

博士論文

磁性合金薄膜の相転移点近傍  
におけるスピン輸送現象

松本 健太



学位論文

磁性合金薄膜の相転移点近傍  
におけるスピン輸送現象

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

博士(科学)

松本 健太

2020年1月提出

指導教員：大谷 義近 教授

# 目次

第 1 章	序論	1
1.1	スピントロニクス	1
1.2	スピン変換現象	3
1.3	スピンホール効果	4
1.3.1	磁性体中のスピンホール効果	5
1.4	相転移現象とスピン輸送特性	6
1.4.1	相転移現象とスピンホール効果	6
1.4.2	相転移現象とスピン流生成	7
1.5	本論文の目的と構成	8
第 2 章	基礎理論と研究背景	11
2.1	スピンホール効果	11
2.1.1	スピンホール効果の理論	12
2.1.2	スピンホール効果への非線形磁化率の寄与	18
2.2	スピンプンピング現象	19
2.2.1	強磁性体/金属接合でのスピン移行	19
2.2.2	スピンプンピング	21
2.2.3	逆スピンホール効果の検出	23
2.2.4	スピン注入効率とスピン揺らぎ	27
2.3	Fe-Rh 合金系の反強磁性-強磁性相転移	29
2.3.1	反強磁性相、強磁性相の結晶構造およびスピン構造	29
2.3.2	反強磁性-強磁性相転移の発現機構に関する議論	30
2.3.3	微小化した系での磁気相転移	31
2.3.4	反強磁性-強磁性相転移点の変調	32
2.3.5	電気伝導特性	33
2.3.6	スピン輸送特性	33
2.3.7	動的磁気特性	34
第 3 章	実験方法	35

3.1	薄膜試料作製 . . . . .	35
3.1.1	スパッタリング法 . . . . .	35
3.1.2	抵抗加熱蒸着法 . . . . .	36
3.1.3	電子線加熱蒸着法 . . . . .	37
3.2	微細構造素子作製 . . . . .	38
3.2.1	電子線リソグラフィ . . . . .	38
3.2.2	フォトリソグラフィ . . . . .	40
3.2.3	リフトオフ法 . . . . .	41
3.2.4	Ar イオンミリングによる微細構造の形成 . . . . .	41
3.3	測定手法 . . . . .	42
3.3.1	X 線回折測定 . . . . .	42
3.3.2	磁化測定 . . . . .	44
3.3.3	電気抵抗測定 . . . . .	44
3.3.4	スピンプンピング測定 . . . . .	45
<b>第 4 章</b>	<b>Pd 添加 Fe-Rh 合金の磁化過程に依存した電気伝導特性</b>	<b>49</b>
4.1	薄膜試料の作製と評価 . . . . .	49
4.1.1	Pd 添加 Fe-Rh 合金の成膜 . . . . .	50
4.1.2	結晶性の評価 . . . . .	50
4.1.3	磁気特性・電気伝導特性の評価 . . . . .	53
4.2	細線試料の電気抵抗測定 . . . . .	54
4.2.1	細線試料における電気抵抗率の磁場・温度依存性 . . . . .	54
4.3	相転移に伴うヒステリシスの細線幅による変調 . . . . .	56
4.3.1	強磁性領域の体積分率の見積もり . . . . .	57
4.3.2	相転移に伴うエネルギー損失量の細線幅依存性 . . . . .	58
4.4	本章の小括 . . . . .	61
<b>第 5 章</b>	<b>Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の逆スピホール効果の測定</b>	<b>62</b>
5.1	試料作製 . . . . .	63
5.1.1	スピンプンピング素子の作製 . . . . .	64
5.1.2	Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の磁化および電気抵抗率 . . . . .	64
5.2	有効ダンピング係数、有効スピンミキシング伝導度の温度依存性 . . . . .	67
5.2.1	強磁性共鳴線幅の評価 . . . . .	67
5.2.2	有効ダンピング係数の決定 . . . . .	68
5.2.3	有効スピンミキシング伝導度の決定 . . . . .	69
5.3	逆スピホール効果の検出 . . . . .	73
5.3.1	逆スピホール電圧の測定配置 . . . . .	73

---

5.3.2	逆スピホール電流値の温度依存性 . . . . .	75
5.4	スピホール角およびスピ拡散長の温度依存性 . . . . .	76
5.5	本章の小括 . . . . .	78
第 6 章	Ni-Cu 合金薄膜の逆スピホール効果の測定	79
6.1	試料作製と測定手順 . . . . .	79
6.2	Ni-Cu 合金薄膜の磁気特性 . . . . .	80
6.3	スピ輸送特性の評価 . . . . .	81
6.3.1	有効スピミキシング伝導度 . . . . .	81
6.3.2	逆スピホール効果の検出 . . . . .	83
6.3.3	スピホール角 . . . . .	84
6.4	本章の小括 . . . . .	85
第 7 章	総括	87
	謝辞	89
	参考文献	90
	発表文献	99



# 第 1 章

## 序論

### 1.1 スピントロニクス

本論文で扱う内容は、スピントロニクスと呼ばれる研究分野に属するものである。この節ではまず、スピントロニクスがどういった研究を扱う領域であるのかについて、その歴史も含めて概説する。

スピントロニクスという語は、「スピン」と「エレクトロニクス」という 2 つの語からなる造語であり、文字通りエレクトロニクスに電子スピンの制御技術を組み込んだものである。エレクトロニクスは、物質中の電子を利用する技術および研究領域であり、半導体トランジスタの発明に端を発して、現代の産業、情報技術の基礎を築いてきた。従来のエレクトロニクスでは電子のもつ電荷が利用されてきたが、スピントロニクスでは同時に電子のスピン自由度も利用する。物質中の電子が担う電荷、スピンの双方を制御することで、不揮発性メモリや省電力デバイスなど、新しい機能性が実現されてきている。

スピントロニクス分野の発端となった重要な研究成果として、Fert ら [1] および Grünberg ら [2] による、磁性多層膜における巨大磁気抵抗効果 (GMR: giant magnetoresistance) の発見がある。磁気抵抗効果とは一般に、外部磁場の印加によって電気抵抗が変化する現象を指す。Fert らの報告では、発見当時としては極めて大きい、低温で 80% 程度の抵抗変化が強磁性体と非磁性体の積層構造で生じることが示された [1]。この現象は、強磁性層の界面で伝導電子のスピン偏極方向に依存した散乱過程があると考えられることで理解できる。外部磁場を印加していない場合には、強磁性層間の交換相互作用によって図 1.1(a) に示すように磁化が互い違いである反平行状態が安定となる。このような場合には、伝導電子はアップスピン、ダウンスピンのいずれの状態でも同程度の散乱を受ける。一方で、十分に強い外部磁場を印加すれば、図 1.1(b) に示すように全ての磁性層が磁場方向を向いた状態が安定化する。この場合、磁化と反平行なスピンをもつ伝導電子は強い散乱を受け一方で、平行なスピンをもつものは散乱を受けにくくなる。試料全体をアップスピン電子とダウンスピン電子の並列回路と考えた場合、反平行状態と比較して電気抵抗が低くなることがわかる。その後の研究で、非磁性層を酸化物層に置換することで磁気抵抗比が飛躍的に高められることが分かった [3]。これをトンネル磁気

抵抗効果 (TMR: tunnel magnetoresistance) という。また、微小な外部磁場の印加によって試料抵抗が変化するように設計できるため、GMR および TMR は磁気的な情報記録の高密度化とその読み取り技術向上に大きく貢献してきた。

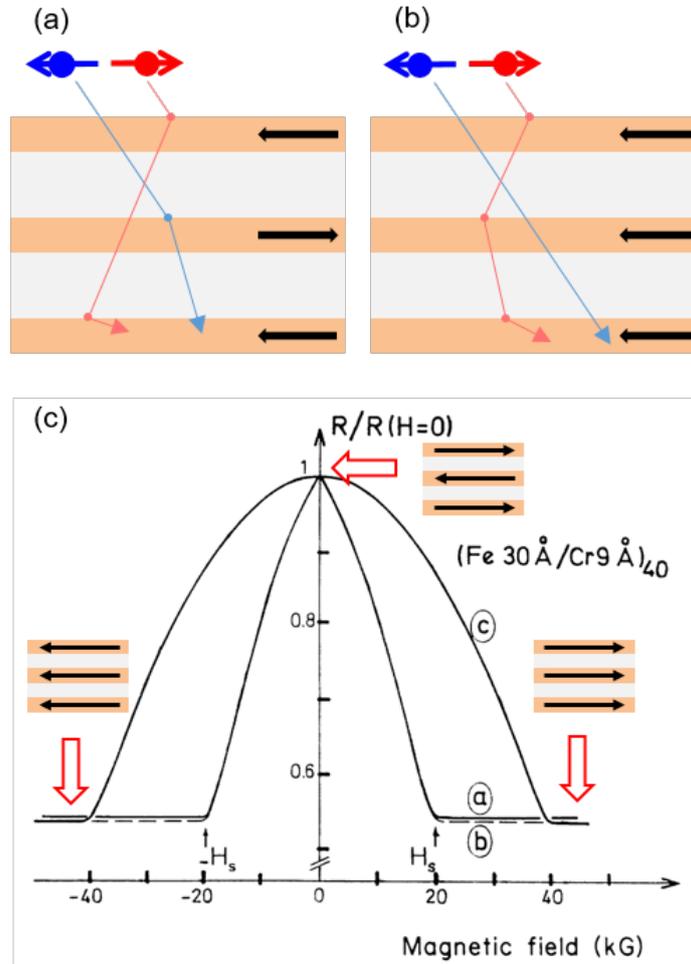


図 1.1: 巨大磁気抵抗効果 (GMR) の概念図. (a) 強磁性層の磁化が反平行状態であるときのスピン依存伝導. (b) 平行状態でのスピン依存伝導. (c) Fert らによる GMR 測定 [1]. 磁場印加時には磁化の平行状態が、外部磁場が 0 の時には反平行状態が実現されている。

GMR は素子の磁気状態によってその電気伝導特性が大きく変調される効果であるが、これとは逆に、電気的な操作によって磁気状態を書き換える手法も研究されてきた [4]。これは電流駆動磁化反転 (CIMS: current induced magnetization switching) と呼ばれる。CIMS は、伝導電子と局在電子の間でのスピン角運動量の受け渡しによって生じる。図 1.2(a) に示したように、強磁性層 1(F1) から非磁性層 (N) を介して強磁性層 2(F2) へと電子が流れるように電流を印加した場合、非磁性層中では F1 の磁化方向にスピン偏極した電流が流れる。伝導電子と局在電子との間で相互作用をもつ場合、F2 の中では、伝導電子スピンと局在電子スピンの角運動量保存則を満たすように互いに影響される。このとき磁化に与えられるトルクをスピン移

行トルク (STT: spin transfer torque) といひ、STT が十分に大きければ F2 の磁化は反転する。図 1.2(b) には実験に使われた素子構造と、素子抵抗の印加電流量依存性を示す。電流密度を高めるため、積層部分は直径が 130 nm の微小な円柱形状になっている。閾値以上の電流を印加することで、磁化反転に伴う抵抗値の変化が検出されている。CIMS は磁場を用いずに磁化を反転させることが可能であるため、不揮発性メモリの要素技術となっている。

また、最近では、電流の印加によって反強磁性体の Néel ベクトルの方向を書き換えられることも示された [5]。これは、結晶の空間反転対称性の破れによって、電流印加によって生じる有効磁場の符号が副格子ごとに異なっていることに起因する。反強磁性体は強磁性体と比較して応答が早く、また外部磁場による擾乱が起りにくいことから、より高性能なスピントロニクス素子の担い手になると期待されている [6]。

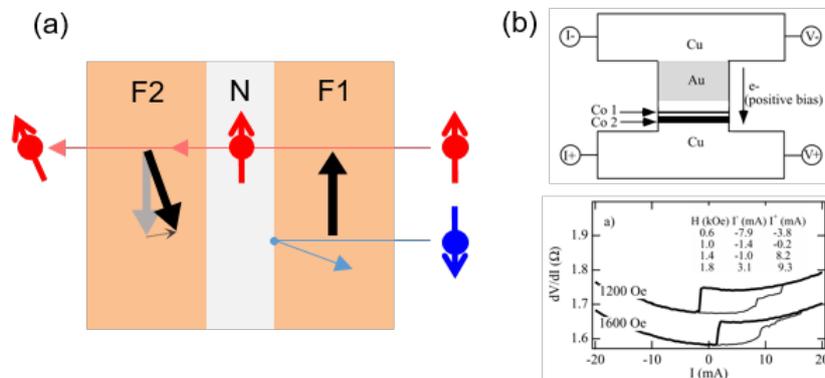


図 1.2: (a) 電流駆動磁化反転 (CIMS) の概念図. (b) CIMS の素子構造と抵抗値の電流依存性 [4].

このように、スピントロニクス研究では、物質の磁気状態と伝導特性との相関に着目することで、様々な新しい現象が発見されてきた。これらを理解する上で重要になるのが「スピン流」の概念である。電荷の流れを電流と呼ぶのに対し、スピン角運動量の流れはスピン流と呼ばれる。現代のスピントロニクス研究では、スピン流に関連づけて様々な現象が理解され、新たな物理現象・機能性の提案がなされている。

## 1.2 スピン変換現象

スピン変換現象とは、物質中のスピンを介して、電気信号や光、力学的運動、熱などが相互変換される現象を指す [7]。これらの変換はスピン移行トルクと同様、角運動量保存則に基づいて生じる。

前節で述べた CIMS も、伝導電子が担うスピンとバルクの磁化との間での角運動量の交換であるとみなせる。CIMS では伝導電子スピン流の印加によって磁化方向を書き換えるが、その逆効果として、磁化ダイナミクスからスピン流を生成することもでき、これはスピンプンピングとよばれる [8, 9]。スピンプンピングについては、2.2 節にて詳述する。また、熱流がスピン

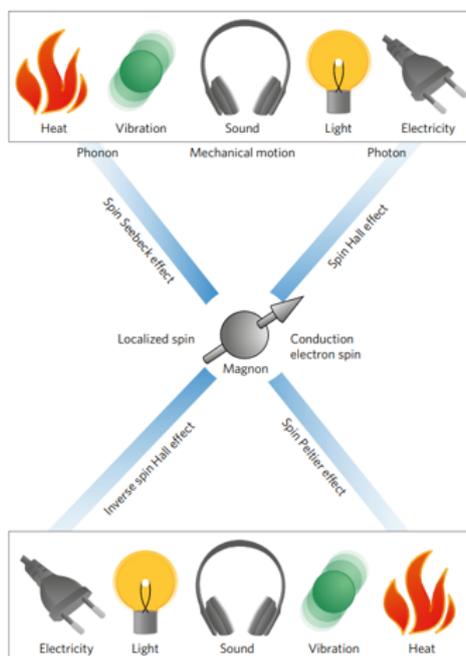


図 1.3: スピン変換現象の概念を示す図 [7].

流へと変換されるスピントラップ効果も知られている [10]。スピントラップ効果では、熱揺らぎによって生じる磁化の歳差運動からスピントラップが生成される。他にも、光のヘリシティとスピントラップの間での変換 [11] や、力学的な運動からのスピントラップの誘起 [12]、核スピンの集団運動を利用したスピントラップ生成 [13] など、多岐にわたる変換現象が報告されている。

これらの多彩なスピントラップ現象の中でも、スピントラップを電気的に生成、検出できることから、スピントラップ-電流間の変換が重要視されている。固体中で生じるスピントラップと電流との間の相互変換現象はいくつか知られており、空間反転対称性が破れることによって、物質界面などにスピントラップ分裂したバンド構造が生じることに起因する Rashba-Edelstein 効果 [14]、トポロジカル絶縁体表面におけるスピントラップロッキング [15] などが報告されている。本研究では特に、バルクの物質中でスピントラップ相互作用を起源として生じるスピントラップ効果 [16] に注目している。

### 1.3 スピントラップ効果

正常ホール効果は、磁場中の導体に電場を印加した際に、電場と磁場の外積方向に起電力が生じる現象である。この効果は導体中のキャリアが外部磁場からローレンツ力を受けることに起因するため、外部磁場を印加しない場合には生じない。このことは、横起電力に寄与する電荷の移動が生じていないことを意味するが、伝導電子のスピントラップごとにとみると、ホール効果に類似した現象がゼロ磁場でも起こりうる。常磁性金属に電場を印加した場合、同数のアップスピントラップ、ダウンスピントラップをもつ伝導電子が存在する。スピントラップ相互作用によって、伝導電子のスピ

ン偏極方向に応じて散乱角が変わるような電子散乱が起これば、横方向の電荷の蓄積は相殺され、スピンの蓄積のみが生じることになる。このようにして、電流とスピン量子化軸の外積方向にスピン流が生じる現象をスピンホール効果という。また、この逆過程として、スピン流から直交方向に電流が生じる逆スピンホール効果がある。スピンホール効果の具体的な発現機構は2.2節で述べる。

実験によるスピンホール効果の実証は、半導体中のスピンホール効果で生じたスピン蓄積をカー効果測定で観測したのが最初である [17]。また、逆スピンホール効果はスピンプンピング法でのスピン流注入を利用して検出された [9]。その後、面内スピバルブ構造でのスピン注入 [18, 19] をはじめとして、スピンホール効果を電氣的に評価する方法が数多く提案されてきた。

スピンホール効果をスピン流の生成、検出法として用いる場合には、スピン流-電流間の変換効率であるスピンホール角を大きくする条件を見出すことが重要である。スピンホール効果が生じる微視的機構は、不純物や格子欠陥での電子散乱に起因する外因性機構と、バンド構造に由来する内因性機構とに大別される。このうち外因性機構については、試料の不純物濃度や化学組成を制御することで変調される。例えば、Pt のスピンホール角は電気抵抗率でスケールアップできることが示されている [20]。また、スピンホール角の小さい Cu に少量の Bi を添加することで、最大で 24% 程度のスピンホール角が得られることが報告されている [21]。

### 1.3.1 磁性体中のスピンホール効果

これまでに行われてきたスピンホール効果の研究の多くは非磁性体に関するものであったが、近年では強磁性体 [22, 23, 24, 25]、反強磁性体 [26]、スピングラス [27] など、各種の磁性体でのスピンホール効果も調べられている。これらの研究によって、磁性体中では、非磁性体では見られなかったスピンホール効果への寄与が生じ、新たな機能性の開拓が期待されることが分かってきた。

従来、金属で生じるスピンホール効果は、強磁性体の異常ホール効果と類似の機構から生じると考えられてきた [16, 28]。しかしながら近年、強磁性遷移金属のスピンホール効果は、同一の物質の異常ホール効果には現れない特異な温度依存性を示すことが報告された [25]。このことは、強磁性体では、異常ホール効果には現れず、スピンホール効果のみに寄与するような散乱機構が存在する可能性を示唆している。また、強磁性体の磁化方向と、スピン流の偏極方向の相対角に依存してスピンホール効果の大きさが変調されることが実験および理論から指摘されているが [24, 29, 30]、一方でこの主張と相反する、スピンホール効果は磁化方向には依存しないという測定結果も報告されている [23]。物質の磁気秩序がスピンホール効果にどのように関わっているのかは未だ完全に明らかであるとは言えず、興味深い問題である。

関連した話題として、微小な自発磁化をもった反強磁性体である  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  合金では、自発磁化の方向に応じてスピンホール角の符号が変わる、新しい対称性をもったスピンホール効果（磁気スピンホール効果）が生じることが発見された [31]。この効果は他の単結晶磁性体でも

生じうるものであるとして注目を集めている。他にも、非共線的なスピン構造を有する磁性体では、スピン軌道相互作用ではなくスピン構造に由来するスピンホール効果が起こりうるということが指摘されている [32]。

## 1.4 相転移現象とスピン輸送特性

ここまで、電流-スピン流間の変換現象であるスピンホール効果が、物質の磁気秩序あるいはスピン構造によって影響を受けることを述べてきた。近年、スピンホール効果をはじめとするスピン流の輸送特性には、物質のスピン揺らぎが重要な寄与を生じることが指摘されている [27, 33, 34]。特に、スピン揺らぎが増幅される磁気相転移点の周辺では、スピン流物性に特徴的な温度変化が生じることが報告されてきた。この節では、強磁性-常磁性相転移あるいは反強磁性-常磁性相転移を示す材料系における、スピンホール効果と、スピンポンピングによるスピン流の生成効率に現れる異常な温度依存性について述べる。

### 1.4.1 相転移現象とスピンホール効果

Wei らは、強磁性-常磁性相転移を示す金属磁性体を用いて面内スピンバルブ素子を作製し、相転移温度の周辺で逆スピンホール効果が特異な温度依存性を生じることが示した [33]。図 1.4(a) には、Ni-Pd 合金系で測定された逆スピンホール抵抗値の温度変調を示している [33, 35]。系統的に組成比を変えることで強磁性-常磁性相転移温度を変調させた一連の試料について、それぞれの相転移点の周辺で逆スピンホール効果の発散的な温度変調が観測された。Gu らはこの現象を、相転移温度周辺で増幅されたスピン揺らぎによって誘起されるスピン依存散乱過程に起因するものとして説明した [36]。

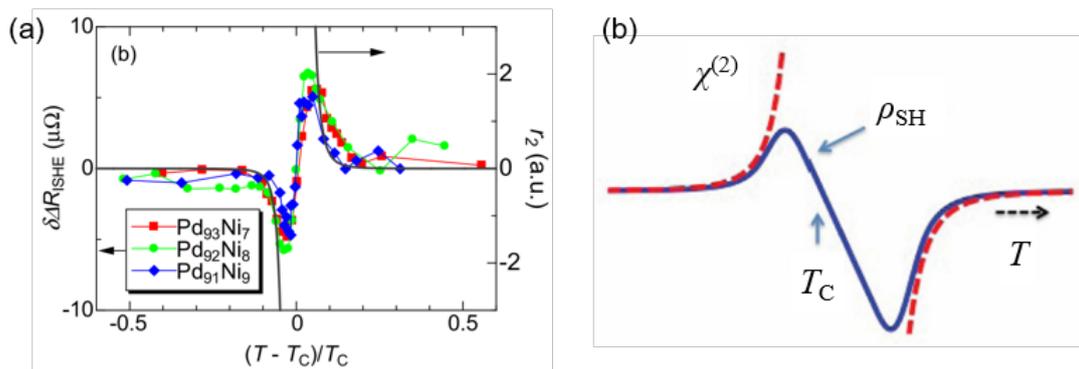


図 1.4: 強磁性-常磁性相転移温度での逆スピンホール効果. (a) Ni-Pd 合金系で観測された強磁性-常磁性相転移点近傍での逆スピンホール抵抗値の温度変調 [33, 35]. (b) 強磁性-常磁性相転移点近傍で期待される二次の非線形磁化率  $\chi^{(2)}$  とスピンホール抵抗率  $\rho_{SH}$  の温度依存性 [36].

既に述べたように、金属でのスピンホール効果は、伝導電子がそのスピン偏極方向に応じ

た散乱を受けることで生じるが、磁性体では局在したスピン磁気モーメントが散乱源として作用しうる。この機構で生じるスピン偏極方向に対して非対称な散乱過程は、2.1.2 項にて改めて述べるが、近接したスピン磁気モーメント間の相関に関係づけられることが示されており [36]、その散乱確率の大きさは、磁化  $M$  を外部磁場  $H$  で展開した以下の式で表される、二次の非線形磁化率項  $\chi^{(2)}(T)$  に比例する。

$$M(T) = M_0(T) + \chi(T)H + \chi^{(1)}(T)H^2 + \chi^{(2)}(T)H^3 + \dots \quad (1.1)$$

ここで、 $M_0$  は自発磁化、 $\chi$  は線形磁化率、 $\chi^{(n)}$  は  $n$  次の非線形磁化率である。磁化や磁化率をはじめとした磁気特性を特徴づける量が、臨界指数にしたがって温度変調される強磁性-常磁性相転移点の周辺では、 $\chi^{(2)}(T)$  は図 1.4(b) に示すような温度変調を生じる [36, 33]。Ni-Pd 合金系で観測された逆スピンホール効果の温度変調は、 $\chi^{(2)}(T)$  の温度依存性を反映していると考えられている。

ここまではスピン流から電流への変換である逆スピンホール効果の測定で見られた異常について述べてきたが、電流からスピン流への変換である正スピンホール効果においても、金属磁性体の強磁性-常磁性相転移点の周辺で異常な温度変調が現れることが報告されている。Fe-Pt 合金系では、相転移に伴って正スピンホール効果が非常に大きく増強されることが示された [37]。相転移点でのスピンホール効果の変調の大きさは、材料のスピン軌道相互作用の強さにも影響されると考えられており、スピン揺らぎに関連した散乱機構のより詳細な解明に興味を持たれている。

#### 1.4.2 相転移現象とスピン流生成

2.2 節で扱うスピンプンピング現象を利用したスピン流生成では、スピン流の注入源である強磁性体の磁化ダイナミクスを誘起し、その緩和に伴って流出する角運動量を、隣接する金属へ注入されるスピン流として取り出す。この過程でのスピン流の生成効率は、強磁性体の磁化と、金属のスピンとの間の  $s$ - $d$  相互作用の大きさによって特徴づけられる。強磁性体にギガヘルツ帯の外部交流磁場を印加することで磁化ダイナミクスを誘起する場合には、スピン流の生成効率は、金属のスピン磁化率の、外部磁場の周波数帯での交流成分に比例する [34]。

金属磁性体の交流スピン磁化率の大きさは、磁気相転移に伴って増幅される。図 1.5(a) に示す、Ni-Fe/Cu/Ir-Mn 多層膜における Ni-Fe 合金の緩和定数の測定 [38] では、スピン流源 (Ni-Fe 合金) の緩和項が Ir-Mn 合金の反強磁性-強磁性相転移温度の周辺で増幅することが観測された。スピン流源の緩和の増幅は、隣接した Ir-Mn 合金へのスピン流注入量の増大に対応していると理解される。この他に、強磁性-常磁性相転移を示す Fe-Pt 合金でも、相転移温度の周辺でスピン注入効率の増幅が生じることが報告された [37]。

また、伝導電子をもたない磁性絶縁体でも、磁化の集団励起状態であるマグノンによって輸送されるスピン流が、相転移温度の周辺で増幅されることが報告されている [39, 40]。図 1.5(b) に示す  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}/\text{CoO}/\text{Pt}$  の積層構造での Pt の逆スピンホール電圧測定では、CoO の反

強磁性-常磁性相転移温度の周辺でのみ、CoO を経由して Pt に注入されるスピン流量が増大することが報告された [40]。

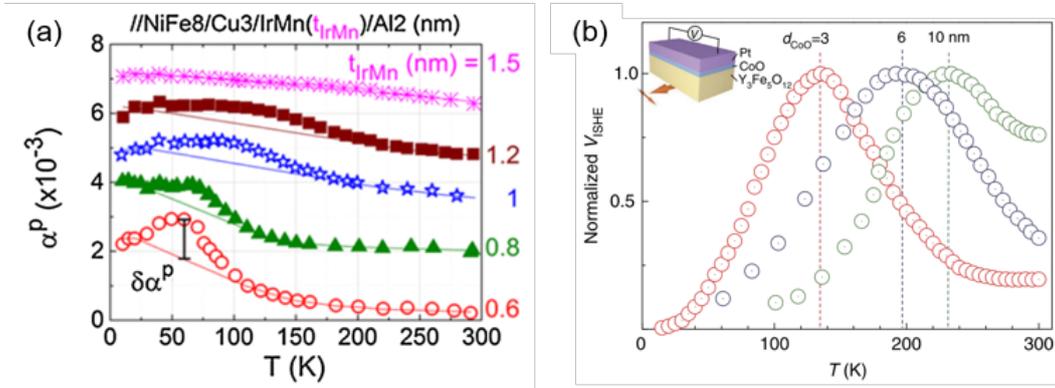


図 1.5: 磁気相転移温度の近傍でのスピン輸送特性の変調. (a) Ni-Fe/Cu/Ir-Mn 試料で測定された Ni-Fe 合金の緩和係数の、参照試料 (Ni-Fe/Cu) からの増分の温度依存性 [38]. Ir-Mn 合金の反強磁性-常磁性相転移温度の周辺で、スピン流の注入量の増大に対応する緩和係数の増幅が生じている. (b)  $Y_3Fe_5O_{12}/CoO/Pt$  の積層構造で測定された Pt の逆スピンホール電圧の温度依存性 [40]. CoO の反強磁性-常磁性相転移温度の周辺で、CoO 層で輸送されて Pt へ注入されるスピン流の量が増幅されることを反映して、逆スピンホール電圧値が極大値を示す。

これらの現象は、磁性薄膜材料の相転移温度を検出するために利用できることが提案されている [38, 40]。例えば、反強磁性体は外部磁場に対する応答が一般に小さく、特に体積の小さな薄膜試料においては、相転移温度を簡便な手法で検出することが困難であった。ここで扱ったスピン流の増幅効果はスピン流源である強磁性体の緩和項の変化として検出することができ、また界面で特徴づけられる効果であるので、その変分の大きさは金属の体積には依存しない。このため、試料体積が微小な場合でも、簡便な手法で相転移温度を評価することが可能である。

## 1.5 本論文の目的と構成

本論文では特に、磁気相転移点近傍でのスピン流物性の変調に着目した研究を行なった。先行研究から、強磁性-常磁性相転移点、あるいは反強磁性-常磁性相転移点で、スピン注入効率およびスピンホール効果に異常な温度変化がみられることが分かっている。しかしながらこれらの報告は、現時点では二次相転移点の付近に限られている。二次相転移点では一般には、磁気秩序、磁化率等は臨界指数にしたがった温度変化を示す。一方で、一次の磁気相転移点では、相転移に伴って磁化の不連続な変化が生じることから、磁化率をはじめとした磁気状態を特徴づける変数の温度発展が二次相転移点とは異なっている。このため、磁化率の温度変化によって特徴づけられるスピン輸送特性の変調が、一次相転移点の近傍ではより増強されると期

待される。本論文では、磁気相転移点近傍でのスピンの流物性を理解することを目的として、これまでに測定されていない一次相転移点の周辺でスピン輸送特性を評価した。

また、物質の磁気秩序がスピンホール効果に影響する可能性が示唆されているが、具体的などのような機構が存在するのか明らかになっていない。スピンホール効果の機構を議論する上では、スピンホール角と縦電気抵抗率の相関関係を調べることは有効である [20, 25]。このため、同一物質について磁気相転移温度をまたぎ、異なる磁性相でのスピンホール効果の温度依存性を測定、比較することで、磁気秩序に由来する効果を明確にできると考えられる。さらに、スピンホール効果を生じるスピンの生成、検出に利用することを考えた場合、スピン流-電流間の変換効率の向上は重要な課題である。スピンホール角の大きな磁性体について、その相転移温度周辺でスピンホール効果が増強されれば、スピンホール物質の探索に重要な指針を与えうる。本論文では、磁気秩序の形成とスピン変換現象の発現機構の相関を明らかにすることを目的として、同一物質の常磁性状態、強磁性状態での逆スピンホール効果の温度依存性を評価した。

本論文の構成は以下のとおりである。

第2章では研究の背景として、スピンホール効果の微視的な機構と、スピンプンピングによるスピン注入法および逆スピンホール効果の検出法について述べる。また、本研究で対象とする一次相転移物質である FeRh 合金について、特に相転移点近傍での物性を概説する。第3章では本研究にて用いた実験手法について、試料作製と物性評価測定とに分けて述べる。第4-6章では、本研究の主たる実験結果を示し、第7章でそれらの総括を述べる。その概要を以下に簡単にまとめる。

- Pd 添加 Fe-Rh 合金の磁化過程に依存した電気伝導特性 (第4章)

Fe-Rh 合金系では、磁気相転移点の近傍で反強磁性ドメインと強磁性ドメインの共存状態が発現する。本研究では、Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の細線素子を作製し、電気伝導特性を測定した。ドメインサイズと同程度まで微細化した系で検出された不連続な素子抵抗の温度変化から、相転移点付近での磁性相の形成過程を明らかにした。

- Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の逆スピンホール測定 (第5章)

二次相転移点近傍でのスピン輸送特性の異常は、スピン揺らぎの温度変化と関連づけて理解される。一方で、より急峻な磁気秩序の変化が生じる一次相転移点の周りでは、スピン流物性は明らかでない。この章では、前章で扱ったのと同じく、Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜を用いて、スピンプンピングによるスピン注入と、逆スピンホール効果の検出を行なった。結果として、反強磁性-強磁性相転移点の周りでは、スピン流注入効率の指標となるスピンミキシング伝導度が、一桁以上大きくなることが分かった。また、スピン流-電流変換効率は相転移点の周辺でピークをもつような温度変化を示した。これらは一次相転移点付近でのスピン揺らぎおよび相分離構造から理解できると考えている。

- Ni-Cu 合金の逆スピンホール効果測定 (第6章)

これまでの研究で、多岐にわたる磁性体でのスピンホール効果の評価が行なわれてきた。この章では、同一物質の常磁性状態、強磁性状態でのスピンホール効果の評価し、

磁気秩序の形成とスピホール効果の相関を明らかにすることを目的として、組成によってキュリー温度を変調できる Ni-Cu 合金で、逆スピホール効果の温度依存性を測定した。Ni-Cu 合金では非常に大きなスピホール角が得られることが報告されており [41]、これがキュリー温度周辺で変調されれば、より高効率なスピ流の生成、検出に利用できる可能性がある。結果として、相転移点の前後でスピホール角が電気伝導特性に対して異なった依存性をもつことが示された。このことは、磁気秩序の形成に伴い、電子のスピ依存散乱過程が変調されることを示唆している。

## 第 2 章

# 基礎理論と研究背景

この章では、本研究を理解する上で必要となる基礎理論について述べる。はじめに、スピンの流と電流との変換現象であるスピンホール効果、逆スピンホール効果を説明し、どのような微視的な散乱機構が寄与しているかを説明する。また、物質の非線形磁化率に比例した、スピン偏極方向に依存した散乱過程が存在し、特に強磁性-常磁性相転移温度付近でこれがスピンホール効果の温度変調をもたらすことを述べる。続いて、第 5 章と第 6 章で扱うスピンプンピングについて述べる。まず、強磁性体/金属の接合で、強磁性体の磁化ダイナミクスの緩和から、金属へ流れるスピン流が生成されるスピンプンピング現象が生じることを説明する。続いて、これを利用した薄膜試料での逆スピンホール効果の検出について説明する。また、スピンプンピングによって生成されるスピン流の大きさが、スピン注入される物質の交流磁化率で特徴づけられることを述べる。最後に、本研究で対象とする相転移物質である Fe-Rh 合金系について、反強磁性-強磁性相転移に関連した物性を概説する。

### 2.1 スピンホール効果

この節では、電流からスピン流への変換現象である（正）スピンホール効果、およびその逆効果（スピン流から電流への変換現象：逆スピンホール効果）について記述する。これらの効果の模式図を図 2.1 に示す。金属の伝導電子は、結晶中の不純物や欠陥によって散乱を受けるが、この散乱過程にスピン軌道相互作用が寄与すると、伝導電子のスピン偏極方向に依存した散乱が生じる。常磁性金属に電場を印加する場合、電流に寄与する伝導電子には、上向きスピンの電子と下向きスピンの電子が同数存在する。この伝導電子がスピン軌道相互作用によって、スピンに応じて逆方向に散乱されると、電流およびスピン偏極方向と直交した向きに、電荷の流れが相殺された純スピン流が生じる。この効果をスピンホール効果という。逆に、純スピン流が常磁性金属中を流れていると、スピン軌道相互作用によって、互い違いに流れていた上向き、下向きスピンの電子は、それぞれ同じ方向に散乱を受けることになる。結果としてスピン流とスピン偏極方向に直交した向きに電流が生じる。これがスピンホール効果の逆効果にあたる逆スピンホール効果である。

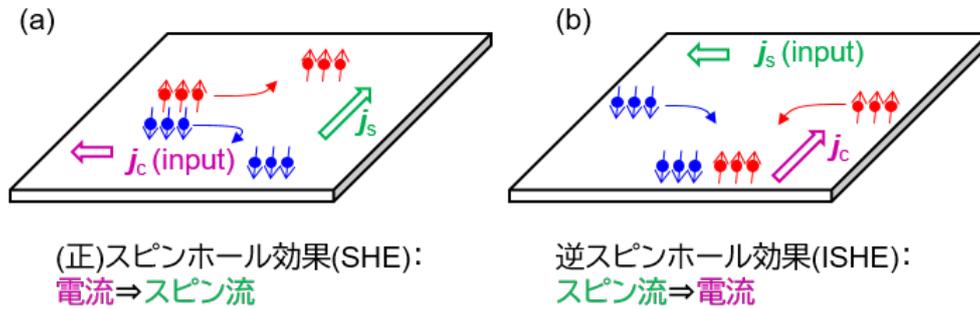


図 2.1: (a) 正スピホール効果 (SHE: spin Hall effect) および (b) 逆スピホール効果 (ISHE: inverse SHE) の模式図.

### 2.1.1 スピホール効果の理論

スピホール効果は、伝導電子に生じるスピ軌道相互作用を起源として生じる。以下に各種の微視的な散乱機構の理論を述べていく。

#### 外因性機構

外因性機構としては、結晶中の格子欠陥や磁性不純物、フォノンによって生じる電子散乱が寄与する。伝導電子のスピ偏極方向に依存する散乱が、電場と直交した向きに生じれば、その散乱現象はスピホール効果に寄与することになる。これらの電子散乱はその微視的機構によって、図 2.2 に示すサイドジャンプ機構とスキュー散乱機構に分類される。ここではこの2つの機構について説明する。最後に、電気伝導特性とスピホール効果の相関を調べることで両者からの寄与が区別されることを示す。

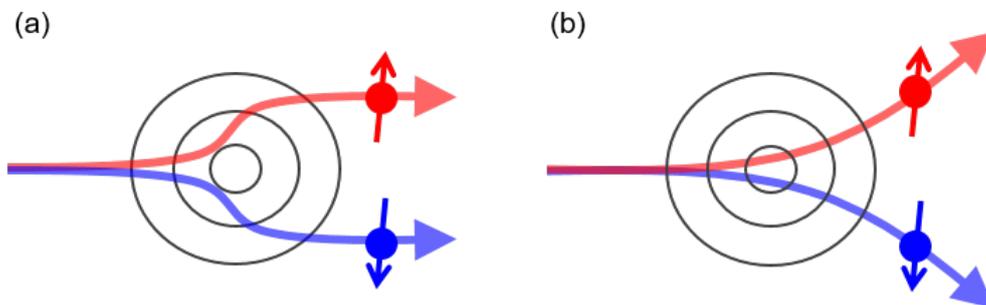


図 2.2: 外因性スピホール効果の機構. (a) サイドジャンプ. (b) スキュー散乱.

#### (1) サイドジャンプ [42, 43]

はじめに、金属中の非磁性不純物が散乱源となる場合に、スピ軌道相互作用が生じる

ことを示す。不純物ポテンシャル  $u(\mathbf{r})$  による電場は次のように書ける。

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{e}\nabla u(\mathbf{r}) \quad (2.1)$$

伝導電子がこのポテンシャルによって感じる有効磁場は、伝導電子の運動量演算子を  $\hat{\mathbf{p}}$  とすると以下のようになる。なお、 $m$  は伝導電子の有効質量、 $c$  は光速である。

$$\mathbf{B}_{\text{eff}} = -\frac{1}{mc}\hat{\mathbf{p}} \times \mathbf{E} \quad (2.2)$$

スピン演算子を  $\hat{\boldsymbol{\sigma}}$  として、伝導電子は  $\mathbf{B}_{\text{eff}}$  による Zeeman 効果を受ける。この効果はポテンシャル  $u_{\text{so}}(\mathbf{r})$  として表せる。

$$u_{\text{so}}(\mathbf{r}) = \eta_{\text{so}}\hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot [\nabla u(\mathbf{r}) \times \nabla / i], \quad \eta_{\text{so}} = \left(\frac{\hbar}{2mc}\right)^2 \quad (2.3)$$

$\eta_{\text{so}}$  はスピン軌道相互作用の強さを表すパラメーターであるが、実際の金属中の伝導電子では、ここで示されているより数桁大きい値をもつ。

この金属中の伝導電子について、一電子のハミルトニアンを次のように置く。

$$H = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \xi_{\mathbf{k}} a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger a_{\mathbf{k}\sigma} + \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \sum_{\sigma, \sigma'} \langle \mathbf{k}'\sigma' | U | \mathbf{k}\sigma \rangle a_{\mathbf{k}'\sigma'}^\dagger a_{\mathbf{k}\sigma} \quad (2.4)$$

ここで、 $a_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger$  ( $a_{\mathbf{k}\sigma}$ ) は波数  $\mathbf{k}$ 、スピン  $\sigma$  をもつ電子の生成 (消滅) 演算子である。また、不純物ポテンシャルを  $U(\mathbf{r}) = u(\mathbf{r}) + u_{\text{so}}(\mathbf{r})$  とした。式 (2.4) の右辺第一項は電子の運動エネルギーであり、 $\xi_{\mathbf{k}} = \frac{(\hbar k)^2}{2m} - \varepsilon_{\text{F}}$ 、 $\varepsilon_{\text{F}}$  はフェルミエネルギーである。右辺第二項は不純物からの散乱項であり、散乱振幅は以下のように書ける。

$$\langle \mathbf{k}'\sigma' | U | \mathbf{k}\sigma \rangle = u_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} \delta_{\sigma'\sigma} + i\eta_{\text{so}} u_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} [\hat{\boldsymbol{\sigma}}_{\sigma'\sigma} \cdot (\mathbf{k}' \times \mathbf{k})], \quad u_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} = \langle \mathbf{k}' | u | \mathbf{k} \rangle \quad (2.5)$$

このうち第一項に寄与する不純物ポテンシャル  $u$  は局所的であるとして、 $V$  を試料体積として以下のように置く。

$$u(\mathbf{r}) \approx u_{\text{imp}} \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$$

$$u_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} \approx \frac{u_{\text{imp}}}{V} \sum_i e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot \mathbf{r}_i}$$

スピン軌道相互作用のある場合には、電子の速度演算子  $\hat{\mathbf{v}}$  は次のように書かれる。

$$\hat{\mathbf{v}} = \frac{d\mathbf{r}}{dt} = \frac{1}{i\hbar} [\mathbf{r}, H] = \frac{\hat{\mathbf{p}}}{m} + \frac{\eta_{\text{so}}}{\hbar} [\hat{\boldsymbol{\sigma}} \times \nabla u(\mathbf{r})] \quad (2.6)$$

これを使って、スピン  $\sigma$  の電子の速度は以下のように書かれる。

$$v_{\mathbf{k}}^{\sigma} = \langle \mathbf{k}^+ \sigma | \hat{v} | \mathbf{k}^+ \sigma \rangle, \quad (2.7)$$

$$|\mathbf{k}^+ \sigma\rangle = |\mathbf{k} \sigma\rangle + \sum_{\mathbf{k}'} \frac{u_{\mathbf{k}' \mathbf{k}}}{\xi_{\mathbf{k}} - \xi_{\mathbf{k}'} + i\delta} |\mathbf{k}' \sigma\rangle \quad (2.8)$$

ここで、式(2.8)は、散乱波の一次のボルン近似から得られる。以上をまとめると、スピンの依らない速度項を  $\mathbf{k} = \hbar \mathbf{k} / m$  として、次の式を得る。

$$v_{\mathbf{k}}^{\sigma} = v_{\mathbf{k}} + \omega_{\mathbf{k}}^{\sigma}, \quad \omega_{\mathbf{k}}^{\sigma} = \theta_{\text{SH}}^{\text{SJ}} (\hat{\sigma}_{\sigma\sigma} \times v_{\mathbf{k}}) \quad (2.9)$$

$\hat{\sigma}_{\sigma\sigma}$  はスピン  $\sigma$  の対角成分であり、 $\omega_{\mathbf{k}}^{\sigma}$  は異常速度と呼ばれる、電子のスピンに応じて生じる速度項である。異常速度はスピンと波数ベクトルに直交した方向に生じるため、ホール効果に寄与する。この機構をサイドジャンプと呼び、 $\theta_{\text{SH}}^{\text{SJ}}$  はサイドジャンプによって得られるスピンホール角である。

$$\theta_{\text{SH}}^{\text{SJ}} = \frac{\hbar \bar{\eta}_{\text{so}}}{2\varepsilon_{\text{F}} \tau_{\text{tr}}^0} = \frac{\bar{\eta}_{\text{so}}}{k_{\text{F}} l}, \quad \bar{\eta}_{\text{so}} = k_{\text{F}}^2 \eta_{\text{so}}, \quad \tau_{\text{tr}}^0 = \left[ \frac{2\pi}{\hbar} n_{\text{imp}} N(0) u_{\text{imp}}^2 \right]^{-1} \quad (2.10)$$

ここで、 $\tau_{\text{tr}}^0$  は不純物による散乱時間、 $n_{\text{imp}}$  は不純物濃度、 $k_{\text{F}}$  はフェルミ波数、 $l$  は電子の平均自由行程である。

このサイドジャンプが電流、スピン流にどのように寄与するかをみていく。スピン  $\sigma$  の電子の流れの演算子は次のように書ける。

$$\hat{J}_{\sigma} = e \sum_{\mathbf{k}} (v_{\mathbf{k}} + \omega_{\mathbf{k}}^{\sigma}) a_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} a_{\mathbf{k}\sigma} \quad (2.11)$$

電流およびスピン流をそれぞれ  $J_c = J_{\uparrow} + J_{\downarrow}$ 、 $J_s = J_{\uparrow} - J_{\downarrow}$  と定義すれば、これらは  $\theta_{\text{SH}}^{\text{SJ}}$  を使って次のように書ける。

$$J_c = J'_c + \theta_{\text{SH}}^{\text{SJ}} (\mathbf{e}_s \times J'_s), \quad J_s = J'_s + \theta_{\text{SH}}^{\text{SJ}} (\mathbf{e}_s \times J'_c) \quad (2.12)$$

$\mathbf{e}_s = \hat{\sigma}_{\uparrow\uparrow} = -\hat{\sigma}_{\downarrow\downarrow} = (0, 0, 1)$  は上向きスピンの偏極方向であり、これを  $z$  軸にとる。 $J'_c$ 、 $J'_s$  は電子の分布関数  $f_{\mathbf{k}\sigma} = \langle a_{\mathbf{k}\sigma}^{\dagger} a_{\mathbf{k}\sigma} \rangle$  を使って次のように書き直せる。

$$J'_c = e \sum_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}} (f_{\mathbf{k}\uparrow} + f_{\mathbf{k}\downarrow}), \quad J'_s = e \sum_{\mathbf{k}} v_{\mathbf{k}} (f_{\mathbf{k}\uparrow} - f_{\mathbf{k}\downarrow}) \quad (2.13)$$

これらが、サイドジャンプによるスピンホール効果、逆スピンホール効果への寄与に対応する。

## (2) スキュー散乱 [42, 44]

スキュー散乱はスピン軌道相互作用に起因する異方的な散乱によって生じる。これが分布関数  $f_{\mathbf{k}\sigma}$  の変化として表現されることを導いていく。

定常状態でのボルツマン輸送方程式は、 $\mathbf{E}$  を外部電場として次のように書ける。

$$\mathbf{v}_{\mathbf{k}} \cdot \nabla f_{\mathbf{k}\sigma} + \frac{e\mathbf{E}}{\hbar} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}\sigma} = \left( \frac{\partial f_{\mathbf{k}\sigma}}{\partial t} \right)_{\text{scatt}} \quad (2.14)$$

状態  $|\mathbf{k}\sigma\rangle$  から  $|\mathbf{k}'\sigma'\rangle$  への遷移確率を  $P_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\sigma'\sigma}$  と書くと、不純物による散乱の効果を表す式 (2.14) の右辺は次のように書ける。

$$\left( \frac{\partial f_{\mathbf{k}\sigma}}{\partial t} \right)_{\text{scatt}} = \sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \left[ P_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\sigma'\sigma} f_{\mathbf{k}'\sigma'} - P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\sigma\sigma'} \right] \quad (2.15)$$

また、遷移確率は散乱行列  $\hat{\mathcal{T}}$  を用いて次のように書ける。

$$P_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\sigma'\sigma} = \frac{2\pi}{\hbar} n_{\text{imp}} \left| \langle \mathbf{k}'\sigma' | \hat{\mathcal{T}} | \mathbf{k}\sigma \rangle \right|^2 \delta(\xi_{\mathbf{k}} - \xi_{\mathbf{k}'}) \quad (2.16)$$

$\hat{\mathcal{T}}$  の行列要素は、2 次のボルン近似によって求められる。

$$\langle \mathbf{k}'\sigma' | \hat{\mathcal{T}} | \mathbf{k}\sigma \rangle = \left[ u_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{k}''} \frac{u_{\mathbf{k}'\mathbf{k}''} u_{\mathbf{k}''\mathbf{k}}}{\xi_{\mathbf{k}} - \xi_{\mathbf{k}''} + i\delta} \right] \delta_{\sigma'\sigma} + i\eta_{\text{so}} u_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} (\mathbf{k}' \times \mathbf{k}) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}_{\sigma'\sigma} \quad (2.17)$$

これを式 (2.16) に代入すると、遷移確率  $P_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\sigma'\sigma}$  を電子のスピンに対して対称な部分  $P_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\sigma'\sigma(1)}$  と、非対称な部分  $P_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\sigma'\sigma(2)}$  とに分離できる。

$$P_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\sigma'\sigma(1)} = \frac{2\pi}{\hbar} \frac{n_{\text{imp}}}{V} u_{\text{imp}}^2 \left( \delta_{\sigma'\sigma} + \eta_{\text{so}}^2 |(\mathbf{k}' \times \mathbf{k}) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}_{\sigma'\sigma}|^2 \right) \delta(\xi_{\mathbf{k}'} - \xi_{\mathbf{k}}) \quad (2.18)$$

$$P_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\sigma'\sigma(2)} = -\frac{(2\pi)^2}{\hbar} \eta_{\text{so}} \frac{n_{\text{imp}}}{V} u_{\text{imp}}^3 N(0) \delta_{\sigma'\sigma} [(\mathbf{k}' \times \mathbf{k}) \cdot \hat{\boldsymbol{\sigma}}_{\sigma'\sigma}] \delta(\xi_{\mathbf{k}'} - \xi_{\mathbf{k}}) \quad (2.19)$$

これらのうち、スピンに対して非対称な  $P_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}^{\sigma'\sigma(2)}$  が、スキュー散乱による項である。これはスピンに非対称なポテンシャル  $u_{\text{so}}$  の一次と、対称なポテンシャル  $u$  の2次の項を含む。

ここで、分布関数を以下のように3つの成分に分離する。

$$f_{\mathbf{k}\sigma} = f_{\mathbf{k}\sigma}^0 + g_{\mathbf{k}\sigma}^{(1)} + g_{\mathbf{k}\sigma}^{(2)} \quad (2.20)$$

$\mathbf{k}$  の立体角を  $\Omega_{\mathbf{k}}$  として、 $\mathbf{k}$  の全方位での分布関数の平均をとったものが右辺第一項であり、 $f_{\mathbf{k}\sigma}^0 = \int f_{\mathbf{k}\sigma} d\Omega_{\mathbf{k}} / (4\pi)$  と書かれる。 $g_{\mathbf{k}\sigma}^{(1)}$  と  $g_{\mathbf{k}\sigma}^{(2)}$  はそれぞれスピン対称、非対称な成分であり、いずれも  $\Omega_{\mathbf{k}}$  で角度平均をとると消える。

ボルツマンの輸送方程式 (2.14) は、式 (2.20) を代入して次のように書ける。

$$\mathbf{v}_{\mathbf{k}} \cdot \nabla f_{\mathbf{k}\sigma} + \frac{e\mathbf{E}}{\hbar} \cdot \nabla_{\mathbf{k}} f_{\mathbf{k}\sigma} = -\frac{g_{\mathbf{k}\sigma}^{(1)}}{\tau_{\text{tr}}} - \frac{f_{\mathbf{k}\sigma}^0 - f_{\mathbf{k}-\sigma}^0}{\tau_{\text{sf}}(\theta)} \quad (2.21)$$

ここで、 $\tau_{\text{tr}}$  は電気伝導に寄与する緩和時間、 $\tau_{\text{sf}}(\theta)$  はスピントリップ時間であり、 $\theta$  は  $\mathbf{k}$  と  $z$  軸の角度である。それぞれ以下のように定義される。

$$\tau_{\text{tr}}^{-1} = \sum_{\mathbf{k}'\sigma'} P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\sigma\sigma'(1)} = \frac{1}{\tau_{\text{tr}}^0} \left( 1 + \frac{2\bar{\eta}_{\text{so}}^2}{3} \right) \quad (2.22)$$

$$\tau_{\text{sf}}^{-1}(\theta) = \sum_{\mathbf{k}'} P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\downarrow(1)} = \frac{\bar{\eta}_{\text{so}}^2 (1 + \cos \theta^2)}{3\tau_{\text{tr}}^0} \quad (2.23)$$

式 (2.21) の右辺第一項は不純物による運動量緩和に、第二項はスピン緩和に対応している。

$f_0(\xi\mathbf{k})$  をフェルミ分布関数として、 $f_{\mathbf{k}\sigma}^0$  はスピン依存化学ポテンシャル  $\varepsilon_{\text{F}}^{\sigma}$  のフェルミ準位  $\varepsilon_{\text{F}}$  からの変位の大きさを使って展開できる。

$$f_{\mathbf{k}\sigma}^0 \approx f_0(\xi\mathbf{k}) + \left( -\frac{\delta f_0}{\delta \xi \mathbf{k}} \right) (\varepsilon_{\text{F}}^{\sigma} - \varepsilon_{\text{F}}) \quad (2.24)$$

式 (2.21) の左辺の  $f_{\mathbf{k}\sigma}$  を上式の  $f_{\mathbf{k}\sigma}^0$  で置き換え、また  $\tau_{\text{tr}} \ll \tau_{\text{sf}}$  であるとして近似すると、分布関数のスピン対称成分  $g_{\mathbf{k}\sigma}^{(1)}$  は次のように求まる。

$$g_{\mathbf{k}\sigma}^{(1)} \approx -\tau_{\text{tr}} \left( -\frac{\delta f_0}{\delta \xi \mathbf{k}} \right) \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \cdot \nabla \mu_{\text{N}}^{\sigma} \quad (2.25)$$

ここで、電気化学ポテンシャルを  $\mu_{\text{N}}^{\sigma} = \varepsilon_{\text{F}}^{\sigma} + e\phi$ 、 $\phi$  を電位ポテンシャルとした。一方、分布関数のスピン非対称成分  $g_{\mathbf{k}\sigma}^{(2)}$  は、ボルツマン方程式の非対称部分

$$\sum_{\mathbf{k}'\sigma'} \left[ -P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\sigma'\sigma(1)} g_{\mathbf{k}\sigma}^{(2)} + P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\sigma'\sigma(2)} g_{\mathbf{k}'\sigma'}^{(2)} \right] = 0$$

と、式 (2.19)、(2.20) および (2.25) から、次のように求められる。

$$g_{\mathbf{k}\sigma}^{(2)} = \theta_{\text{SH}}^{\text{SS}} \tau_{\text{tr}} \left( -\frac{\delta f_0}{\delta \xi \mathbf{k}} \right) (\mathbf{e}_s \times \mathbf{v}_{\mathbf{k}}) \cdot \nabla \mu_{\text{N}}^{\sigma}(\mathbf{r}) \quad (2.26)$$

ここで、 $\theta_{\text{SH}}^{\text{SS}}$  はスキュー散乱によるスピンホール角への寄与であり、以下のように表される。

$$\theta_{\text{SH}}^{\text{SS}} = -\frac{2\pi}{3} \bar{\eta}_{\text{so}} N(0) u_{\text{imp}} \quad (2.27)$$

以上から、分布関数  $f_{\mathbf{k}\sigma}$  は次のようになる。

$$f_{\mathbf{k}\sigma} \approx f_0(\xi\mathbf{k}) + \left( -\frac{\delta f_0}{\delta \xi \mathbf{k}} \right) (\varepsilon_{\text{F}}^{\sigma} - \varepsilon_{\text{F}}) - \tau_{\text{tr}} \left( -\frac{\delta f_0}{\delta \xi \mathbf{k}} \right) \left[ \mathbf{v}_{\mathbf{k}} + \theta_{\text{SH}}^{\text{SS}} (\mathbf{e}_s \times \mathbf{v}_{\mathbf{k}}) \right] \cdot \nabla \mu_{\text{N}}^{\sigma}(\mathbf{r}) \quad (2.28)$$

さて、この分布関数を式 (2.13) に代入することで、スキュー散乱による電流、スピン流への寄与をみる。

$$\mathbf{J}'_c = \mathbf{j}_c + \theta_{SH}^{SS} (\mathbf{e}_s \times \mathbf{j}_s) \quad (2.29)$$

$$\mathbf{J}'_s = \mathbf{j}_s + \theta_{SH}^{SS} (\mathbf{e}_s \times \mathbf{j}_c) \quad (2.30)$$

ここで、 $\mathbf{j}_c$  はオーミック電流、 $\mathbf{j}_s$  はスピン蓄積の拡散から生じる拡散スピン流である。縦電気伝導度を  $\sigma_{xx} = 2e^2 N(0)D$ 、拡散定数を  $D = (1/3)\tau_{tr}v_F^2$  として、これらは次のように書ける。

$$\mathbf{j}_c = \sigma_{xx} \mathbf{E} \quad (2.31)$$

$$\mathbf{j}_s = -\frac{\sigma_{xx}}{e} \nabla \delta \mu_N \quad (2.32)$$

式 (2.12) で得たサイドジャンプの寄与を合わせて、スピン流、電流は以下のように書き表せる。

$$\mathbf{J}_c = \mathbf{j}_c + \theta_{SH} (\mathbf{e}_s \times \mathbf{j}_s) \quad (2.33)$$

$$\mathbf{J}_s = \mathbf{j}_s + \theta_{SH} (\mathbf{e}_s \times \mathbf{j}_c) \quad (2.34)$$

ここで、 $\theta_{SH} = \theta_{SH}^{SJ} + \theta_{SH}^{SS}$  であり、式 (2.33)、(2.34) の右辺第二項はそれぞれ逆スピンホール効果、スピンホール効果からくる寄与である。

また、スピンホール角と縦伝導度の積であるスピンホール伝導度  $\sigma_{SH} = \theta_{SH} \sigma_{xx}$  は、サイドジャンプとスキュー散乱の寄与を合わせて以下のように書ける。

$$\sigma_{SH} = \sigma_{SH}^{SS} + \sigma_{SH}^{SJ} \quad (2.35)$$

$$\sigma_{SH}^{SS} = \theta_{SH}^{SS} \sigma_{xx} = -\frac{2\pi}{3} \bar{\eta}_{so} [N(0)u_{imp}] \sigma_{xx} \quad (2.36)$$

$$\sigma_{SH}^{SJ} = \theta_{SH}^{SJ} \sigma_{xx} = \frac{e^2}{\hbar} \eta_{so} n_e \quad (2.37)$$

また、スピンホール抵抗率  $\rho_{SH} \approx \sigma_{SH} / \sigma_{xx}^2$  の縦抵抗率  $\rho_{xx}$  への依存性をみると、サイドジャンプ、スキュー散乱は以下のように表される。

$$\rho_{SH} = a_{SS} \rho_{xx} + b_{SJ} \rho_{xx}^2 \quad (2.38)$$

$$a_{SS} = -\frac{2\pi}{3} \bar{\eta}_{so} N(0) u_{imp} \quad (2.39)$$

$$b_{SJ} = \frac{2}{3\pi} \bar{\eta}_{so} \frac{e^2}{\hbar} k_F \quad (2.40)$$

### 内因性機構

先に述べた外因性機構とは別に、不純物等の外的要因ではなく、媒体物質の電子バンド構造に由来するスピンホール効果への寄与は内因性機構とよばれる。内因性のスピンホール伝導度は、以下のようにあらわされる [16]。

$$\sigma_{\text{SH}}^{\text{int}} = \frac{3}{(2\pi)^3} \sum_n \int_{\text{BZ}} d\mathbf{k} \frac{\Omega_n^{\text{spin}}(\mathbf{k})}{1 + e^{(\varepsilon_{n,\mathbf{k}} - \varepsilon_{\text{F}})/k_{\text{B}}T}} \quad (2.41)$$

$$\Omega_n^{\text{spin}}(\mathbf{k}) = -2\text{Im} \sum_{m \neq n} \frac{\langle u_{n,\mathbf{k}} | \hat{J}_x^z | u_{m,\mathbf{k}} \rangle \langle u_{m,\mathbf{k}} | \hat{v}_y | u_{n,\mathbf{k}} \rangle}{(\varepsilon_{n,\mathbf{k}} - \varepsilon_{m,\mathbf{k}})^2}, \quad \hat{J}_x^z = \{\hat{v}_x, \hat{\sigma}_z\}/2 \quad (2.42)$$

電子の固有状態  $|u_{n,\mathbf{k}}\rangle$  および固有エネルギー  $\varepsilon_{n,\mathbf{k}}$  は、バンド指数  $n$  と波数  $\mathbf{k}$  で指数づけされている。 $\hat{J}_x^z$  はスピン流演算子であり、 $z$  方向にスピン偏極した、 $x$  方向に流れるスピン流に対応する。 $\Omega_n^{\text{spin}}(\mathbf{k})$  はスピンベリー曲率とよばれる。 $\int_{\text{BZ}} d\mathbf{k}$  はブリルアンゾーン内での積分であり、電子バンド構造が与えられていれば  $\sigma_{\text{SH}}^{\text{int}}$  を計算することができる。

### 2.1.2 スピンホール効果への非線形磁化率の寄与

前項で扱ったスキュー散乱では、式 (2.28) に示したように、伝導電子の波数とスピン偏極の外積方向に電子散乱が生じる。局在した磁気モーメントがスキュー散乱源としてはたらく場合には、散乱される伝導電子スピンの、散乱源となる局在スピンの間で、スピン-スピン相互作用が生じる。これを組み込んだモデルでの電子輸送が、1962年に Kondo によって計算されている [45]。Kondo の理論では  $s$ - $d$  あるいは  $s$ - $f$  相互作用を含んだ系での伝導  $s$  電子の散乱から、強磁性体のキュリー温度付近で生じる異常ホール効果の変調を説明している。近年、このモデルを拡張し、スピンホール効果に適用した計算が報告された [36]。Gu らは、局在  $d$  電子と伝導  $s$  電子の間にはたらくスピン軌道相互作用を取り入れたモデルでの電子散乱を議論し、スキュー散乱強度に高次の非線形磁化率が影響することを示した。ここでは結果だけを示すが、上向きスピン、下向きスピンの伝導電子に対する散乱強度を、符号を含めてそれぞれ  $A_{\uparrow}$ 、 $A_{\downarrow}$  とすると、これらは高次の磁化率に以下のように依存する。

$$A_{\uparrow} \propto (r_1 + r_2), \quad A_{\downarrow} \propto (r_1 - r_2) \quad (2.43)$$

$$r_1 \approx \chi^{(1)}(T) \frac{(k_{\text{B}}T)^2}{\mu_{\text{B}}^3}, \quad r_2 \approx \chi^{(2)}(T) \frac{(k_{\text{B}}T)^3}{\mu_{\text{B}}^4} \quad (2.44)$$

$$M(T) = M_0(T) + \chi(T)H + \chi^{(1)}(T)H^2 + \chi^{(2)}(T)H^3 + \dots \quad (2.45)$$

ここで、 $k_{\text{B}}$  はボルツマン定数、 $\mu_{\text{B}}$  はボーア磁子である。式 (2.45) は、スピンホール効果の生じている物質の磁化を外部磁場  $H$  のべき乗で展開したものである。 $M_0$  は自発磁化、 $\chi(T)$  は線形磁化率、 $\chi^{(n)}(T)$  は  $n$  次の非線形磁化率である。式 (2.43) に示したように、一次の非線

形磁化率の電子散乱への寄与はスピン偏極方向に対して対称であるのに対し、二次の非線形磁化率はスピン非対称な散乱に寄与する。

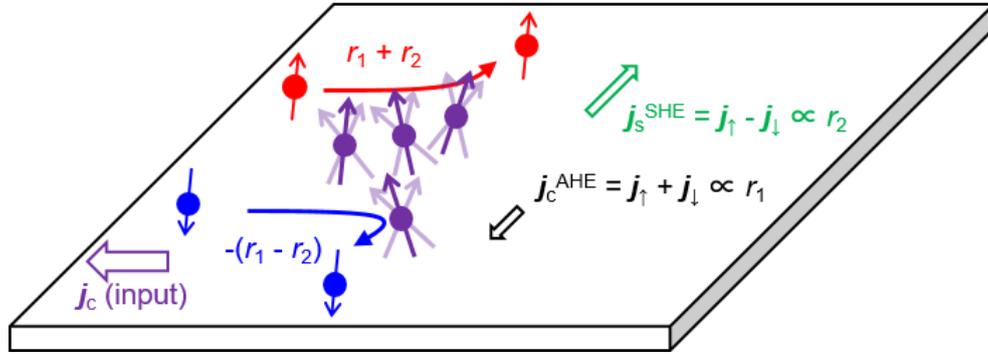


図 2.3: キュリー温度付近にある強磁性体でスキュー散乱に起因して生じるスピホール効果および異常ホール効果の模式図. 電流 ( $j_c$ ) を印加した場合, スキュー散乱強度の大きさは, 伝導電子のスピンの向きが上向きの場合には  $r_1 + r_2$ 、下向きの場合には  $r_1 - r_2$  に比例する. SHE から生じるスピ流、AHE から生じる電流の大きさはそれぞれ  $r_2$ 、 $r_1$  に比例する.

ここで、図 2.3 に示すように電流を印加することを考えると、横方向に生じる電流は  $(r_1 + r_2) + (r_1 - r_2) \propto r_1$  に比例し、スピ流は  $(r_1 + r_2) - (r_1 - r_2) \propto r_2$  に比例する。これらはそれぞれ、異常ホール効果、スピホール効果に寄与する。異常ホール効果は一次の非線形磁化率で特徴づけられる一方で、スピホール効果は二次の非線形磁化率に比例する。これらの非線形磁化率は、キュリー温度の周辺で特徴的な温度変化を示す。Wei らは Pd-Ni 合金の逆スピホール効果を測定し、キュリー温度の付近で  $\chi^{(2)}(T)$  と類似の温度変化が生じることを報告した [33]。また、Fe-Pt 合金のスピホール効果測定でもキュリー点での異常が報告されている [37]。

## 2.2 スピンポンピング現象

強磁性体と金属の接合系において、強磁性体の磁化ダイナミクスが緩和し、接合界面での  $s-d$  相互作用を通じて金属中にスピ流が注入される現象をスピポンピングとよぶ。本節では、スピポンピングによって磁化の緩和からスピ流が生成されることを示す。また、スピポンピングを利用した逆スピホール効果の電氣的検出法を説明する。さらに、近年報告されている、スピ揺らぎによるスピ注入効率の変調について述べる。

### 2.2.1 強磁性体/金属接合でのスピ移行

この項での議論は文献 [42] を参考に行っている。強磁性体の磁化の運動は、Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式によって以下のように記述される。

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (2.46)$$

ここで、 $\mathbf{m}$  は磁化方向を表す単位ベクトル、 $\gamma$  は磁気回転比、 $\alpha$  は Gilbert ダンピング係数、 $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  は有効磁場である。右辺第1項は有効磁場まわりの歳差運動に対応している。右辺第2項は磁化を有効磁場方向に倒す向きのトルクであり、磁化の運動の緩和に対応する。また、この式は、左から  $(\alpha\mathbf{m} \times)$  を作用させた式と元の式とを足し合わせることで、次の式に書き直すことができ、これは Landau-Lifshitz(LL) 方程式と呼ばれる。

$$(1 + \alpha^2) \frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \gamma\alpha\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) \quad (2.47)$$

これらは強磁性体単体で生じる磁化ダイナミクスであるが、金属と接合した系ではどのように変調されるかをみていく。ここでは、強磁性体/金属の接合に電圧が印加されている状態を考える。強磁性体での電圧を  $V_F^{(c)}$ 、金属でのそれを  $V_M^{(c)}$  とする。 $\mathbf{m}$  に平行な上向きスピン ( $\uparrow$ ) をもつ電子のチャネルと、反平行な下向きスピン ( $\downarrow$ ) をもつ電子のチャネルがあるような、2流体モデルでのスピン流の輸送を議論する。強磁性体では磁化があるため、電子が感じる電圧はそのスピン偏極方向に応じて異なる。この  $V_F^{(c)}$  からの変位を  $V_F^{(s)}$  と書くと、 $\uparrow$ 、 $\downarrow$  のスピンをもつ強磁性体内の電子が感じる電圧  $V_F^\uparrow$ 、 $V_F^\downarrow$  は、次の式で書ける。

$$V_F^\uparrow = V_F^{(c)} + V_F^{(s)} \quad (2.48)$$

$$V_F^\downarrow = V_F^{(c)} - V_F^{(s)} \quad (2.49)$$

ここで、金属側にスピン蓄積  $V_M^{(s)}$  があることを仮定する。 $V_M^{(s)}$  の方向はスピン蓄積の偏極方向、大きさは  $V_M^{(c)}$  からの電位差である。 $\uparrow$ 、 $\downarrow$  のスピンをもつ金属中の電子が感じる電圧  $V_M^\uparrow$ 、 $V_M^\downarrow$  は同様に、次の式で書ける。

$$V_M^\uparrow = V_M^{(c)} + \mathbf{m} \cdot \mathbf{V}_M^{(s)} \quad (2.50)$$

$$V_M^\downarrow = V_M^{(c)} - \mathbf{m} \cdot \mathbf{V}_M^{(s)} \quad (2.51)$$

接合界面を通る電流は、強磁性体と金属との電位差にコンダクタンスをかけたものに等しいので、 $\uparrow$ チャネル、 $\downarrow$ チャネルでの電流はそれぞれ次のようになる。

$$I_\uparrow = G_\uparrow (V_M^\uparrow - V_F^\uparrow) = G_\uparrow \left\{ (V_M^{(c)} - V_F^{(c)}) + \mathbf{m} \cdot (\mathbf{V}_M^{(s)} - \mathbf{m}V_F^{(s)}) \right\} \quad (2.52)$$

$$I_\downarrow = G_\downarrow (V_M^\downarrow - V_F^\downarrow) = G_\downarrow \left\{ (V_M^{(c)} - V_F^{(c)}) - \mathbf{m} \cdot (\mathbf{V}_M^{(s)} - \mathbf{m}V_F^{(s)}) \right\} \quad (2.53)$$

ここで  $G_{\uparrow(\downarrow)}$  はスピン依存する界面コンダクタンスである。電流は  $I^{(c)} = I_\uparrow + I_\downarrow$  で与えられる。磁化の方向に偏極した縦スピン流は  $(I_\uparrow - I_\downarrow)\mathbf{m}$  である。一方、全スピン流から縦スピン流を差し引いた分に相当する横スピン流は、 $\mathbf{m}$  に直交した二つのベクトル、 $\mathbf{m} \times \mathbf{V}_M^{(s)}$  および

$\mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{V}_M^{(s)})$  の方向に偏極した成分の和として書ける。金属側を流れる全スピン流  $\mathbf{I}_M^{(s,bias)}$  は、次の式で書ける。

$$\mathbf{I}_M^{(s,bias)} = (I_\uparrow - I_\downarrow) \mathbf{m} - 2G_\perp^{(R)} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{V}_M^{(s)}) - 2G_\perp^{(I)} (\mathbf{m} \times \mathbf{V}_M^{(s)}) \quad (2.54)$$

右辺第一項が縦スピン流、第二項および第三項が横スピン流に対応する。 $G_\perp^{(R)}$  と  $G_\perp^{(I)}$  はそれぞれ独立な横界面コンダクタンスである。また、 $\mathbf{I}_M^{(s,bias)}$  は電流の次元をもつ物理量として定義されており、スピン偏極方向を向いている。ここで、強磁性体側でのスピン流を考える。強磁性体中では、全角運動量を保存しつつスピン流から磁化へのスピン移行が生じる。磁化に対して垂直に偏極している横スピン流のみが、電子と磁化との  $s$ - $d$  相互作用による磁化へのスピン移行に寄与する。

角運動量保存則から、ここで散逸する横スピン流、すなわち式 (2.54) の右辺第二項と第三項は、スピン移行トルクによって生じる磁化の増分に対応する。すなわち、横スピン流によって移行される時間当たりの角運動量は  $\frac{\hbar}{2e} [\mathbf{I}_M^{(s,bias)} - (\mathbf{I}_M^{(s,bias)} \cdot \mathbf{m}) \mathbf{m}]$  であり、これがスピン移行トルクによる強磁性体の角運動量の時間変化  $(\frac{\partial}{\partial t} \frac{\mathbf{m} M_s \mathcal{V}}{\gamma})_{\text{stt}}$  と等しくなる。 $\mathcal{V}$  は強磁性体の体積である。横スピン流の注入によって生じるスピン移行トルク  $\tau_{\text{stt}}^{(bias)}$  は次のように表される。

$$\tau_{\text{stt}}^{(bias)} = \left( \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} \right)_{\text{stt}} = -\frac{\gamma \hbar}{2e M_s \mathcal{V}} \{ G_\perp^{(R)} \mathbf{m} \times (\mathbf{m} \times \mathbf{V}_M^{(s)}) + G_\perp^{(I)} (\mathbf{m} \times \mathbf{V}_M^{(s)}) \} \quad (2.55)$$

これを LLG 方程式 (2.46) の右辺に付け加える。

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma \mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} + \tau_{\text{stt}}^{(bias)} \quad (2.56)$$

右辺第三項が、金属と強磁性体との間でのスピン流から生じる、強磁性体の磁化ダイナミクスへの変調である。ここで、式 (2.55) が磁化ダイナミクスにどのように寄与するかを示す。図 2.4(a) に、金属のスピン蓄積から生じるバイアススピン流の模式図を示す。 $\mathbf{V}_M^{(s)}$  が  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  と平行である場合を考えると、式 (2.55) の右辺第一項は LL 方程式 (2.47) の緩和項と同じ向きである。これは、実効的な緩和項がスピン移行トルクによって増大されることを意味する。一方、 $\mathbf{V}_M^{(s)}$  が  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  と反平行である場合には、このトルクは逆向きに作用し、十分に大きい場合には磁化反転を生じる。

### 2.2.2 スピンポンピング

ここまでの議論で、金属にスピン蓄積  $\mathbf{V}_M^s$  があるときに、強磁性体と金属の接合界面を通るスピン流  $\mathbf{I}_M^{(s,bias)}$  があることが導かれた。また、このスピン流のうち強磁性体の磁化と直交した成分 (横スピン流) から磁化へのスピン移行トルク  $\tau_{\text{stt}}^{(bias)}$  が生じ、磁化ダイナミクスを誘起することを示した。

この逆の過程として、磁化の運動によってスピン流が誘起される現象がスピンポンピングである。図 2.4(b) にこの過程の模式図を示す。先ほどは強磁性体と金属の接合系で、電位差と

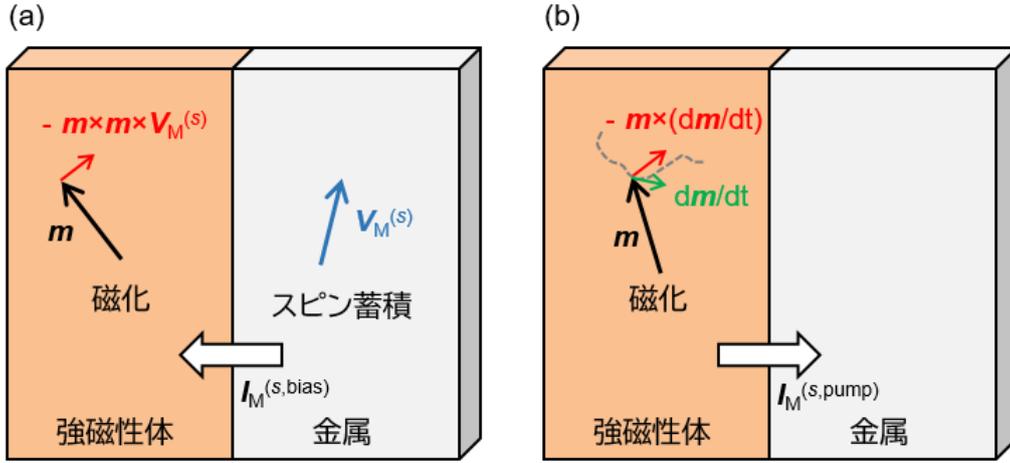


図 2.4: 強磁性体/金属接合でのスピン輸送現象. (a) 金属にスピン蓄積  $V_M^{(s)}$  がある場合, その拡散からスピン流  $I_M^{(s,bias)}$  が生じる. 強磁性体に注入された  $I_M^{(s,bias)}$  の横成分から, 磁化へのスピン移行トルクが生じる. 式 (2.55) の右辺第一項は, 図中の赤矢印の向きのスピン移行トルクを生じる. (b) 磁化の大きさが保存されるような磁化ダイナミクスがある場合には, 磁化に直交した  $dm/dt$ ,  $m \times dm/dt$  の向きに偏極したスピン流が生じる. この過程をスピンプンピングとよぶ.

スピン蓄積がある場合を考えたが, ここでは, 同じく強磁性体と金属の接合系で, 強磁性体の磁化が時間変化している場合を考える. 強磁性共鳴のように, 空間的に一様で, 磁化の大きさ  $M_S$  が保存されるような磁化ダイナミクスを生じているとする ( $m \cdot (dm/dt) = 0$ ).  $m$  の向きの角運動量が全体で保存されるためには,  $s$ - $d$  相互作用によって生成されるスピン流  $I_M^{(s,pump)}$  の偏極方向は, 磁化に対して直交している必要がある.

$$m \cdot I_M^{(s,pump)} = 0 \quad (2.57)$$

また, 断熱的に生成されるスピン流の大きさは  $|dm/dt|$  に比例する. そこで, 生成される横スピン流を, 磁化と直交した  $m \times \frac{dm}{dt}$  および  $\frac{dm}{dt}$  に偏極した成分の和として表現する.

$$I_M^{(s,pump)} = \frac{\hbar}{e} \left[ G_{\perp}^{(R)} \left( m \times \frac{dm}{dt} \right) + G_{\perp}^{(I)} \frac{dm}{dt} \right] \quad (2.58)$$

$G_{\perp}^{(R)}$  と  $G_{\perp}^{(I)}$  はスピンプンピング過程での横界面コンダクタンスであるが, Onsager の相反定理に基づくと, 逆過程で現れた  $G_{\perp}^{(R)}$ ,  $G_{\perp}^{(I)}$  とそれぞれ等価である. 逆過程での  $\tau_{stt}^{(bias)}$  と同様に, スピンプンピングにおいても, 角運動量保存のために生じるトルク  $\tau_{stt}^{(pump)}$  が LLG 方程式に組み込まれる.

$$\tau_{stt}^{(pump)} = \left( \frac{\partial m}{\partial t} \right)_{stt} = \frac{\gamma \hbar^2}{2e^2 M_S \mathcal{V}} \left[ G_{\perp}^{(R)} \left( m \times \frac{dm}{dt} \right) + G_{\perp}^{(I)} \frac{dm}{dt} \right] \quad (2.59)$$

このトルクを LLG 方程式 (2.46) に加えた場合,  $G_{\perp}^{(R)}$  で特徴づけられる右辺第 1 項は, 緩和

項の増大に寄与する。ダンピング係数の増分は次の式で書ける。

$$\alpha_{\text{stt}}^{(\text{pump})} = \frac{\gamma \hbar^2}{2e^2 M_S \mathcal{V}} G_{\perp}'^{(R)} \quad (2.60)$$

ここまで、強磁性体の磁化ダイナミクスの発振に伴って横スピン流が生成されるスピンポンピングが生じることを、磁化と電子との間で角運動量が保存されることから導いてきた。この現象は、Tserkovnyak らによって、強磁性体/非磁性体界面での輸送現象を電子散乱問題として微視的に取り扱うことでも導出されている [8, 46]。Tserkovnyak らの理論では、スピンポンピングで非磁性体に注入されるスピン流は以下の式で表される。

$$\mathbf{j}_s = \frac{\hbar}{2eS} \mathbf{I}_M^{(s,\text{pump})} = \frac{\hbar}{4\pi} \left[ \text{Re}(g^{\uparrow\downarrow}) \left( \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) + \text{Im}(g^{\uparrow\downarrow}) \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right] \quad (2.61)$$

ここで、 $\mathbf{j}_s$  は単位面積当たりのスピン流であり、 $S$  は接合の断面積である。 $g^{\uparrow\downarrow}$  はスピン流の面積あたりの界面コンダクタンスにかかわる係数であり、スピンミキシング伝導度とよばれる。 $g^{\uparrow\downarrow}$  の実部および虚部は、式 (2.58) で示した横界面コンダクタンス  $G_{\perp}'^{(R)}$ 、 $G_{\perp}'^{(I)}$  に対応している。

式 (2.61) について、歳差運動周期での時間積分をとることによってスピン流の直流成分が求められる。強磁性共鳴のように、磁化が有効磁場周りで円軌道あるいは楕円軌道に沿って定常的な歳差運動を生じている場合を考えると、右辺第二項は軌道の接ベクトル方向を向いており、積分値がゼロになる。このため、直流成分に寄与するのは右辺第一項だけである。

$$\mathbf{j}_{s,\text{dc}} = \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} \mathbf{j}_s dt = \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} \frac{\hbar}{4\pi} \text{Re}(g^{\uparrow\downarrow}) \left[ \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right] dt \quad (2.62)$$

有効磁場  $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  が、静磁場  $\mathbf{H}_0$  とそれに直交する交流磁場  $\mathbf{h}_{\text{rf}}$  からなる場合には、 $\left[ \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right]$  のうち  $\mathbf{H}_0$  に平行な成分のみが積分に寄与する。すなわち、スピン流の直流成分は  $\mathbf{H}_0$  の向きに偏極している。

また、スピンポンピングによるダンピング係数の増分は、式 (2.60) を  $g^{\uparrow\downarrow}$  で書き直すことで、強磁性体の膜厚を  $t_{\text{FM}}$  として次のように表される。

$$\alpha_{\text{stt}}^{(\text{pump})} = \frac{\gamma \hbar}{4\pi M_S t_{\text{FM}}} g^{\uparrow\downarrow} \quad (2.63)$$

実験においては、強磁性共鳴スペクトルの共鳴線幅を解析することで、スピンポンピングによるダンピング係数の増分を評価できる。

### 2.2.3 逆スピンホール効果の検出

前項では、強磁性体の磁化ダイナミクスの発振によってスピン流が生成されることを示した。Ando らの研究では、外部磁場を印加して薄膜強磁性体の強磁性共鳴を誘起した際に、隣接した金属に注入されるスピン流を導出している [47, 48]。薄膜試料では面直方向の磁化に

よって生じる反磁場のために、歳差運動の軌道がゆがみ、楕円形になることが導かれる。この項では、薄膜強磁性体での強磁性共鳴では楕円形の歳差運動が得られることを示した後で、歳差運動の軌道形状によって注入されるスピンの大きさが変調されることをみていく。

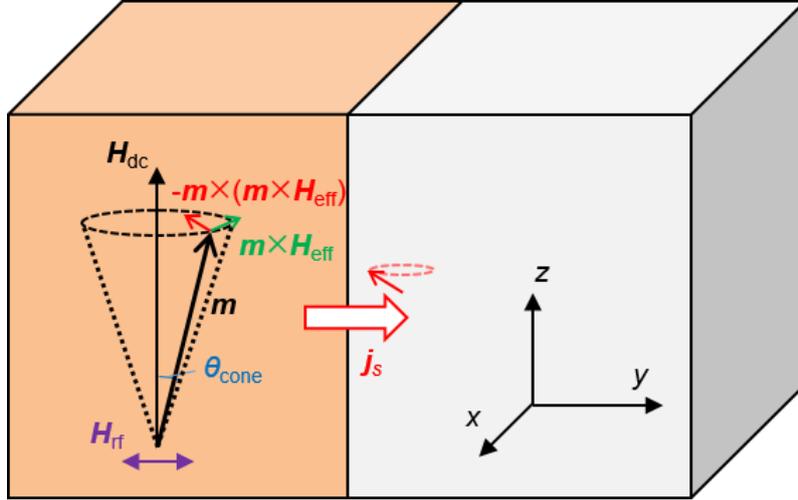


図 2.5: 強磁性共鳴から生じるスピン流.

図 2.5 に示すように、薄膜の面直方向を  $y$  軸に、面内の静磁場の方向を  $z$  軸にとる。 $x$  軸方向に交流磁場を印加すると、有効磁場は以下のように書ける。

$$\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{H}_{dc} + \mathbf{h}_{rf} + \mathbf{h}_m = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ H_0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} h_{rf}e^{i\omega t} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ -4\pi M_S m_y(t) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.64)$$

$$\mathbf{m}(t) = \begin{pmatrix} m_x(t) \\ m_y(t) \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_x e^{i\omega t} \\ m_y e^{i\omega t} \\ 1 \end{pmatrix} \quad (2.65)$$

式 (2.64) の右辺第一項は面内直流磁場、第二項は角周波数  $\omega$  の交流磁場、第三項は面直方向の磁化  $M_S m_y(t)$  によって生じる反磁場である。ここでは強磁性体の面内方向の長さは膜厚に対して十分大きいとして、面直方向の反磁場だけを考えている。交流磁場強度  $h$  は直流磁場強度  $H_0$  に比べ十分小さいとする。このとき、直流磁場まわりでの磁化の歳差運動が誘起されるが、時間変化する磁化を式 (2.65) で書いておく。歳差運動による平衡状態からの変分は十分小さく、 $z$  方向の磁化の時間変化は無視できるとした。

これらを LLG 方程式 (2.46) に代入すると、次式が得られる。

$$\begin{pmatrix} i\omega & \gamma H_0 + 4\pi\gamma M_S + i\omega\alpha \\ -\gamma H_0 - i\omega\alpha & i\omega \end{pmatrix} \begin{pmatrix} m_x(t) \\ m_y(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ -\gamma h_{rf} e^{i\omega t} \end{pmatrix} \quad (2.66)$$

左辺の  $2 \times 2$  行列の逆行列をとることで、以下のように  $m_x(t)$ 、 $m_y(t)$  について解ける。

$$m_x(t) = \frac{(\gamma H_0 + 4\pi M_S \gamma + i\omega\alpha)\gamma h_{\text{rf}} e^{i\omega t}}{-\omega^2 + (\gamma H_0 + i\omega\alpha)(\gamma H_0 + 4\pi M_S \gamma + i\omega\alpha)} \quad (2.67)$$

$$m_y(t) = \frac{-i\omega\gamma h_{\text{rf}} e^{i\omega t}}{-\omega^2 + (\gamma H_0 + i\omega\alpha)(\gamma H_0 + 4\pi M_S \gamma + i\omega\alpha)} \quad (2.68)$$

ここで、強磁性共鳴条件  $\omega^2 = \gamma^2 H_0 (H_0 + 4\pi M_S \gamma)$  の解を求めると、 $\alpha$  の高次項を無視し、 $H_0$  を消去して、式 (2.67)、(2.68) の実部をとることで次のように書き表せる。

$$m_x(t) = \frac{4\pi h_{\text{rf}} \gamma \left[ 2\alpha\omega \cos \omega t + \left( 4\pi M_S \gamma + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma^2 + 4\omega^2} \right) \sin \omega t \right]}{8\pi\alpha\omega \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma^2 + 4\omega^2}} \quad (2.69)$$

$$m_y(t) = -\frac{4\pi h_{\text{rf}} \gamma \cos \omega t}{4\pi\alpha \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma^2 + 4\omega^2}} \quad (2.70)$$

式 (2.69) および (2.70) を式 (2.62) に代入することで、注入されたスピン流の直流成分の大きさが以下のように求まる。なお、スピンミキシング伝導度の実部を、実効的な値  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  で置き換えた。

$$j_{s,\text{dc}}^{0,\text{eff}} = \frac{g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \gamma^2 h_{\text{rf}}^2 \hbar \left[ 4\pi M_S \gamma + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma^2 + 4\omega^2} \right]}{8\pi\alpha^2 \left[ (4\pi M_S)^2 \gamma^2 + 4\omega^2 \right]} = \frac{g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \gamma^2 h_{\text{rf}}^2 \hbar P}{16\pi\omega\alpha^2} \quad (2.71)$$

$$P = \frac{2\omega \left[ 4\pi M_S \gamma + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma^2 + 4\omega^2} \right]}{(4\pi M_S)^2 \gamma^2 + 4\omega^2} \quad (2.72)$$

反磁場の影響で磁化は面直方向に立ちにくくなっているため、 $m_x(t)$  と  $m_y(t)$  の大きさは異なっている。すなわち、磁化の歳差運動の軌道は円からゆがみ、楕円軌道をとる。歳差運動軌道の楕円補正係数  $P$  を式 (2.72) に従って定義した。

ここまで、薄膜試料での具体的な  $\mathbf{m}(t)$  を求めることで、スピンポンピングによって注入されたスピン流の直流成分を計算した。この表式の直観的な理解を得るため、磁化の歳差運動軌道が円形であった場合のスピン流の直流成分  $j_{s,\text{dc}}^{0,\text{circ}}$  を考えてみる。

空間的に一様な磁化ダイナミクスが誘起されており、磁化と静磁場のなす角を  $\theta_{\text{cone}}$  とおく。 $\mathbf{m}$  は単位長さのベクトルであるので、歳差運動する磁化の軌道の半径は  $\sin \theta_{\text{cone}}$  である。一周分の軌道長は  $2\pi \sin \theta_{\text{cone}}$  となる。この軌道長は、磁化の時間微分の大きさを一周積分した値に等しい。また、 $\mathbf{m}$  と  $\frac{d\mathbf{m}}{dt}$  は直交していることから、

$$\left| \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right| = \left| \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right| = \frac{2\pi \sin \theta_{\text{cone}}}{2\pi/\omega} = \omega \sin \theta_{\text{cone}}$$

となる。ここで、 $\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt}$  は常に静磁場方向と角度  $(\pi - \theta_{\text{cone}})$  をなす。静磁場が面内方向にあり、その向きを  $z$  軸にとると、 $z$  方向の射影成分は  $\left| \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right|_z = \left| \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right| \sin \theta_{\text{cone}}$  である。

以上を踏まえると、磁化が円軌道を描いて歳差運動している場合に注入されるスピン流の直流成分は次のように書かれる。

$$j_{s,dc}^{0,circ} = \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} \frac{\hbar}{4\pi} g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \left| \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right|_z dt = \frac{\hbar\omega}{4\pi} g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \sin^2 \theta_{\text{cone}} \quad (2.73)$$

これを式(2.71)と比較すると、 $\theta_{\text{cone}} \ll 1$  であるとして、以下のようになる。

$$j_{s,dc}^{0,\text{eff}} \approx P j_{s,dc}^{0,circ} \quad (2.74)$$

$$\theta_{\text{cone}} = \frac{\gamma h_{\text{rf}}}{2\omega\alpha}, \quad \sin \theta_{\text{cone}} \approx \theta_{\text{cone}} \quad (2.75)$$

このように、楕円補正係数  $P$  は、歳差運動が円軌道であった場合からの補正項としてはたらくことが確かめられた。なお、 $P$  は図 2.6 に示すように、 $\omega = (\sqrt{3}/2)4\pi M_S \gamma$  で最大となる。

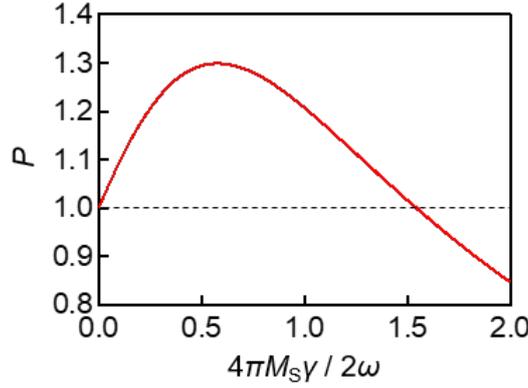


図 2.6: 式(2.72)で表される楕円補正係数  $P$ .  $\omega = (\sqrt{3}/2)4\pi M_S \gamma$  で最大値  $3\sqrt{3}/4 \approx 1.3$  を示す。

ここからは、金属薄膜内でのスピン流の伝播と、それに伴う逆スピンホール電流をみていく。 $j_{s,dc}^{0,\text{eff}}$  は  $z$  方向に偏極した、強磁性体との界面での直流スピン流密度である。スピン流は非保存流であり、膜厚方向に進行するにしたがって減衰していく。膜厚方向に  $y$  軸をとり、強磁性体/金属の界面の位置を  $y = 0$  とする。金属の膜厚を  $d$  とすると、定常状態での直流スピン流密度の  $y$  方向の分布は次の式で書ける。

$$j_{s,dc}^{\text{eff}}(y) = j_{s,dc}^{0,\text{eff}} \frac{\sinh((d-y)/\lambda_{sd})}{\sinh(d/\lambda_{sd})} \quad (2.76)$$

$\lambda_{sd}$  は金属のスピン拡散長である。界面 ( $y = 0$ ) から離れるにつれ、スピン拡散によって  $j_{s,dc}^{\text{eff}}(y)$  は減衰していく。

金属中で逆スピンホール効果が起こる場合には、面内の  $x$  方向に逆スピンホール電流密度  $j_c^{\text{ISH}}(y)$  が生じる。 $x$  方向に端子を取りつけ、電圧信号としてこれを検出することを考える。検出端子方向に開いた回路であるので、全電流密度を  $j_{\text{tot}}(y)$  が以下の式を満たすように電場  $E$  が生じる。

$$\int_0^y \mathbf{j}_{\text{tot}}(y) dy = 0, \quad \mathbf{j}_{\text{tot}}(y) = \mathbf{j}_c^{\text{ISH}}(y) + \sigma_{xx} \mathbf{E} \quad (2.77)$$

$\rho_{xx}$  は金属の縦抵抗率である。逆スピンホール電流密度の大きさは、スピン流-電流間の変換効率であるスピンホール角  $\theta_{\text{SH}}$  を使って  $\mathbf{j}_c^{\text{ISH}}(y) = (2e/\hbar)\theta_{\text{SH}}\mathbf{j}_{s,\text{dc}}^{\text{eff}}(y)$  と書ける。 $y$  方向の積分から、検出電圧は次のように求まる。

$$V'_{\text{ISH}} = -\frac{\theta_{\text{SH}}g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}eLP\lambda_{\text{sd}}\omega}{2\pi\sigma_{xx}d} \sin^2 \theta_{\text{cone}} \tanh\left(\frac{d}{2\lambda_{\text{sd}}}\right) \quad (2.78)$$

ここで、 $L$  は検出端子間の距離である。

なお、式(2.77)では、金属層のみに電流が生じることを仮定して式(2.78)を導いている。スピン注入源として強磁性金属を用いた場合には、強磁性金属にも面内電流が流れることを考慮する必要がある。複数の伝導層からなる多層膜試料であるとして、 $n$  番目の伝導層の縦伝導度を  $\sigma_{n,xx}$ 、膜厚を  $d_n$  と置くと、式(2.78)の  $\sigma_{xx}d$  を  $\sum_n \sigma_{n,xx}d_n$  に置き換えることで、実際に検出される電圧が求まる。

$$V_{\text{ISH}} = -\frac{\theta_{\text{SH}}g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}eLP\lambda_{\text{sd}}\omega}{2\pi \sum_n \sigma_{n,xx}d_n} \sin^2 \theta_{\text{cone}} \tanh\left(\frac{d}{2\lambda_{\text{sd}}}\right) \quad (2.79)$$

### 2.2.4 スピン注入効率とスピン揺らぎ

Ohnuma らは、強磁性共鳴から誘起されるスピンポンピングの線形応答を定式化した [34]。これによれば、スピンポンピングで注入されるスピン流の大きさは、金属の遍歴電子スピンの交流磁化率に比例する。交流磁化率が増幅される強磁性-常磁性相転移点付近では、スピン注入効率が大きくなることが指摘された。ここでは Ohnuma らの理論を簡潔に説明してから、実験で報告されている結果についても触れる。

強磁性体/金属の接合系に、 $z$  方向の直流磁場  $H_0$  と、それに直交する交流磁場  $\mathbf{h}_{\text{rf}}(t) = h_{\text{rf}}e^{i\Omega_{\text{rf}}t}$  を印加することを考える。このとき、全系のハミルトニアン  $\mathcal{H}$  は、金属の伝導電子 ( $\mathcal{H}_{\text{M}}$ )、強磁性体 ( $\mathcal{H}_{\text{FM}}$ )、界面での  $s$ - $d$  相互作用 ( $\mathcal{H}_{\text{sd}}$ ) のハミルトニアンの和として以下のように書ける。

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{M}} + \mathcal{H}_{\text{FM}} + \mathcal{H}_{\text{sd}} \quad (2.80)$$

$$\mathcal{H}_{\text{M}} = \sum_{\mathbf{p}} \epsilon_{\mathbf{p}} c_{\mathbf{p}}^{\dagger} c_{\mathbf{p}} + U \sum_{i \in \text{M}} n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} + \sum_{\mathbf{p}, \mathbf{p}'} c_{\mathbf{p}}^{\dagger} V_{\mathbf{p}-\mathbf{p}'} [1 + i\eta_{\text{so}} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} \times \mathbf{p}')] c_{\mathbf{p}} \quad (2.81)$$

$$\mathcal{H}_{\text{FM}} = -J_{\text{ex}} \sum_{(i,j) \in \text{FM}} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \gamma \hbar \sum_{i \in \text{FM}} H_0 S_i^z + \gamma \hbar \mathbf{h}_{\text{rf}} \cdot \left( \sum_{i \in \text{FM}} \mathbf{S}_i \right) \quad (2.82)$$

$$\mathcal{H}_{\text{sd}} = J_{\text{sd}} \sum_{i \in \text{interface}} \mathbf{s}_i \cdot \mathbf{S}_i \quad (2.83)$$

式(2.81)について、右辺第一項は伝導電子の運動エネルギー、第二項はクーロンエネルギー、第三項は不純物散乱にそれぞれ対応している。 $\epsilon_{\mathbf{p}}$  は運動量  $\mathbf{p}$  の電子の運動エネルギー、

$c_p^\dagger(c_p)$  は電子の生成 (消滅) 演算子、 $U$  はクーロン斥力ポテンシャル、 $n_{i,\sigma}$  は電子の密度演算子、 $V_{p-p'}$  はフーリエ変換された不純物ポテンシャルをそれぞれ表す。 $\eta_{so}$  は 2.1.1 項で示すスピン軌道相互作用定数である。式 (2.82) は、右辺第一項の隣接原子間の交換相互作用と、第二項、第三項の、外部磁場による Zeeman ポテンシャルを含む。 $J_{ex}$  は交換相互作用定数、 $\mathbf{S}_i$  はサイト  $i$  での局所スピンである。式 (2.83) は、強磁性体の磁化と金属の伝導電子のスピンとの間ではたらく  $s$ - $d$  相互作用を表す。 $J_{sd}$  は  $s$ - $d$  相互作用定数であり、 $\mathbf{s}_i = c_i^\dagger \boldsymbol{\sigma} c_i$  は伝導電子のスピン密度演算子である。

$H_0$ 、 $\mathbf{h}_{rf}$  が強磁性共鳴条件を満たしている場合には、交流磁場および界面での  $s$ - $d$  相互作用を摂動として扱うことで、スピンポンピングにより生じるスピン流の直流成分は次のように書かれる。

$$I_{s,dc}^{\text{pump}} = \sum_{i \in \text{FM}} \langle \partial S_i^z / \partial t \rangle = g_s \frac{\Omega_{rf} (\gamma h_{rf})^2}{(\Omega_{rf} - \gamma H_0)^2 + (\alpha \Omega_{rf})^2} \quad (2.84)$$

$$g_s = \frac{2J_{sd}^2 S_0^2 N_{\text{int}}}{\hbar^2 N_{\text{FM}}} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\Omega_{rf}} \text{Im} \chi_{\mathbf{k}}(\Omega_{rf}) \quad (2.85)$$

直流スピン流の大きさは、強磁性体の磁化の偏極方向成分の時間変化として定義してある。 $\alpha$  は Gilbert ダンピング係数、 $S_0 = |\mathbf{S}_i|$ 、 $N_{\text{int}} = \sum_{i \in \text{interface}} 1$  は界面のサイト数、 $N_{\text{FM}} = \sum_{i \in \text{FM}} 1$  は強磁性体中のスピンのサイト数である。 $g_s$  は界面スピン伝導度とよばれ、これは式 (2.73) と見比べるとわかるように、有効スピンミキシング伝導度  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  と関連づけられる量である。また、 $\chi_{\mathbf{k}}(\Omega_{rf})$  は、波数  $\mathbf{k}$  である金属の伝導電子の角周波数  $\Omega_{rf}$  での交流スピン磁化率である。

式 (2.85) から、 $g_s$  および  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  は、波数空間での交流スピン磁化率の和に比例する。このことは、直観的には次のように理解できる。式 (2.83) に示した  $s$ - $d$  相互作用のハミルトニアンから、強磁性体の磁化は金属の伝導電子スピンにとって有効磁場のように作用することが分かる。ここで、強磁性共鳴条件下では強磁性体の磁化は角周波数  $\Omega_{rf}$  にしたがって時間変化している。この角周波数での交流スピン磁化率の大きさは、伝導電子スピンが磁化の温度変化にどの程度追従できるかを表す。このため、 $\sum_{\mathbf{k}} \text{Im} \chi_{\mathbf{k}}(\Omega_{rf})$  が大きいほど、 $s$ - $d$  相互作用を介した磁化から伝導電子へのスピン角運動量の受け渡しが起こりやすいことになり、結果として金属に注入されるスピン流が大きくなる。

ここで、強磁性-常磁性相転移を示す金属では、高温側から温度を下げていくと、キュリー温度付近で  $\chi_{\mathbf{k}}(\omega)$  は増大する。このため、キュリー温度付近にある金属に対してスピンポンピングによるスピン注入を行えば、注入されるスピン流が増大することが期待される。実際、この効果はいくつかの強磁性体および反強磁性体で報告されている。

強磁性金属である  $\text{Fe}_{25}\text{Pt}_{75}$  合金薄膜では、強磁性薄膜  $\text{FeCoB}$  との多層膜での  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  が、 $\text{Fe}_{25}\text{Pt}_{75}$  のキュリー温度でおよそ三倍に増幅されることが報告されている [37]。また、反強磁性金属の  $\text{Ir}_{20}\text{Mn}_{80}$  合金では、強磁性  $\text{Ni-Fe}$  合金からのスピン注入において、ネール点付近で  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の増大が生じることが示された [38]。反強磁性-常磁性相転移点においても、キュリー点と同様に、

スピン揺らぎを反映して交流スピン磁化率が増加されていると考えられている。

## 2.3 Fe-Rh 合金系の反強磁性-強磁性相転移

本論文では、低温側で反強磁性状態、高温側で強磁性状態を発現する Fe-Rh 合金系を対象として、その磁気相転移点でのスピン輸送特性を議論する。Fe-Rh 合金系は、1938 年に Falloot らによって反強磁性-強磁性相転移が発現することが報告されて以降 [49]、相転移の起源に関する基礎物理的な興味や、相転移に伴う物性変化を利用したデバイスとしての応用が期待されることから、多くの研究がなされてきた。この節では、この物質の磁性をはじめとした諸物性について概説する。

### 2.3.1 反強磁性相、強磁性相の結晶構造およびスピン構造

図 2.7 に、反強磁性相および強磁性相の結晶構造とスピン配列を示している。バルクの FeRh 合金では、反強磁性相、強磁性相ともに CsCl 型の立方晶系の結晶構造を示す。それぞれの磁性相での結晶構造は同一であるが、強磁性相では反強磁性相と比較して 1% ほど体積が大きくなる [50]。いずれの磁性相も、単位格子の体心のサイトが Rh サイトで、その周りに配位する 8 つの頂点が Fe サイトであるような、B2 構造の規則合金である。反強磁性-強磁性相転移が発現するためには、次の式で定義される原子配列の規則化度  $S$  が 1 に近い必要がある。

$$S = r(\text{Fe}) + r(\text{Rh}) - 1 \quad (2.86)$$

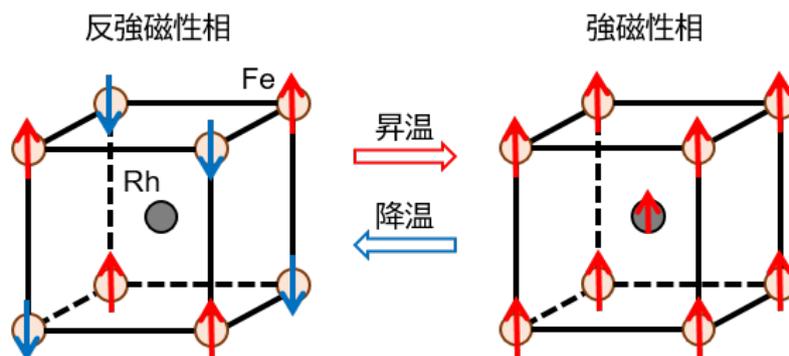


図 2.7: FeRh 規則合金の、反強磁性相（低温側）と強磁性相（高温側）の結晶構造およびスピン配列。

ここで、Fe サイトのうち Fe 原子が占める割合を  $r(\text{Fe})$ 、Rh サイトのうち Rh 原子が占める割合を  $r(\text{Rh})$  としている。 $S$  は X 線回折パターンの測定などから決定できる [51]。原子位置が完全に規則化した系では  $S = 1$  であり、反対にランダムに原子が配置されていれば  $S = 0$  となる。規則化した Fe-Rh 合金系の相転移温度は、Fe と Rh の組成比に強く影響される。図 2.8

に Fe-Rh 合金系の相図を示しているが、Fe の組成比が 46% から 52% の間になれば、反強磁性状態が安定化されず、相転移が発現しない [52]。規則化度の低い試料では局所的な組成比がばらつくために、試料全体として明確な相転移が生じにくくなると考えられている。

各相でのスピン配列と磁気モーメントの大きさは、中性子散乱実験およびメスバウアー分光測定から明らかにされている [53, 54]。反強磁性相では Rh サイトは磁気モーメントをもたない。Fe サイトは  $3.2 \mu_B$  の磁気モーメントをもち、図 2.7 に示すように、最近接サイト間で反平行になるような G 型の共線のスピン配列を形成する。一方で強磁性相では、Rh サイト、Fe サイトがそれぞれ  $0.9 \mu_B$ 、 $3.0 \mu_B$  の磁気モーメントを、全て平行な向きにもつ。

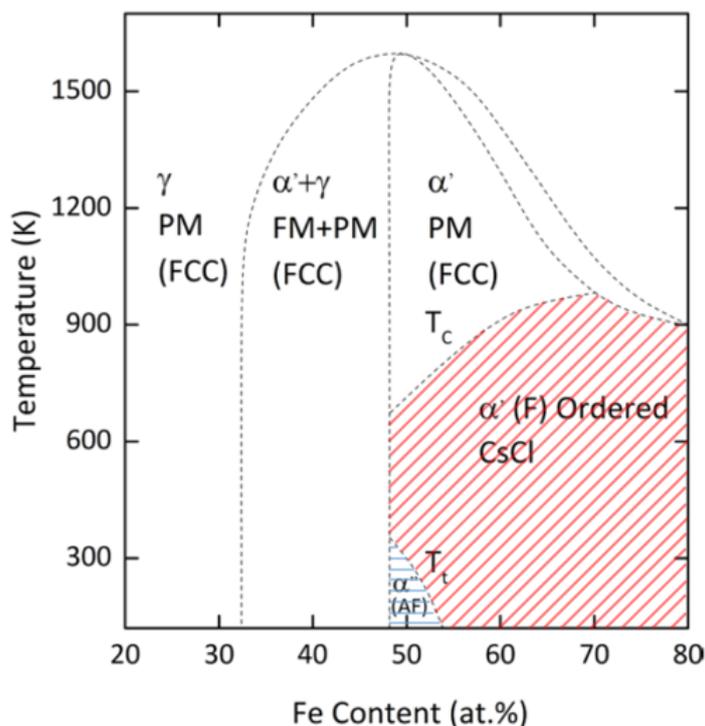


図 2.8: Fe-Rh 合金の相図. 横軸には Fe の組成比を, 縦軸には温度をとっている [52, 55]. 反強磁性相, 強磁性相が発現する領域をそれぞれ青線, 赤線で示している.

### 2.3.2 反強磁性-強磁性相転移の発現機構に関する議論

Fe-Rh 合金系の反強磁性-強磁性相転移が何を起源として生じているのかという問題は、この相転移が初めて報告されて以降議論が続いており、実験、理論計算の両面から盛んに検証が行われてきた。初期に提案されたのは Kittel の交換反転モデルの適用である [56]。Kittel のモデルでは、熱膨張によって原子間距離が変わることで、最近接の Fe-Fe 間の交換相互作用の符号が反転し、磁気秩序が温度によって変化すると考えられた。しかしながら、比熱測定から得られたエントロピー変化量が格子長の変化から期待される値よりはるかに大きいこ

と [57, 58, 59]、フェムト秒レーザーを使ったポンプ-プローブ分光測定によって、格子の変調は磁気秩序の変化に伴って起こると確認されたこと [60] から、格子長の変化が磁気相転移の起源である可能性は現在では否定されている。

近年では、電子構造を起源とする提案がいくつかなされている。既に述べたように、Rh の磁気モーメントは強磁性相では  $0.9 \mu_B$  であるが、反強磁性相では消失する。Gruner らは、反強磁性状態と強磁性状態の安定性の競合に、Rh の磁気モーメントの大きさが強く影響している可能性を示した [61]。最近接の Fe-Fe サイト間には反強磁性的な交換結合がある一方で、第二近接の Fe-Fe 間には、隣接した Rh の磁気モーメントを介した強磁性的な交換結合が生じうると考えられている。光照射による相転移誘起の実験も、このような Rh を介した強磁性的な交換結合が存在することを支持している [60]。昇温過程では、Rh の磁気モーメントの不安定化によって強磁性的な結合が強められ、強磁性秩序の形成が促されていると考えられている。これを踏まえて、Rh に近接した 4 つの Fe スピンが含まれる高次の交換相互作用項をスピンハミルトニアンに組み込むことで、最近接および第二近接 Fe-Fe 結合との競合から、温度掃引に伴う反強磁性-強磁性相転移が再現できることが示されている [62, 63]。

### 2.3.3 微小化した系での磁気相転移

#### 薄膜

2.3.1 節で述べたように、FeRh 合金の磁気相転移の発現には、原子配列が規則化した B2 型の結晶構造を有することが必要である。このため、相転移を生じる結晶性の高い薄膜試料を作製する場合には、FeRh 合金と格子マッチングの良い基板を選択することが重要である。バルク試料では反強磁性相、強磁性相とも立方晶であるが、薄膜試料の場合は、基板試料によって面内方向の格子長が制限されるため、 $c$  軸が面直となる配向をとっている場合を例にとれば、 $a = b \neq c$  であるような正方晶になりうる。MgO(001) 単結晶基板上に製膜された FeRh 合金薄膜では、反強磁性相から強磁性相への転移で  $c$  軸長のみが伸長すると考えられている [64, 65]。

薄膜試料で生じる FeRh 合金の格子への制限は、相転移温度にも影響する。理論研究では、格子欠陥や原子配列の乱れ [66]、格子長 [67]、界面での対称性の破れ [68] などによって磁性相の安定性が変わり、相転移温度が変調されることが指摘されている。実際に、偏極中性子反射率測定から、MgO 単結晶基板との界面付近に強磁性相が安定化された領域があることが示された [69]。また、基板界面だけでなく、キャップ層との界面でも強磁性領域が生じうることが指摘されている [69, 70, 71]。

#### その他の微小構造

薄膜/基板界面、あるいは薄膜/キャップ層界面の磁気状態への影響は、膜厚を小さくすることでより顕著に現れる。膜厚が 10 nm 以下の薄膜や、基板上に島状構造を形成した試料では、強磁性状態が安定化され、降温過程でのみ自然な相転移が生じる傾向があることが指摘されている [72, 73, 74]。近年では、面内方向に試料サイズを制限した場合にも、降温過程での相

転移の抑制が生じることが報告されている [75]。こうした昇温、降温過程での非対称性の発現には、新規磁性相が発生、成長する過程が重要な役割を担っていると考えられる。FeRh 薄膜での磁区観察実験から、反強磁性状態と比較して強磁性状態の方が、より長距離での相互作用をもつことがわかっている [76]。昇温時には、基板界面などで低温まで残留している強磁性領域の影響もあって、強磁性相の形成は抑制されにくい。一方で、降温過程では、強い相関をもつ一様な強磁性状態の中に反強磁性ドメインが形成されにくくなり、結果として降温過程でのみ相転移が抑制される傾向が現れると考えられている [74, 75]。

### 2.3.4 反強磁性-強磁性相転移点の変調

等原子比 FeRh 合金の相転移温度はおよそ 370 K である。ここまでに、Fe-Rh 間の組成比の変調や、試料形状の制限によって、相転移温度を変えられることを述べてきた。これらのほかにも、外場の操作や少量の元素添加によっても相転移温度を制御できることが知られている。

#### 磁場による変調

磁場を印加した場合には、高温相である強磁性状態が相対的に安定化されるため、反強磁性-強磁性相転移温度は低下する。5 T 以下程度の磁場範囲では、磁場の印加と共に線形に相転移温度が変調されることが報告されており、MgO(001) 単結晶基板上の FeRh 薄膜では -8 K/T で低下する [64]。磁場に対する相転移温度変化の大きさは、4.3.2 項にて詳しく議論するが、試料の磁化と、各磁性相のエントロピー差分との比で決まる。

#### 圧力による変調

相転移に伴う体積の変化があるために、圧力を印加することでも相転移点を変調される。バルク試料では一様な圧力を印加すると相転移温度は上がり [77]、引張応力を加えると下がる [78]。これらの傾向は強磁性相への転移に伴って体積が膨張することと整合する。一様な圧力をかけた場合には強磁性状態が不安定化して相転移温度が上がり、引張応力を加えた場合には反対に、格子が伸長し強磁性相が安定化して相転移温度が下がる。

#### 元素添加による変調

2.3.1 項にて既に言及したが、Fe-Rh 合金系の相転移温度は試料の化学組成に対して敏感に変調される。Fe<sub>x</sub>Rh<sub>1-x</sub> として、 $0.46 < x \leq 0.52$  の範囲でのみ反強磁性-強磁性相転移は発現し、 $x$  が大きいほど相転移温度は低くなる [52]。また、図 2.9 に示すように [79]、FeRh 合金に第三元素を少量添加した三元合金系でも相転移は生じうるが、その相転移温度は変調される。Barua らは、添加元素を M として Fe<sub>x</sub>Rh<sub>1-x</sub> 系、Fe(Rh<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub>) 系および (Fe<sub>1-x</sub>M<sub>x</sub>)Rh 系での報告から、合金の価電子帯の平均電子数によって相転移温度の変調の傾向が特徴づけられることを示した [79]。この結果は、Fe-Rh 合金系の反強磁性-強磁性相転移が、試料の電子状態に強く依存することを示唆している。また、置換前の原子と比較して原子半径の異なる添加元

素を用いることで、磁気体積効果から相転移温度が変調されうる。3d 遷移金属あるいは Pd を添加した場合には相転移温度は下がり、5d 遷移金属あるいは Ru を添加した場合には逆に相転移温度が上がる傾向がある。

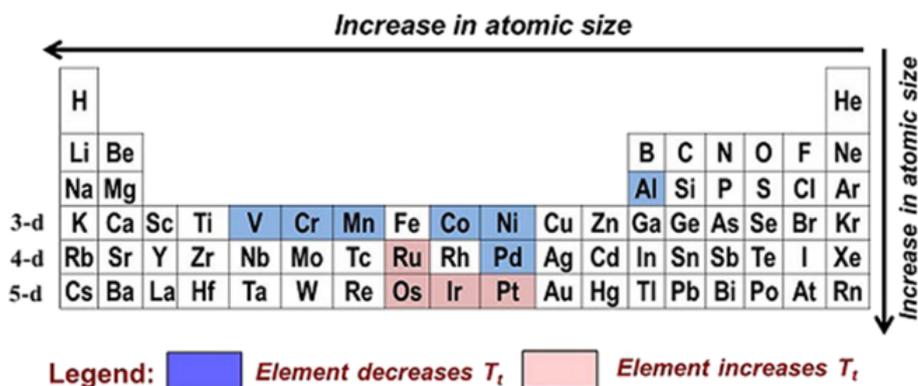


図 2.9: FeRh 合金に元素添加した三元合金系での相転移温度の変調 [79]. 添加によって反強磁性-強磁性相転移温度が下がる元素を青色で、上がる元素を赤色で示している。

### 2.3.5 電気伝導特性

第 4 章では、反強磁性-強磁性相転移を検出するため、電気伝導特性の評価を行なった。ここでは、Fe-Rh 合金系での電気抵抗率が相転移に伴ってどのように変調されるかを述べる。FeRh 合金の反強磁性相と強磁性相は、いずれも昇温に伴って電気抵抗率が增大する金属導体的な温度依存性を示すが、相転移温度付近では反強磁性状態での抵抗率が強磁性状態のそれと比較して 2 倍程度大きい [80]。等原子比 FeRh 合金のみならず、添加元素を含んだ三元系でも、またバルク試料と薄膜試料のいずれにおいても同様に、反強磁性相は強磁性相と比較して高い抵抗率をもつ。強磁性状態と反強磁性状態とでフェルミ準位での状態密度が異なることや、磁気秩序の違いによる電子-マグノン散乱確率の差異が、電気抵抗率の変調に寄与していると考えられている [81]。また、各磁性相でのホール効果の測定から、反強磁性状態ではキャリア密度が著しく減少することが明らかになっている [82, 83]。

### 2.3.6 スピン輸送特性

前項では、FeRh 合金の磁気相転移に伴って電気抵抗率の巨大な変調が生じることを紹介した。2.1 節で述べたように、スピホール効果は物質の電気伝導特性および磁気特性と関連している。このため、電気抵抗率が大きく変調される反強磁性-強磁性相転移点では、スピンの輸送特性にも電子輸送あるいは磁気秩序の変化に由来する変調が生じることが期待される。しかしながら、この物質群でのスピ変換現象を実験によって明らかにした報告は未だない。最近になって、各磁性相のバンド分散からスピホール伝導度、異常ホール伝導度および異常

ネルンスト係数が計算されており、反強磁性相と強磁性相とで異なる符号の内因性スピンホール伝導度が得られている [84]。

FeRh 合金のスピン輸送特性に関連する研究として、スピン偏極電流の注入による相転移誘起が報告されている [85, 86]。Naito らと Suzuki らの実験では、強磁性体 Co 電極からスピン偏極電流を FeRh 合金細線に注入した場合に、反強磁性相から強磁性相への相転移が促進されることが示された。これは、スピン偏極した伝導電子と、反強磁性相の局所磁気モーメントとの間での  $s$ - $d$  相互作用によってスピン移行トルクが生じ、反強磁性秩序が不安定化したためであると考えられている。

また、FeRh と MgO の積層構造でのトンネル磁気抵抗効果が報告されている [87, 88, 89]。Chen らの実験では、反強磁性-強磁性相転移を示す  $\alpha'$ -FeRh と、常磁性体である  $\gamma$ -FeRh とを用いた  $\alpha'$ -FeRh/MgO/ $\gamma$ -FeRh の積層構造において、強磁性相と反強磁性相でのフェルミ面構造が異なることを起源として、 $\alpha'$ -FeRh の相転移に伴って抵抗値が変調されることを示した。

### 2.3.7 動的磁気特性

FeRh 合金の強磁性相では、相転移温度付近での強磁性共鳴測定が報告されている [90, 91]。反強磁性相への相転移に伴って強磁性分域の体積は小さくなるが、共鳴磁場から求められる飽和磁化の大きさは変わらず、共鳴吸収強度だけが小さくなることが示されている。これは、磁化が不連続に変化する一次相転移の特徴と一致する。一方で、強磁性共鳴線幅は相転移温度付近で増大する。反強磁性相と強磁性相が共存している状態では、励起状態が均一でないためにマグノン-マグノン散乱が起こりやすいことが、線幅の増大に寄与していると考えられている [90]。また、強磁性ドメインに隣接した反強磁性ドメインへのスピン移行によって磁気モーメントの緩和が増大することも考えられる。

## 第 3 章

# 実験方法

この章では、本論文で用いた薄膜試料および微細加工試料の作製手法と、各種の測定法について記述する。

### 3.1 薄膜試料作製

#### 3.1.1 スパッタリング法

スパッタリング法とは、電場によって加速させたイオンを薄膜材料(ターゲット)の表面に衝突させることでターゲット原子を空間中に放出し、これを基板試料上に堆積させる成膜手法である。イオンを加速させるための電圧のかけ方によって直流(DC)スパッタリングと高周波(RF)スパッタリングに大別でき、一般にはターゲットの導電性によってこれらを使い分ける。本論文では、Pd 添加 Fe-Rh 合金および Ni-Cu 合金の成膜に DC スパッタリングを、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  の成膜に RF スパッタリングを用いた。以下にこれらの原理を述べる。また、成膜に用いた装置の概略を図 3.1 に示す。

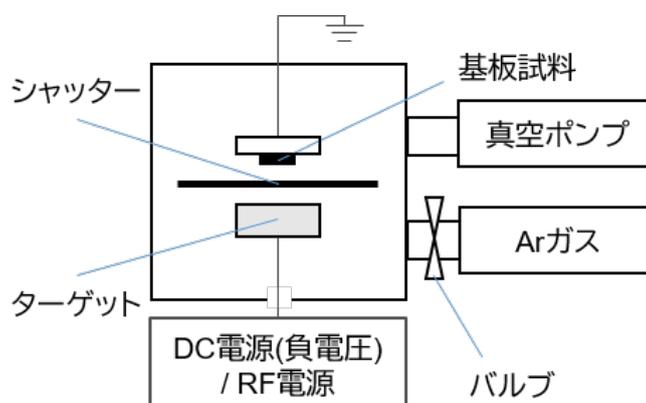


図 3.1: DC スパッタリング/RF スパッタリングに用いた装置の概略. 基板試料および真空容器チャンバーは接地されている.

まずは DC スパッタリングの動作原理について解説する。スパッタリングでは、 $10^{-1}$  Pa 程度の圧力下の気体中で 100 V 程度の電圧をかけると発生するグロー放電現象を利用する。放電発生に用いる気体として、原子量がある程度大きいためにスパッタリング効率が高く、ターゲットとの化合物を作りにくい不活性ガスである Ar を用いた。電極間では電子と Ar イオンが加速されており、このうち正電荷をもつ Ar イオンは陰極に衝突する。DC スパッタリングでは通常、基板試料および真空容器を接地させ、ターゲットが陰極となるように負の直流電圧を印加する。これによって Ar イオンがターゲット表面に照射され、イオンが十分に加速されていた場合には、ターゲット表面の原子が放出される。

スパッタリング効率を高める工夫として、以下に述べるマグネトロンスパッタと呼ばれる手法がある。印加電場と垂直な方向に磁場を生じるように、ターゲットの付近に永久磁石を配置する。これによって電極間を移動する電子が螺旋運動をするようになり、加速された電子の実効的な行程が長くなる。結果として電子が Ar ガスと衝突しやすくなり、Ar イオンが生成されやすくなることでスパッタリングの効率が高まる。以上に述べた DC マグネトロンスパッタリング法によって、Pd 添加 Fe-Rh 合金と Ni-Cu 合金の薄膜試料を作製した。成膜条件はそれぞれ 4.1 節および 6.1 節を参照されたい。

続いて、RF スパッタリングについて述べる。DC スパッタリングはターゲットが絶縁体である場合には一般に用いることができない。陰極に絶縁性のターゲットを用いると、正イオンの衝突と二次電子の放出によってターゲット表面が正に帯電してしまい、放電が持続できないためである。これを避けるため、RF スパッタリングではターゲットに交流電圧を印加する。絶縁性のターゲットは、印加電圧で加速された電子をトラップすることで負に数 V 程度帯電する自己バイアス効果を生じる。これにより、正に帯電した Ar イオンは負のバイアス電圧がかかっているターゲット表面に衝突し、対極の基板試料上に薄膜が堆積される。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 成膜時には、到達圧力  $1 \times 10^{-4}$  Pa、成膜時圧力  $2 \times 10^{-1}$  Pa、印加電力 200 W の条件で RF スパッタリングを行なった。

### 3.1.2 抵抗加熱蒸着法

抵抗加熱蒸着法では、高融点金属のポートに通電することで、ポートに乗せたターゲットをジュール熱を利用して加熱する。高温になったターゲットが蒸発することで、ターゲット上部に設置された基板の上にターゲット材料が堆積される。本論文では Cu 薄膜と Au/Cr 積層膜を抵抗加熱蒸着で作製した。

図 3.2 に、第 4 章で電極端子用の Cu の蒸着に用いた装置の概略を示す。この装置には、成膜前に試料表面の最表層を除去するための Ar イオンミリングシステムが組み込まれている。試料を Load Lock(LL) チャンバーに導入後、600 V、12 mA で 30 秒間 Ar イオンミリング処理を行ない、表面を清浄化した。その後、到達圧力が  $1 \times 10^{-9}$  Torr である Main チャンバーに導入し、堆積速度が  $2 \text{ \AA/s}$  程度になるように印加電流を調整しながら蒸着した。

また、電子線描画での位置合わせ用のマークとして Au/Cr を蒸着するのに用いた装置では、

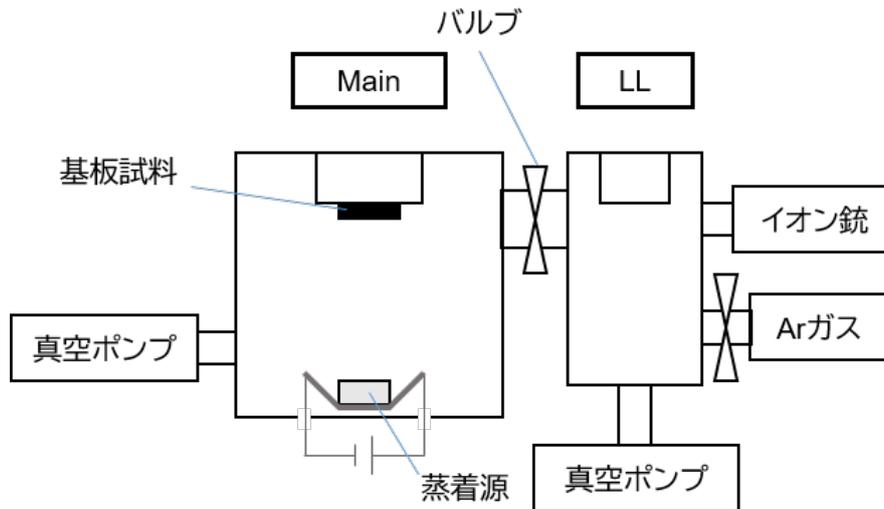


図 3.2: 抵抗加熱蒸着に用いた装置の概略.

複数のターゲットを連続して蒸着するため、スイッチを切り替えることで同一チャンバー内で Cr、Au を乗せたそれぞれのポートに電流を印加、加熱できるように設計されている。基板試料と Au との接着をよくするために Cr を少量蒸着した後、電流経路を Au 側に切り替えて、蒸着速度が  $2 \text{ \AA/s}$  程度になるよう電流量を調節しつつ Au を蒸着した。

なお、第 5 章および第 6 章で扱うスピンプンピング素子の多層膜構造は Cu 薄膜を含んでおり、これらの Cu 薄膜も抵抗加熱蒸着法で成膜している。成膜条件は、電子線加熱蒸着法で成膜した  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  合金薄膜と合わせて次項で記述する。

### 3.1.3 電子線加熱蒸着法

抵抗加熱蒸着法は、融点の高い材料や、ポートとして使う金属と反応しやすい材料を成膜するには不向きである。電子線加熱蒸着法では、電子銃から放出された電子をターゲットに照射し、これを加熱することで成膜する。負の高電圧 (数 kV) を印加したフィラメントに通電することで熱電子を放出させ、この電子の軌道を電場および磁場で制御し、るつぼ上に置かれたターゲットに導く。この手法では電子が照射されたターゲットのみが加熱されるため、るつぼとの合金化が起こりにくい。また、高エネルギーの電子を照射することで、融点の高い材料でも蒸着できる。電子線加熱蒸着に用いた装置の概略を図 3.3 に示す。実際の装置ではフィラメント位置をスライドすることで、最大で 3 つのターゲットを連続して成膜できるようになっている。本論文では、 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  合金薄膜と、スピンプンピング素子の導体として用いた Au/Ti を、電子線加熱蒸着で成膜した。

$\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  合金薄膜は、第 5 章および第 6 章でスピンプンピング素子の注入源として用いられている。これらの試料の作製時には、Ar イオンミリングによる試料表面の清浄化、抵抗加熱蒸着による Cu の成膜および電子線加熱蒸着による  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  合金の成膜を、真空内で連続して行なった。

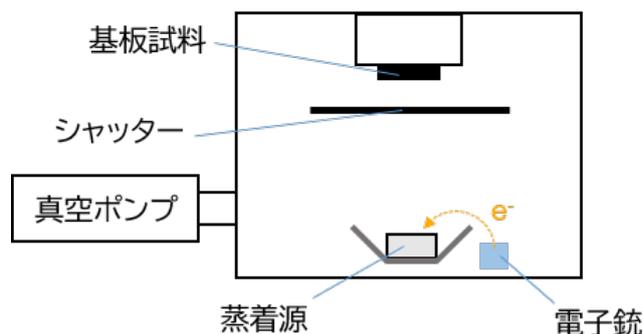


図 3.3: 電子線加熱蒸着に用いた装置の概略. 電子銃から放出された熱電子がターゲットを加熱する.

実験に用いたチャンバーは、図 3.2 の Main チャンバーに電子線加熱蒸着装置を組み込んだような構造である。以下にその工程を述べる。LL チャンバーに試料を導入後、600 V、12 mA、Ar フロー量 1.8 sccm、圧力  $3.0 \times 10^{-2}$  Pa の条件下で 1 分間イオンミリング処理を行ない、表面を清浄化した。真空環境下で試料を Main チャンバーにトランスファーしてから、Cu を抵抗加熱蒸着で成膜した。Main チャンバーの到達圧力は  $1 \times 10^{-9}$  Torr 程度であり、蒸着レートが  $0.5 \text{ \AA/s}$  程度になるよう電流量を調整した。その後、同一チャンバー内の電子線加熱蒸着装置を用いて、 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  合金を成膜した。印加電圧 4.6 kV で、 $0.4 \text{ \AA/s}$  程度のレートになるよう電流量を調節して蒸着した。なお、蒸着中は基板試料ホルダーに冷却水をフローすることで、試料の過昇温を防いでいる。

Au/Ti は、スピンポンピング素子の電極端子と導波路を構成している。これらの蒸着時には、到達圧力  $10^{-8}$  Torr 程度のチャンバー内で、印加電圧 3.9 kV として、Ti 蒸着時には  $0.2 \text{ \AA/s}$  程度のレート、Au 蒸着時には  $1 \text{ \AA/s}$  程度のレートになるよう電流量を調節して蒸着した。

## 3.2 微細構造素子作製

本論文では、ナノスケールあるいはマイクロスケールの加工を施した素子を用いて各種の測定を行なった。この節では、これらの微細構造素子の加工手法について述べる。

### 3.2.1 電子線リソグラフィ

リソグラフィとは石版印刷を意味する語であるが、基板試料上に微細構造パターンを形成する場合にもこの語を用いる。電子線や紫外光の照射によってパターンを描画する手法を、それぞれ電子線リソグラフィ、フォトリソグラフィという。電子線リソグラフィについてはこの項で、フォトリソグラフィについては次の項で詳述する。

電子線の照射によって溶解性が変化する液状のレジストを塗布した基板試料上で、10 nm 程度の径に絞った電子ビームを走査してナノスケールのパターンを描画し、現像処理を施すこと

で、基板試料の表面に微細構造を形成する手法が電子線リソグラフィである。本論文では、第4章の細線素子のパターンを作製するのに電子線リソグラフィを用いた。電子線描画にはエリオニクス社の ELS-7700 を用いた。描画パターンは AUTODESK 社の AutoCAD を使って作成した。

また、レジストには電子線を照射した領域が現像処理によって除去されるポジ型と、反対に照射していない領域が除去されるネガ型がある。素子作製の工程に応じて以下の3種類のレジストを使い分けた。小面積をレジストで覆うようなパターンが必要な工程には、ネガ型レジストの ma-N2405 を用いた。電極パッドのような大面積の描画が必要な場合には、感光時間が短いポジ型レジストの ZEP を、それ以外にはポジ型レジストの PMMA を用いた。以下にパターン形成までの手順を示す。

#### (1) 基板試料の洗浄

基板表面が清浄でないとレジストが均様に塗布できず、パターン形成の精度が落ちる。このため微細構造素子の基板試料の洗浄は非常に重要である。次の手順で行なうレジスト塗布の前に、基板試料をアセトンに浸して10分間程度超音波洗浄を行ない、表面に異物がないことを入念に確認した。

#### (2) レジストの塗布

基板試料上にレジストをスポイトで滴下してから、面内方向に試料を回転することで試料上に均様な厚みのレジストを塗布した。この手法はスピコートと呼ばれる。回転数および回転時間を調整することで、適切な厚みで塗布することができる。用いたレジストによって以下のようにスピコートの回転数および回転時間を変えた。

- ma-N2405: 回転数 5000 rpm、50 秒間
- PMMA: 回転数 3000 rpm、60 秒間
- ZEP: 回転数 4000 rpm、40 秒間

#### (3) プリベイク処理

レジストを基板試料上に定着させるため、大気中でホットプレートを使って基板ごとレジストを加熱した。電子線描画前に加熱処理することをプリベイクという。加熱処理の条件は以下のとおりである。

- ma-N2405: 90 °C、1 分間
- PMMA: 180 °C、5 分間
- ZEP: 180 °C、6 分間

#### (4) エスペーサーの塗布

試料表面の大部分が絶縁性である場合には、電子線照射時にチャージアップが生じ、正常にパターンが描画できないことがある。これを防ぐために、エスペーサーと呼ばれる導電性の液を表面に塗布する必要がある。エスペーサーには電子線をよく透過し、また電子線照射によって変性しにくい物質が用いられる。試料表面に絶縁体が露出している工程では、エスペーサー 300Z を 2000 rpm、50 秒間の条件でスピコートし塗布した。

このエスパーサーは水溶性であるため、電子線描画が終了したら、試料を純水に浸してエスパーサーを除去してからレジストの現像処理を始める。

#### (5) 電子線描画

エリオニクス社の ELS-7700 を用いて、 $10^{-5}$  Pa の真空雰囲気下で、電子線照射によるパターン描画を行なった。素子作製時にはリソグラフィを複数回繰り返す必要があるため、基板上に形成した Au/Cr マークで描画位置を校正した。また、用いるレジストによって感光時間が異なるため、ドーズ量は以下のように設定した。

- ma-N2405:  $2.2 \text{ C/m}^2$
- PMMA:  $8.6 \text{ C/m}^2$
- ZEP:  $2.2 \text{ C/m}^2$

#### (6) 現像処理

リソグラフィの最終工程である現像処理では、ポジ型レジストを用いた場合には電子線照射した部分を、ネガ型の場合には逆に照射していない部分を、現像液に溶解させ除去する。レジストに応じた現像処理条件を以下に示している。なお、エスパーサーを用いた場合には純水に試料を浸し、風乾してこれを除去してから現像処理を開始した。

- ma-N2405: 現像液 ma-D525 に 2 分間浸し、現像停止のため純水に浸してから風乾する。
- PMMA: MIBK(methyl isobutyl ketone):IPA(isopropyl alcohol) = 1:3 の混合液に 30 秒間浸し、現像停止のため IPA に浸してから風乾する。
- ZEP: 酢酸ペンチル (pentyl acetate) に 30 秒間浸してから、現像停止のため MIBK:IPA = 1:9 の混合液に 30 秒間浸し、次いで IPA に浸してから風乾する。

### 3.2.2 フォトリソグラフィ

紫外光を露光することでレジストを感光させるフォトリソグラフィは、電子線ビームを走査して描画する電子線リソグラフィと違い、描画パターンを反映したマスクの上から一様に光照射することで露光するので、短時間で大面積のパターンを形成したい場合に適している。一方で、照射光の波長より小さいスケールの描画は困難である。空間分解能は約  $1 \mu\text{m}$  であり、電子線描画に劣る。本論文では、第 5 章および第 6 章のスピンプンピング素子のパターンを形成するのにフォトリソグラフィを用いた。描画にはナノシステムソリューションズ社のマスクレス露光装置 D-light-DL1000RS を用いた。描画パターンは AutoCAD で作成した。以下にパターン形成までの手順を示す。なお、基板洗浄後から現像処理が完了するまでの工程は、レジストが感光するのを防ぐため、紫外光をカットしたイエロールーム内で行なった。

#### (1) 基板試料の洗浄

電子線リソグラフィと同様、清浄な基板表面にレジストを塗布することが重要である。基板試料をアセトンに浸して 10 分間程度超音波洗浄を行ない、基板表面に異物がない

ことを入念に確認した。

(2) プライマーおよびレジストの塗布とプリベイク処理

レジストを基板に定着しやすくする目的で、プライマー HMDS(hexamethyldisilazane)を回転数 5000 rpm、40 秒間のスピコートで塗布した。続けて、プライマーを定着させるため 80 °C のオーブンで 10 分間加熱処理した。試料を十分冷ました後、紫外光で感光するフォトリソレジスト AZ1500 を回転数 5000 rpm、40 秒間のスピコートで塗布した。続けて、これを定着させるため 80 °C のオーブンで 10 分間加熱処理した。

(3) 露光

上述したマスクレス露光装置を用いて、大気中で露光処理を行なった。電子線リソグラフィの際と同様、基板試料上に形成したマークを使って描画パターンの位置を校正した。ドーズ量は 110 mJ/cm<sup>2</sup> である。

(4) ポストベイクおよび現像処理

露光後は 115 °C のホットプレート上で 2 分間加熱してから現像処理を行なった。現像液に 1 分程度浸し、描画した領域のレジストが溶解したことを目視確認してから、現像停止のため純水に 1 分間程度浸し、風乾した。

### 3.2.3 リフトオフ法

ここまで、薄膜試料の成膜法とリソグラフィによるパターン形成法を述べた。これらを組み合わせることで、次章以降で扱う素子構造を作製できる。現像処理まで終えたリソグラフィ後の試料上に薄膜を堆積させ、最後に残留レジストごとその上に堆積された薄膜を除去する(リフトオフ工程)ことで、リソグラフィ完了時にレジストが除去されていた領域にのみ薄膜が堆積されるようなパターンが形成される。この手法をリフトオフ法という。図 3.4 にリフトオフ法の概要を示す。リフトオフ工程では、残留レジストが溶解するまで洗浄液に浸した後で試料を風乾する。レジストに PMMA、ma-N2405、AZ1500 を用いた場合はアセトン、ZEP を用いた場合は 1-メチル-2-ピロリドンで洗浄液として用いた。

### 3.2.4 Ar イオンミリングによる微細構造の形成

リフトオフ法の適用が困難なケースとして、薄膜試料の作製に高温での熱処理が必要な場合がある。加熱により残留レジストが変性してしまうと、リフトオフ工程で洗浄液に溶解しにくくなるためである。実際、本論文で扱う Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の成膜時には、基板温度を 600 °C にするため、リフトオフ法で素子構造を作りこむことが難しい。このため、Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜およびこれを含む多層膜は、図 3.5 に示すような工程でパターンを形成した。はじめに基板上に直接成膜してから、薄膜試料を残したい領域だけレジストで覆われるようにリソグラフィを施す。この状態で Ar イオンミリング処理し、レジストのない領域の試料を完全に削ってしまう。最終工程として洗浄液で残留レジストを洗い流すことで、レジストで覆っ

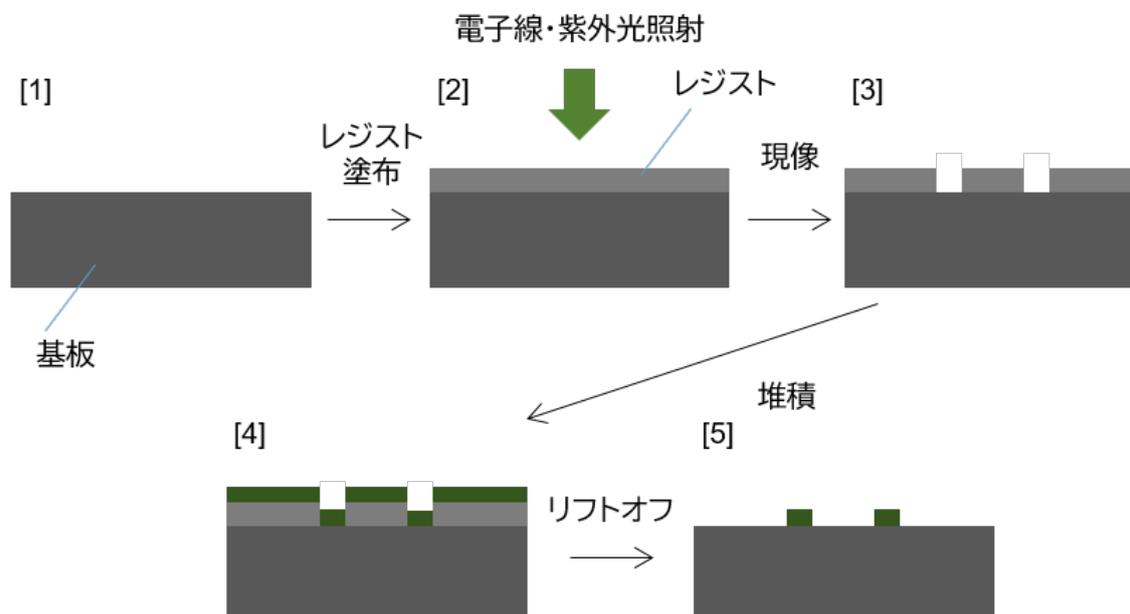


図 3.4: リフトオフ法の概要. (1)-(3):電子線リソグラフィあるいはフォトリソグラフィによって基板試料上にレジストのパターンを形成する. (4) パターンの上から薄膜を堆積させる. レジストが除去されている領域では基板上に直接薄膜が堆積される. (5) 洗浄液で残留したレジストを溶解させ除去する. リソグラフィ完了時にレジストが除かれていた領域にのみ薄膜が堆積されたパターンが形成される.

ていた領域には試料が残り、他の部分は基板が露出しているようなパターンが形成される。

### 3.3 測定手法

本論文で扱う各種の測定手法について述べる。

#### 3.3.1 X線回折測定

Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の結晶構造を評価する目的で、X線回折 (XRD: X-ray diffraction) パターンを測定した。回折ピークから格子面を同定し、面直方向および面内方向の結晶配向を決定した。結晶粒径等の詳細な解析はしておらず、また単純な結晶構造を有する試料を扱ったため、XRD パターン解析専用のソフトウェアは使用していない。X線装置として Rigaku 社の SmartLab を使用し、X線源には Cu K $\alpha$  線を用いた。測定時の試料配置等の詳細は第4章に示している。

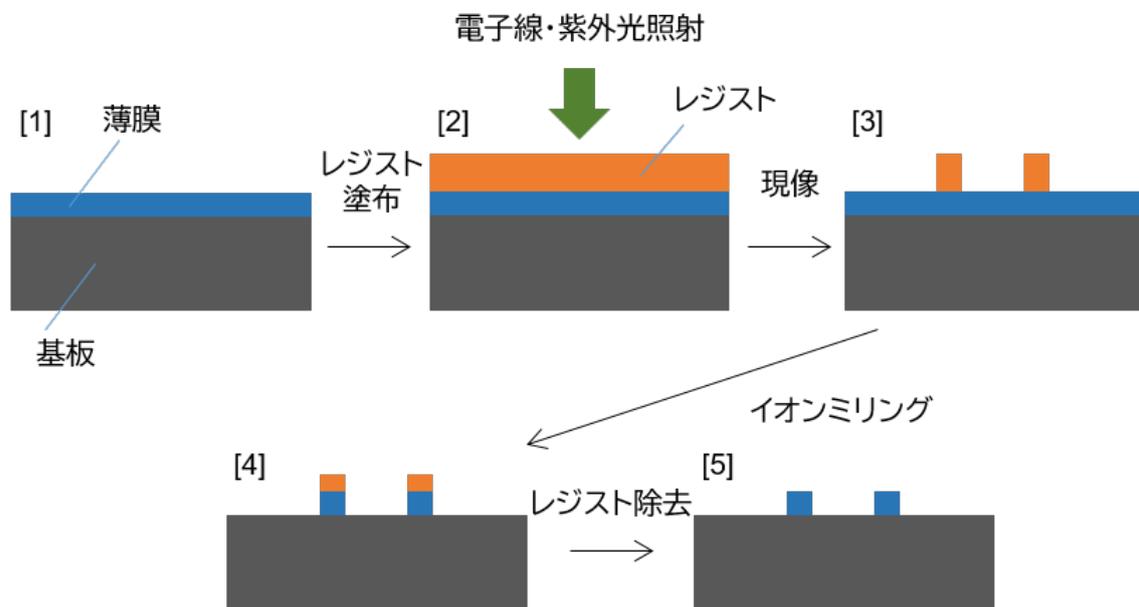


図 3.5: イオンミリングによるパターン形成法の概要. (1)-(3):パターン形成したい薄膜試料あるいは多層膜試料を基板上に成膜してから, 電子線リソグラフィあるいはフォトリソグラフィによってレジストのパターンを形成する. 残留レジストが無い領域では, はじめに成膜した試料が露出している. (4)Ar イオンミリングにより, 露出した試料を削りきる. (5)洗浄液で残留したレジストを溶解させ除去する. リソグラフィ完了時にレジストが残っていた領域にのみ薄膜が堆積されたパターンが形成される.

### 3.3.2 磁化測定

薄膜試料における磁気状態を調べるため、磁化測定を行なった。磁化測定には、超伝導量子干渉素子 (SQUID) 磁力計 (Quantum Design 社、MPMS) あるいは SQUID を用いた試料振動型磁力計 (SQUID-VSM、Quantum Design 社、MPMS3) を用いた。磁場掃引測定では、MgO 単結晶基板の反磁性が印加磁場に比例して生じるため、MgO のみを測定した結果を用いて、反磁性成分の差し引きを行なった。

### 3.3.3 電気抵抗測定

#### 細線素子作製手順

第4章で扱う細線試料の作製手順を図3.6に示す。この試料を作製する際には、全工程で電子線リソグラフィによるパターン形成を行なった。はじめに、4.1.1項にて成膜手順を述べるPd添加Fe-Rh合金薄膜上に、Au/Cr二層膜からなる描画位置を合わせるためのマークを、リフトオフ法で作製した。成膜は抵抗加熱蒸着法で行なった。マークの描画面積は小さいため、ポジ型レジストのPMMAを使ってリソグラフィを行なった。これらのマークを基準にして描画位置を精密に決定することで、後の工程で作製する細線素子とCu電極との相対位置のずれが防がれる。続いて、抵抗測定用の細線とAu/Crマークをレジストが覆うようにパターンを形成した。小面積のレジストを残す工程であるため、ネガ型のma-N2405をレジストとして用いた。この試料にArイオンミリング処理を施してから、残留レジストを除去する。これにより、基板であるMgOが露出し、細線素子とマークのみが基板上に残った試料が得られる。最終工程として、リフトオフ法でCu薄膜電極を細線試料と接続するように形成した。成膜は抵抗加熱蒸着法で行なった。抵抗測定時に導通をとりやすくするため、それぞれの端子は100  $\mu\text{m}$   $\times$  200  $\mu\text{m}$ のパッドに繋がられている。このため最終工程での電子線描画面積は大きく、リソグラフィでは短時間照射で機能するポジ型レジストZEPを用いた。

#### 測定手法

第4章で示す電気抵抗測定は、全てQuantum Design社のPPMSを用いて行なった。薄膜試料の測定では、試料面にAgペーストでAuワイヤを接続して電極端子とした。細線素子試料では、リフトオフ法で形成したCu電極パッドにAgペーストでAuワイヤを接続するか、超音波ボンディングによってAlワイヤを接続することで導通をとった。第5章では、PPMSによる測定と、後述するプローバシステム上での測定を併用した。PPMSでの測定時には、リフトオフ法で形成したAu電極に超音波ボンディングでAlワイヤを接続した。プローバ上で測定した際には、探針をAu電極上にタッチダウンして導通をとった。

なお、先行研究では、サイズの制限されたFeRh合金素子に高密度の電流を印加した場合に生じるジュール熱で、反強磁性相から強磁性相への相転移が誘起されることが示されている

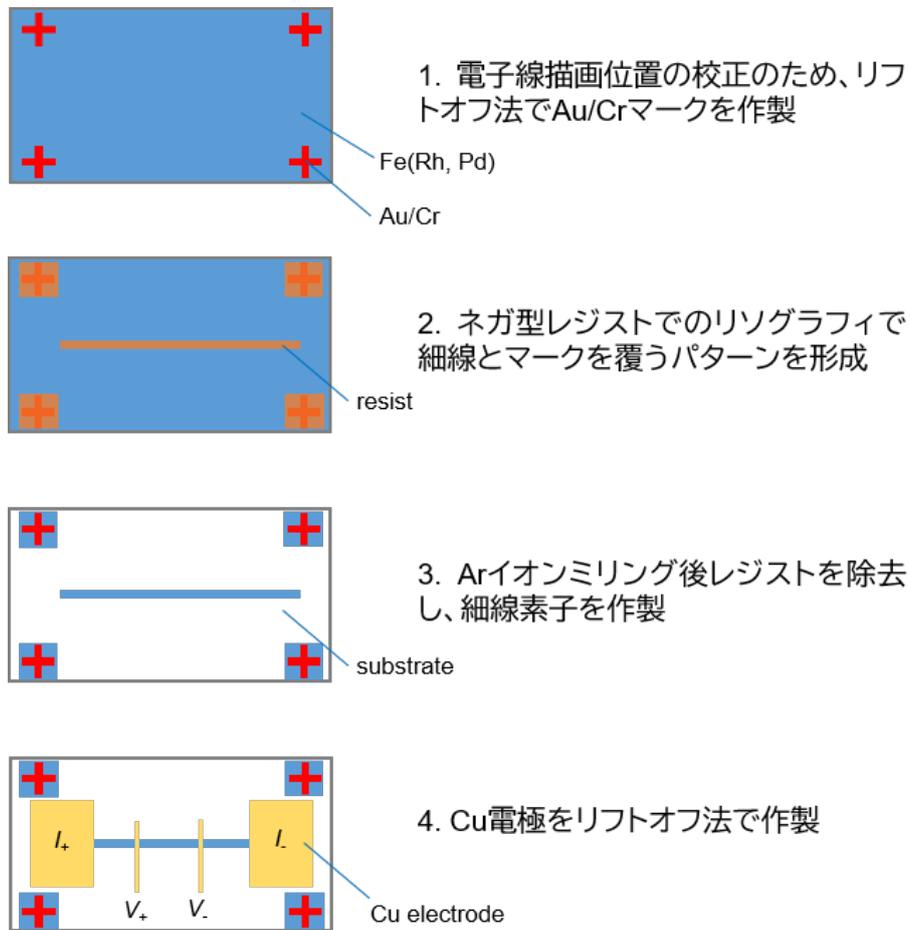


図 3.6: Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の電気抵抗測定用の細線素子試料の作製手順. 図示されているパターンは簡略化されており, サイズスケールは試料ごとに異なる.

る [85, 86, 92, 93]。断面積の小さい細線試料の抵抗測定を行なう際には、電流印加による相転移への影響を考慮しておく必要がある。

本研究で抵抗測定時に印加した電流量は最大で、薄膜試料では  $100 \mu\text{A}$ 、細線試料では  $0.5 \mu\text{A}$  であった。試料の断面積は、薄膜では  $6.0 \times 10^{-7} \text{cm}^2$ 、細線では最小で  $1.2 \times 10^{-10} \text{cm}^2$  であったので、その電流密度はそれぞれ  $1.7 \times 10^3 \text{A/cm}^2$ 、 $4.2 \times 10^3 \text{A/cm}^2$  以下である。一方で、先行研究で示された相転移誘起に必要な閾値電流密度は、これらより 4 桁大きい  $10^7 \text{A/cm}^2$  のオーダーである [92]。このため、本研究で抵抗測定のために印加する電流から生じるジュール熱は十分小さく、磁気相転移には影響を与えないと判断した。

### 3.3.4 スピンポンピング測定

第 5 章と第 6 章では、スピンポンピングによるスピン注入と、逆スピンホール効果の測定結果を示す。この項では、これらの測定の詳細を述べる。

## 素子作製手順

第5章で扱う Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜のスピンポンピング測定素子は、Ar イオンミリングによるパターン形成と、リフトオフ法を繰り返し用いることで作製した。図 3.7 に素子作製手順の概要を示す。

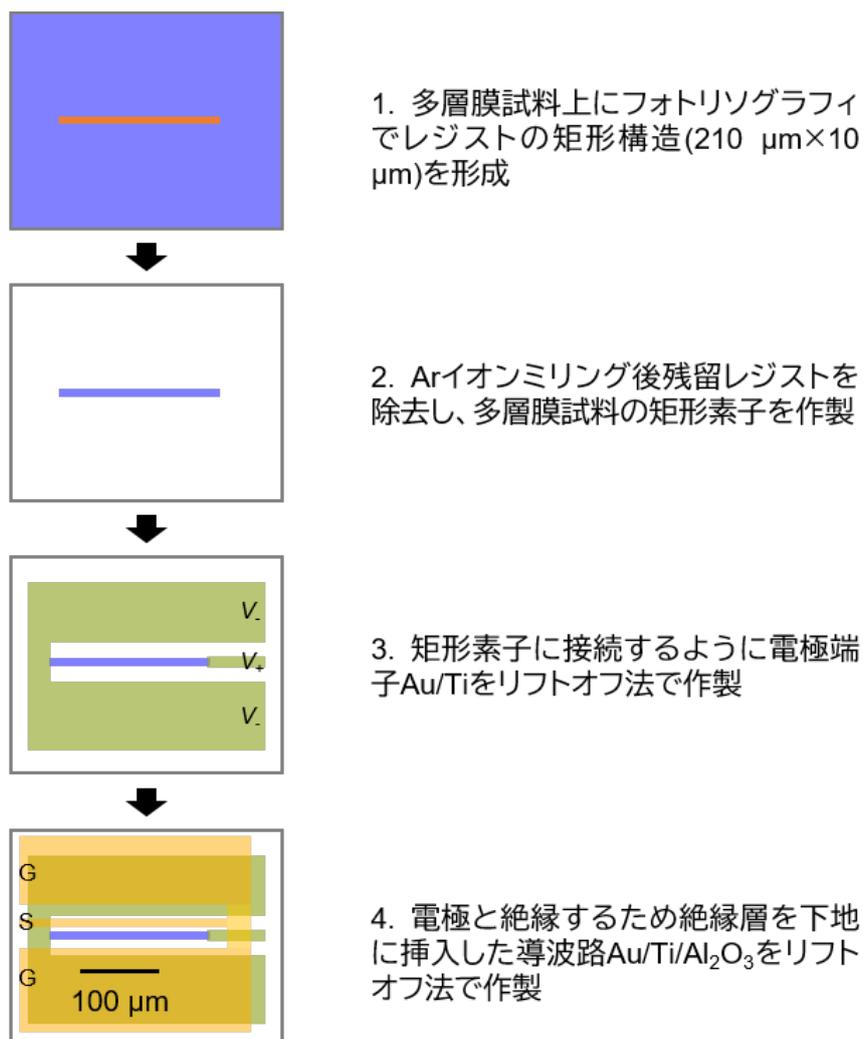


図 3.7: Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜のスピンポンピング測定素子の作製手順. 多層膜試料は第5章で詳述する, 強磁性層と Pd 添加 Fe-Rh 合金層を含む積層構造である. 多層膜試料の矩形素子(青)を Ar イオンミリングで形成してから, 繰り返しリフトオフ法により電極(緑)および導波路(橙)を成膜, 形成した.

はじめに示している多層膜試料とは, スピン注入源である強磁性体と, スピン注入対象である Pd 添加 Fe-Rh 合金を含む積層構造である. この積層構造の詳細は 5.1.1 項で述べる. 3.2.4 で述べたように, Pd 添加 Fe-Rh 合金の成膜の際に加熱処理をするので, この多層膜試料をリ

フトオフ法で整形することは困難である。このため、フォトリソグラフィによるパターン形成後、Ar イオンミリングによって長さ 210  $\mu\text{m}$ 、幅 10  $\mu\text{m}$  の矩形素子を得た。図では省略しているが、次工程からパターン描画時の位置合わせに用いるマークも、同時にイオンミリングで削り出している。

続けて、電圧信号を検出するための電極端子を矩形素子に取り付けた。電極パターンは矩形素子の両端に重なる位置に形成されており、Au を定着しやすくするための下地層として Ti を 5 nm 堆積させてから、Au を 150 nm 堆積させた。これにより、矩形試料の二端子測定が可能になる。なお、電極パッドの終端は Ground-Signal-Ground(G-S-G) が 150  $\mu\text{m}$  間隔で並んだ探針を接続できるように構成されている。このため Ground 探針で接続するマイナス側の電極端子は、Signal 探針で接続するプラス側の端子を挟むように 2 股に分岐している。

最後に、交流電流を印加する導波路を作製した。導波路は多層膜試料の矩形素子に交流磁場を印加するために存在しており、矩形素子から離れていないところに導波路を設置しなければ十分な強さの交流磁場が得られない。このため導波路は先に作製された電極端子の上を通るが、印加電流の漏洩を防ぐため、導波路は電極とは絶縁されている必要がある。以上の理由から、導波路は下地に絶縁層を挿入した Au(250 nm)/Ti(5 nm)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(150 nm) の三層構造からなっている。素子作製の全工程が終了してから、導波路と電流端子の間にリークが生じていないことを確認した。

なお、第 6 章で扱う Ni-Cu 合金を用いたスピンプンピング測定素子では、Ni-Cu 合金の成膜時に熱処理を行わない。このため、はじめの多層膜試料の矩形素子を電子線リソグラフィを用いたリフトオフ法で作製している。

### 測定系の構成

スピンプンピング測定に用いた装置群の構成を図 3.8 に示す。測定素子を作りこんだ基板試料は、プローバー台上に固定する。導波路および矩形素子との導通は、GGB 社のピコプローブ(G-S-G 探針)をそれぞれの Au 電極面に接触させることで確保している。素子に印加する面内方向の直流磁場は、電磁石によって制御されている。磁極が試料周りを回転できる機構になっており、面内の任意の方向で磁場を掃引できる。室温より高温の温度領域(302 K - 410 K)では、基板試料の下に抵抗加熱ヒーターを取りつけ、基板上面に熱電対温度計を配置することで温度の制御および検出を行なった。10 - 290 K の低温での測定は、 $1 \times 10^{-6}$  Torr 程度の圧力に保った真空チャンバー中で温度制御を行なった。試料温度は基板直下のステージに配置された温度計で検出した。

導波路に印加する高周波信号はシグナルジェネレータから発振し、矩形素子の電圧信号はロックインアンプで検出している。また、173 Hz の低周波数の同期信号を別の信号発生器(NF 社、WF1946)で発振し、シグナルジェネレータおよびロックインアンプの双方に参照信号として入力してある。このため、実際に導波路に印加される信号は、ギガヘルツ帯の高周波信号に同期信号による振幅変調をかけたものである。ロックインアンプでは同期信号と等しい周波数の成分のみが直流信号として検出されるため、同期信号と異なる周波数をもったノイズは低

減される。

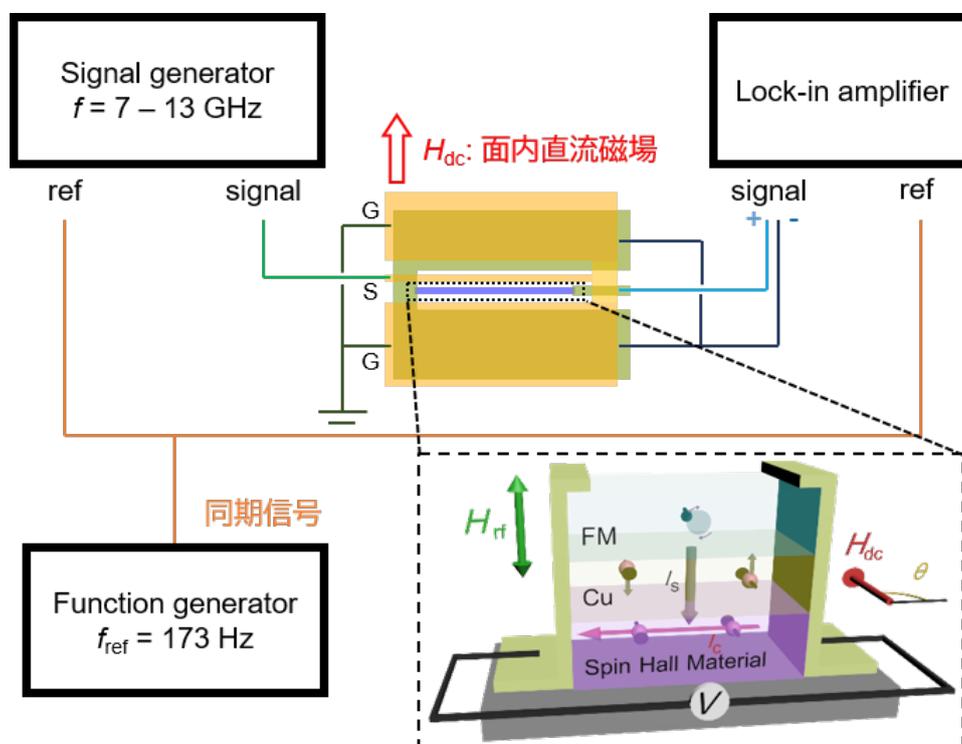


図 3.8: スピンポンピング素子の測定系の構成.

また、図 3.8 の右下には多層膜試料中でのスピン輸送の模式図を示している。スピン注入源の強磁性層 (FM)、逆スピンホール効果を生じる金属層 (Spin Hall Material) と、これらに挿入された非磁性層 (Cu) の三層から多層膜試料が構成される場合を考える。導波路に高周波信号を印加することで、試料位置ではエルステッド磁場による面直交流磁場  $H_{\text{rf}}$  が生じる。面内直流磁場を電磁石で制御し、掃引することで、共鳴磁場では FM 層の強磁性共鳴が誘起される。第 3 章で示したように、磁気モーメントの歳差運動の緩和によって散逸する角運動量の一部が、伝導電子スピン流として隣接する Cu 層を介して Spin Hall Material 層に注入される。この層で逆スピンホール効果が生じると、面内方向の逆スピンホール電流による電位差を電圧測定によって検出することができる。

## 第 4 章

# Pd 添加 Fe-Rh 合金の磁化過程に依存した電気伝導特性

本章では、反強磁性-強磁性相転移を示す Pd 添加 Fe-Rh 合金 (Fe(Rh, Pd)) 薄膜を対象として、その相転移点近傍での磁気状態を電気伝導特性から明らかにすることを目的とした実験を行なった。次章では、Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の逆スピホール効果の温度依存性を扱うが、これに先立って、この物質の磁気状態がどのように温度変化するのかを明らかにしておく必要がある。2.3 節で述べたように、Fe-Rh 合金系の相転移点近傍の温度領域では、反強磁性相と強磁性相との共存状態が発現する。反強磁性ドメインと強磁性ドメインの空間分布の温度依存性は、FeRh 合金薄膜での X 線磁気円二色性 (XMCD: X-ray Magnetic Circular Dichroism) 分光測定によって、強磁性ドメインの局所磁化を検出することで観察されている [94]。この報告によれば、相転移温度周辺で形成される強磁性ドメインの大きさは 0.1-1  $\mu\text{m}$  程度である。また、XMCD の他に、試料サイズを制限した系での電気抵抗測定によっても、ドメインの大きさや形成過程を推定できることが知られている [75]。

本研究では、相転移温度を下げる目的で少量の Pd を添加した Fe-Rh 合金薄膜を用いて、サブミクロンスケールの細線試料の電気抵抗値の温度依存性、磁場依存性を評価した。細線幅の異なる試料での測定結果を比較することで、Pd を添加した試料においても、等原子比の FeRh 合金と同様のドメイン形成過程が発現していることが確認された。また、相転移点周りでの温度ヒステリシスから求まるエネルギー損失量が、試料の細線幅に依存することがわかった。このことは、試料サイズの制限によって生じるドメイン形成過程の変調を、定量的に評価できることを示している。

本章の内容の一部は IEEE Transactions on Magnetics 誌にて公表している [p1]。

### 4.1 薄膜試料の作製と評価

はじめに、本実験で作製した Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜について、その成膜手法を述べる。続いて、薄膜試料の結晶性、磁性、電気伝導特性を評価した結果を示す。

### 4.1.1 Pd 添加 Fe-Rh 合金の成膜

等原子比の FeRh 合金薄膜では、反強磁性-強磁性相転移温度はおよそ 370 K であり、その前後に数十 K 程度の温度幅をもって相転移を生じる。本章で述べる電気伝導特性の評価および次章でとりあげるスピン輸送特性の評価を行なうには、より低い相転移温度を示し、400 K 以下で相転移が完遂する試料であることが望ましい。このため本研究では、相転移温度をより低くすることを目的として、Pd を少量添加した合金試料を成膜した。組成が  $\text{Fe}_{47}\text{Rh}_{50}\text{Pd}_3$  である合金をターゲットとし、3.1.1 項に述べた DC マグネトロンスパッタリング法で成膜した。金属種によるスパッタリングレートの違いから、組成が  $\text{Fe}_{47}\text{Rh}_{53}$  である合金をターゲットに用いると等原子比の FeRh 合金薄膜が得られる。このため、今回用いた合金ターゲットからは、Rh の一部を Pd に置換した合金薄膜が得られることが期待される。基板には、FeRh 合金との格子マッチングがいい MgO(001) 単結晶を用いた。到達圧力  $4 \times 10^{-7}$  Torr、Ar ガス流量 70 sccm、基板温度 600 °C、成膜時圧力  $4 \times 10^{-3}$  Torr、印加電力 15 W の条件下で成膜し、およそ 0.5 Å/sec の堆積レートで、膜厚 60 nm の薄膜を作製した。成膜後、試料の原子配列の規則化度向上を目的として、700 °C で二時間、次いで 800 °C で二時間の熱処理を行なった。

### 4.1.2 結晶性の評価

この Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜試料 (Fe(Rh, Pd)/MgO) について、結晶性を評価するため、X 線回折測定を行なった。図 4.1 に、測定時の試料配置を示す。

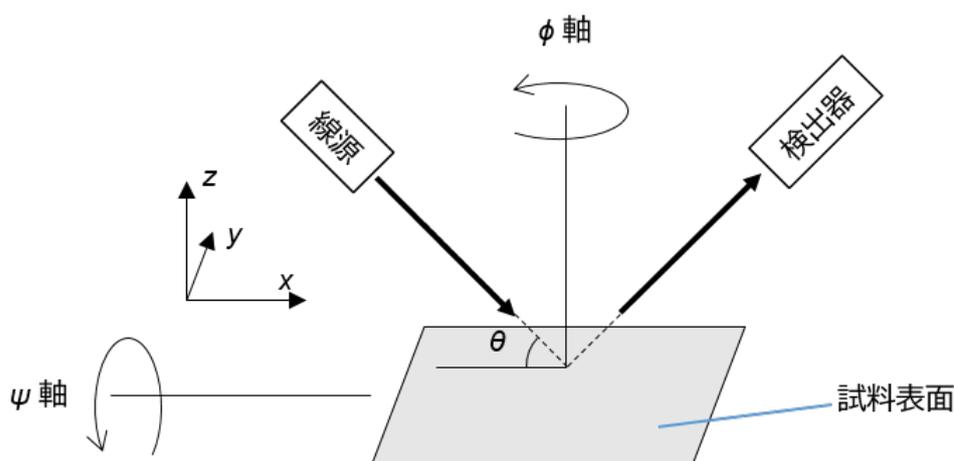


図 4.1: X 線回折測定時の試料配置と回転軸. 座標系は入射 X 線が  $zx$  面内にあり、試料面が  $yz$  面と直交するようにとる. MgO 基板の  $a$  軸と  $x$  軸とがなす角を  $\phi$ , 試料面と  $xy$  面とがなす角を  $\psi$ , 入射 X 線と試料面とがなす角を  $\theta$  としている.

まず、面直方向の配列を明らかにするため、 $\phi = 0^\circ$ 、 $\psi = 0^\circ$  で  $2\theta$  スキャン測定を行なった。この結果を図 4.2 に示す。MgO 単結晶基板のみを測定した結果を黒色で示しており、

$2\theta = 42.9^\circ$ 、 $94.0^\circ$ で (002)、(004) のピークがそれぞれ検出された。これは MgO の  $c$  軸が面直方向にあることと対応している。一方、橙色で示した Fe(Rh, Pd)/MgO 試料での測定結果をみると、MgO 基板でみられたピークに加えて、 $2\theta = 29.8^\circ$ 、 $61.9^\circ$ 、 $101.0^\circ$ で Fe(Rh, Pd) の (001)、(002)、(003) に対応するピークがそれぞれ検出されており、 $c$  軸が面直方向に配向していることがわかる。また、Fe と Rh の原子配置がランダムである場合を考えると、全てのサイトが等価な体心立方構造となるため、(001) のピークは現れない。このため、(001) ピークが検出されている今回の試料は、Fe 原子、Rh 原子が規則化して配列した B2 構造をとっていることがわかる。

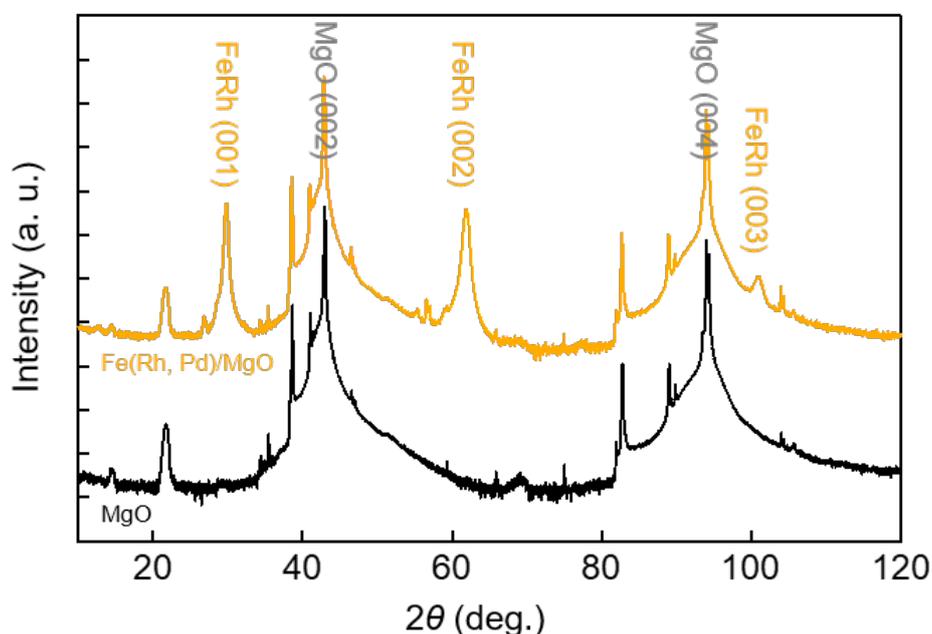


図 4.2: Fe(Rh, Pd)/MgO 試料と MgO 単結晶基板の  $2\theta$  スキャン測定. 回折強度は対数スケールでプロットしている.

続いて、 $2\theta$  スキャン測定では明らかにされない面内方向の配向を調べた。Fe(Rh, Pd)/MgO 試料について、 $\psi = 45^\circ$ 、 $2\theta = 62.39^\circ$ で MgO(101) 面の、 $\psi = 45^\circ$ 、 $2\theta = 42.72^\circ$ で Fe(Rh, Pd)(101) 面の  $\phi$  スキャン測定を行なった。この結果を図 4.3 に示す。MgO、Fe(Rh, Pd) はいずれも立方晶系であり、 $90^\circ$ 毎にピークが生じていることから、これらは (101)、 $(0\bar{1}1)$ 、 $(\bar{1}01)$ 、(011) に対応している。また、MgO と Fe(Rh, Pd) のピークは面内に  $45^\circ$ ずれているため、MgO[100] と Fe(Rh, Pd)[110] とが平行になるように配向している。MgO の格子定数は  $4.212 \text{ \AA}$  であり、これは FeRh 合金の格子定数  $3.00 \text{ \AA}$  のおよそ  $\sqrt{2}$  倍であるために、このような配向が生じている。以上から、今回作製した Fe(Rh, Pd) 薄膜試料は B2 構造の規則合金であり、図 4.4 に示すような方位に配向したエピタキシャル膜であることが確かめられた。

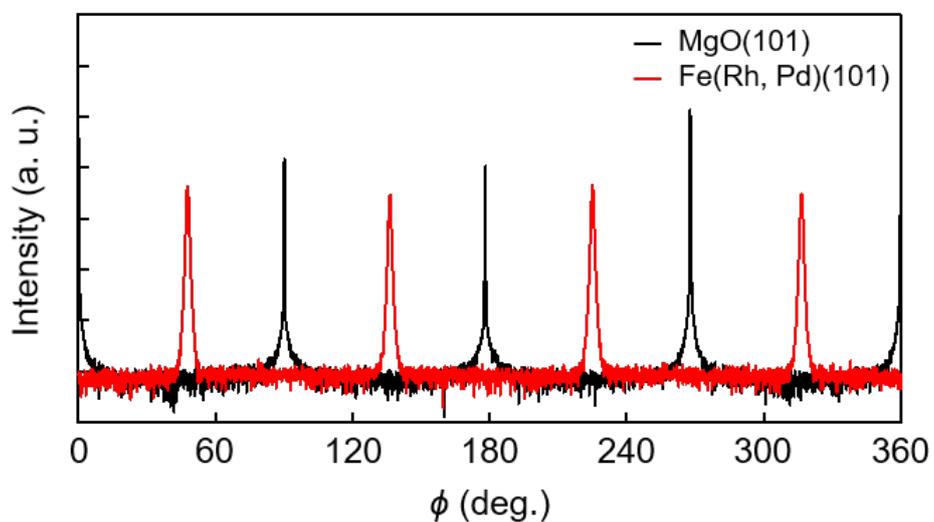


図 4.3: Fe(Rh, Pd)/MgO 試料の MgO(101) 面と FeRh(101) 面での  $\phi$  スキャン測定. 回折強度は対数スケールでプロットしている.

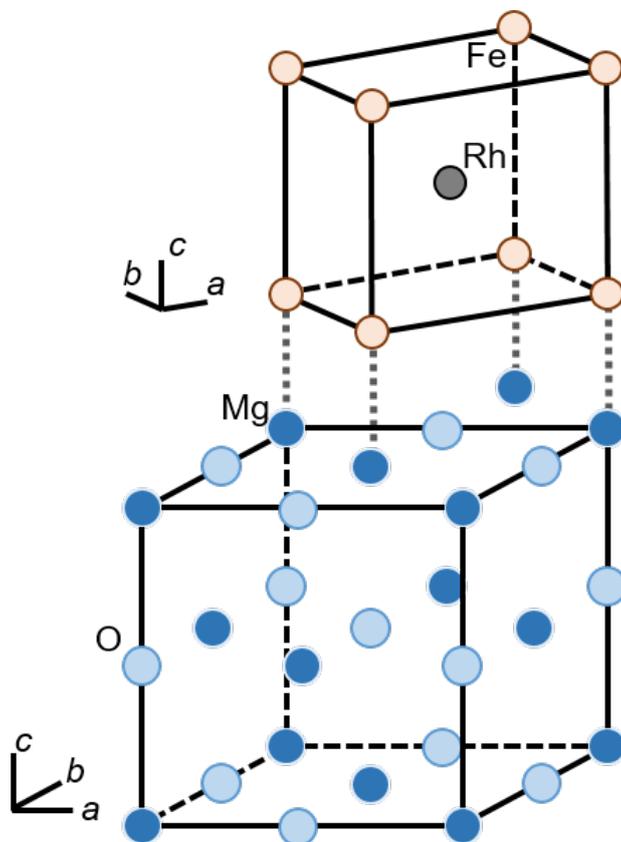


図 4.4: MgO 単結晶基板上にエピタキシャル成長した Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の模式図. MgO[100] と Fe(Rh, Pd)[110] が平行になるように配向している.

## 4.1.3 磁気特性・電気伝導特性の評価

次に、この薄膜試料の磁化および電気抵抗率の測定を行なった。図 4.5 に示している温度掃引測定の結果をみると、磁化と電気抵抗率の双方において、昇温過程と降温過程とで異なる値をもつことによる温度ヒステリシスが生じている。このヒステリシスは、低温側の反強磁性相と、高温側の強磁性相との間での一次相転移に対応している。磁化の温度依存性から、強磁性状態の飽和磁化は  $\mu_0 M_S = 1.6 \text{ T}$  であり、相転移温度は昇温過程で 300 K、降温過程で 280 K である。一方、抵抗測定の結果をみると、強磁性状態、反強磁性状態の双方で温度と共に抵抗率が增大しており、いずれの磁性相も金属導体であることを示している。相転移温度では、高温側の強磁性状態の方が抵抗率が小さいために、抵抗率が温度の増大に伴って減少する。この抵抗率の温度変化から得られる相転移温度は、昇温過程、降温過程ともに磁化測定で求めたものと一致する。

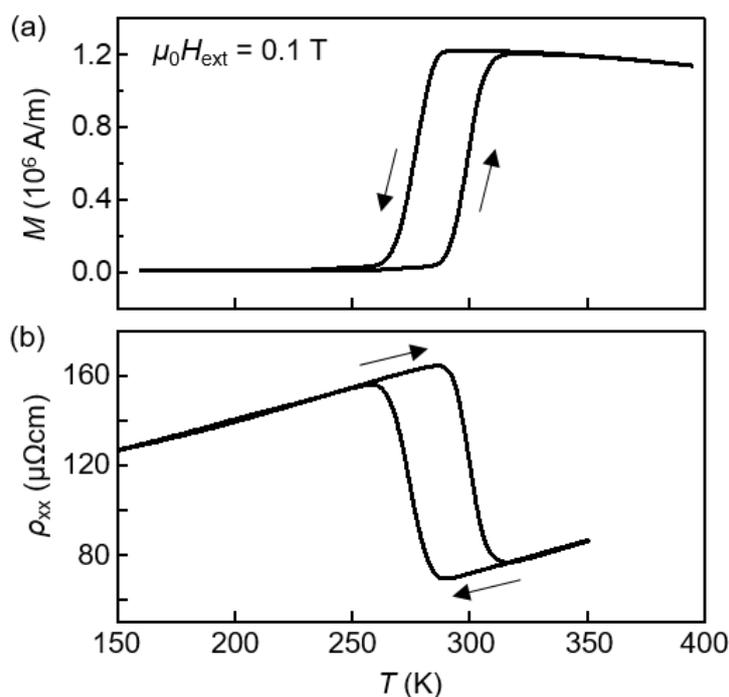


図 4.5: Pd 添加 Fe-Rh 薄膜の (a) 磁化および (b) 電気抵抗率の温度依存性。矢印は温度掃引の方向を示している。磁化測定は 0.1 T の面内磁場を印加して行なった。

続いて、相転移温度付近での磁化および電気抵抗率の磁場依存性を調べた。面直外部磁場を掃引して測定した結果を図 4.6 に示す。温度を一定にして磁場を印加した場合には、強磁性状態が Zeeman 効果によって相対的に安定化され、反強磁性相から強磁性相への相転移が誘起される。図 4.6 には  $T = 240 \text{ K}$  での磁場依存性を示しているが、磁化と電気抵抗率の双方で一次

相転移に伴う磁場ヒステリシスが生じていることが確認できる。ヒステリシスが生じる磁場範囲も磁化測定、抵抗測定で同一である。

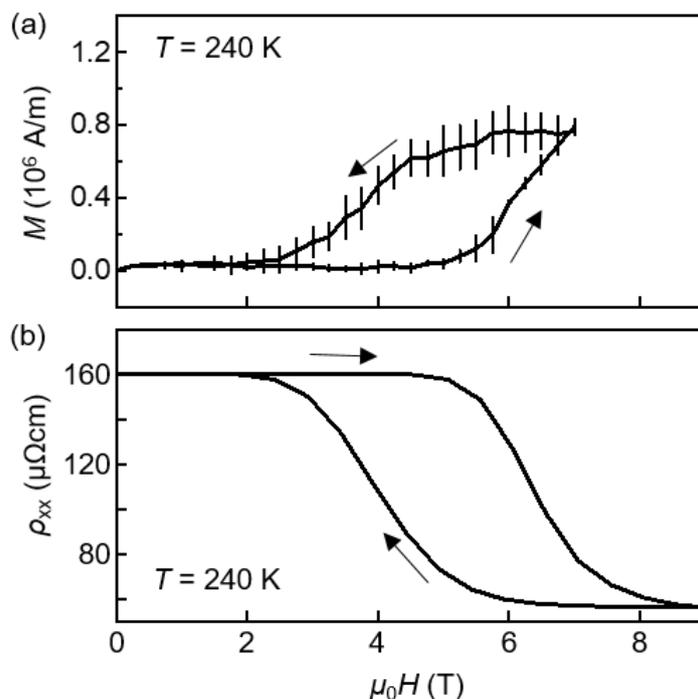


図 4.6: Pd 添加 Fe-Rh 薄膜の (a) 磁化および (b) 電気抵抗率の面直外部磁場依存性. 矢印は磁場掃引の方向を示している.

以上の測定から、薄膜試料での反強磁性-強磁性相転移を検出するには、温度掃引測定、磁場掃引測定のいずれにおいても、磁化測定および電気伝導測定の両方が有効であることが示された。

## 4.2 細線試料の電気抵抗測定

ここまで、温度および磁場掃引測定において、薄膜試料の電気伝導特性は磁気状態を反映していることを確かめた。本節では、相転移点付近での磁性相の形成過程を明らかにするため、この薄膜試料から加工したサブミクロンスケールの細線試料での電気抵抗測定を行なった。細線試料の作製手順の詳細は 3.3.3 項と図 3.6 に示している。同一の薄膜試料から細線幅の異なる試料を複数作製し、それぞれに電極を接続して電気抵抗測定を行なった。

### 4.2.1 細線試料における電気抵抗率の磁場・温度依存性

抵抗測定を行なった細線試料の走査電子顕微鏡像を図 4.7(a) に示す。細線試料の幅は 270 nm、電圧測定用の電極端子間の距離は 1600 nm である。この細線試料の電気抵抗を 4 端子法

で測定した。240 K での面内外部磁場掃引測定の結果を図 4.7(b) に、温度掃引測定の結果を図 4.7(c) に示した。

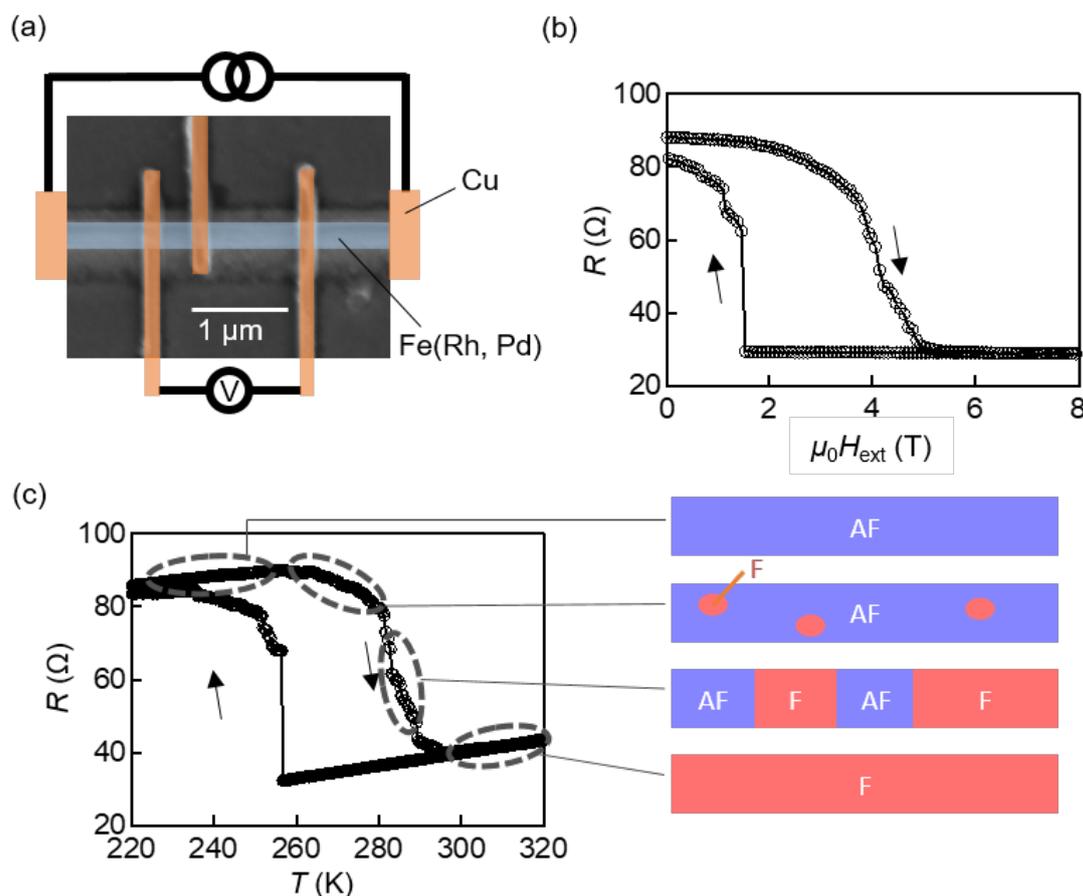


図 4.7: 幅 270 nm の細線試料の電気抵抗測定 [p1]. (a) MgO 基板上に形成した Pd 添加 Fe-Rh 薄膜の細線試料の走査電子顕微鏡像. 水色の箇所が Pd 添加 FeRh 合金細線に, 橙色の箇所が Cu 電極に対応している. (b) 同試料の電気抵抗の 240 K での面内外部磁場依存性. (c) 同試料の電気抵抗の印加磁場なしでの温度依存性と, 昇温過程のそれぞれの温度領域で想定される相分離構造の模式図. 矢印は温度あるいは外部磁場の掃引方向を表す.

磁場掃引測定、温度掃引測定の両方で、反強磁性-強磁性相転移に由来する、掃引方向に依存した電気抵抗値のヒステリシスが見られた。これらのヒステリシスの形状に注目すると、微細加工前の薄膜試料のそれとは大きく異なっている。反強磁性相から強磁性相への転移が生じている磁場増大過程、昇温過程では、小さなステップ状の抵抗変化が生じた。その一方で、強磁性相から反強磁性相への転移が生じる磁場減少過程、降温過程では、非常に狭い磁場・温度範囲で、抵抗値が大きく増大する変化がみられた。

これらの不連続な抵抗変化には、反強磁性ドメインおよび強磁性ドメインが形成する相分離構造が影響していると考えられている [75]。薄膜試料では、転移点近傍で反強磁性相および強

磁性相の双方が島状の分域を形成し、面内に共存している [76, 94]。電流経路上に抵抗率の異なる多数の磁区が存在し、抵抗測定に寄与するため、局所的な磁区構造の変化は測定結果に反映されにくい。結果として、薄膜試料では反強磁性-強磁性相転移に伴って連続的に抵抗が変化する。一方で、細線幅が磁区程度まで微小化された試料では、反強磁性ドメインと強磁性ドメインとが共存する相転移点近傍において、磁壁あるいは相境界が試料のエッジにトラップされると考えられる。このような相分離構造が実現していれば、幅方向に一樣な磁性相が形成されるので、電気抵抗測定時の電流経路が長手方向に制限される。このため相境界の移動を伴う反強磁性ドメイン、強磁性ドメインのサイズ変化が直接的に抵抗測定に反映され、不連続な抵抗変化がみられるようになることができる。

不連続な抵抗変化が、細線素子中で制限された相分離構造に由来するものであるとすれば、ヒステリシス上の各点での磁気状態をより詳細に検討できる。ここでは温度掃引測定の結果に着目し、昇温過程の温度領域ごとに想定される相分離構造を図 4.7(c) に示す。昇温に伴って連続的に抵抗値が増大する 260 K 以下では、反強磁性状態が発現している。さらに昇温していくと、260 - 280 K では、非常に小さなステップをもって抵抗値が減少していく。この温度領域では、薄膜の表面や基板界面に残留した強磁性領域 [69]などを起点として、強磁性ドメインが核形成され始める。形成された強磁性ドメインの大きさは細線幅と比較して十分に小さく、島状の相分離構造が細線素子中で形成されていると考えることができる。このような状態では電流経路が長手方向に制限されないため、局所的な相分離構造の変化が抵抗測定に寄与しにくく、抵抗値は非常に小さいステップを示す。さらに温度を上昇させると強磁性ドメインが拡大し、先に述べたように相境界が試料のエッジにトラップされた構造になり、より大きなステップ状の抵抗変化が生じる。300 K 以上では相転移が完遂し、昇温とともに抵抗値が連続的に増大する金属的な振る舞いになる。

一方、降温過程では、256 K で急峻な抵抗値の増大がみられた。温度ヒステリシスのマイナーループ測定時にはこの特徴が消失したことから、細線試料では反強磁性ドメインの核形成が抑制されていると考えられる。基板との界面に低温まで強磁性状態が安定化された領域があるのと対照的に、高温まで安定化された反強磁性状態は薄膜試料中では発現しにくい [69]。このため、反強磁性ドメインの核形成は主に、格子欠陥や不純物を起点として生じることになる。薄膜試料中に点在する核形成の起点の間隔に対して、細線試料のサイズスケールが十分小さい場合には、反強磁性ドメインの核形成が起こりにくく、観測されたような過冷却状態が発現すると考えられている [75]。

### 4.3 相転移に伴うヒステリシスの細線幅による変調

ここまで、薄膜試料と細線試料の電気抵抗値を比較し、サブミクロン細線ではサイズ効果が抵抗測定に現れ、相転移に伴う磁性相の形成過程を議論できることを述べてきた。細線試料で見られたサイズ効果は、試料サイズが形成されるドメインの大きさと同程度であることに起因している。試料がドメインに対し十分に大きければ、薄膜試料と同様に連続的な抵抗変化が生

じることが期待される。このため、試料サイズの変化に伴う抵抗-温度曲線の変調をみることで、相転移点付近で形成される典型的なドメインサイズを推定できる。この節では、細線幅が 270 nm、660 nm、1160 nm である細線試料での抵抗の温度依存性を測定し、そのヒステリシス形状を解析することで、試料サイズによる磁性相の形成過程の変調を定量的に評価できることを示した。

#### 4.3.1 強磁性領域の体積分率の見積もり

幅方向に制限された相分離構造が細線試料で実現していると仮定すると、それぞれの相の領域が細線の長手方向に直列に並んでいるとみなすことで、試料のうち強磁性状態が占める体積分率を抵抗測定から見積もることができる。試料がすべて反強磁性状態、強磁性状態であるときの電気抵抗値をそれぞれ  $R_{AF}$ 、 $R_F$  と書けば、強磁性状態の体積分率を  $x$  とし、全体の試料抵抗  $R$  は次の式で書ける。

$$R(T) = x \times R_F(T) + (1 - x) \times R_{AF}(T) \quad (4.1)$$

これを用いることで、抵抗測定から相転移点近傍での強磁性ドメインと反強磁性ドメインの体積比を算出することができる。温度掃引測定においては、図 4.8 に示したように、 $R_{AF}(T)$  および  $R_F(T)$  はそれぞれ、転移温度より低温および高温での測定値を直線近似して得た値を用いた。

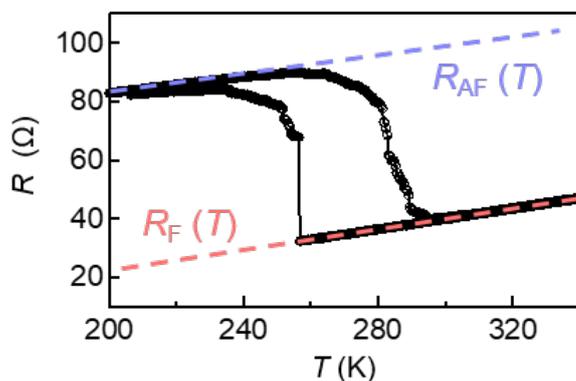


図 4.8: Pd 添加 Fe-Rh 薄膜の幅 270 nm の細線試料の電気抵抗の温度依存性 (図 4.7(c) より再掲) からの、反強磁性状態の試料抵抗  $R_{AF}(T)$  および強磁性状態の試料抵抗  $R_F(T)$  の見積もり。

同一の薄膜試料から削り出して形成された、試料幅の異なる 3 つの細線試料に対して抵抗測定を行ない、上述の手順で強磁性領域の体積分率を算出した。この結果を図 4.9 に示す。ヒステリシス形状を比較すると、特に降温過程で明確な変化がみられる。幅 270 nm の試料では、全体の 61% にあたる体積が急峻に転移しているのに対し、幅 660 nm の試料ではこれが 20% 程度まで小さくなっている。幅 1160 nm の試料では加工前の薄膜試料に近いほぼ連続な転移

が生じている。また、温度掃引に伴って生じる抵抗値のステップ状の変化は、細線幅が大きくなるにつれて小さくなり、加工前の薄膜試料でみられる連続的な抵抗変化に近づいていく。

Baldasseroni らは、XMCD 分光測定および X 線磁気線二色性 (XMLD: X-ray Magnetic Linear Dichroism) 分光測定によって、FeRh 合金薄膜表面の磁気状態の空間分布を明らかにしている [76]。この報告によれば、反強磁性-強磁性相転移温度付近では、強磁性ドメインおよび反強磁性ドメインの典型的な大きさはそれぞれ 550 nm、300 nm 程度であるとされる [76]。抵抗変化の顕著な違いがみられた 3 つの試料の細線幅は、これらのドメインサイズの前後に相当する。この結果から、本実験で作製された Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜では、報告のある等原子比 FeRh 合金薄膜と同程度のサイズスケールの分域構造が、相転移温度付近で発現していることが明らかになった。

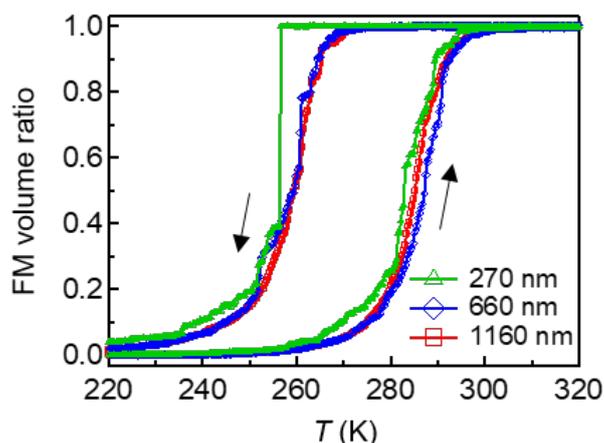


図 4.9: 細線幅が 270 nm, 660 nm, 1160 nm の試料での抵抗測定から求めた強磁性体積分率 [p1]. 矢印は温度掃引の方向を示す。

#### 4.3.2 相転移に伴うエネルギー損失量の細線幅依存性

ここまでの測定から、反強磁性-強磁性相転移点近傍での試料抵抗の温度変化は、試料サイズによって変調されることが確かめられた。この項では、相転移現象に現れる試料のサイズ効果を定量的に評価する目的で行なった解析を示す。硬強磁性体の  $M-H$  ヒステリシスで生じるエネルギー損失と同様に、反強磁性-強磁性間の一次相転移で生じるヒステリシスの周りでも損失が生じている。強磁性体のヒステリシス損が磁化反転過程によって特徴づけられるのと同様に、反強磁性-強磁性相転移でのヒステリシス損は、相転移に伴う磁性相の形成過程に影響される。この損失の大きさを細線化した試料で求めることで、試料サイズの制限によるドメイン形成過程の変調を、定量的に評価できることを示した。

Fe-Rh 合金系では、外部磁場を印加することで反強磁性-強磁性相転移温度が低下する。この外部磁場による相転移温度の変調から、式 (4.2) を用いて、強磁性状態と反強磁性状態との

エントロピー差分  $\Delta S = S_F - S_{AF}$  を決定することができる。

$$\frac{dT_{tr}}{\mu_0 dH_{ext}} = -\frac{\Delta M}{\Delta S} \quad (4.2)$$

ここで、 $\Delta M = M_F - M_{AF} = M_F$  は強磁性状態と反強磁性状態での磁化の差分である。この式は、 $T_{tr}$  で反強磁性状態と強磁性状態の自由エネルギーが等しいとし、また  $T_{tr}$  の周辺で  $\Delta M$  と  $\Delta S$  が一定であるとみなすことで導出される。

今回作製した Fe(Rh, Pd) 薄膜では、図 4.10(a) に示すように、磁化測定から昇温過程、降温過程それぞれの相転移温度を決定した。印加する面内外部磁場  $\mu_0 H_{ext}$  を変えて磁化測定を行なうことで求めた、印加磁場と相転移温度の相関を図 4.10(b) に示す。昇温過程での反強磁性相から強磁性相への転移温度 ( $T_{AFM-FM}$ )、降温過程での強磁性相から反強磁性相への転移温度 ( $T_{FM-AFM}$ ) の両方が、外部磁場に対して線形に降下しており、その勾配はいずれも  $-9.78 \pm 0.10 \text{ K} \cdot \text{T}^{-1}$  であった。磁化測定から求めた  $\Delta M$  を用いて、今回の薄膜試料のエントロピー差分は  $\Delta S_{film} = 130.1 \pm 1.3 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$  と求まった。これは、FeRh 合金のバルク ( $138 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ )、薄膜試料 ( $140 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ ) で報告されている値から見ても妥当な大きさであるといえる。

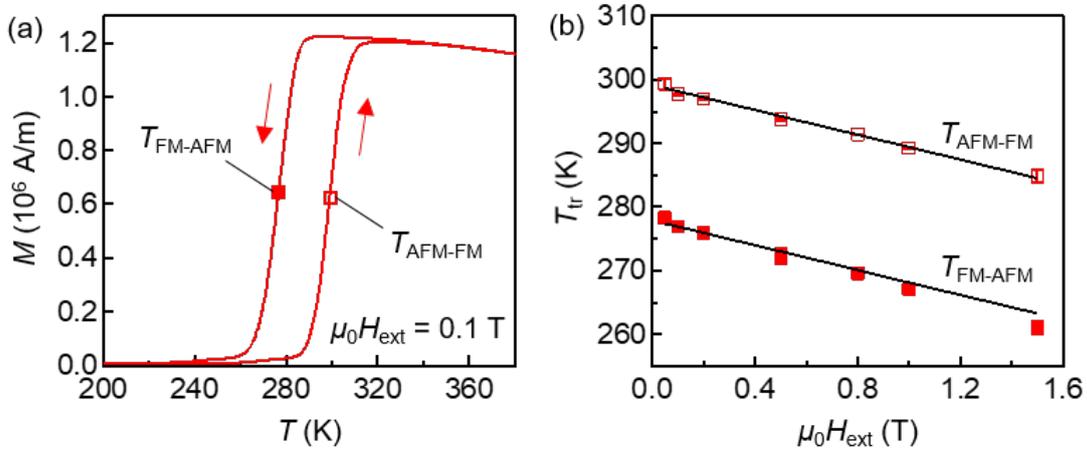


図 4.10: (a) 面内印加磁場 0.1 T での Pd 添加 FeRh 薄膜の磁化-温度曲線 (図 4.5(a) より再掲) と、 $dM/dT$  のピーク位置から求めた昇温過程 ( $T_{AFM-FM}$ )、降温過程 ( $T_{FM-AFM}$ ) での相転移温度. (b) 面内印加磁場と相転移温度の相関 [p1].

細線化した試料については、磁場掃引時と温度掃引時の電気抵抗測定からエントロピー差分を導出した。外部磁場  $\mu_0 H_{ext} = \mu_0 H_1, \mu_0 H_2$  を印加したときの相転移温度を  $T_1, T_2$  とすると、次の式から  $\Delta S$  が得られる。

$$\mu_0 H_1 \Delta M + T_1 \Delta S = \mu_0 H_2 \Delta M + T_2 \Delta S \quad (4.3)$$

幅 270 nm の細線試料での面内磁場掃引時、温度掃引時の電気抵抗測定の結果は図 4.7(b)、

(c) で示した。強磁性相から反強磁性相への転移が生じている磁場低減過程、降温過程では、試料体積の 60.7% の相転移に相当する非常に急峻な抵抗変化が生じる。この点を相転移点とすることで、細線試料の  $\Delta S$  が決定できる。磁場掃引測定での相転移点での印加磁場、温度はそれぞれ  $\mu_0 H_1 = 1.46 \text{ T}$ 、 $T_1 = 240.0 \text{ K}$  であり、温度掃引測定での相転移点での印加磁場、温度はそれぞれ  $\mu_0 H_2 = 0.00 \text{ T}$ 、 $T_2 = 256.6 \text{ K}$  であった。これらを式 (4.3) に代入することで、 $\Delta S_{\text{wire}} = 113 \pm 13 \text{ mJ} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{cm}^{-3}$  と求めた。細線加工前の試料について磁化測定から得た値  $\Delta S_{\text{film}}$  と比較すると小さい値であったが、これはミリング加工による相転移温度の低下と関連している可能性がある。Kushwaha らの報告では、Pd を多く添加し、反強磁性-強磁性相転移温度が 200 K 程度である薄膜試料では、磁場による相転移温度の変調が等原子比 FeRh 合金より大きく、式 (4.2) から考えるとより小さな  $\Delta S$  を有することに対応する [95]。これから、相転移温度が低い場合には磁性相間のエントロピー差分は小さくなると期待される。今回の実験では、イオンミリングでの細線加工によって相転移温度が下がった細線試料で、 $\Delta S_{\text{wire}}$  が  $\Delta S_{\text{film}}$  より小さな値を示していると理解できる。

細線加工前の薄膜試料と細線試料の両方が相転移に伴うヒステリシスを生じていることから、これらのヒステリシスの周辺を回るように外場を操作したときにはエネルギー損失が生じるはずである。磁化の温度依存性  $M(T)$  が与えられている場合には、このエネルギー損失量  $Q'$  は温度ヒステリシス周りの経路積分をとって式 (4.4) で書ける。

$$Q' = \oint S(T) dT = \frac{\Delta S}{\Delta M} \oint M(T) dT \quad (4.4)$$

ここで、 $\Delta S$  と  $\Delta M$  はヒステリシスが開いている温度範囲では定数であると仮定した。 $\oint M(T) dT$  は、 $M-T$  曲線のヒステリシス面積に相当する。図 4.10(a) の磁化-温度曲線から算出した薄膜試料のエネルギー損失量は  $Q'_{\text{film}} = 2.86 \pm 0.03 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-3}$  であった。

細線化した試料では、図 4.9 で示した強磁性状態の体積分率の温度依存性  $x(T)$  を用いた。式 (4.4) を書き直すと以下ようになる。

$$Q'_{\text{wire}} = \Delta S_{\text{wire}} \oint \frac{M(T)}{\Delta M} dT = \Delta S_{\text{wire}} \oint x(T) dT \quad (4.5)$$

図 4.9 のヒステリシス面積を求めることで、それぞれの細線試料のヒステリシス損失が得られた。これを表 4.1 に示す。いずれの細線試料でも薄膜試料と比較して大きな損失が生じており、かつサイズが小さいほど損失量が大きくなっている。硬強磁性体では  $M-H$  ヒステリシス周りでエネルギー損失を生じるが、これには磁区間の境界である磁壁の移動が寄与している。Fe(Rh, Pd) の反強磁性-強磁性相転移では、反強磁性ドメインと強磁性ドメインの間の相境界が、同様の役割を担っていると考えられる。相転移が進行する過程での磁性相の形成過程が試料サイズによって制限されることで、より大きなヒステリシス損失が生じていると理解できる。

表 4.1: 薄膜試料および細線試料での温度ヒステリシス損失.

細線幅	270 nm	660 nm	1160 nm	(薄膜試料)
$Q'$ [ $\text{J}\cdot\text{cm}^{-3}$ ]	3.39	3.31	3.08	2.86

## 4.4 本章の小括

この章では、Pd 添加 Fe-Rh 合金の薄膜試料および細線試料の電気伝導特性から、相転移点周辺での相分離構造を議論した。まず、MgO(001) 基板上にエピタキシャル成長した Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜において、磁化および電気抵抗率の磁場・温度依存性が、試料の磁気状態を反映していることを確認した。試料サイズを制限した素子では、相転移温度周辺での相分離構造の変調が抵抗の温度変化に現れる。サイズの異なる試料での抵抗変化の詳細から、温度掃引時の典型的な強磁性ドメインの大きさが推定できることを示した。また、抵抗測定の結果から温度ヒステリシス周りのエネルギー損失量を見積もり、試料細線幅に依存したドメイン形成過程の変調を定量的に評価できることを示した。

## 第 5 章

# Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の逆スピン ホール効果の測定

この章では、前章で扱った Pd 添加 Fe-Rh 合金 (Fe(Rh, Pd)) 薄膜を対象として、スピン流-電流変換現象の評価を行なった。近年の理論および実験研究から、磁性体中のスピン流の輸送特性は、スピン揺らぎの大きさに依存して変調されることが指摘されている。特に、スピン揺らぎが大きく変化する磁気相転移点近傍では、非線形磁化率の温度変化に由来するスピンホール効果の変調 [33, 36] や、交流スピン磁化率の増大に伴うスピンプンピングでのスピン流注入効率の増強が報告されている [34, 37, 38]。これらのスピンゆらぎ由来のスピン流物性に関する研究は、スピンホール効果の大きさを制御する手法としてだけでなく、磁気相転移を電氣的に、比較的簡便に検出する手法として注目されている [38, 40]。

相転移点近傍におけるスピン流-電流変換現象は、これまで、強磁性相と常磁性相などの、「磁気秩序相」と「無秩序相」との間の二次相転移過程を調べることで見出されてきた。今回対象とする Fe(Rh, Pd) 薄膜では、反強磁性相と強磁性相との間の一次相転移が生じる。そのため転移点付近でのスピンゆらぎの温度変調が異なることが期待されるのに加えて、反強磁性ドメインと強磁性ドメインの共存状態が発現されることで、これまでとは異なる混合相でのスピン輸送特性を明らかにできる可能性がある。

本章では、強磁性体からスピンプンピング法により Fe(Rh, Pd) 薄膜へスピン注入を行い、スピン流から電流への変換現象である逆スピンホール効果の検証を行なった。温度掃引測定の結果から、相転移温度でスピン流物性が大きく変調されることが明らかになった。特に、強磁性体からのスピン注入効率を特徴づける有効スピンミキシング伝導度は、Fe(Rh, Pd) 薄膜の反強磁性-強磁性相転移温度の近傍で、二次相転移を示す強磁性体のキュリー点の場合と比べて一桁以上大きく増大されることが分かった。また、スピン流から電流への変換効率も、相転移点付近において変調を受け、極大値をとることが分かった。これらの実験結果を、相転移点近傍でのスピン揺らぎおよび磁気状態と関連づけて議論する。

## 5.1 試料作製

この章で扱う実験では、 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}(\text{Ni-Fe})/\text{Cu}/\text{Fe}(\text{Rh, Pd})$  の多層膜構造を用いて、強磁性体 Ni-Fe から Cu を介して Fe(Rh, Pd) へスピン流を注入し、さらに Fe(Rh, Pd) 内での逆スピンホール効果による出力電圧の検出を行った。この節ではまず、測定素子の作製手順を述べる。続いて、反強磁性-強磁性相転移温度を決定するために測定した、Fe(Rh, Pd) 薄膜の磁化および電気抵抗率の温度依存性を示す。

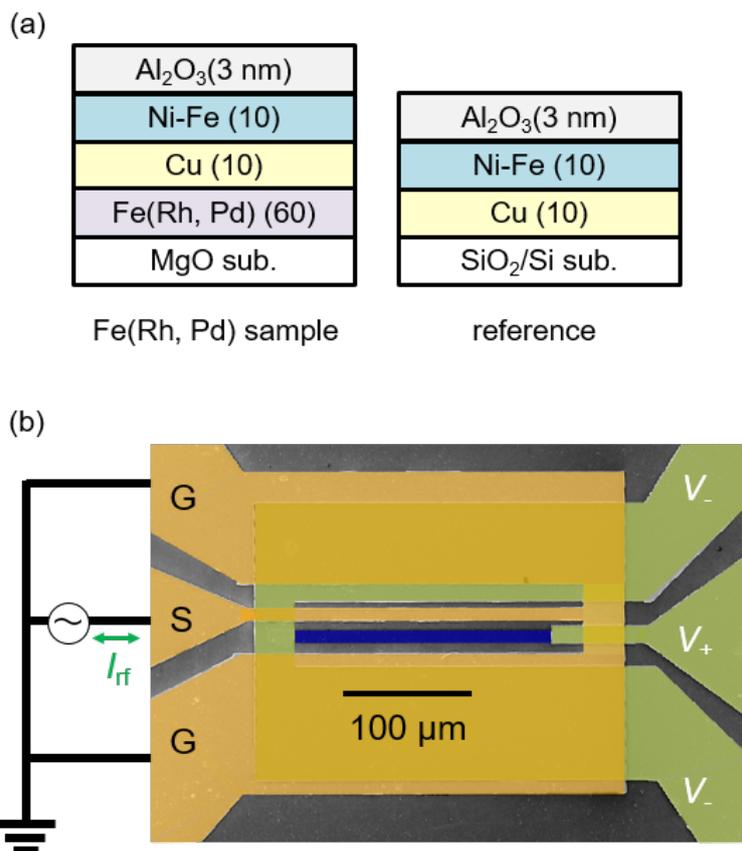


図 5.1: (a) 作製した多層膜構造. Fe(Rh, Pd) 層を含む試料 (Fe(Rh, Pd) sample) と、これを除いた参照試料 (reference) を成膜した. (b) スピンポンピング素子の走査電子顕微鏡像. 黄色の部分に導波路に、黄緑色の部分が電極端子に、青色の部分が多層膜試料に対応している. 電極端子は多層膜試料の矩形素子と電氣的に接続されている一方で、交流磁場を発生させるために印加する高周波電流の導波路は、それらからは絶縁されている.

### 5.1.1 スピンポンピング素子の作製

Fe(Rh, Pd) 薄膜は、4.1.1 項で述べた手法で、MgO(001) 単結晶基板上に 60 nm 成膜した。この薄膜試料に対して、Ar イオンミリングによる表面の清浄化、抵抗加熱蒸着での Cu の成膜、電子線加熱蒸着での Ni-Fe の成膜を真空チャンバー内で連続して行なった。これらの成膜手順の詳細は 3.1.3 項にて示した。この上から酸化保護膜として Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を 3 nm スパッタリング法で成膜し、スピンポンピング測定用の多層膜試料を作製した。ここで、Cu 層は Ni-Fe 層と Fe(Rh, Pd) 層との間の直接的な層間交換相互作用を遮断する目的で挿入されている。この試料の積層構造を図 5.1(a) に示す。また、Fe(Rh, Pd) 層を含まない参照試料として、3 nm の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> でキャップされた Ni-Fe(10 nm)/Cu(10 nm) の二層膜を SiO<sub>2</sub>/Si 基板上に作製した。

これらの多層膜試料から、3.3.4 項に示す手順でスピンポンピング測定用の素子を作製した。この素子の走査電子顕微鏡像を図 5.1(b) に示す。多層膜試料は 210 μm×10 μm の矩形に成形され、直流電圧測定用の電極端子に接続されている。また、この電極と絶縁された高周波電流用の導波路を、多層膜試料を挟む形で設置している。このスピンポンピング法を用いた逆スピンホール効果の測定原理および測定手法については、2.2 節および 3.3.4 項を参考にされたい。

### 5.1.2 Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の磁化および電気抵抗率

まず、スピンポンピング測定に先立って、Pd 添加 Fe-Rh 薄膜および細線における磁化および電気抵抗率の温度依存性から反強磁性-強磁性相転移温度を決定した。細線形状への加工前の Fe(Rh, Pd) 薄膜単層での磁化測定結果を、昇温過程での磁気状態の模式図と合わせて図 5.2 に示す。反強磁性-強磁性相転移に対応する温度ヒステリシスが生じており、相転移温度は昇温過程で 345 K、降温過程で 320 K であることがわかった。前章でみたように、Fe(Rh, Pd) 薄膜では、相転移点の付近で反強磁性ドメインと強磁性ドメインが共存している。温度ヒステリシスの昇温過程をみていくと、250 K 以下の低温域では試料は反強磁性状態であり、昇温していくと反強磁性相の中に強磁性ドメインが核形成され、分散した磁気状態が発現する。さらに昇温することで強磁性ドメインが拡大成長する過程を経て、390 K 以上では相転移が完遂し強磁性状態になっていることがわかる。

次に、スピンポンピング測定に用いた矩形素子と同じ細線幅に加工した試料における相転移温度の同定を行った。測定では、4 端子法での電気抵抗測定を行ない、昇温過程での電気抵抗率の温度依存性を求めた。この結果を図 5.3(a) に示す。また、図中図には電気抵抗率の温度微分  $d\rho_{xx}/dT$  を示している。反強磁性相、強磁性相ともに金属導体であり、低温相である反強磁性状態の方が強磁性状態より高い電気抵抗率を示すために、 $d\rho_{xx}/dT$  は相転移温度で負のピークをとる。このピーク位置から、昇温過程での細線試料の相転移温度は  $T_{tr} = 333$  K と見積もられた。図 5.2 に示した薄膜に比べて相転移温度が若干異なるのは、イオンミリングでの加工処理の影響と考えられる [96]。

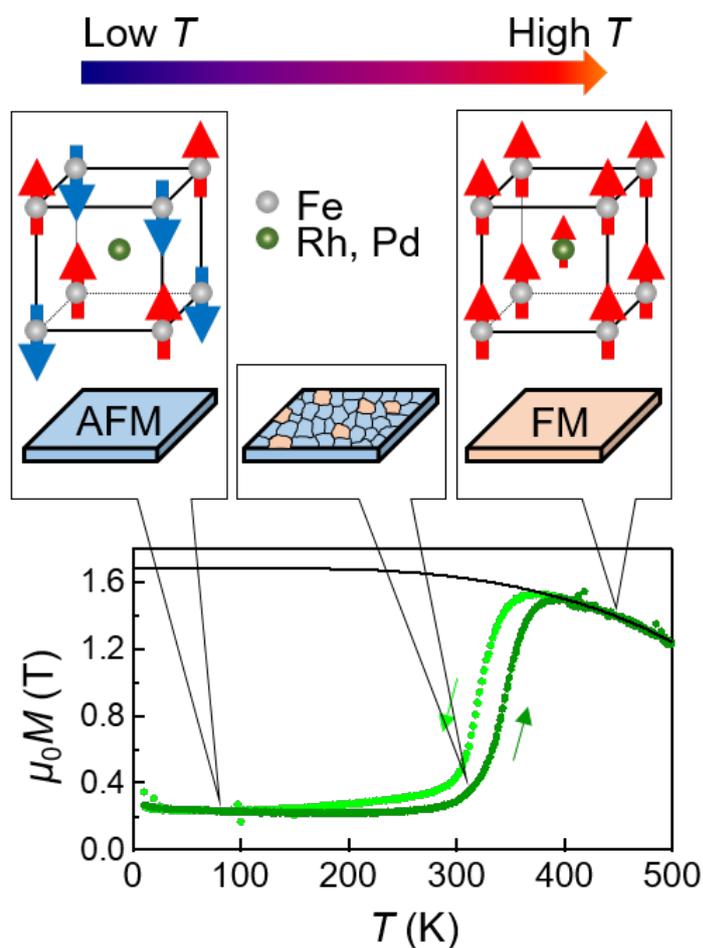


図 5.2: スピンポンピング測定に用いた Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の単層試料の磁化の温度依存性と, 昇温過程での磁気状態の模式図.

図 5.3(b) に実際に逆スピンホール効果の検出に用いた、Ni-Fe/Cu/Fe(Rh, Pd) の三層膜からなる矩形素子の 2 端子抵抗の温度依存性を示す。Fe(Rh, Pd)、Cu および Ni-Fe のいずれも金属導体であるため、昇温に伴って試料抵抗は増大するが、相転移温度において、Fe(Rh, Pd) 層の抵抗率が減少するために、試料抵抗もわずかに減少することが予想される。図 5.3(b) の測定結果から、三層膜試料中での Fe(Rh, Pd) 層の相転移温度が、図 5.3(a) で求めた  $T_{tr}$  と一致することを確かめた。

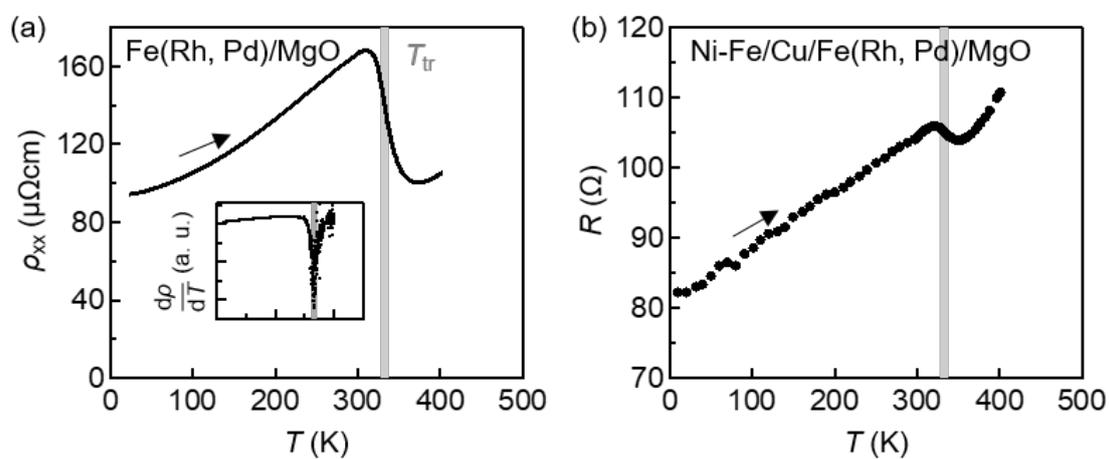


図 5.3: (a) 幅  $10\ \mu\text{m}$ 、長さ  $800\ \mu\text{m}$  の Pd 添加 Fe-Rh 薄膜の矩形試料で測定した、昇温過程での縦抵抗率の温度依存性と、見積もられた相転移温度  $T_{tr} = 333\ \text{K}$ 。図中図には抵抗率の温度微分を示しており、極小値をとる温度が相転移温度に対応する。(b) 幅  $10\ \mu\text{m}$ 、長さ  $200\ \mu\text{m}$  の Ni-Fe/Cu/Fe(Rh, Pd) 試料の二端子抵抗の温度依存性。

## 5.2 有効ダンピング係数、有効スピンミキシング伝導度の温度依存性

### 5.2.1 強磁性共鳴線幅の評価

スピンポンピングにより Fe(Rh, Pd) 層へ注入されたスピン流量を評価するため、注入源である強磁性体の磁気緩和係数（ダンピング係数）を調べた。一般に強磁性共鳴は、ベクトルネットワークアナライザを用いた共鳴吸収測定によっても検出できる。しかしながら、本実験で用いた三層膜試料では、スピン流源として用いた Ni-Fe だけでなく、Fe(Rh, Pd) も、相転移温度以上では強磁性共鳴を生じることに注意が必要である。特に今回の測定試料では、Fe(Rh, Pd) 層の方が Ni-Fe 層より体積が大きいため、高温領域では Fe(Rh, Pd) の共鳴吸収が重畳してしまい、ベクトルネットワークアナライザを用いて Ni-Fe の共鳴線幅を正確に評価することが非常に困難である。

そこで今回の実験では、スピン整流効果による電圧信号を利用して、Ni-Fe の強磁性共鳴線幅の評価を行なった。スピン整流効果とは、高周波数帯の磁化ダイナミクスから直流の電圧信号が生成される現象をいう [97, 98]。磁化の歳差運動が励起されている場合には、異方性磁気抵抗効果のために、磁化方向に応じて試料抵抗が時間変化する。試料中に高周波電流が生じていれば、試料抵抗との積の時間平均をとることで有限の直流電圧が検出される。このスピン整流効果による電圧信号の大きさは、強磁性体の異方性磁気抵抗効果の大きさに依存する。Ni-Fe 合金は Fe-Rh 合金系と比較して一桁程度大きな異方性磁気抵抗効果を生じるため [99, 100]、スピン整流効果においては、高温領域であっても Ni-Fe の強磁性共鳴に由来する信号を明確に検出できる。

強磁性共鳴線幅を評価するため、スピン整流効果から生じる電圧信号が最大になる面内磁場角度、 $\theta = 45^\circ$ での電圧測定を行なった。測定配置の模式図を図 5.4(a) に示す。以下に示す結果は全て昇温過程で測定されたものである。図 5.4(b) には、周波数 9 GHz、入力電力 20 dBm(100 mW) の高周波信号を導波路に印加して、面内磁場を掃引したときの 200 K での電圧信号を示す。共鳴磁場に対して対称なローレンツ関数と、反対称である微分ローレンツ関数の和である次の式でのフィッティングにより、Ni-Fe の強磁性共鳴線幅  $\Delta$  を決定した。

$$V(H) = V_{\text{Sym}} \frac{\Delta^2}{(H - H_0)^2 + \Delta^2} + V_{\text{Asym}} \frac{(H - H_0) \Delta}{(H - H_0)^2 + \Delta^2} + \text{Const.} \quad (5.1)$$

ここで、 $V(H)$  は磁場強度の関数として得られる測定電圧値、 $V_{\text{Sym}}$ 、 $V_{\text{Asym}}$  は対称成分および反対称成分の振幅、 $H_0$  は強磁性共鳴磁場を表す。

図 5.4(c) に、昇温過程の各温度で 9 GHz を印加した場合の電圧スペクトルを示す。この図からも分かるように、図 5.3(a) で求めた  $T_{\text{tr}} = 333 \text{ K}$  の周辺で、出力スペクトルの線幅の明らかな増大が観測された。

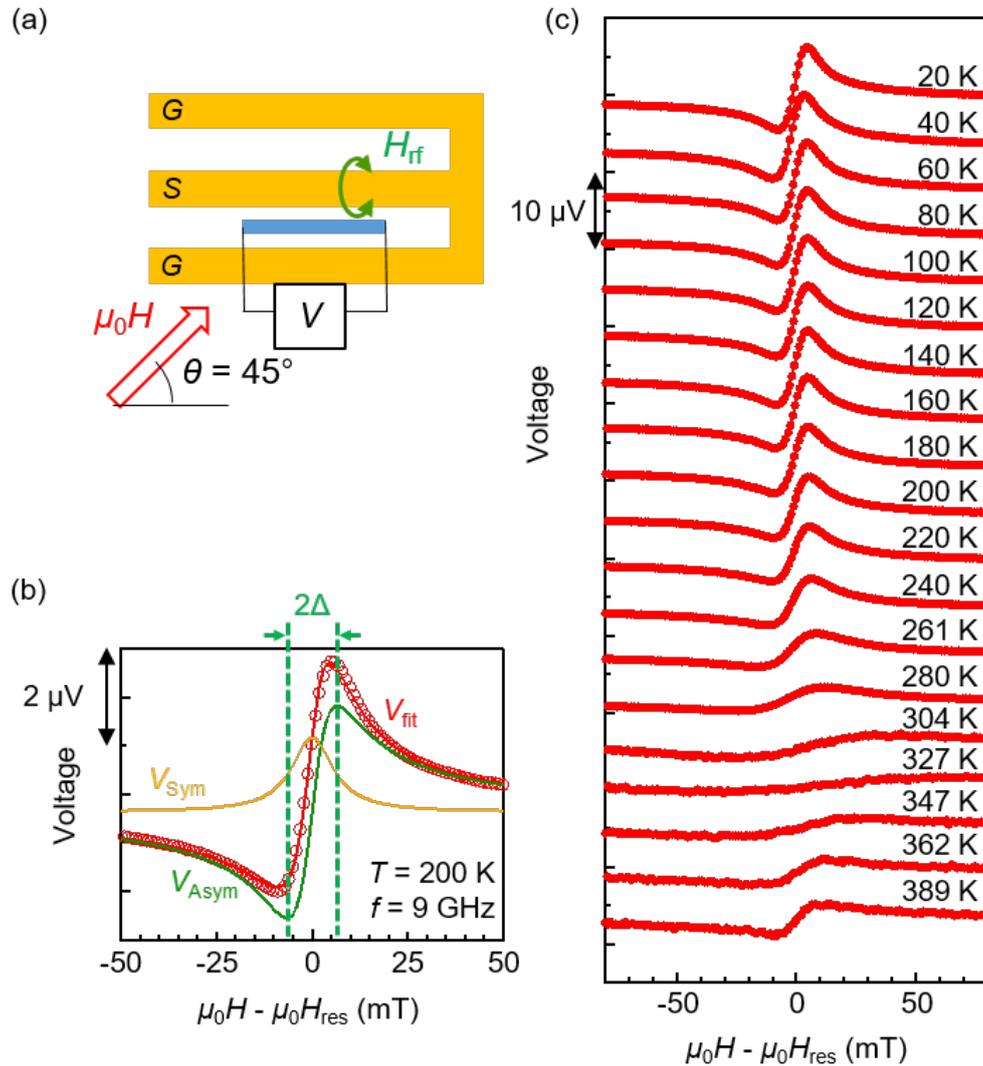


図 5.4: (a) 面内磁場角度  $\theta = 45^\circ$  で電圧測定した際の測定配置の模式図 . (b) 高周波信号の印加周波数 9 GHz, 入力電力 20 dBm で測定した 200 K での電圧信号. 式 (5.1) によるフィッティング曲線を併せて示している. (c) 昇温過程の各温度での三層膜試料の電圧信号. 周波数 9 GHz, 入力電力 20 dBm の高周波信号を印加して測定している. 電圧信号はオフセットしてプロットしてある.

### 5.2.2 有効ダンピング係数の決定

上述した手順で、昇温過程の各温度、各周波数での Ni-Fe の強磁性共鳴線幅  $\Delta$  を求めた。磁化ダイナミクスにおける緩和の強さを特徴づける有効ダンピング係数  $\alpha_{eff}$  は、次の式で求められる。

$$\mu_0\Delta = \frac{2\pi\alpha_{\text{eff}}}{\gamma}f + \mu_0\Delta_0 \quad (5.2)$$

$\gamma$  は磁気回転比、 $f$  は印加される交流磁場の周波数、 $\Delta_0$  は強磁性体の界面状態に起因して現れる、周波数に依存しない定数項である。測定温度は 20 K から 395 K まで掃引し、各温度で 6 - 11 GHz の印加周波数で同様の強磁性共鳴測定を行ない、有効ダンピング係数  $\alpha_{\text{eff}}$  を求めた。図に示すように、強磁性共鳴線幅  $\Delta$  が印加周波数  $f$  に対して線形に増大する周波数帯での勾配の大きさから、式 (5.2) にしたがって有効ダンピング係数  $\alpha_{\text{eff}}$  を算出した。

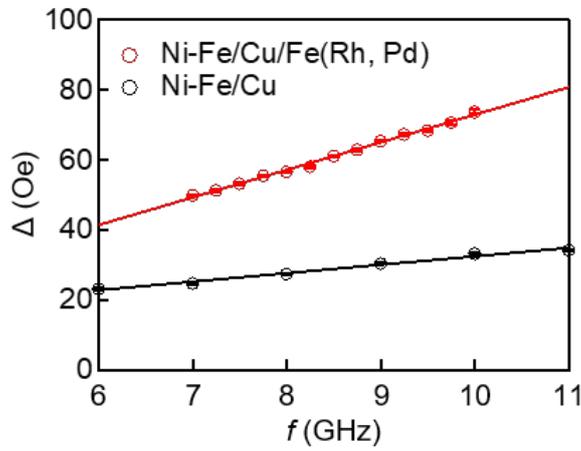


図 5.5:  $T = 200$  K での Ni-Fe/Cu/Fe(Rh, Pd) 三層膜試料および Ni-Fe/Cu 二層膜試料での Ni-Fe の強磁性共鳴線幅の印加周波数依存性。

図 5.6 に、Ni-Fe/Cu/Fe(Rh, Pd) 三層膜および参照試料である Ni-Fe/Cu 二層膜試料の各温度での  $\alpha_{\text{eff}}$  を示した。Fe(Rh, Pd) を含まない二層膜試料では温度に対してほとんど一定であったのに対して、三層膜試料では相転移温度  $T_{\text{tr}} = 333$  K の近傍で急峻なピーク構造が見られた。詳細なメカニズムの考察は 5.2.3 項で行なう。

### 5.2.3 有効スピンミキシング伝導度の決定

Fe(Rh, Pd) 層に注入されたスピン流は、参照試料と比較したときの緩和係数の増分から見積もることができる。接合界面でのスピン輸送を特徴づける有効スピンミキシング伝導度  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  は、Ni-Fe/Cu/Fe(Rh, Pd) 三層膜試料、Ni-Fe/Cu 二層膜試料での有効ダンピング係数  $\alpha_{\text{eff, Ni-Fe/Cu/Fe(Rh,Pd)}}$ 、 $\alpha_{\text{eff, Ni-Fe/Cu}}$  と以下の式で関連づけられる。

$$g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} = (\alpha_{\text{eff, Ni-Fe/Cu/Fe(Rh,Pd)}} - \alpha_{\text{eff, Ni-Fe/Cu}}) \frac{4\pi M_S t_{\text{Ni-Fe}}}{g\mu_B\mu_0} \quad (5.3)$$

ここで、 $g$  は Landé の  $g$  因子、 $\mu_B$  はボーア磁子、 $M_S$  と  $t_{\text{Ni-Fe}}$  は Ni-Fe の飽和磁化と膜厚である。昇温過程での  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の温度依存性を図 5.7 に示す。式 (5.3) の右辺で温度に依存して大

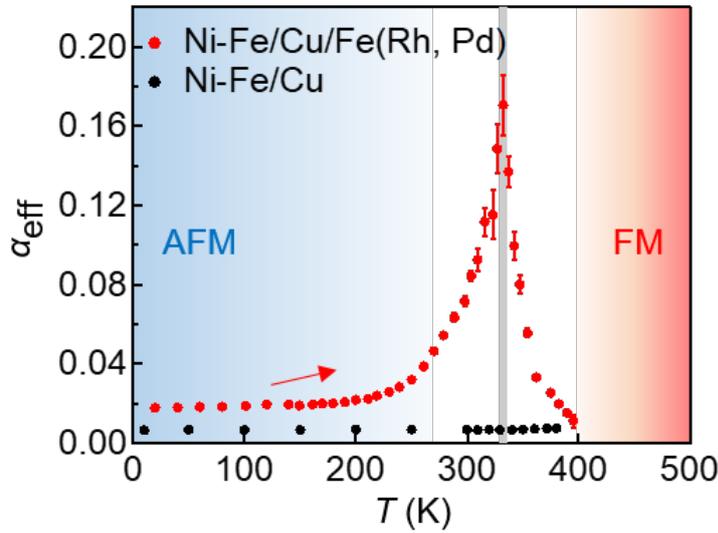


図 5.6: Ni-Fe/Cu/Fe(Rh, Pd) 三層膜試料および Ni-Fe/Cu 二層膜試料での Ni-Fe の有効ダンピング係数の昇温過程での温度依存性.

大きく変調するのは  $\alpha_{\text{eff, Ni-Fe/Cu/Fe(Rh, Pd)}}$  であるため、これと類似した温度依存性がみられる。それぞれの温度領域での  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の振る舞いを詳細にみていく。まず、反強磁性状態である 250 K 以下の低温領域では、 $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \sim 7 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$  程度であり、昇温に伴ってゆるやかに増大する。強磁性相への相転移温度に差しかかると、最大で  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} = 9.5 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$  と、低温領域と比較して一桁以上大きな値をとることが分かった。さらに  $T_{\text{tr}}$  より高温側の、試料中で強磁性状態が支配的になる温度領域では、昇温に伴って急速に減少していき、反強磁性状態よりも小さい値  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \sim 4 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$  をとることが分かった。

近年の実験研究から、 $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}/\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  などの強磁性体と反強磁性体の接合系では、反強磁性体のネールベクトルの方向に依存して強磁性体の磁気モーメントの緩和係数が変調されることが報告されている [101]。この緩和係数の変調効果は、反強磁性体の局所磁気モーメントへのスピン移行トルク (STT: Spin Transfer Torque) に由来しており、注入されるスピン流の偏極方向と反強磁性体の局所磁気モーメントが直交しているときに変調効果は最大になることが知られている。

Fe(Rh, Pd) の場合を考えると、発現している磁性相の種類によって STT の影響は変化することが予想される。高温側における強磁性相が発現している場合では、Fe(Rh, Pd) の磁気モーメントは外部磁場と平行になり、スピン流の偏極方向とも平行配置をとる。一方、低温側における反強磁性相では、磁気モーメントの方向は外部磁場による影響を受けにくい。Marti らの先行研究では、9 T 以下の磁場下では反強磁性相の Néel ベクトルは磁場方向に依存しないことが示されている [102]。反強磁性相の Néel ベクトルは磁場下冷却することで制御できるが、今回の実験では冷却時に磁場を印加していないため、磁気モーメントは配向していないと考え

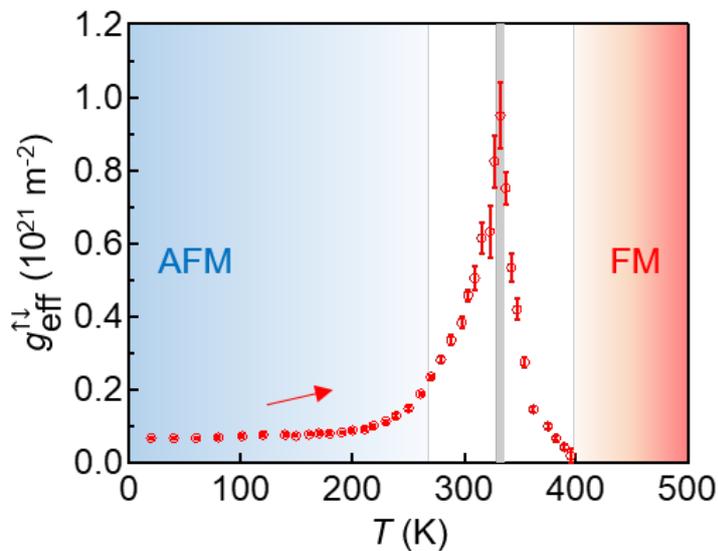


図 5.7: Ni-Fe/Cu/Fe(Rh, Pd) 三層膜試料の有効スピンミキシング伝導度の昇温過程での温度依存性.

られる。よって外部磁場の方向に依存しないランダムな方向に磁気モーメントが向いているため、強磁性相の場合に比べて、STTによる磁気モーメントの緩和が増大すると考えられる。実際、相転移温度から離れた領域での  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  をみると、Fe(Rh, Pd) が反強磁性状態にある低温領域の方が、強磁性状態にある高温領域と比較して大きくなっている。

また、両方の磁性相が混在している相転移点付近では、STTの影響は強磁性相と反強磁性相の中間値をとるはずである。しかし、図 5.7 に示した実験結果では、相転移温度周辺で中間値よりもはるかに大きな  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  が観測されていることから、STTによる緩和定数の増大効果は無視できるほど小さいことが分かる。

そのため、今回 Fe(Rh, Pd) の転移点付近で観測された緩和定数の急激な増大効果は、2.2.4 項で述べたような、スピン吸収体の交流磁化率の増幅に由来するものと考えられる [34]。そこで、従来研究との比較を行うために、強磁性-常磁性相転移点 [37, 103] および反強磁性-常磁性相転移点 [38, 104, 103] でのスピンミキシング伝導度の増分をまとめて、表 5.1 に示した。ここから、Fe(Rh, Pd) では、その他の磁性体における相転移に比べて、1桁程度大きな増分が観測されていることが分かった。

スピンプンピング法を用いて金属磁性体にスピン流を注入する際には、伝導電子による輸送 (ET: electric transport) と、金属強磁性体中での磁化の励起による輸送 (MT: magnonic transport) の2つの寄与が混在している [105]。これらの2つの輸送プロセスは、図 5.8 に示すように、試料構造を変えることで強度を変化させることができる [104]。

強磁性体/金属磁性体二層膜のように、スピン流源と直接接合した場合には、ETとMTの双方によるスピン流輸送が混在している [106]。一方、Cuなどの非磁性金属を中間層として挿入

表 5.1: 磁気相転移温度での  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の増分の比較.

物質	Fe(Rh, Pd)	Ir <sub>20</sub> Mn <sub>80</sub> [38]	Ir <sub>20</sub> Mn <sub>80</sub> [104]	Fe <sub>25</sub> Pt <sub>75</sub> [37]	BiFeO <sub>3</sub> [103]
磁性相	AFM-FM	AFM-PM	AFM-PM	FM-PM	AFM-PM
相転移の次数	1st order	2nd order	2nd order	2nd order	2nd order
Cu 層の挿入	Yes	Yes	No	No	No
スピン流輸送	ET	ET	ET + MT	ET + MT	MT
$\Delta g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$ [m <sup>-2</sup> ]	$9 \times 10^{20}$	$5 \times 10^{18}$	$1.2 \times 10^{20}$	$1.0 \times 10^{20}$	$0.7 \times 10^{20}$

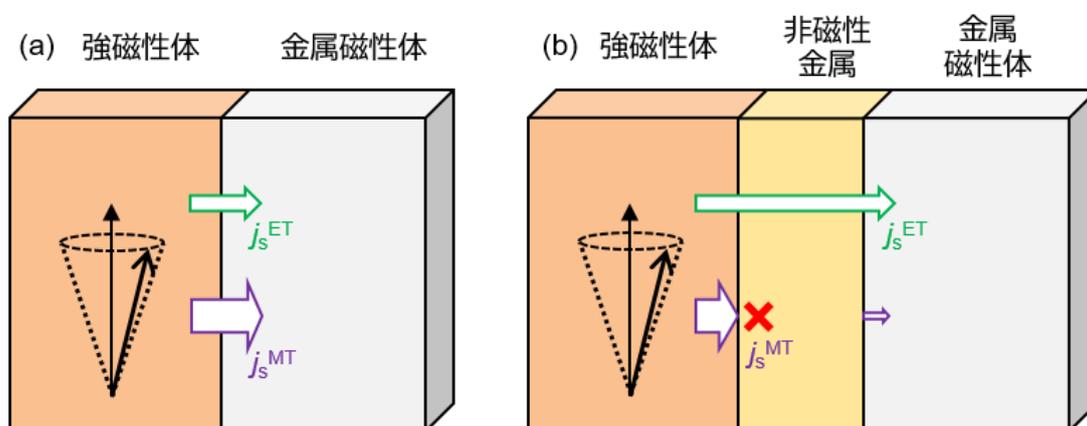


図 5.8: (a) 強磁性体/金属磁性体の二層構造および (b) 強磁性体/非磁性金属/金属磁性体の三層構造でのスピン注入の模式図.

した試料（例えば、強磁性体/非磁性金属/金属磁性体の三層構造）の場合には、非磁性金属中では ET によるスピン輸送のみが生じるため、MT が抑制され ET が支配的になることが予想される。

反強磁性体 Ir<sub>20</sub>Mn<sub>80</sub> 合金へのスピン注入に関する先行研究では、ET および MT の両方が、相転移温度でのスピンミキシング伝導度の増大に影響することが示された [38, 104]。また、Ni-Fe/Ir-Mn 試料と Ni-Fe/Cu/Ir-Mn 試料とでの比較から、ET と比較して MT がスピンミキシング伝導度の増大により大きく寄与することが指摘されている。

ここで、我々の Fe(Rh, Pd) 薄膜での測定結果を見ると、スピン流源である Ni-Fe と Fe(Rh, Pd) の間に Cu 層を挿入しているため、ET が支配的であると考えられる。それでもなお、他の二次相転移物質と比較して、一桁程度大きな  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の増大がみられた。

これらの結果から、Fe(Rh, Pd) 薄膜では二次相転移材料と比較して、相転移点近傍において、はるかに大きな交流スピン磁化率の変化が生じていることが推察される。

## 5.3 逆スピホール効果の検出

この項では、Fe(Rh, Pd) 薄膜で生じる逆スピホール効果の検出実験について述べる。スピポンピングにより生じたスピ流は、接合界面に垂直な方向、すなわち試料の面直方向に流れる。Fe(Rh, Pd) の逆スピホール効果が生じれば、これが面内方向の電流へと変換される。

### 5.3.1 逆スピホール電圧の測定配置

図 5.9(a) に、逆スピホール効果検出時の測定配置を示す。スピ流の直流成分の偏極方向は、面内直流磁場  $\mu_0 H$  と平行である。逆スピホール電流は面直に流れるスピ流とスピ偏極方向との外積方向に生じるので、電圧端子と垂直な面内磁場を印加した配置 ( $\theta = 90^\circ$ ) で、逆スピホール信号は最大になる。この配置で、周波数 9 GHz、入力電力 22 dBm(158 mW) の交流電流を印加し、面内磁場を掃引しながら電圧測定を行なった。図 5.9(b) に、200 K で測定された電圧信号を示す。フィッティングには式 (5.1) に示した関数を用い、共鳴磁場に対して対称な電圧信号の振幅を逆スピホール電圧値  $V_{ISH}$  とした。図 5.9(c) には、各温度で測定された電圧信号スペクトルを示す。測定はすべて昇温過程で行なっている。

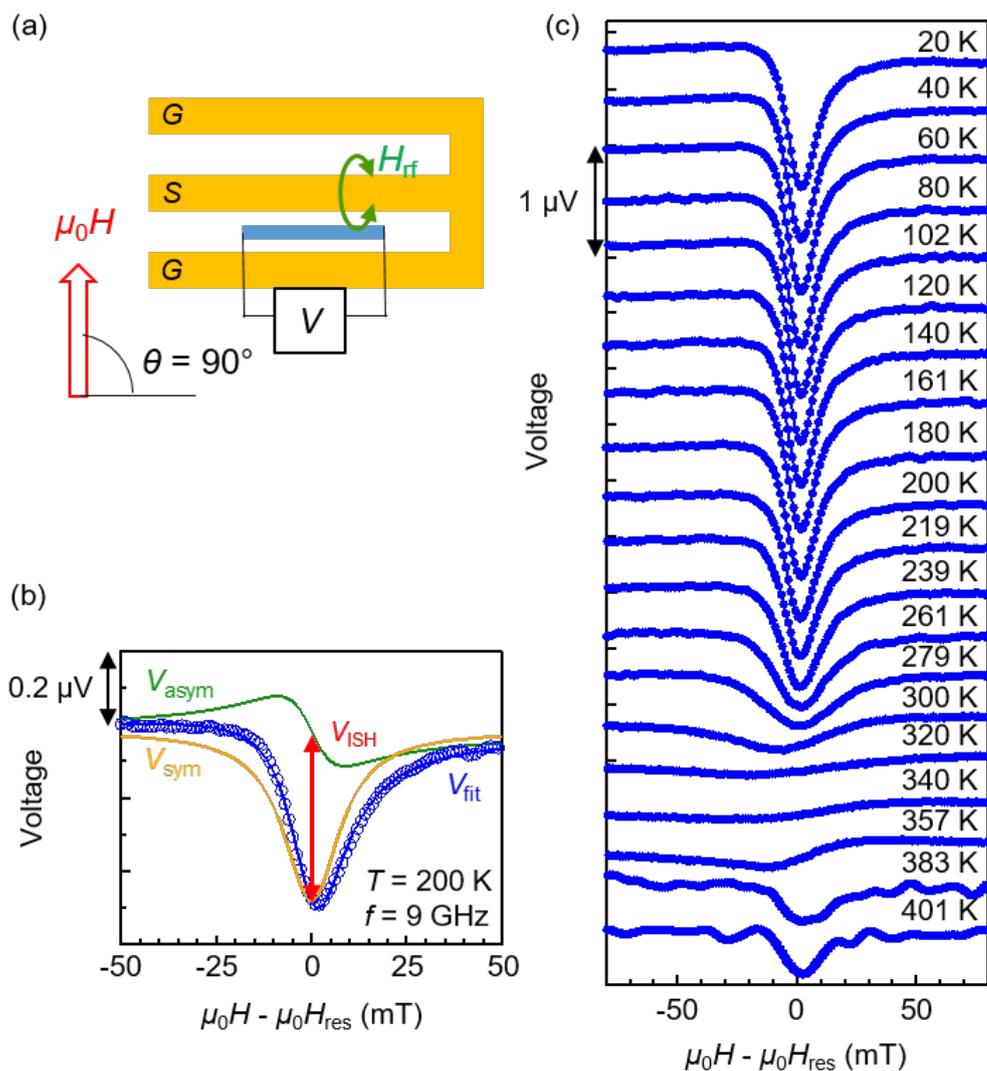


図 5.9: (a) 面内磁場角度  $\theta = 90^\circ$  で測定した際の測定配置の模式図 . (b) 高周波信号の印加周波数 9 GHz, 入力電力 22 dBm で測定した 200 K での電圧信号. 式 (5.1) によるフィッティング曲線を併せて示している. (c) 昇温過程の各温度での三層膜試料の電圧信号. 周波数 9 GHz, 入力電力 22 dBm の高周波信号を印加して測定している. 電圧信号はオフセットしてプロットしてある.

## 5.3.2 逆スピンホール電流値の温度依存性

逆スピンホール電圧値  $V_{\text{ISH}}$  と矩形試料の二端子抵抗値  $R$  から、逆スピンホール電流値  $I_{\text{ISH}} = V_{\text{ISH}}/R$  を得た。 $I_{\text{ISH}}$  の昇温過程での温度依存性を図 5.10(a) に示す。測定された 10 K から 400 K の範囲で、 $I_{\text{ISH}}$  の符号は常に負であった。これは、Fe(Rh, Pd) のスピンホール角  $\theta_{\text{SH}}$  の符号が負であることを示しており、Fe-Rh 合金系の  $\theta_{\text{SH}}$  の符号を決定した初めての実験結果である。第一原理計算で得られたスピンホール伝導度は、反強磁性状態と強磁性状態とで逆符号をとることが指摘されている [84] が、この相違が生じた原因としては、Pd を添加したことによるスピンホール効果への外因性機構の寄与やフェルミ準位の変調が考えられる。

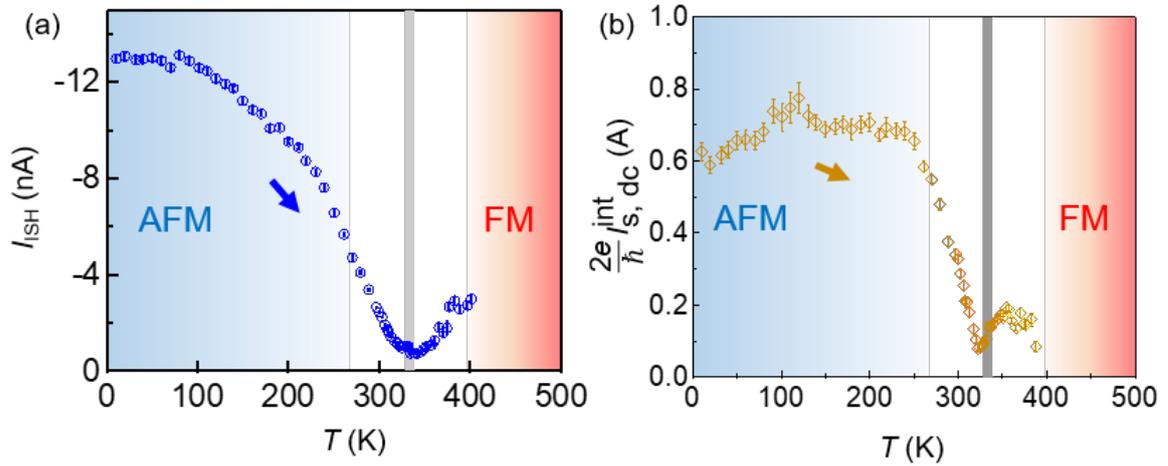


図 5.10: (a)Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の逆スピンホール電流値  $I_{\text{ISH}}$  の昇温過程での温度依存性。(b)Fe(Rh, Pd) 層へ注入されるスピン流の dc 成分。

次に、 $\theta_{\text{SH}}$  を見積もるために注入されたスピン流  $I_{\text{s,dc}}^{\text{int}}$  の温度依存性を図 5.10(b) に示した。 $I_{\text{s,dc}}^{\text{int}}$  は次の式で書ける。

$$\frac{2e}{\hbar} I_{\text{s,dc}}^{\text{int}} = elwfPg_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \sin^2 \theta_{\text{cone}} \quad (5.4)$$

ここで、 $\hbar = h/(2\pi)$  は Dirac 定数、 $e$  は素電荷、 $l$  および  $w$  は矩形試料の長さおよび幅、 $f$  は印加周波数である。また、強磁性体の磁化の歳差運動に関連した量として、歳差運動の軌道の楕円補正係数を  $P$ 、直流磁場と磁気モーメントのなす角であるコーン角を  $\theta_{\text{cone}}$  としている。スピン流を電流の次元で表すために、左辺には定数係数  $2e/\hbar$  をかけている。また、今回の試料では 10 nm の Cu を Ni-Fe と Fe(Rh, Pd) の間に挿入しているが、Cu の膜厚は Cu のスピン拡散長と比較して十分短いため [107]、Cu 層内でのスピン散逸は無視できる。右辺のうち、温度に依存しているパラメータは  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$ 、 $P$ 、および  $\theta_{\text{cone}}$  である。このうち  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の温度依存性は既に図 5.7 に示した。式 (2.72) に示した楕円補正係数  $P$  は、次のように書き直せる [47]。

$$P = \frac{f \left[ \gamma M_S + \sqrt{(\gamma M_S)^2 + f^2} \right]}{(\gamma M_S)^2 + f^2} = \frac{X + \sqrt{X^2 + 1}}{X^2 + 1}, \quad X = \gamma M_S / f \quad (5.5)$$

Ni-Fe の飽和磁化  $M_S$  は測定した温度領域では大きく変化しないため、 $P$  の温度依存性も小さい。一方、コーン角  $\theta_{\text{cone}} = h_{\text{rf}} / (2\Delta)$  は相転移温度周辺で大きく変調される。ここで  $h_{\text{rf}}$  は交流磁場強度、 $\Delta$  は強磁性共鳴線幅 (半値半幅) である。前節でみたように、 $\Delta$  は相転移温度周辺で大きくなるため、これに伴って  $\theta_{\text{cone}}$  は急激に減少する。緩和トルクは磁化と垂直な方向にかかるため、緩和が強くとコーン角が小さい、すなわち磁化と直流磁場の方向が近い場合には、緩和トルクの直流磁場方向への射影成分が小さくなる。

式 (5.4) に示したように、 $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の増大が  $\sin^2 \theta_{\text{cone}}$  の急激な減少によって相殺されることで、 $I_{\text{s,dc}}^{\text{int}}$  は相転移温度付近で減衰する。逆スピンホール効果に寄与するスピン流の直流成分が小さくなるために、結果として、生成される電流  $I_{\text{SH}}$  も相転移温度付近で減衰することが分かった。次節では、スピン流から電流への変換効率について議論する。

## 5.4 スピンホール角およびスピン拡散長の温度依存性

逆スピンホール効果による面直方向のスピン流から面内方向の電流への変換は、スピンホール角  $\Theta_{\text{SH}}$  とスピン拡散長  $L_{\text{sd}}$  を用いて次のように書ける。

$$I_{\text{SH}} = \Theta_{\text{SH}} L_{\text{sd}} \tanh \left( \frac{t_{\text{FeRh}}}{2L_{\text{sd}}} \right) e w f P g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \sin^2 \theta_{\text{cone}} \quad (5.6)$$

$t_{\text{FeRh}}$  は Fe(Rh, Pd) の膜厚であり、今回の試料では 60 nm である。式 (5.6) のうち、ここまでに  $\Theta_{\text{SH}}$  と  $L_{\text{sd}}$  以外のパラメーターを決定してきた。しかしながら、今回の実験ではこれら 2 つを独立に決定することができない。スピンプンピング測定でスピン拡散長を決定する際には、通常は膜厚を変えた複数の試料について測定を行なう。典型的な反強磁性金属では、スピン拡散長はおよそ 1 nm 程度であることが知られており [26, 108]、これと同程度の膜厚をもつ薄膜を用意する必要がある。しかし、FeRh 合金薄膜は膜厚が 10 nm 以下の場合には、相転移温度が大きく変化することが知られており、FeRh 合金の膜厚依存性からスピン拡散長を同定することは非常に困難である [109, 110, 111]。そこで、スピン変換効率を特徴づける特性長として、スピンホール角とスピン拡散長の積 ( $\Theta_{\text{SH}} \times L_{\text{sd}}$ ) を算出した。なお、今回用いた Fe(Rh, Pd) 薄膜の膜厚  $t_{\text{FeRh}} = 60$  nm は、他の反強磁性金属での報告値から期待されるスピン拡散長 (~1 nm) より十分長いこと [26, 108]、式 (5.6) 中の  $\tanh [t_{\text{FeRh}} / (2L_{\text{sd}})]$  は 1 と近似できる。

( $\Theta_{\text{SH}} \times L_{\text{sd}}$ ) の温度依存性を図 5.11 に示す。250 K 以下の反強磁性状態では、昇温に伴って単調に減少し、250 K 付近では 10 K に比べて約半分程度になることが分かった。金属中のスピン拡散機構について、Elliott-Yafet 機構が支配的であったとすると、 $L_{\text{sd}}$  は縦伝導度におおよそ比例する [112]。図 5.3(a) に示したように、Fe(Rh, Pd) 単層薄膜試料では、10 K から 250 K への昇温に伴って電気伝導度が約半分程度にまで減少することから、250 K 以下での ( $\Theta_{\text{SH}} \times L_{\text{sd}}$ ) の減少は、 $L_{\text{sd}}$  の温度依存性で説明しうると考えられる。

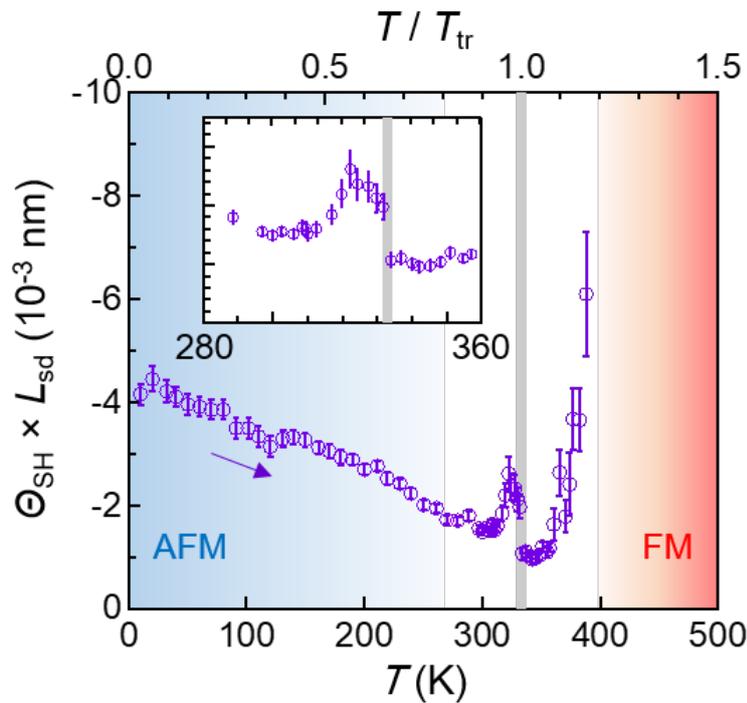


図 5.11: Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜のスピンホール角とスピン拡散長の積. 図中図は相転移温度付近の拡大.

一方で、グレーで示した相転移温度  $T_{tr}$  よりも 11 K 低い 322 K 付近で、 $(\Theta_{SH} \times L_{sd})$  がピークをもつことが分かった。この温度領域では電気伝導度の異常は見られないことから、低温側の反強磁性相とは異なり、 $(\Theta_{SH} \times L_{sd})$  の温度依存性はスピン拡散長の温度変化以外の要因で誘起されていることが考えられる。

これまでも示してきたように、強磁性体のキュリー点近傍でのスピンホール効果の変調については、いくつかの金属で報告されている [33, 37]。これらの変調効果は、キュリー点近傍における中間磁気状態において、発散的な温度変化をする高次の非線形磁化率が、スキュー散乱確率に寄与することで誘起されていると考えられている [36]。

一方、Fe(Rh, Pd) における反強磁性-強磁性相転移点では、一次相転移であるために、中間状態は存在せず反強磁性ドメインと強磁性ドメインの共存状態が発現する。相転移点付近での磁気状態は XMCD 分光測定によって FeRh 薄膜上で観察されており [94, 96]、Fe(Rh, Pd) 薄膜でも同様の相分離構造が発現する。そして昇温過程では、反強磁性体の試料中に 0.1 - 1  $\mu\text{m}$  程度のサイズの強磁性ドメインが核形成され、拡大していくことで相転移が進行する。今回  $(\Theta_{SH} \times L_{sd})$  のピークが観測された温度領域では、反強磁性相が支配的であり、比較的小さな強磁性ドメインが反強磁性体中に分散した相分離構造が生じていると考えられる。このことから、Fe(Rh, Pd) の相転移点近傍での  $(\Theta_{SH} \times L_{sd})$  の増大効果は、反強磁性状態の中に分散した強磁性ドメイン同士が長距離の相関をもち、スキュー散乱機構に寄与することで、強磁性体の

キュリー点近傍と同様の効果を誘起している可能性がある [36]。

## 5.5 本章の小括

本章では、Pd添加 Fe-Rh 合金薄膜を対象として、スピポンピングによるスピ流の注入と、スピ流から電流への変換現象である逆スピホール効果の検出に関する実験結果を示した。非磁性体を介して接合した強磁性 Ni-Fe 合金からのスピ注入では、反強磁性-強磁性相転移温度で、強磁性体のキュリー温度、反強磁性体のネール温度での報告と比較して極めて大きな有効スピミキシング伝導度の増大が生じることを明らかにした。これは一次相転移点近傍における大きな交流スピ磁化率の変化を反映していると考えられる。また、Pd添加 Fe-Rh 合金薄膜の逆スピホール効果は、反強磁性相、強磁性相ともに、スピホール角が負符号であることを示した。また、スピ流-電流変換効率、相転移温度の直下でピーク構造を示すことが分かった。このスピ変換効率の増大効果の具体的な機構は明らかでないが、反強磁性-強磁性相転移点に特有である不均一な磁気状態が関連していると考えられる。これらの物理機構を明らかにすることで、スピホール効果の大きさを制御する新たな手法の開拓につながることを期待される。

## 第 6 章

# Ni-Cu 合金薄膜の逆スピホール効果の測定

この章では、Ni-Cu 合金薄膜を対象としてスピポンピング測定を行ない、逆スピホール効果の温度依存性を評価した。Ni-Cu 合金は、組成比に応じて強磁性-常磁性相転移温度  $T_C$  が変化する [113]。近年では、系統的に組成比を変調させた Ni-Cu 合金において、室温でのスピトルク効率が Pt よりもはるかに大きくなることが示され、注目を集めている [41]。しかし、物質の磁気秩序がスピホール効果にどのようにかかわっているのかは一般に明らかでなく、Ni-Cu 合金においても、磁性相の変化と大きなスピホール効果の因果関係は示されていない。

本章の研究では、Ni-Cu 合金の組成比を固定し温度掃引して、キュリー温度近傍およびその前後における逆スピホール効果の変化を調べた。これにより、強磁性相、常磁性相でどのようなスピ散乱機構が寄与しているのかについても考察した。

### 6.1 試料作製と測定手順

Ni-Cu 合金薄膜についての実験では、前章の Pd 添加 Fe-Rh 合金層を  $\text{Ni}_{55}\text{Cu}_{45}$ (Ni-Cu) 合金層で置換した、 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ (Ni-Fe, 10 nm)/Cu(10 nm)/Ni-Cu(10 nm) の三層膜構造と、スピ流源との間の非磁性金属 (Cu) 層を除いた Ni-Fe(10 nm)/Ni-Cu(10 nm) の二層膜構造を用いて、それぞれスピポンピングによって、逆スピホール効果の評価を行なった。なお、いずれの積層構造にも酸化保護膜として  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を表面に 5 nm 成膜している。この節ではまず、Ni-Cu 合金薄膜の成膜法を述べてから、多層膜構造とスピポンピング素子の作製について述べる。

Ni-Cu 合金は DC マグネトロンスパッタ法で、 $\text{SiO}_2/\text{Si}$  基板上に成膜された。成膜源として単一の合金ターゲット (組成 :  $\text{Ni}_{55}\text{Cu}_{45}$ ) を用いた。到達圧力は  $6 \times 10^{-5}$  Pa、Ar ガス流量は 7.8 sccm で、成膜時圧力が  $3.0 \times 10^{-1}$  Pa となるようにバルブを調整したのち、印加電力 50 W で室温で成膜した。膜厚は成膜時間によって制御し、原子間力顕微鏡を用いた膜厚測定で校正した。

Ni-Cu 層を成膜した後、真空チャンバー内で試料台を移動し、Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料の作製時には Cu 層と Ni-Fe 層を、Ni-Fe/Ni-Cu 試料の場合には Ni-Fe 層のみを 3.1.3 項に述べた手順で成膜した。その後、酸化保護膜として  $\text{Al}_2\text{O}_3$  を RF スパッタで成膜し、これらを多層膜試料とした。

5.1 節では、Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の成膜過程に高温での熱処理が含まれていたために成膜前にレジストを塗布できず、Ar イオンミリングによるパターン形成を行っていた。これに対して本章の Ni-Cu 合金薄膜の成膜は室温で行なっているため、成膜前にレジストを塗布するリフトオフ法での素子作製が可能である。このため本章で扱うスピポンピング素子の作製時には、多層膜試料、電極および導波路のいずれも、3.2.3 項で述べたリフトオフ法でパターン形成した。矩形素子のサイズは長さ  $50\ \mu\text{m}$ 、幅  $10\ \mu\text{m}$  である。電極および導波路の作製については 3.3.4 項を参照されたい。

## 6.2 Ni-Cu 合金薄膜の磁気特性

まず、本章のスピポンピング測定に用いた Ni-Cu 合金薄膜の相転移温度を調べるために、磁化の温度依存性を測定した。この結果を図 6.1 に示す。薄膜試料の成膜源である合金ターゲットの組成比は  $\text{Ni}_{55}\text{Cu}_{45}$  で、膜厚は  $10\ \text{nm}$  である。測定は、磁化方向をそろえるため面内磁場  $1\ \text{kOe}$  を印加しながら低温から高温へと温度掃引した。

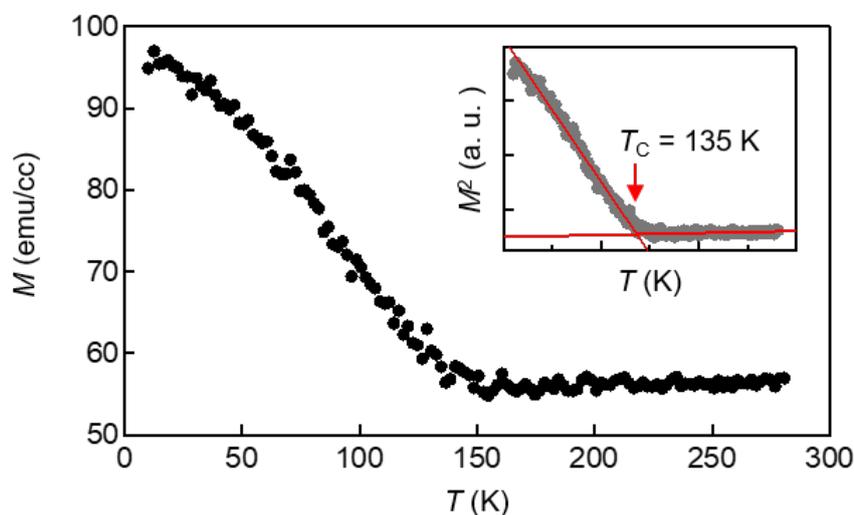


図 6.1:  $\text{Ni}_{55}\text{Cu}_{45}$  合金薄膜 ( $10\ \text{nm}$ ) の磁化の温度依存性. 図中図には  $M^2$  の温度依存性と、それから求めた強磁性-常磁性相転移温度  $T_C$  を示す.

合金薄膜の相転移温度は、 $T_C$  周辺で磁化が  $M(T) \propto (T_C - T)^{1/2}$  に従って温度変化するとして、 $M^2 - T$  プロットの線形近似から決定した。今回成膜した試料の  $T_C$  は  $135\ \text{K}$  であり、組成比から期待される相転移温度と一致することを確認した [113]。

なお、今回用いた  $\text{Ni}_{55}\text{Cu}_{45}$  合金の飽和磁化は  $\mu_0 M_S = 0.12 \text{ T}$  程度であった。スピン注入源である Ni-Fe 合金の飽和磁化は室温で  $0.98 \text{ T}$  であり、 $\text{Ni}_{55}\text{Cu}_{45}$  合金と比較して十分に大きい。このため、強磁性状態の  $\text{Ni}_{55}\text{Cu}_{45}$  合金は、Ni-Fe 合金より十分に高い強磁性共鳴磁場を示す。ゆえに、今回の測定では、スピンプンピングを行なう Ni-Fe 合金の共鳴磁場近傍では  $\text{Ni}_{55}\text{Cu}_{45}$  合金の強磁性共鳴誘起による影響は無視できるほど小さいと考えられる。

### 6.3 スピン輸送特性の評価

本節では、Ni-Cu 合金へのスピンプンピングによるスピン注入と、逆スピホール効果の測定結果を述べていく。測定に用いたスピンプンピング素子は、図 5.1(b) に示している、前章で用いた素子と同様の構造である。逆スピホール効果の検出時には、電極端子と垂直な方向の面内磁場を掃引して測定した。測定の配置と電圧測定例を図 6.2(a) に示している。印加周波数は  $9 \text{ GHz}$ 、入力電力は  $20 \text{ dBm}(100 \text{ mW})$  とした。この測定から、式 (5.1) を用いたフィッティングによって図 6.2(b) に示すように強磁性共鳴線幅  $\Delta$  と逆スピホール電圧値  $V_{\text{ISH}}$  を各温度で決定し、後に示す解析を行なった。測定は、すべて低温から高温へと昇温する過程で行なわれている。

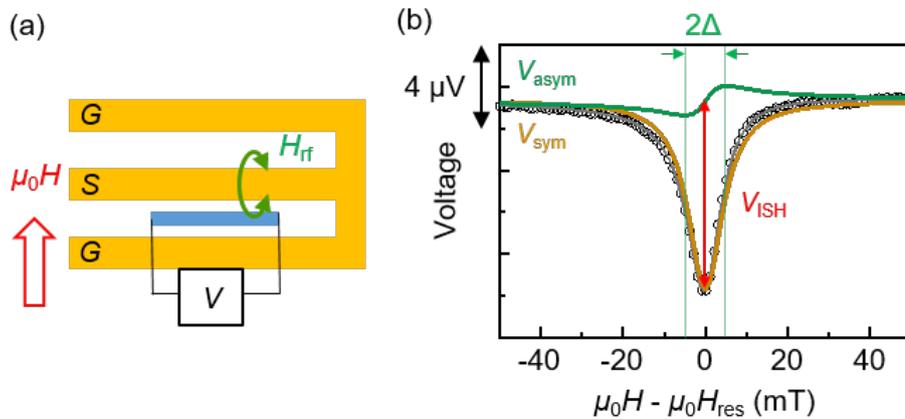


図 6.2: (a) 逆スピホール電圧測定の測定配置. 導波路に印加した交流電流の誘導磁場として面直交流磁場  $H_{\text{rf}}$  を生じ、電圧端子方向に直交した面内直流磁場  $H_{\text{dc}}$  を掃引しつつ電圧を測定する. (b) Ni-Fe/Ni-Cu 試料の室温での電圧測定例. 式 (5.1) でのフィッティングから逆スピホール電圧  $V_{\text{ISH}}$  と強磁性共鳴線幅  $\Delta H$  を求める.

#### 6.3.1 有効スピンミキシング伝導度

有効スピンミキシング伝導度は以下の式で求めた。

$$g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} = (\Delta - \Delta_{\text{ref}}) \frac{2\gamma M_S t}{g\mu_B f} \quad (6.1)$$

ここで、 $\Delta$  は Ni-Fe/Ni-Cu 試料あるいは Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料の共鳴線幅、 $\Delta_{\text{ref}}$  は参照試料 (Ni-Fe) の共鳴線幅、 $\gamma$  は磁気回転比、 $M_S$  は Ni-Fe 合金の飽和磁化、 $t$  は Ni-Fe 合金の膜厚、 $g$  はランダウの  $g$  因子、 $\mu_B$  はボーア磁子、 $f$  は印加周波数である。昇温過程で測定した  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の温度依存性を図 6.3 に示す。

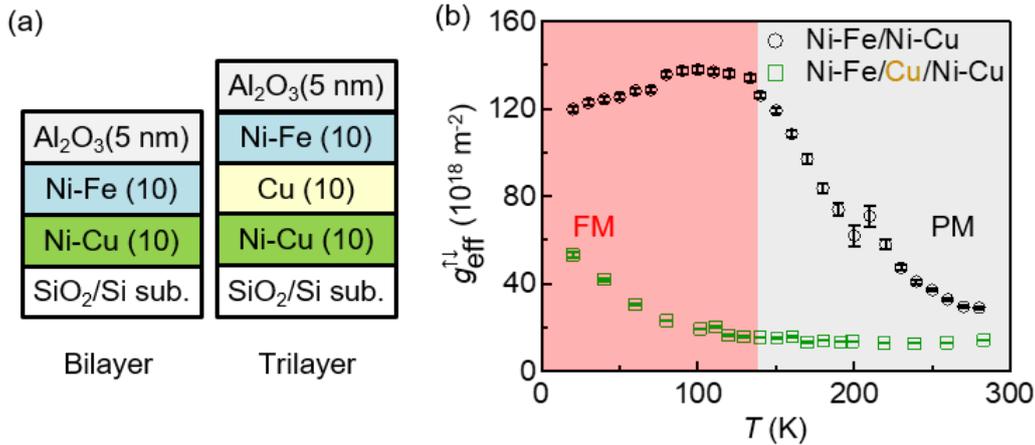


図 6.3: (a) Ni-Fe/Ni-Cu 試料および Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料の積層構造. (b) 有効スピンミキシング伝導度  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の温度依存性. 強磁性 (FM)-常磁性 (PM) 相転移温度の前後で色分けしている。

5.2.3 項で議論したように、金属磁性体でのスピン流輸送には、伝導電子スピンによる輸送 (ET) および磁化の励起による輸送 (MT) の両方が寄与する。今回測定した 2 つの試料を考えると、Ni-Fe/Ni-Cu 試料では ET と MT の両方が寄与し、Cu を挿入した Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料では ET が支配的になり、Ni-Cu へスピン注入されると考えられる。

図 6.3 の  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の温度依存性をみると、Ni-Fe/Ni-Cu 試料では明確な強磁性-常磁性相転移温度での増大が見られた。この増分は  $\Delta g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \approx 1.0 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$  程度であり、表 5.1 に示したように、スピン流源と直接接合した Ir-Mn 合金 [104] および Fe-Pt 合金 [37] で観測された増分と同程度である。

一方で、Ni-Fe との間に Cu を挿入した Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料では、相転移温度での  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の増大は検出されなかった。非磁性体である Cu をスピン流源の Ni-Fe との間に挿入しているために、Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料では MT によるスピン流伝搬は抑制され、スピン注入には ET が支配的に寄与する。先行研究では反強磁性 Ir-Mn 合金へのスピン注入において、Cu の挿入によって MT が抑制された試料では、Cu を挿入していない試料と比較して一桁程度小さな緩和係数の増幅が相転移温度で観測された [38, 104]。今回の試料でも、ET によるスピン注入の増幅が MT と比較して十分に小さかったために、ET によるスピン流輸送が支配的な Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料では、相転移温度周辺でのスピンミキシング伝導度の変化が小さく、検出されなかったと考えられる。

### 6.3.2 逆スピホール効果の検出

続いて、Ni-Fe/Ni-Cu 試料、Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料の逆スピホール電圧を温度ごとに測定した。前章と同様に、逆スピホール電圧値  $V_{\text{ISH}}$  と矩形試料の二端子抵抗値  $R$  から、 $I_{\text{ISH}} = V_{\text{ISH}}/R$  として逆スピホール電流値  $I_{\text{ISH}}$  を得た。昇温過程での  $I_{\text{ISH}}$  の温度依存性を図 6.4 に示す。

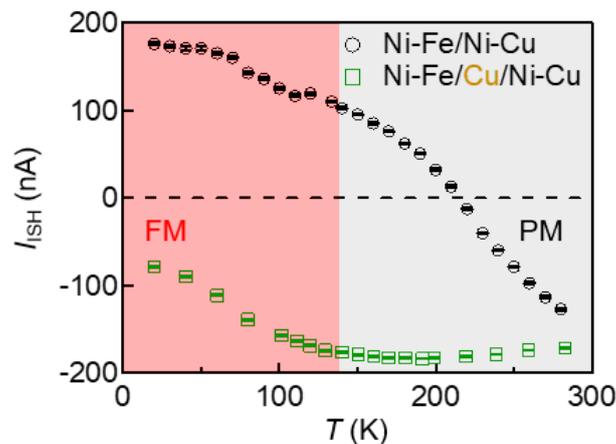


図 6.4: 逆スピホール電流値  $I_{\text{ISH}}$  の温度依存性. FM-PM 相転移温度の前後で色分けしている。

Ni-Fe/Ni-Cu 試料と Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料とでは、 $I_{\text{ISH}}$  の温度依存性が大きく異なることが分かった。まず、Ni-Fe/Ni-Cu 試料の方を見てみると、 $I_{\text{ISH}}$  は強磁性状態では正の値を示しており、昇温に伴って小さくなっている。215 K あたりで符号反転して、室温では負符号となる。一方で Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料では、強磁性状態では温度変化が大きく、反対に常磁性状態ではほぼ温度に対して一定の値であった。また、測定した温度範囲では常に負符号であった。

前項で述べたように、Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料では伝導電子が Ni-Cu 中でのスピ流輸送に寄与しているのに対し、Ni-Fe/Ni-Cu 試料ではこれに加えて磁化の励起によって伝播されるスピ流も考慮する必要がある。Saglam らによる反強磁性金属 FeMn 合金を用いた実験では、ET によるスピ流と比較して、MT によるスピ流は 5 倍程度長い拡散長をもつことが指摘されており [105]、両者はそれぞれ異なる散乱機構を介して拡散していると考えられる。ET によるスピ流と MT によるスピ流の変換機構の違いとスピホール角の符号反転の関係については、非常に興味深い課題であるが、未だ解明に至っていない。本章の以下の項では、まず Ni-Cu 中の伝導電子由来の逆スピホール効果を理解するために、Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料での測定結果を用いて議論する。

### 6.3.3 スピンホール角

ここまで求めてきた有効スピンミキシング伝導度と逆スピンホール電流値を用いて、スピンホール角  $\theta_{\text{SH}}$  を算出した。スピンホール角  $\theta_{\text{SH}}$  は、前章で示したのと同様、次の式で書き表される。

$$\theta_{\text{SH}} = I_{\text{SH}} \left[ L_{\text{sd}} \tanh \left( \frac{t_{\text{NiCu}}}{2L_{\text{sd}}} \right) e w f P g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \sin^2 \theta_{\text{cone}} \right]^{-1} \quad (6.2)$$

ここで、 $L_{\text{sd}}$ 、 $t_{\text{NiCu}}$  はそれぞれ Ni-Cu 合金のスピン拡散長、膜厚である。今回の実験ではスピン拡散長を独立に決定することは出来ないため、文献 [114] で  $\text{Ni}_{65}\text{Cu}_{35}$  合金について報告されている値を用いる。これによれば、スピン拡散長は室温で 1.21 nm、20 K で 2.14 nm であり、昇温に伴って単調に短くなる、金属的振る舞いを示す。スピンホール角  $\theta_{\text{SH}}$  の温度依存性を図 6.5 に示す。

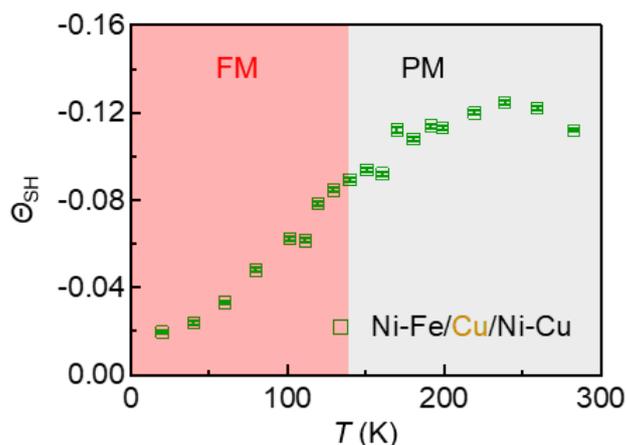


図 6.5: Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料のスピンホール角  $\theta_{\text{SH}}$  の温度依存性. FM-PM 相転移温度の前後で色分けしている。

Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料でのスピンホール角は測定した全温度領域 (20 - 300 K) で負であったため、ここでは負の値が上側になるように縦軸をとっている。 $\theta_{\text{SH}}$  の温度依存性をみると、強磁性状態では、20 K では -2% 程度であったのが昇温に伴って増大していき、 $T_{\text{C}} = 135$  K で -9% 程度になる。常磁性状態では昇温とともに比較的ゆるやかに増大し、最大で -12% の大きなスピンホール角を生じた。なお、この試料では、 $T_{\text{C}}$  周辺で期待される、スピンホール角の特異な温度変化は生じなかった。この原因として、今回成膜した試料における相転移点がシャープでなかったために、スピン揺らぎに起因するスピンホール角の温度変調が小さく、見えにくくなっている可能性が考えられる。

図 6.5 の結果から、強磁性状態と常磁性状態とで、スピンホール角の温度依存性が異なって

いることが確認された。ここで、2.1.1 項の議論から、スピホール角は式 (6.3) に示すように、その微視的機構によって、縦抵抗率  $\rho_{xx}$  に対する依存性が異なっている。

$$\theta_{\text{SH}} = \theta_{\text{SH}}^{\text{SS}} + \theta_{\text{SH}}^{\text{SI}+\text{int}} = a + b\rho_{xx} \quad (6.3)$$

右辺第一項はスキュー散乱による寄与を、第二項はサイドジャンプおよび内因性機構による寄与を表している。 $\theta_{\text{SH}}$  と  $\rho_{xx}$  の相関関係をみることで、スピホール効果に寄与する機構について考察することができる。Ni-Cu 合金薄膜の縦抵抗率の温度依存性を図 6.6(a) に、Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料の測定から得た  $\theta_{\text{SH}}$  の縦抵抗率依存性を図 6.6(b) に示す。まず、縦抵抗率の温度依存性をみると、Ni-Cu 合金薄膜は昇温と共に抵抗率が增大する金属的な振る舞いを生じている。一方で、縦抵抗率に対する  $\theta_{\text{SH}}$  の変調をみると、相転移点の前後で異なる傾向を生じている。強磁性状態、常磁性状態のそれぞれで式 (6.3) に基づいてフィッティングを行なうと、図 6.6(b) に示すように、切片および傾きの両方が相転移温度の前後で変調されることがわかった。

Ni の局在磁気モーメントを散乱源としたスピン依存散乱機構があるとするれば、これは磁気秩序の有無によって違いが生じうる。今回の実験では逆スピホール測定を行なう際に、強磁性共鳴誘起のために面内方向に 1 kOe 前後の静磁場を印加している。Ni-Cu 合金が強磁性相の場合には、磁気モーメントは外部磁場方向に配向している。一方、無秩序な常磁性状態では外部磁場下で弱く配向されるものの、磁気モーメントはランダムな方向を向いている。こうした磁気モーメントの配向方向の違いのために、異なったスピン依存散乱確率が生じていることが考えられる。

## 6.4 本章の小括

本章では、強磁性-常磁性相転移を 135 K で示す Ni<sub>55</sub>Cu<sub>45</sub> 合金薄膜のスピンポンピング測定を行ない、有効スピンミキシング伝導度および逆スピホール効果の温度依存性を評価した。

今回の実験では Ni-Fe/Ni-Cu 試料と Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料の二通りの試料を測定した。有効スピンミキシング伝導度の温度依存性から、スピン流源との間に非磁性層を挿入した Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料では、Ni-Cu 合金中でのマグノンによるスピン流輸送が抑制されていることが考えられる。ここでは、伝導電子スピン流の Ni-Cu 合金でのスピン流-電流変換を議論するため、Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料のスピホール角の温度依存性を調べた。昇温に伴ってスピホール角は増大し、最大で -12% 程度となる非常に大きなスピホール角を生じることがわかった。

また、スピホール角の縦抵抗率依存性から、強磁性状態と常磁性状態とでスピン依存散乱機構に違いが生じている可能性が示唆された。先行研究では、様々な組成比の Ni-Cu 合金を系統的に調べることで巨大なスピホール効果の観測がなされたが [41]、磁性相を選択・制御することで、そのスピホール角を制御できることを実験的に示した。

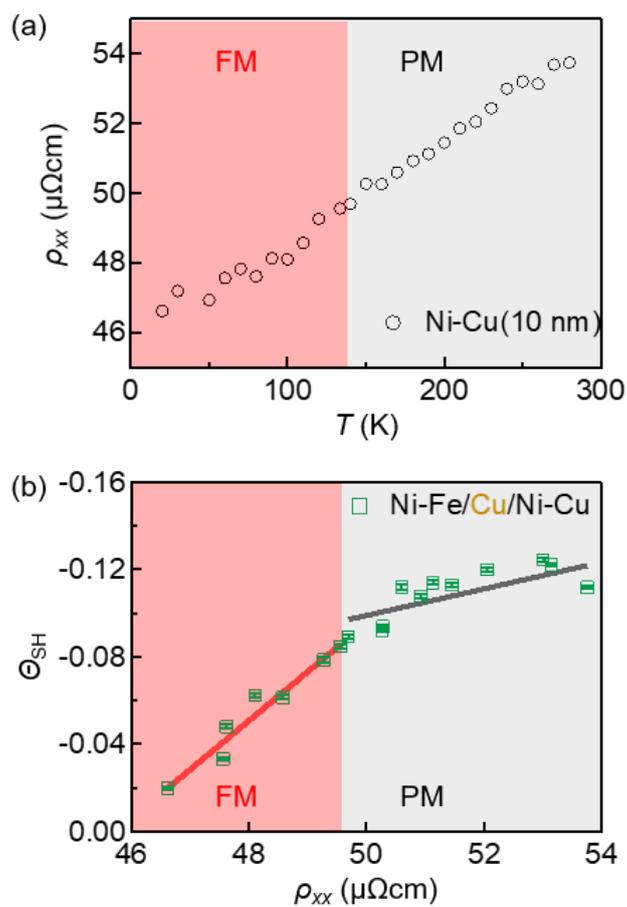


図 6.6: (a)Ni-Cu 合金薄膜の縦抵抗率の温度依存性. (b)Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料の測定から得られたスピンホール角  $\theta_{SH}$  の縦抵抗率依存性. 強磁性状態, 常磁性状態のそれぞれで, 式 (6.3) に基づいてフィッティングを行なっている.

## 第 7 章

# 総括

本論文では磁気相転移を生じる合金薄膜試料でのスピン輸送特性を、スピンプンピングによるスピン注入と、逆スピホール効果測定によって明らかにした。

第一に、Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜について、スピン輸送特性の評価に先立ち、反強磁性-強磁性相転移温度周辺での磁気状態を明らかにするための実験を行なった。この材料の反強磁性-強磁性相転移は一次相転移であるため、相転移点近傍の温度領域では反強磁性相と強磁性相との共存状態が生じる。この二つの磁性相の混在状態での磁化過程を明らかにするため、サブミクロンスケールの細線形状に加工した素子で電気抵抗測定を行なった。相転移温度周辺で形成される強磁性ドメイン、反強磁性ドメインと同程度まで素子サイズを制限した場合には、電気抵抗値が温度・磁場掃引に伴って不連続に変化する振る舞いが見られた。これは、素子中の電流経路が制限されることで、磁性相の形成過程の微視的な変化が素子抵抗に反映された結果であると考えられる。細線幅を変調した複数の試料で測定を行なうことで、相転移点付近での典型的なドメインサイズは  $1\ \mu\text{m}$  以下であることを明らかにした。また、素子サイズによるヒステリシス形状の変化から、磁性相の形成過程が温度ヒステリシス周りのエネルギー損失に寄与していることを示し、Fe-Rh 合金系の微小素子で生じるサイズ効果を定量的に評価しうることを示した。

次に、同じく Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜を用いて、逆スピホール効果の温度依存性を調べた。Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜とスピン注入源である強磁性体 (Ni-Fe) を含む多層膜試料を作製し、Ni-Fe の強磁性共鳴を誘起することでスピンプンピングによるスピン流注入を行なった。このスピン流の注入効率を特徴づける有効スピンミキシング伝導度  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  は、反強磁性-強磁性相転移温度の周辺で非常に大きく増大された。磁気相転移点での  $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$  の増強はこれまでも強磁性体のキュリー点、反強磁性体のネール点で報告されてきたが [37, 38, 104, 103]、今回観測された Pd 添加 Fe-Rh 合金での増分はこれらの既報と比較して 1 桁程度大きかった。このような非常に大きな温度変調がみられた原因として、一次相転移点周辺では二次相転移点と比較してより大きなスピン揺らぎが生じることが考えられる。また、逆スピホール効果から生じた電気信号を検出し、スピン流-電流変換効率の温度依存性を評価した。Fe-Rh 合金系では初めて、スピホール角の符号が反強磁性相、強磁性相の両方で負であることを示した。さらに、磁気相

転移温度の直下で変換効率がピークを生じることが明らかになった。ピークを生じた温度領域では、昇温に伴って微小な強磁性ドメインが核形成された相分離構造が発現している。このような、限定された温度領域に特有の磁気状態がスピン依存散乱に寄与し、スピントール効果を増強している可能性が考えられる。

最後に、強磁性-常磁性相転移を示す Ni-Cu 合金薄膜について、同様にスピン注入効率および逆スピントール効果の温度依存性を調べた。今回の実験では Ni-Fe/Ni-Cu の二層膜構造と Ni-Fe/Cu/Ni-Cu の三層膜構造をもつ二通りの試料を測定した。有効スピンミキシング伝導度の温度依存性から、スピン流源と Ni-Cu 層の間に Cu 層を挿入した Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料では、Ni-Cu 合金中の磁化の励起によるスピン流輸送が抑制されていることが分かった。この Ni-Fe/Cu/Ni-Cu 試料のスピントール角の温度依存性を調べ、伝導電子により輸送されるスピン流の変換現象を評価した。昇温に伴ってスピントール角は増大し、最大で -12% となる非常に大きな値が得られた。また、スピントール角と縦抵抗率との相関関係から、温度掃引による磁気秩序の変調に伴って、伝導電子スピン流のスピン依存散乱機構に違いが生じている可能性が示唆された。具体的な散乱機構は明らかでないが、Ni-Cu 合金の磁気相を選択・制御することで、そのスピントール角を制御できることを実験的に示した。

## 謝辞

指導教員の大谷義近教授には、本論文の研究を進めるにあたって、適切な指導をしていただき、研究に専念できる最適な環境を提供していただきました。研究をスムーズに進められずにいたときも丁寧に指導をしてくださり、進むべき方針を指示していただきました。また、海外出張を含め、多様な研究経験を積む機会を与えていただきました。心より感謝申し上げます。

理化学研究所の近藤浩太博士には、実験手法について直接的に指導していただき、また研究の内容についても多く議論をさせていただきました。大変お世話になりました。

Christopher Marrows 教授、Rowan Temple 博士には、試料作製のため Leeds 大学への滞在をご快諾いただき、また細やかな指導をいただきました。

東北大学の木俣基准教授には、修士課程で研究室に入ってから、実験および研究の進め方について多く指導していただきました。

肥後友也博士には、薄膜試料の物性評価のための測定および解析についてご協力いただき、多く議論していただきました。

一色弘成助教、水野隼翔博士、大谷教授がチームリーダーを兼任している理化学研究所量子ナノ磁性チームの皆様、大谷研究室の先輩、後輩の皆様には、ミーティング等において多くの助言をいただきました。

大谷研究室秘書の金田洋子様には、出張時などの諸手続きをはじめ、細やかにお気遣いいただき、研究活動を助けていただきました。ありがとうございました。

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、奨励金の支援をいただき、また、多くの教育プログラムに参加する機会を提供していただきました。

最後に、日々の生活で支えとなってくれた家族と友人に心より感謝申し上げます。

## 参考文献

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. *Physical Review Letters*, 61:2472, 1988.
- [2] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Physical Review B*, 39:4828, 1989.
- [3] T. Miyazaki and N. Tezuka. Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe junction. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 139(3):L231–234, 1995.
- [4] J. Katine, F. Albert, R. Buhrman, E. Myers, and D. Ralph. Current-Driven Magnetization Reversal and Spin-Wave Excitations in Co /Cu /Co Pillars. *Physical Review Letters*, 84(14):3149–3152, 2000.
- [5] P. Wadley, B. Howells, J. Zelezny, C. Andrews, V. Hills, R. P. Campion, V. Novak, F. Freimuth, Y. Mokrousov, A. W. Rushforth, K. W. Edmonds, B. L. Gallagher, and T. Jungwirth. Electrical switching of an antiferromagnet. *Science*, 351(6273):587–590, 2016.
- [6] V. Baltz, A. Manchon, M. Tsoi, T. Moriyama, T. Ono, and Y. Tserkovnyak. Antiferromagnetic spintronics. *Reviews of Modern Physics*, 90:015005, 2018.
- [7] Y. Otani, M. Shiraishi, A. Oiwa, E. Saitoh, and S. Murakami. Spin conversion on the nanoscale. *Nature Physics*, 13:829–832, 2017.
- [8] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, and G. E. W. Bauer. Enhanced gilbert damping in thin ferromagnetic films. *Physical Review Letters*, 88:117601, 2002.
- [9] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara. Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-Hall effect. *Applied Physics Letters*, 88:182509, 2006.
- [10] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh. Observation of the spin Seebeck effect. *Nature*, 455:778–781, 2008.
- [11] A. V. Kimel, A. Kiriyuk, and T. Rasing. Femtosecond opto-magnetism: Ultrafast laser manipulation of magnetic materials. *Laser and Photonics Reviews*, 1(3):275–287, 2007.
- [12] M. Matsuo, E. Saitoh, and S. Maekawa. Spin-mechatronics. *Journal of the Physical Society*

- 
- of Japan*, 86:011011, 2017.
- [13] Y. Shiomi, J. Lustikova, S. Watanabe, D. Hirobe, S. Takahashi, and E. Saitoh. Spin pumping from nuclear spin waves. *Nature Physics*, 15:22–26, 2019.
- [14] J. C. Rojas-Sánchez, L. Vila, G. Desfonds, S. Gambarelli, J. P. Attané, J. M. De Teresa, C. Magén, and A. Fert. Spin-to-charge conversion using Rashba coupling at the interface between non-magnetic materials. *Nature Communications*, 4:2944, 2013.
- [15] K. Kondou, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, Y. Fukuma, J. Matsuno, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Y. Tokura, and Y. Otani. Fermi-level-dependent charge-to-spin current conversion by Dirac surface states of topological insulators. *Nature Physics*, 12:1027–1031, 2016.
- [16] J. Sinova, S. O. Valenzuela, J. Wunderlich, C. H. Back, and T. Jungwirth. Spin Hall effects. *Reviews of Modern Physics*, 87:1213–1260, 2015.
- [17] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom. Observation of the spin hall effect in semiconductors. *Science*, 306:1910–1913, 2004.
- [18] S. O. Valenzuela and M. Tinkham. Direct electronic measurement of the spin Hall effect. *Nature*, 442(7099):176–179, 2006.
- [19] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa. Room-temperature reversible spin hall effect. *Physical Review Letters*, 98:156601, 2007.
- [20] E. Sagasta, Y. Omori, M. Isasa, M. Gradhand, L. E. Hueso, Y. Niimi, and Y. Otani. Tuning the spin Hall effect of Pt from the moderately dirty to the superclean regime. *Physical Review B*, 94:060412(R), 2016.
- [21] 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. *Physical Review Letters*, 109:156602, 2012.
- [22] B. F. Miao, S. Y. Huang, D. Qu, and C. L. Chien. Inverse spin hall effect in a ferromagnetic metal. *Physical Review Letters*, 111:066602, 2013.
- [23] D. Tian, Y. Li, D. Qu, S. Y. Huang, X. Jin, and C. L. Chien. Manipulation of pure spin current in ferromagnetic metals independent of magnetization. *Physical Review B*, 94:020403(R), 2016.
- [24] K. S. Das, W. Y. Schoemaker, B. J. Van Wees, and I. J. Vera-Marun. Spin injection and detection via the anomalous spin Hall effect of a ferromagnetic metal. *Physical Review B*, 96:220408(R), 2017.
- [25] Y. Omori, E. Sagasta, Y. Niimi, M. Gradhand, L. E. Hueso, F. Casanova, and Y. Otani. Relation between spin Hall effect and anomalous Hall effect in 3d ferromagnetic metals. *Physical Review B*, 99:014403, 2019.
- [26] W. Zhang, M. B. Jungfleisch, W. Jiang, J. E. Pearson, and A. Hoffmann. Spin Hall Effects in Metallic Antiferromagnets. *Physical Review Letters*, 113:196602, 2014.

- [27] Y. Niimi, M. Kimata, Y. Omori, B. Gu, T. Ziman, S. Maekawa, A. Fert, and Y. Otani. Strong Suppression of the Spin Hall Effect in the Spin Glass State. *Physical Review Letters*, 115:196602, 2015.
- [28] Naoto Nagaosa, Shigeki Onoda, a. H. MacDonald, and N. P. Ong. Anomalous Hall effect. *Reviews of Modern Physics*, 82(2):1539–1592, 2010.
- [29] G. Qu, K. Nakamura, and M. Hayashi. Magnetization direction dependent spin Hall effect in 3d ferromagnets. *arXiv*, page 1901.10740v1, 2019.
- [30] J. Cramer, A. Ross, S. Jaiswal, L. Baldrati, R. Lebrun, and M. Kläui. Orientation-dependent direct and inverse spin Hall effects in Co60Fe20 B20. *Physical Review B*, 99:104414, 2019.
- [31] M. Kimata, H. Chen, K. Kondou, S. Sugimoto, P. K. Muduli, M. Ikhlas, Y. Omori, T. Tomita, A. H. MacDonald, S. Nakatsuji, and Y. Otani. Magnetic and magnetic inverse spin Hall effects in a non-collinear antiferromagnet. *Nature*, 565:627–630, 2019.
- [32] Y. Zhang, J. Železný, Y. Sun, J. Van Den Brink, and B. Yan. Spin Hall effect emerging from a noncollinear magnetic lattice without spin-orbit coupling. *New Journal of Physics*, 20:073028, 2018.
- [33] 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 Communications*, 3:1058, 2012.
- [34] Y. Ohnuma, H. Adachi, E. Saitoh, and S. Maekawa. Enhanced dc spin pumping into a fluctuating ferromagnet near TC. *Physical Review B*, 89:174417, 2014.
- [35] Yasuhiro Niimi, Dahai Wei, and YoshiChika Otani. Effect of Magnetic Fluctuations on Spin Current. *Journal of the Physical Society of Japan*, 86:011004, 2017.
- [36] B. Gu, T. Ziman, and S. Maekawa. Theory of the spin Hall effect, and its inverse, in a ferromagnetic metal near the Curie temperature. *Physical Review B*, 86:241303(R), 2012.
- [37] Y. Ou, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman. Strong Enhancement of the Spin Hall Effect by Spin Fluctuations near the Curie Point of FePt<sub>1-x</sub> Alloys. *Physical Review Letters*, 120:097203, 2018.
- [38] L. Frangou, S. Oyarzún, S. Auffret, L. Vila, S. Gambarelli, and V. Baltz. Enhanced Spin Pumping Efficiency in Antiferromagnetic IrMn Thin Films around the Magnetic Phase Transition. *Physical Review Letters*, 116:077203, 2016.
- [39] S. Okamoto. Spin injection and spin transport in paramagnetic insulators. *Physical Review B*, 93:064421, 2016.
- [40] Z. Qiu, J. Li, D. Hou, E. Arenholz, A. T. N’Diaye, A. Tan, K. Uchida, K. Sato, S. Okamoto, Y. Tserkovnyak, Z. Q. Qiu, and E. Saitoh. Spin-current probe for phase transition in an insulator. *Nature Communications*, 7:12670, 2016.
- [41] M. W. Keller, K. S. Gerace, M. Arora, E. K. Delczeg-Czirjak, J. M. Shaw, and T. J. Silva. Near-unity spin Hall ratio in Ni<sub>x</sub>Cu<sub>1-x</sub> alloys. *Physical Review B*, 99:214411, 2019.
- [42] S. Maekawa, S. O. Valenzuela, E. Saitoh, and T. Kimura, editors. *Spin Current*. Oxford

- University Press, 2011.
- [43] L. Berger. Side-jump mechanism for the hall effect of ferromagnets. *Physical Review B*, 2(11):4559–4566, 1970.
- [44] J. Smit. the Spontaneous Hall Effect in Ferromagnets. *Physica*, 24:39–51, 1958.
- [45] J. Kondo. Anomalous Hall effect and magnetoresistance of  $\text{SrFe}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_{3-\delta}$ . *Progress of Theoretical Physics*, 27:772, 1962.
- [46] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, G. E. W. Bauer, and B. I. Halperin. Nonlocal Magnetization Dynamics in Ferromagnetic Hybrid Nanostructures. *Reviews of Modern Physics*, 77:1375, 2005.
- [47] K. Ando, T. Yoshino, and E. Saitoh. Optimum condition for spin-current generation from magnetization precession in thin film systems. *Applied Physics Letters*, 94:152509, 2009.
- [48] K. Ando, S. Takahashi, J. Ieda, Y. Kajiwara, H. Nakayama, T. Yoshino, K. Harii, Y. Fujikawa, M. Matsuo, S. Maekawa, and E. Saitoh. Inverse spin-Hall effect induced by spin pumping in metallic system. *Journal of Applied Physics*, 109:103913, 2011.
- [49] M. Fallot and R. Hocart. Sur l'apparition du ferromagnétisme par l'élévation de température dans des alliages de fer et de rhodium. *Rev. Sci.*, 77:498, 1938.
- [50] F. de Bergevin and L. Muldrew. *Comptes Rendus l' Academie des Sci.*, 252:1347, 1961.
- [51] B. E. Warren. *X-ray diffraction*. Addison-Wesley, 1969.
- [52] L. J. Swartzendruber. The Fe-Rh System. *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*, 5:456–462, 1984.
- [53] G. Shirane, C. W. Chen, P. A. Flinn, and R. Nathans. Hyperfine fields and magnetic moments in the Fe-Rh system. *Journal of Applied Physics*, 34(4):1044–1045, 1963.
- [54] G. Shirane, R. Nathans, and C. W. Chen. Magnetic moments and unpaired spin densities in the Fe-Rh alloys. *Physical Review*, 134:A1547, 1964.
- [55] L. H. Lewis, C. H. Marrows, and S. Langridge. Coupled magnetic, structural, and electronic phase transitions in FeRh. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 49:323002, 2016.
- [56] C. Kittel. Model of exchange-inversion magnetization. *Physical Review*, 120(2):335–342, 1960.
- [57] M. J. Richardson, D. Melville, and J. A. Ricodeau. Specific heat measurements on an Fe Rh alloy. *Physics Letters A*, 46(2):153–154, 1973.
- [58] J. A. Ricodeau and D. Melville. Model of the antiferromagnetic-ferromagnetic transition in FeRh alloys. *Journal of Physics F: Metal Physics*, 2:337–350, 1972.
- [59] J. B. McKinnon, D Melville, and E. W. Lee. The antiferromagnetic-ferromagnetic transition in iron-rhodium alloys. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 3:S46, 1970.
- [60] G. Ju, J. Hohlfeld, B. Bergman, R. J. M. Van Devedonk, Oleg N. Mryasov, J. Y. Kim, X. Wu, D. Weller, and B. Koopmans. Ultrafast generation of ferromagnetic order via a laser-induced phase transformation in FeRh thin films. *Physical Review Letters*, 93:197403,

- 2004.
- [61] M. E. Gruner, E. Hoffmann, and P. Entel. Instability of the rhodium magnetic moment as origin of the metamagnetic phase transition in  $\alpha$ -FeRh. *Physical Review B*, 67:064415, 2003.
- [62] O. N. Mryasov. Magnetic interactions and phase transformations in FeM, M = (Pt, Rh) ordered alloys. *Phase Transitions*, 78:197–208, 2005.
- [63] J. Barker and R. W. Chantrell. Higher-order exchange interactions leading to metamagnetism in FeRh. *Physical Review B*, 92:094402, 2015.
- [64] S. Maat, J.-U. Thiele, and E. E. Fullerton. Temperature and field hysteresis of the antiferromagnetic-to-ferromagnetic phase transition in epitaxial FeRh films. *Physical Review B*, 72(21):214432, 2005.
- [65] C. Bordel, J. Juraszek, David W. Cooke, C. Baldasseroni, S. Mankovsky, J. Minár, H. Ebert, S. Moyerman, E. E. Fullerton, and F. Hellman. Fe spin reorientation across the metamagnetic transition in strained FeRh thin films. *Physical Review Letters*, 109:117201, 2012.
- [66] J. B. Staunton, R. Banerjee, M. Dos Santos Dias, a. Deak, and L. Szunyogh. Fluctuating local moments, itinerant electrons, and the magnetocaloric effect: Compositional hypersensitivity of FeRh. *Physical Review B*, 89:054427, 2014.
- [67] J. Kudrnovský, V. Drchal, and I. Turek. Physical properties of FeRh alloys: The antiferromagnetic to ferromagnetic transition. *Physical Review B*, 91:014435, 2015.
- [68] S. Lounis, M. Benakki, and C. Demangeat. Ferromagnetic stabilization of ordered B2 FeRh thin films. *Physical Review B*, 67:094432, 2003.
- [69] R. Fan, C. J. Kinane, T. R. Charlton, R. Dorner, M. Ali, M. A. De Vries, R. M D Brydson, C. H. Marrows, B. J. Hickey, D. A. Arena, B. K. Tanner, G. Nisbet, and S. Langridge. Ferromagnetism at the interfaces of antiferromagnetic FeRh epilayers. *Physical Review B*, 82:184418, 2010.
- [70] Y. Ding, D. a. Arena, J. Dvorak, M. Ali, C. J. Kinane, C. H. Marrows, B. J. Hickey, and L. H. Lewis. Bulk and near-surface magnetic properties of FeRh thin films. *Journal of Applied Physics*, 103(7), 2008.
- [71] C. Baldasseroni, G. K. Pálsson, C. Bordel, S. Valencia, a. a. Unal, F. Kronast, S. Nemsak, C. S. Fadley, J. a. Borchers, B. B. Maranville, and F. Hellman. Effect of capping material on interfacial ferromagnetism in FeRh thin films. *Journal of Applied Physics*, 115:043919, 2014.
- [72] I. Suzuki, T. Koike, M. Itoh, T. Taniyama, and T. Sato. Stability of ferromagnetic state of epitaxially grown ordered FeRh thin films. *Journal of Applied Physics*, 105(7):7–10, 2009.
- [73] G. C. Han, J. J. Qiu, Q. J. Yap, P. Luo, T. Kanbe, T. Shige, D. E. Laughlin, and J. G. Zhu. Suppression of low-temperature ferromagnetic phase in ultrathin FeRh films. *Journal of Applied Physics*, 113:123909, 2013.

- 
- [74] M. Loving, F. Jimenez-Villacorta, B. Kaeswurm, D. A. Arena, C. H. Marrows, and L. H. Lewis. Structural evidence for stabilized ferromagnetism in epitaxial FeRh nanoislands. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 46:162002–6, 2013.
- [75] V. Uhlř, J. A. Arregi, and E. E. Fullerton. Colossal magnetic phase transition asymmetry in mesoscale FeRh stripes. *Nature Communications*, 7:13113, 2016.
- [76] C. Baldasseroni, C. Bordel, C. Antonakos, A. Scholl, K. H. Stone, J. B. Kortright, and F. Hellman. Temperature-driven growth of antiferromagnetic domains in thin-film FeRh. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 27:256001, 2015.
- [77] R. C. Wayne. Pressure dependence of the magnetic transitions in Fe-Rh alloys. *Physical Review*, 170:523–527, 1968.
- [78] M. P. Annaorazov, S. A. Nikitin, A. L. Tyurin, K. A. Asatryan, and A. K. Dovletov. Anomalous high entropy change in FeRh alloy. *Journal of Applied Physics*, 79:1689–1695, 1996.
- [79] R. Barua, F. Jiménez-Villacorta, and L. H. Lewis. Predicting magnetostructural trends in FeRh-based ternary systems. *Applied Physics Letters*, 103:102407, sep 2013.
- [80] J. S. Kouvel and C. C. Hartelius. Anomalous magnetic moments and transformations in the ordered alloy FeRh. *Journal of Applied Physics*, 33:1343–1344, 1962.
- [81] S. Mankovsky, S. Polesya, K. Chadova, H. Ebert, J. B. Staunton, T. Gruenbaum, M. A.W. Schoen, C. H. Back, X. Z. Chen, and C. Song. Temperature-dependent transport properties of FeRh. *Physical Review B*, 95:155139, 2017.
- [82] Y. Kobayashi, K. Muta, and K. Asai. The Hall effect and thermoelectric power correlated with the giant magnetoresistance in modified FeRh compounds. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 13:3335–3346, apr 2001.
- [83] M. A. De Vries, M. Loving, a. P. Mihai, L. H. Lewis, D. Heiman, and C. H. Marrows. Hall-effect characterization of the metamagnetic transition in FeRh. *New Journal of Physics*, 15:013008, 2013.
- [84] A. Popescu, P. Rodriguez-Lopez, P. M. Haney, and L. M. Woods. Thermally driven anomalous Hall effect transitions in FeRh. *Physical Review B*, 97:140407(R), 2018.
- [85] T. Naito, I. Suzuki, M. Itoh, and T. Taniyama. Effect of spin polarized current on magnetic phase transition of ordered FeRh wires. *Journal of Applied Physics*, 109(7):2013–2016, 2011.
- [86] I. Suzuki, T. Naito, M. Itoh, and T. Taniyama. Barkhausen-like antiferromagnetic to ferromagnetic phase transition driven by spin polarized current. *Applied Physics Letters*, 107:082408, 2015.
- [87] T. Sakhraoui and M. Said. Effect of the interfacial O and Mg vacancies on electronic structure and transport properties of the FeRh/MgO/FeRh (0 0 1) magnetic tunnel junction: DFT calculations. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 444:394–400, 2017.
- [88] X. Z. Chen, J. F. Feng, Z. C. Wang, J. Zhang, X. Y. Zhong, C. Song, L. Jin, B. Zhang, F. Li,

- M. Jiang, Y. Z. Tan, X. J. Zhou, G. Y. Shi, X. F. Zhou, X. D. Han, S. C. Mao, Y. H. Chen, X. F. Han, and F. Pan. Tunneling anisotropic magnetoresistance driven by magnetic phase transition. *Nature Communications*, 8:449, 2017.
- [89] J. Zhang, X. Z. Chen, C. Song, J. F. Feng, H. X. Wei, and J. T. Lü. Giant Tunnel Magnetoresistance with a Single Magnetic Phase-Transition Electrode. *Physical Review Applied*, 9:044034, 2018.
- [90] E. Mancini, F. Pressacco, M. Haertinger, E. E. Fullerton, T. Suzuki, G. Woltersdorf, and C. H. Back. Magnetic phase transition in ironrhodium thin films probed by ferromagnetic resonance. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 46(24):245302, jun 2013.
- [91] A. Heidarian, S. Stienen, A. Semisalova, Y. Yuan, E. Josten, R. Hübner, S. Salamon, H. Wende, R. A. Gallardo, J. Grenzer, K. Potzger, R. Bali, S. Facsko, and J. Lindner. Ferromagnetic resonance of MBE-grown FeRh thin films through the metamagnetic phase transition. *Physica Status Solidi (B) Basic Research*, 254:1700145, 2017.
- [92] N. Matsuzaki, T. Moriyama, M. Nagata, K.-J. Kim, I. Suzuki, T. Taniyama, and T. Ono. Current induced antiferro ferromagnetic transition in FeRh nanowires. *Japanese Journal of Applied Physics*, 54:073002, 2015.
- [93] T. Moriyama, N. Matsuzaki, K.-J. Kim, I. Suzuki, T. Taniyama, and T. Ono. Sequential write-read operations in FeRh antiferromagnetic memory. *Applied Physics Letters*, 107:122403, 2015.
- [94] C. Baldasseroni, C. Bordel, a. X. Gray, a. M. Kaiser, F. Kronast, J. Herrero-Albillos, C. M. Schneider, C. S. Fadley, and F. Hellman. Temperature-driven nucleation of ferromagnetic domains in FeRh thin films. *Applied Physics Letters*, 100:262401, 2012.
- [95] P. Kushwaha, A. Lakhani, R. Rawat, and P. Chaddah. Low-temperature study of field-induced antiferromagnetic-ferromagnetic transition in Pd-doped Fe-Rh. *Physical Review B*, 80:174413, 2009.
- [96] R. C. Temple, T. P. Almeida, J. R. Massey, K. Fallon, R. Lamb, S. A. Morley, F. Maccherozzi, S. S. Dhesi, D. McGrouther, S. McVitie, T. A. Moore, and C. H. Marrows. Antiferromagnetic-ferromagnetic phase domain development in nanopatterned FeRh islands. *Physical Review Materials*, 2:104406, 2018.
- [97] L. H. Bai, Y. S. Gui, A. Wirthmann, E. Recksiedler, N. Mecking, C. M. Hu, Z. H. Chen, and S. C. Shen. The rf magnetic-field vector detector based on the spin rectification effect. *Applied Physics Letters*, 92(3):2006–2009, 2008.
- [98] M. Harder, Y. Gui, and C. M. Hu. Electrical detection of magnetization dynamics via spin rectification effects. *Physics Reports*, 661:1–59, 2016.
- [99] T. R. McGuire and R. I. Potter. Anisotropic Magnetoresistance. *IEEE Transactions on Magnetics*, 11:1018–1038, 1975.
- [100] M. Sharma, H. M. Aarbogh, J. U. Thiele, S. Maat, E. E. Fullerton, and C. Leighton. Mag-

- netotransport properties of epitaxial MgO(001)/FeRh films across the antiferromagnet to ferromagnet transition. *Journal of Applied Physics*, 109:083913, 2011.
- [101] T. Moriyama, M. Kamiya, K. Oda, K. Tanaka, K. J. Kim, and T. Ono. Magnetic Moment Orientation-Dependent Spin Dissipation in Antiferromagnets. *Physical Review Letters*, 119:267204, 2017.
- [102] X. Marti, I. Fina, C. Frontera, J. Liu, P. Wadley, Q. He, R. J. Paull, J. D. Clarkson, J. Kudrnovský, I. Turek, J. Kuneš, D. Yi, J.-h. Chu, C. T. Nelson, L. You, E. Arenholz, S. Salahuddin, J. Fontcuberta, T. Jungwirth, and R. Ramesh. Room-temperature antiferromagnetic memory resistor. *Nature materials*, 13:367–374, 2014.
- [103] O. Gladii, L. Frangou, G. Forestier, Rafael L. Seeger, S. Auffret, M. Rubio-Roy, R. Weil, A. Mougín, C. Gomez, W. Jahjah, J. P. Jay, D. Dekadjevi, D. Spinato, S. Gambarelli, and V. Baltz. Spin pumping as a generic probe for linear spin fluctuations: Demonstration with ferromagnetic and antiferromagnetic orders, metallic and insulating electrical states. *Applied Physics Express*, 12:023001, 2019.
- [104] O. Gladii, L. Frangou, G. Forestier, R. L. Seeger, S. Auffret, I. Joumard, M. Rubio-Roy, S. Gambarelli, and V. Baltz. Unraveling the influence of electronic and magnonic spin-current injection near the magnetic ordering transition of IrMn metallic antiferromagnets. *Physical Review B*, 98:094422, 2018.
- [105] H. Saglam, W. Zhang, M. B. Jungfleisch, J. Sklenar, J. E. Pearson, J. B. Ketterson, and A. Hoffmann. Spin transport through the metallic antiferromagnet FeMn. *Physical Review B*, 94:140412, 2016.
- [106] Y. Cheng, K. Chen, and S. Zhang. Interplay of magnon and electron currents in magnetic heterostructure. *Physical Review B*, 96:024449, 2017.
- [107] T. Kimura, J. Hamrle, and Y. Otani. Estimation of spin-diffusion length from the magnitude of spin-current absorption: Multiterminal ferromagnetic/nonferromagnetic hybrid structures. *Physical Review B*, 72:014461, 2005.
- [108] C. Du, H. Wang, F. Yang, and P. C. Hammel. Systematic variation of spin-orbit coupling with d-orbital filling: Large inverse spin Hall effect in 3d transition metals. *Physical Review B*, 90:140407(R), 2014.
- [109] G. C. Han, J. J. Qiu, Q. J. Yap, P. Luo, D. E. Laughlin, J. G. Zhu, T. Kanbe, and T. Shige. Magnetic stability of ultrathin FeRh films. *Journal of Applied Physics*, 113:17C107, 2013.
- [110] Q. J. Yap, J. J. Qiu, P. Luo, J. F. Ying, G. C. Han, D. E. Laughlin, J. G. Zhu, T. Kanbe, and T. Shige. Phase ordering and its effect on magnetic and structural properties of FeRh ultrathin films. *Journal of Applied Physics*, 116:043902, 2014.
- [111] M. Jiang, X. Z. Chen, X. J. Zhou, B. Cui, Y. N. Yan, H. Q. Wu, F. Pan, and C. Song. Electrochemical control of the phase transition of ultrathin FeRh films. *Applied Physics Letters*, 108:202404, 2016.

- 
- [112] R. J. Elliott. Theory of the effect of spin-Orbit coupling on magnetic resonance in some semiconductors. *Physical Review*, 96(2):266–279, 1954.
- [113] R. M. Bozorth. *Ferromagnetism*. Wiley, 1993.
- [114] Y. Omori. *Experimental elucidation of the mechanism of spin Hall effect in transition metals and their alloys*. PhD thesis, the University of Tokyo, 2018.

## 発表文献

[論文発表]

- [p1] K. Matsumoto, M. Kimata, K. Kondou, R. C. Temple, C. H. Marrows and Y. Otani. Magneto-thermodynamic properties and anomalous magnetic phase transition in FeRh nanowires. *IEEE Transactions on Magnetics*, 54:2300904, 2018.
- [p2] D. Qu, T. Higo, T. Nishikawa, K. Matsumoto, K. Kondou, D. Nishio-Hamane, R. Ishii, P. K. Muduli, Y. Otani and S. Nakatsuji. Large enhancement of the spin Hall effect in Mn metal by Sn doping. *Physical Review Materials*, 2:102001(R), 2018.
- [p3] J. R. Massey\*, K. Matsumoto\*, M. Strungaru\*, R. C. Temple, T. Higo, K. Kondou, R. F. L. Evans, G. Burnell, R. W. Chantrell, Y. Otani and C. H. Marrows. Phase Boundary Exchange Coupling in the Mixed Magnetic Phase Regime of a Pd-doped FeRh Epilayer. *Submitted*. (under review, arXiv:1807.01615) (\*: equally contributed to this work)

[学会発表]

- (1) K. Matsumoto, M. Kimata, K. Kondou, R. C. Temple, C. H. Marrows and Y. Otani, “Magneto-thermodynamic properties and anomalous magnetic phase transition in FeRh nanowires”, Intermag, ポスター, Singapore, Singapore, 2018年4月
- (2) K. Matsumoto, K. Kondou, T. Higo, J. R. Massey, R. C. Temple, C. H. Marrows and Y. Otani, “Strong suppression in inverse spin Hall effect at first order phase transition temperature”, Joint European Magnetism Symposia, 口頭, Uppsala, Sweden, 2019年8月

他口頭5件、ポスター8件