が電位が高い状態になることが観測された。

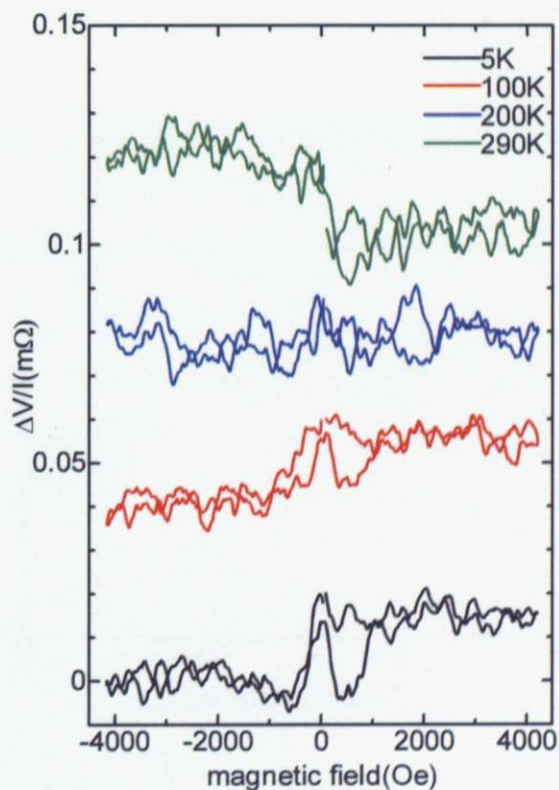


Fig.3.3.4.1 スピンホール効果の測定結果

スピンホール効果の信号の温度依存性は Py10nm の時と同様で 200K 近傍において符号の反転が起きていることが次の温度依存性の測定結果のプロットから分かる。

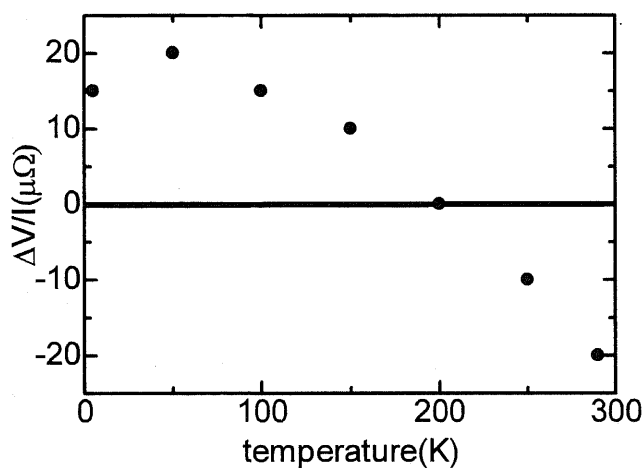


Fig.3.3.4.2 逆スピンホール効果の温度依存性

スピン蓄積の大きさを求めることでPy 細線中に流れ込むスピン流を見積もることができる。そのためこの試料に対して非局所スピンバルブ測定を行うことで、スピン蓄積信号の大きさを測定した。非局所スピンバルブで測定される信号とスピン蓄積の間には

$$\Delta R = p \frac{\Delta V}{I_c} \quad (3.3.4)$$

という関係があるため、非局所スピンバルブの測定を行う事で接合界面のスピン蓄積を直接測定することができる。実際にこの試料のスピン蓄積信号を測定すると Fig.3.3.4.3 の様になる。

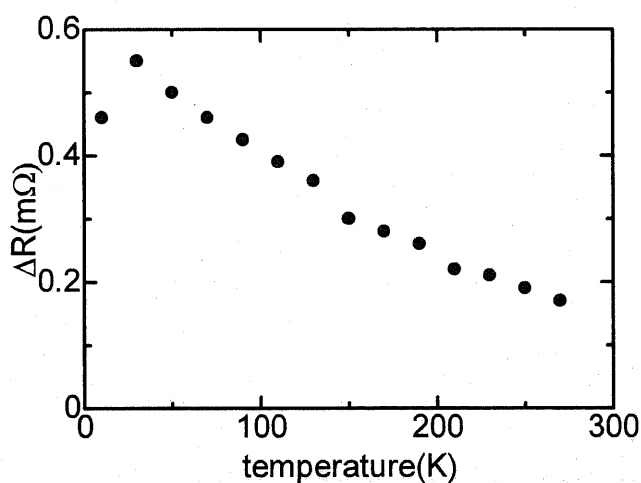


Fig.3.3.4.3 スピン蓄積信号の温度依存性

この測定結果をもとにして Py 細線に流入するスピン流を式 (1.2.12) から求め、スピンホール効果の測定結果からそのスピンホール伝導度を求めると Fig.3.3.4.5 のようになる。スピンホール伝導度を求める計算には、以下の方法を用いた。

座標軸を Fig.3.3.4.4 のように定義するとスピンホール伝導度はその定義から

$$\begin{pmatrix} i_{c,x} \\ i_{s,y} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma & -\sigma_{SHE} \\ \sigma_{SHE} & \sigma \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ -\frac{1}{e} \frac{\partial \delta \mu}{\partial y} \end{pmatrix} \quad (3.3.5)$$

と書くことができる。定常状態においては $i_{c,x} = 0$ であるため

$$0 = \sigma E_x + \frac{\sigma}{e} \frac{\partial \delta \mu}{\partial y} \quad (3.3.6)$$

が成り立つ。 $\frac{\partial \delta \mu}{\partial y} = \frac{e i_{s,y}}{\sigma}$ であるから

$$V_{c,x} = \frac{\sigma_{SHE}}{w \sigma^2} I_{s,y} \quad (3.3.7)$$

となる。 $\Delta R_{SHE} = V_{c,x} I_{C,x}$ であるから

$$\sigma_{SHE} = w \sigma^2 \left(\frac{I_{C,x}}{I_{S,y}} \right) \Delta R_{SHE} \quad (3.3.8)$$

となる。この式を用いてスピンホール伝導度を見積もった。Fig.3.3.4.5 はスピンホール伝導度と Py の抵抗率の関係である。

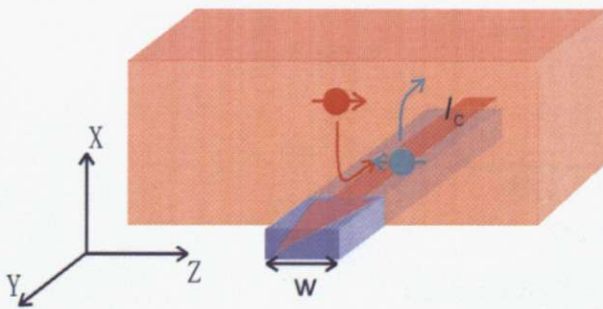


Fig.3.3.4.4 スピンホール伝導度

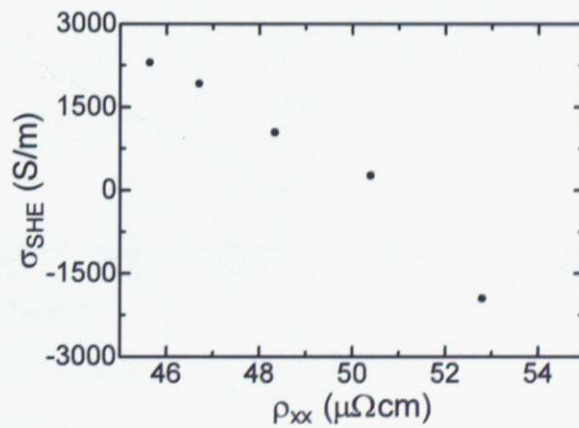


Fig.3.3.4.5 スピンホール伝導度

スピン軌道相互作用によるサイドジャンプとスキュー散乱の寄与は、抵抗率に対して

$$\begin{cases} \rho_{ss} \propto \rho \\ \rho_{sj} \propto \rho^2 \end{cases} \quad (3.3.9)$$

の依存性を持っているため、全体としてスピンホール効果は抵抗率に対して

$$\rho_{SHE} = a_{SHE}\rho + b_{SHE}\rho^2 \quad (3.3.10)$$

の依存性を持っている。この係数 a_{SHE} 、 b_{SHE} の値によってどのようにサイドジャンプとスキュー散乱がスピンホール効果に寄与しているのかが分かるはずである。

Fig.3.3.4.6 は ρ_{xx} と ρ_{SHE} の関係をプロットしたものである。グラフ中の実線はグラフに対し上式を用いフィッティングを行った結果である。このフィッティング曲線から係数 a_{SHE} 、 b_{SHE} は

$$\begin{cases} a_{SHE} = 1.4 \times 10^{-2} \\ b_{SHE} = -2.9 \times 10^{-4} (1/\mu\Omega cm) \end{cases} \quad (3.3.11)$$

ということが分かる。 $\frac{a_{SHE}}{b_{SHE}} < 0$ であることにより、抵抗率が変化するとスピンホール効果により発生する電流の符号反転が起こっていることが分かる。

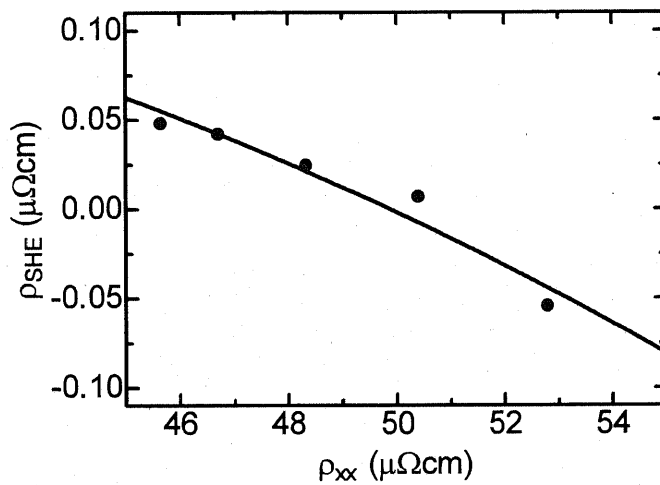


Fig.3.3.4.6 スピンホール抵抗率

次に $\sigma_{\text{SHE}} / \sigma_{xx}$ の温度依存性を示す。この比はスピホール効果の効率を表しており、スピホール角度と呼ばれている。5K から室温の温度範囲においては Py のスピホール角度はおおよそ 0.001 程度の大きさを持つことを確認できる。

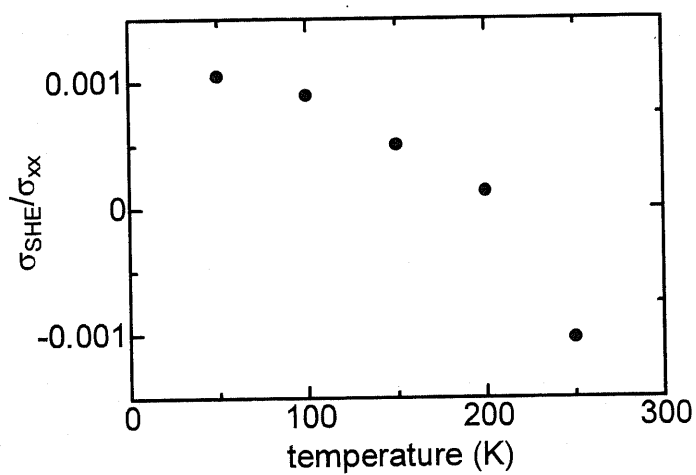


Fig.3.3.4.7 スピホール角度の温度依存性

3.3.5 異常ホール効果

スピンホール効果との比較のため同様の起源を持つ異常ホール効果の測定を行った。測定した試料の Py の膜厚はスピンホール伝導度を示した試料と同じ 5nm である。

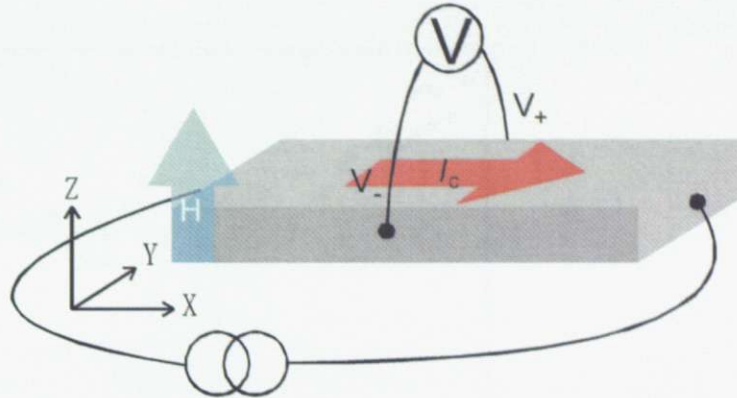


Fig.3.3.5.1 異常ホール効果の測定回路図

温度 290K における測定結果を Fig.3.3.5.2 に示す。この測定方法では異常ホール効果の他に正常ホール効果も同時に乗るためそれを除いて異常ホール効果を見積もる必要がある。そのため磁化が飽和状態と考えられる強磁場状態の抵抗から外挿線を引き磁場ゼロ状態との交点を正負の両方取り、正常ホール効果の項を差し引くことで異常ホール効果の項を見積もった。

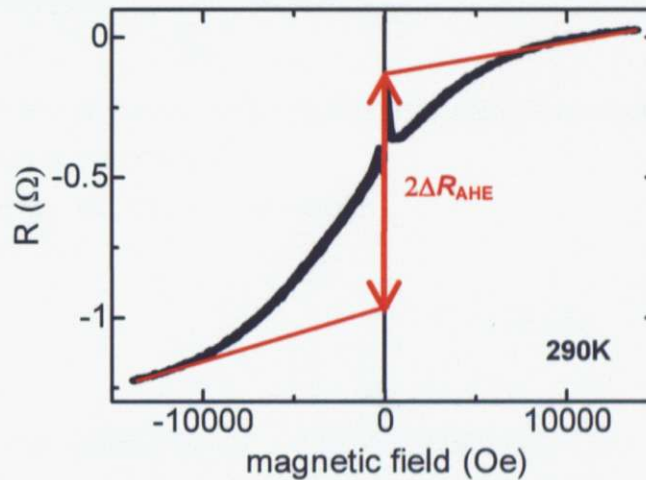


Fig.3.3.5.2 ホール測定の磁場依存性

このように求めた異常ホール効果の温度依存性を Fig.3.3.5.3 に示す。温度の上昇に従い徐々に増えていく傾向があることがわかる。これはサイドジャンプとスキュー散乱が

$$\begin{cases} \rho_{ss} \propto \rho \\ \rho_{sj} \propto \rho^2 \end{cases} \quad (3.3.12)$$

の抵抗依存性を持っているため温度の上昇に対し、サイドジャンプ、スキュー散乱共に影響力を増しているからであると考えられる。

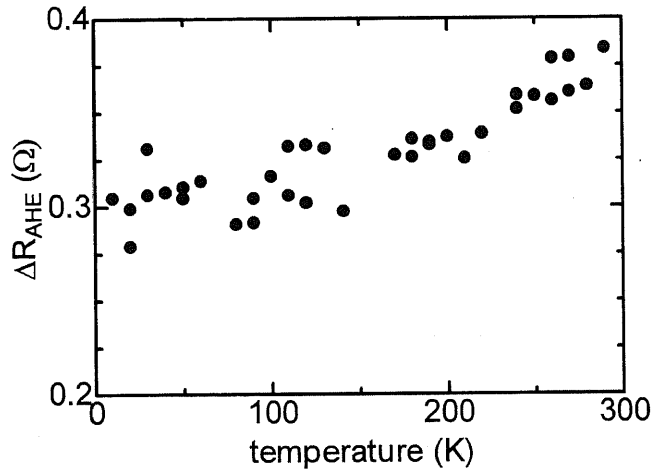


Fig.3.3.5.3 異常ホール抵抗の温度依存性

スピホール伝導度との比較のために異常ホール効果の温度依存性の測定結果から異常ホール伝導度を求めた。計算方法は以下の方法を用いた。

座標軸は Fig.3.3.5.1 の場合を考える。抵抗率テンソルの定義は

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{xx} & \rho_{xy} & \rho_{xz} \\ \rho_{yx} & \rho_{yy} & \rho_{yz} \\ \rho_{zx} & \rho_{zy} & \rho_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} i_x \\ i_y \\ i_z \end{pmatrix} \quad (3.3.13)$$

である。定常状態では y 方向、z 方向には電流が流れず、z 方向には電場も現れないため

$$i_y = i_z = E_z = 0 \quad (3.3.14)$$

となるためホール電場は

$$E_y = \rho_{yx} i_x \quad (3.3.15)$$

となる。ここで電流密度と電場はそれぞれ

$$\begin{cases} i_x = \frac{I_x}{lt} \\ E_y = \frac{V_y}{l} \end{cases} \quad (3.3.16)$$

と書け、また対称性から $\rho_{yx} = -\rho_{xy}$ であるため、

$$\rho_{xy} = -\rho_{yx} = -\frac{E_y}{i_x} = -\frac{V_y}{I_x} t = -\Delta R_{AHE} t \quad (3.3.17)$$

となる。この ρ_{xy} と通常の電気抵抗測定から求められる ρ_{xx} を用いて、異常ホール伝導度は

$$\sigma_{\text{AHE}} = -\frac{\rho_{xy}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{xy}^2} \quad (3.3.18)$$

から求められる。実際にこの計算方法から算出したホール伝導度を Fig3.3.5.4 に示す。

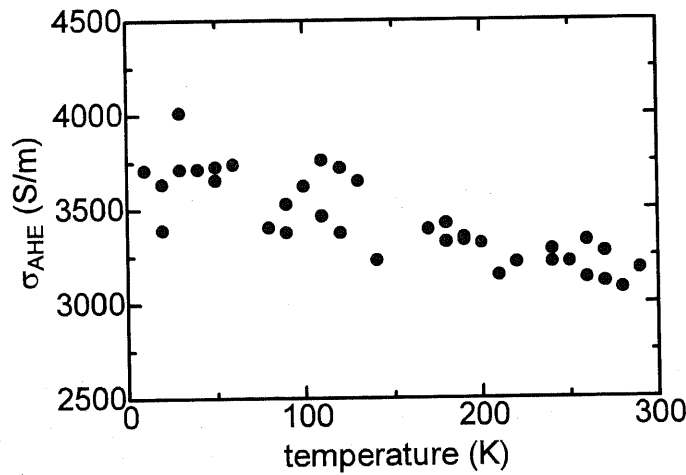


Fig.3.3.5.4 異常ホール伝導度の温度依存性

異常ホール効果もスピンホール効果と同様サイドジャンプとスキュー散乱の寄与の和として

$$\rho_{\text{AHE}} = a_{\text{AHE}}\rho_{xx} + b_{\text{AHE}}\rho_{xx}^2 \quad (3.3.19)$$

の依存性を持っていると考えられる。そこでスピンホール効果の場合と同様に ρ_{AHE} と ρ_{xx} の関係のグラフからフィッティングを行い、 a_{AHE} 、 b_{AHE} を見積もると

$$\begin{cases} a_{\text{AHE}} = 5.0 \times 10^{-6} \\ b_{\text{AHE}} = -3.5 \times 10^{-5} (1/\mu\Omega\text{cm}) \end{cases} \quad (3.3.20)$$

となる。スピンホール効果から見積もった値と見比べると共に非常に小さくなっている。

今回のこの比較からはスピンホール効果、異常ホール効果に共通する考察をすることができなかった。

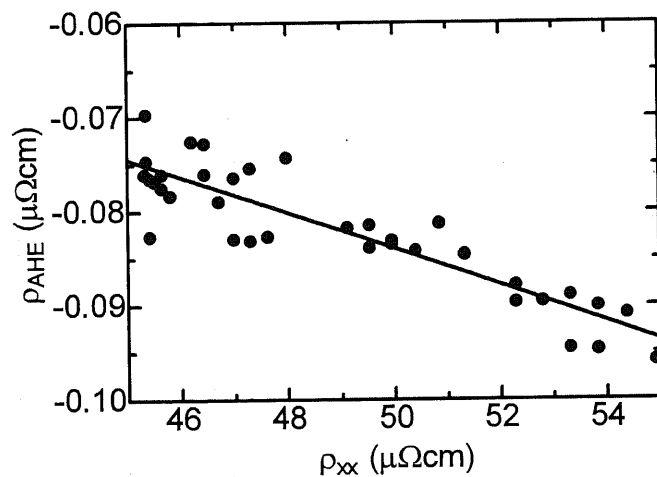


Fig.3.3.5.5 異常ホール抵抗率

3.3.6 小括

本項ではリフトオフ法で作製した試料を用い、Py 細線におけるスピホール効果、逆スピホール効果、異常ホール効果の測定を行い、調べた。

- ・ 作製した試料からスピホール効果、逆スピホール効果共に明瞭な信号が観測され、Py 細線中でスピ軌道相互作用によるスピ依存散乱が発生している事が観測された。
- ・ Py 細線中のスピホール効果、逆スピホール効果ともに 200K 近傍の温度において散乱方向が反転するという現象が観測された。
- ・ 作製した試料を用い、Py 細線の異常ホール効果の温度依存性の測定を行った。しかし、測定データからはスピホール効果の測定で得た 200K 近傍の異常に対応する効果は見られなかった。

4.まとめ

4.1 総括

本実験では非局所スピバルブ測定を行う事でスピン蓄積の緩和挙動を調べ、また非局所スピン注入技術を用いて強磁性 Py 細線中のスピンホール効果を調べた。

非局所スピバルブ測定には Py/Cu/Py 面内スピバルブ素子と Py/Al/Py トンネル型面内スピバルブ素子を作製し測定を行った。Py/Cu/Py 面内スピバルブ素子に対してはスピン蓄積信号の温度依存性、膜厚依存性、Py-Py 間距離依存性の測定を行った。これらの測定結果から Cu の表面酸化層に依存したスピン緩和が発生していると考えられる結果が得られた。この結果との比較のため Py/Al/Py トンネル型面内スピバルブ素子を作製し、非局所スピバルブ測定によりスピン蓄積の温度依存性の測定を行った。Py/Al/Py トンネル型面内スピバルブ素子の温度依存性の測定結果は Py/Cu/Py 非局所スピバルブ素子の場合と異なる結果が得られた。これは Cu 表面酸化層と Al 表面酸化層でのスピン蓄積の緩和挙動が異なり、その結果が実験結果に明瞭な差として現れたものであると考えられる。これら双方のスピバルブの測定結果から注入される非磁性層の表面状態が緩和に対し影響を持つということが確認できた。

スピンホール効果測定では Py 細線中のスピンホール効果について調べた。面内スピバルブ素子に対して用いた非局所測定技術を用いることでスピンホール効果測定および逆スピンホール効果測定を行った。測定結果からスピン軌道相互作用による散乱効果が確認され、Py 細線中でスピンホール効果が発生していることを確認できた。さらにスピンホール効果、逆スピンホール効果の温度依存性の測定を行った。この温度依存性の測定結果の大きな特徴として、スピンホール効果によって発生する電流の符号反転が観測された。原因として考えられることはスピン軌道相互作用による散乱であるスキュー散乱とサイドジャンプによる散乱が双方異なる方向に電子を散乱させ、また温度依存性も異なるためにその重ね合わせとして現れるスピンホール効果の散乱方向も温度に依存して変化するためであると考えられる。

4.2 今後の課題

本研究ではスピン蓄積の表面酸化層散乱の影響を明らかにした。その方法は非局所測定法によりスピン蓄積信号を測定することで検出用の強磁性体と非磁性体に蓄積のスピン蓄積状態を測定するという方法である。今回実際にスピン蓄積信号の測定を行った試料は Py/Cu/Py 面内スピバルブと Py/Al/Py トンネル型面内スピバルブの試料である。そのため、Py/Cu と Py/Al の接合部は大きく性質の異なるものである。もし、スピン蓄積に対しこのような強磁性/非磁性の接合界面が影響するならばその影響も調べる必要があると考えられる。そのためには非トンネル型の Py/Al/Py 面内スピバルブを作製し、同様の作製

を行い測定し、比較することでそのような接合界面が及ぼす影響を調べることができると思う。

また、Py 細線におけるスピンホール効果の観測に成功したが学術的興味だけでなく、応用を考えるとその変換効率は優れたものであるとは言えないものであった。実際の応用において使用するためには効率の優れた材料の模索が必要である。現在このような模索が進められている[19]が、より大きな信号が現れる材料が発見されれば効率も良くなり、応用が広がることになると思う。

参考文献

- [1] M. N. Baibichet et al., Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 - 2475 (1988)
- [2] G Binasch, Phys. Rev. B **39**, 4828 - 4830 (1989)
- [3] N. F. Mott et al., Proc Roy. Soc. A**153**, 699(1936)
- [4] F.J. Jedema, Electrical Spin Injection in metallic Mesoscopic Spin Valves, (Doctoral thesis in University of Groningen, 2002)
- [5] S.Takahashi et al., Concepts in Spin Electronics, Section 8.2 edited by S.maekawa (Oxford University, Oxford, 2006)
- [6] J.Fabian et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 1211 - 1214 (1999)
- [7] J. Bass et al., J. Phys.: Condens. Matter **19** (2007)
- [8] T. Kimura et al., Phys. Rev. B **72**, 014461 (2005)
- [9] Jedema et al., Nature **410**, 345-348 (2001)
- [10] T.Miyazaki et al., J. Magn. Magn. Mater.,**139**(1995), L231
- [11] J. S. Moodera et al., Phys. Rev. Lett. **74**(1995), 3273
- [12] S.Yuasa et al., Nature Materials **3**, 868 - 871 (2004)
- [13] M. I. D'yakonov et al., Phys. Lett. **35**, 459 (1971)
- [14] J.Smit, Phisica **21**,877(1954)
- [15] L.Berger, Phys.Rev.B**2**,4559(1970)
- [16] S. O. Valenzuela et al., Nature (London) **442**, 176 (2006)
- [17] T. Kimura et al., Phys. Rev. Lett. **98**, 156601-1~4 (2007)
- [18] S.Takahashi et al., Concepts in Spin Electronics, Section 8.4 edited by S.maekawa (Oxford University, Oxford, 2006)
- [19] T.Seki et al., Nature Materials **7**, 125 - 129 (2008)

論文・学会発表

- [1] T. Kimura, T. Sato and Y. Otani Phys Rev. Lett. in press
- [2] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi and S. Maekawa Phys Rev. Lett. (2007)
- [3] 「NiFe/Cu 及び Co/Cu 面内スピバルブ素子における磁気伝導特性」,日本物理学会 2006 年度秋季大会
- [4] 「強磁性パーマロイ細線のスピホール効果と異常ホール効果」,日本物理学会 2007 年春季大会
- [5] 「NiFe/Cu 面内スピバルブ素子における磁気伝導特性」,第 45 回茅コンファレンス

謝辞

本研究を指導して下さった東京大学物性研究所ナノスケール物性研究部門教授大谷義近先生に感謝いたします。研究に対し困難に直面したとき、研究に関する助言を的確にしてくださいました。また、時には優しく、時には厳しく接して下さり、過ちを即座に気付かせて頂きました。

東京大学物性研究所助教木村崇先生には、研究全般にわたり非常にお世話になりました。実験手法についての詳細などを親身に教えていただいたり、発表資料の作成の際には忙しい時間を縫って手伝っていただきました。また、家庭が忙しいのにも関わらず熱心に研究に打ち込む姿は我々学生にとっても良い刺激となり、良い目標になりました。

大谷先生がチームリーダーを兼任しておられる理化学研究所単量子操作グループ量子ナノ磁性チームの研究員の方々には私の発表に対し、助言を頂きました。また、宴会などの席では目下の私に対しても気安く接していただき、緊張を解していただきました。心より感謝いたします。

試料作製の際には、物性研究所ナノスケール物性研究部門教授家泰弘先生・勝本信吾先生には、電子線描画装置および走査型電子顕微鏡を頻繁に使用させていただきました。また、装置に問題が起こった際には家・勝本研究室の皆様に協力していただきました。心より感謝いたします。

物性研究所ナノスケール物性研究部門秘書川村順子さんには物性研究所内での庶務の際について大変お世話になりました。また、新領域創成科学研究課事務の花田幸子さんには授業、就職関連について大変お世話になりました。

大谷研究室の特別研究員であった Vila Laurant 博士、先輩であった石田さん、先輩の諸田さん、同級生の正木君、後輩の大西君に深く感謝いたします。Vila Laurant 博士は英語音痴である私に対しても積極的に話しかけていただきました。同じ学生の子分である石田さん、諸田さん、正木君、大西君とは研究のことだけでなく広い話をする事で緊張が解け、落ち着いて2年間を過ごすことができました。

また、東京大学物性研究所先端分光研究部門教授辛 埴先生、東京大学新領域創成科学研究科物質系専攻教授川合真紀先生には修士論文の査読をして下さり、助言を頂きました。心より感謝いたします。

本研究は様々な方々の協力があることが出来ました。2年間という短い期間でしたが私にとっては非常に中身の濃い充実した期間になりました。末筆ですが皆さんの益々のご活躍をお祈りします。