

東京大学 大学院新領域創成科学研究科

基盤科学研究系物質系専攻

平成 23 年度

修士論文

ビスマス添加による外因性スピンホール 効果の観測

2012 年 1 月 24 日提出

指導教員：大谷 義近 教授

47-106009：川西 庸平

平成二十三年修士論文

ビスマス添加による外因性スピノール効果の観測

川西 庸平

目次

第1章 序論

- 1.1. [研究背景](#) 1
 - 1.1.1 [スピントロニクス](#) 1
 - 1.1.2 [スピン流](#) 2
- 1.2. [研究目的](#) 3

第2章 基礎理論

- 2.1. [スピン依存伝導](#) 4
 - 2.1.1 [2電流モデル](#) 4
 - 2.1.2 [スピン偏極電流](#) 5
 - 2.1.3 [スピン蓄積効果](#) 5
 - 2.1.4 [スピン拡散現象](#) 6
 - 2.1.5 [スピン抵抗とスピン吸収](#) 8
- 2.2. [非局所スピン流注入](#) 9
 - 2.2.1 [純スピン流の生成](#) 9
 - 2.2.2 [スピン蓄積の検出](#) 10
 - 2.2.3 [スピン蓄積信号の算出](#) 11
 - 2.2.4 [純スピン流の吸収](#) 13
- 2.3. [スピンホール効果](#) 14
 - 2.3.1 [スピンホール効果とホール効果](#) 14
 - 2.3.2 [スピン軌道相互作用](#) 15
 - 2.3.3 [内因性スピンホール効果](#) 16
 - 2.3.4 [外因性スピンホール効果](#) 19
 - 2.3.5 [スピンホール角](#) 21
 - 2.3.6 [スピンホール効果の電氣的検出](#) 22

第3章 実験方法

- 3.1. [試料作製](#) 26
 - 3.1.1 [リフトオフ法](#) 26
 - 3.1.2 [感光](#) 28
 - 3.1.3 [成膜](#) 29
 - 3.1.4 [試料形状](#) 30
- 3.2. [測定方法](#) 31
 - 3.2.1 [冷却装置および磁場印加装置](#) 31

3.2.2	測定回路	32
-------	----------------------	----

第4章 CuBi 合金におけるスピnhall効果

4.1.	非局所スピnhall測定	33
4.1.1	スピnhall吸収効果	33
4.1.2	スピnhall拡散長	34
4.2.	外因性スピnhall効果	35
4.2.1	逆スピnhall効果	35
4.2.2	正スピnhall効果	37
4.2.3	スピnhall抵抗率とスピnhall角	38
4.3	AgBi 合金におけるスピnhall効果	40

第5章 総括

参考引用文献

謝辞

第1章

序論

1.1. 研究背景

1.1.1. スピントロニクス

電子には電荷とスピン、2つの自由度が存在する。電荷は、電流や電圧といった形態を介して信号・情報技術へと利用されており、歴史的には半導体工学として発展してきた。他方、スピンは、永久磁石やハードディスクなどへとその磁氣的性質が利用されており、磁気工学として発展してきた経緯がある。このように、これら2つの自由度はそれぞれ個別に利用され、今日のエレクトロニクスの根幹を担ってきたといえる。しかしながら 1988 年、Fert らのグループによって金属人工格子中の巨大磁気抵抗効果 (GMR) が発見され[1]、スピンに依存した電気伝導が注目されるようになった。GMR は、強磁性体と非磁性体は何層にも積層されている系において、その積層周期が電子の平均自由行程よりも十分短い場合にのみ観測される現象である。これは、界面での電子散乱がスピンに依存しているために生じる効果であり、磁場の印加によって抵抗が数十%も変化する。当時、ハードディスク等の読み取りヘッドに使用されていた異方性磁気抵抗効果 (AMR) の場合が高々数%であったことを考慮すると、飛躍的な進歩である。GMR の発見は、産業的にはハードディスクの大容量化や小型化に拍車を掛け、磁気ランダムアクセスメモリ (MRAM) などの革新的なデバイスの登場へと繋がった[2]。一方、学術的には電子の電荷とスピンの相互利用に関する研究に拍車を掛け、様々な物理現象を発見する原動力となった。

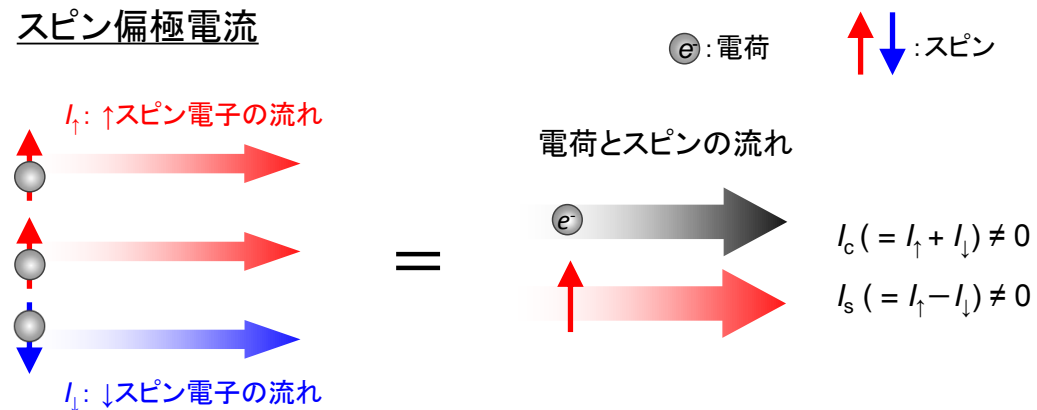
このように、電子の持つ電荷とスピンの双方を積極的に利用し、従来のエレクトロニクスでは実現できない新規の機能、現象を開拓する分野を“スピントロニクス”という。スピントロニクスの研究分野は多岐に渡っており、先に述べた磁場による電氣的性質の制御から熱や光を用いた磁氣的性質の制御など枚挙に暇がない。また、ターゲット物質も強磁性金属や非磁性金属だけではなく強磁性半導体や酸化物、有機物や超伝導体など多種多様である[3]。このように、研究対象の選択自由度の高さもスピントロニクスの魅力の一つであり、現在、精力的に研究されている理由の一つとなっている。

1.1.2. スピン流

スピントロニクスにおける基礎的な物理現象の一つとしてスピン流が挙げられる。スピン流は、電荷の流れとスピンの流れの相対関係によって2種類に分類される。そこで本項ではまず、2種類のスピン流の紹介を簡単に行う。

2電流モデルを想定した場合、電子の流れはスピン自由度 \uparrow, \downarrow によって区別される。図 1.1(a)に示すように、 \uparrow スピン電子と \downarrow スピン電子が、それぞれの状態数を非平衡に保ちながら伝搬している状況を仮定する。このとき、得られる電流はスピンの向きが偏った状態となっており、スピン偏極電流と呼ばれている。スピン偏極電流は、 \uparrow スピン電子と \downarrow スピン電子の状態密度が異なる物質、つまり強磁性体に電流を流すことで生成される。次に、図 1.1(b)に示すように \uparrow スピン電子と \downarrow スピン電子が反平行な向きに流れ、且つそれぞれの状態数が平衡状態を保っている状況を仮定する。この場合、電荷の流れは打ち消し合い、スピンの流れだけが取り出されることになる。このようなスピン流は、純スピン流と呼ばれている。

(a) スピン偏極電流



(b) 純スピン流

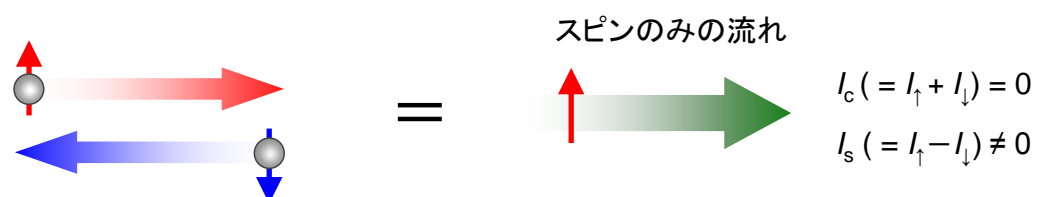


図 1.1 2電流モデルによる(a)スピン偏極電流、(b)純スピン流の説明。

1.2. 研究目的

純スピン流を生成する方法はいくつか知られており、代表的なものに非局所スピン流注入[4][5]やスピンポンピング[6]、スピンホール効果[7][8]などが挙げられる。中でもスピンホール効果は、強磁性体を用いずに純スピン流を生成できる特徴を持つため、研究が盛んに行われている。スピンホール効果は、その発現機構によって内因性スピンホール効果と外因性スピンホール効果の2種類に大別することができる。特に、不純物散乱によって誘起される外因性スピンホール効果は、母物質と不純物の組み合わせや、不純物濃度を変更することでスピンホール効果の大きさを制御可能である。また、最近の理論計算によると、貴金属にある特定の不純物を添加することで高効率なスピン流生成が可能になると予想されている[9][10]。特に、非磁性体である Cu や Ag に対してスピン軌道相互作用の強い Bi を入れた場合には、生成効率を飛躍的に上昇させることができるとしている。そこで本研究では、Cu 及び Ag を母物質として Bi を不純物添加させた合金系における外因性スピンホール効果に着目し、その詳細を調べた。

第2章

基礎理論

この章では、本研究と関わりの深い物理現象、測定手法等について紹介する。まず初めにスピン流とそれに関連した現象について追い、その後、純スピン流の生成方法について見ていく。2.2 節では非局所スピン流注入、2.3 節ではスピンホール効果を用いた純スピン流の生成について詳述する。

2.1. スピン依存伝導

2.1.1. 2電流モデル

強磁性体中では、電流の散乱がスピンの向きに依存していることが知られている。このため、図 2.1 に示すような、電荷のスピンの依存した \uparrow スピン電流と \downarrow スピン電流、2つの電流を想定した考え方をを用いる場合がある。このような考え方を2電流モデルと呼ぶ。本論文では、正電荷の流れに着目し、強磁性体の磁化方向に対して平行なスピン(majority spin)、反平行なスピン(minority spin)の2成分を想定した、2電流モデルに従って議論を行っていく。

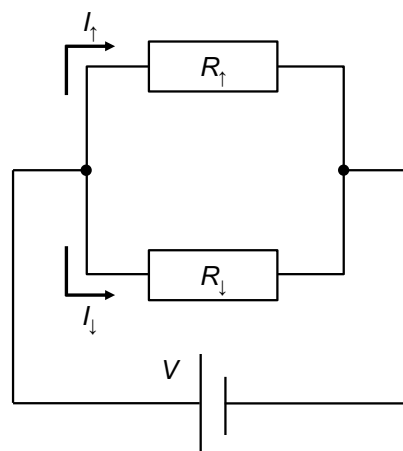


図 2.1 2電流モデルの概念図。

2.1.2. スピン偏極電流

強磁性体中では、majority spin と minority spin の電流密度に差が生じており、スピン偏極した電流が流れる。これをスピン偏極電流と呼ぶ。また、スピンの偏りはスピン偏極率 p を用いて表記される。

$$p \equiv \frac{j_{\uparrow} - j_{\downarrow}}{j_{\uparrow} + j_{\downarrow}} \quad (2.1)$$

ここで j_{\uparrow} 、 j_{\downarrow} はそれぞれ↑スピンの電流密度、↓スピンの電流密度を表している。次に、電流の成分を電荷とスピンに分けて考える。このとき、電荷流密度 j_c 、スピン流密度 j_s はそれぞれ

$$j_c \equiv j_{\uparrow} + j_{\downarrow} \quad (2.2a)$$

$$j_s \equiv j_{\uparrow} - j_{\downarrow} \quad (2.2b)$$

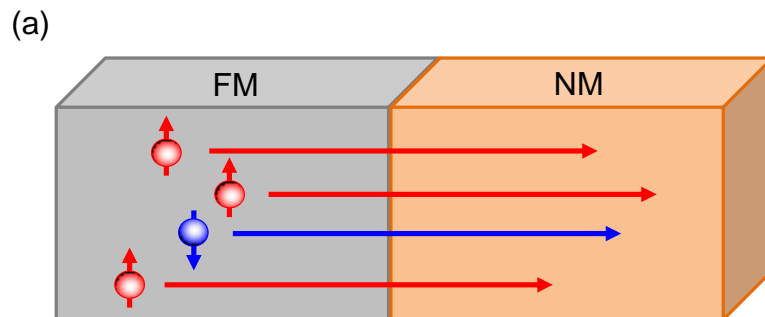
で定義される。また、 j_c と j_s はスピン偏極率を用いて

$$j_s \equiv p j_c \quad (2.3)$$

と表される。ここで、非磁性体中では一般的に $p = 0$ であることを考慮すると、スピン流密度 $j_s = 0$ となり電荷の流れのみ存在することが分かる。

2.1.3. スピン蓄積効果

図 2.2(a)に示すように、強磁性体から非磁性体へと電流を流した場合、接合界面近傍ではスピンの非平衡状態が生じる[11]。これはスピン注入と呼ばれ、強磁性体と非磁性体におけるバンド構造の差異によって誘起される。図 2.2(b)のように、強磁性体の↑スピンは非磁性体の↑スピンチャンネルに注入され、強磁性体の↓スピンは非磁性体の↓スピンチャンネルに注入される。このとき、強磁性体の↑スピンと↓スピンはスピン偏極率の割合で注入されるため、非磁性体側ではそれぞれのスピンチャンネル間で非平衡状態が生じる。この状態をスピン蓄積と呼ぶ。



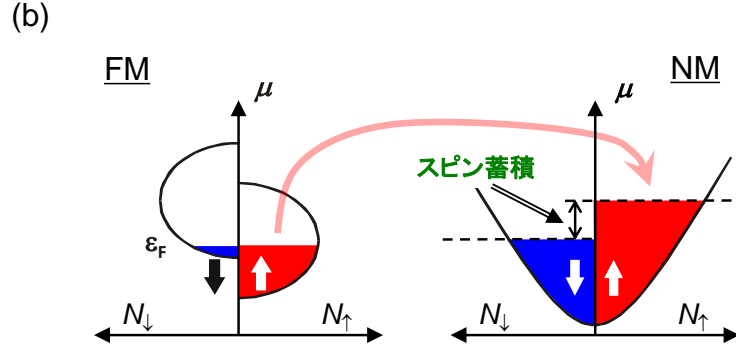


図 2.2 (a)強磁性体／非磁性体接合における電荷の流れ。(b)スピン注入による各スピ
ンチャンネルのフェルミ準位の遷移。($N_{\uparrow}, N_{\downarrow}$: スピン依存状態密度、 μ : エネルギー、 ϵ_F :
フェルミ準位)

2.1.4. スピン拡散現象

蓄積されたスピンは、有限の距離において拡散される。ここでは、拡散する \uparrow スピン、及び \downarrow スピンの流
れを、電気化学ポテンシャルを用いて記述することを考える。また、緩和過程を考慮することによってスピ
ン拡散長の導出も行う。

\uparrow スピン、及び \downarrow スピンの電流密度 $j_{\uparrow,\downarrow}$ は、電場 E によるドリフト電流と、電荷密度の平衡状態からの
ずれ $\delta n_{\uparrow,\downarrow}$ による拡散電流を用いて

$$j_{\uparrow,\downarrow} = \sigma_{\uparrow,\downarrow} E - e D_{\uparrow,\downarrow} \nabla \delta n_{\uparrow,\downarrow} \quad (2.4)$$

と表される。ここで $\sigma_{\uparrow,\downarrow}$ は電気伝導率、 e は素電荷、 $D_{\uparrow,\downarrow}$ は拡散係数である。また、フェルミ面におけ
る状態密度を $N_{\uparrow,\downarrow}$ として Einstein の関係式

$$\sigma_{\uparrow,\downarrow} = e^2 N_{\uparrow,\downarrow} D_{\uparrow,\downarrow} \quad (2.5)$$

を用いると、式(2.4)は

$$j_{\uparrow,\downarrow} = \frac{\sigma_{\uparrow,\downarrow}}{e} \left(e E - \frac{1}{N_{\uparrow,\downarrow}} \nabla \delta n_{\uparrow,\downarrow} \right) \quad (2.6)$$

となる。ここで化学ポテンシャル $\delta \epsilon_{\uparrow,\downarrow} \equiv \delta n_{\uparrow,\downarrow} / N_{\uparrow,\downarrow}$ と静電ポテンシャル ϕ を用いて、電気化学ポテンシ
ヤル $\mu_{\uparrow,\downarrow} \equiv \epsilon_{\uparrow,\downarrow} + e \phi$ を定義する。すると、式(2.6)は簡潔に

$$j_{\uparrow,\downarrow} = - \frac{\sigma_{\uparrow,\downarrow}}{e} \nabla \mu_{\uparrow,\downarrow} \quad (2.7)$$

と表現することができる。この式は、拡散する電荷の流れが電場の有無によらず、電気化学ポテンシ
ヤルの勾配によって決定されることを示している。

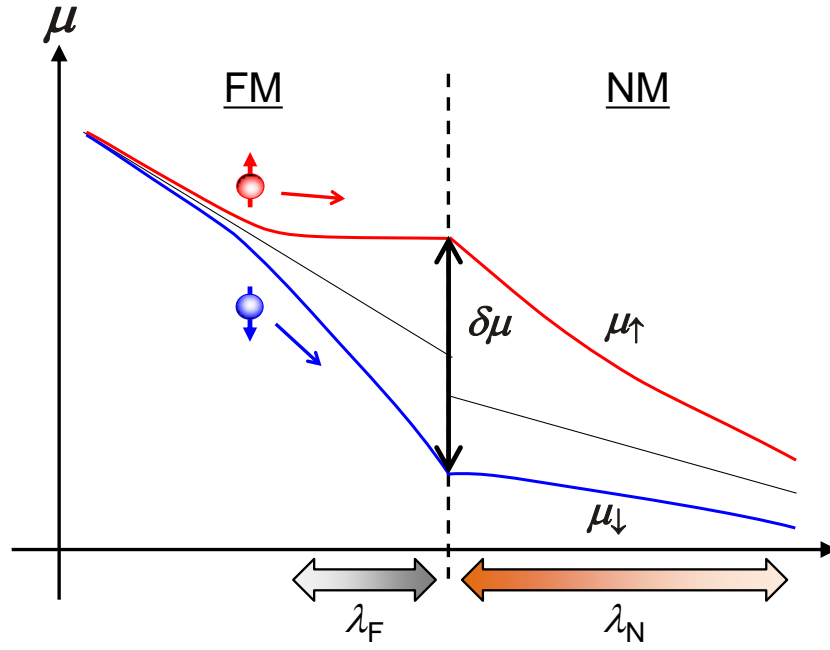


図 2.3 強磁性体／非磁性体接合における電気化学ポテンシャルの空間変化。接合界面に誘起されたスピン蓄積 $\delta\mu$ は、有限の長さ（スピン拡散長 $\lambda_{F,N}$ ）で減衰する。

次に、スピンの緩和過程について考える。ここでは、スピンの向きが反転するスピン反転散乱について着目する。 \uparrow スピンから \downarrow スピンへの反転散乱による緩和時間を $\tau_{\uparrow\downarrow}$ 、 \downarrow スピンから \uparrow スピンへの反転散乱による緩和時間を $\tau_{\downarrow\uparrow}$ とすると、緩和過程において電荷数は保存されるため

$$\frac{1}{e} \nabla \cdot \mathbf{j}_{\uparrow,\downarrow} = \mp \frac{\delta n_{\uparrow}}{\tau_{\uparrow\downarrow}} \pm \frac{\delta n_{\downarrow}}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \quad (2.7)$$

の関係が成り立つ。更に、フェルミ面での平衡条件

$$\frac{N_{\uparrow}}{\tau_{\uparrow\downarrow}} = \frac{N_{\downarrow}}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \quad (2.8)$$

を考慮することで、スピン蓄積 $\delta\mu = \mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}$ は

$$D \nabla^2 \delta\mu = \frac{\delta\mu}{\tau_{sf}} \quad (2.9)$$

の関係にあることが分かる[11]-[14]。ここで、 D と τ_{sf} はそれぞれ以下で定義されている。

$$\frac{1}{D} = \frac{1}{D_{\uparrow}} \frac{N_{\downarrow}}{(N_{\uparrow} + N_{\downarrow})} + \frac{1}{D_{\downarrow}} \frac{N_{\uparrow}}{(N_{\uparrow} + N_{\downarrow})} \quad (2.10a)$$

$$\frac{1}{\tau_{sf}} = \frac{1}{\tau_{\uparrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}} \quad (2.10b)$$

また、 $\lambda = \sqrt{D \tau_{sf}}$ とすることで式(2.9)は

$$\nabla^2 \delta\mu = \frac{\delta\mu}{\lambda^2} \quad (2.11)$$

の形に書き換えることができ、図 2.1(a)の場合における空間分布を図示すると図 2.3 のようになる。ここで、 λ はスピン拡散長と呼ばれる定数であり、スピン蓄積が減衰し平衡状態へと達するまでの距離を表している。一般に、スピン拡散長は物質固有の定数であり、その長さは数 nm から数 μm 程度のオーダーである [15]。

2.1.5. スピン抵抗とスピン吸収

スピン抵抗 R_S を導入すれば、スピン蓄積(及びその勾配であるスピン流)の拡散現象の記述に便利である[16]。ここで、スピン抵抗は

$$R_S \equiv \frac{1}{\sigma} \frac{\lambda}{(1 - p^2)A} \quad (2.12)$$

で定義される。 σ は通常の電気伝導度、 A はスピン流に対する有効断面積[17]である。スピン蓄積電圧 $\delta\mu/e$ の存在する場所でのスピン流は、スピン抵抗を用いることによって

$$I_s = \frac{1}{R_S} \frac{\delta\mu}{e} \quad (2.13)$$

と表すことができる。

スピン抵抗は、スピン流の流れやすさを表している。図 2.4 のように、スピン抵抗の大きい物質 A とスピン抵抗の小さい物質 B が接合された系を考える。スピン流がスピン抵抗の大きな物質 A の中で流れている場合には、スピン流はスピン抵抗のより低い物質 B へと流れ込もうとする。この現象をスピン吸収と呼ぶ。

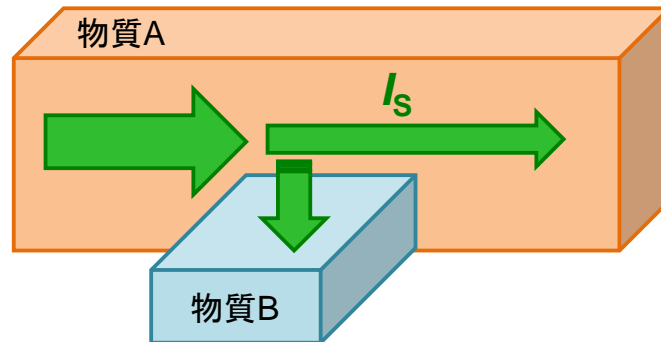


図 2.4 スピン吸収効果の模式図。

2.2. 非局所スピンの流入

2.2.1. 純スピンの生成

非局所スピン流注入を用いることにより、電荷を伴わないスピンのみの流れ(純スピン流)を生成することができる。ここでは、非局所構造による純スピンの生成を紹介する。

図 2.5(a)のように、強磁性体(FM)と非磁性体(NM)を交差させた構造を作製し、電流を強磁性体から非磁性体の左側へと流す。このとき、前述の通り、強磁性体と非磁性体の界面にはスピン蓄積が誘起される。生成されたスピン蓄積は、非磁性体中において等方的に拡散していく。非磁性体の右側には印加電流が存在しないため、スピン角運動量のみの流れ、つまり純スピン流が流れている状態を実現できる。このような手法を非局所スピン流注入と呼ぶ。このときの非磁性体中における電気化学ポテンシャルの様子は、図 2.5(b)のようになる。

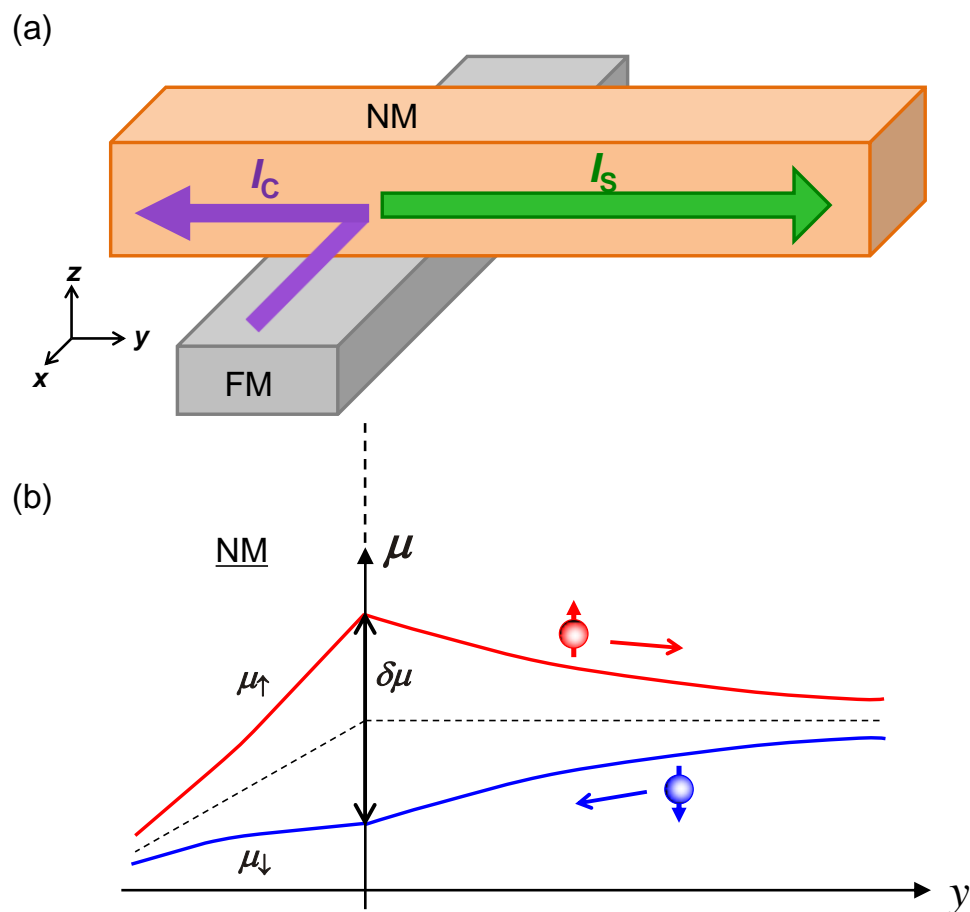


図 2.5 (a)非局所スピン流注入の模式図。(b)非磁性体中での電気化学ポテンシャルの図。

2.2.2. スピン蓄積の検出

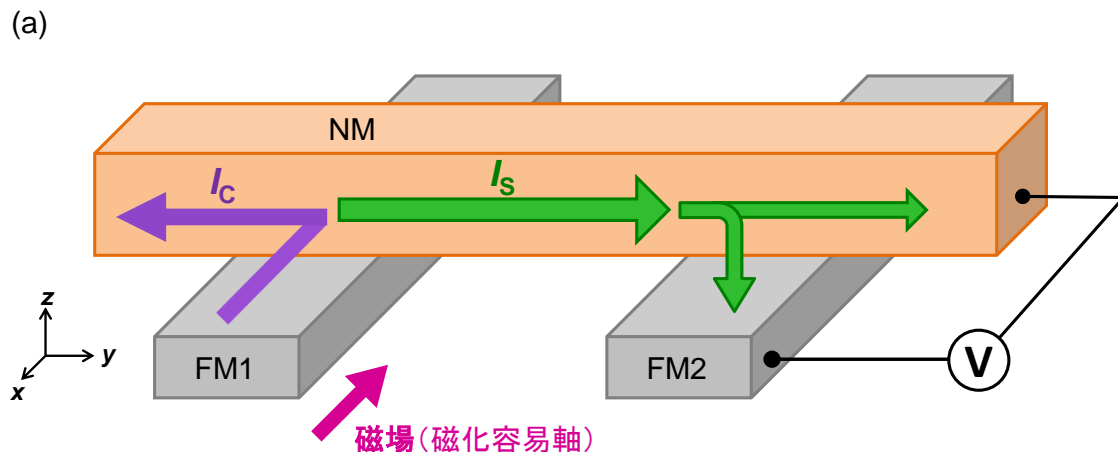
非局所スピン流注入で生成されたスピン蓄積は、面内スピバルブ構造を用いることによって電氣的に検出することが可能である。ここでスピバルブ構造とは、強磁性体／非磁性体／強磁性体の基本構造を有する素子のことである。この構造では、強磁性体の磁化方向に依存した電気伝導特性を知ることができ、特に素子形状を面内構造にした場合には、スピン蓄積に起因した電気信号のみを観測できる[5]。

図 2.6(a)のように、2つの強磁性体を非磁性体によって架橋した面内スピバルブ構造を考える。一方の端子に電流を流すことによって、非局所スピン流注入により純スピン流が生成される。生成された純スピン流は非磁性体中を拡散し、もう一方の強磁性体／非磁性体界面において2つに分流する。いま、簡単のため系を1次化して考えると、強磁性体中の膜厚方向の電気化学ポテンシャルは

$$\mu_F^{\uparrow,\downarrow} \propto \frac{1}{\sigma_F^{\uparrow,\downarrow}} e^{-z/\lambda_F} \quad (2.14)$$

となる。ここで、 $\sigma_F^{\uparrow,\downarrow}$ と λ_F はそれぞれ強磁性体中での電気伝導率及びスピン拡散長である。強磁性体中では $\sigma_F^{\uparrow} \neq \sigma_F^{\downarrow}$ となるため、図 2.6(b)で示すように↑スピンと↓スピンの電気化学ポテンシャルの減衰の仕方が異なる。そのため、非磁性体中と強磁性体中では電気化学ポテンシャルの収束値に差が生じる。これにより、図 2.6(a)のように電位差を測定することで、図 2.6(c)のような2つの強磁性体の磁化方向の相対関係に応じた信号を得ることができる。2つの磁化状態が平行、または反平行の場合において電圧は最大値をとるが、この2状態間の電圧の差をスピン蓄積信号と呼ぶ。

実際に面内スピバルブ構造を作製する場合には、2つの強磁性体間の距離を非磁性体中のスピン拡散長と同程度以下で作製する必要がある。また測定においては、磁場は強磁性体の磁化容易軸方向に対して印加する。それぞれの強磁性体の保持力に差を設けることで、磁化の平行、反平行状態を作り出すことができ、図 2.6(c)のようなスピン蓄積信号を得ることができる。



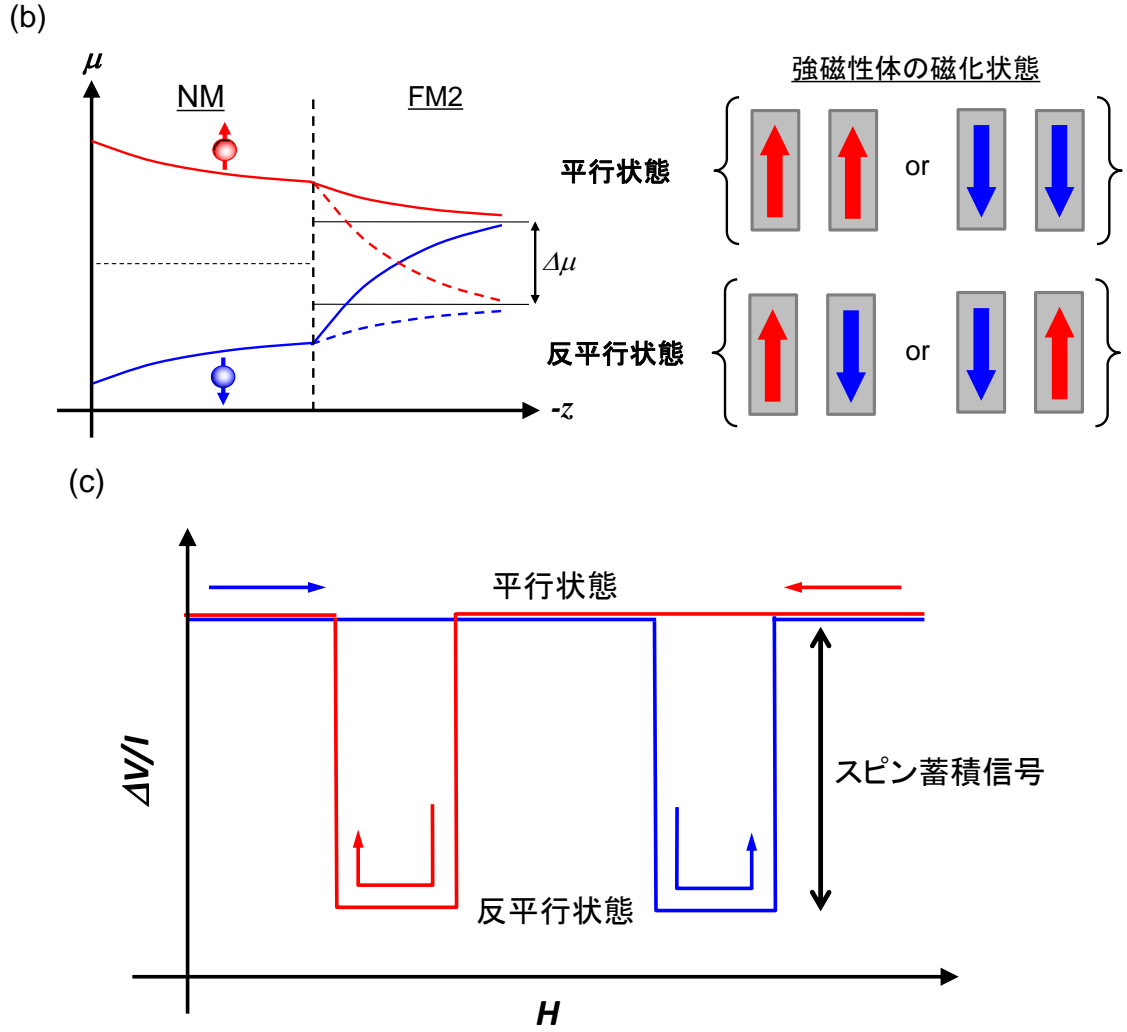


図 2.6 (a)非局所スピバルブを表した模式図。(b)強磁性体 2 における電気化学ポテンシャル。2 つの強磁性体の磁化状態によって収束値が変化する。(c)非局所スピバルブ測定におけるスピ蓄積信号。

2.2.3. スピ蓄積信号の算出

ここでは、面内スピバルブ構造におけるスピ蓄積信号の算出について考える。図 2.7 のような素子構造、及び非局所測定を仮定する。定常状態における電荷とスピの連続方程式は、

$$\nabla \cdot (\mathbf{j}_{\uparrow} + \mathbf{j}_{\downarrow}) = 0 \quad (2.15a)$$

$$\nabla \cdot (\mathbf{j}_{\uparrow} - \mathbf{j}_{\downarrow}) = -e \left(\frac{\delta n_{\uparrow}}{\tau_{\uparrow\downarrow}} - \frac{\delta n_{\downarrow}}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \right) \quad (2.15b)$$

となる。これは前述の通り、以下の形に書き換えることができる。

$$\nabla^2(\sigma_{\uparrow}\mu_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow}\mu_{\downarrow}) = 0 \quad (2.16a)$$

$$\nabla^2\delta\mu = \frac{\delta\mu}{\lambda^2} \quad (2.16b)$$

いま、印加電流を I として図 2.7 のように流す。このとき、非磁性体中の電気化学ポテンシャルは式 (2.16a)、(2.16b) を 1 次元に限定して解くことにより

$$\mu_{\text{N}}^{\uparrow,\downarrow} = \overline{\mu_{\text{N}}} \pm \left(a_1 e^{-|x|/\lambda_{\text{N}}} - a_2 e^{-|x-L|/\lambda_{\text{N}}} \right) \quad (2.17)$$

の形に記述できる。ここで第1項は電荷移動を表しており、 $x < 0$ で $\overline{\mu_{\text{N}}} = -[eI/(\sigma_{\text{N}}A_{\text{J}})]x$ 、 $x > 0$ で $\overline{\mu_{\text{N}}} = 0$ である。また、 $A_{\text{J}} = w_{\text{N}}w_{\text{F}}$ は非磁性体と強磁性体間の接合面積である。一方、第2項は \uparrow スピンと \downarrow スピンの電気化学ポテンシャルのシフトを表しており、 a_1 を含む項はスピン注入により F1/N 界面に誘起されたスピン蓄積、 a_2 を含む項は F2/N 界面で分流することにより減衰したスピン蓄積を表している。また、各接合面における非磁性体中でのスピン流は、式 (2.7) より $I_1^{\text{S}} = 2(\sigma_{\text{N}}A_{\text{N}}/e\lambda_{\text{N}})a_1$ 及び $I_2^{\text{S}} = 2(\sigma_{\text{N}}A_{\text{N}}/e\lambda_{\text{N}})a_2$ と求められる。ここで $A_{\text{N}} = w_{\text{N}}d_{\text{N}}$ は非磁性体の断面積であり、 a_1, a_2 は境界条件から決定される定数である。

次に、強磁性体中について考える。膜厚がスピン拡散長よりも十分に厚い ($d_{\text{F}} \gg \lambda_{\text{F}}$) と仮定して、F1/N 及び F2/N 界面付近について式 (2.16a)、(2.16b) を解くと

$$\mu_{\text{F1}}^{\uparrow,\downarrow} = \overline{\mu_{\text{F1}}} \pm b_1 \frac{\sigma_{\text{F1}}}{\sigma_{\text{F1}}^{\uparrow,\downarrow}} e^{-z/\lambda_{\text{F}}} \quad (2.18a)$$

$$\mu_{\text{F2}}^{\uparrow,\downarrow} = \overline{\mu_{\text{F2}}} \mp b_2 \frac{\sigma_{\text{F2}}}{\sigma_{\text{F2}}^{\uparrow,\downarrow}} e^{-z/\lambda_{\text{F}}} \quad (2.18b)$$

となる。ここで $\overline{\mu_{\text{F1}}} = -[eI/(\sigma_{\text{F}}A_{\text{J}})]z + eV_1$ は電荷移動、 $\overline{\mu_{\text{F1}}} = eV_2$ は静電ポテンシャルを表しており、 V_1 と V_2 はそれぞれ接合界面における電位降下 $(\overline{\mu_{\text{F}}} - \overline{\mu_{\text{N}}})/e$ を示している。また、各接合面における強磁性体中でのスピン流は、 $I_1^{\text{S}} = p_{\text{F}}I - 2(\sigma_{\text{F}}A_{\text{J}}/e\lambda_{\text{F}})b_1$ 及び $I_2^{\text{S}} = -2(\sigma_{\text{F}}A_{\text{J}}/e\lambda_{\text{F}})b_2$ となる。ここで p_{F} は強磁性体中のスピン偏極率であり、 V_1, V_2 及び b_1, b_2 は境界条件から決定される定数である。

検出側端子で得られる信号について考える。2つの強磁性体間の磁化方向が平行な場合に V_2^{P} 、反平行な場合に V_2^{AP} の電位差が発生するとする。このときスピン蓄積信号は

$$\Delta R_{\text{S}} = \frac{(V_2^{\text{P}} - V_2^{\text{AP}})}{I} = 2|V_2| \quad (2.19)$$

となる。いま、F1 と F2 が同一の強磁性体であり、強磁性体／非磁性体接合の界面抵抗が無視できるほど小さいと仮定する。このときのスピン蓄積信号は、式(2.17)、(2.18a)、(2.18b)を用いて

$$\Delta R_{\text{S}} = \frac{4p_{\text{F}}^2 R_{\text{N}} e^{-L/\lambda_{\text{N}}}}{\left(\frac{R_{\text{N}}}{R_{\text{F}}} + 2\right)^2 - \left(\frac{R_{\text{N}}}{R_{\text{F}}}\right)^2 e^{-2L/\lambda_{\text{N}}}} \quad (2.20)$$

となる[18]。ここで、 R_{N} と R_{F} はそれぞれ非磁性体及び強磁性体中のスピン抵抗を示している。

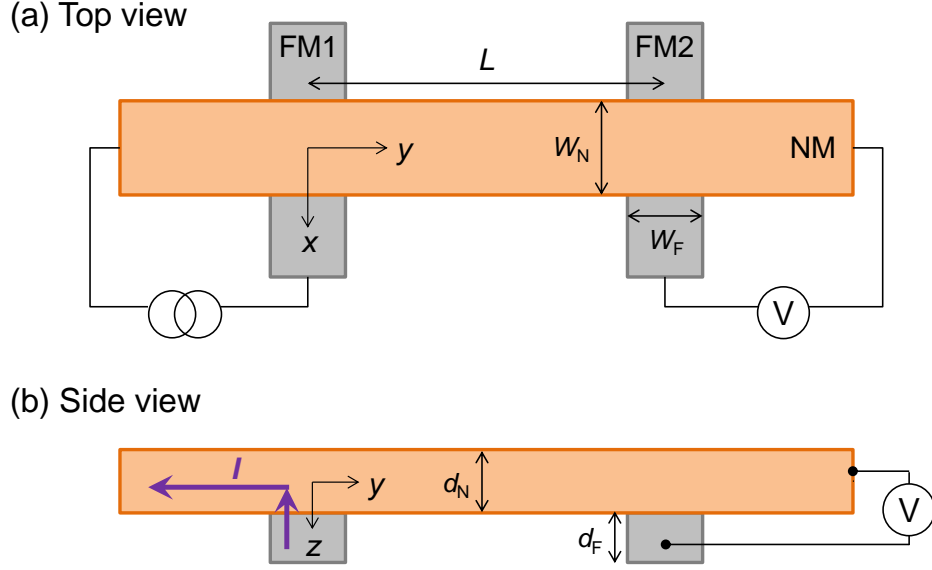


図 2.7 面内スピバルブの(a)上面図、(b)側面図。

2.2.4. 純スピンの吸収

図 2.8(a)のように、面内スピバルブ構造の強磁性体間に物質 **M** を挿入した素子構造を考える。この素子において非局所スピバルブ測定を行うと、図 2.8(b)で示すように、物質 **M** を挿入することによってスピン蓄積信号が小さくなっていることが分かる。これは、非磁性体中を伝搬する純スピンの流が物質 **M** に吸収されたことによって、検出側におけるスピン蓄積の総量が減少したことを意味している[19]。

2つのスピン蓄積信号を比較することにより、物質 **A** に対してどれだけスピンの流が吸収されているかを知ることができる。ここで物質 **M** を非磁性体と仮定する。また、物質 **M** のスピン抵抗 R_M 及び強磁性体のスピン抵抗 R_F が、スピバルブを構成する非磁性体のスピン抵抗 R_N よりも十分に小さいと仮定する。いま、物質 **M** が2つの強磁性体間の中心に位置しているとする、物質 **M** を挟まない場合のスピン蓄積信号 $\Delta R_S^{\text{without}}$ と挟んだ場合のスピン蓄積信号 ΔR_S^{with} の比は

$$\begin{aligned}
 \eta &\equiv \frac{\Delta R_S^{\text{with}}}{\Delta R_S^{\text{without}}} \\
 &= \frac{2 \frac{R_M}{R_N} \left\{ \sinh\left(\frac{L}{\lambda_N}\right) + 2 \frac{R_F}{R_N} e^{L/\lambda_N} + 2 \left(\frac{R_F}{R_N}\right)^2 e^{L/\lambda_N} \right\}}{\left\{ \cosh\left(\frac{L}{\lambda_N}\right) - 1 \right\} + 2 \frac{R_M}{R_N} \sinh\left(\frac{L}{\lambda_N}\right) + 2 \frac{R_F}{R_N} \left\{ e^{L/\lambda_N} \left(1 + 2 \frac{R_M}{R_N} \right) \left(1 + \frac{R_F}{R_N} \right) - 1 \right\}} \\
 &\approx \frac{2 \frac{R_M}{R_N} \sinh\left(\frac{L}{\lambda_N}\right)}{\left\{ \cosh\left(\frac{L}{\lambda_N}\right) - 1 \right\} + 2 \frac{R_M}{R_N} \sinh\left(\frac{L}{\lambda_N}\right)} \tag{2.21}
 \end{aligned}$$

となる[20]。ここで、 λ_M は物質 **M** におけるスピン拡散長を表している。

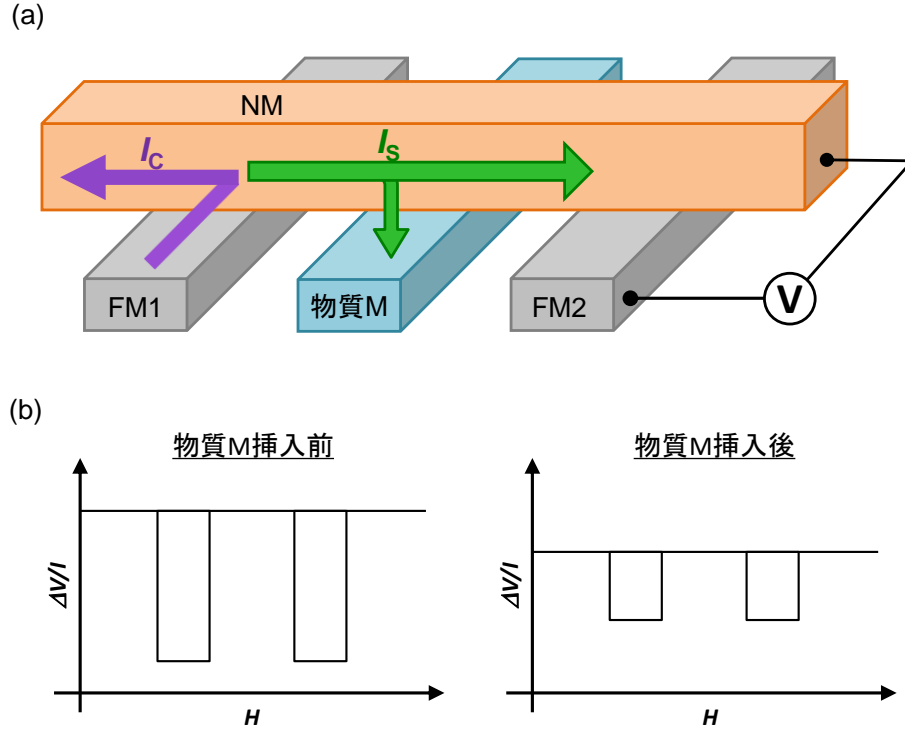


図 2.8 (a)面内スピバルブに物質 M を挿入した構造。(b)物質 M の有無による非局所スピバルブ測定と比較。

2.3. スピンホール効果

2.3.1. スピンホール効果とホール効果

強磁性体を用いずに純スピ流を取り出せる手法として、スピンホール効果が注目されている。ここでは、通常のホール効果と対比させてスピンホール効果の紹介を行う。

通常のホール効果の場合、図 2.9(a)のように y 軸方向に流れる電荷が、 z 軸方向に印加された磁場からのローレンツ力によって x 軸方向に力を受ける。その結果、試料の x 軸方向の側面に電荷が蓄積し、試料端間において電位差を誘起する[21]。

一方、スピンホール効果の場合は磁場を必要とせず、電荷のスピン向きと伝導方向に依存した現象である[7][8]。図 2.9(b)のように、 y 軸方向に流れる電荷が \uparrow スピンと \downarrow スピンに応じて非対称な散乱を起こす。 \uparrow スピンと \downarrow スピンを持った電荷が正反対方向に散乱されるため、試料には電荷の流れに対して垂直な方向に純スピ流が流れる。このとき、電荷の流れと純スピ流には

$$I_S \propto I_C \times s \quad (2.22)$$

の関係が成り立つ。ここで、 \mathbf{s} は電荷のスピンの向きである。

スピンホール効果はスピン軌道相互作用によって誘起される。その発現機構は、強磁性体中の異常ホール効果と理論的に大きく共通しており、物質固有の内因性機構か不純物誘起による外因性機構に大別される。

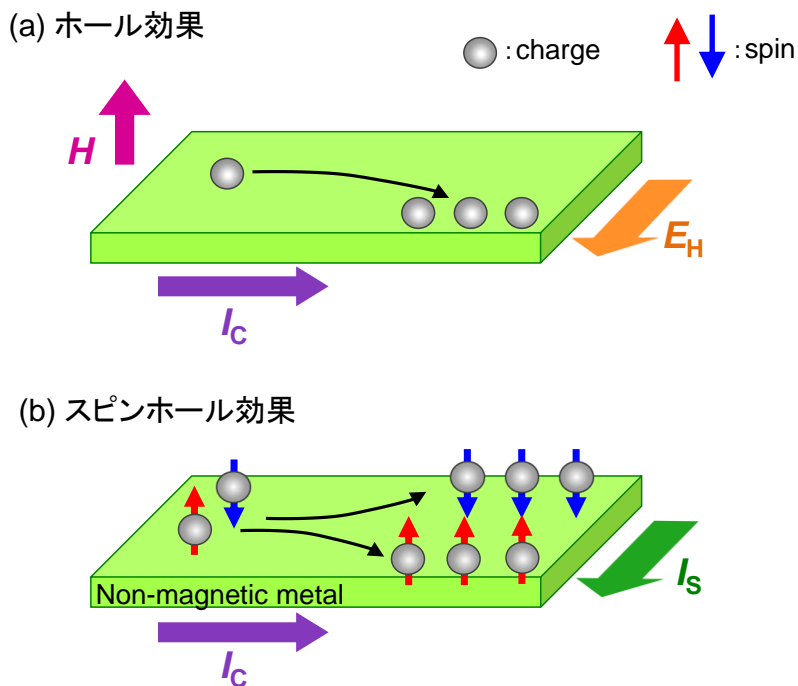


図 2.9 (a)ホール効果。(b)スピンホール効果。

2.3.2. スピン軌道相互作用

スピン軌道相互作用は相対論的効果である。運動している電子の立場から電場を観測すると磁場のよう見え、それが電子スピンと相互作用することで生じる。

ここで、原子におけるスピン軌道相互作用を古典的に考える[22][23]。原子核を原点とし、電子の位置と速度をそれぞれ \mathbf{r} と \mathbf{v} とする。このとき、電子に固定した座標系から見ると原子核は $-\mathbf{r}$ の位置を $-\mathbf{v}$ の速度で運動しているように見える(図 2.10)。運動している原子核は原子番号を Z とすると Ze の電荷を持っており、電子のまわりに $(-\mathbf{v})Ze$ の電流が存在することになる。この環状電流が電子の位置に作り出す有効磁場 \mathbf{H} は、ビオ・サバールの法則により

$$\mathbf{H} = \frac{1}{4\pi} \frac{Ze(\mathbf{r} \times \mathbf{v})}{r^3} = \frac{1}{4\pi m} \frac{Ze}{r^3} \hbar \mathbf{l} \quad (2.23)$$

となる。ここで、 $\hbar \mathbf{l} = m(\mathbf{r} \times \mathbf{v})$ は角運動量である。一方、電子スピン \mathbf{s} は磁気モーメント

$$\boldsymbol{\mu}_s = -2\mu_B \mathbf{s} \quad (2.24)$$

を持ち(ボーア磁子を μ_B 、g 因子を 2 とした)、その磁場中のエネルギーは

$$H_{so} = -\boldsymbol{\mu}_s \cdot \boldsymbol{\mu}_0 \mathbf{H} = \frac{\mu_0}{4\pi m^2} \frac{Ze\hbar}{r^3} (\hbar \mathbf{l} \cdot \mathbf{s}) \quad (2.25)$$

となる。しかしながら、電子を中心に原子を見る場合には回転座標系における相対論的補正をしなければならない。その結果、因子 $1/2$ (トーマス因子と呼ばれる) が余分につくため、スピン軌道相互作用は次式で与えられる。

$$H_{so} = \frac{\mu_0}{4\pi m^2} \frac{Ze\hbar}{2r^3} (\hbar \mathbf{l} \cdot \mathbf{s}) \quad (2.26)$$

上式より、原子番号が大きいほどスピン軌道相互作用が強くなることが分かる。また、より一般的な場合として、中心力ポテンシャル $V(r) = -Ze^2/(4\pi\epsilon_0 r)$ の中を電子が運動しているときには

$$H_{so} = \frac{1}{2m^2 c^2} \left(\frac{1}{r} \frac{dV}{dr} \right) \mathbf{l} \cdot \mathbf{s} \quad (2.27)$$

となる。ここで、 $c = 1/\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}$ は光の速度である。

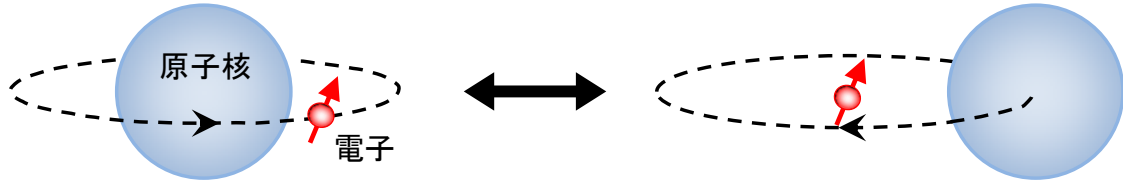


図 2.10 原子核の回りを運動する電子。電子から見ると原子核が電子の回りを運動しているように見える。

2.3.3. 内因性スピンホール効果

内因性スピンホール効果は比較的新しく提案された概念であり、現在までに半導体と遷移金属の2つの系が知られている。以下では、それぞれの発現機構について簡単に紹介していく。

半導体における内因性スピンホール効果

この系のスピンホール効果は理論的には、ラシュバ型のスピン軌道相互作用に起因したスピンホール効果[24]と、ラッティンジャー模型で記述されるスピンホール効果[25][26]の2つが代表的である。n 型半導体はラシュバ型、p 型半導体はラッティンジャー模型にそれぞれ対応する。

ラシュバ型のスピン軌道相互作用によるスピンホール効果を考える。ラシュバ型ハミルトニアンは

$$H = \frac{p^2}{2m} + \frac{\alpha}{\hbar} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{z} \times \mathbf{p}) \quad (2.28)$$

の形に記述され、xy 面内に形成されたヘテロ構造2次元電子系を表している。ここで、 \mathbf{p} は運動量、 $\boldsymbol{\sigma}$ はパウリスピン、 α はラシュバパラメータであり実際の系ではゲート電圧によって制御可能な値である。ヘテ

ロ構造2次元電子系では、電子は xy 面内に束縛され、その束縛ポテンシャルに z 軸方向の空間反転対称性の破れがあるために、式(2.28)の第2項のスピントラキ相互作用の項が現れる。この項によってスピントラキ効果が誘起される。

図 2.11 は、InGaAs/GaAs 2次元ヘテロ構造における内因性スピントラキ効果を示している[24]。ラッシュバ型のスピントラキ相互作用によって、スピントラキに依存したバンド分裂を起こす(図 2.11(a))。この系に電場を印加すると、電子のドリフト運動によって有効磁場が変化し、電子スピントラキは図 2.11(b)で示すような歳差運動をする。

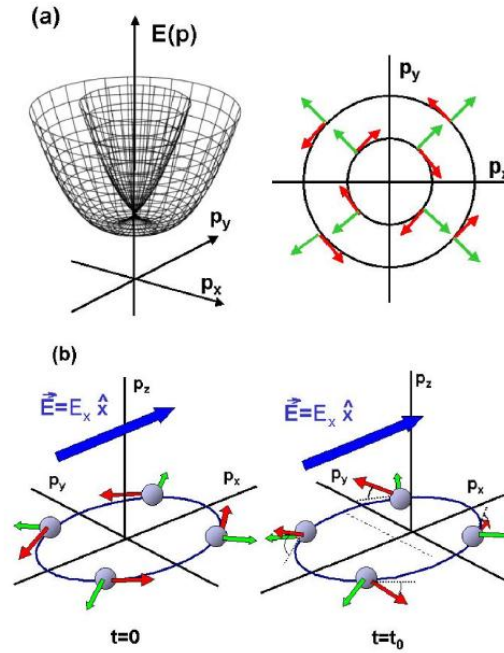


図 2.11 InGaAs/GaAs 2次元ヘテロ構造内での(a)伝導バンドの模式図と、(b)電子の運動[24]。

ラッティンジャー模型で記述されるスピントラキ効果の場合には、ハミルトニアンは

$$H = \frac{\hbar^2}{2m} \left[\left(\gamma_1 + \frac{5}{2} \gamma_2 \right) k^2 - 2\gamma_2 (\mathbf{k} \cdot \mathbf{S})^2 \right] \quad (2.29)$$

で表される[26]。ここで、 \mathbf{S} はスピン $3/2$ の演算子であり、 γ_1, γ_2 は物質によって決まるパラメータである。これは3次元バルク半導体の価電子バンドに着目した模型であり、原子起源のスピントラキ相互作用によって分裂した4つのバンド(全角運動量が $j_z = \pm 3/2$ の重い正孔バンドと、 $j_z = \pm 1/2$ の軽い正孔バンド)を記述する。これらのバンドに正孔をドーピングして p 型にすることで、スピントラキ効果が発現する。一方、電子をドーピングした n 型の場合、伝導バンドはスピンに関して縮退しておりスピントラキ相互作用がゼロなので、スピントラキ効果は発現しない。

GaAs のバンド構造を図示すると、図 2.12(a)のようになっており、重い正孔と軽い正孔に対応した4つのバンドに分裂していることが分かる[26]。この系に Al を添加して p 型にし、発現した内因性スピントラキ効

果を観測した例が図 2.12(b)である。この実験では、発光ダイオードを用いて内因性スピンホール効果を観測している。p 型半導体の部分に x 方向へ電場をかけ、 y 方向に出てくるスピン偏極した正孔と n 型半導体から出てくる電子を再結合させる。このとき、結合によって放射される光の円偏光度を測定する。印加電場を逆にすると円偏光度も逆になり、また、LED1 と LED2 では円偏光度が逆であることも分かる。

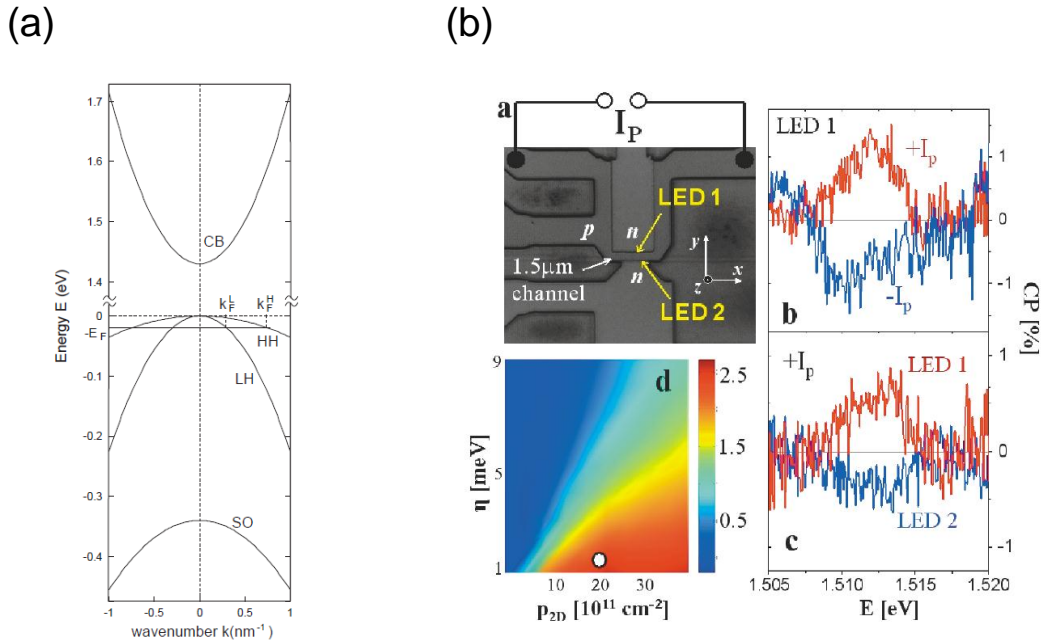


図 2.12 (a)GaAs 3 次元結晶のバンド構造の模式図[26]。(b)LED 構造を用いたスピンホール効果の測定[27]。

遷移金属におけるスピンホール効果

ここでは、 d 電子系遷移金属における内因性スピンホール効果の紹介をする。この系では、 d 電子が持つ軌道自由度に起因した「軌道 Aharonov-Bohm(AB)効果」によって有効磁場が発生し、内因性スピンホール効果が発現するとされている[28]。例えば、図 2.13 に示すような d 軌道における t_{2g} バンドにおいて、電子がユニットセルの半分の面積を囲む経路を矢印の向きに運動する場合を考える[29]。簡単のため、 xy 軌道は無視し、サイトあたりの電子数を1以下と仮定する。電子の軌道波動関数は、スピン軌道相互作用によって縮退が解けて d 軌道の分裂が起こるため、以下の形に記述される。

$$|l_z = \pm 1\rangle = |xz\rangle \pm i|yz\rangle \quad (2.30)$$

ここで、 \uparrow スピンの軌道状態が $l_z = -1$ 、 \downarrow スピンの軌道状態が $l_z = +1$ に対応する。このとき、経路を一周すると電子は軌道の位相差に由来するベリー位相因子 $\pm i$ を獲得する。これは、 xz 軌道と yz 軌道の位相差 π が電子のベリー位相となることを意味している。このベリー位相は、経路中を貫く仮想磁束 Φ に

よる AB 効果に起因した位相差と類似しており、軌道 AB 効果と呼ばれている。この効果によってスピンは有効磁場を感じ、外部電場と垂直方向に運動する。このとき、 \uparrow スピンと \downarrow スピンにおいて AB 位相因子の符号が異なるために、電場と垂直方向に純スピンの流れが誘起される。これが、遷移金属における内因性スピンホール効果の発現機構である。

d 電子系遷移金属における内因性スピンホール効果として有名なものに、Pt での報告例が挙げられる。Pt における内因性スピンホール効果は 2006 年に初めて報告され、スピンホール伝導率が n 型半導体の 10^4 倍に達することが明らかになった[30]。これ以降、遷移金属における研究が盛んになり、理論・実験共に多くの報告がなされている[19][30]-[33]。その一環である、 $4d, 5d$ 遷移金属におけるスピンホール効果の研究[34]では、(i)軌道自由度を有する遷移金属では、バンド構造に依らず巨大なスピンホール効果が期待できる、(ii)スピンホール伝導率の符号や絶対値を決定する簡単な規則が存在する、ことが指摘されている。これらは実際に、非局所スピンバルブ構造を用いた電氣的測定において裏付けが行われている[35]。

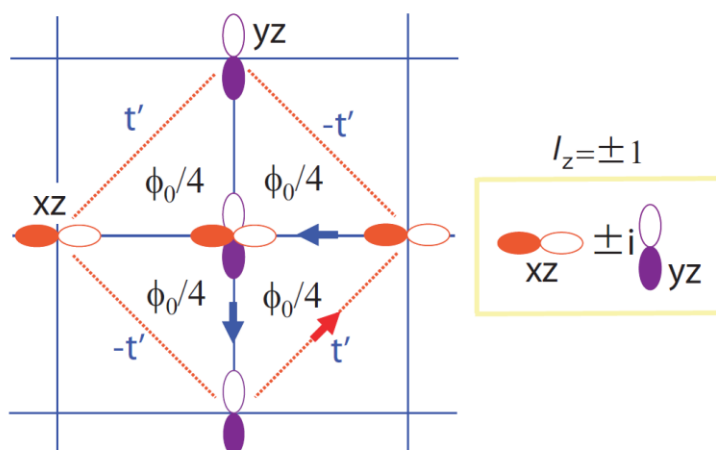


図 2.13 \downarrow スピン電子に対する、 t_{2g} 軌道由来の有効磁束[29]。スピン軌道相互作用によって電子が xz 軌道から yz 軌道へと遷移するとき、実効的位相因子 i を獲得する。

2.3.4. 外因性スピンホール効果

外因性スピンホール効果は、不純物ポテンシャルにおけるスピン軌道相互作用によって、 \uparrow スピンと \downarrow スピンが非対称に散乱されるために誘起される[7]。この現象は、強磁性体中の異常ホール効果と同一の発現機構によって生じており、その散乱機構においてスキュー散乱[7][36]とサイドジャンプ[37]の2種類が存在する(図 2.14)。以下では散乱機構を簡単に見ていく。

スキュー散乱の場合には、不純物ポテンシャルにおいて \uparrow スピンと \downarrow スピンの散乱確率が異なるためにスピンの依存した電子の偏りが生じ、純スピンの流れが誘起される。このとき、散乱の前後で電子の波動関数の波数が異なるので、スキュー散乱は非弾性散乱である。一方、サイドジャンプの場合には、不純物ポテ

ンシャルにおいて↑スピンと↓スピンは異常速度を感じて非対称な散乱を起こす。このとき、散乱の前後において波数は不変であるため、サイドジャンプは弾性散乱である。

これら2つの散乱は、通常、共存すると考えられているが、スピンホール抵抗率と通常の抵抗率との関係には次式で示す明瞭な違いを持つので、支配的な散乱機構を調べる事が可能である。スキュー散乱が支配的な場合にはスピンホール抵抗率は不純物抵抗率(フォノンの寄与を排除した、不純物のみによる抵抗率)に比例し、サイドジャンプが支配的な場合には不純物抵抗率と通常の抵抗率の積に比例する。

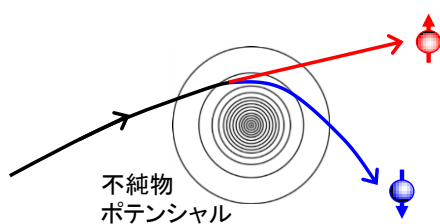
$$\rho_{\text{SHE}}^{\text{SS}} \propto \rho_{\text{imp}} \quad (2.31\text{a})$$

$$\rho_{\text{SHE}}^{\text{SJ}} \propto \rho_{\text{imp}} \cdot \rho \quad (2.31\text{b})$$

一般的に、不純物濃度が低く伝導電子の数が多い金属の系ではスキュー散乱が支配的であり、不純物濃度が高い金属の系やキャリアの少ない半導体などではサイドジャンプが支配的になる傾向にある。

外因性スピンホール効果の報告例としてはCu合金系がよく知られており、古くは1981年、Fertらが行った異常ホール効果に関する理論と実験にまでさかのぼる[38]。この理論によると、非磁性金属であるCuに微量の遷移金属を添加することで、大きなスピンホール効果が引き起こされるとしている。実際にFertらは、磁性合金であるCuMn(スピン偏極した電流を生成する為に、Mnがごく微量添加された合金)に微量の非磁性遷移金属を添加することによって、CuMn単体の異常ホール効果よりも大きなホール効果を観測することに成功している。これより、スピンホール効果と異常ホール効果が同様の発現機構を持つので、CuMnの場合と同様の増大効果がCu合金におけるスピンホール効果に対しても予想されている。この予想は、CuIr(CuにIrが不純物添加された合金)における外因性スピンホール効果の観測において実際に確認されている[20]。また、この実験では、外因性スピンホール効果の発現機構に関する考察も同時に行っている(図2.15)。スピンホール抵抗率と不純物抵抗率の間には比例の関係があることが分かる。このことから、CuIrにおける外因性スピンホール効果にはスキュー散乱が支配的に働いていることが分かる。

(a) スキュー散乱



(b) サイドジャンプ

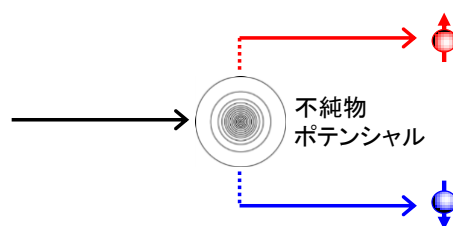


図 2.14 外因性スピンホール効果の起源。散乱過程において(a)スキュー散乱と、(b)サイドジャンプに分類される。

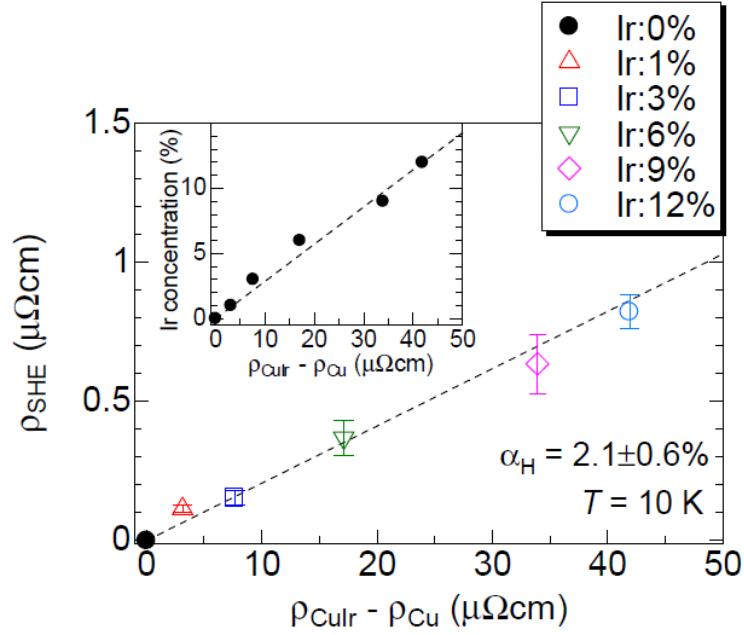


図 2.15 CuIr におけるスピホール抵抗率と不純物抵抗率の関係[20]。

2.3.5. スピホール角

スピホール効果による純スピンの生成効率を示す指標として、スピホール角

$$\alpha_{\text{SHE}} \equiv \frac{\sigma_{\text{SHE}}}{\sigma} = \frac{\rho \cdot \rho_{\text{SHE}}}{\rho^2 + \rho_{\text{SHE}}^2} \approx \frac{\rho_{\text{SHE}}}{\rho} \quad (2.32)$$

が定義されている。スピホール角はスピホール効果を定量的に評価する指標として用いられており、様々な系において報告されている。特に、2008 年、Seki らによって報告された Au におけるスピホール効果では、スピホール角が約11%と他の系よりも数倍大きな値を示している[39]。しかしながら、他のグループによる報告では Au におけるスピホール角は非常に小さいとされており[40]、一際大きなスピホール角を示した要因について議論が行われている。現在考えられている可能性としては、Au 細線の表面によるアシストと、外因性機構の寄与によるアシストの2つが代表的である[41][42]。このうち、外因性機構の寄与によるアシストについて紹介する。図 2.16 は、Cu、Ag 及び Au 合金系における外因性スピホール効果によるスピホール角の理論的計算である[9][10]。これによると、Au に対して軽元素、特に C を添加することによって大きなスピホール角が得られるとしており、Seki らの結果を説明することができる。また、Cu 及び Ag 合金系にスピ軌道相互作用の強い Bi を添加することでも、大きなスピホール角が期待されている。

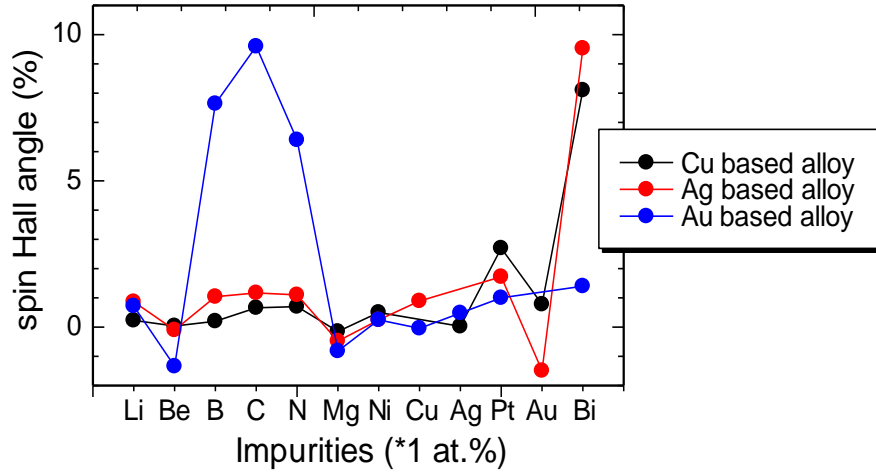


図 2.16 Cu, Ag, Au を母体とした合金系におけるスピホール角の理論計算結果[9][10]。
このとき、スキュー散乱によって外因性スピホール効果が発現すると仮定している。

2.3.6. スピホール効果の電氣的検出

ホールクロスを用いた測定

スピホール効果の電氣的検出には、以前からホールクロスを用いる方法が提案されている。図 2.17(a)のように、ホールクロスのある方向に電流を流すとスピ軌道相互作用によって↑スピと↓スピは互いに反対方向に散乱され、電流と垂直な方向に純スピ流が誘起される。非磁性体の場合、↑スピと↓スピの数は等しいため、得られるホール電圧はゼロとなり測定不可能である。一方、図 2.17(b)のように純スピ流を流すと、スピ流では↑スピと↓スピが逆方向に流れているために、各スピは同一方向に蓄積する。これにより、ホール電圧を測定することが可能となる。前者のように電流からスピ流への変換を正スピホール効果、後者のようにスピ流から電流への変換を逆スピホール効果と呼ぶ。

実際の系において逆スピホール効果を測定する場合には、純スピ流をホールクロスへと流し込む必要がある。よく用いられる手法としては、非局所スピ流注入によって生成された純スピ流を流し込む方法が挙げられる[39][43]。図 2.18 のように、強磁性体とホールクロス構造を組み合わせることによって、逆スピホール効果を測定することができる。また、この構造で逆スピホール効果を測定した場合のスピホール角は、次式のようにして見積もることができる。

$$\alpha_{\text{SHE}} \approx \frac{t_N}{\rho_N} \frac{1 + 2Q_I + 2Q_F}{p_I Q_I + p_F Q_F} e^{L/\lambda_N} \cdot \frac{\Delta R_{\text{SHE}}^{\text{Hall-cross}}}{2} \quad (2.33)$$

$$\left(\text{ただし } Q_I = \frac{1}{1 - p_I^2 R_N} \frac{R_I}{R_N}, \quad Q_F = \frac{R_F}{R_N} \right)$$

ここで、 t_N , ρ_N は非磁性体の膜厚及び抵抗率、 L は強磁性体とホールクロスの間の距離、 λ_N は非磁性体でのスピ拡散長、 p_F は強磁性体のスピ偏極率、 p_I , R_I は強磁性体／非磁性体接合界面におけるスピ偏極率及び界面抵抗、 R_N , R_F は非磁性体及び強磁性体のスピ抵抗を表している。また、

$\Delta R_{\text{SHE}}^{\text{Hall-cross}}$ はスピンホール抵抗 (ホール電圧を印加電流で割った値) の総変化量である (詳しい定義は [39] を参照)。

ホールクロスを用いて逆スピンホール効果を効率的に測定するためには、純スピン流がスピン拡散長で減衰してしまうため、それよりも短い距離での微細加工が必要となる。また、大きなスピンホール効果が期待される系ではスピン軌道相互作用が大きく、それによってもスピン拡散長が短くなると予想される。このことから、スピンホール効果の大きい系に対しては、ホールクロスを用いた測定は向いていない。

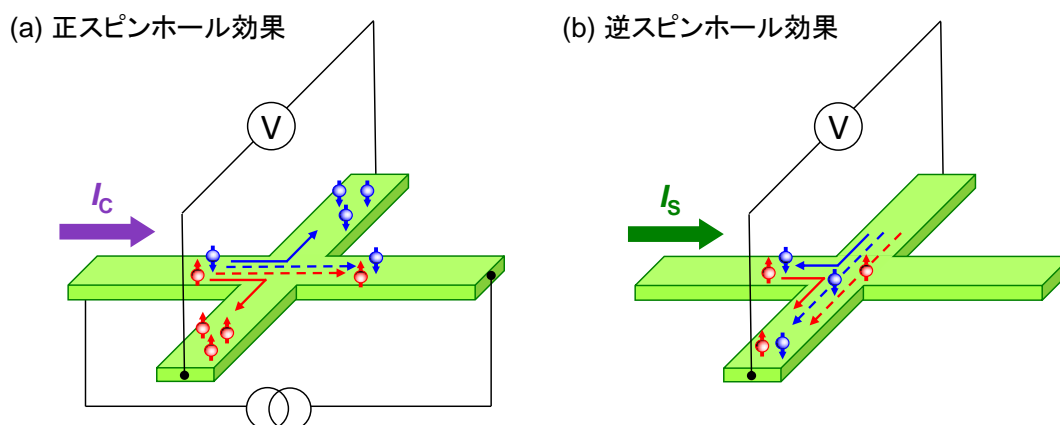


図 2.17 ホールクロス構造における(a)正スピンホール効果、及び(b)逆スピンホール効果の測定回路図。

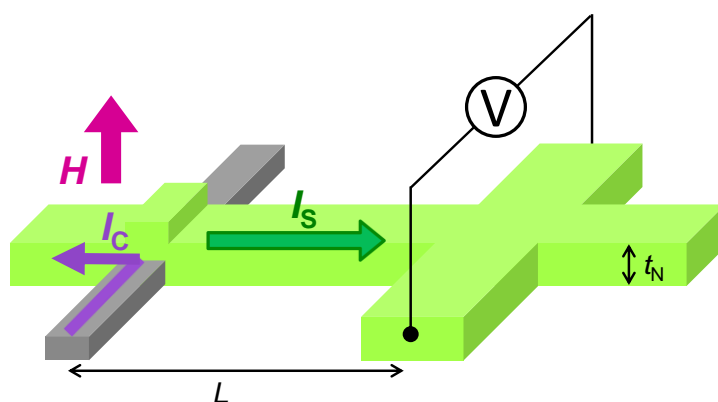


図 2.18 非局所スピン流注入とホールクロス構造による逆スピンホール効果の観測。

スピン吸収を用いた測定

スピン吸収を活用することによって、スピンホール効果が大きい系、つまりスピン拡散長が短い系に対しても有効的に測定することができる。図 2.18 のように、スピンホール効果が発現する物質 **M** に対して、スピン拡散長が長い物質 **N** (例えば **Cu** などのスピン軌道相互作用の弱い物質) を架橋した構造を考える。物質 **N** に純スピン流が流れていると、前述の通り、物質 **M** のスピン抵抗が物質 **N** のスピン抵抗よりも十分に小さければスピン吸収効果が発現する。吸収された純スピン流は、逆スピンホール効果によってホール

電圧へと変換される。スピン吸収を用いた報告例はいくつかあり、実際に Pt や CuIr などスピンホール効果が大きな系の測定に対しても用いられている。

実際の系においては、非局所スピン流注入によって物質 N へと純スピン流を流し込み、物質 M へと純スピン流を吸収させることによって逆スピンホール効果を測定している[19][20][31][35]。このときの素子構造は、図 2.20 のようになる。ここで、この構造を用いた場合におけるスピンホール角は、次式で与えられる。

$$\alpha_{\text{SHE}} \approx \frac{w_{\text{M}}}{\rho_{\text{M}}} \frac{I_{\text{C}}}{\bar{I}_{\text{S}}} \Delta R_{\text{SHE}}^{\text{Spin absorption}} \quad (2.34)$$

ここで、 w_{M} , ρ_{M} は物質 M の線幅及び抵抗率、 $\Delta R_{\text{SHE}}^{\text{Spin absorption}}$ はスピンホール抵抗の総変化量の半分 の値を表している(詳しい定義は[20]を参照)。また $\bar{I}_{\text{S}}/I_{\text{C}}$ は、物質 M を流れるスピン流の平均値 \bar{I}_{S} を印加電流 I_{C} で規格化した値であり、以下のようにして表される。

$$\begin{aligned} \frac{\bar{I}_{\text{S}}}{I_{\text{C}}} &= \frac{\int_0^{t_{\text{M}}} I_{\text{S}}(z) dz}{t_{\text{M}} I_{\text{C}}} \\ &= \frac{\lambda_{\text{M}} \left(1 - e^{-t_{\text{M}}/\lambda_{\text{M}}}\right)^2}{t_{\text{M}} \left(1 - e^{-2t_{\text{M}}/\lambda_{\text{M}}}\right)} \\ &\quad \times \frac{2p_{\text{F}} \left\{ Q_{\text{F}} \sinh\left(\frac{L}{2\lambda_{\text{N}}}\right) + 2Q_{\text{F}}^2 e^{L/2\lambda_{\text{N}}} \right\}}{\left\{ \cosh\left(\frac{L}{\lambda_{\text{N}}}\right) - 1 \right\} + 2Q_{\text{M}} \sinh\left(\frac{L}{\lambda_{\text{N}}}\right) + 2Q_{\text{F}} \left\{ e^{L/\lambda_{\text{N}}} (1 + 2Q_{\text{M}})(1 + Q_{\text{F}}) - 1 \right\}} \\ &\approx \frac{\lambda_{\text{M}} \left(1 - e^{-t_{\text{M}}/\lambda_{\text{M}}}\right)^2}{t_{\text{M}} \left(1 - e^{-2t_{\text{M}}/\lambda_{\text{M}}}\right)} \\ &\quad \times \frac{2p_{\text{F}} Q_{\text{F}} \sinh\left(\frac{L}{2\lambda_{\text{N}}}\right)}{\left\{ \cosh\left(\frac{L}{\lambda_{\text{N}}}\right) - 1 \right\} + 2Q_{\text{M}} \sinh\left(\frac{L}{\lambda_{\text{N}}}\right) + 2Q_{\text{F}} \left(e^{L/\lambda_{\text{N}}} - 1 \right)} \end{aligned} \quad (2.35)$$

$$\left(\text{ただし } Q_{\text{M}} = \frac{R_{\text{M}}}{R_{\text{N}}}, \quad Q_{\text{F}} = \frac{R_{\text{F}}}{R_{\text{N}}} \right)$$

ここで、 t_{M} , λ_{M} は物質 M の厚さ及びスピン拡散長、 λ_{N} は物質 N のスピン拡散長、 L は強磁性体と物質 M までの距離、 R_{N} , R_{M} , R_{F} はそれぞれ物質 N、物質 M 及び強磁性体のスピン抵抗を表している。

(2.34)式で表されるスピンホール角だが、厳密に評価するには以下のような補正項 x を入れた形

$$\alpha_{\text{SHE}} \approx \frac{1}{x} \frac{w_{\text{M}}}{\rho_{\text{M}}} \frac{I_{\text{C}}}{\bar{I}_{\text{S}}} \Delta R_{\text{SHE}}^{\text{Spin absorption}} \quad (2.36)$$

に書き換える必要がある。ここで、 x を導入する理由について述べる。簡単のため、正スピンホール効果の場合を例にとって説明する。図 2.21 のように、物質 M に印加電流 I_{C} が流れている状況を仮定する。こ

のとき、印加電流は短絡効果によって物質 N を経由するようなパスが存在するので、正スピントール効果に寄与する実効的な電流は I_c よりも少なくなる。この実効的な電流は、補正項 x を用いて xI_c と表すことができるので、(2.34)式は(2.36)式の形に書き換えることができる。

(a) 正スピントール効果

(b) 逆スピントール効果

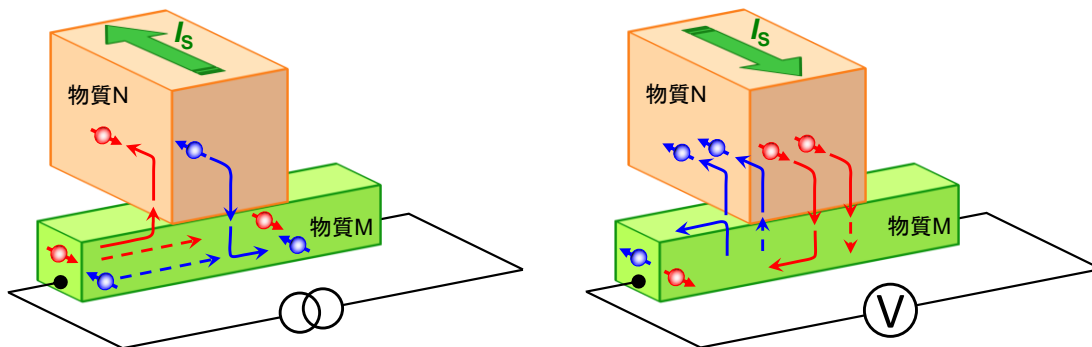


図 2.19 スピン吸収を用いた構造における(a)正スピントール効果、及び(b)逆スピントール効果の測定回路図。

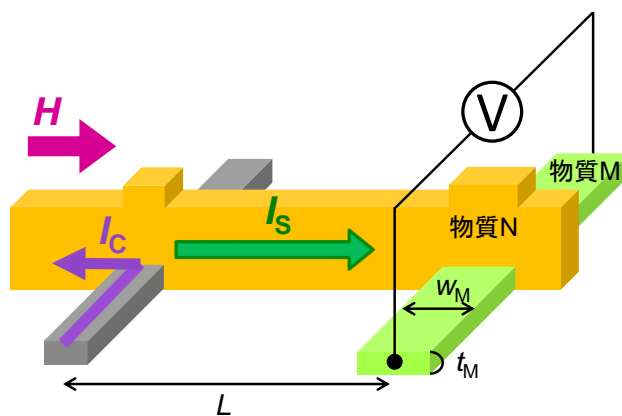


図 2.20 非局所スピントール注入とスピントール吸収による逆スピントール効果の観測。

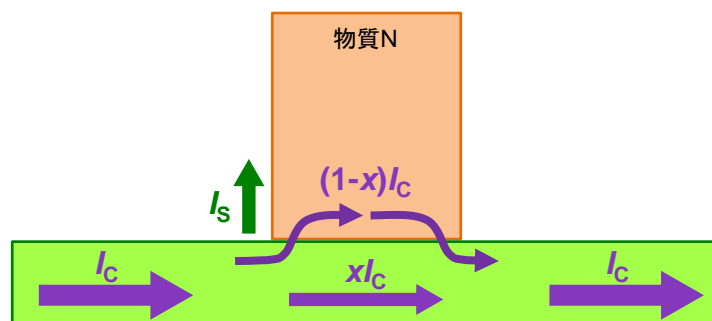


図 2.21 短絡効果による印加電流の分流を表した図。

第3章

実験方法

3.1. 試料作製

スピンホール効果の電氣的測定では、純スピン流を用いるためにスピン拡散長程度よりも小さい微細構造が必要になる。また、純スピン流の誘起には非局所手法を用いるため、多層膜などの積層構造ではなく面内多端子構造が有利である。そこで本研究では、電子線描画によるサブミクロンスケールの微細加工技術を用いて素子構造を作製した。

3.1.1. リフトオフ法

本研究では、微細加工技術の一つであるリフトオフ法を用いて素子作製を行った。まず、熱酸化シリコン基板を劈開し、洗浄後、スピナーを用いてレジストと呼ばれる樹脂を塗布する。塗布されたレジストは、内部の溶媒を排除し緻密化させるために基板ごと加熱される(図 3.1(a))。その後、電子線描画装置を用いて所望のパターンを描画し、レジストを感光させる(図 3.1(b))。感光した部位のレジストは性質が変質するため、特定の現像液を用いて取り除くことが可能となる(図 3.1(c))。続いて、除去された部位に金属を成膜させ(図 3.1(d))、最後に剥離剤によってレジストを除去すれば、パターニングされた微細構造が得られる(図 3.1(e))。

金属を堆積させる方法はいくつか知られているが、本研究では、抵抗加熱蒸着法、電子線加熱蒸着法、及びスパッタ法を用いた。抵抗加熱蒸着法は、Moなどの高融点金属で作製された受け皿にターゲットとなる金属をのせ、そこに電流を流すことでジュール熱により溶解、蒸発させ、堆積させる方法である。この方法は比較的容易であるが、受け皿よりも融点が低く、受け皿との反応を示さない金属にしか適用できない。電子線加熱蒸着法では、電子線照射による熱を利用して金属を溶かす。この方法では、局所的に熱を加えることが可能であり、抵抗加熱蒸着法では不可能であった高融点金属の蒸着も可能となる。一方、スパッタ法は、電離させた原子や分子イオンによりターゲットとなる金属を粒子としてたたき出し、基板に堆積させる方法である。この方法では、ター

ゲットの組成をほとんど変えずに堆積させられる点に加え、融点に関係なく多くの金属に適用できるメリットがある。しかしながら、堆積の指向性がなく、また、プラズマ中での堆積であるため、レジストから不純物が混入するという欠点がある。

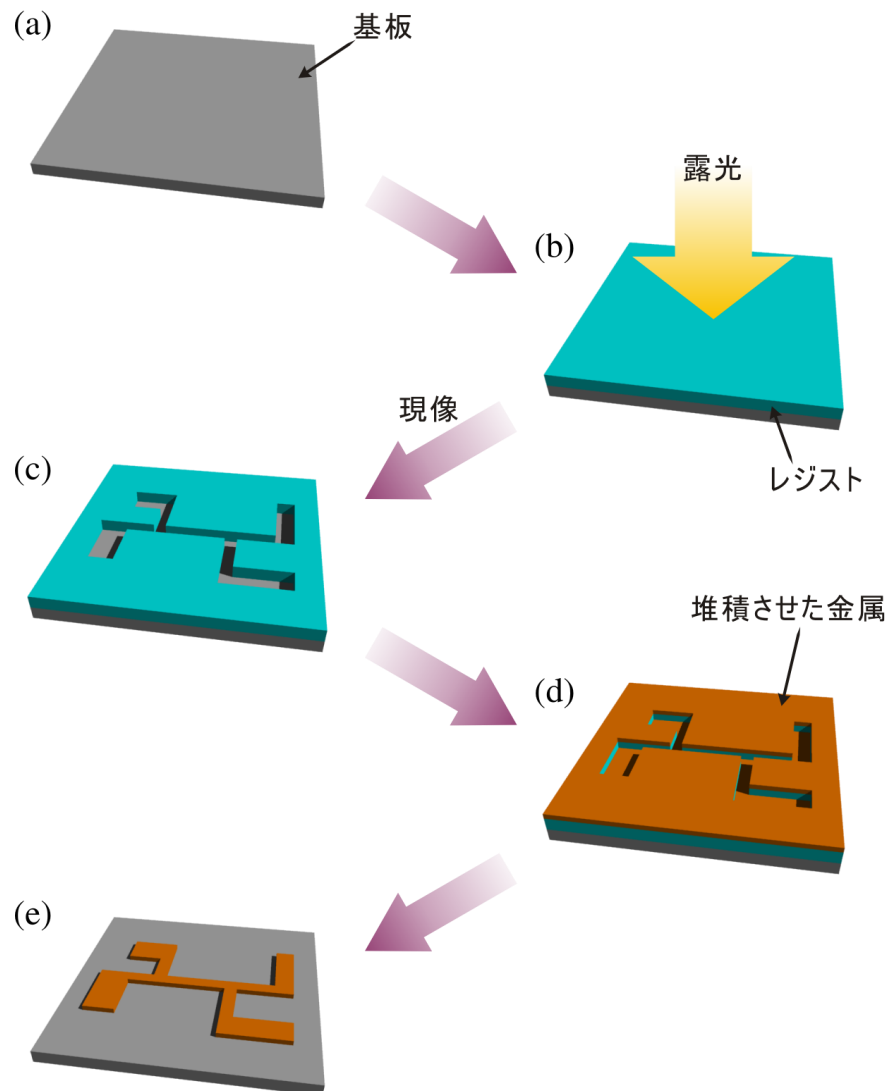


図 3.1 リフトオフ法を模式的に表した図。(a)基盤に対してレジストを塗布し、(b)露光して現像することによって、(c)必要とするパターンを作製する。その後、(d)金属を堆積させレジストを除去することによって、(e)微細加工された金属パターンを得る。

3.1.2. 感光

本研究ではレジストとして、PMMA950A レジストと ZEP520A レジストの2種類を用いた。どちらの場合も、感光した部位が溶解するポジ型のレジストである。抵抗加熱蒸着法、又は電子線加熱蒸着法による金属堆積においては PMMA950A レジストを用いた。スパッタ法による金属堆積に対しては ZEP520A レジストを用いた。これは、PMMA950A レジストをスパッタ法に対して使用すると、プラズマに対する耐性が弱いために金属膜にレジストの成分が混入する恐れがあるためである。

PMMA950A レジストの場合、Si/SiO₂ 基板上にスピナーを用いてレジストを均等に塗布し、ホットプレートにより 180℃で 5 分間加熱した。電子線による露光では、ドーズ量が 8.8 C/m² となるように設定を行った。その後、4-メチル-2-ペンタノン(MIBK)と 2-プロパノール(IPA)が 1:3 の割合で混ざった現像液に 30 秒間浸し、その後、IPA によってリンスした。このとき、現像されたパターンは図 3.2(a)のようになっている。最後に、超高真空装置内において金属を堆積させ、アセトンによるレジストの剥離を行った。

一方、ZEP520A レジストの場合には、Si/SiO₂ 基板上にスピナーを用いてレジストを均等に塗布し、ホットプレートにより 6 分間加熱する。加熱するときには必ず室温から行い、6 分間かけて 180℃まで昇温した。電子線による露光では、ドーズ量が 2.2 C/m² となるように設定し行った。現像では、酢酸ペンチルを現像液として 30 秒間行い、その後、MIBK と IPA が 9:1 の混合液を第1リンス、IPA を第2リンスとして行った。このとき、ZEP520A レジストは電子線に対する感光度が高いため、図 3.2(b)のような PMMA に比べて大きなアンダーカット構造となる。最後に、超高真空装置内において金属を堆積させ、1-メチル-2-ピロリドン(1M2P)によって剥離を行った。



図 3.2 (a)PMMA、及び(b)ZEP レジストを感光・現像した場合の断面。

3.1.3. 成膜

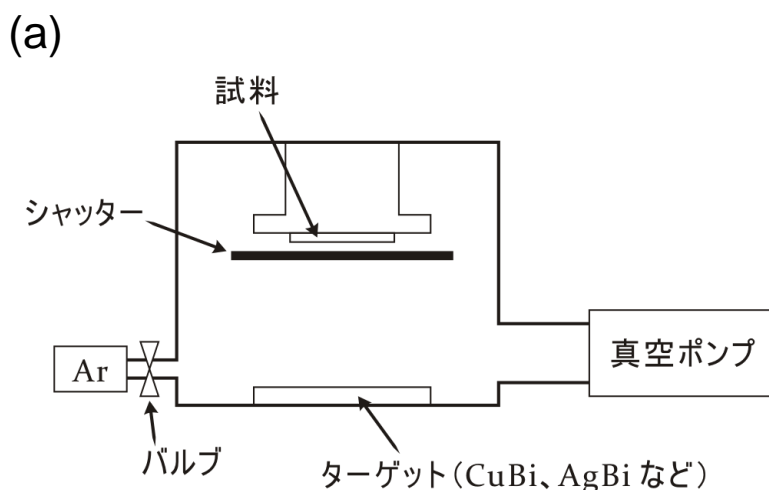
本研究では、主に3つの高真空、及び超高真空装置を用いて成膜をしている。

本研究のターゲットである CuBi、及び AgBi に対しては、図 3.3(a)示すような DC マグネトロンスパッタ装置による成膜を行った。装置の真空度は、成膜前は 5×10^{-7} Torr 程度であり、スパッタは 3×10^{-3} Torr 程度の Ar 雰囲気下で行った。

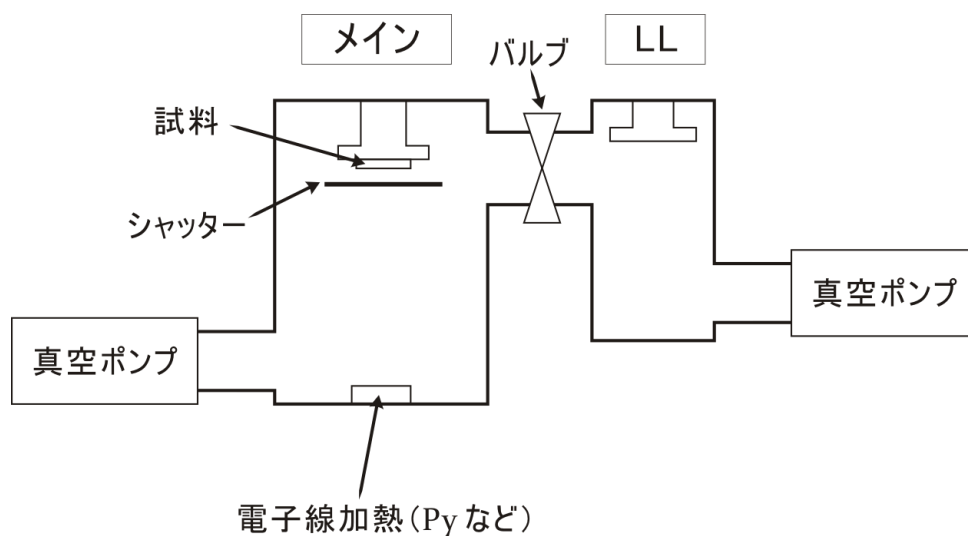
Py (Ni-Fe 合金) などの強磁性体の成膜には、図 3.3(b)に示すような電子線抵抗加熱装置が備わった真空装置を用いた。LL チャンバーとメインチャンバーは個別の排気系が備わっており、真空中での試料輸送が可能となっている。メインチャンバーでは、冷却装置を用いて試料を冷やしながら蒸着することができる。装置の真空到達度は、ロードロック (LL) チャンバーが 1×10^{-8} Torr 程度、メインチャンバーが 1×10^{-9} Torr 程度である。

Cu などの非磁性体の成膜には、図 3.3(c)に示すような抵抗加熱蒸着装置が備わった真空装置を用いた。この装置も同様に、真空中での試料輸送が可能となっている。また、LL チャンバーにはイオン銃が備わっており、Ar イオンによるミリングを行うことが可能である。本研究では、CuBi や Py などに Cu が架橋された素子を用いているが、Cu との接合界面をオーミック接合にするために Ar イオンミリングを行ってから Cu を蒸着する。このときミリングは、加速電圧 600V で 30 秒間行われる。装置の真空到達度は、LL チャンバーが 5×10^{-7} Torr 程度、メインチャンバーが 5×10^{-9} Torr 程度である。

最後に、上記のプロセスによって作製された試料は、酸化を防ぐために Al_2O_3 を RF マグネトロンスパッタによってキャッピングされる。



(b)



(c)

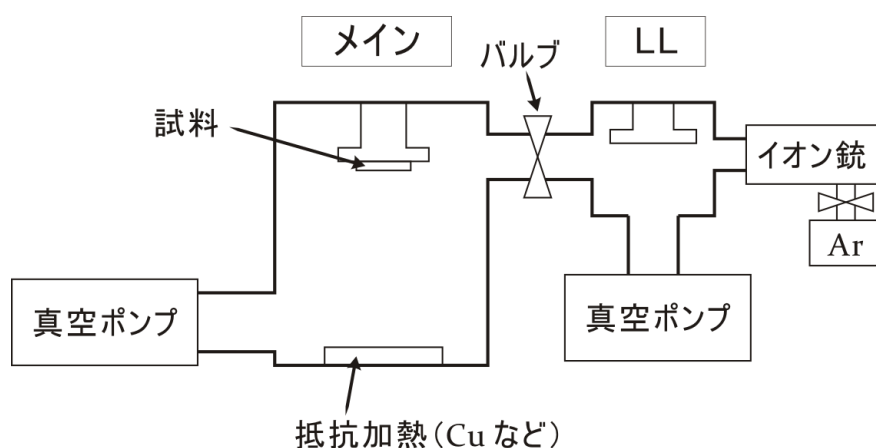


図 3.3 (a)DC スパッタ装置。(b)電子線加熱蒸着装置。(c)抵抗加熱蒸着装置。

3.1.4. 試料形状

本研究では、巨大な外因性スピンホール効果を発現すると予想されている合金 (CuBi、AgBi) に着目し、その詳細を調べるため図 3.4 のような試料を作製した。Ni₈₁Fe₁₉(Py)を強磁性体、Cu を非磁性体として構成された面内スピンバルブ構造に、スピンホール効果を発現する金属 (CuBi、AgBi) を間に挟んだ形状をしている。このとき、スピンバルブ測定を行うためには 2 本の強磁性体間に保持力の差を設ける必要がある。そのため、Py1 細線の両端は大きなパッドが付いており、Py2 細線と比較してより低磁場側で磁化の向きが反転するように加工されている。また、試料の寸法は表 3.1 のようになっている。本研究では、外因

性スピンホール効果の不純物濃度依存性を調べるために、CuBi では Bi 濃度が 0 ~ 6 at. %、AgBi では Bi 濃度が 0 ~ 3 at. %の試料を作製した。

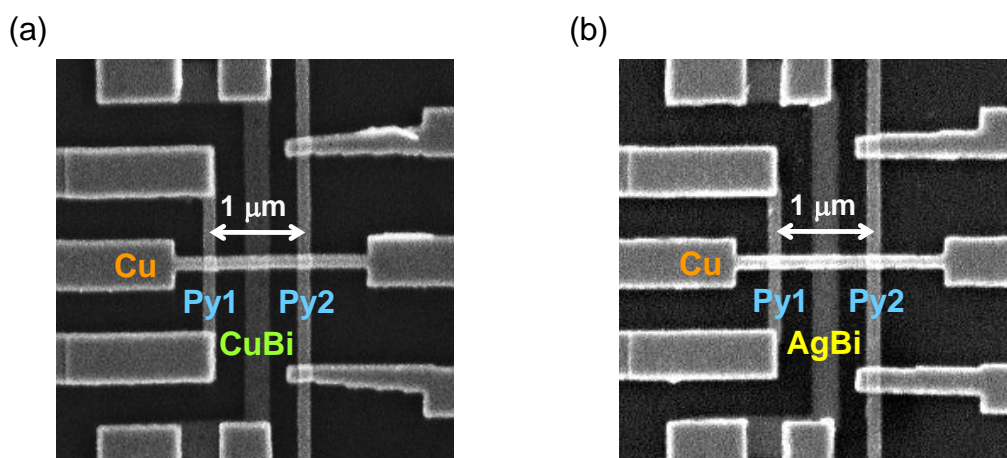


図 3.4 本研究で用いた試料の SEM 像。(a)CuBi、及び(b)AgBi 細線がそれぞれ面内スピ
ンバルブ構造の強磁性体間に挿入されている。

表 3.1 本研究で用いた試料の素子寸法

	膜厚	幅
Cu	100 nm	100 nm
CuBi* ¹ , AgBi * ²	20 nm	250 nm
Ni ₈₁ Fe ₁₉ (Py)	30 nm	100 nm

*1: Bi濃度 (0.3, 0.5, 1, 3, 6 at. %)

*2: Bi濃度 (1, 3 at. %)

3.2. 測定方法

3.2.1. 冷却装置及び磁場装置

測定は、図 3.5 のようなヘリウムフロー側の冷凍機を用いて行った。これより、測定温度を室温から 1.5 K まで変えることができる。一方、磁場は常伝導磁石によって水平方向に 1.2 T まで印加させることができる。また、この常伝導磁石は 360° 回転できるため、試料に対して自由な方向へと磁場を印加させることができる。

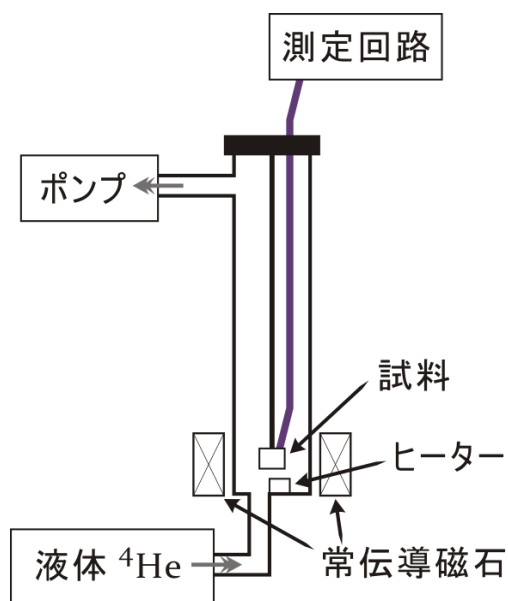


図 3.5 冷却装置、及び測定装置の模式図。

3.2.2. 測定回路

非局所測定による信号はノイズに対して微小なので、本研究では AC ロックイン測定を行った。図 3.6 は、AC ロックイン法による回路図である。交流電流はファンクションジェネレータによって生成されており、その周波数は 173 Hz に固定されている。また、測定された信号は、プリアンプでその強度を 1000 倍に増強してからロックインアンプへ送られており、精度よく測定できるように回路が組まれている。

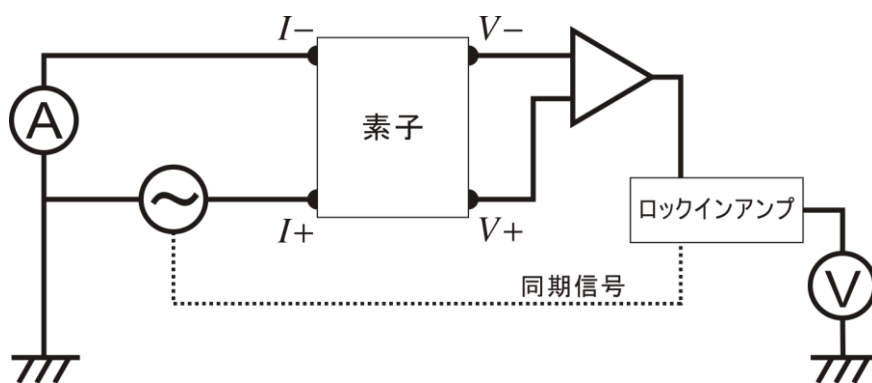


図 3.6 測定回路の模式図。

第4章

CuBi 合金におけるスピンホール効果

4.1. 非局所スピバルブ測定

スピンホール効果の測定を行う前に、純スピン流が CuBi 細線へどれだけ吸収されたかを知る必要がある。そこでまずは、非局所スピバルブ測定によるスピン吸収量の見積もりを行った。また、参照のため、2本の Py 細線の間隔が等しく、CuBi 細線が存在しない試料を同条件にて測定した。

4.1.1. スピン吸収効果

この測定では図 4.1 に示すように、一方の Py/Cu 接合における非局所スピン流注入によって純スピン流を生成し、他方の Py/Cu 接合においてスピン蓄積電圧を測定する。また、磁場は 2 つの Py 細線の磁化容易軸に対して平行な方向に印加されており、Py1 細線は Py2 細線よりも磁化容易軸方向の磁気異方性が小さいのでより小さな磁場で磁化反転を起こす。

このとき、Cu_{99.5}Bi_{0.5}(Bi : 0.5 at.%) の 10K におけるスピン蓄積信号は図 4.2(a) のようになる。縦軸は得られたスピン蓄積電圧を印加電流で割った値 R_S (スピン蓄積信号)、横軸は印加磁場 $H_{||}$ を表している。2 つの Py 細線の相対的な磁化状態 (平行状態 or 反平行状態) に応じて、2.2.2 項で述べたような明瞭なスピン蓄積信号が得られていることがわかる。また、CuBi 細線が無い場合と挿入した場合の結果を比較したとき、それぞれのスピン蓄積信号は $\Delta R_S^{\text{without}} > \Delta R_S^{\text{with}}$ の関係にあることが分かる。これは、Cu 中を伝搬する純スピン流が CuBi 細線に対して吸収されているためである。また、同様の測定を Bi 濃度変えながら行い、スピン吸収効率 $1 - \eta \equiv 1 - (\Delta R_S^{\text{with}} / \Delta R_S^{\text{without}})$ の Bi 濃度依存性をプロットすると、結果は図 4.2(b) のようになった。これより、Bi 濃度の増加に伴い純スピン流の吸収効率が上昇していることが分かる。

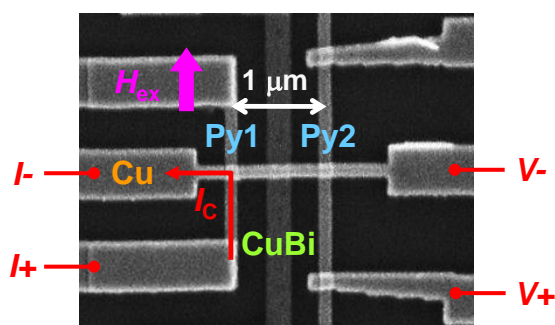


図 4.1 非局所スピバルブ測定回路図。

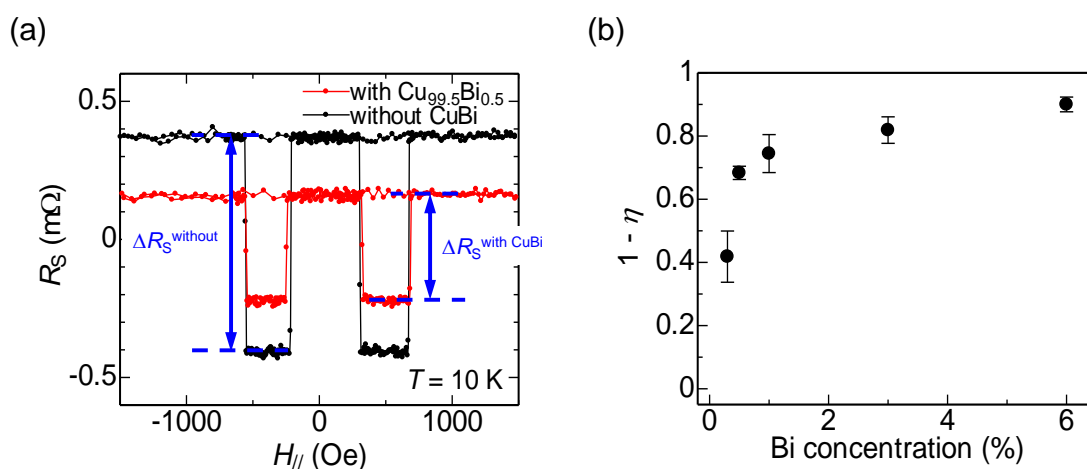


図 4.2 (a)CuBi 細線が無い場合（黒線）と挿入されている場合（赤線）における $T=10$ K での非局所スピバルブ測定の結果。(b)スピ吸収効率の Bi 濃度依存性。

4.1.2. スピン拡散長

得られたスピン蓄積信号と(2.21)式を用いることによって、CuBi 細線中のスピン拡散長を見積もることができる。その結果、10K における CuBi 中のスピン拡散長は表 2.1 のようになった。Bi 濃度を増やしていくことでスピン拡散長が短くなっていくことが分かる。これは、スピン軌道相互作用が強い Bi の濃度が増えることによって、純スピン流の散乱確率が上昇することを意味している。また、スピン拡散長の温度依存性は図 4.3 のようになっており、温度が上がるにつれてスピン拡散長が短くなっていくのが分かる。これは、温度の上昇に伴って電子-フォノン散乱の寄与が大きくなることを示している。

表 4.1 CuBi におけるスピン拡散長の Bi 濃度依存性

Bi濃度	0.3%	0.5%	1%	3%	6%
λ_{CuBi} (nm)	53 ± 8	32 ± 9	20 ± 9	7 ± 2	3 ± 1

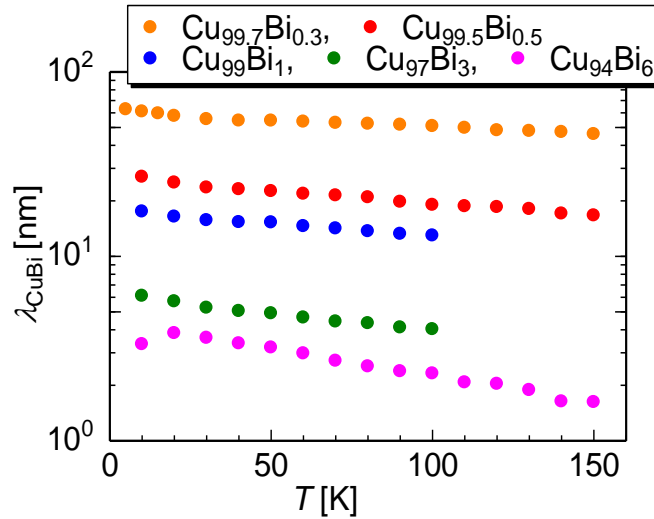


図 4.3 CuBi におけるスピン拡散長の温度依存性。

4.2. 外因性スピンホール効果

非局所スピンバルブ測定により、CuBi 細線に流れ込む純スピン流の量を知ることができたので、続いてスピンホール効果の実験を行った。この実験では、非局所スピンバルブ構造を用いることによって逆スピンホール効果、及び正スピンホール効果を測定することができる。また、参照のために、CuBi 細線を Cu 細線に置き換えた試料に対しても同条件で測定を行った。

4.2.1. 逆スピンホール効果

図 4.4 に示すように、非局所スピン流注入によって純スピン流を生成し、スピン吸収によって CuBi 細線に純スピン流を流し込む。この純スピン流は逆スピンホール効果によってホール電圧へと変換されるので、CuBi 細線の両端の電圧を測ることによりスピンホール電圧を得ることができる。このとき外部磁場は、Py 細線の磁化困難軸方向へと印加されている。

図 4.5(a)は、10K における Cu、及び Cu_{99.5}Bi_{0.5} 細線の逆スピンホール効果の結果を表している。縦軸は得られたホール電圧を印加電流で割った値 R_{ISHE} (スピンホール抵抗)、横軸は印加磁場 H_{\perp} を表している。また、図 4.5(b)は Py 細線の異方性磁気抵抗効果 (AMR) を示しており、磁場と Py 細線の磁化方向の相対関係に応じた抵抗変化を示している。得られたスピンホール抵抗と AMR を比較すると、同一の磁場 (2000 Oe 付近) において一定の値に収束していることが分かる。これは以下のようにして説明される。非局所スピン流注入によって生成された純スピン流のスピンのは向きは、Py 細線の磁化方向に依存している。Py 細線の磁化方向は、2000 Oe までは印加磁場に応じて変化し、2000 Oe 以上では完全に困難軸方向

に配向する。このとき観測されるスピンホール電圧は Py 細線の困難軸方向に向いたスピン成分しか寄与しないので、図 4.5(a)のような磁場依存性を示すことになる。

次に、不純物添加によるスピンホール抵抗への影響に着目する。Cu 単体ではスピンホール効果を示さなかったが、わずか0.5%のBiを添加することによって外因性スピンホール効果が発現していることが分かる。また、スピンホール抵抗の変化の大きさ ΔR_{SHE} に着目すると、その値は $75 \mu\Omega$ 程度となった。これは、同程度の抵抗率を有する $\text{Cu}_{99}\text{Ir}_1$ (スピンホール角: $\alpha_{\text{SH}} = 2.1\%$ [20]) の場合よりも5倍以上大きな値であり、巨大なスピンホール効果が発現していることが分かる。

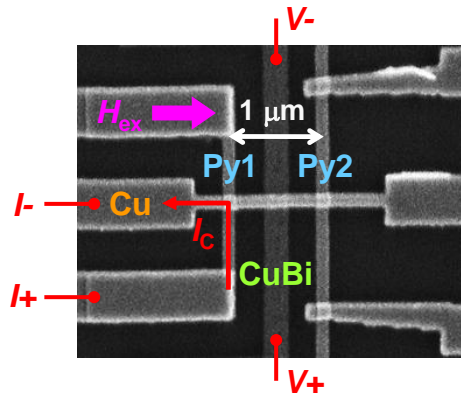


図 4.4 逆スピンホール効果の測定回路図。

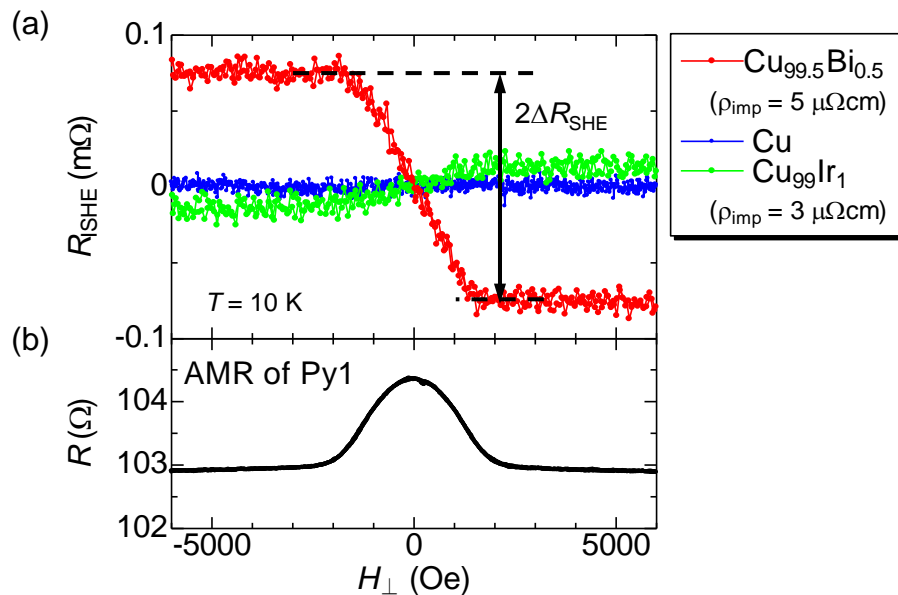


図 4.5 (a) $T = 10 \text{ K}$ におけるスピンホール抵抗の磁場依存性。(b)Py1 細線における異方性磁気抵抗効果 (AMR)。

4.2.2. 正スピホール効果

図 4.4 において、電流と電圧の端子配置を逆にすることで ($I_+ \leftrightarrow V_+$, $I_- \leftrightarrow V_-$)、正スピホール効果を測定することができる。CuBi 細線を流れる電流は正スピホール効果によって純スピ流へと変換され、Cu 細線へと流れ込む。流れ込んだ純スピ流は Py/Cu によってスピ蓄積電圧に変換されるので、非局所測定により観測可能である。また、磁場は逆スピホール効果の測定と同様に、Py 細線の磁化困難軸方向に印加されている。

図 4.6(a)は、10K における Cu、及び CuBi 細線での正スピホール効果の結果を表している。縦軸は得られたスピ蓄積電圧を印加電流で割った値、横軸は印加磁場を表している。また、図 4.6(b)は逆スピホール効果の結果である。正スピホール効果の磁場依存性を見ると、逆スピホール効果と同様の変化を示していることが分かる。ただし、極性変化は逆向きである。また、スピホール抵抗の変化の大きさ (スピホール抵抗の総変化量の半分の値) には

$$\Delta R_{\text{ISHE}} = \Delta R_{\text{DSHE}} \quad (4.1)$$

の関係があることが分かる。ここで、 ΔR_{ISHE} と ΔR_{DSHE} はそれぞれ、逆スピホール効果、及び正スピホール効果におけるスピホール抵抗の変化量である。これより、電流と純スピ流の間にはオンサーガーの相反定理が成り立っていることが分かる。

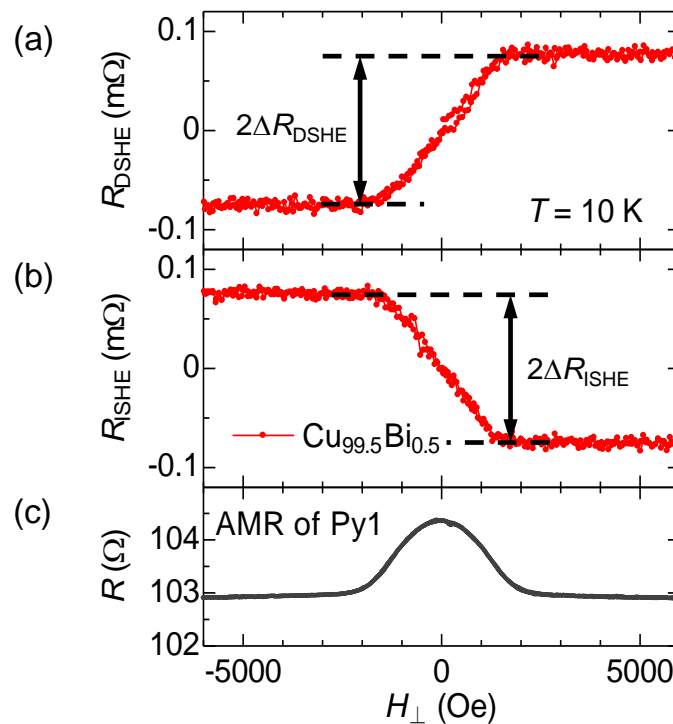


図 4.6 (a)正スピホール効果、及び(b)逆スピホール効果によるスピホール抵抗の磁場依存性。(c)Py1 細線における異方性磁気抵抗効果 (AMR)。

4.2.3. スピンホール抵抗率とスピンホール角

非局所スピンバルブ測定で得られたスピン吸収量と、スピンホール効果の測定で得られた ΔR_{SHE} を用いることで、CuBi におけるスピンホール抵抗率を見積もることが可能である。スピンホール抵抗率は、(2.32)式、(2.35)式及び(2.36)式を用いることで算出される。ここで(2.36)式中の補正項 x は、CuBi の場合には $x = 0.36$ 程度の値となっている。得られたスピンホール抵抗率 ρ_{SHE} を縦軸にとり、横軸を Bi 誘起による抵抗率 $\rho_{\text{imp}} (= \rho_{\text{CuBi}} - \rho_{\text{Cu}})$ としてプロットすると図 4.6(a)のようになる。スピンホール抵抗率は、Bi 濃度を増やしていくと線形的に増加するが、0.5%を境に一定、又はやや減少していくような振る舞いが見られた。これは、Bi の固溶状態を考えることによって説明することができる。図 4.7 は、Bi 濃度が 0.5%、1% の場合の STEM-EDX 分析の結果を表している。0.5%においては Bi が Cu 中に均一に固溶しているのに対し、1%では基盤界面に析出したような分布をしている。これにより、Bi の Cu に対する固溶限界は 0.5% 程度であることが考えられる。また、Bi が析出することによる効果は、図 4.6(b)の不純物抵抗率の Bi 濃度依存性にも表れている。これによると、不純物濃度が 1 %以上の領域では、Bi の添加量が増えるにつれて抵抗率が線形則から外れていく振る舞いが見られている。これらを考慮し、以下では Bi が均等に固溶している 0.5%以下について議論する。

図 4.6(a)を見ると、スピンホール抵抗率は Bi 濃度の増加に伴い線形的に推移しており、 $\rho_{\text{SHE}} \propto \rho_{\text{imp}}$ の関係にあることが分かる。これは、2.3.4 項で述べたスキュー散乱が支配的な場合の振る舞いである。これより、CuBi における外因性スピンホール効果がスキュー散乱によって発現していることが確認された。

図 4.6(a)のスピンホール抵抗率の線形関係から CuBi のスピンホール角を見積もることができる。得られた値は、 $\alpha_{\text{SHE}} = -11.8 \pm 4.1\%$ と非常に大きな値を示しており、理論計算とほぼ一致する結果となった。次に、各 Bi 濃度におけるスピンホール角の温度依存性について考察する。スピンホール角の算出には(2.36)式を用いた。算出した値を縦軸、温度を横軸としてプロットすると図 4.8 のようになる。スピンホール角が温度に対してあまり依存しない結果となっているが、これは外因性スピンホール効果の発現機構としてスキュー散乱が支配的に働いている場合の特徴である。一方で、Bi 濃度が 0.3%と 0.5%の場合には低温側で増大するような異常が見られているが、その理由は現在のところ良く分かっていない。

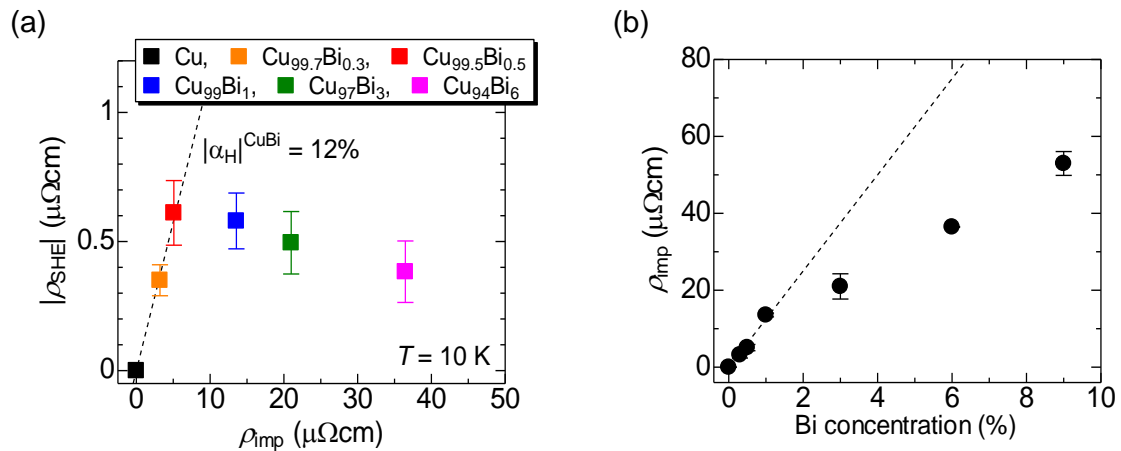


図 4.6 (a)スピンホール抵抗率の不純物抵抗率依存性。(b)不純物抵抗率の不純物濃度依存性。

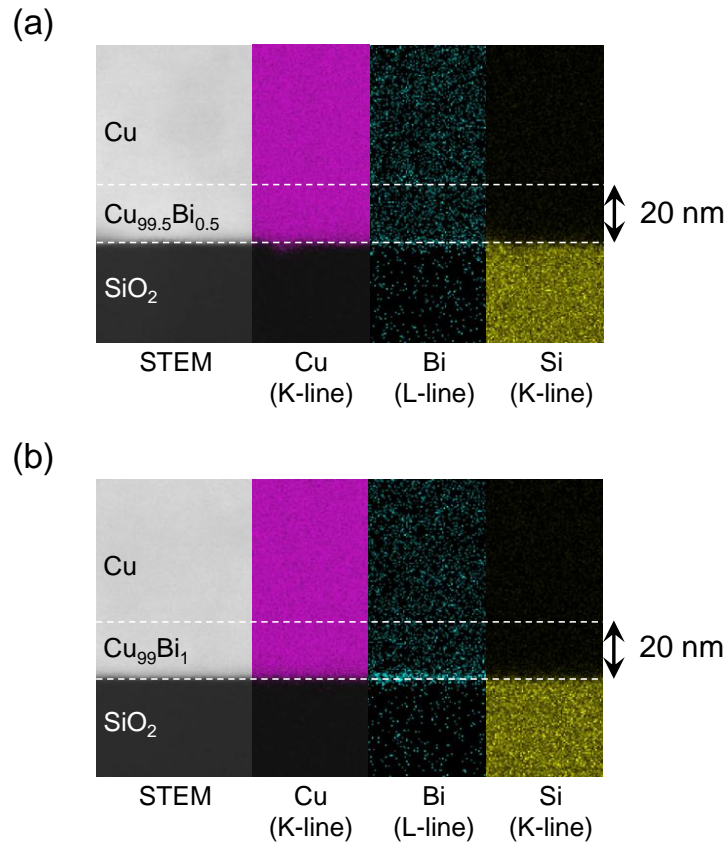


図 4.7 試料の Cu/CuBi 積層部分における STEM-EDX 分析の結果。それぞれ、(a)CuBi(Bi : 0.5 at.%)、(b)CuBi(Bi : 1 at.%)の場合の結果であり、左から STEM 像、Cu 元素マップ、Bi 元素マップ、Si 元素マップを表している。Cu₉₉Bi₁ のみに Bi の偏析が Si 基板との境界付近に現れている。

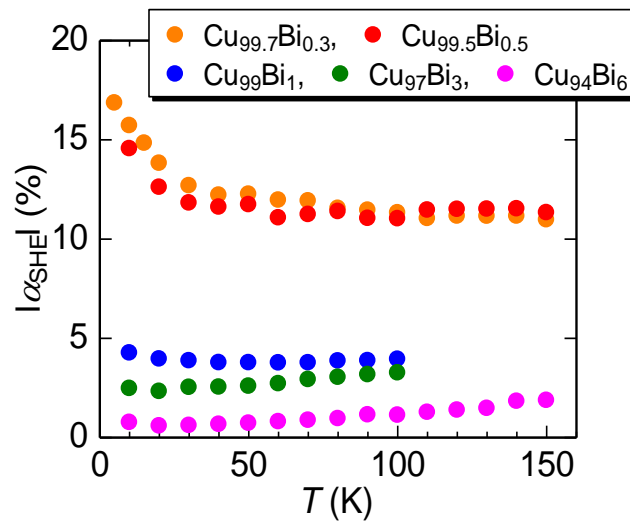


図 4.8 スピンホール角の温度依存性。

4.3. AgBi 合金におけるスピンホール効果

Ag を母体とした AgBi 合金においても、巨大なスピンホール効果が予言されている。そこで、次に AgBi 合金におけるスピンホール効果の測定を行った。CuBi 合金の場合と同様に、非局所スピンバルブ測定及びスピンホール効果の観測を行ったので、以下にその結果を示す。

まず、非局所スピンバルブ測定によって AgBi 細線へ吸収される純スピン流の量を見積もった。図 4.1 と同様の回路構成によって非局所スピンバルブ測定を行った結果、Ag₉₉Bi₁ 細線を挿入した場合のスピン蓄積信号は図 4.9 のようになった。縦軸はスピン蓄積信号 R_S 、横軸は印加磁場 $H_{||}$ を表している。これより、AgBi 細線へと純スピン流が吸収されていることが分かる。続いて CuBi の場合と同様に、AgBi 細線におけるスピン拡散長を見積もった。結果は、表 4.2 のようになる。AgBi 合金の場合においても、Bi 添加濃度が増加するにつれてスピン拡散長が短くなっていることが分かる。

AgBi 細線へ吸収される純スピン流の量が分かったので、続いて逆スピンホール効果の測定を行った。図 4.4 と同様の回路構成によって測定した結果、Ag₉₉Bi₁ 細線における逆スピンホール効果は図 4.10 のようになった。ここで、縦軸はスピンホール抵抗 R_{SHE} 、横軸は印加磁場 H_{\perp} を表している。Bi を添加することによって外因性スピンホール効果が発現しており、スピンホール抵抗が Py 細線の磁化方向に依存して変化していることが分かる。続いて、スピンホール抵抗の変化量 ΔR_{SHE} を考察する。同程度の抵抗率を有する Cu_{99.5}Bi_{0.5} の場合と比較するとその変化量は小さく、理論計算で期待されていた巨大なスピンホール効果は確認できなかった。これは、Bi 不純物におけるスピン軌道相互作用の相対的な強度が影響していると考えられる。理論論文[9][10]によると、巨大なスピンホール効果を得るためには以下の二つの条件が要求されている。①不純物ポテンシャルにおける、伝導電子の散乱確率が大い。②不純物ポテンシャルによる散乱において、↑スピンと↓スピン間の散乱確率の差が大い。これら二つの条件を満たすためには、不純物におけるスピン軌道相互作用の相対的な強度が大きく、スピンに対して非対称なカップリングが必要となる。これを AgBi に当てはめて考える。Ag は Cu よりも原子番号が大きく、スピン軌道相互作用が強い。そのため、AgBi 合金中の Bi 不純物における相対的なスピン軌道相互作用は、CuBi 合金と比較して小さいと推測される。また、スピンに依存した非対称な散乱も小さいと予想される。これらの点から、AgBi 合金では理論計算よりも小さなスピンホール効果になったと考えられる。

最後にスピンホール角の見積もりを行った。図 4.11 は、図 4.6(a)に AgBi の結果を加えたグラフである。また、挿入図は AgBi における不純物抵抗率の Bi 濃度依存性をプロットしたものである。不純物抵抗率が Bi 濃度の増加に伴い線形的に変化しており、Bi が均一に固溶していることが分かる。これより、AgBi におけるスピンホール抵抗率は、Bi 濃度が 0% ~ 3% までを評価する。CuBi 同様、AgBi においても Bi 濃度の増加に伴ってスピンホール抵抗率が線形的に推移している。これより、AgBi における外因性スピンホール効果もスキュー散乱によって発現していることが分かる。また、そのスピンホール角は $\alpha_{SHE} = -1.7 \pm 0.9\%$ となった。この値は、CuBi の場合よりも一ケタほど小さな値であり、理論計算とは一致しない。次に、スピンホール角の温度依存性を考察する。図 4.12 で示す通り、AgBi におけるスピンホール角は温度に対して依存していないことが分かる。この結果は、スキュー散乱による外因性スピンホール効果の発現を裏付けている。一方で、CuBi の場合に見られた、低温側でのスピンホール角の異常は見られなかった。

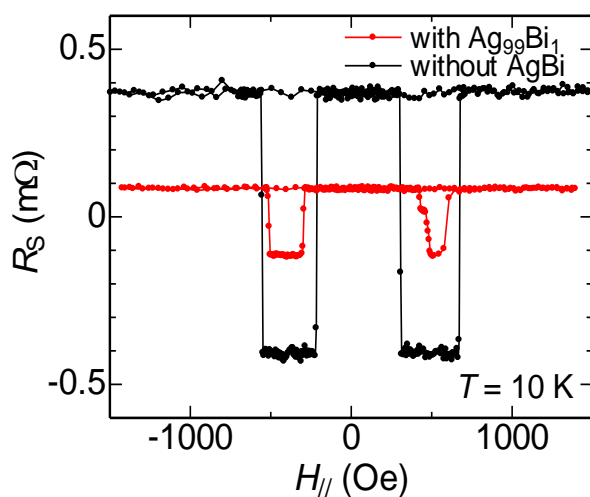


表 4.2 AgBi におけるスピン拡散長の
Bi 濃度依存性

Bi濃度	1%	3%
λ_{CuBi} (nm)	21 ± 6	18 ± 4

図 4.9 AgBi 細線が無い場合（黒線）と挿入されている場合（赤線）における $T=10\text{ K}$ での非局所スピバルブ測定の結果。

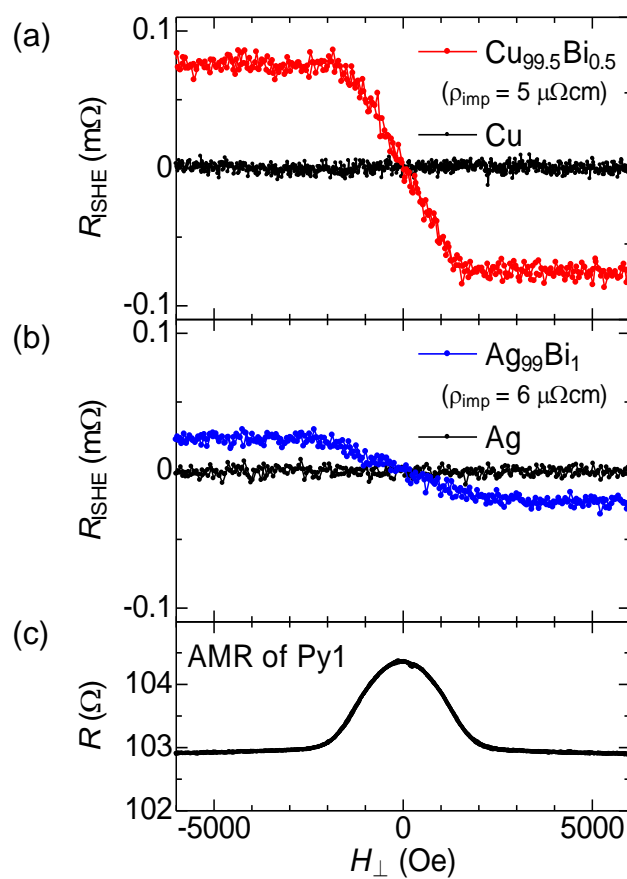


図 4.10 $T = 10\text{ K}$ における(a)CuBi 合金、及び(b)AgBi 合金の逆スピンホール効果によるスピンホール抵抗の磁場依存性。(c)Py1 細線における異方性磁気抵抗効果 (AMR)。

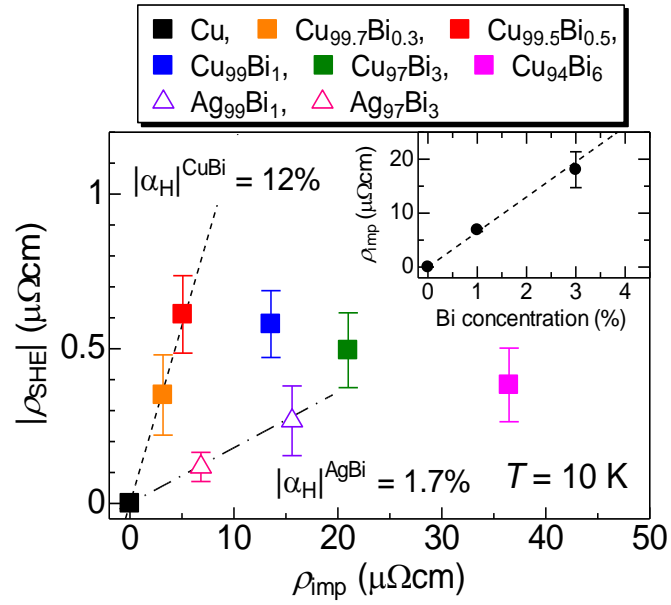


図 4.11 スピンホール抵抗率の不純物抵抗率依存性。挿入図は AgBi 合金における不純物抵抗率の Bi 濃度依存性を表している。

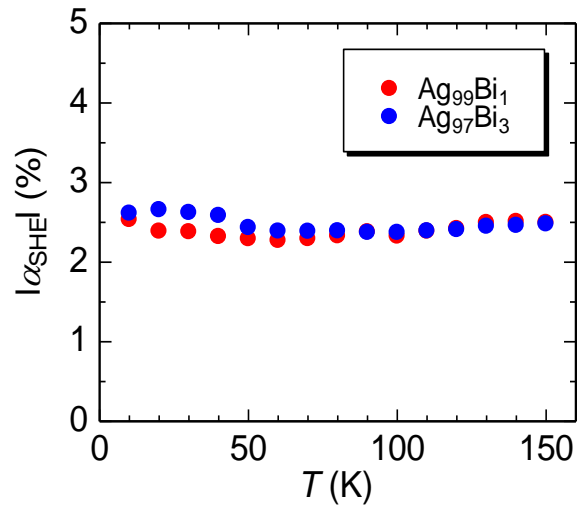


図 4.12 AgBi 合金におけるスピンホール角の温度依存性。

第5章

総括

本研究では、巨大な外因性スピンホール効果を発現すると予想されている CuBi や AgBi の系について、その実験的検証を行った。本研究で得られた知見は以下のようになる。

1. CuBi 及び AgBi 合金における外因性スピンホール効果の電氣的検出の成功

本研究では、面内スピンバルブ構造を有する素子を用いて CuBi 及び AgBi 合金のスピンホール効果の電氣的測定を行った。このような素子構造を用いることによって、通常のホールクロス構造では測定が困難なスピン拡散長の短い物質に対してもスピンホール効果を測定することができる。まず、CuBi 又は AgBi 細線を挿入した場合としない場合における非局所スピンバルブ測定を行った。その結果、CuBi 及び AgBi 合金で Bi 濃度が増えるにつれてスピン拡散長が非常に短くなることが分かった。これより、スピン吸収を利用したスピンホール効果の測定が有効的であることが確かめられた。

上記と同じ素子で、磁場を Py 細線の磁化困難軸に印加しながらスピンホール効果の測定を行った。Cu 及び Ag 単体では全くスピンホール効果が観測されなかったが、Bi をわずかに添加することによって外因性スピンホール効果が発現することを確認した。特に、CuBi 合金においては非常に大きなスピンホール効果を発現することが分かった。また、正スピンホール効果と逆スピンホール効果の測定結果を比較すると、スピンホール抵抗の総変化量が等しくなることが分った。これより、電流とスピン流の間にはオンサーガーの相反定理が成り立つことが確認された。

2. CuBi、及び AgBi における外因性スピンホール効果の発現機構の確認

CuBi、及び AgBi におけるスピンホール効果を定量的に評価するため、スピンホール抵抗率を見積もった。その結果、スピンホール抵抗率が不純物抵抗率と比例の関係にあることが分かり、どちらの系においてもスキュー散乱が支配的に働くことによって外因性スピンホール効果が発現していることが分かった。

3. CuBi、及び AgBi におけるスピンホール角の実験的算出

スピンホール抵抗率と不純物抵抗率の関係からスピンホール角を見積もると、CuBi の場合には約 -12% と非常に大きな値となった。これは理論の予想とほぼ一致する結果であり、我々が知る限り最も

大きなスピホール角である。一方、AgBi の場合には約-1.7%となり、理論とは一致しない結果となった。また、CuBi 及び AgBi 合金におけるスピホール角が負の値を示していることから、Bi 誘起による外因性スピホール効果は負の極性変化を示すことが示唆される。続いて、スピホール角の温度依存性について調べると、温度に対してほとんど依存していないことが分かった。この結果からも、CuBi、及び AgBi における外因性スピホール効果がスキュー散乱によって発現していることを確認できた。

本研究の結果、CuBi におけるスピホール効果は、従来の物質よりも高効率な純スピ流生成・検出を実現できることが分かった。例えば 1 mA の電流を $\text{Cu}_{99.5}\text{Bi}_{0.5}$ 細線へと流した場合、生成されるスピ流（スピ蓄積）は有効磁場換算にして 0.1 T 程度となる。これは、純スピ流による磁化反転[44][45]を行える十分な大きさであり、CuBi を用いた磁化反転素子の実現が期待される。また、スピホール効果を用いた純スピ流の生成・検出手法は、スピゼーバック効果（温度勾配によってスピ流が流れる現象）などの観測に対しても利用されている[46]。現段階では Pt ($\alpha_{\text{SHE}} = 2 \sim 3\%$) が使用されているが、CuBi を用いることによって高効率な純スピ流の検出を行うことができる。また、コスト面においても優位性を有していることから、産業的にも魅力的な物質といえる。以上のことから、本研究はスピントロニクス分野において有意義な結果をもたらしたと結論付けることができる。

参考文献

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, “Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.61, 2472, 1988.
- [2] 猪俣浩一郎。「スピンエレクトロニクスの基礎と応用」、シーエムシー出版、2004年。
- [3] S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnar, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova and D. M. Treger, “Spintronics: A spin-based electronics vision for the future”, *Science*, Vol.294, 5546, 2001.
- [4] M. Johnson and R. H. Silsbee. “Interfacial charge-spin coupling: Injection and detection of spin magnetization in metals”. *Phys. Rev. Lett.*, Vol.55, 1790, 1985.
- [5] F. J. Jedema, A. T. Filip and W. B. Van, “Electrical spin injection and accumulation at room temperature in an all-metal mesoscopic spin valve”, *Nature*, Vol.410, 345, 2001.
- [6] Y. Tserkovnyak, A. Brataas and G. E. W. Bauer, “Enhanced Gilbert Damping in Thin Ferromagnetic Films”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.88, 117601, 2002.
- [7] M. I. Dyakonov and V. I. Perel, “Possibility of orientating electron spins with current”, *Sov. Phys. JETP Lett.*, Vol.13, 467, 1971.
- [8] J. E. Hirsch, “Spin Hall effect”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.83, 1834, 1999.
- [9] M. Gradhand, D. V. Fedorov, P. Zahn and I. Mertig, “Spin Hall angle versus spin diffusion length: Tailored by impurities”, *Phys. Rev. B*, Vol.85, 393, 2000.
- [10] M. Gradhand, D.V. Fedorov, P. Zahn and I. Mertig, “Skew Scattering Mechanism by an Ab Initio Approach : extrinsic spin Hall effect in noble metals”, *Solid State Phenomena* Vol. 168-169, 2011.
- [11] M. Johnson and R. H. Silsbee, “Coupling of electronic charge and spin at a ferromagnetic-paramagnetic metal interface”, *Phys. Rev. B*, Vol.37, 5312, 1988.
- [12] M. A. M. Gijs and G. E. W. Bauer, “Perpendicular giant magnetoresistance of magnetic multilayers”, *Adv. Phys.*, Vol.46, No.3, pp.285–445, 1997.
- [13] P. C. van Son, H. van Kempen and P. Wyder, “Boundary resistance of the ferromagnetic-nonferromagnetic metal interface”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.58, 2271, 1987.
- [14] T. Valet and A. Fert, “Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers”, *Phys. Rev. B*, Vol.48, 7099, 1993.
- [15] J. Bass and W. P. Pratt, “Spin-diffusion lengths in metals and alloys, and spin-flipping at metal/metal interfaces: an experimentalist's critical review”, *JOURNAL OF PHYSICS CONDENSED MATTER*, Vol.19, 183201, 2007.
- [16] T. Kimura, J. Hamrle and Y. Otani, “Estimation of spin-diffusion length from the magnitude of spin-current absorption: Multiterminal ferromagnetic/nonferromagnetic hybrid structures”, *Phys. Rev. B*, Vol.72, 014461, 2005.

- [17] T. Kimura, Y. Otani and J. Hamrle, “Enhancement of spin accumulation in a nonmagnetic layer by reducing junction size”, *Phys. Rev. B*, Vol.73, 132405, 2006.
- [18] S. Takahashi and S. Maekawa, “Spin injection and detection in magnetic nanostructures”, *Phys. Rev. B*, Vol.67, 052409, 2003.
- [19] L. Vila, T. Kimura and Y. Otani, “Evolution of the Spin Hall Effect in Pt Nanowires: Size and Temperature Effects”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.99, 226604, 2007.
- [20] Y. Niimi, M. Morota, D. H. Wei, C. Deranlot, M. Basletic, A. Hamzic, A. Fert, and Y. Otani, “Extrinsic Spin Hall Effect Induced by Iridium Impurities in Copper”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.106, 126601, 2011.
- [21] E.H. Hall, “On a New Action of the Magnet on Electric Currents”, *Am. J. Math.*, Vol.2, 287, 1879.
- [22] 太田恵造。「磁気工学の基礎Ⅱ」、共立全書 201、1973年。
- [23] J. J Sakurai。「現代の量子力学（下）」、古岡書店、1989年。
- [24] J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth, and A. H. MacDonald, “Universal Intrinsic Spin Hall Effect”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.92, 126603, 2004.
- [25] R. Karplus and J. M. Luttinger, “Hall Effect in Ferromagnetics”, *Phys. Rev.*, Vol.95, 1154, 1954.
- [26] S. Murakami, N. Nagaosa and S. C. Zhang, *Science*, “Dissipationless Quantum Spin Current at Room Temperature”, Vol.301, 1348, 2003.
- [27] J. Wunderlich, B. Kästner, J. Sinova and T. Jungwirth, “Experimental Observation of the Spin-Hall Effect in a Two-Dimensional Spin-Orbit Coupled Semiconductor System”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.94, 047204, 2005.
- [28] H. Kontani, T. Tanaka, D. S. Hirashima K. Yamada and J. Inoue, “Giant Intrinsic Spin and Orbital Hall Effects in Sr_2MO_4 ($\text{M} = \text{Ru, Rh, Mo}$)”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.100, 096601, 2008.
- [29] 紺谷浩、平島大、井上順一郎。「遷移金属における異常ホール効果およびスピンホール効果」、*日本物理学会誌* Vol.64, No.1, 2009.
- [30] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima and G. Tatara, “Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-Hall effect”, *Appl. Phys. Lett.*, 88, Vol.182509, 2006.
- [31] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa, “Room-Temperature Reversible Spin Hall Effect”, *Phys. Rev. Lett.* Vol.98, 156601, 2007.
- [32] G. Y. Guo, S. Murakami, T.-W. Chen and N. Nagaosa, “Intrinsic Spin Hall Effect in Platinum: First-Principles Calculations”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.100, 096401, 2008.
- [33] H. Kontani, M. Naito, D. S. Hirashima, K. Yamada, and J. Inoue, “Study of Intrinsic Spin and Orbital Hall Effects in Pt Based on a (6s, 6p, 5d) Tight-Binding Model”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol.76, 103702, 2007.
- [34] T. Tanaka, H. Kontani, M. Naito, T. Naito, D. S. Hirashima, K. Yamada and J. Inoue, “Intrinsic spin Hall effect and orbital Hall effect in 4d and 5d transition metals”, *Phys. Rev. B*, Vol.77, 165117, 2008.
- [35] M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D.H. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura and Y. Otani, “Indication of intrinsic spin Hall effect in 4d and 5d transition metals”, *Phys. Rev. B*, Vol.83, 174405, 2011.

- [36] J. Smit, “The spontaneous hall effect in ferromagnetics II”, *Physica*, Vol.24, 39, 1958.
- [37] L. Berger, “Side-Jump Mechanism for the Hall Effect of Ferromagnets”, *Phys. Rev. B*, Vol.2, 4559, 1970.
- [38] A. Fert, A. Friederich and A. Hamzic, “Hall effect in dilute magnetic alloys”, *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol.24, 231, 1981.
- [39] T. Seki, Y. Hasegawa, S. Mitani, S. Takahashi, H. Imamura, S. Maekawa, J. Nitta and K. Takanashi, “Giant spin Hall effect in perpendicularly spin-polarized FePt/Au devices”, *Nature Mat.*, Vol.7, 125, 2008.
- [40] G. Mihajlović, J. E. Pearson, M. A. Garcia, S. D. Bader and A. Hoffmann, “Negative Nonlocal Resistance in Mesoscopic Gold Hall Bars: Absence of the Giant Spin Hall Effect”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.103, 166601, 2009.
- [41] B. Gu, I. Sugai, T. Ziman, G. Y. Guo, N. Nagaosa, T. Seki, K. Takanashi and S. Maekawa, “Surface-Assisted Spin Hall Effect in Au Films with Pt Impurities”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.105, 216401, 2010.
- [42] M. Gradhand, D.V. Fedorov, P. Zahn and I. Mertig, “Extrinsic Spin Hall Effect from First Principles”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.104, 186403, 2010.
- [43] S. O. Valenzuela and M. Tinkham, “Direct electronic measurement of the spin Hall effect”, *Nature*, Vol.442, 176, 2008.
- [44] T. Kimura, Y. Otani and J. Hamrle, “Switching Magnetization of a Nanoscale Ferromagnetic Particle Using Nonlocal Spin Injection”, *Phys. Rev. Lett.*, Vol.96, 037201, 2006.
- [45] T. Yang, T. Kimura and Y. Otani, “Giant spin-accumulation signal and pure spin-current-induced reversible magnetization switching”, *Nature Phys.*, Vol.4, 851, 2008.
- [46] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa and E. Saitoh, “Observation of the spin Seebeck effect”, *Nature*, Vol.455, 778, 2008.

謝辞

本研究を行うにあたり、熱心なご指導・ご鞭撻をして下さいました東京大学 物性研究所教授 大谷義近先生に心より感謝致します。修士二年間を有意義に過ごせるよう、日々の研究だけではなく学会活動などに対しても配慮して頂きました。また、実験における具体的なアイデアや技術的指導をして下さいました物性研究所助教 新見康弘様に対しても、感謝の意を述べたいと思います。実験の経験が乏しい私に対して、懇切丁寧な指導を心掛けて下さいました。

実験装置を貸していただきました、物性研教授 勝本信吾先生にも感謝しております。パリ第11 大学教授 Albert Fert 先生、マルティン・ルター大学ハレ・ヴィッテンベルク教授 Ingrid Mertig 先生、ブリストル大学博士研究員 Martin Gradhand 氏の理論サポートにより、本研究をまとめることができました。また、理化学研究所 量子ナノ研究グループの方々には、ミーティングなどの場において研究へのアドバイスを頂きました。

日々の生活の補助や学会活動などの支援をして下さいました物性研究所秘書 川村順子様、理化学研究所 量子ナノ研究グループ秘書 石鍋道子様にも感謝しております。また、講義や就職活動の支援をして下さいました新領域創成科学研究科 物質系専攻事務 松崎真紀子様、丹由紀子様にも大変お世話になりました。

大谷研究室に所属している皆様にも感謝の言葉を贈りたいと思います。博士研究員の魏大海様には、スピンホール効果に関する議論だけではなく語学学習の相手にもなっていただきました。先輩の大西紘平様、杉本聡志様、井土宏様には、研究だけではなく学生生活に関するアドバイスも沢山いただきました。また、同期の若村太郎君や、後輩の藤森啓晃君、鈴木裕君には研究への刺激をいただきました。

最後に、修士二年間の生活を支えてくれた父、母、兄、妹に心より感謝致します。