

論文の内容の要旨

論文題目 磁性合金薄膜の相転移点近傍におけるスピン輸送現象

氏 名 松本 健太

序論

スピン角運動量の流れであるスピン流に関する物理現象は、現代の物性物理学で中心的な話題の一つであり、基礎物理と工学的な応用の双方で盛んに研究されている。中でも、スピン流と電流の変換現象である正・逆スピホール効果は、スピン流の電氣的生成および検出を可能にするため、スピントロニクスデバイスの駆動原理として非常に重要な物理現象である。

近年、新たな機能性や制御手法の開拓を目指して、強磁性体[1, 2]、反強磁性体[3]、スピンガラス[4]など様々な磁気秩序をもつ物質におけるスピホール効果が注目されている。その中で、磁気相転移点近傍で増強されるスピン揺らぎとスピホール効果との間に興味深い相関があることが指摘されている。我々の研究グループでは、世界に先駆けて Ni-Pd 合金の強磁性-常磁性相転移点近傍にて、逆スピホール効果(スピン流から電流への変換現象)の発散的な振舞いの観測に成功している[5]。この観測を契機に、最近では、多くの研究グループから、相転移温度付近でのスピン流の注入効率やスピン軌道トルクの増大効果が報告され、磁性材料の磁気秩序の制御がスピホール効果を変調する手法として有効であることが明らかになっている[6-9]。

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、スピンポンピングによるスピン注入法を利用して評価した。まず、相転移点近傍におけるスピン流物性をより深く理解するため、これまで測定されていない一次相転移材料に着目した実験を行なった。さらに、物質の磁気秩序がスピン輸送特性に与える影響を理解するため、常磁性状態、強磁性状態でのスピホール効果の機構を評価した。

Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の磁化過程に依存した電気伝導特性

Fe-Rh 合金系は、低温側で反強磁性、高温側で強磁性となる一次磁気相転移を発現する物質である[10-11]。本節では、スピン輸送現象の測定の前に、まず Fe-Rh 合金の磁気相転移点近傍における磁化過程の検出および、それに伴う電気伝導特性の変化について調べた。

この反強磁性-強磁性間の転移は一次相転移であるため、転移温度付近では反強磁性相と

強磁性相の分域が共存する[12]。また、相転移過程に伴って、磁化の大きさだけでなく、電気抵抗率や体積、エントロピーなどの諸物性の変化が報告されている[11]。このため、試料抵抗を計測することで、相転移過程を検出できる。さらに、試料サイズがドメインサイズと同程度の場合には、ミクロな相分離構造の変化が試料抵抗に直接的に反映されることが期待できる。本実験では、細線幅が異なる試料を作製し、温度掃引、磁場掃引時の試料抵抗の変化について調べた。

実験には、相転移温度を我々の実験室で測定可能な温度領域(10-400 K)まで下げるために、Pd を添加した Fe-Rh 合金を用いた[13]。薄膜試料は、組成 $\text{Fe}_{47}\text{Rh}_{50}\text{Pd}_3$ の合金ターゲットを用いて、単結晶 MgO 基板の上に、DC マグネトロンスパッタ法で作製した。この薄膜試料を電子線リソグラフィおよび Ar イオンミリングによって加工し、サブミクロンスケール幅の矩形試料を作製した。

細線幅が 270 nm である細線試料の電気抵抗測定を行なった結果、転移温度近傍では、薄膜試料では見られなかった試料抵抗の不連続な変化が観測された。同様の抵抗変化は Uhlir らによって報告されており[14]、試料形状によって制限され単純化した相分離構造の温度変化が検出されていると理解できる。この細線幅を 660 nm、1160 nm と増加させた試料では、このような不連続な変化が徐々に抑制された。このことから、今回作製した Pd 添加 Fe-Rh 合金では、相転移点付近で数百ナノメートルサイズのドメインが生成していることが分かった。

Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜の逆スピンホール効果測定

次に、Pd 添加 Fe-Rh 合金について、前節で示したような数百ナノメートルサイズの強磁性相と反強磁性相の分域が共存する相転移温度近傍でのスピン輸送特性(スピン注入効率と逆スピンホール効果)を調べた。磁気秩序がスケーリング則に従って温度変化する二次相転移材料でのスピン輸送特性は数多く報告されているが、一次相転移材料での報告例はない。

Pd 添加 Fe-Rh/Cu/Ni-Fe/ Al_2O_3 多層膜を作製し、強磁性層(Ni-Fe)からのスピンプンピングによってスピンホール材料(Pd 添加 Fe-Rh)にスピン注入を行なった。まず、Pd 添加 Fe-Rh 合金

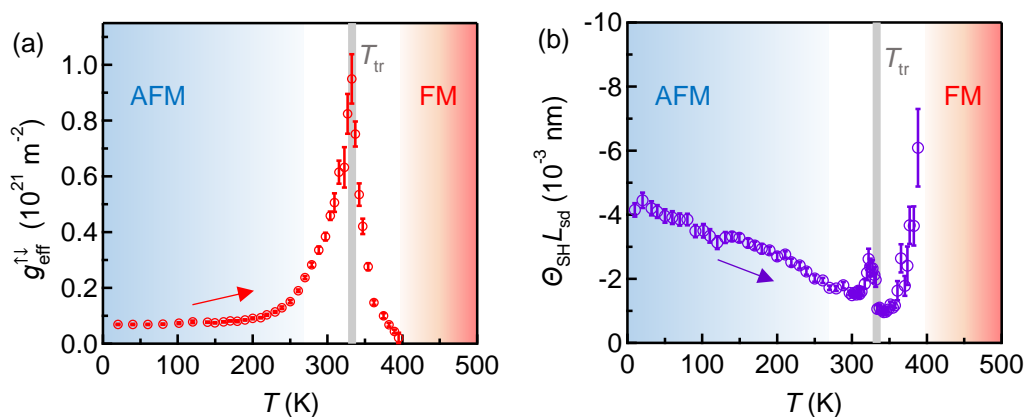


図 1. Pd 添加 Fe-Rh/Cu/Ni-Fe 試料の(a)有効スピンミキシング伝導度と、(b)スピンホール角とスピン拡散長の積の温度依存性。いずれも昇温過程で測定されており、灰色の線は反強磁性-強磁性相転移温度を示す。

を除いた参照試料と比較した際の Ni-Fe 層の緩和定数の変調(増分)から、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 $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$ を算出した。図 1(a)に示すように、反強磁性相から強磁性相への相転移温度では、最大で $9.5 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$ に達する急峻な $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$ の増大が観測された。これは、二次相転移材料の相転移温度で観測されている同様の $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$ の増大効果と比較して一桁程度大きい[7, 8]。非常に大きな温度変調が生じた原因として、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、あるいは、強磁性相と反強磁性相の共存状態が、スピン流の散逸を強く引き起こしていることが考えられる。

また、逆スピンホール効果から生じた電気信号を検出し、スピン流-電流変換効率を表す特性長として、スピンホール角とスピン拡散長の積である $\theta_{\text{SH}}L_{\text{sd}}$ を評価した。図 1(b)に示すように、相転移温度よりも若干低い温度(320 K)で小さなピーク構造が現れ、さらに相転移温度(330 K)では極小値をとることがわかった。このピーク構造が観測された温度領域は、反強磁性相の中に、数百ナノメートル程度の強磁性相のドメインが形成されている状態に対応することが明らかにされている[12]。今回の実験により、逆スピンホール効果の増大が、強磁性相と反強磁性相の分域が混在している状況において誘起されることを、実験的に初めて示した。この現象の物理的機構に関しては未解明であるが、分散した強磁性ドメイン同士が反強磁性相の分域を介して関連している状況でも、スキュー散乱が増大するメカニズムが存在する可能性を示唆するものと考えている。

Ni-Cu 合金薄膜の逆スピンホール効果測定

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、Pd 添加 Fe-Rh 合金薄膜と同様に、スピンプンピング法によってスピン輸送特性の温度依存性を調べた。近年の磁性体におけるスピンホール効果の研究から、物質の磁気秩序がスピン輸送にどのような影響を与えるかが注目されている。この実験では特に、秩序化した強磁性相と、無秩序な常磁性相とでスピンホール効果に差異が生じるかに注目して実験を行なった。

図 2(a)に示した Ni-Cu/Ni-Fe 試料での $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$ の温度依存性をみると、強磁性-常磁性相転移温度 T_c の周辺で増大している。常磁性状態での $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow}$ と比較した増分は Fe-Pt の T_c で報告された値と同程度であった[8]ことから、この温度変化は T_c でのスピン揺らぎの増大に起因すると考

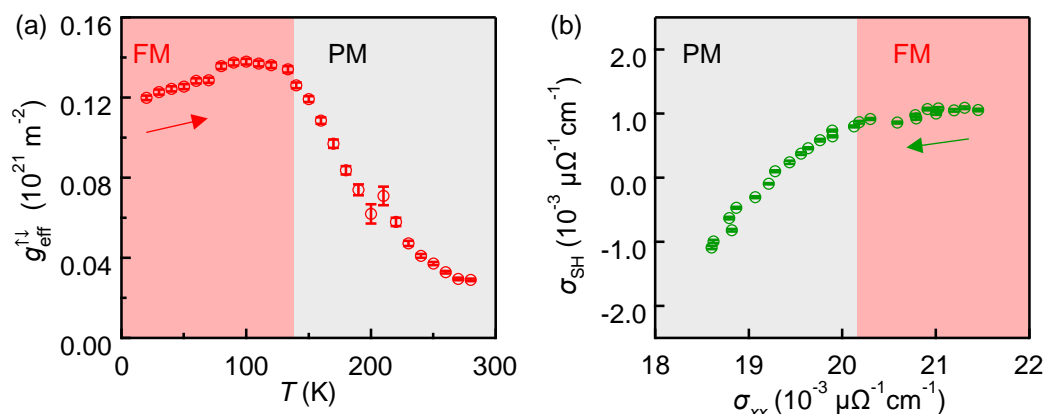


図 2. Ni-Cu/Ni-Fe 試料の(a)有効スピンミキシング伝導度の温度依存性と、(b)スピンホール伝導度の縦伝導度依存性。

えられる。

ここで、スピホール効果の起源は電子散乱過程によっていくつかの機構に分類される[15]。スピホール効果の電気伝導度に対する依存性を解析することで、どの機構がスピホール効果に寄与しているかを議論できる。図 2(b)では、スピホール伝導度 σ_{SH} を縦伝導度 σ_{xx} に対してプロットしている。 σ_{SH} は常磁性状態では σ_{xx} により強く依存しており、これはスキュー散乱によるスピホール効果への寄与が磁気状態によって異なることを示唆している。この結果は、磁気秩序の形成によってスピン依存散乱過程の変調が生じうることを示している。

参考文献

- [1] B. F. Miao *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 066602 (2013). [2] Y. Omori *et al.*, *Phys. Rev. B* **99**, 014403 (2019). [3] W. Zhang *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 196602 (2014). [4] Y. Niimi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 196602 (2015). [5] D. Wei *et al.*, *Nat. Commun.* **3**, 1058 (2012) [6] Y. Ohnuma *et al.*, *Phys. Rev. B* **89**, 174417 (2014). [7] L. Frangou *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 077203 (2016). [8] Y. Ou *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 097203 (2018). [9] M. Keller *et al.*, *Phys. Rev. B* **99**, 214411 (2019). [10] M. Fallot, *Ann. Phys.* **11**, 291 (1938). [11] L. H. Lewis *et al.*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **49**, 323002 (2016). [12] C. Baldasseroni *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 262401 (2012). [13] R. Barua *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 102407 (2013). [14] V. Uhlír *et al.*, *Nat. Commun.* **7**, 13113 (2016). [15] J. Sinova *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **87**, 1213 (2015).