

博士論文

論文題目 金属/ビスマス酸化物界面における
スピン緩和の増強効果とスピン流-電流相互変換現象
(Enhanced spin relaxation and spin-charge currents
interconversion in metal/Bismuth oxide interfaces)

氏名 軽部 修太郎

博士論文

金属/ビスマス酸化物界面における
スピン緩和の増強効果と
スピン流-電流相互変換現象

(Enhanced spin relaxation and spin-
charge currents interconversion in
metal/Bismuth oxide interfaces)

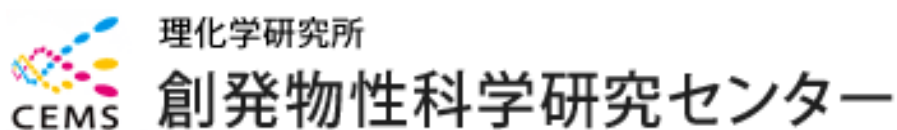
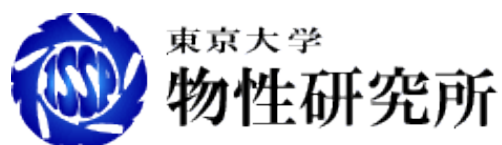
東京大学大学院 新領域創成科学研究科
基盤科学研究系 物質系専攻

博士 (科学)

軽部修太郎

2017年2月

指導教員：大谷義近 教授



博士論文審査委員

主査：大谷義近 教授

副査：鈴木義茂 教授

副査：林将光 准教授

副査：松田康弘 准教授

副査：徳永祐介 准教授

概要

金属/ビスマス酸化物界面における

スピン緩和の増強効果とスピン流-電流相互変換現象

(Enhanced spin relaxation and spin-charge currents
interconversion in metal/Bismuth oxide interfaces)

軽部 修太郎

Shutaro KARUBE

エレクトロニクスと磁性の分野を兼ね備えたスピントロニクスでは、スピン流が重要な役割を担っている。スピン流は電荷の流れを伴わないスピン角運動量の流れを指し、輸送特性をはじめとする基礎研究から、磁気メモリ等への応用を視野に入れたものまで幅広く研究が行われている。これまでにスピン流は、バルク遷移金属中のスピン軌道相互作用を介して生成・検出が行われてきた。その際に発現するスピン流-電流相互変換現象は正・逆スピンホール効果と呼ばれる。近年、半導体接合や金属接合界面において形成される Rashba 界面やトポロジカル絶縁体表面といったスピン分裂した二次元電子系がスピン流生成・検出において注目されている。これらの二次元系は、電子の運動方向に対してスピンの偏極方向が一意に決まるスピン-運動量ロッキング現象を示す。この現象を介して、前述した正・逆スピンホール効果のような、電流-スピン流相互変換に類似した現象が発現する。これらの効果は正・逆 Edelstein 効果と呼ばれている。このような二次元系を利用したスピン流に関する研究は始まったばかりであり、未だ実験例も、その物理機構に関する理解も不十分である。正・逆 Edelstein 効果は 2 次元系の非平衡スピン蓄積により生成されるスピン流と密接な関係にある事から、変換現象のみならず、スピン緩和機構と併せた議論が望ましい。本研究では非磁性金属/酸化物界面におけるスピン緩和が、特定の酸化物によって抑制された先行研究[H. Idzuchi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 022415 (2012)]に着目し、非磁性金属と様々な酸化物界面でのスピン緩和を調べ、ある界面において、スピン緩和の増強効果および正・逆 Edelstein 効果を実験的に初めて観測した。また関連実験として、非磁性金属/酸化物界面由来の付加的な異常ホール効果に関する研究も行った。以下にこれらの研究成果の概要を示していく。

まず、非磁性金属(Ag)/各種酸化物界面におけるスピン緩和について述べる。酸化物は

MgO, Al₂O₃, AgO_x (自然酸化膜), HfO₂, Bi₂O₃ の 5 種を用いた。成膜は電子線加熱蒸着で行い、素子はスピン注入・検出を担う 2 つの Ni₈₀Fe₂₀(Py)/MgO 細線および、スピン輸送を調べる Ag/Oxide 細線が架橋された面内スピバルブ素子を作製した。実験では 10 K における Ag 中のスピン輸送を特徴づけるスピン拡散長を測定し、Ag/酸化物界面のスピン緩和を議論する。まず、検出されるスピン信号 ΔR_s の距離依存性からスピン拡散長の算出を行った。Ag/Bi₂O₃ 界面の場合ではスピン拡散長は 127 nm となり、Ag/Al₂O₃ の場合の 450 nm に比べ、非常に短い距離でスピン流が減衰する事が分かった。より定量的にスピン緩和を議論するため、各酸化物界面でのスピン反転確率 ϵ_{surf} の算出を行った。MgO, Al₂O₃, AgO_x, HfO₂ の 4 種は従来報告されている Ag 中でのスピン反転確率 (~0.002-0.005) [H. Idzuchi *et al.*, *Physica E* **68**, 239 (2015)] と同程度であることから、非磁性金属中のスピン緩和を特徴づける Elliott-Yafet 機構によって説明出来る事が分かった。一方で Ag/Bi₂O₃ 界面では反転確率 ϵ_{surf} が 0.0472 となり、従来の値に比べ 10 倍以上大きくなる事が判明した。この結果は界面における新たなスピン緩和機構が存在している事を示唆している。界面における現象である事から、界面近傍の Ag の結晶性を X 線回折で調べたところ、(111)配向を好んで結晶が構成されている事が分かった。この結果から、上述したスピン緩和の増強効果の起源として、Ag(111)/Bi に見られるような巨大な Rashba 効果 [C. R. Ast *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 186807 (2007)] が非磁性体(Ag)/Bi₂O₃ 界面にも発現している可能性がある事を明らかにした。

このスピン緩和増強効果が Rashba 効果によってもたらされる場合、冒頭で述べた逆 Edelstein 効果によるスピン流-電流変換現象の発現が期待される。そこで、スピンプンピング法を用いたスピン流注入により、非磁性金属/Bi₂O₃ 界面でのスピン流-電流変換現象の観測を試みた。実験では Py (5nm)/非磁性金属(Ag or Cu, 10nm)/Bi₂O₃(100nm)の三層膜細線を用いた。Ag、Cu 何れも測定周波数 9 GHz における共鳴磁場において明確な電圧信号を観測することに成功した。また出力電圧符号が Ag/Bi₂O₃ と Cu/Bi₂O₃ の場合で反転している事から、互いの変換係数符号が逆の傾向である事が分かった。続いて、界面で起こる変換現象がどのような要因によって変化するかを調べるため、非磁性金属(Cu)の膜厚依存性を調べた。膜厚の減少に伴い、スピン流-電流変換係数 λ_{IEE} が減少することが分かった (Cu 10 nm の時、 $\lambda_{IEE} = 0.4$ nm 程度)。この傾向は非磁性金属(Cu)の電子の運動量緩和時間の膜厚依存性と良く似た傾向であることから、界面に接する Cu 層での電子の運動量緩和が、Cu/Bi₂O₃ 界面でのスピン流-電流変換現象に影響を与えていることが推測される。先行研究 [L. K. Werake *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 107205 (2011)] によると、Rashba 系では、弾性散乱を考えるとスピン-運動量ロッキング現象によって電子が緩和しにくく、運動量緩和時間はピコ秒程度である事が報告されている。一方で金属中の運動量緩和時間はフェムト秒程度と 3 桁小さな値であるため、非磁性金属(Cu)/Bi₂O₃ 界面での緩和時間が、界面と接する Cu 層の緩和時間に強く影響を受けている可能性は十分に考えられる。そこで、Cu 層内の緩和時間が界面での緩和時間と同値であると仮定し、Rashba 係数 α_R を算出した。見積りの結果、 α_R は膜厚に依らず一定であることが分かった。この事から、どの Cu 膜厚の試料でも

同程度のスピン分裂を有する界面が出来ていることが分かり、界面に隣接するバルク Cu 層の運動量緩和が界面での変換に大きく影響する事を明らかにした。

前述した Ag のように、Cu に関しても X 線回折測定を行ったところ、Cu(111)配向を好む事が分かった。続いて、このような Cu(111)表面上にビスマス酸化物が成膜された際に、Rashba 分裂が発現するかを角度分解光電子分光によって現在調べている。まず Cu(111)上に Bi を成膜し、その後 Bi を酸素雰囲気下で酸化させ BiO_x を作製した。測定では Fermi 準位にかかる明瞭な Rashba 分裂が観測され、前述した変換現象が Rashba 効果由来である事を裏付ける結果を得ている。本実験に関しては、Cu(111)/BiO_x 由来の結果である事をより明確にするために Cu(111)/Bi との違いを見出す実験を引き続き行っている。

次に正 Edelstein 効果の実験的観測も試みた。実験では先程同様、Py(5nm)/非磁性金属 Cu(10nm)/Bi₂O₃(10nm)の三層膜構造を用いて、スピントルク強磁性共鳴測定を行った。この実験では電流印加時に界面で生成されるスピン流 (スピントルク) によって Py のダンピング定数がどの程度変化するか見積もり、電流-スピン流変換係数 q_{DEE} を議論する。測定では電流が増加(減少)するにつれてダンピング定数が増加(減少)する傾向がみられ、Edelstein 効果の観測に成功した。また見積もられた変換係数は $q_{\text{DEE}} = 0.025 \text{ nm}^{-1}$ となった。近年の理論研究[S. Zhang *et al.*, *Phys. Rev. B* **94**, 184423 (2016)]によると、Edelstein 効果では、電流印加時、2次元系に溜まったスピン蓄積が一部脱出し、スピン流となって隣接金属層へ拡散していると考えられている。そこで、本研究から得られた結果から何 %のスピンが脱出するのかについて議論を行った。具体的には、界面で生成されるスピン蓄積からスピン脱出率 η 分だけスピンが脱出したとしてスピン拡散モデルを解き、得られた式に対して前述したスピンプンピング測定から得られた Rashba 係数 α_{R} 、本測定から得られた Edelstein 係数 q_{DEE} を代入して算出を行った。スピン脱出率 η は約 32 %程度になる事が分かった。一方、残りの $1 - \eta$ である 68 %は界面スピン緩和率と解釈出来る。これらの結果は、大部分のスピンが界面で緩和される事を意味しており、スピン軌道相互作用が強い界面系である事が分かった。このように、Edelstein 効果は従来研究されてきたスピンホール効果とは質的に異なる変換現象である事を明らかにした。

最後に関連実験として、非磁性金属/ビスマス酸化物界面由来の付加的な異常ホール効果に関する研究について述べる。実験では Py/非磁性金属(Ag, Cu)/酸化物(Bi₂O₃, Al₂O₃)の 3 層構造を有したホールバー、計 4 種を用いてホール測定を行った。参照素子 : Ag/Al₂O₃, Cu/Al₂O₃ を用いた比較や、非磁性金属の膜厚依存性を系統的に調べることにより、Ag/Bi₂O₃, Cu/Bi₂O₃ 界面由来の付加的な異常ホール効果を観測した。この時、付加的な異常ホール角の符号が Ag/Bi₂O₃ と Cu/Bi₂O₃ の場合で逆となる事が分かった。これは、スピンプンピング実験で前述したような λ_{IEE} の符号が逆である事実と似た傾向であるため、Edelstein 効果由来の現象である可能性がある。このように、非磁性金属/ビスマス酸化物界面はスピン依存伝導現象とも密接な関わりにある事が明らかになった。

以上のように本研究では、非磁性金属/ビスマス酸化物界面におけるスピン緩和の増強効

果およびスピン流・電流相互変換現象を観測し、物性を明らかにした。これらの系統的な実験から得られた知見は、近い将来二次元界面を利用したスピントロニクス素子の創製に役立つと考えられる。

目次

第1章 序論.....	1
1-1 スピントロニクス.....	1
1-2 研究背景.....	5
1-3 研究目的.....	9
1-4 本論文の構成.....	9
第2章 基礎理論.....	11
2-1 スピン輸送理論.....	11
2-2 Elliott-Yafet 機構.....	15
2-3 Rashba 効果.....	17
2-4 Edelstein 効果.....	21
2-5 スピンポンピング.....	27
2-6 スピントルク強磁性共鳴.....	35
第3章 素子作製および測定手法.....	38
3-1 素子作製手法.....	38
3-2 非局所スピン注入測定手法.....	46
3-3 スピンポンピング測定手法.....	47
3-4 スピントルク強磁性共鳴測定手法.....	47
3-5 異常ホール効果測定手法.....	48
第4章 非磁性金属/ビスマス酸化物界面におけるスピン緩和増強効果.....	50
4-1 スピン蓄積信号およびスピン拡散長の酸化物界面依存性.....	50
4-2 界面スピン反転確率の酸化物界面依存性.....	52
4-3 スピン緩和増強効果の起源.....	54

第 5 章 非磁性金属/ビスマス酸化物界面におけるスピン流-電流変換	57
5-1 スピンポンピング法によるスピン注入および検出電圧信号.....	57
5-2 ダンピング定数の周波数依存性および Kittel の関係.....	59
5-3 スピン流-電流変換係数 λ_{IEE} の非磁性金属膜厚依存性	61
5-4 バルク非磁性金属の運動量緩和の影響、 および非磁性金属/ビスマス酸化物界面の Rashba 係数の見積もり	64
5-5 Cu/Bi ₂ O ₃ 界面の結晶性および Rashba スピン分裂	65
第 6 章 非磁性金属/ビスマス酸化物界面における電流-スピン流変換	69
6-1 スピントルク強磁性共鳴法による検出電圧信号.....	69
6-2 スピントルクによるダンピング変調実験および 電流-スピン流変換係数 q_{DEE} の見積もり	70
6-3 スピン脱出率と界面スピン緩和率.....	71
第 7 章 非磁性金属/ビスマス酸化物界面スピン軌道相互作用を用いた関連実験	73
7-1 強磁性金属 Py/非磁性金属/酸化物三層膜における異常ホール効果.....	73
第 8 章 総括.....	79
8-1 本研究の総括.....	79
8-2 今後の展望	79
8-3 謝辞	81
8-4 引用文献.....	83

第 1 章

序論

1-1 スピントロニクス

まず始めに本研究領域であるスピントロニクスについて簡単に述べる。スピントロニクスは電子あるいはホールの持つ「電荷」と「スピン」の 2 つの物理的自由度を用いた基礎研究および応用研究の分野を指す[1-1]。スピントロニクス研究の中で、最も重要な成果の 1 つは巨大磁気抵抗効果 (Giant Magnetoresistance: GMR) である。この成果は、1988 年にフランスの Fert グループ[1-2]およびドイツの Grünberg グループ[1-3]によって独立に発見され、2007 年にノーベル賞が授与された。この効果の起源はスピン依存電子散乱である。図 1-1 に示すような強磁性層 / 非磁性層 / 強磁性層の積層構造において、2 つの強磁性層の磁化の向きによってスピン偏極電子の散乱のされ方が異なるため、磁気抵抗を示す。2 つの強磁性層の間に挿入された非磁性層が交換相互作用を切るスペーサーの役割を果たしており、磁化の向きを揃えるためには外部磁場を用いる。当時、具体的に用いられた系は Fe/Cr/Fe の超格子であり、両グループが得た結果を図 1-2 に示す[1-2, 1-3]。いずれの場合も磁気抵抗を示している事が分かり、Fert グループに関してはその抵抗変化は室温で約 20 %程度、4.2 K では最大 85 %にもなる。強磁性体中の異方性磁気抵抗効果 (AMR) の抵抗変化が数%程度であった事を考えると非常に大きな変化である。GMR の発見は、高感度の磁場読み取りセンサーへの応用につながり、ハードディスクドライブの高密度化へ大きく貢献した[1-4]。このように、スピン依存した物理現象がスピントロニクス研究において中核を担っている。

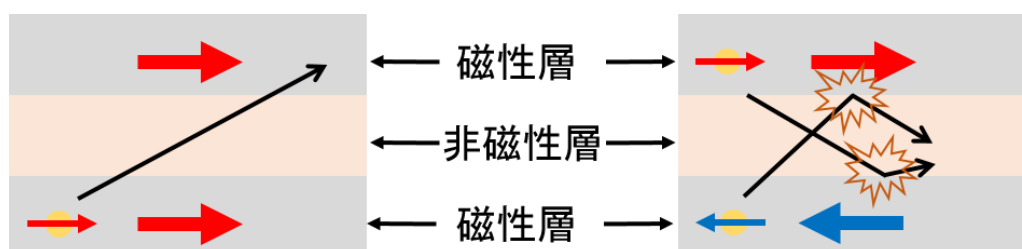


図 1-1 強磁性層 / 非磁性層 / 強磁性層の積層構造および GMR の原理概形図
左図の磁化が平行時はスピン依存電子散乱が生じず、右図の磁化が反平行時はその散乱が生じている様子。

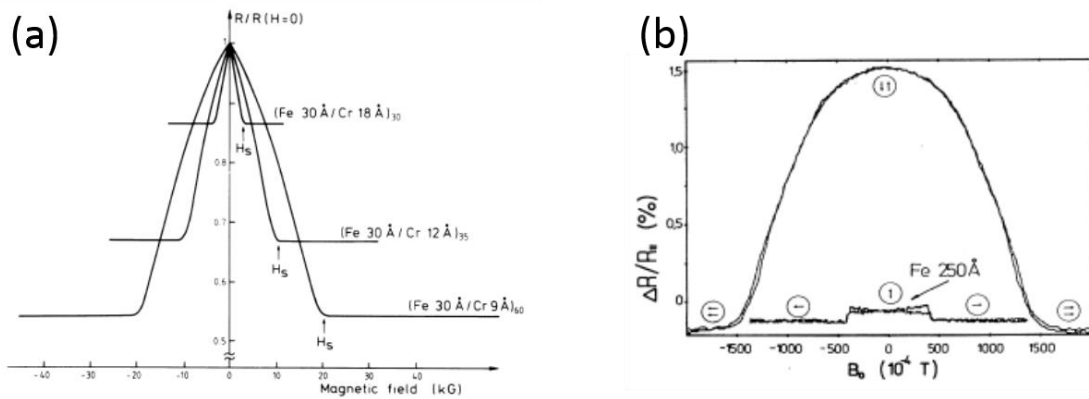


図 1-2 (a)Fert グループ[1-2]、(b)Grünberg グループ[1-3]による、Fe/Cr/Fe 構造における巨大磁気抵抗比の測定結果

その中で、最も重要な概念の 1 つとしてスピン流が挙げられる。スピン角運動量の流れを指す電荷流を伴わないスピン流（スピン偏極電流と区別するため純スピン流と呼ばれる事がある）は、スピン軌道相互作用の強い遷移金属に電流を流すことで生成される。また逆効果として、スピン流を遷移金属に印加することで電流が生成される。これらは、それぞれ正スピンホール効果(Direct spin Hall effect: DSHE or SHE)、逆スピンホール効果(Inverse spin Hall effect: ISHE)と呼ばれる。物質固有のスピン軌道相互作用によるスピン依存電子散乱が上述の SHE, ISHE 発現の起源である。

SHE は 2004 年に Awschalom グループによって初めて観測された[1-5]。図 1-3(a)に示すような形状の素子およびセットアップにおいて、GaAs および InGaAs を用いて磁気光学 Kerr 効果(Magneto-optical Kerr effect: MOKE)により、実空間において素子端に生成されるアップスピン電子（赤）、ダウンスピン電子（青）の蓄積が観測された(図 1-3(b))。

この光学的な観測に続いて、電気的な SHE および ISHE の観測も行われた。2006 年には Saitoh グループから ISHE 観測の報告が成された[1-6]。図 1-3(c)に示すような $\text{Ni}_{89}\text{Fe}_{11}$ (Permalloy: Py)/Pt の 2 層膜において、外部からマイクロ波を素子に照射し、Py の強磁性共鳴(Ferromagnetic Resonance: FMR)を誘起し、隣接する Pt 中へスピン流を注入する。この方法はスピンプンピングと呼ばれる。その際、ISHE を介してスピン流から電流が生成されるため電圧が観測される。図 1-3(d)はスピンプンピングを行った時に観測される電圧信号を表しており、Py のみの場合（左図）と Py/Pt の 2 層膜（右図）とを比較している。Py は SHE の変換効率であるスピンホール角(Spin Hall angle: SHA)が小さいため、ISHE 由来の電圧は観測されていないが、Py/Pt の場合は Pt の ISHE 由来の明確な信号が観測されている。この報告に続き、2007 年には Otani グループから SHE および ISHE の電気的観測が報告された[1-7]。これは図 1-3(e), (g)に示すような素子を用いて行

われた。この手法は非局所スピン注入法およびスピン吸収法と呼ばれる。簡単に説明すると、SHE 測定の場合では電流-スピン流変換の観測を行うため、Pt 中へ電流を流し、SHE によりスピン流を生成する。このスピン流は Cu 中を拡散伝導し、Py と Cu の接合部に到着すると電圧 V_S を生じる。その結果が図 1-3(f)である。この時、磁場 H を図中方向に掃引すると注入されるスピン流の偏極方向が変化するため、出力される電圧の符号も反転する。ISHE の場合は、逆に Py/Cu 接合間に電流を流すと Py/Cu 界面にスピン蓄積が生じ、スピン流が Cu 中を拡散する。Pt 電極部へ到達すると、ISHE を介してスピン流から電流の変換が行われるため、電圧 V_C が観測される。この際、SHE および ISHE で生成された電圧の大きさは同じである。これらの検出電圧は非局所測定で行われている事や、Py の磁化方向に応じて変化する事からスピン流が起因した現象であると考えられる。つまり、電流-スピン流相互変換の相反性が成り立っている事を意味しており、理論研究と一致する結果である事が分かっている[1-8]。これらのスピンプンピングやスピン吸収法のような電気的な測定を用いて、様々な物質中のスピン流変換現象が現在までに調べられている。特に前述した Pt や、 β -Ta[1-9]、 β -W[1-10]などは遷移金属の中でも SHA が大きくなる事が知られている。

SHE により生成されたスピン流はスピントルクとして磁化ダイナミクスに影響を与える事が可能である。よって Pt などの SHA が大きい物質はスピン注入磁化反転に応用されている[1-11]。例えば図 1-4(a)は Pt/Co/AlO_x で構成される細線であり、実際はホールバーに

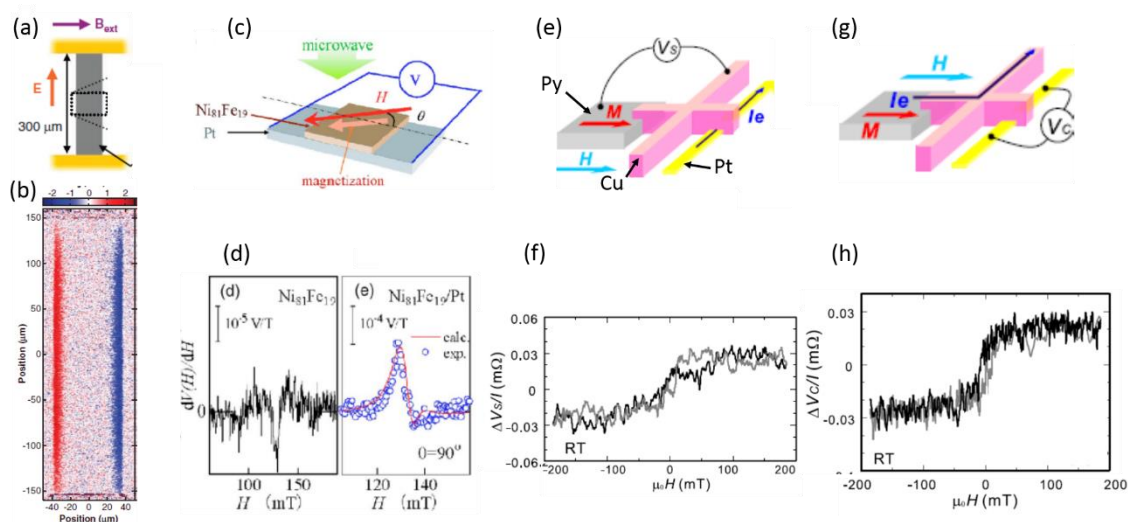


図 1-3 (a), (b)MOKE による SHE の測定セットアップおよび実験結果[1-5],
(c), (d)スピンプンピングによる ISHE の測定セットアップおよび実験結果[1-6],
(e), (f), (g), (h)スピン吸収法による SHE, ISHE の測定セットアップおよび実験結果[1-7]

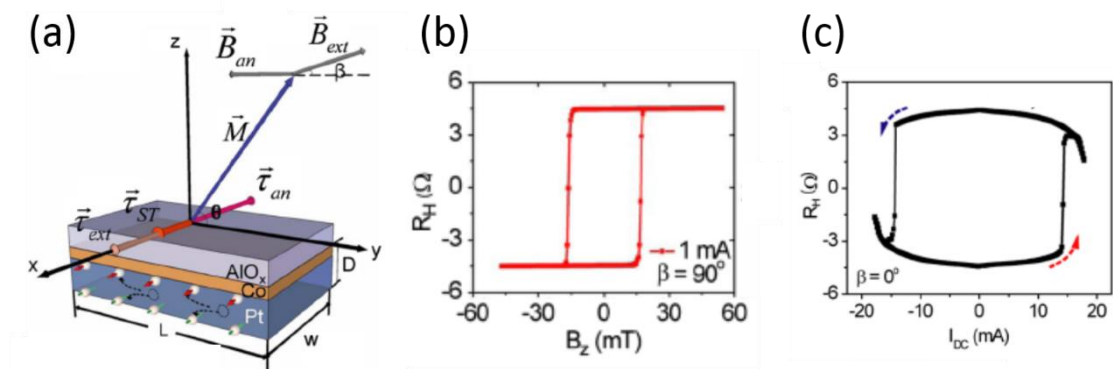


図 1-4 (a)スピン注入磁化反転の測定系, (b)面直磁場掃引の異常ホール抵抗, (c)異常ホール抵抗の電流依存性[1-11]

加工し、Co の異常ホール効果を測定することによって、磁化反転の有無の確認を行う。図 1-4(b)は面直磁場掃引における異常ホール抵抗を表している。一方図 1-4(c)は面直磁場ではなく、電流を印加した際の異常ホール抵抗である。印加する電流値を増やすと、SHE によって Pt 中で生成されるスピンの量が増え、Co の磁化に作用するスピントルクが大きくなる。この結果は異常ホール効果を介して磁化反転を観測した事を示している[1-11]。この時、図 1-4(a)に示されているように、磁化反転が起こりやすいよう面内方向に磁場を印加し、磁化を傾かせている。このように SHE によって生成されるスピンの量はスピントルクとして磁化反転現象にも応用されている。

これまで上述してきたスピンの生成は熱流からの生成も可能であり、2008 年に Saitoh グループから報告が成された。これはスピンゼーベック効果(Spin Seebeck effect: SSE)と呼ばれている[1-12]。SSE は磁性体に温度勾配を付ける事で、その勾配と同方向のスピンの生成する効果を指す。例えば図 1-5(a)のように磁性絶縁体 $Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG)に温度勾配を与えて Pt の ISHE で検出を行う。この時磁場を掃引すると、磁化が追従し、生成されるスピンのスピンの偏極方向もそれに依って変化する。そのため図 1-5(b)のように出力される逆スピンのホール(ISH)電圧の符号が変化する。また温度勾配が大きくなると生成されるスピンの密度も大きくなるため、出力される ISH 電圧も大きくなる。図 1-5(a)のようなセットアップは温度勾配が生じる向きから縦型 SSE と呼ばれる[1-13]。SSE はフォノンとマグノンの相互作用によってスピン流生成を行えるので、磁性絶縁体でも発現する[1-14]。このように SSE によって熱流からスピン流を生成できるため、ISHE と併用すれば熱流から電流を生成出来る。古来より知られているゼーベック効果による熱電発電では、半導体

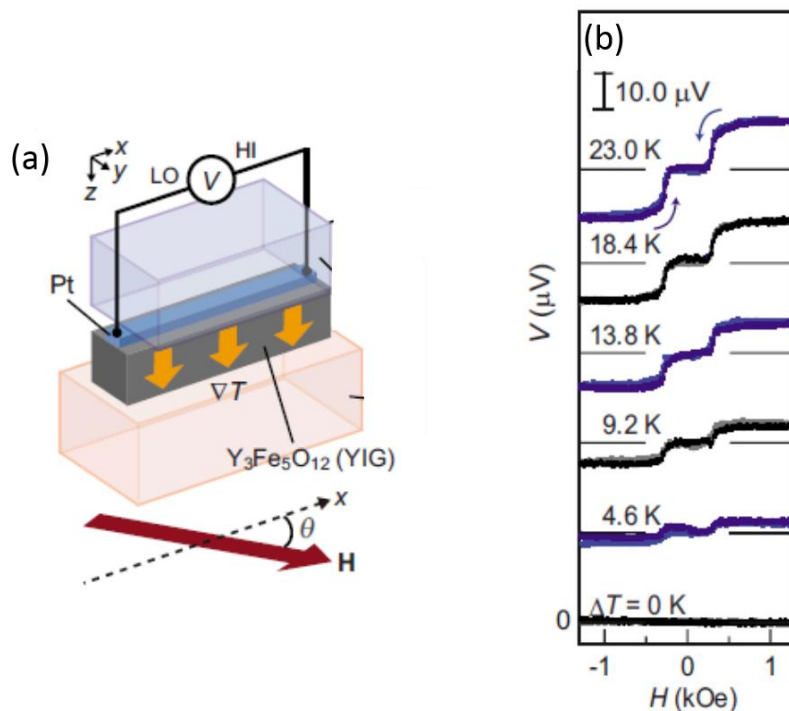


図 1-5 (a)縦型 SSE 測定セットアップ[1-13],
(b)縦型 SSE 測定における検出 ISH 電圧[1-13]

pn 接合の微細化・高密度積載化が必須であったが、SSE において出力される電圧は素子面積に依存するため、微細化が必要無く大幅に製作コストの削減が可能となり、注目を集めている[1-15]。

これまでに上述してきた研究は、スピントロニクスにおいて特に重要なスピン流の関連現象であり、重要な成果である。このように、スピントロニクスは今日学術的観点のみならず、我々の生活に大きく恩恵をもたらす産業の分野まで幅広く研究されている。

1-2 研究背景

1-1 節で述べた SHE はスピン軌道相互作用由来のスピン依存電子散乱が起源でスピン流生成が行われるため、スピン緩和現象と密接な関わりがある。これまでに物質中のスピン緩和は実験・理論の両面から調べてられてきており、非磁性金属中では詳細を後述する Elliott-Yafet(E-Y)機構[1-16, 1-17]によって、半導体中では Dyakonov-Perel(D-P)機構[1-18]によって議論される。E-Y 機構では、電子散乱過程においてある確率でスピン反転が起こるとされており、その確率がスピン反転確率 ε である。そのためスピン緩和時間 τ_{sf} は、 ε および運動量緩和時間 τ_e を用いて $1/\tau_{sf} = \varepsilon/\tau_e$ と表される。また Matthiesen 則により、スピン反転確率は電子散乱の要因である格子振動、不純物の 2 つの項で表される。特に素子

がナノスケールであれば、伝導電子の平均自由行程と同オーダーとなるため、物質表面での電子散乱もスピン緩和に寄与するようになる。よって τ_{sf} は以下の式のように表す事が出来る。

$$\frac{1}{\tau_{sf}} = \frac{1}{\tau_{sf}^{ph}} + \frac{1}{\tau_{sf}^{imp}} + \frac{1}{\tau_{sf}^{surf}} = \frac{\epsilon_{ph}}{\tau_e^{ph}} + \frac{\epsilon_{imp}}{\tau_e^{imp}} + \frac{\epsilon_{surf}}{\tau_e^{surf}} \quad (1.1)$$

ここで **ph**, **imp**, **surf** の添字はそれぞれ格子振動、不純物散乱、表面散乱の寄与であることを表す。格子振動の寄与は極低温において分離する事が可能であるが、表面散乱の寄与の分離は困難である。これは温度が低くなるにつれて伝導電子の平均自由行程が長くなり、表面散乱が起こる回数が増えていくためである。そのため、低温部において、スピン緩和時間 τ_{sf} やスピン拡散長 λ_{sf} といったスピン緩和を特徴付けるパラメータの温度依存性がピーク構造を有する事がスピン輸送の研究から報告されている (図 1-6(a), (b)) [1-19, 1-20]。本来であれば電子散乱の主要因である格子振動の寄与が弱まるため、スピン緩和時間およびスピン拡散長は単調増加をするはずである。

一方で、この表面散乱の寄与を抑制出来たという報告が存在する。Ag 中のスピン輸送において、Ag 上を MgO で覆う事によりその抑制が実現された[1-21]。図 1-7 は MgO で Ag を覆った場合と、そうでない場合を比較した Ag 中のスピン緩和時間の温度依存性を表している。MgO で覆っていない場合の青プロットでは図 1-6 と同様に低温部においてピーク

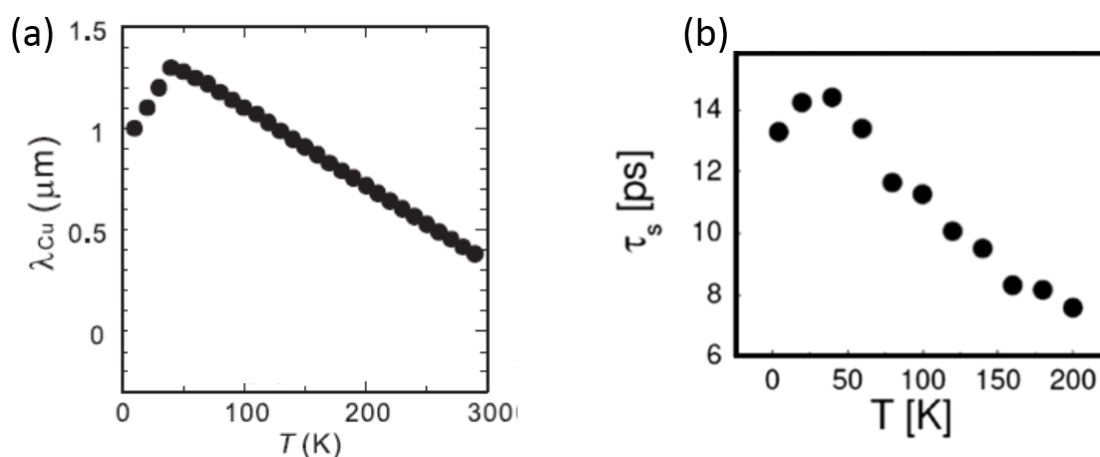


図 1-6 (a)Cu のスピン拡散長の温度依存性 [1-19],
(b)Ag のスピン緩和時間の温度依存性 [1-20]

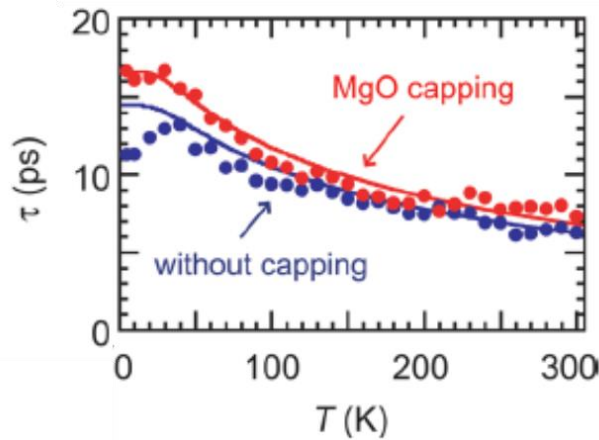


図 1-7 Ag および MgO キャップされた Ag 中のスピン緩和時間の温度依存性 [1-21]

クが存在する。一方、MgO で覆った場合の赤プロットではピークが消えている。この報告では実際に格子振動および不純物散乱の項のみでスピン緩和時間のフィッティングを行っている。具体的には以下の(1.2)および(1.3)式に示すような Drude モデル[1-22]および Bloch-Grüneisen 則[1-23, 1-24]により、スピン緩和時間の温度依存性を解析し、格子振動と不純物散乱の分離を行っている。

$$\frac{1}{\tau_{sf}^{ph}} = \frac{\varepsilon_{ph}}{\tau_e^{ph}} = \frac{\varepsilon_{ph} n e^2 \rho_{ph}}{m_e} \quad (1.2)$$

$$\rho_{ph} = K \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^5 \int_0^{\theta_D/T} \frac{z^5 dz}{(e^z - 1)(1 - e^{-z})} \quad (1.3)$$

ここで、 n は電子数密度、 e は素電荷、 m_e は電子質量、 ρ_{ph} は格子振動による抵抗率、 K は物質定数、 θ_D は Debye 温度である。得られたスピン反転確率は、バルク Ag の伝導電子スピン共鳴法により測定された値と良い一致を示す事が確認された[1-25]。この結果は Ag/MgO 界面でスピン緩和が抑制された事を示している。本来、物質固有のスピン軌道相互作用や格子振動によってスピン緩和が特徴付けられているが、物質表面あるいは界面に限っては、その物質と酸化物の組み合わせによってスピン緩和を変化させられる事をこの結果は示唆している。このような観点から、我々が選択的にスピン緩和強度を制御できる可能性が存在する。スピン緩和はスピン依存電子散乱と密接な関係にあるため、その散乱が起源で現れる前述した SHE とも関わりが深い。よって強いスピン緩和を利用する事によって、界面系におけるスピン流生成および検出の研究へ展開も可能となる事が考えられる。

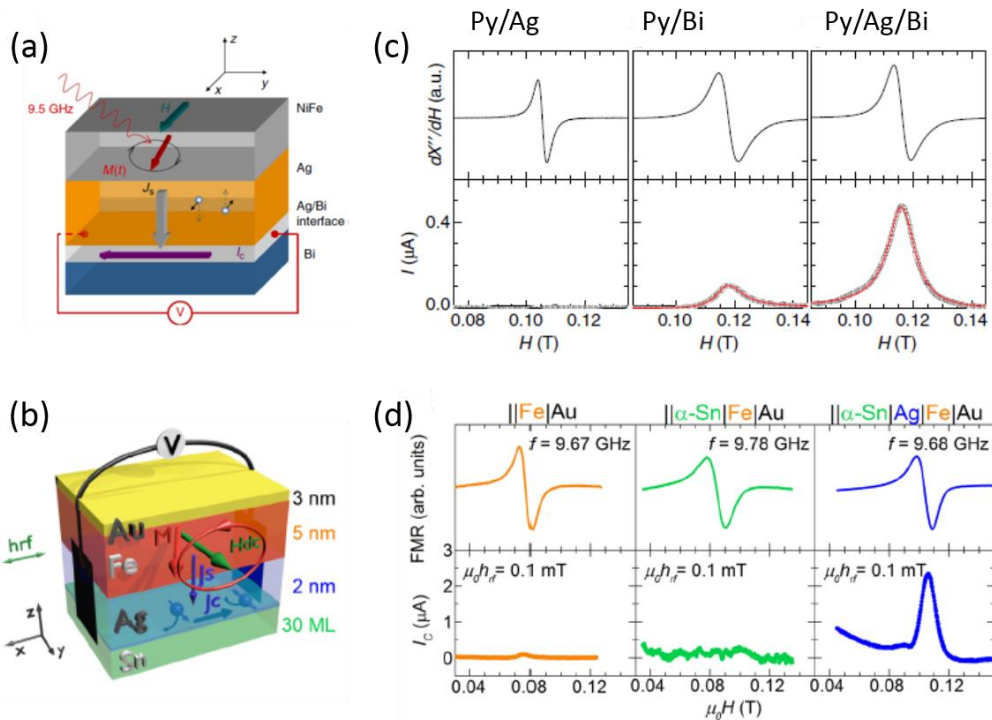


図 1-8 (a)Rashba 界面 Ag/Bi の場合、(b)トポロジカル絶縁体 α -Sn の場合のスピンプンピング測定によるスピンの流-電流変換の様子。(c)Py/Ag, Py/Bi, Py/Ag/Bi の場合、(d)Fe/Au, α -Sn/Fe/Au, α -Sn/Ag/Fe/Au の場合の検出 FMR スペクトル及び電流 [1-26, 1-27]

近年、本研究で扱う非磁性金属/酸化物界面のような 2 次元系と類似した系である Rashba 界面系やトポロジカル絶縁体の表面状態といった 2 次元電子系が舞台となるスピンの流-電流相互変換現象が盛んに研究されている。例えば図 1-8 に示すように、Rashba 系では Ag/Bi 界面 (図 1-8(a)) [1-26]、トポロジカル絶縁体では α -Sn (図 1-8(b)) [1-27]がある。図 1-8(c)は Ag/Bi 界面がある際に非常に大きな電流が生成されている事が分かる。また、図 1-8(d)では α -Sn のトポロジカル表面状態が強磁性体の近接効果により壊されない場合に相当する α -Sn/Ag/Fe/Au の時、明瞭な電流信号が観測されている事が示されている。

これは 2-3 節で後述するように Edelstein 効果 (正確には逆 Edelstein 効果) と呼ばれている[1-28, 1-29]。1-1 節で前述したように、これまでのスピンの流物性や応用研究は、バルク中の電流-スピンの流変換である SHE や、この効果を利用したスピンの流誘起磁化反転など様々な研究が成されてきた[1-30]。これらはバルク中のスピンの軌道相互作用由来の物性現象である事から物質固有値に依存している。一方、本研究で着目する金属/酸化物界面は、それらの組み合わせによって異なる界面が形成可能である。スピンの伝導が行われる金属層は同じであっても金属層上部に接合する酸化物の種類によってスピンの緩和が変化するので、界面の電子状態を変化させている事を示唆している。つまり、異なるスピンの軌道相

相互作用を有した系を我々が選択的に形成する事が出来る。また、半導体や絶縁体などの高抵抗酸化物を利用する利点として、将来的に電界効果によって外界からスピン軌道相互作用を操作し[1-31]、スピン流・電流変換現象を変調出来る可能性もある。このような研究背景から、様々な興味深い点を内包した本研究テーマを選択した。

1-3 研究目的

1-2節で述べたように、金属/酸化物界面では、酸化物の種類によって界面スピン緩和の変調効果が期待されるので、まず界面で引き起こされるスピン緩和現象を理解する。

特に大きなスピン緩和が発現する界面系では、スピントロニクスにおいて重要なスピン流生成および検出への利用を積極的に行うため、スピン流・電流相互変換現象の研究に取り組み基礎物性を明らかにする。

1-4 本論文の構成

第1章は、本学位論文の序論に相当し、当該研究領域であるスピントロニクスの歴史的背景を述べた。また本研究の背景に当たる研究の紹介を行い、研究の目的を述べた。

第2章では、本研究の基礎理論について記述する。具体的には非磁性金属中のスピン輸送に関する理論、そのスピン緩和を特徴づける Elliott-Yafet 機構について述べる。また前述した非磁性金属/酸化物界面の研究から、ある界面系ではスピン緩和が増強される事が分かった。これは Rashba 効果起因と考えられるため、この効果に関する基礎理論について解説する。更にスピン緩和の増強効果の発展的研究として、Rashba 効果を利用したスピン流・電流相互変換に関する研究にも取り組んだ。この研究は近年、現象論的な理論説明がある程度成されるようになってきており、研究結果を解釈する上で有用であるため、相互変換の関係性についても紹介していく。

第3章では素子作製手法、測定手法について述べる。成膜、細線作製を詳細に述べ、本研究で行ったスピン輸送を調べる非局所スピン注入法をはじめ、スピンポンピング法など様々な測定手法を述べる。

第4章からは各実験結果を示していく。本章では非磁性金属と様々な酸化物界面でのスピン緩和特性を調べた。非局所スピン蓄積信号、スピン拡散長、界面スピン反転確率の算出を行っている。この結果から非磁性金属/ビスマス酸化物界面ではスピン緩和が増強される事が分かり、その起源について言及する。

第5章では第4章で得られた非磁性金属/ビスマス酸化物界面でのスピン緩和の増強効果に基づき、スピン流・電流変換現象の研究に取り組んだ。スピンポンピング法により検出した電圧信号や非磁性金属膜厚の依存性から本変換現象の物理機構解明に取り組んだ。また本現象が Rashba 効果起源である事を明確にするために、角度分解高電子分光測定(Angle Resolved Photoemission Spectroscopy: ARPES)を用いて非磁性金属 Cu/BiO_x 界面におけ

るエネルギー分散の観測を行ったのでその結果についても示す。

第 6 章では、第 5 章で行った実験の正変換に相当する電流-スピン流変換現象の研究を示す。また得られた正変換の変換係数に基づいて、界面で生成されるスピン蓄積の脱出率や、更に界面スピン緩和率について議論する。

第 7 章では非磁性金属/ビスマス酸化物界面を用いた関連実験を紹介する。強磁性金属/非磁性金属/ビスマス酸化物の 3 層膜における異常ホール効果を示す。この異常ホール効果に関しては、非磁性金属/ビスマス酸化物界面を構成する非磁性金属の種類 (Cu or Ag) によって異常ホール角の符号が反転する事が分かり、符号反転に関する議論を行う。

第 8 章では本学位論文の総括を行い、今後の展望について述べる。

第 2 章

基礎理論

2-1 スピン輸送理論

面内スピバルブ素子を用いたスピン注入およびスピン検出

まず始めに物質中のスピン緩和を調べるためのスピン輸送測定系を図 2-1(a)に示す。これは面内スピバルブ素子と呼ばれ、ナノスケールの 2 本の強磁性体細線および橋渡しされた非磁性体細線で構成される[2-1, 2-2]。この素子で非局所測定を行うと、スピン注入およびスピン検出が行え、非磁性体中のスピン輸送特性を調べる事が可能である。理論的な詳細は後述するが、簡単に行っている事を述べる。例えば図 2-1(b)に示すような左部の強磁性体/非磁性体接合に電流を流すと、強磁性体からスピン偏極電流が非磁性体中に流れ込む。その際、接合界面ではアップスピン電子とダウンスピン電子の状態密度に偏りがあるためにスピン蓄積が生成される(図 2-1(c))。このスピン蓄積は非平衡量であるため、非磁性体中を拡散していく。スピン蓄積の空間勾配がスピン流に相当する。図 2-1(b)中の強磁性体電極を境に左側の非磁性体中では電荷を伴うためスピン偏極電流が流れるが、右側の非局所部ではスピン流のみが流れることになる。スピン流は非磁性体中を拡散流として伝搬し、片一

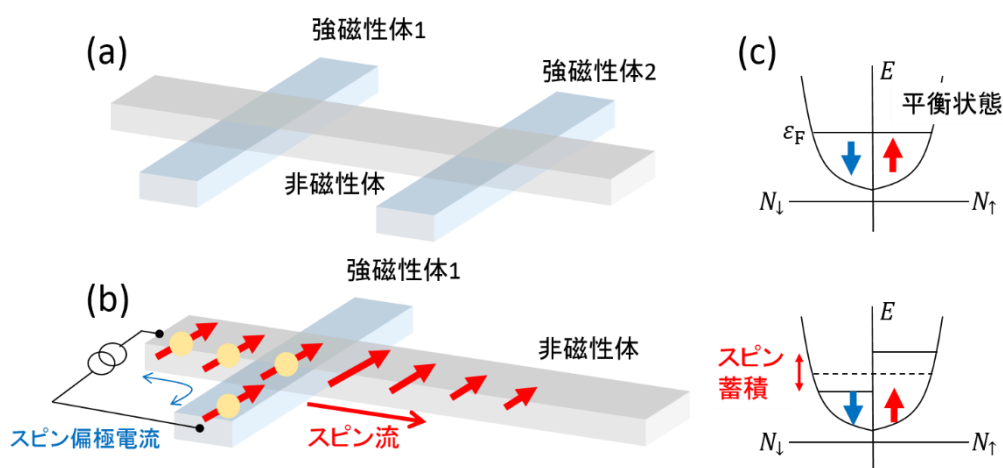


図 2-1(a)面内スピバルブ素子, (b)強磁性体/非磁性体接合間におけるスピン偏極電流およびスピン流注入の様子, (c)非磁性体中のアップスピン, ダウンスピン電子の状態密度およびスピン蓄積

方右部の強磁性体/非磁性体接合に到達する。その際検出される電圧は減衰したスピン蓄積量に相当する。つまりスピン流が伝搬する 2 つの強磁性体電極間の距離依存性を調べる事により、非磁性体中のスピン緩和が議論出来る[2-3]。以下にスピン拡散、スピン蓄積、スピン検出の基礎理論を述べる。

スピン拡散

スピン流は前述した通り、非磁性体中に生じた非平衡なスピン蓄積量の空間勾配に比例し、スピン依存伝導によって記述される。スピン流はアップスピン、ダウンスピンに関して異なる伝導チャネルを用いる 2 電流モデルで記述される。これは強磁性体の電気伝導を説明するために Mott により初めて提案された[2-4]。まず、以下のようなスピンチャネル σ の時の、電流密度 j_σ を考える (σ :アップスピン, あるいはダウンスピン)。

$$\mathbf{j}_\sigma = \sigma_\sigma \mathbf{E} - eD_\sigma \nabla \delta n_\sigma \quad (2.1)$$

ここで、1 項目は電場によるドリフト電流密度、2 項目は電子密度 n_σ の定常状態からの変位 δn_σ による拡散電流密度を表している。また σ_σ, D_σ はそれぞれスピンチャネル σ における電気伝導度、拡散係数である。この電流密度 j_σ を電場と電位の関係 $\mathbf{E} = -\nabla\phi$ 、Einstein の関係式 $\sigma_\sigma = e^2 N_\sigma D_\sigma$ および $\delta n_\sigma = N_\sigma \delta \varepsilon_\sigma$ により(2.2)式のように変形する。

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_\sigma &= -\frac{\sigma_\sigma}{e} \left[e \nabla \phi + \frac{\nabla \delta n_\sigma}{N_\sigma(\varepsilon_F)} \right] \\ &= -\frac{\sigma_\sigma}{e} [e \nabla \phi + \nabla \delta \varepsilon_\sigma] \end{aligned} \quad (2.2)$$

ここで N は Fermi 準位における状態密度、 $\delta \varepsilon_\sigma$ はスピン蓄積量であり、電気化学ポテンシャル $\mu_\sigma = e\phi + \varepsilon_\sigma$ を定義する事により、電流密度は、

$$\mathbf{j}_\sigma = -\frac{\sigma_\sigma}{e} \nabla \mu_\sigma \quad (2.3)$$

となる。この電流密度の表式を用いて、電荷およびスピンの連続の方程式を考えると、

$$\nabla \cdot (\mathbf{j}_\uparrow + \mathbf{j}_\downarrow) = 0 \quad (2.4)$$

$$\nabla \cdot (\mathbf{j}_\uparrow - \mathbf{j}_\downarrow) = -e \left(\frac{\delta n_\uparrow}{\tau_{\uparrow\downarrow}} - \frac{\delta n_\downarrow}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \right) \quad (2.5)$$

となる。また Fermi 準位における平衡条件 $N_{\uparrow}/\tau_{\uparrow\downarrow} = N_{\downarrow}/\tau_{\downarrow\uparrow}$ を用いることにより、

$$\nabla^2(\sigma_{\uparrow}\mu_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow}\mu_{\downarrow}) = 0 \quad (2.6)$$

$$\nabla^2(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) = \frac{1}{\lambda_{sf}^2}(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) \quad (2.7)$$

となる。ここで、 $\lambda_{sf} = \sqrt{D\tau_{sf}}$ であり、これをスピン拡散長と呼ぶ。また、

$$\frac{1}{\tau_{sf}} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_{\uparrow\downarrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \right) \quad (2.8)$$

$$\frac{1}{D} = \frac{1}{D_{\uparrow}} \frac{N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} + \frac{1}{D_{\downarrow}} \frac{N_{\uparrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} \quad (2.9)$$

である。スピン拡散は(2.4)式および(2.5)式を基礎方程式として議論される[2-5]。

スピン蓄積

次に面内スピンバルブを用いて行うスピン注入、つまりスピン蓄積の特徴を明らかにするために、図 2-2(a) のような強磁性体/非磁性体(F/N)の接合系について、(2.5)式を解く[2-5]。簡単のために、界面におけるスピン緩和などは起こらないものとする。(2.3)式を満たすよう注意すると、非磁性体 N、強磁性体 F に関して以下のような解を得る。

$$\mu_N^{\sigma} = \bar{\mu}_N + \sigma \left(a_1 e^{-|x|/\lambda_{sf}^N} - a_2 e^{-|x-L|/\lambda_{sf}^N} \right) \quad (2.10)$$

$$\mu_{F1}^{\sigma} = \bar{\mu}_{F1} + \sigma b_1 \frac{\sigma_{F1}}{\sigma_{F1}} e^{-z/\lambda_{sf}^F} \quad (2.11)$$

ここで $x < 0$ において、 $\bar{\mu}_N = -(eI/\sigma_N A_J)x$ であり、 $x > 0$ において、 $\bar{\mu}_N = 0$ である。また $z > 0$ において、 $\bar{\mu}_F = -(eI/\sigma_N A_J)z + eV_1$ であり、 $z < 0$ において、 $\bar{\mu}_F = 0$ である。また $\lambda_{sf}^N, \lambda_{sf}^F, A_J$ はそれぞれ、非磁性体、強磁性体のスピン拡散長、接合間の面積である。更に(2.10)式の右辺第 2 項の係数 σ はスピンのアップの時+、ダウンの時-とする。 a_1, a_2, b_1 は境界条件により決定される。これにより、図 2-2(b) のような概形を得ることが出来る。強磁性体からスピン偏極電流が流れこむことによって非磁性体では $x = 0$ においてスピン蓄積 $\Delta\mu (= \mu^{\uparrow} - \mu^{\downarrow})$ が生じる。 $x < 0$ の領域ではバイアスがかかっているためスピン偏極電流が流れる一方、 $x > 0$ の領域では純粋なスピン蓄積量の減衰のみが起こり、図 2-2(b) のようにスピン流 ($j_S = j_N^{\uparrow} - j_N^{\downarrow}$) が流れる。

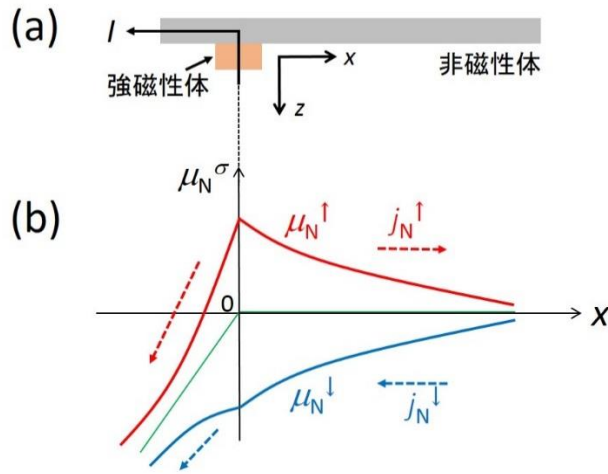


図 2-2 (a)F/N 接合の断面図 (b) 非磁性体中の各 σ の電気化学ポテンシャル

スピン蓄積の検出

面内スピバルブ素子では、スピン注入を行った接合のもう片方の接合においてスピン蓄積量の検出を行う。具体的には強磁性体/非磁性体の接合間電圧を測定することにより検出する。スピン流はスピン蓄積の拡散現象により発生し、非磁性体中を拡散してきたスピン蓄積は強磁性体中に吸収される。強磁性体中では Fermi 準位近傍の状態密度がスピンに依存するので、電気化学ポテンシャルは図 2-3(a)の F2 中で、非対称に緩和する[2-5]。検出側強磁性体端子の磁化がスピン蓄積に対応するスピン（すなわち注入強磁性体端子の磁化に対応するスピン）と反平行な場合、平行な場合と比較して図 2-3(a)の F2 中の点線部のように強磁性体中で緩和した化学ポテンシャルは異なるエネルギー値をとる。つまり図 2-3(b)のように、外部から強磁性体電極に沿う方向に磁場を掃引し、2つの強磁性体の磁化方向を平行、反平行の2状態を作れば、スピン信号 ΔR_S を見積もることが可能となる[2-1,2-2,2-6]。

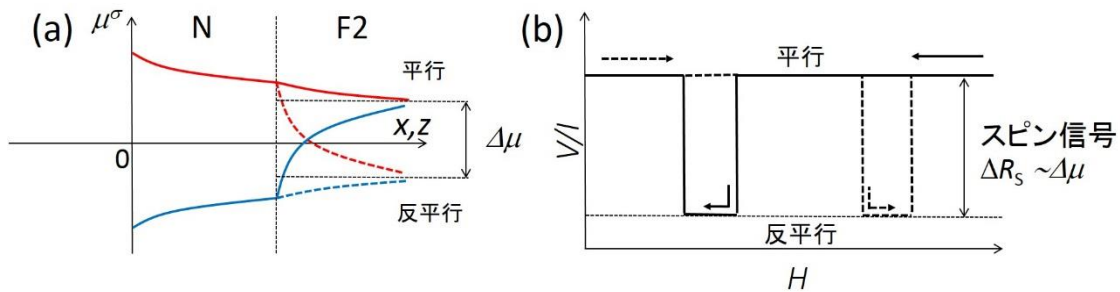


図 2-3 (a) 非磁性体および強磁性体中の各 σ の電気化学ポテンシャル (b) 検出スピン信号の概形

またスピン信号の大きさ ΔR_S であるが、前回と同様に、N/F2 界面での(2.5)式を解くことにより導出が可能である[2-5]。得られた電気化学ポテンシャルの解の未知係数を境界条件で定めることによって、

$$\Delta R_S = \frac{4R_S^N \left[\frac{P_I}{1-P_I^2} \left(\frac{R_I}{R_S^N} \right) + \frac{P_F}{1-P_F^2} \left(\frac{R_S^F}{R_S^N} \right) \right]^2 e^{-L/\lambda_{sf}^N}}{\left[1 + \frac{2}{1-P_I^2} \left(\frac{R_I}{R_S^N} \right) + \frac{2}{1-P_F^2} \left(\frac{R_S^F}{R_S^N} \right) \right]^2 - e^{-2L/\lambda_{sf}^N}} \quad (2.12)$$

となる。ここで、 P_I, R_I, P_F, L はそれぞれ接合界面のスピン偏極率、接合界面抵抗、強磁性体のスピン偏極率、2つの強磁性体間距離である。 R_S^N, R_S^F はそれぞれ非磁性体と強磁性体のスピン抵抗と呼ばれるパラメータで、

$$R_S \equiv \frac{1}{\sigma} \frac{\lambda_{sf}}{(1-P^2)A} \quad (2.13)$$

と定義される（ここで、 $\lambda_{sf}, \sigma, P, A$ はそれぞれスピン拡散長、電気伝導度、スピン偏極率、スピン流が流入される界面面積）。物質のスピン吸収のしにくさを表す指標でスピン抵抗と呼ばれる。

(2.12) 式を見ても明らかな通り、スピン信号 ΔR_S は強磁性体間距離 L に依存して減衰していく。従って、スピン信号 ΔR_S の距離依存性を調べることによって、物質中のスピン拡散長 λ_{sf} を算出することができる。

2-2 Elliott-Yafet 機構

2-1 節では非磁性体中のスピン拡散伝導について述べた。このスピン拡散の振る舞いは非磁性体中のスピン緩和機構によって決定される。非磁性体中のスピン緩和は Elliott-Yafet 機構で良く説明される[1-16, 1-17]。物質中にスピン軌道相互作用が存在した場合、伝導電子スピンが格子振動や不純物散乱といった運動量緩和を通じて緩和される事を言及した理論である。今、周期的な結晶中を運動する Bloch 電子[2-7]を考え、更にスピン軌道相互作用も存在すると、ハミルトニアンは以下のように表す事が出来る[1-17]。

$$H = H_0 + H_{\text{soi}} = \frac{p^2}{2m_e} + V + \frac{\hbar}{4m_e^2 c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla V \times \mathbf{p}) \quad (2.14)$$

ここで m_e は自由電子の質量、 V はスピン非依存の周期的結晶ポテンシャル、 c は光速、 \hbar は Dirac 定数、 \mathbf{p} は運動量演算子 ($\mathbf{p} = -i\hbar\nabla$)、 $\boldsymbol{\sigma}$ は Pauli 行列である。この場合、Bloch 波動

関数はもはや σ_z の固有状態ではなく、アップスピン状態 $|\uparrow\rangle$ 、ダウンスピン状態 $|\downarrow\rangle$ の混合状態となり、以下のように表される。

$$|\Psi_{\mathbf{k}}^{\uparrow}(\mathbf{r})\rangle = [a_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|\uparrow\rangle + b_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})|\downarrow\rangle]e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (2.15)$$

$$|\Psi_{\mathbf{k}}^{\downarrow}(\mathbf{r})\rangle = [a_{-\mathbf{k}}^*(\mathbf{r})|\downarrow\rangle - b_{-\mathbf{k}}^*(\mathbf{r})|\uparrow\rangle]e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (2.16)$$

ここで \mathbf{k} は波数ベクトルを表し、空間および時間反転対称性を考慮した。通常、スピン軌道相互作用によるエネルギー分裂幅 λ_{SOI} は当該のバンドから近隣のバンドまでのエネルギー差 ΔE に比べ非常に小さいため、 $|a| \approx 1$ 、 $|b| = \lambda_{\text{SOI}}/\Delta E \ll 1$ である。よって上述したハミルトニアン(2.14)式においてスピン軌道相互作用 $H_{\text{SOI}} \propto \boldsymbol{\sigma} \cdot (\nabla V \times \mathbf{k})$ を摂動として加える事が出来、アップスピンからダウンスピンの遷移確率を Fermi の黄金律により算出する事が可能である。アップスピン状態 $|\uparrow\rangle$ からアップスピン状態 $|\uparrow\rangle$ のスピン保存散乱確率を $P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\uparrow}$ 、アップスピン状態 $|\uparrow\rangle$ からダウンスピン状態 $|\downarrow\rangle$ のスピン反転散乱確率を $P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\downarrow}$ とすると、不純物ポテンシャルを $V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}$ とすると、

$$\begin{aligned} P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\uparrow} &= \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \Psi_{\mathbf{k}'}^{\uparrow} | V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} | \Psi_{\mathbf{k}}^{\uparrow} \rangle|^2 \\ &= \frac{2\pi}{\hbar} |a_{\mathbf{k}'}^* e^{-i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}} \langle \uparrow | V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} a_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} | \uparrow \rangle - b_{\mathbf{k}'}^* e^{-i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}} \langle \downarrow | V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} b_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} | \downarrow \rangle|^2 \\ &\approx |a|^4 \end{aligned} \quad (2.17)$$

$$\begin{aligned} P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\downarrow} &= \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \Psi_{\mathbf{k}'}^{\downarrow} | V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} | \Psi_{\mathbf{k}}^{\uparrow} \rangle|^2 \\ &= \frac{2\pi}{\hbar} |a_{-\mathbf{k}'} e^{-i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}} \langle \downarrow | V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} b_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} | \downarrow \rangle - b_{-\mathbf{k}'} e^{-i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{r}} \langle \uparrow | V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} a_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} | \uparrow \rangle|^2 \\ &\approx |a|^2 |b|^2 \end{aligned} \quad (2.18)$$

となる。

よって正味のスピン反転確率 ε は、

$$\varepsilon = \frac{P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\downarrow}}{P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\uparrow}} \approx \frac{|b|^2}{|a|^2} = \left(\frac{\lambda_{\text{SOI}}}{\Delta E} \right)^2 \quad (2.19)$$

となる。ここでスピン保存散乱確率は $P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\uparrow}$ は言い換えると運動量緩和確率に相当する。つ

まり、 $P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\uparrow} = 1/\tau_e$ である (τ_e : 運動量緩和時間)。同様にスピン反転散乱確率 $P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\uparrow\downarrow} = 1/\tau_{sf}$ (τ_{sf} : スピン緩和時間) であるので、以下のような関係が成り立つ[1-21]。

$$\frac{1}{\tau_{sf}} = \varepsilon \times \frac{1}{\tau_e} \quad (2.20)$$

よって非磁性金属中のスピン緩和を特徴づけるスピン反転確率は、スピン緩和時間および運動量緩和時間の比で決定する事が出来る。またそれらは上述した面内スピンバルブを用いて決定するスピン拡散長および素子抵抗率から算出が可能のため、実験的な議論を行うことが出来る。

2-3 Rashba 効果

Rashba 効果[2-8]は、半導体接合界面をはじめ、金属や半導体表面、金属/金属接合界面における表面合金系などの空間反転対称性が破れた様々な系で発現する事が報告されている[2-9, 2-10, 2-11]。通常、空間反転対称性を有する結晶内部では、その並進対称性から、

$$E(k, \uparrow) = E(-k, \uparrow) \quad (2.21)$$

である。ここで E は電子のエネルギー準位を表し、波数 k とスピン状態 $\sigma = \uparrow$ or \downarrow の関数である。更に磁場などの外場の影響がない時間反転対称性が守られた系では、

$$E(k, \uparrow) = E(-k, \downarrow) \quad (2.22)$$

となる。これは Kramers 縮退[2-12]として知られている。これらの関係から、

$$E(k, \uparrow) = E(k, \downarrow) \quad (2.23)$$

が成り立つ。つまり、空間反転対称性、および時間反転対称性が守られた系ではアップスピン、ダウンスピン状態は同じ波数（運動量）において同エネルギーを取るため縮退している。一方上述した空間反転対称性が破れた系では(2.21)式が成立しないため、

$$E(k, \uparrow) \neq E(k, \downarrow) \quad (2.24)$$

であり、同じ波数であっても、アップスピン状態とダウンスピン状態のエネルギーが異なるスピン分裂が生じる事となる。これが Rashba 効果の概要である。Rashba 効果は、空間反転対称性の破れた系におけるポテンシャル中を運動中の電子が局所有効磁場を感じる

効果であると理解することが出来る。Rashba 効果も一種のスピン軌道相互作用であり、(2.14)式に示したスピン軌道相互作用項 H_{SOI} で説明される。通常、空間反転対称性の守られた系ではポテンシャル V の対称性から H_{SOI} の平均値はゼロとなる。一方その対称性が破れると $\nabla V \times \mathbf{p}$ の有効磁場が発現し、スピン軌道相互作用が生じる。Rashba 効果は基本的に2次元電子系において、空間反転対称性の破れにより面直電場が作用するため、 $\nabla V = (0, 0, E_z)$ である。よって(2.14)式のスピン軌道相互作用 H_{SOI} は Rashba 型スピン軌道相互作用 H_R として次のように表せる[2-13]。

$$H_R = \alpha_R(\mathbf{k} \times \mathbf{z}) \cdot \boldsymbol{\sigma} \quad (2.25)$$

α_R は Rashba 係数と呼ばれ、スピン分裂強度を表すパラメータである。更にエネルギー分散関係は次のように表される。

$$E(k) = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} k^2 \pm \frac{\hbar^2 E_z}{4m_e^* c^2} k = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} k^2 \pm \alpha_R k \quad (2.26)$$

Rashba 型スピン軌道相互作用が無い場合は、Kramers 縮退により図 2-4(a)に示すように自由電子のエネルギー分散関係となる。一方でその相互作用が有る場合では(2.24)式から

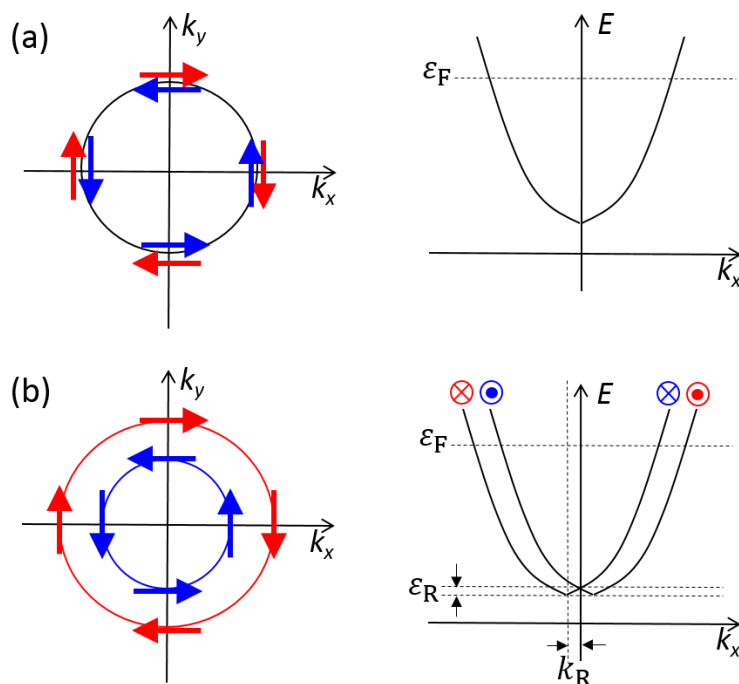


図 2-4(a)Rashba 型スピン軌道相互作用の無い場合、(b)有る場合における Fermi 円およびエネルギー分散関係

も明らかなように図 2-4(b)に示すような波数方向にスピン分裂したエネルギー分散となる。(2.26)式中の $\alpha_R = \hbar^2 E_z / 4m^2 c^2$ を用いて自由電子モデルの Rashba 係数を計算する事が出来る。今、金属表面（金属/真空界面）において Shockley 状態による表面状態が存在し、2次元電子系が存在する系を考える。金属表面の真空に対するポテンシャル障壁は、sp バンドによるポテンシャル井戸により形成され、例えば Cu(100)表面においては以下の図 2-5 に示すように数 eV になることが知られている [2-14]。

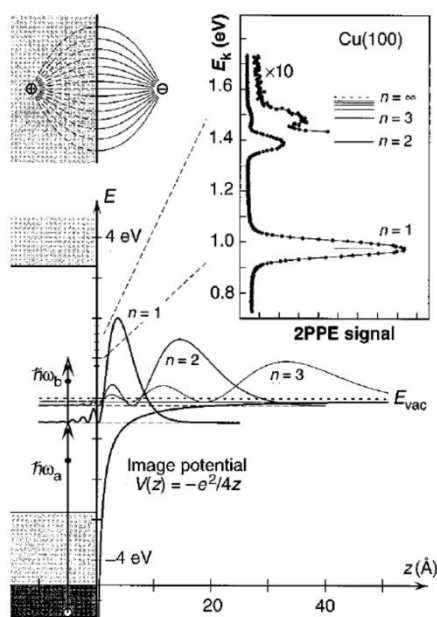


図 2-5 Cu(100)表面におけるポテンシャル障壁（仕事関数）および鏡映力が作る引力ポテンシャル [2-14]

このポテンシャルは鏡映法により、仮想電荷を仮定することにより、 $V(z) = -e^2/4z$ となる。表面有効電場は $E_z = \partial V / \partial z$ なので、 α_R は 10^{-6} eVÅ 程度となる。これは Fermi 波数 $k_F = 1 \text{ \AA}^{-1}$ であってもスピン分裂幅は数 μeV 程度となる。実際に金属表面で報告されているスピン分裂幅は、Au(111)の場合では 110 meV [2-15] となり、5 桁も大きくなる。このように自由電子モデルでは Rashba 効果の大きさを説明する事は出来ない。この大きな Rashba 係数は、原子のスピン軌道相互作用および原子核近傍の波動関数の面直方向に対する異方性が起源となって現れる。Oguchi グループはフルポテンシャル第一原理計算を用い、様々な金属表面系の Rashba 効果の計算を行った [2-16]。まず、Oguchi グループは (2.14) 式中のスピン軌道相互作用項 H_{SOI} を以下のように導入した。

$$H_{\text{SOI}} = \frac{2}{c^2} [(\nabla V \times \mathbf{p}_{\parallel}) \cdot \boldsymbol{\sigma} + (\nabla V \times \mathbf{p}_{\perp}) \cdot \boldsymbol{\sigma}] \quad (2.27)$$

ここで $\mathbf{p}_{\parallel}, \mathbf{p}_{\perp}$ は表面平行運動量演算子、表面垂直運動量演算子を表す。また原子核近傍の波動関数は、

$$\Psi_{\mathbf{k}_{\parallel}}(r) = \exp\{i(k_x x + k_y y)\} \phi(z) \quad (2.28)$$

とし、Rashba スピン分裂幅を以下のように表した[2-16]。

$$\varepsilon_R = \langle \Psi_{\mathbf{k}_{\parallel}} | H_{\text{SOI}} | \Psi_{\mathbf{k}_{\parallel}} \rangle = |\mathbf{k}_{\parallel}| \int dr \frac{2}{c^2} \frac{\partial V}{\partial z} |\Psi_{\mathbf{k}_{\parallel}}|^2 \quad (2.29)$$

この式を見ると、表面有効電場に加え、波動関数の寄与も重要である事が分かる。電子の存在確率 $|\Psi_{\mathbf{k}_{\parallel}}|^2$ が最大となるためには z 軸に沿って非対称となる必要がある。Oguchi グループでは前述した第一原理計算により、Au(111)表面の電子存在確率 $|\Psi_{\mathbf{k}_{\parallel}}|^2$ およびスピン分裂幅 ε_R を図 2-6(a), (b)のように得た。 z は面直方向の距離であり、 $z = 0$ は原子核中心である。図 2-6(a)を見ても明らかなように、原子核近傍では $|\Psi_{\mathbf{k}_{\parallel}}|^2$ が非対称であり、その結果 ε_R が大きくなっている事が分かる。この理論計算によるスピン分裂幅は ARPES による実験報告値と良く一致する事が分かった。このモデルの主張する重要な事は、単純に原子のスピン軌道相互作用のみで Rashba 効果の大きさが決まるのではなく、同元素であっても、配位などの結晶構造や結合の種類によって波動関数の異方性が変化すれば、異なる Rashba 分裂が発現する事である。非磁性金属 Ag(111)や Cu(111)上に Bi を吸着すると、同界面で表面合金化し、巨大な Rashba 効果が発現する事が近年報告されている[2-11, 2-17]。図 2-7(a)は Cu(111)/Bi 表面合金における電子存在確率であり[2-18]、図 2-6(a)に示した Au(111)表面[2-15]のように z 軸方向に沿って非対称性がある事が分かる。更に図 2-7(b)は 2 次元図になっており、Cu(111)側に Bi 原子核周りの電子雲の偏りが出来ている事が見

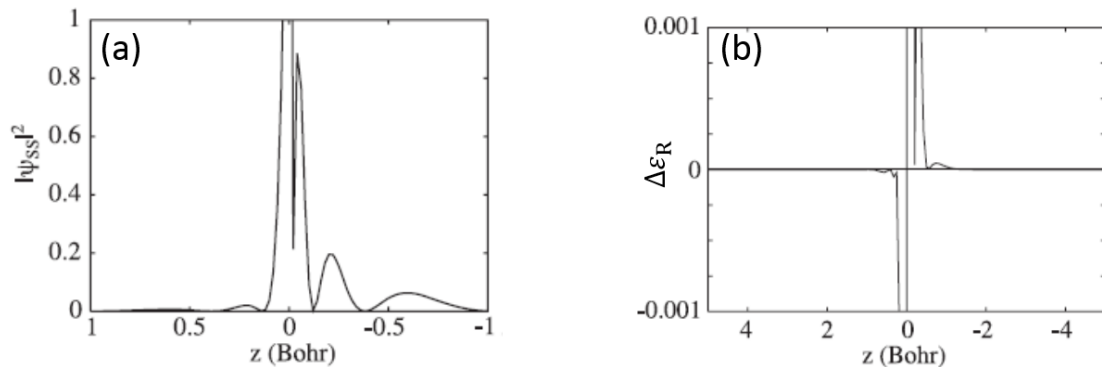


図 2-6 Au(111)表面における(a)電子存在確率 $|\Psi_{\mathbf{k}_{\parallel}}|^2$ およびスピン分裂幅 $\Delta \varepsilon_R$ の面直距離依存性[2-16]

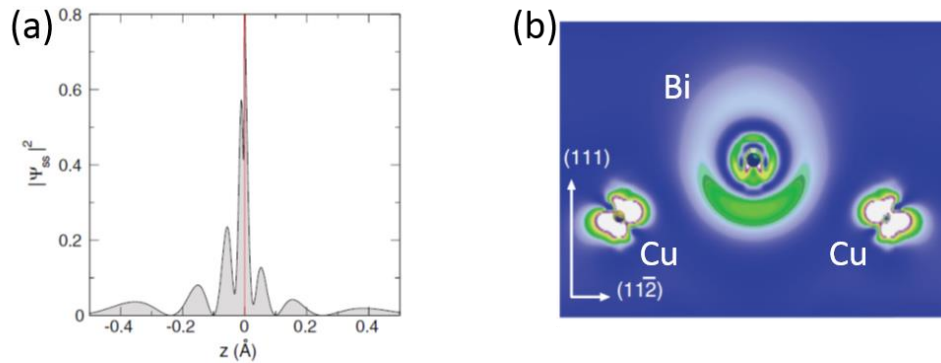


図 2-7(a)Cu(111)/Bi 表面合金における電子存在確率 $|\Psi_{\mathbf{k}_{ij}}|^2$ および(110)断面における 2 次元電荷密度分布, 中心原子は Bi, 左右の原子は Cu である[2-18]。

て取れる。これが巨大な Rashba 効果の起源であり、Oguchi グループの(2.27)式によって良く説明される。

このように、Rashba 効果は様々な表面および界面系で発現する事が報告されており、その界面を構成する物質の組み合わせによって Rashba 効果の大きさも様々な値を取り得るのである。

2-4 Edelstein 効果

この節では本学位論文における主要項目である Edelstein 効果について述べる。4 章の研究結果で後述するように、本研究対象である非磁性金属/ビスマス酸化物界面では Rashba 効果が発現していると考えられる。Edelstein 効果はそのような Rashba 系において、電

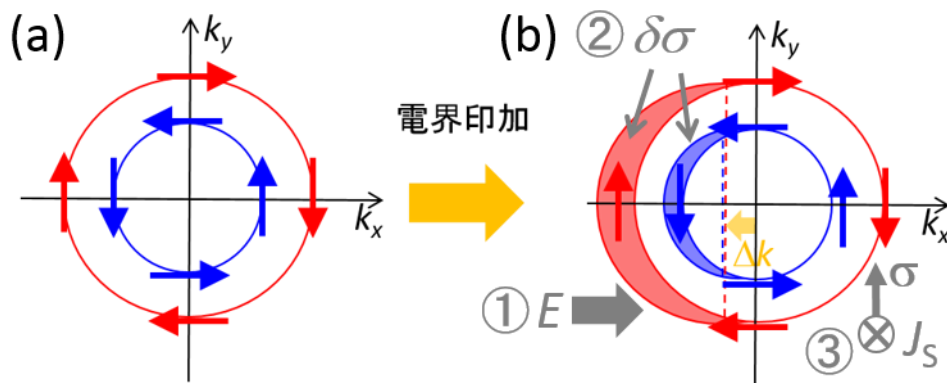


図 2-8 (a) 運動量空間内の Fermi 準位における Rashba スピン分裂, (b) 電界印加後の Fermi 面シフトの様子. ①電界印加によって Fermi 面シフト, ②その際, スピン分裂によってスピン蓄積が生じる. ③紙面奥手方向に存在する金属伝導層にスピン流が流れる.

流を流した際に生じる非平衡スピン蓄積が Rashba 系に隣接する金属伝導層にスピン流として流れる効果を指す。例えば図 2-8(a)に示すように、Fermi 準位における Rashba 分裂を考える。今、 k_x 方向に電界 E を印加する事を考えると、Fermi 面は $-k_x$ 方向にシフトする。その際、系にスピン分裂が生じている事により、アップスピンおよびダウンスピンの非平衡スピン蓄積 $\delta\sigma_\uparrow, \delta\sigma_\downarrow$ が生成される。外円がシフトした事により生成されるアップスピン蓄積の面積が多いため、正味アップスピン偏極した非平衡スピン蓄積が生じることになる。その後、Rashba 系に隣接する金属伝導層にスピン流が流れ込む (図 2-8(b))。これは 1-1 節で述べたバルク金属中で起こる電流-スピン流変換であるスピンホール効果とよく類似した効果であり、Rashba 系[2-19]やトポロジカル絶縁体表面状態[2-20, 2-21]といった系で起こる事が知られている。電界印加時に生成される非平衡スピン蓄積は、Boltzmann 方程式をもとに Miron, Gambardella らによって導出されている[2-22]。以下にそれを示していく。

2-3 節で示したように、Rashba ハミルトニアンは(2.25)式で表される事が知られており、自由電子モデルを考えた場合、固有値は(2.26)式となる。また固有状態は(2.30)式でえられる。

$$\psi_{\pm, \mathbf{k}} = \frac{e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}}{\sqrt{2A}} \begin{pmatrix} 1 \\ \mp ie^{i\xi_{\mathbf{k}}} \end{pmatrix} \quad (2.30)$$

ここで、 $\mathbf{k} = k(\cos \xi, \sin \xi, 0)$ であり、 A は 2 次元電子系の面積を指す。また添字 \pm はスピン偏極方向のアップとダウンに対応している。この固有状態により、スピンの期待値は以下のように求める事が出来る。

$$\langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_{\pm, k} = \langle \psi_{\pm, k} | \boldsymbol{\sigma} | \psi_{\pm, k} \rangle = \frac{1}{k} \begin{pmatrix} \pm k_y \\ \mp k_x \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \pm \sin \xi \\ \mp \cos \xi \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.31)$$

次にアップスピン、ダウンスピン偏極した際の Fermi 波数 $k_{F\pm}$ を $\varepsilon_{-, k_{F-}} = \varepsilon_{+, k_{F+}} = \varepsilon_F$ にもとづいて計算すると、

$$k_{F\pm} \approx k_F + \frac{m_e^* \alpha_R}{\hbar^2} = k_F \left(1 \mp \frac{m_e^* \alpha_R}{k_F \hbar^2} \right) \equiv k_F (1 \mp \beta) \quad (2.32)$$

となる。このようにアップスピン偏極かダウンスピン偏極かによって取り得る Fermi 波数に違いが生じる事が Rashba 系の特徴で、これはスピン-運動量ロッキング[2-23, 2-24]と呼ばれている。特に図 2-8(b)に示したように、系に電界が印加されると正味のスピン偏極

が発現する。印加する電界 E および運動量緩和時間 τ_e^\pm を用いて、Fermi 波数のシフト量を $\delta k_\pm = -eE\tau_e^\pm/\hbar$ と表せる。ここで運動量緩和時間の逆数である散乱確率 $1/\tau_e$ は一般的に波数に依存するので、 β の1次まで考えると(2.32)式から $\tau_e^\pm = \tau_e(1 \mp \beta)$ と考えられる。 τ_e はスピン分裂していない通常自由電子の運動量緩和時間を指す。これらの関係をもとに、Boltzmann 方程式から2次元電子系における電流密度の計算を行う。

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_{C\pm} &= -\frac{e}{4\pi^2} \int \mathbf{v}_{\pm,\mathbf{k}} f_{\pm,\mathbf{k}}^{\text{shift}} d\mathbf{k} = -\frac{e}{4\pi^2} \int \left(\frac{\partial f}{\partial \varepsilon}\right) e\tau_e^\pm v_{\pm,\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\pm,\mathbf{k}} \cdot \mathbf{E} d\mathbf{k} \\ &= \frac{1}{4\pi^2} \frac{e^2 \tau_e^\pm}{\hbar} \int_{S_{F\pm}} \frac{\mathbf{v}_{\pm,\mathbf{k}}}{v_{\pm,\mathbf{k}}} \mathbf{v}_{\pm,\mathbf{k}} \cdot \mathbf{E} dS_F \end{aligned} \quad (2.33)$$

ここで $f(\varepsilon)$ はFermi-Dirac 分布関数を表す。 $\mathbf{E} = E\mathbf{x}$ である時、電流密度の x 成分は、

$$j_{C\pm,x} = \frac{e^2 \tau_e^\pm E}{4\pi^2 \hbar} \int_0^{2\pi} v_F \cos^2 \xi k_{F\pm} d\xi = \frac{e^2 E}{4\pi \hbar} v_F k_{F\pm} \tau_e^\pm \quad (2.34)$$

となる。よって正味の電流密度は、

$$j_C = j_{C+} + j_{C-} = \frac{e^2 E}{2\pi \hbar} v_F k_F \tau_e (1 + \beta^2) \quad (2.35)$$

と表される。この電流密度の導出と同様に電界印加により生成される非平衡スピン蓄積も Boltzmann 方程式から導くことができる。(2.31)式により、

$$\begin{aligned} \langle \delta \boldsymbol{\sigma} \rangle_\pm &= \frac{1}{4\pi^2} \int \langle \boldsymbol{\sigma} \rangle_{\pm,\mathbf{k}} f_{\pm,\mathbf{k}}^{\text{shift}} d\mathbf{k} = \frac{1}{4\pi^2} \frac{-e\tau_e^\pm}{\hbar} \int_{S_{F\pm}} \frac{1}{k} \begin{pmatrix} \pm k_x \\ \mp k_y \\ 0 \end{pmatrix} \frac{\mathbf{v}_{\pm,\mathbf{k}}}{v_{\pm,\mathbf{k}}} \cdot \mathbf{E} dS_F \\ &= -\frac{1}{4\pi^2} \frac{e\tau_e^\pm E}{\hbar} \int_0^{2\pi} \begin{pmatrix} \pm \sin \xi \\ \mp \cos \xi \\ 0 \end{pmatrix} \cos \xi k_{F,\pm} d\xi = \pm \frac{eE}{4\pi \hbar} \tau_e^\pm k_{F,\pm} \mathbf{y} \end{aligned} \quad (2.36)$$

となり、正味のスピン蓄積は、

$$\langle \delta \boldsymbol{\sigma} \rangle = \langle \delta \boldsymbol{\sigma} \rangle_+ + \langle \delta \boldsymbol{\sigma} \rangle_- = -\frac{eE\tau_e}{\pi \hbar} k_F \beta \mathbf{y} \quad (2.37)$$

となる。先ほど導出した電流密度(2.35)式により、

$$\langle \delta \sigma \rangle = -\frac{m_e^* \alpha_R}{e \hbar \varepsilon_F} j_C \mathbf{y} \quad (2.38)$$

と表すことが出来る。またこの $\langle \delta \sigma \rangle$ を電気化学ポテンシャルとして表すと、

$$\mu_S^{\text{int}} = \frac{3m_e^* \alpha_R}{2e^2 \hbar \varepsilon_F D(\varepsilon_F) t_{\text{int}}} j_C \mathbf{y} \quad (2.39)$$

となる。ここで $D(\varepsilon_F)$ は Fermi 準位における状態密度、 t_{int} は界面膜厚である。また多層膜系では実際に界面に流れる j_C を見積もるため、分流を考慮する。ここでは ξ を分流因子と定義し、本研究の Py/Cu/Bi₂O₃ の場合では、以下のように表せる。

$$\xi = 1 / \left\{ \left(1 + \frac{\rho_{\text{Cu}} t_{\text{Py}}}{\rho_{\text{Py}} t_{\text{Cu}}} \right) \left(1 + \frac{\rho_{\text{int}} t_{\text{Cu}}}{\rho_{\text{Cu}} t_{\text{int}}} \right) \right\} \quad (2.40)$$

ρ は抵抗率、 t は膜厚を表し、添字はそれぞれの伝導層を意味する。

次に、Edelstein 効果によって生成されたスピン蓄積からスピン流の表式を導出する。本研究では 2-6 節で後述するスピントルク強磁性共鳴法を用いて Edelstein 効果の観測を行った。よって Cu/Bi₂O₃ 界面から Cu 層内を伝搬し、Py/Cu 界面に到達したスピン流がスピントルクとして Py 磁化に作用する。そのため、(2.39)式において示したスピン蓄積量 μ_S^{int} を用いて、スピン拡散モデルを解く事によりスピン流を導入する事を考える。Cu 層側へ界面に存在するスピン蓄積が一部脱出すると考えると [2-25]、

$$\mu_S^{\text{out}} = \eta \mu_S^{\text{int}} \quad (2.41)$$

となる。ここで η はスピン脱出率を表す。この一部脱出したスピン蓄積 μ_S^{out} を用いてスピン拡散を考える。するとスピン流密度は以下ようになる。

$$\mathbf{J}_S^{\text{Py/Cu}} = \mu_S^{\text{out}} \text{sech} \left(\frac{t_{\text{Cu}}}{\lambda_{\text{sf}}^{\text{Cu}}} \right) \frac{\sigma_{\text{Cu}}}{e} \frac{1}{\sigma_{\text{Cu}} + 2\lambda_{\text{sf}}^{\text{Cu}} \tanh(t_{\text{Cu}}/\lambda_{\text{sf}}^{\text{Cu}})} \times [G_r \mathbf{m} \times \mathbf{m} \times \mathbf{y} + G_i \mathbf{m} \times \mathbf{y}] \quad (2.42)$$

ここで t_{Cu} は Cu 層の膜厚、 σ_{Cu} は Cu 層の電気伝導度、 $\lambda_{\text{sf}}^{\text{Cu}}$ は Cu 層のスピン拡散長、 G_r は Py/Cu 界面におけるスピンミキシング伝導度の実部、 G_i はスピンミキシング伝導度の虚部を表す。 $t_{\text{Cu}} \ll \lambda_{\text{sf}}^{\text{Cu}}$ と仮定すると、

$$\mathbf{J}_S^{\text{Py/Cu}} = \frac{3m_e^* \alpha_R \eta}{2e^2 \hbar \epsilon_F D(\epsilon_F) t_{\text{int}}} j_C \times [G_r \mathbf{m} \times \mathbf{m} \times \mathbf{y} + G_i \mathbf{m} \times \mathbf{y}] \quad (2.43)$$

となる。また Py/Cu 界面においては $G_i \approx 0$ [2-26] であるので、スピン流密度、

$$J_S^{\text{Py/Cu}} = \frac{3m_e^* \alpha_R \eta G_r}{2e^2 \hbar \epsilon_F D(\epsilon_F) t_{\text{int}}} \times j_C \quad (2.44)$$

が得られる。よって最終的に電流-スピン流変換の大きさを表す Edelman 係数は、

$$q_{\text{DEE}} \equiv \frac{J_S^{\text{Py/Cu}}}{j_C} = \frac{3m_e^* \alpha_R \eta G_r}{2e^2 \hbar \epsilon_F D(\epsilon_F) t_{\text{int}}} \quad (2.45)$$

と定義される。この q_{DEE} は 2 次元電流密度 j_C [A/m] から 3 次元スピン流密度 J_S [A/m²] の変換により、長さの逆数の次元を有する。これが Edelman 効果の概要となる。

これまでは電流-スピン流変換である Edelman 効果について述べてきたが、逆変換であるスピン流-電流変換も Rashba 系で発現する。これは逆 Edelman 効果と呼ばれている [1-29]。次にこの効果について述べていく。図 2-9(a) は Fermi 準位における Rashba 系の平衡状態である。今、Rashba 系に隣接する金属伝導層が存在するとし、そこから Rashba 系へスピン流注入する場合を考える。その様子を表したのが図 2-9(b) である。注入された

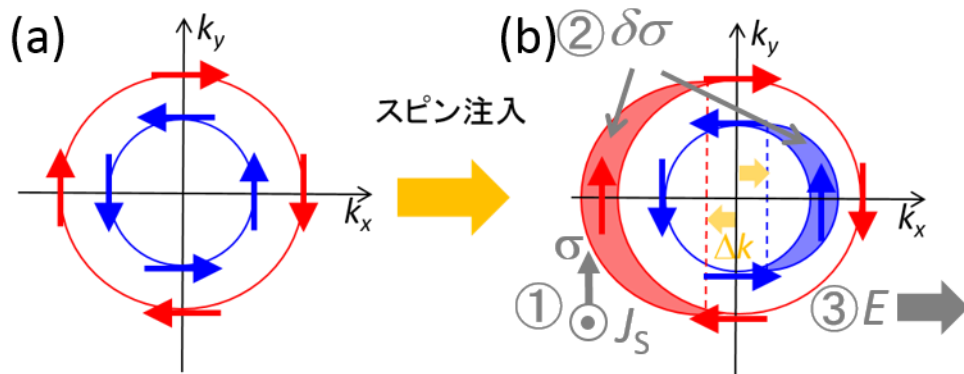


図 2-9 (a) 運動量空間内の Fermi 準位における Rashba スピン分裂,
(b) 隣接層側からスピン流注入後の Fermi 面シフトの様子. ①スピン流注入によってスピン偏極方向に応じた Fermi 面シフト, ②その際、スピン分裂によってスピン蓄積が生じる. ③正味の電界が x 方向に生じる.

スピン流のスピン偏極方向に応じて Fermi 面がシフトする。この際、非平衡スピン蓄積が系に生じ、結果として正味電界が発生した事になる。これは金属バルク中の逆スピンホール効果と類似した効果であり、2次元系におけるスピン流-電流変換である。この逆変換に関しては、Shen らがドリフト拡散モデルを用いて変換係数の導出を行っており[1-29]、以下にスピン流と電流の関係を見ていく。まず、平衡状態にある Rashba 系に対してスピン注入を行うと、以下のようなスピン密度 $\langle\delta\sigma^y\rangle$ の連続式およびスピン流密度 J_y^z 、電流密度 J_x を考える必要がある。

$$\frac{d\langle\delta\sigma^y\rangle}{dt} = -2m_e^*\alpha_R J_y^z - \frac{\delta\sigma^y}{\tau_{sf}} + \chi_S \frac{dB^y}{dt} \quad (2.46)$$

$$J_y^z = 2m_e^*\alpha_R D \delta\sigma^y + \theta_{SH} J_x \quad (2.47)$$

$$J_x = -\theta_{SH} J_y^z \quad (2.48)$$

ここで、 $\langle\delta\sigma^y\rangle$ は y 方向に偏極したスピン蓄積、 τ_{sf} は系のスピン緩和時間、 D は拡散定数、 θ_{SH} はスピンホール角、 J_x は電流密度を表す。また、 $\chi_S(dB^y/dt)$ は付加的なスピン密度であり、スピンポンピング実験で注入されるスピン流密度に相当する。 J_y^z はz方向にスピン偏極し、y方向に流れるスピン流密度を表す。Rashba 系では電場が印加されると面内有効磁場が生じ、それに伴いスピンのz成分を持ち、偏極方向は波数 k に依存する。例えば $+k_y$ では+z方向に、 $-k_y$ では-z方向にスピン偏極すると J_y^z が生じる。このような振る舞いは2次元電子系におけるスピンホール効果と解釈する事が出来る。これらの3式を連立して解くと、

$$\langle\delta\sigma^y\rangle = \frac{\tau_{sf}\chi_S(dB_y/dt)}{1 - i\omega\tau_{sf}} \quad (2.49)$$

$$J_y^z = 2m_e^*\alpha_R D \frac{\tau_{sf}\chi_S(dB_y/dt)}{1 - i\omega\tau_{sf}} \quad (2.50)$$

$$J_x = -\frac{2\pi}{e} \alpha_R \sigma_{SH} \frac{\tau_{sf}\chi_S(dB_y/dt)}{1 - i\omega\tau_{sf}} \quad (2.51)$$

となる。 σ_{SH} はスピンホール伝導度である。今、スピンポンピングによるスピン流注入を行うと、前述したように $\chi_S(dB_y/dt)$ は注入スピン流密度 J_S^y (y方向にスピン偏極し、z方向

に流れるスピン流) に相当する。よって、

$$J_x = -\frac{2\pi}{e} \alpha_R \sigma_{SH} \frac{\tau_{sf}}{1 - i\omega\tau_{sf}} J_S^y \quad (2.52)$$

となる。ここで、 $\sigma_{SH} = -(e/8\pi)/(4\tau_e^{\text{int}}/\tau_{sf})$ であり、低周波極限を考えると、

$$J_x = \alpha_R \tau_e^{\text{int}} \times J_S^y \quad (2.53)$$

というスピン流密度と電流密度の関係式を得る事が出来る。ここで τ_e^{int} は界面の運動量緩和時間を指す。本計算は $\hbar = 1$ とする自然単位系に基づいて計算を行ったため、実際の逆 Edelstein 変換係数は以下のようなになる。

$$\lambda_{IEE} = \frac{\alpha_R \tau_e^{\text{int}}}{\hbar} \quad (2.54)$$

(2.54)式の逆 Edelstein 変換係数を見ても明らかなように系の Rashba 係数および運動量緩和時間によって、その大きさが定義されている事が分かる。

2-5 スピンポンピング

強磁性体/非磁性体界面において、強磁性体の磁化のダイナミクスによって、どのようにしてスピン流が非磁性体中へ流入していくかを Tserkovnyak らの理論を元に紹介する[2-27, 2-28]。

Tserkovnyak らは電子の散乱問題を解くことにより、スピンポンピングを示した。以下の図 2-10 のような非磁性体/強磁性体/非磁性体 (N/F/N) の系を考える。また以下のような電流演算子 \hat{I} を考える。

$$\hat{I} = \frac{I_C}{2} \hat{1} + \frac{e}{\hbar} \hat{\sigma} \cdot \mathbf{I}_S \quad (2.55)$$

ここで、 I_C, \mathbf{I}_S はそれぞれ電流の大きさ、スピン流ベクトルであり、また $\hat{1}, \hat{\sigma}$ はそれぞれ単位行列、Pauli のスピン行列である。スピン流 \mathbf{I}_S はポンピングにより発生する $\mathbf{I}_S^{\text{pump}}$ とスピン流の流入によって N 中で生じたスピン蓄積によるバックフロー $\mathbf{I}_S^{\text{back}}$ が存在する。しかしながら今回は簡単のため、N は理想的なスピンシンクであるとし、 $\mathbf{I}_S^{\text{back}}$ が存在しないような系を考える。(2.55)式の電流演算子が時間依存する系のパラメータ $X(t)$ の下で発展する

とし、強磁性体が挿入されていることによる散乱行列による断熱的な電流応答は(2.56)式のようになる。

$$\hat{I}(t)^{\text{pump}} = e \frac{\partial \hat{n}(l)}{\partial X} \frac{dX(t)}{dt} \quad (2.56)$$

ここで、 $l, e\hat{n}(l)$ はそれぞれ左か右の非磁性体、粒子数演算子を表している。 $\partial \hat{n}(l)/\partial X$ を考えるために更に別の表式の電流演算子を考える必要がある。

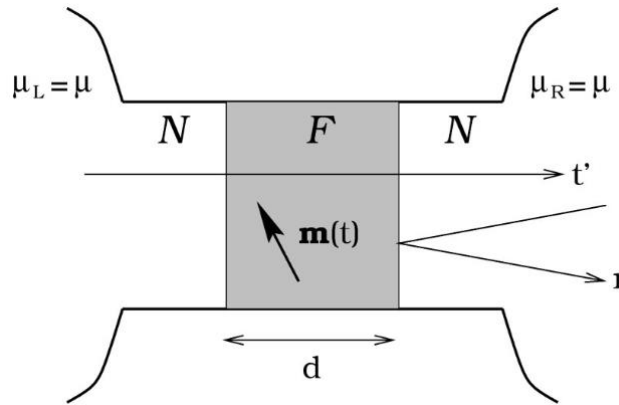


図 2-10 N/F/N の系において電子の透過や反射を表している概念図[2-27, 2-28]

今後左右どちらの非磁性体かを l, l' で表記する。更に、スピン α 、チャンネル m の非磁性体 l から強磁性体へ向かう電子の消滅演算子を $a_{\alpha, m, l}(E)$ とする (E は電子のエネルギーを表す)。同様に強磁性体から非磁性体 l に向かう消滅演算子を $b_{\alpha, m, l}(E)$ とする。(2.55)式と異なる表記の電流演算子を(2.57)式のように定める。

$$\hat{I}_l^{\alpha\beta}(t) = \frac{e}{\hbar} \sum_m \int dE dE' e^{\frac{i}{\hbar}(E-E')t} \{ a_{\beta, m, l}^\dagger(E) a_{\alpha, m, l}(E') - b_{\beta, m, l}^\dagger(E) b_{\alpha, m, l}(E') \} \quad (2.57)$$

また強磁性体中での散乱行列を $\hat{s}_{mn, ll'}^{\alpha, \beta}$ と定めると、消滅演算子は(2.58)式のような関係が成り立つ。

$$b_{\alpha, m, l}(E) = \sum_{\beta, n, l'} \hat{s}_{mn, ll'}^{\alpha, \beta}(E) a_{\beta, n, l'}(E) \quad (2.58)$$

散乱行列 $\hat{s}_{mn, ll'}^{\alpha, \beta}$ の成分は、 $l = l'$ 要素では反射係数、 $l \neq l'$ 要素では透過係数を表す。また Hermite 共役は、(2.59)式のようになる。

$$b_{\alpha,m,l}^\dagger(E) = \sum_{\beta,n,l'} a_{\beta,n,l'}^\dagger(E) \hat{s}_{nm,l'l}^{\dagger\beta,\alpha}(E) \quad (2.59)$$

これにより、 $b_{\alpha,m,l}$ を $a_{\alpha,m,l}$ で書き換える事が可能となる。また $a_{\alpha,m,l}$ には、非磁性体 l における電子の分布関数（Fermi-Dirac(FD)分布関数） $f_l(E)$ を用いて、(2.60)式のような関係が成り立つ。

$$\langle a_{\alpha,m,l}^\dagger(E) a_{\beta,n,l'}(E') \rangle = f_l^{\alpha\beta}(E) \delta_{mn} \delta_{ll'} \delta(E - E') \quad (2.60)$$

今、電流期待値 $\langle \hat{I}_l(\omega) \rangle$ を0近傍において展開することを考えると1次の項は、

$$\langle \hat{I}_l(\omega) \rangle = \hat{g}_{X,l}(\omega) X(\omega) \quad (2.61)$$

$$\hat{g}_{X,l}(\omega) = -\frac{e\omega}{4\pi} \sum_{l'} \int dE \left(-\frac{\partial f_{l'}(E)}{\partial E} \right) \sum_{m,n} \left(\frac{\partial \hat{s}_{mn,ll'}(E)}{\partial X} \hat{s}_{mn,ll'}^\dagger(E) - \text{H. c.} \right) \quad (2.62)$$

となる。ここで、散乱行列 $\hat{s}_{mn,ll'}^{\alpha,\beta}$ は $X(t)$ に依存するとする。また H.c.は Hermite 共役 (Hermite conjugate)を表す。更に簡単のため、低温における場合を考えると、(2.63)式のような近似ができる。

$$-\frac{\partial f_{l'}(E)}{\partial E} = \delta(E - \varepsilon_F) \quad (2.63)$$

ここで、 ε_F は Fermi エネルギーである。これにより電流期待値は(2.64)式のようになる。

$$\langle \hat{I}_l(\omega) \rangle = -\frac{e\omega}{4\pi} \sum_{m,n,l'} \left\{ \frac{\partial \hat{s}_{mn,ll'}(E)}{\partial X} \hat{s}_{nm,l'l}^\dagger - \text{H. c.} \right\} X(\omega) \quad (2.64)$$

粒子数演算子 $\hat{Q}(t)$ を $d\hat{Q}/dt = \hat{I}(t)$ と定めると、 $\hat{Q}(t)$ の Fourier 成分は、 $X(\omega)$ 以外の部分が ω に依存しないことに注意すると、

$$\hat{Q}(t) = \frac{e}{4\pi i} \sum_{m,n,l'} \left\{ \frac{\partial \hat{s}_{mn,ll'}(E)}{\partial X} \hat{s}_{nm,l'l}^\dagger - \text{H. c.} \right\} X(t) \quad (2.65)$$

と表せる。粒子数演算子 $\hat{Q}(t)$ は前述してある通り、 $\hat{Q}(t) = e\hat{n}(t)$ であり、 $d\hat{Q}/dt = \hat{I}(t)$ の関係から、(2.65)式のようになる。これにより、

$$\frac{\partial \hat{n}_l}{\partial X} = \frac{1}{4\pi i} \sum_{m,n,l'} \frac{\partial \hat{s}_{mn,l'l'}}{\partial X} \hat{s}_{nm,l'l}^\dagger + \text{H. c.} \quad (2.66)$$

となる。ここで(2.55)式の電流演算子に立ち返ると、電流成分が無視でき、 $\hat{I}^{\text{pump}} = -(\mathbf{e}/\hbar)\hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \mathbf{I}_S^{\text{pump}}$ となることは(2.56)、(2.66)式を見れば自明である。今、磁化の歳差運動の軸と垂直な平面における方位角 φ を変数 X とすることを考える。更に F/N 界面におけるスピン緩和が起こらない事を仮定する。すると $\mathbf{I}_S^{\text{pump}}$ は(2.67)式のように表せる。

$$\mathbf{I}_S^{\text{pump}} = \frac{\hbar}{4\pi} \left(A_r \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} - A_i \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \quad (2.67)$$

$$g^{\sigma\sigma'} = \sum_{mn} [\delta_{mn} - r_{mn}^\sigma (r_{mn}^{\sigma'})^*], \quad t^{\uparrow\downarrow} = \sum_{mn} t_{mn}^\uparrow (t_{mn}^\downarrow)^* \quad (2.68)$$

$$A = g^{\uparrow\downarrow} - t^{\uparrow\downarrow}, \quad A_r = \text{Re}[A], \quad A_i = \text{Im}[A] \quad (2.69)$$

ここで、 σ の添字はスピンのアップ、ダウンを表し、 r, t は反射係数および透過係数を表す。更に g はスピンミキシング伝導度を表す。各スピンに対する散乱行列のユニタリー性を考えることによって、 $A_r + iA_i = g^{\uparrow\downarrow} - t^{\uparrow\downarrow}$ とすることが可能であり、最終的にスピン流の実部を(2.70)式のような形式で表すことが出来る。

$$I_S^{\text{pump}} = \frac{\hbar}{4\pi} g^{\uparrow\downarrow} \left[\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right]_i \quad (2.70)$$

ここで添字 i はスピン流の偏極方向を表し、 $[\mathbf{m} \times (d\mathbf{m}/dt)]_i$ はその軸の成分を表す。これによりスピンポンピングにより生成されるスピン流密度の直流成分は(2.71)式のように表される[2-27, 2-28]。

$$j_s = \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} \frac{\hbar}{4\pi} g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \frac{1}{M_S^2} \left[\mathbf{m}(t) \times \frac{d\mathbf{m}(t)}{dt} \right]_i dt \quad (2.71)$$

このように、スピンポンピングによって誘起されるスピン流は磁化のダイナミクスにおけるダンピング項を反映した形で表される。ダンピングが注入されるスピン流と関係があることは直感的に理解できる。

次にスピンポンピングにおける基礎的な式の導出を行う[2-29]。Saitoh グループでは、Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式を解くことにより得られた解からこういった形式

のスピンの流が非磁性体に注入されるか現象論的に導出している。以下にそれを示す。

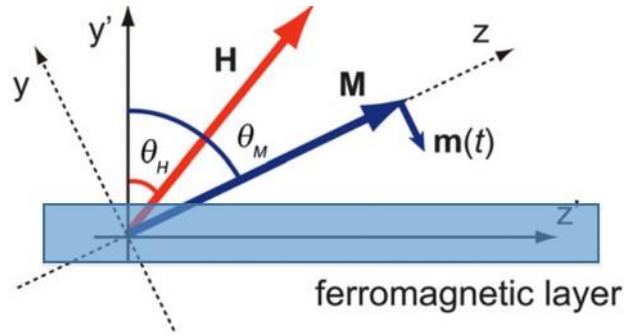


図 2-11 強磁性体における磁化や外部磁場方向の概形図 [2-29]

まず図 2-11 のような静磁場 \mathbf{H} 下にある強磁性体を考える。静磁場 \mathbf{H} により生じる反磁場 \mathbf{H}_M を加味することによって、有効的な外部磁場 \mathbf{H}_{eff} は以下の式(2.72)のようになる。

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H} + \mathbf{H}_M \quad (2.72)$$

ここで、

$$\mathbf{H} = H \begin{pmatrix} 0 \\ \sin(\theta_M - \theta_H) \\ \cos(\theta_M - \theta_H) \end{pmatrix}, \quad \mathbf{H}_M = -4\pi M_S \cos \theta_M \begin{pmatrix} 0 \\ \sin \theta_M \\ \cos \theta_M \end{pmatrix}.$$

である。 $\theta_H, \theta_M, H, M_S$ はそれぞれ強磁性体の面直軸 (y' 軸) に対する外部磁場角、磁化角、外部磁場の大きさ、飽和磁化である。磁化 \mathbf{M} と有効磁場 \mathbf{H}_{eff} の関係 $\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{0}$ から、静的な平衡条件は以下の(2.73)式のように与えられる。

$$2H \sin(\theta_H - \theta_M) + 4\pi M_S \sin 2\theta_M = 0 \quad (2.73)$$

このような系に対して、 x 軸方向に外部から交流磁場 $\mathbf{h}(t)$ を印加することにより、磁化 \mathbf{M} にトルク $\mathbf{m}(t)$ を働かせ、歳差運動させる。トルク $\mathbf{m}(t)$ により生じる反磁場を $\mathbf{H}_m(t)$ とすると、正味の有効磁場は(2.74)式のようになる。

$$\mathbf{H}_{\text{eff}}(t) = \mathbf{H} + \mathbf{H}_M + \mathbf{H}_m(t) + \mathbf{h}_{\text{rf}}(t) \quad (2.74)$$

ここで、

$$\mathbf{H}_m(t) = -4\pi m_y(t) \sin \theta_M \begin{pmatrix} 0 \\ \sin \theta_M \\ \cos \theta_M \end{pmatrix}, \quad \mathbf{h}(t) = \begin{pmatrix} h e^{i\omega t} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}.$$

である。

磁化のダイナミクスは以下の(2.75)式のような LLG 方程式により記述される。

$$\frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} = -\gamma_e \mathbf{M}(t) \times H_{\text{eff}} + \frac{\delta}{M_S} \mathbf{M}(t) \times \frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} \quad (2.75)$$

ここで、 γ_e, δ はそれぞれ電子の磁気回転比、ダンピング定数である。上記のような系において、平衡状態における磁化 \mathbf{M} 周りを歳差運動する磁化 $\mathbf{m}(t) = (m_x e^{i\omega t}, m_y e^{i\omega t}, 0)$ を LLG 方程式の解と仮定することを考える。ここで $\omega (= 2\pi f)$ は外部交流磁場の角周波数である。共鳴条件は外部交流磁場とダンピング項を無視し、(2.76)式における固有振動数 ω を探すことにより得ることが出来る。また(2.73)式を用い、(2.76)式のように共鳴条件が決まる。

$$\left(\frac{\omega}{\gamma_e}\right)^2 = [H_R \cos(\theta_H - \theta_M) - 4\pi M_S \cos 2\theta_M] \times [H_R \cos(\theta_H - \theta_M) - 4\pi M_S \cos^2 \theta_M] \quad (2.76)$$

FMR 条件下にある $\mathbf{m}(t)$ の動的成分は、(2.73)、(2.76)式を用い、(2.75)式の LLG 方程式を解く事により決めることが出来る。

$$m_x(t) = \frac{4\pi M_S h \gamma_e \left\{ 2\delta \omega \cos \omega t + [4\pi M_S \gamma_e \sin^2 \theta_M + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2}] \sin \omega t \right\}}{8\pi \delta \omega \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2}} \quad (2.77)$$

$$m_y(t) = -\frac{4\pi M_S h \gamma_e \cos \omega t}{4\pi \delta \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2}} \quad (2.78)$$

(2.71)、(2.77)、(2.78)式を用いて、スピン流密度は(2.79)式のような具体的な表式を得る。

$$j_s = \frac{g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \gamma_e^2 h_{\text{rf}}^2 \hbar [4\pi M_S \gamma_e \sin^2 \theta_M + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2}]}{8\pi \delta^2 [(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2]} \quad (2.79)$$

強磁性体の磁化が面内方向を向いている場合、 $\theta_M = \pi/2$ であり、スピン流密度は、

$$j_s = \frac{g_{\text{eff}}^{\downarrow} \gamma_e^2 h_{\text{rf}}^2 \hbar [4\pi M_S \gamma_e + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 + 4\omega^2}]}{8\pi \delta^2 [(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 + 4\omega^2]} \quad (2.80)$$

と表される。

歳差運動を行っている磁化ベクトルの軌道は、強磁性体内の反磁場の影響によって歪められる。歳差運動軌道はスピン流生成に強く影響を与える事が考えられるので、この効果も加味してスピン流を議論しなければならない。

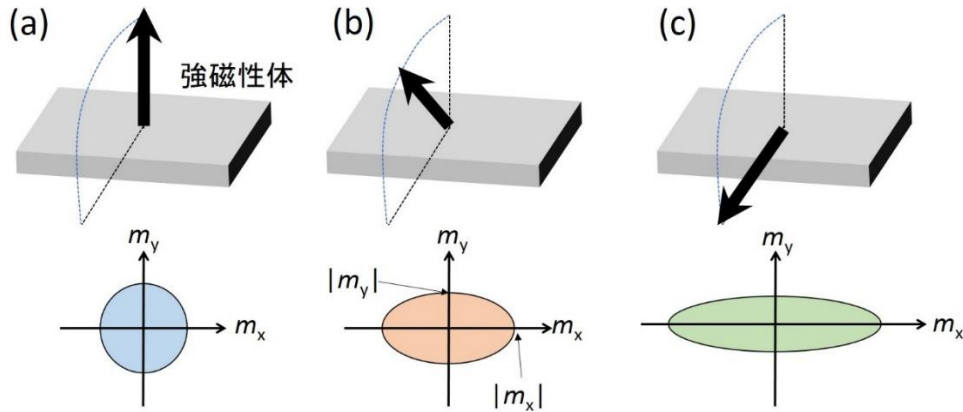


図 2-12 異なる磁化方向による歳差運動軌道 (a)面直 (b)斜め (c)面内

図 2-12 は異なる磁化方向による歳差運動軌道を表している。この軌道形状（楕円率）を P と表すとする。また、これらの楕円軌道の面積を $S = \pi|m_x||m_y|$ と定義し、更に P を $P \equiv S/S^{\text{circ}}$ と規格化する事を考える。ここで、 S^{circ} は図 2-12(a) のような磁化が面直を向いて反磁場の影響を受けず、軌道が真円となっている場合の面積である。(2.77)、(2.78)式を用いることにより、 P は(2.81)のようになる。

$$P = \frac{2\omega [4\pi M_S \gamma_e \sin^2 \theta_M + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2}]}{[(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2]} \quad (2.81)$$

歳差運動軌道の影響を補正したスピン流密度 \tilde{j}_s は、 $\tilde{j}_s = P \times j_s$ となる。実は先ほど示した(2.80)式では、反磁場の影響を考えてスピン流密度の導出を行っているため、既に上記のような楕円率 P の影響を加味した形式で表記されている。このようにしてスピンプンピング法ではスピン流を非磁性体中へ流入している。

次に、一般的に Py/Pt などの強磁性金属(F)/非磁性金属(N)二層膜で行われるスピンプンピングによる逆スピンホール電圧 V_{ISHE} の導出を行う。(2.80)式で導出したスピン流密度は、F/N 界面での表式である。NM にスピン注入後は(2.82)式のように、スピン緩和により z 軸方向の関数としてスピン流密度は減衰する。

$$j_s(z) = \frac{\sinh\left(\frac{t_N - z}{\lambda_{sf}}\right)}{\sinh\left(\frac{t_N}{\lambda_{sf}}\right)} j_s \quad (2.82)$$

ここで、 t_N, λ_{sf} は非磁性体の膜厚およびスピン拡散長である。
 注入されたスピン流密度は、逆スピホール効果によって、スピン流-電流変換が行われて、(2.83)式のような電流密度を得る。

$$j_c(z) = \theta_{SHE} \left(\frac{2e}{\hbar}\right) j_s(z) \quad (2.83)$$

ここで、 θ_{SHE} はスピホール角である。
 また、(2.84)式を用いることによって平均的な電流密度($\langle j_c \rangle$)を得る。

$$\langle j_c \rangle = \frac{1}{t_N} \int_0^{t_N} j_c(z) dz \quad (2.84)$$

これにより、逆スピホール電圧 V_{ISHE} は、

$$V_{ISHE} = \frac{R_F R_N}{R_F + R_N} I_C = \frac{L}{\sigma_N + (t_F/t_N)\sigma_F} \langle j_c \rangle = \frac{\theta_{SHE} L \lambda_{sf} \tanh(t_F/2\lambda_{sf})}{t_N \sigma_N + t_F \sigma_F} \left(\frac{2e}{\hbar}\right) j_s \quad (2.85)$$

となり、最終的に(2.86)式のように表せる。

$$V_{ISHE} = \frac{\theta_{SHE} e L P \omega \lambda_{sf} g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \sin^2 \theta}{2\pi(\sigma_N t_N + \sigma_F t_F)} \tanh\left(\frac{t_N}{2\lambda_{sf}}\right) \quad (2.86)$$

$$\theta = h_{rf}/\Delta H \quad (2.87)$$

ここで、 $R_F, R_N, L, \sigma_N, \sigma_F, t_F, \theta, h_{rf}, \Delta H$ はそれぞれ強磁性体の抵抗、非磁性体の抵抗、素子長さ、非磁性体の電気伝導度、強磁性体の電気伝導度、膜厚、歳差運動角、外部交流磁場、および FMR スペクトルの半値半幅である。歳差運動角 θ は、LLG 方程式の解より得る事ができる。

2-6 スピントルク強磁性共鳴

スピントルク強磁性共鳴(Spin-torque ferromagnetic resonance: ST-FMR)は強磁性金属層に隣接した Pt などの遷移金属であるスピンホール物質からスピン流が流れ込んだ際に、強磁性共鳴のダンピングが変調される現象である[2-30]。図 2-13(a)のように強磁性金属に rf 電流および外部静磁場を印加すると、強磁性共鳴が誘起され、強磁性金属の異方性磁気抵抗(Anisotropic magnetoresistance: AMR)[2-31, 2-32]を介して共鳴スペクトル電圧を観測する事が出来る。今、図 2-13(b)のような強磁性金属 FM およびスピンホール物質 NM の 2 層膜系を考えると、rf 電流を流した際にスピンホール物質中でスピンホール効果によって電流からスピン流の変換が行われる。その際、生成されたスピン流は隣接する強磁性金属に流れ込みスピントルクとしてダンピングトルクに影響を及ぼす。これが ST-FMR の概要である。得られる電圧スペクトルは図 2-14 に示すような形状となり、(2.88)式のように表される。

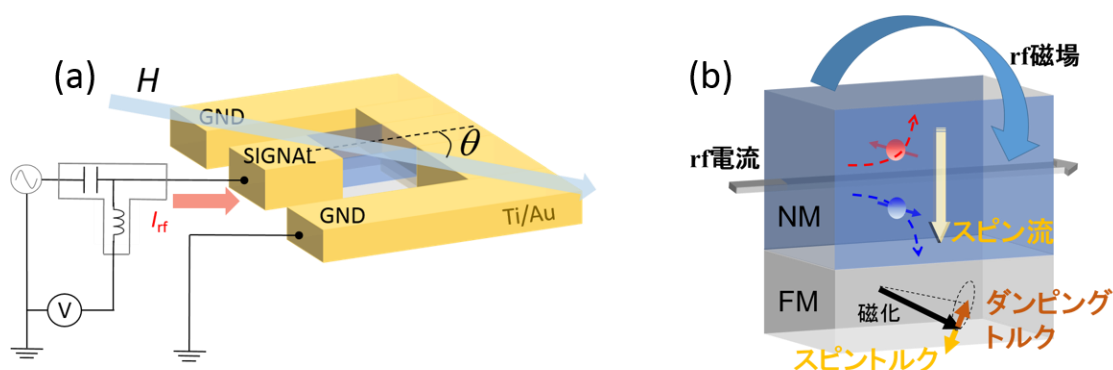


図 2-13(a)ST-FMR 測定セットアップ, (b)強磁性共鳴下におけるスピン流注入によるスピントルクとダンピングトルクの様子

$$V = \frac{k}{\Delta H} \left[V_S \times \frac{\Delta H^2}{\Delta H^2 + (H - H_R)^2} + V_A \frac{\Delta H(H - H_R)}{\Delta H^2 + (H - H_R)^2} \right] \quad (2.88)$$

対称成分であるローレンチアンおよび非対称成分であるローレンチアン微分型の和で表される。ここで、 k は強磁性体の抵抗および AMR で決まる定数、 ΔH はスペクトルの半値半幅、 V_S は対称成分電圧、 V_A は非対称成分電圧、 H は印加静磁場、 H_R は共鳴磁場である。対

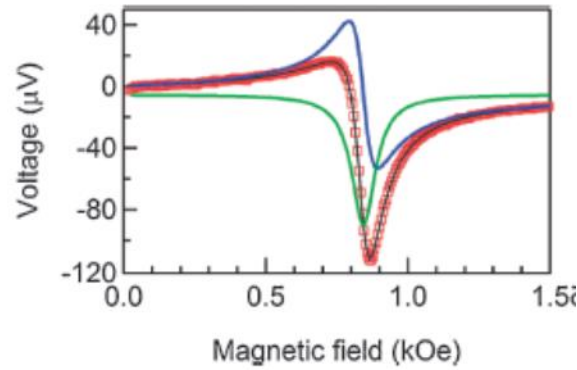


図 2-14 ST-FMR 検出電圧 赤：生データ，緑：電圧スペクトル対称成分，青：電圧スペクトル非対称成分を表す[2-33]。

称成分はスピントルク誘起の強磁性共鳴、非対称成分は rf 磁場誘起の強磁性共鳴である。また V_S と V_A はスピン流密度 J_S 、電流密度 J_C により出力される電圧であり、以下のように表される。

$$V_S = \frac{\hbar J_S}{2e\mu_0 M_S t_F} \quad (2.89)$$

$$V_A = h_{\text{rf}} \left[1 + \left(\frac{M_{\text{eff}}}{H} \right) \right]^{1/2} \approx \frac{J_C t_N}{2} \left[1 + \left(\frac{M_{\text{eff}}}{H} \right) \right]^{1/2} \quad (2.90)$$

ここで、 M_S は飽和磁化、 M_{eff} は有効飽和磁化、 t_F は強磁性金属膜厚、 t_N はスピンホール物質膜厚である。電流-スピン流変換効率であるスピンホール角 θ_{SHE} はこれらの電圧を用いて表すことが出来、

$$\theta_{\text{SHE}} = \frac{V_S}{V_A} \frac{e\mu_0 M_S t_F t_N}{\hbar} \left[1 + \left(\frac{M_S}{H} \right) \right]^{1/2} \quad (2.91)$$

となる。通常、スピンホール角はスピン拡散長 λ_{sf} に依存してスピン緩和が特徴付けられているため、(2.92)式に示すようなスピンホール物質膜厚依存性が存在する。

$$\theta_{\text{SHE}} = \theta_{\text{SHE}}^0 \left[1 - \text{sech} \left(\frac{t_N}{\lambda_{\text{sf}}} \right) \right] \quad (2.92)$$

ここで θ_{SHE}^0 は $\lambda_{\text{sf}} \ll t_N$ におけるスピンホール角である。 $\lambda_{\text{sf}} \gg t_N$ の場合は十分にスピン緩和が起こらないため、この膜厚依存性は自明である。一方で、(2.91)式を見ると、強磁性金属膜厚 t_F にも依存している事が分かる。実際に、この傾向は強磁性金属 Py と遷移金属

Pt あるいは Pd の 2 層膜系において報告されている [2-33]。これは rf 電流が強磁性金属層を流れた際の外因性寄与が重畳している可能性がある事を示唆している。そのため、この測定のみでは厳密な θ_{SHE} の見積もりが困難である。

ST-FMR 法の測定系において、rf 電流を印加すると同時に直流電流も印加することで実行的なダンピングトルクを変調することができる (図 2-15(a)) [2-34]。この測定では直流電流密度を変えるため、先ほど述べた rf 電流による外因性寄与はオフセットとしてしか重畳せず、直流電流密度依存性から θ_{SHE} を議論することが出来る。図 2-15(b) は Py/Pt の 2 層膜における検出電圧スペクトルを表しており、半値半幅が電流密度の大きさで変化している様子が見て取れる。この直流電流によって誘起されるダンピング定数も含め、正味のダンピング定数 δ_{eff} は、

$$\delta_{\text{eff}} = \delta_{\text{eff}}^0 + \Delta\delta = \delta_{\text{eff}}^0 + \frac{\sin \theta}{(H + M_S/2)\mu_0 M_{\text{StF}}} \frac{\hbar J_S}{2e} \quad (2.93)$$

と表される。ここで δ_{eff}^0 , $\Delta\delta$ はそれぞれ電流印加前の元々のダンピング定数、直流電流印加時のスピントルクによる付加的なダンピング定数を表す。また θ は細線長手方向と印加静磁場間の面内角度を表す。図 2-15(c) は実際に実験的に報告されたダンピング定数の電流密度依存性である。この線形性からスピンホール角 θ_{SHE} の見積もりを行う。

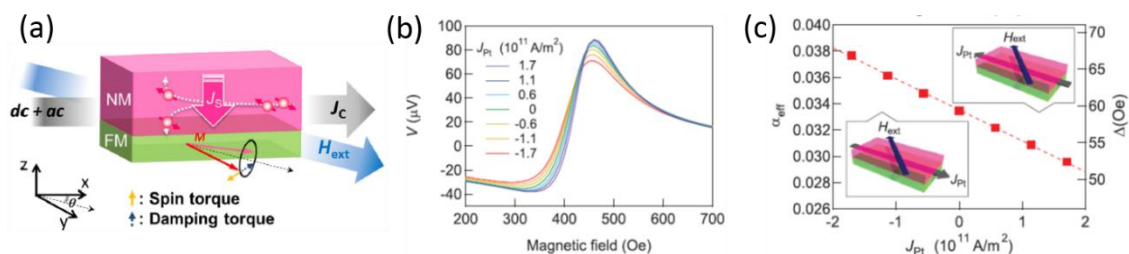


図 2-15(a)強磁性層(FM)/非磁性層(NM)の 2 層膜系におけるダンピング変調実験の概形図, (b)各電流密度における検出電圧スペクトル, (c)ダンピング定数 (左軸) および半値半幅 (右軸) の印加電流密度依存性 [2-34]

第 3 章

素子作製および測定手法

3-1 素子作製手法

本節では素子作製における全工程を紹介する。本研究で用いた素子はリフトオフ法を用いて作製を行った。リフトオフ法とは、基板上に紫外光あるいは電子線に対する感光率の高い有機物のレジストを堆積し、素子パターンに現像されたレジスト（マスク）を用いて基板に対して蒸着を行い、アセトンなどの有機溶剤などを用いてレジストを溶解し、素子のみを得る手法である[3-1]。主にこの手法により、スピン輸送実験を行うための面内スピバルブ素子、スピン流・電流変換実験を行うためのスピンプンピング素子、電流・スピン流変換実験を行うためのスピントルク強磁性共鳴素子、ホール測定を行うためのホールバーの作製を行った。まず、これらの素子作製を行うための基盤技術である電子線リソグラフィ、フォトリソグラフィ、電子線加熱蒸着法、スパッタリング成膜法について述べ、その後、各素子の作製工程を述べていく。

電子線リソグラフィ

面内スピバルブ素子（強磁性体/非磁性体の複合構造）の作製には電子線リソグラフィ（Electron-beam lithography: EBL）を用いた[3-2]。EBL はフォトリソグラフィ（Photolithography: PL）とは異なり、1 μm スケール以下の描画が可能である。スピバルブ素子は、強磁性体と非磁性体の接合界面を清浄に保つ（酸化させない）ために立体レジストを用いた斜め蒸着により作製された。立体レジストとは、電子線の感光率の異なる 2 つのレジスト材料から構成される。1 層目の Si 基板直上に感光率の高いレジスト（MMA）を用い、2 層目にそれよりも感光率の低いレジスト（PMMA）を堆積させることで、現像後に反り立つ谷のようなマスク構造を得ることができる。試料パターンは AutoCAD を用いて作製した。以下にリソグラフィを行うまでの過程を示す。

(1) 下準備（基板洗浄）

位置合わせパターン付きの基板の洗浄を行う。アセトンに浸した状態で、10 分程度超音波洗浄を行う。ブロワーで乾燥後、付着物等が残っていないか十分に確認する。

(2) レジスト塗布

(i) MMA を滴下し、スピコーターにより全体的に均す。5 秒間スロープ、10 秒間 500

回転、90 秒間 1500 回転、10 秒間スロープを行う。その後、MMA を固化させるためにホットプレート上に置いて 90 秒間 180 度でベーキングする。

(ii) PMMA を滴下し、スピナーにより全体的に均す。5 秒間 500 回転、40 秒間 5000 回転、5 秒間スロープを行う。その後、PMMA を固化させるためにホットプレート上に置いて 90 秒間 180 度でベーキングする。

(3) EBL

(2)で得たレジスト成膜済み基板を用いて EBL を行う。基本的にドーズ時間は 2.5 nm^2 の面積に対して $0.7 \mu\text{s}$ 行い、100 kV の加速電圧、100 pA のエミッション電流で描画を行う。

(4) 現像

現像とは露光された部分のレジストを現像液と反応させ除去する事である。現像液 (MIBK:IPA = 1:3, MIBK はメチルイソブチルケトン, IPA はイソプロピルアルコール) に 30 秒間浸し現像を行う。その後 IPA でリンスを行う。

以上が EBL の過程である。

フォトリソグラフィ

フォトリソグラフィ (PL) は紫外光に対する感光率の高い有機物 (レジスト) を用いて基板上にレジストパターンを描画する技術である [3-3]。マスクレス露光装置 (ナノシステムソリューションズ社製 D-light-DL1000RS) を用いてリソグラフィを行った。試料パターンは AutoCAD を用いて作製した。

以下、PL の使用手順を示す。

(1) 下準備 (基板洗浄)

Si 基板をスクライバーによって 20 mm 角に切り出す。その後、アセトンに浸し数十分間、超音波洗浄を行う。更に基板表面に吸着している有機物を取り除くために UV 露光洗浄を 3 分間程行う。

(2) レジスト塗布

プライマと呼ばれるレジストの吸着力を向上させる薬液を基板上に滴下し、スピナーにより 5 秒間 500 回転、40 秒間 5000 回転させ均一に成膜する。その後、固化させるためにオープンにて 5 分間 80 度でベークを行う。成膜されたプライマ上にレジストとなる AZ1500 を滴下し、同様にスピナーにより均一にする。AZ1500 のベークに関して温度等は同じで、時間は 10 分間行う。

(3) 露光

露光を行う。前述したが、数回リソグラフィーを行う必要がある素子は電極等がずれないようにマークなどを使い位置合わせをしてから露光を行う。ドーズ量は 110 mJ/cm^2 である。

(4) 現像

まず、基板をピンセットで挟んだまま現像液中に浸し上下させる。その後、超純水により 30 秒程度リンスを行い、ブLOWERで水分を吹き飛ばす。

以上が PL の過程である。

電子線加熱蒸着法

電子線加熱蒸着法は、その名の通り、ターゲットに電子線を照射する事によって加熱を行い、ターゲットを蒸発させ、基板へ物理的に成膜を行う手法である[3-4]。るつぼを直接温めてターゲット全体を加熱する抵抗加熱蒸着法とは異なり、この手法はターゲット上を局所的に加熱する事が可能である。また、電子線の高いエネルギーによって $3000 \text{ }^\circ\text{C}$ 程度までの加熱が可能のため、非常に高融点のモリブデンやタンタルといった金属や、様々な酸化物の蒸着が可能である。図 3-1 は電子線加熱蒸着の様子を表している。成膜中、蒸着物が空気分子に散乱され、遮蔽されないように、成膜チャンバー内は 10^{-8} Torr 程度の超高真空雰囲気である必要がある。そのため、チャンバーはロータリーポンプとターボ分子ポンプ、およびクライオポンプで構成される排気系に接続されている。まず電子銃ユニットにおいて、電子線を発生する必要があるため、熱に対して堅牢な W フィラメントに 20-30 A 程度の大電流を流し、フィラメントに熱電子を発生させる。フィラメントをカソード、チャンバーをアノード（アース）とし、4-5 kV 程度の高い負電圧によって熱電子を引き出

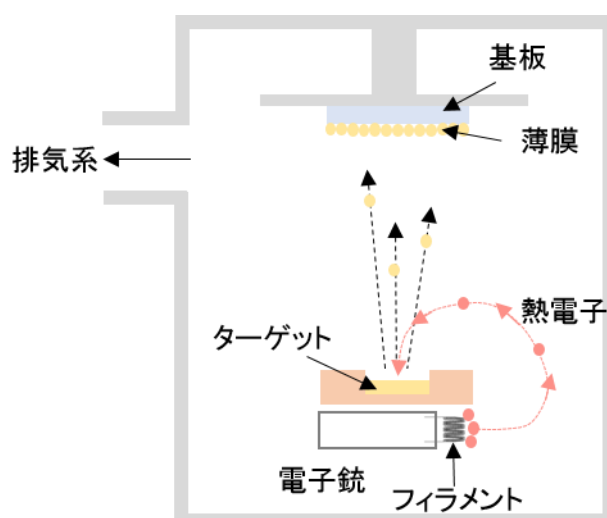


図 3-1 高真空チャンバー内における電子線加熱蒸着の様子

す。この時、コイルによる Lorentz 力により電子線軌道を曲げ、ターゲットに照射するような機構となっている。以下に、実際に実験に用いた薄膜の作製条件を示す。

表 3-1 電子線加熱蒸着法における成膜条件

(表中、LSV は面内スピバルブ素子用、SP はスピポンピング素子用、ST-FMR はスピントルク強磁性共鳴素子用、AHE は異常ホール効果測定素子用を指す)

材料	成膜レート ($\text{\AA}/\text{s}$)	膜厚 (nm)
$\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (Py)	0.5	20(LSV), 5(SP)
Ag	2.0	50 (LSV), 10 (SP), 0.8-10 (AHE)
Cu	2.0	5 – 40(SP), 10(ST-FMR), 0.8-10 (AHE)
Bi_2O_3	0.2	20-100
Al_2O_3	0.2	20
HfO_2	0.2	20
Gd_2O_3	0.2	20
Ti	0.3-0.5	5
Au	3.0-4.0	200

スパッタリング成膜法

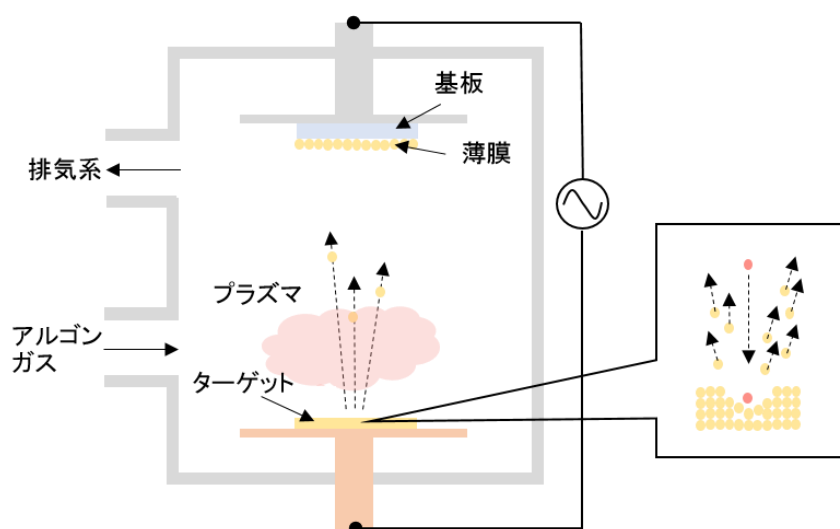


図 3-2 高真空チャンバー内におけるスパッタリング成膜の様子

続いてスパッタリング成膜について述べる[3-5]。この手法は、ターゲットに高エネルギー

一の Ar イオンを電界によって衝突させ、ターゲット表面を弾き出し、対向基板に成膜を行う。加熱蒸着法では蒸着物のエネルギーが 0.1 eV 程度であるのに対し、スパッタリング法では 10 eV 程度の高エネルギーとなる。そのため、成膜物質は基板到着後もエネルギーの安定点を探し駆動する。そのため比較的品質膜の成膜が可能である。スパッタリングには DC と rf による電界で Ar イオンを加速する方法があり、一般的に DC は金属、rf は絶縁体に用いられる。これは DC 電界に絶縁体を用いた場合、ターゲットがチャージアップしてしまうためである。本実験では測定細線およびウェーブガイド間の絶縁をするため、高品質 Al₂O₃ の成膜を行ったので、図 3-2 を用いて rf 電界を用いた成膜原理を述べる。まず超高真空チャンバー内へ Ar ガスを導入する。Ar イオンを生成するため、基板とターゲット間に電圧を印加し、放電させる。この際、印加する電圧は rf を用いる。電離した Ar イオンと電子は質量が異なるため、加速時の速さの違いにより、ターゲットのチャージアップを防ぐ。ターゲットに衝突した Ar イオンはターゲットを弾き出し、その後基板に物理吸着する。これがスパッタリングの原理である。実際の成膜条件は、成膜ターゲット：Al₂O₃、膜厚：50-100 nm、プリスパッタ用 Ar フローレート：15 sccm、Ar フローレート：5 sccm、動作真空度：1 × 10⁻⁴ Pa である。成膜時、基板に対するプラズマによる過熱を防ぐため、10 nm 程度成膜し、20 分室温冷却を 1 プロセスとして繰り返し行った。

面内スピンバルブ素子の作製

強磁性体/非磁性体の複合構造である面内スピンバルブ素子の作製手順を以下に示す[3-1]。

- (1) まず始めに Au 電極を Si 基板上に作製する。Au 電極は 200 nm 程度蒸着を行う。素子細線 (数十 nm 程度の膜厚) とコンタクトを取る部分は段差を無くすために一部 20 nm 程蒸着を行う。そのため、PL および Au 蒸着を 2 セット行う。この時、EBL 工程において、位置合わせを行うためのマークも電極と一緒に作製する。
- (2) EBL を行う (図 3-3(a), (b))。
- (3) 電子線加熱蒸着により成膜を行う。まずロードロック (Load Lock: LL) チャンバーにおいて、Py 20 nm をレート 0.05 nm/s 程度で 45 度斜め蒸着を行う。同様に MgO 2 nm をレート 0.01 nm/s 程度で斜め蒸着する (図 3-3(c))。その後、メインチャンバーにトランスファーをし、図 3-3(d) のように Ag をレート 0.2 nm/s で 50 nm 蒸着する。その後、LL チャンバーにトランスファーを行い、Oxide (Bi₂O₃, Al₂O₃, HfO₂) を各素子それぞれレート 0.02 nm/s で 10 nm 蒸着する。
- (4) リフトオフを行う (図 3-3(e))。

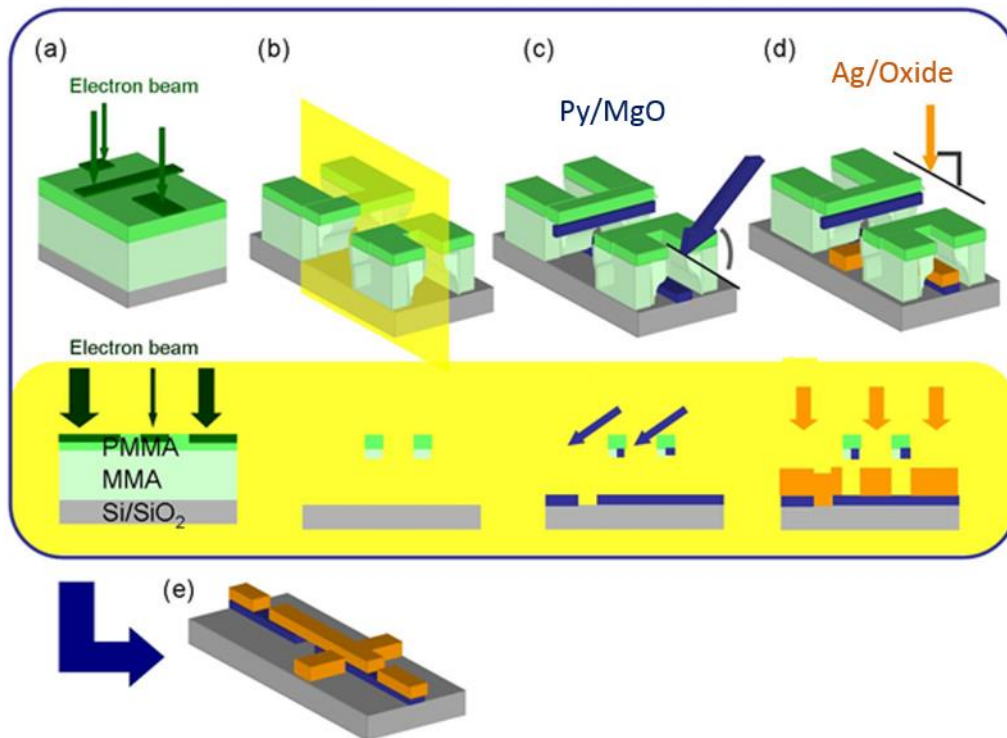


図 3-3 面内スピバルブ素子の作製手順[3-1] (a)EBL (b)現像後の立体レジストマスク (c)Py/MgO の斜め蒸着 (d)Ag/Oxide の蒸着 (e)リフトオフ後の素子

以上のようにして面内スピバルブ素子の作製を行う。

スピポンピング素子、スピントルク強磁性共鳴素子、ホールバーの作製

スピポンピング素子 (Spin pumping 素子: SP 素子)、スピントルク強磁性共鳴素子 (Spin-torque Ferromagnetic resonance 素子: STFMR 素子)、ホールバーはフォトリソグラフィのみの描画で作製が可能である。作製工程が似ているため、併せて紹介する。各素子の工程手順を以下の図 3-4 にまとめた。ここで NM は Ag あるいは Cu、Oxide は Bi_2O_3 あるいは Al_2O_3 である。各工程を以下にそれぞれまとめる。

● Py/NM/Oxide 細線作製 (NM = Ag, Cu, Oxide = Bi_2O_3 , Al_2O_3 , HfO_2 , Gd_2O_3)

本工程は図 3-4 中に示した赤字の(a), (b)の項目に対応する。(a)に関してはフォトリソグラフィにより細線パターンを描画する。その後、以下の行程を行う。

(1) 試料室へ基板ロード

レジストマスクのついた基板をサンプルホルダーにセットし、ロードロック (LL) チャンバーへホルダーをロードする。

	SP素子	STFMR素子	ホールバー
膜構成	Py(5)/Ag(10)/Bi ₂ O ₃ (20) Py(5)/Cu(5-35)/Oxide(100)	Py(5)/Cu(10)/Bi ₂ O ₃ (20)	Py(5)/NM(0-10)/Oxide(20)
作製工程	<p>(a)細線用リソグラフィー (b)細線成膜 (EB 蒸着)</p> <p>↓</p> <p>(c)Cu電極用リソグラフィー (d)Cu電極成膜 (EB 蒸着)</p> <p>↓</p> <p>(e)Al₂O₃絶縁層用リソグラフィー (f)Al₂O₃絶縁層成膜 (スパッタリング)</p> <p>↓</p> <p>(g)Ti/Auウェーブガイド用リソグラフィー (h) Ti/Auウェーブガイド成膜 (EB 蒸着)</p>	<p>(a)細線用リソグラフィー (b)細線成膜 (EB 蒸着)</p> <p>↓</p> <p>(g)Ti/Auウェーブガイド用リソグラフィー (h) Ti/Auウェーブガイド成膜 (EB 蒸着)</p>	<p>(a)細線用リソグラフィー (b)細線成膜 (EB 蒸着)</p> <p>↓</p> <p>(g)Ti/Au電極用リソグラフィー (h) Ti/Au電極成膜 (EB 蒸着)</p>

図 3-4 SP 素子、STFMR 素子、ホールバーの作製工程一覧

(2) 真空引き

まずロータリーポンプによって大気圧からある程度真空に引いた後、ターボ分子ポンプを用いて高真空領域 ($\sim 10^{-7}$ Torr) まで引く。更にクライオポンプにより真空引きを行い、ベースプレッシャーを $\sim 10^{-8}$ Torr 程度にする。

(3) 蒸着(Py)

基板直上に Py をレート 0.05 nm/s 程度で 5 nm 蒸着する。

(4) 試料搬送および真空引き

Py 蒸着後、Ag あるいは Cu の蒸着を行う。その際、Ag は LL チャンバーではなく、メインチャンバー内にターゲットがある。そのため、LL チャンバーからメインチャンバーへサンプルホルダーを搬送し、サンプルホルダーをメインチャンバー側のサンプルマニピュレーターにセットする。蒸着時、マニピュレーターからターゲット間の距離が LL チャンバーと比べて近いこと、ターゲットからの輻射熱によりサンプルホルダーが温まりやすく、レジストがダメージを受ける。そのためホルダー裏側に冷却機構が成されており、液体窒素を冷媒として使用する。メインチャンバーのベースプレッシャーは $\sim 10^{-9}$ Torr 程度である。

(5) Ag or Cu 蒸着

Ag あるいは Cu をレート 0.2 nm/s で蒸着する。メインチャンバーで蒸着した Ag は再

び LL チャンバーへ搬送する。

(6) 蒸着(Oxide)

Bi_2O_3 , Al_2O_3 , HfO_2 , あるいは Gd_2O_3 をレート 0.02 nm/s で蒸着する。

(7) サンプル取り出し

3 層膜の成膜が終了したら、イオンゲージを OFF にし、全ゲートバルブを閉じ、10 分後に大気開放しサンプルを取り出す。

(8) リフトオフ

サンプルをアセトンに浸け、シェイカーで数時間リフトオフを行う。その後、更に素子端に残ったレジストを除去するため、アセトンに浸けた状態で 5 分程度、超音波洗浄を行う。

● Cu 電極作製

細線電圧を検出するための Cu 電極を電子線加熱蒸着によって作製する。本工程は図 3-4 中に示した橙色の(c), (d)の項目に対応する。(c)に関してはフォトリソグラフィによりパターンを描画する。その後、以下の工程を行う。

(1) チャンバー内のベースプレッシャーは $\sim 10^{-7}$ Torr 程度まで真空引きを行う。

(2) Cu をレート 0.2 nm/s 程度で 20 nm 蒸着する。

(3) リフトオフ洗浄を行う。

● Al_2O_3 絶縁層作製

Cu 電極と Ti/Au ウェーブガイド間が導通しないように、 Al_2O_3 絶縁層スパッタリングによって成膜する。本工程は図 3-4 中に示した灰色の(e), (f)の項目に対応する。(e)に関してはフォトリソグラフィによりパターンを描画する。その後、以下の行程を行う。

(1) チャンバー内のベースプレッシャーは $\sim 10^{-6}$ Torr 程度まで真空引きを行う。

(2) Al_2O_3 を 100 nm 蒸着する。

(3) リフトオフ洗浄を行う。

● Ti/Au ウェーブガイド or 電極作製

SP 素子、STFMR 素子についてはウェーブガイドおよび電極作製のため、ホールバーについては電極作製のため Ti/Au を電子線加熱蒸着により成膜する。本工程は図 3-4 中に示した黄色の(g), (h)の項目に対応する。(g)に関してはフォトリソグラフィによりパターンを描画する。その後、以下の行程を行う。

(1) チャンバー内のベースプレッシャーは $\sim 10^{-6}$ Torr 程度まで真空引きを行う。

(2) 始めにバッファーとなる Ti を 0.01-0.02 nm/s 程度で 5 nm 蒸着する。次に Au をレート 0.2 nm/s 程度で 200 nm 蒸着する。

(3) リフトオフ洗浄を行う。

以上が素子作製の一連の流れである。

3-2 非局所スピン注入測定手法

2-1 節で述べた 2 つの強磁性体/非磁性体接合で構成される面内スピバルブ素子を用いて、図 3-5 に示されるような非局所測定を行うことによって非磁性体中のスピン緩和の測定を行う [1-7, 1-19, 1-21, 2-3]。電流印加および電圧測定において、Keithley 社のナノボルトメーター 2182A と電流源 6221 によって実験を行った。更に接合面積 $120 \times 150 \text{ nm}^2$ に対して、 $100 \mu\text{A}$ のパルス電流を複数回印加し、その平均値を測定するデルタ測定モードによって、SN 比の良い信号の測定を行った。図 3-5 に示されるように、面内スピバルブ素子左側の強磁性体 1/非磁性体接合に電流源を接続しパルス電流を印加し、もう片方の強磁性体 2/非磁性体接合にナノボルトメーターを接続し電圧信号を測定する実験を行った。また図 2-3(b) に示したようなスピン信号 ΔR_S を得るため、強磁性体細線長手方向に沿って磁場 H を $\pm 1100 \text{ Oe}$ 程度で掃引を行い、2 つの強磁性体磁化の向きが平行あるいは反平行の状態を作った。また本測定は NAGASE 社の低温測定可能なプローブステーションを用いて、温度 10 K において測定を行った。

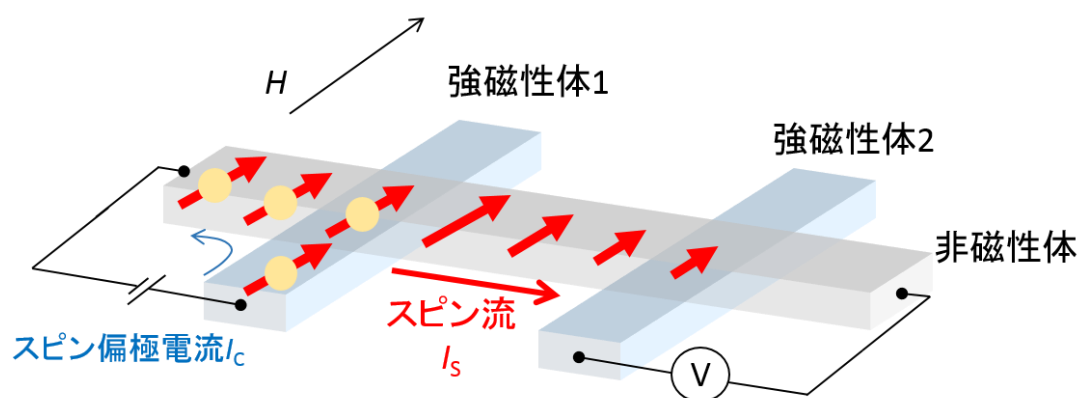


図 3-5 面内スピバルブ素子における非局所測定セットアップ

3-3 スピンポンピング測定手法

次にスピンポンピング測定手法について述べる。本測定用素子は図 3-6 に示されるように、スピン流-電流変換を測定するための Py/NM/Oxide(NM = Ag, Cu, Oxide = Bi₂O₃, Al₂O₃, HfO₂, Gd₂O₃)の 3 層膜で構成された細線 (幅 : 5 μm , 200 μm) およびその横に Py

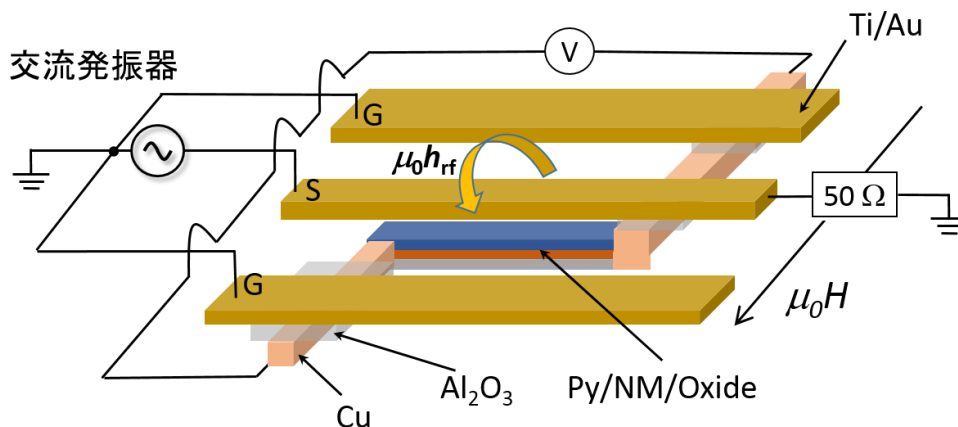


図 3-6 スピンポンピング測定セットアップ

の強磁性共鳴 (Ferromagnetic resonance: FMR) 誘起のための GSG ウェーブガイドで構成される。細線電圧を測定するための Cu 電極とウェーブガイドが短絡しないよう Al₂O₃ 絶縁層を間に挟んである。2-4 節で述べたように、この FMR によって隣接する NM 層および NM/Oxide 界面にスピン流を注入する。まず FMR を誘起するため、ウェーブガイドのシグナルラインに交流発振器から数 GHz の高周波電流を印加する。実際に実験では 5–13 GHz 帯域で、振幅 24 dBm の大きさの rf 電流を印加した。この際、シグナルライン周りに交流磁場が発生し、外部から図 3-6 のように静磁場を印加すると Py 中の FMR が誘起される。電圧測定は 3-2 節同様、ナノボルトメーターを使用した。本実験では全ての測定を室温において行った。

3-4 スピントルク強磁性共鳴測定手法

スピントルク強磁性共鳴測定手法について述べる [2-33, 2-34]。本測定用素子は図 3-7 に示されるように、電流-スピン流変換を測定するための Py(5nm)/Cu(10nm)/Bi₂O₃(10nm) の 3 層膜で構成された細線 (幅 : 20 μm , 100 μm) およびウェーブガイドで構成される。3-3 節のスピンポンピングと同様、Py 中の FMR を誘起するため、測定に交流発振器を用いる。この時、外部から面内静磁場も印加する。印加角度は細線長手方向に対して 45 度および 225 度とする。電流-スピン流変換では長手方向に対して 90 度に印加した場合に変

換効率が最大になり、一方で FMR は長手方向に対して 0 度に印加すると効率が最大になるため、中間の角度である 45 度を使用する。本測定では、細線に直接 rf 電流を流し、同時に電圧を測定出来るようコンデンサーとコイルで構成されたバイアスティーを使用する。電圧測定はナノボルトメーターを使用する。また 2-6 節で述べたように、変換で生成されるスピントルクの大きさを直流電流で変調するため、外部に直流電圧源を接続する。観測される電圧信号スペクトルの解析をし半値幅を求め、各電流密度で測定する。(2.93) 式で示した $\Delta\alpha$ における傾きから電流-スピントルク変換係数の算出を行った。本実験では全ての測定を室温において行った。

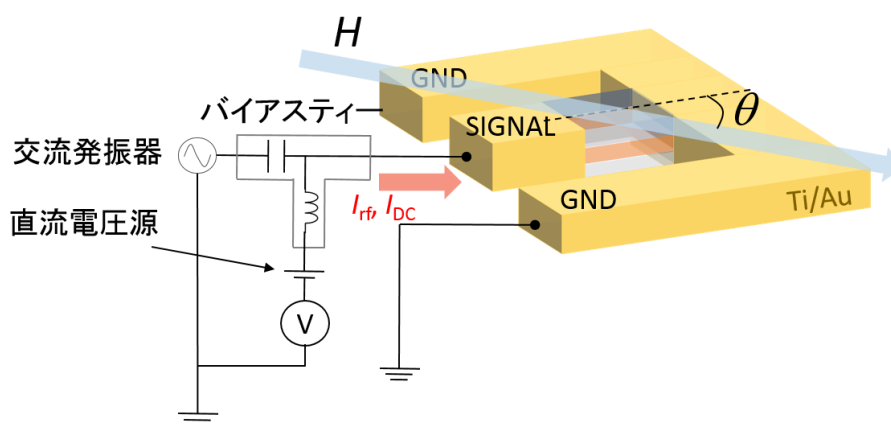


図 3-7 スピントルク強磁性共鳴測定セットアップ

3-5 異常ホール効果測定手法

異常ホール効果の測定手法について述べる。測定のためにまず以下の図 3-8 に示すような Py(5nm)/NM(0.8–10nm)/Oxide(20nm) で構成されたホールバーを用意した。ここで NM は Ag あるいは Cu、Oxide は Bi_2O_3 あるいは Al_2O_3 を指す。NM は膜厚依存性を調べ

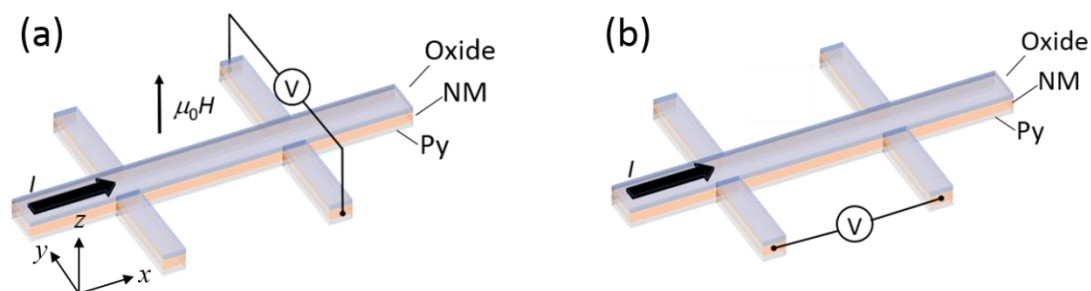


図 3-8 (a)横抵抗、(b)縦抵抗測定セットアップ

るため、ウェッジ成膜されている。素子形状は細線幅 $4\ \mu\text{m}$ 、細線長さ $120\ \mu\text{m}$ である。異常ホール測定では図 3-8(a)に示したように、素子 xx 方向に電流 I を $100\ \mu\text{A}$ 流し、電圧を xy 方向で取った。ここで $+x$ を電流進行方向とした。この時、 Py の磁化を面直方向に向かせるために、外部から面直磁場を $\pm 2\ \text{T}$ までの範囲で掃引した。図 3-8(b)は縦抵抗率 ρ_{xx} 測定のための4端子測定セットアップである。本実験では全ての測定を室温において行った。

第4章

非磁性金属/ビスマス酸化物界面におけるスピン緩和増強効果

1-2節で述べたように、Ag/MgO 界面ではスピン緩和は抑制される事が報告されている。これは構成される非磁性金属/酸化物界面の種類によって界面でのスピン緩和の大きさが異なる事を示唆している。本研究ではそのような背景に着目し、本章の実験を行った[4-1]。本章では面内スピバルブ素子による非局所スピン輸送測定を行い、非磁性金属/酸化物界面におけるスピン緩和を調べた。特に非磁性金属 Ag/ビスマス酸化物界面に発現するスピン緩和の増強効果に着目し、議論を行った。以下にその詳細について述べていく。

4-1 スピン蓄積信号およびスピン拡散長の酸化物界面依存性

本節では図 3-5 に示したような面内スピバルブ素子を用意し、非磁性金属 Ag 中のスピン輸送測定を、温度 10 K において行った[4-1]。まず初めに電子顕微鏡で撮影した、実際に作製したサンプルを図 4-1 に示す。これは 2 つの強磁性金属細線間距離 L が 300 nm のときの素子である。また磁場掃引は強磁性金属細線 Py の長手方向に沿うように行っている。このような素子を用いて、非磁性金属細線 Ag を Bi_2O_3 または Al_2O_3 でそれぞれ覆

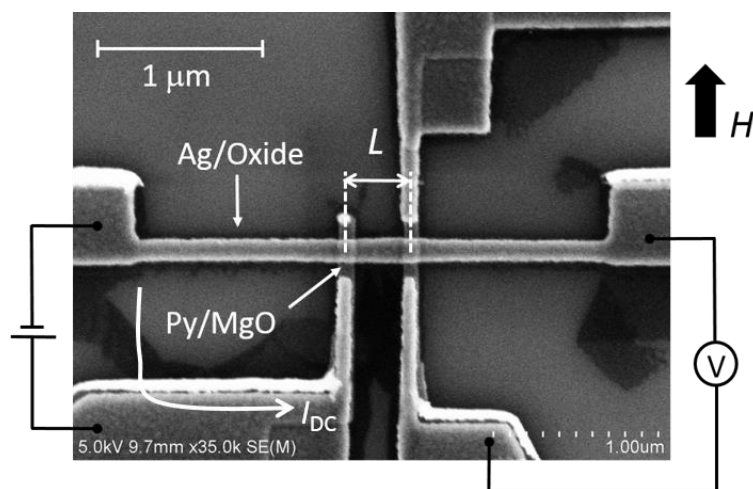


図 4-1 作製した面内スピバルブ素子および測定回路[4-1]

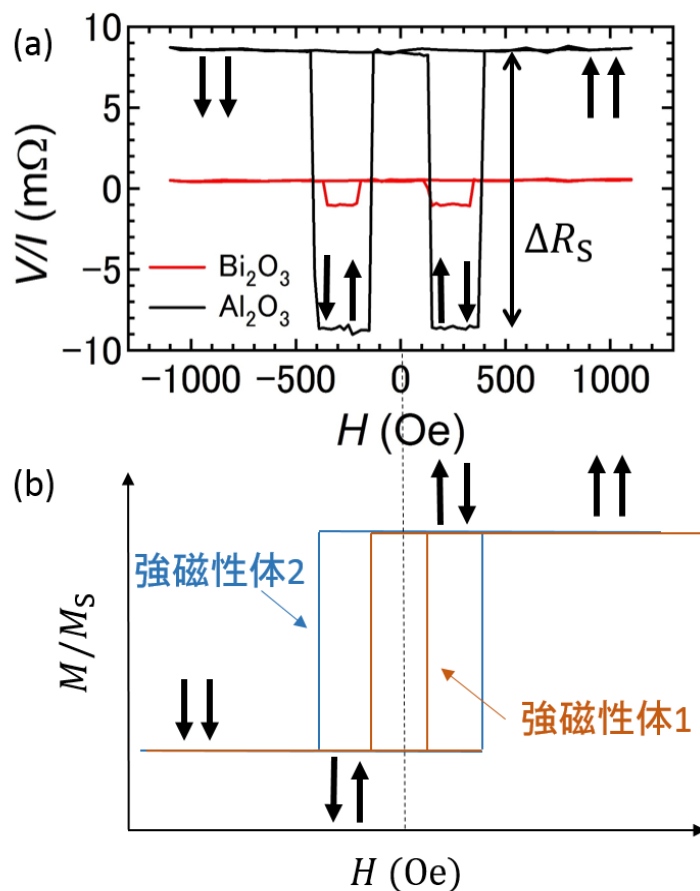


図 4-2 (a) Ag/Bi₂O₃ (赤), Ag/Al₂O₃(黒)素子におけるスピン蓄積信号の磁場掃引依存性[4-1],
 (b)2つの強磁性体細線のヒステリシスカーブの概形

ったスピン蓄積信号の測定結果を図 4-2(a)に示す[4-1]。ここで図 4-2(b)は面内スピバルブ素子を構成する 2 つの強磁性金属細線磁化のヒステリシスカーブを表している。磁化が平行か反平行かの状態を形成する事によって、減衰したスピン蓄積量に相当するスピン信号の測定を行う。図 4-2(a)は検出された電圧を、スピン注入時に印加した電流値で割った抵抗の磁場掃引依存性を表しており、この抵抗の差がスピン信号に相当する。Ag/Bi₂O₃, Ag/Al₂O₃ではそれぞれスピン信号が 1.5 mΩ, 18 mΩとなっており、同じ Ag 中で、同じ距離を伝播したにも関わらず、10 倍も違う値である事が分かる。このスピン信号の測定を様々な強磁性金属細線間距離で行った結果を図 4-3 に示す[4-1]。やはり Ag/Bi₂O₃の素子の場合、スピン信号が急激に減衰している。本結果を、(2.12)式により解析を行い、スピン拡散長の算出を行った。ここで、式中のパラメータは、 $\rho_{Py} = 35 \mu\Omega\text{cm}$, $R_1 = 1 \Omega(\text{Bi}_2\text{O}_3)$, $0.1 \Omega(\text{Al}_2\text{O}_3)$, $\lambda_{sf}^{Py} = 5 \text{ nm}$ [2-3], $P_{Py} = 0.35$ [2-3]により、解析を行った。得られたパラメータは Py/MgO/Ag 接合における Py の界面スピン偏極率 $P_1^{\text{Ag}/\text{Bi}_2\text{O}_3} = 0.23 \pm$

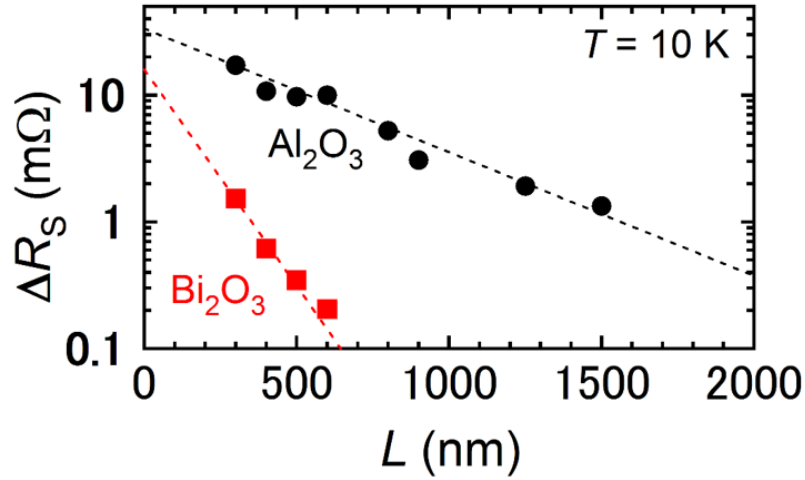


図 4-3 Ag/Bi₂O₃ (赤), Ag/Al₂O₃(黒)素子におけるスピンの蓄積信号の距離依存性[4-1]

0.04, $P_1^{\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3} = 0.20 \pm 0.01$ および Ag のスピンの拡散長 $\lambda_{\text{sf}}^{\text{Ag}/\text{Bi}_2\text{O}_3} = 127 \pm 13 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{sf}}^{\text{Ag}/\text{Bi}_2\text{O}_3} = 450 \pm 44 \text{ nm}$ である。Ag/Bi₂O₃ の場合のスピンの拡散長は、Ag/Al₂O₃ の場合の 1/3 程度であり、従来の Ag のスピンの拡散長に比べ非常に短い。この結果から Ag/Bi₂O₃ 界面においてスピンの緩和の増強効果が発現している事が分かった[4-1]。本結果をより詳細に議論するため、次節でスピンの反転確率の算出を行う。

4-2 界面スピンの反転確率の酸化物界面依存性

4-1 節ではスピンの信号の距離依存性から Ag のスピンの拡散長 $\lambda_{\text{sf}}^{\text{Ag}}$ の算出を行った。この $\lambda_{\text{sf}}^{\text{Ag}}$ を用いてスピンの反転確率を求める。2-2 節で示した Elliott-Yafet スピンの緩和機構における (2.20) 式により、スピンの緩和時間 τ_{sf} および運動量の緩和時間 τ_e から計算する事が出来る。

$$\tau_e = \frac{m_e}{ne^2\rho_{\text{Ag}}} \quad (4.1)$$

$$\tau_{\text{sf}} = \frac{\lambda_{\text{sf}}^{\text{Ag}^2}}{D_{\text{Ag}}} = \lambda_{\text{sf}}^{\text{Ag}^2} e^2 N(\epsilon_{\text{F}}) \rho_{\text{Ag}} \quad (4.2)$$

ここで m_e, n, e, D_{Ag} はそれぞれ電子の質量、電子密度、素電荷、Ag の拡散係数を表す。また $N(\epsilon_{\text{F}})$ は Ag の Fermi 準位における状態密度であり、 $N(\epsilon_{\text{F}}) = 1.55 \times 10^{22} / \text{eV}/\text{cm}^3$ である [4-2]。ここで温度 $T = 10 \text{ K}$ における本実験から得られるスピンの反転確率 ϵ が何に起因しているのかについて考える。(1.1) 式で少し触れたように、スピンの緩和時間と運動量の緩和時間の関

係は、フォノン散乱と不純物散乱による寄与の和で表される。本実験は 10 K で測定を行っているため、フォノン散乱の寄与は無視出来る。不純物散乱項に着目すると、更にグレイン散乱項と表面散乱項に分離する事が出来る。つまり、

$$\frac{1}{\tau_{sf}^{imp}} = \frac{\epsilon_{imp}}{\tau_e} = \frac{\epsilon_{imp}^{grain}}{\tau_e^{grain}} + \frac{\epsilon_{imp}^{surf}}{\tau_e^{surf}} \quad (4.3)$$

となる。ここでパラメータの添字は各散乱項由来である事を指す。実験から実際に得られるスピン反転確率は ϵ_{imp} であるので、式の整理を行うと、

$$\begin{aligned} \epsilon_{imp} &= \left(\frac{\tau_e^{imp}}{\tau_e^{grain}} \right) \epsilon_{imp}^{grain} + \left(\frac{\tau_e^{imp}}{\tau_e^{surf}} \right) \epsilon_{imp}^{surf} \\ &= \left(\frac{\tau_e^{surf}}{\tau_e^{grain} + \tau_e^{surf}} \right) \epsilon_{imp}^{grain} + \left(\frac{\tau_e^{grain}}{\tau_e^{grain} + \tau_e^{surf}} \right) \epsilon_{imp}^{surf} \end{aligned} \quad (4.4)$$

となる。グレイン散乱に比べ、表面散乱が支配的な系、つまり $\tau_e^{surf} \ll \tau_e^{grain}$ という関係であれば、

$$\epsilon_{imp} \approx \epsilon_{imp}^{surf} \quad (4.5)$$

という近似が可能である[4-1]。ここで、本実験で用いた素子および参照データの各パラメータを以下の表 4.1 にまとめた[4-1]。

表 4.1 非磁性金属 Ag を各酸化物で覆った素子の各パラメータ[4-1] (*: [1-21])

MO _x	Z of M	ρ_{Ag} ($\mu\Omega\text{cm}$)	τ_e (fs)	λ_e (nm)	λ_{sf}^{Ag} (nm)	τ_{sf} (ps)	ϵ_{imp} (= τ_e/τ_{sf} $\times 10^{-3}$)
MgO *	12	0.90	68.0	94.5	851	16.2	4.20
Al ₂ O ₃	13	1.50	40.8	56.7	450	7.50	5.41
AgO _x *	47	1.00	61.2	85.1	667	11.0	5.54
HfO ₂	72	0.79	77.5	108	692	9.40	8.25
Bi ₂ O ₃	83	1.80	34.0	47.3	127	0.70	47.2

ここでZ, λ_e はそれぞれ酸化物中金属の原子番号、Ag 中の電子の平均自由行程である。表 4.1 の λ_e を見ると、いずれの場合も Ag 細線膜厚 50 nm と同程度かそれ以上である。これは、グレイン散乱よりも表面散乱が支配的である系を意味しており、(4.5)式が成立する事を意味する。つまり実験的に得られる ϵ_{imp} は表面散乱起因の値である事を意味する。

Ag/MgO の場合は前述したように表面散乱が抑制される事が報告されているため[1-21]、この場合の値を基準値とし、正味の表面散乱由来のスピン反転確率を $\epsilon_{\text{surf}} = \epsilon_{\text{imp}} - \epsilon_{\text{imp}}^{\text{MgO}}$ とする。この ϵ_{surf} を各酸化物の場合でまとめたグラフを以下の図 4-4 に示す[4-1]。Ag/Al₂O₃、Ag/AgO_x (自然酸化膜)、Ag/HfO₂ の 3 つの場合では、何れの場合も値が異なり、酸化物依存性が存在する事が分かる。しかしながらその値はどれも 10⁻³ オーダーである。この大きさは通常 Elliott-Yafet 機構で議論される非磁性金属 Ag 中のスピン反転確率と同程度[2-3]であるので、酸化物界面における電子散乱が起源となって現れたスピン緩和であると理解出来る。一方で注目すべき点は Ag/Bi₂O₃ 界面の場合である。他の酸化物界面と比べ、スピン反転確率が一桁大きく、これは Ag 中の電子散乱によるスピン緩和では説明できない結果であり、何か別の機構によって現れたスピン緩和増強効果であると考えられる[4-1]。次節でこの増強効果の起源について議論を進める。

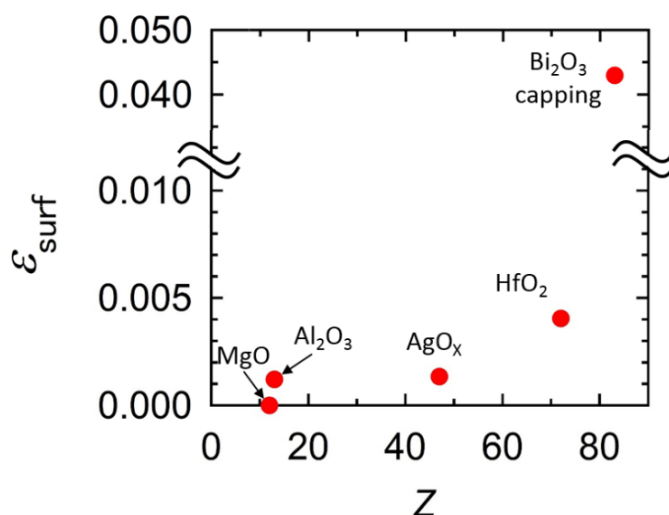


図 4-4 界面スピン反転確率の酸化物依存性 [4-1]

4-3 スピン緩和増強効果の起源

本節では 4-2 節で述べた Ag/Bi₂O₃ 界面に発現していると考えられるスピン緩和の増強効果の起源について述べる[4-1]。この起源は Ag/Bi₂O₃ 界面に存在する Rashba 効果に由来しているものと考えられる。Ag/Bi₂O₃ 界面と類似した Ag(111)/Bi 界面 (Ag(111)/ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ Bi 表面合金系) では Rashba 係数 $\alpha_R = 3.0 \text{ eV \AA}$ 程度の巨大な Rashba 効果が発現している事が報告されている[2-11]。これは 2-3 節で示した Cu(111)/Bi 界面と同様に、Bi 原子核周りに形成される電子雲の偏りが原因で現れる効果である[2-18]。本研究で用いた Ag/Bi₂O₃ 界面でも同様の Rashba 効果が現れるかをまず初めに述べる。Ag/Bi₂O₃ 界面は 3-1 節で述べたように、2 層とも電子線加熱蒸着法により成膜しているため、何れも多結

晶化していると考えられる。特に Rashba 効果が現れる界面の結晶性にとって Ag 表面の平坦性は重要であるため、Ag/Bi₂O₃ 界面は Ag(111)/Bi 界面とは大分様相が異なるかのように思われる。しかしながら Ag は面心立方格子構造で構成される結晶であるので、(111) 方位が最密面であり、実際に他の方位(100), (110)と比べ、表面エネルギーが一番低い事が知られている[4-3]。よって Ag 表面に限っては(111)配位を好んで取り得る。実際に Ag 表面の結晶性を低角入射 X 線回折で調べた結果を図 4-5 に示す。測定を行ったサンプルは Py(5nm)/Ag(20nm)/Bi₂O₃(30nm)の 3 層膜である。2θ = 38 degの時にピークが観測されており、これは図 4-6 の Ag 多結晶のデータベース[4-4]を参照すると Ag(111)のピークに対応する。Ag が多結晶であれば Ag(200)のピークも 2θ = 44 degの所で観測されるべきであるがピークは全く見られない。この結果から Ag 表面は(111)配向が優位であると考えられる事が出来る。

また Bi₂O₃ の関連性について述べる。Bi₂O₃ はギャップが約 2-3 eV 程度のバンド絶縁体であり、特に室温ではα-Bi₂O₃ となり、以下の図 4-7 に示すようなバンド構造を有する事が知られている[4-5]。Bi₂O₃ と Ag が接合すると、両物質の Fermi 準位が揃い、Bi₂O₃ の

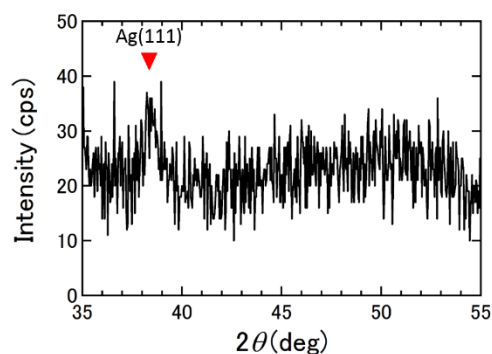


図 4-5 Py/Ag/Bi₂O₃ の 3 層膜における X 線回折パターン

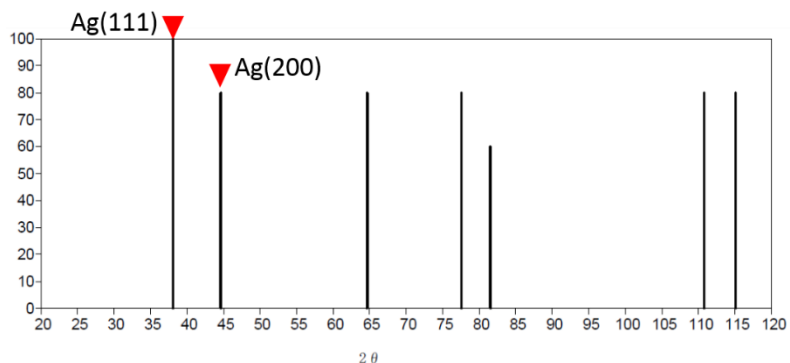


図 4-6 データベースにおける多結晶 Ag の回折パターン[4-4]

伝導帯は Fermi 準位から 1.5 eV 以下の非常に近い位置に形成される。この伝導帯は Bi 6p 軌道から生成されるので、この Bi の軌道と Ag の sp バンドが混成する事により、Bi 原子核周りにできる電子雲の偏りが発生する可能性がある[4-6]。総じて Ag/Bi₂O₃ 界面においても Rashba 効果が発現する可能性があるとして唆される。

次に Rashba 効果が界面に存在する場合に、何故スピン緩和の増強効果が発現するかについて述べる。2-4 節中の図 2-8(a)に示したように、Rashba 系ではスピン偏極方向が運動量に依存するスピン-運動量ロッキング現象が存在する。このような状況下において、スピンは電子散乱と同時間スケールで緩和してしまう。通常、表 4.1 に示したように非磁性金属中ではスピン緩和時間が ps オーダーであるのに対し、金属中の電子散乱は fs オーダーと非常に短い時間で起こる。そのため本研究で観測したスピン緩和増強効果が現れたものと考えられる。

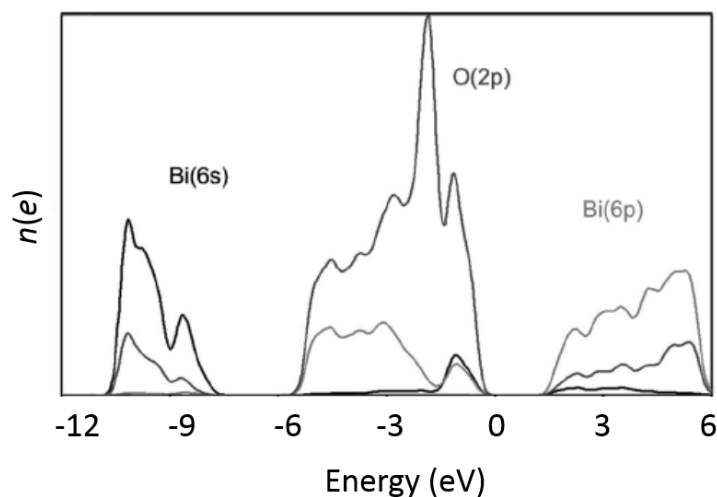


図 4-7 α -Bi₂O₃ のバンド構造[4-5]

第 5 章

非磁性金属/ビスマス酸化物界面におけるスピン流-電流変換

第 4 章では非磁性金属/酸化物界面におけるスピン緩和を調べ、特に非磁性金属/ビスマス酸化物界面ではスピン緩和の増強効果が発現している事が分かった。この効果が Rashba 効果由来である事をより明確にするために、2-4 節で述べた Rashba 系で引き起こされるスピン流-電流相互変換現象：Edelstein 効果および逆 Edelstein 効果を観測を試みた。また、もし変換が可能であれば、新たなスピン流生成・検出を行う事が可能な系の創生にも繋がる。本章ではまず初めに Rashba 系におけるスピン流-電流変換である逆 Edelstein 効果に関する実験について述べる[5-1]。

5-1 スピンポンピング法によるスピン注入および検出電圧信号

スピン流-電流変換を検出するにあたって、スピン流注入手法として、冒頭の 2-5 節で紹介したスピンポンピング手法を用いた。また測定系としては 3-3 節で述べたように、強磁性共鳴を誘起するため、図 3-6 に示されるような測定細線横にウェーブガイド構造を作製した。まず初めに、Py/非磁性金属 (Ag or Cu) / Bi_2O_3 の三層構造における検出電圧結果を図 5-1 に示す[5-1]。ここで横軸は比較のため、印加した静磁場を共鳴磁場との差分で示している。 $\text{Ag}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Cu}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 何れの場合も明瞭な電圧スペクトルの観測に成功した。 Ag および Cu はスピン軌道相互作用が弱いため、これらの物質中で引き起こされるスピン流-電流変換（逆スピンホール効果）は非常に小さい。また Bi_2O_3 自体はバンド絶縁体であるため、伝導電子スピン流が流れ込む事は不可能である。一方で Bi_2O_3 中の Bi が非磁性金属中へ拡散した事により、合金が形成され現れた外因性の逆スピンホール効果[5-2]である事が疑われる。この点に関しては、 Bi_2O_3 がある場合とない場合において、非磁性金属の抵抗率がほとんど変わらない事から無視できると考えられる。よって本結果は (Ag or Cu) / Bi_2O_3 界面で起こったスピン流-電流変換（逆 Edelstein 効果）である可能性が非常に高いと考える事が出来る。ここで $\text{Ag}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ および $\text{Cu}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ の場合で検出電圧の符号が反転している事が分かる。これは変換係数の符号が $\text{Ag}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ (正)および $\text{Cu}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ (負)の場合で逆であることを意味する。(2.54)式に示したように、変換係数 λ_{IEE} は Rashba 係数 α_{R} に依存するため、 α_{R} の符号が逆であることを示唆している。残念ながら Ag と Cu の間で、何が

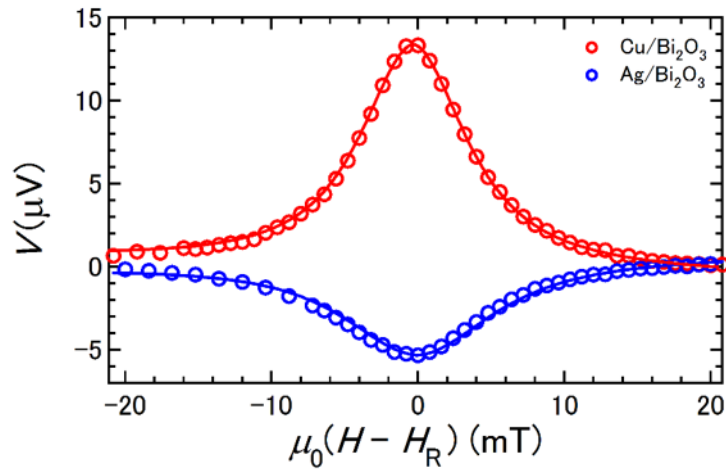


図 5-1 Py/Ag/Bi₂O₃ (青), Py/Cu/Bi₂O₃(赤)素子における検出電圧[5-1]

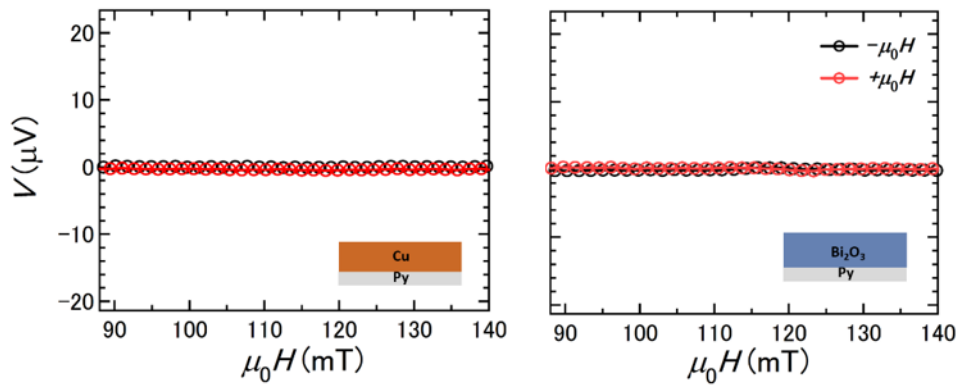


図 5-2 Py/Cu, Py/Bi₂O₃素子における検出電圧[5-1]

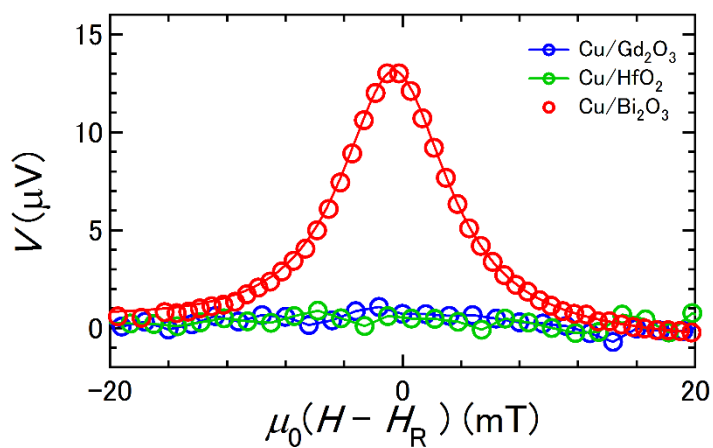


図 5-3 Py/Cu/Bi₂O₃ (赤), Py/Cu/Gd₂O₃(青), Py/Cu/HfO₂(緑)素子における検出電圧

このような違いを生じているのか現状不明である。次に Cu/Bi₂O₃ 界面の場合に大きな出力を得たことから、本界面系を用いて以降の研究を行った。Cu/Bi₂O₃ 界面の存在が重要であ

る事を示すために、Py/Cu および Py/Bi₂O₃ の 2 層膜系のスピンプンピング測定の結果を図 5-2 に示す[5-1]。いずれの場合においてもスピンプン流・電流変換による電圧は検出されなかった。また、Bi₂O₃ 以外の酸化物で逆 Edelstein 効果が生じるかも興味深い。4-3 節で述べたような重金属との軌道混成によって巨大な Rashba 効果が発現するの否かを調べるため、スピンプン相互作用の大きい重金属で構成された酸化物 HfO₂ および Gd₂O₃ についてスピンプンピング測定を行った結果を図 5-3 に示す。Cu/HfO₂, Cu/Gd₂O₃ 何れの場合も電圧は観測されなかった。これは界面における Cu の伝導電子と重金属の軌道混成が重要であることを示唆する結果である。HfO₂, Gd₂O₃ の場合では以下の図 5-4(a), (b) のようなバンド構造となる事が報告されている[5-3, 5-4]。大きなスピンプン相互作用をもたらす Gd 4f 軌道および Hf 5d 軌道が形成するバンドはいずれも Fermi 準位から遠い位置にあり、Cu の伝導電子と軌道混成が起こりにくい事が考えられる。以上、これまでに示してきた結果は Cu/Bi₂O₃ 界面の存在が逆 Edelstein 効果発現のために重要であることを示している。

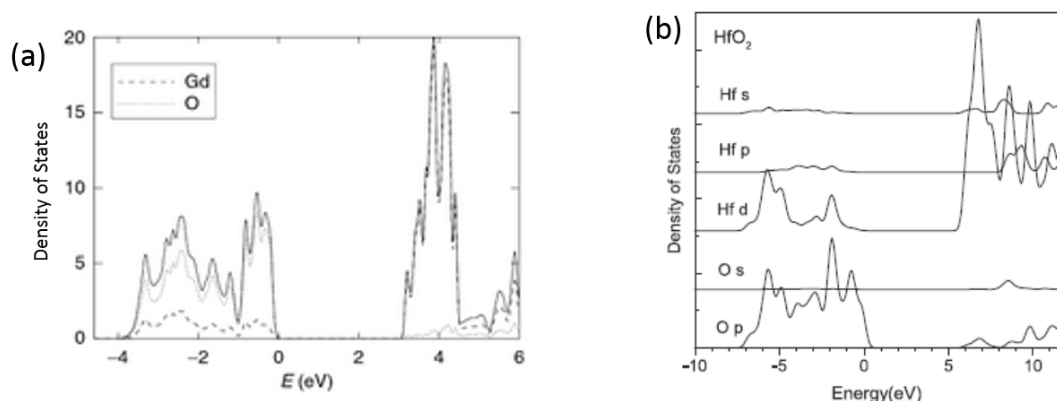


図 5-4 (a)Gd₂O₃[5-3]および(b)HfO₂[5-4]のバンド構造

5-2 ダンピング定数の周波数依存性および Kittel の関係

5-1 節では Cu/Bi₂O₃ 界面でスピンプン流・電流変換が引き起こされる事が分かった。実際に注入されるスピンプン流密度の算出を行うため、ダンピング定数や飽和磁化の解析を行う必要がある。そのため、FMR 吸収スペクトル半値半幅および共鳴磁場の周波数依存性の測定を行った。図 5-5 にその結果を示す[5-1]。

図 5-5(a) に示した半値半幅 $\mu_0 \Delta H$ の周波数依存性に対して以下の(5.1)式を用いてダンピング定数 δ を解析する。

$$\mu_0\Delta H(f) = \mu_0\Delta H(0) + \frac{2\pi\delta}{\gamma_e} f \quad (5.1)$$

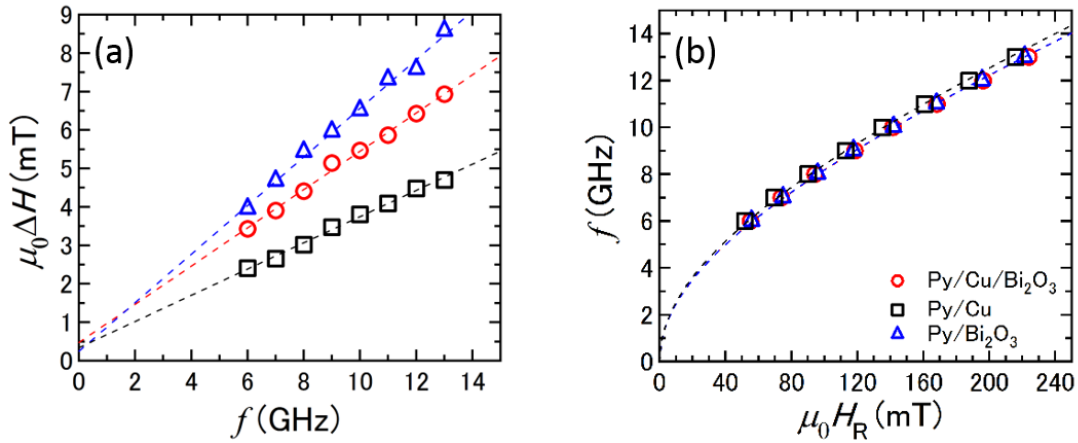


図 5-5 Py/Cu/Bi₂O₃(赤)、Py/Bi₂O₃(青)、Py/Cu(黒)における
(a)FMR スペクトル半値半幅の周波数依存性[5-1]、(b)共鳴磁場の周波数依存性[5-1]

ここで、 $\gamma_e = g\mu_B/\hbar$ は電子の磁気回転比、 $\mu_0\Delta H(0)$ は半値半幅のオフセットを表す。更に g , μ_B , \hbar はそれぞれ Lande の g 因子($g = 2.1$)、Bohr 磁子、Dirac 定数を表す。(5.1)式に基づいて各素子のダンピング定数 δ を解析すると、Py/Cu/Bi₂O₃, Py/Bi₂O₃, Py/Cu の場合でそれぞれ $\delta = 0.0140, 0.0173, 0.0095$ となる。Py/Cu の場合、図 5-2 で示したように、逆スピンホール効果が観測されなかった事から、Py の内因的なダンピング定数であると考えられる。それに比べ Py/Cu/Bi₂O₃ の場合はダンピング定数が大きくなっている。これは Cu/Bi₂O₃ 界面のスピ軌道相互作用によってスピ流が消費される事により、ダンピングしたと理解できる。一方で Py/Bi₂O₃ の場合はスピポンピング測定で電圧が観測されなかったにも関わらず、ダンピング定数が一番大きい。これは Py に Bi₂O₃ が直接的に接合しているため、Bi の強いスピ軌道相互作用の近接効果によってダンピングが強められたと推測される。また本測定で用いた Py は 5 nm の膜厚であるため、磁気結合長 15 nm[5-5] よりも短く、Py 中で一様にダンピングが起こったため Py 中にスピ流が流れず、逆スピンホール効果由来の電圧が観測されなかったと考えられる。

続いて飽和磁化 $\mu_0 M_S$ の解析を行った。図 5-5(b)に示した結果をもとに、以下の(5.2)式に示す Kittel の関係式[5-6]を用いると、

$$f = \frac{\gamma_e}{2\pi} \sqrt{\mu_0 H_R (\mu_0 H_R + \mu_0 M_S)} \quad (5.2)$$

Py/Cu/Bi₂O₃, Py/Bi₂O₃, Py/Cu の何れの場合も、Py の飽和磁化 $\mu_0 M_S$ は 0.75 T 程度となる。この値は従来スピンプンピング実験等で報告されている Py の飽和磁化の値と同程度である[5-7]。

次にスピンドensityを算出するため、スピスキシング伝導度を算出する必要がある。2-5節で登場したスピスキシング伝導度は現象論的には以下の(5.3)式のように記述することが出来る[5-8]。

$$g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} = \frac{4\pi M_S t_F}{g\mu_B} (\delta_{F/N/O} - \delta_{F/N}) \quad (5.3)$$

ここで $\delta_{F/N/O}$, $\delta_{F/N}$ はそれぞれ Py/Cu/Bi₂O₃、Py/Cu の場合のダンピング定数を表す。この式に基づいてスピスキシング伝導度を計算すると、 $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} = 1.0 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$ となる。この値は Py/Pt の 2 層膜系と同程度の値[5-9]であり、Cu/Bi₂O₃ 界面の強いスピ軌道相互作用を示唆する結果である。このスピスキシング伝導度を用いて、注入されたスピンドensityを算出する。2-5 節で述べたように、通常スピンプンピングにおける注入スピンドensityは(2.80)式で表される。しかしながら本研究では、スピンドensityが Cu 中を経て Cu/Bi₂O₃ 界面に到達するため、Cu 中でのスピンドensityの減衰を考慮する必要がある。そのため、(2.80)式に指数関数の減衰項を付け加え、以下の(5.4)式のような注入スピンドensityを考える[5-1]。

$$J_s = \frac{2e}{\hbar} \times \frac{\hbar g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \gamma_e^2 (\mu_0 h_{\text{rf}})^2 [\mu_0 M_S \gamma_e + \sqrt{(\mu_0 M_S)^2 \gamma_e^2 + 4\omega^2}]}{8\pi \delta_{F/N/O}^2 [(\mu_0 M_S)^2 \gamma_e^2 + 4\omega^2]} \times \exp\left(-\frac{t_N}{\lambda_{\text{sf}}^N}\right) \quad (5.4)$$

ここで h_{rf} , $\omega = 2\pi f$ はそれぞれ印加する rf 磁場、角振動数を表す。今、室温測定でフォノン散乱が支配的な系である事を考えると、Cu のスピンドensity拡散長は $\lambda_{\text{sf}}^N \propto 1/\rho_{\text{Cu}}$ と表せると仮定する。室温において、Cu の抵抗率が $3 \mu\Omega\text{cm}$ の時、スピンドensity拡散長は $\lambda_{\text{sf}}^N \approx 300 \text{ nm}$ 程度となる報告[5-10]があるので、本研究で用いた Cu の抵抗率と先行研究の抵抗率の比を取ることでスピンドensity拡散長の見積もりが出来る。5-3 節で示すが、Cu の抵抗率は Cu の膜厚に依存するため、スピンドensity拡散長も膜厚に依存する。しかしながら何れの場合もスピンドensity拡散長は 100 nm を超えており、Cu 膜厚とスピンドensity拡散長の比が変数である指数関数の減衰項はほぼ一定であるため、本来のスピンドensity密度に殆ど変化は現れない。(5.4)式を用いて実際にスピンドensity密度を計算すると、約 24 MA/m²程度となる。

5-3 スピンドensity-電流変換係数 λ_{IEE} の非磁性金属膜厚依存性

5-2 節ではダンピング定数および飽和磁化の解析により、注入されるスピンドensity密度の大きさを見積もった。スピンドensity-電流変換を議論する上で、検出された電流密度の算出も必要となる。本節ではその電流密度の見積もり法を述べ、注入スピンドensity密度と検出電流密度の

比を取ることで得られるスピン流-電流変換係数：逆 Edelstein 係数の算出を行う。更により詳細な議論を行うため、Cu の膜厚依存性も調べたので、その結果も併せて示す。

まず検出電流密度の算出方法について述べる。実験から得られた図 5-1 の結果は界面で生成された電流が系全体を流れた事により検出された電圧である。そのため、2 次元電流密度 j_C として扱う必要があり、以下の(5.5)式のように表す事が出来る[5-1]。

$$j_C = \frac{I_C}{w} = \frac{V}{wR_{tot}} \quad (5.5)$$

ここで I_C は検出電流、 w は細線幅、 V は検出電圧、 R_{tot} は細線全体の抵抗である。

この計算により得られる 2 次元電流密度 j_C [A/m] および 3 次元スピン流密度 J_S [A/m²] の比を取ることで、逆 Edelstein 係数 $\lambda_{IEE}(= j_C/J_S)$ が求まる。電流密度とスピン流密度の次元の違いにより、逆 Edelstein 係数は長さの次元を有する。これは、バルク中のスピン流-電流変換である逆スピンホール効果の変換効率：スピンホール角（無次元量）とは異なる点である。

以上に述べてきたようなスピン流密度、電流密度、変換係数の関係から本研究で用いた Cu/Bi₂O₃ 界面の結果をまとめた。以下の図 5-6 にそれらの Cu 膜厚依存性を示す[5-1]。図 5-6(a) は注入した 3 次元スピン流密度の Cu 膜厚依存性を表す。Cu 膜厚 $t_{Cu} = 0$ nm は Py/Bi₂O₃ の場合であり、電圧が検出されなかった事から注入スピン流密度を 0 としている。またスピン流密度は Cu 膜厚に依存しない傾向が見て取れる。これは、Cu 中でスピン流の減衰が殆ど無く、界面でスピン流が消費された事を示唆している結果である。次に図 5-6(b) は検出 2 次元電流密度の Cu 膜厚依存性を表す。Cu の膜厚に強く依存している傾向が見られる。同様に図 5-6(c) に示した逆 Edelstein 係数も電流密度により、膜厚依存している。この原因について次の 5-4 節で言及する。

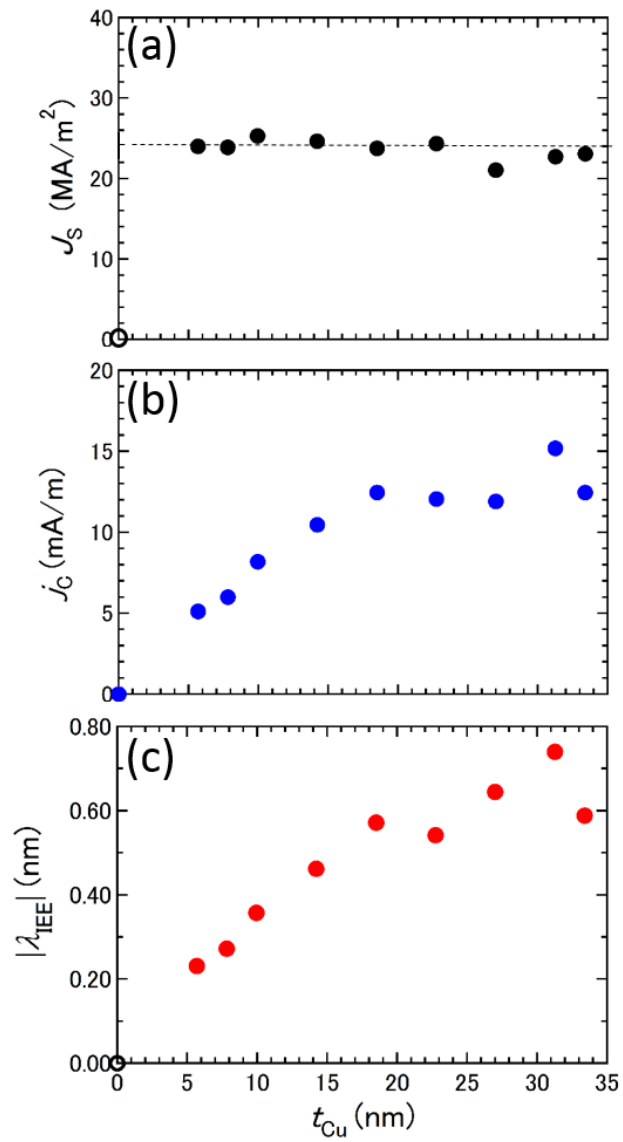


図 5-6 (a)注入スピンの流密度、(b)検出電流密度(青)、(c)逆 Edelstein 係数(赤)の Cu 膜厚依存性[5-1]

5-4 バルク非磁性金属の運動量緩和の影響、および非磁性金属/ビスマス酸化物界面の Rashba 係数の見積もり

5-3 節ではスピン流-電流変換の大きさを表す逆 Edelstein 係数が Cu 膜厚に強く依存している事を示した。この原因を考えるため、まず 2-4 節で示した(2.54)式を振り返る。逆 Edelstein 係数 λ_{IEE} は Rashba 係数 α_R と界面における運動量緩和時間 τ_e^{int} で決定される事が分かる。通常、Rashba 系やトポジカル絶縁体の表面状態などの 2 次元電子系での運動量緩和時間は ps オーダーである事がポンププローブ光測定から知られている[5-11, 5-12]。弾性散乱が生じると仮定すると、これはスピン-運動量ロッキング現象により、電子の後方散乱が起こりにくい事に由来する。一方で金属中の運動量緩和時間は fs オーダーである。今、対象である Cu/Bi₂O₃ 界面は Cu 層に隣接している。そのため、界面の運動量緩和が Cu 中の運動量緩和に強く影響を受ける事は十分に考えられる。以下の図 5-7 に逆 Edelstein 係数 λ_{IEE} と Cu の抵抗率 ρ_{Cu} および Cu 中の運動量緩和時間 τ_e^{Cu} の Cu 膜厚依存性

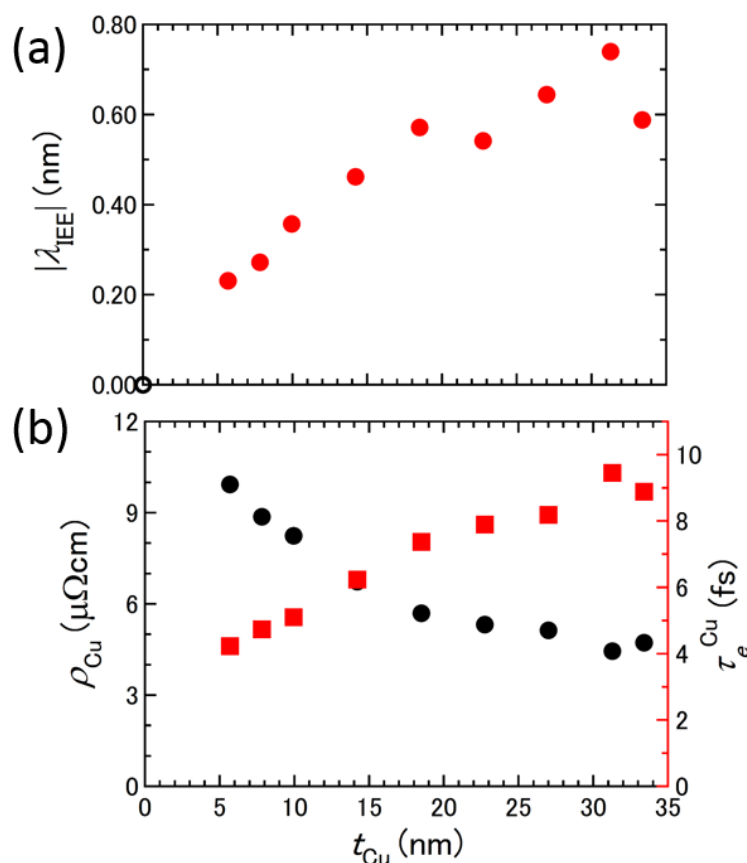


図 5-7 (a)逆 Edelstein 係数および(b)Cu の抵抗率(黒), 運動量緩和時間(赤)の Cu 膜厚依存性[5-1]

を示す[5-1]。

逆 Edelstein 係数と Cu の運動量緩和時間はよく似た傾向である事が分かる。この結果からも Cu の運動量緩和時間、つまり Cu 中の運動量緩和が Cu/Bi₂O₃ 界面でのスピン流・電流変換に影響を及ぼしている事が推測される。ここで界面での運動量緩和時間は Cu の運動量緩和時間で決定されていると仮定し、(2.54)式において界面の運動量緩和時間 τ_e^{int} を Cu の運動量緩和時間 τ_e^{Cu} で代用すると、界面の Rashba 係数 α_R が算出出来る。その見積りにより得られた Rashba 係数の Cu 膜厚依存性を図 5-8 に示す[5-1]。Rashba 係数は Cu の膜厚に依存しない事が分かる。この結果から、どの Cu の膜厚においても Rashba 界面は一様に形成されており、Cu の強い運動量緩和の影響により、逆 Edelstein 係数に Cu 膜厚依存性が現れたと考えられる。得られた Rashba 係数の大きさは $0.46 \pm 0.06 \text{ eV \AA}$ である。この大きさは、類似した Cu(111)/Bi 系の 1.00 eV \AA [2-18]の半分程度の大きさであり、同オーダーの強度である事が分かる。値が半分になった理由としては、Cu 上に Bi が配位する際の違いや、Bi₂O₃ 中の酸素の高い電気陰性度により Bi 原子核周りに形成される電子雲が減少してしまったためであると推測される。

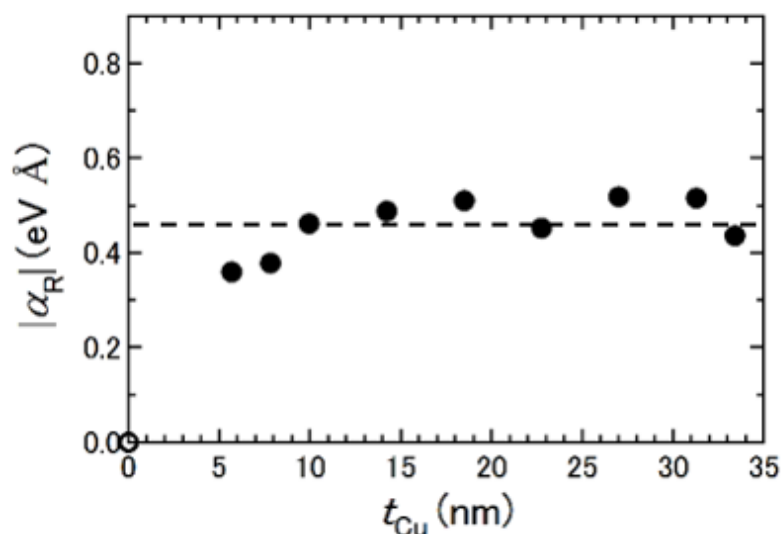


図 5-8 Rashba 係数 α_R の Cu 膜厚依存性[5-1]

5-5 Cu/Bi₂O₃ 界面の結晶性および Rashba スピン分裂

これまで 5 章では非磁性金属/ビスマス酸化物界面、特に Cu/Bi₂O₃ 界面における逆 Edelstein 効果について述べてきた。この効果は Rashba 効果由来であると考えられる事から、実際に Cu/Bi₂O₃ 界面が Rashba 効果を有しているかは大変興味深い。そこで、本界面の結晶性の観察およびエネルギー分散測定を行い、Rashba 効果の存在の確認を行ったので

本節で紹介する。

まず初めに $\text{Cu}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 界面の結晶性について述べる。 $\text{Py}(5\text{nm})/\text{Cu}(20\text{nm})/\text{Bi}_2\text{O}_3(20\text{nm})$ の3層膜構造を観察した。界面の結晶性を明らかにするために、測定ではX線回折および低角度入射X線回折を用いた。X線回折により得られる回折ピークパターンを以下の図5-9に示す。

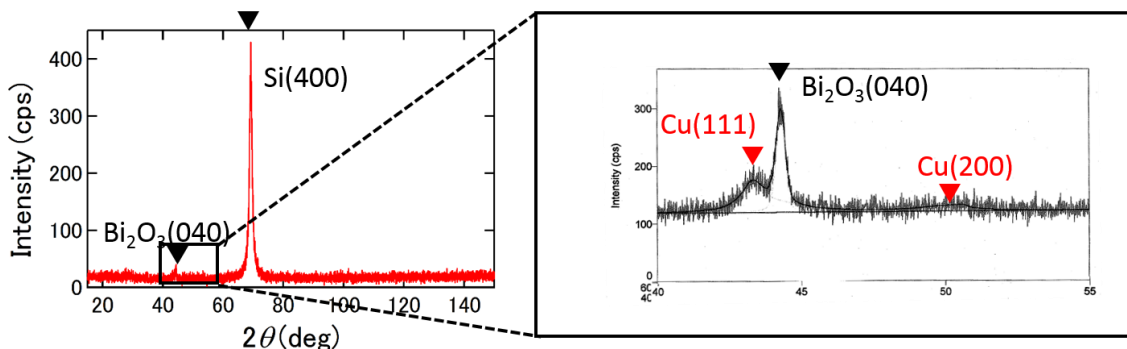


図 5-9 $\text{Py}/\text{Cu}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ の3層膜におけるX線回折パターン

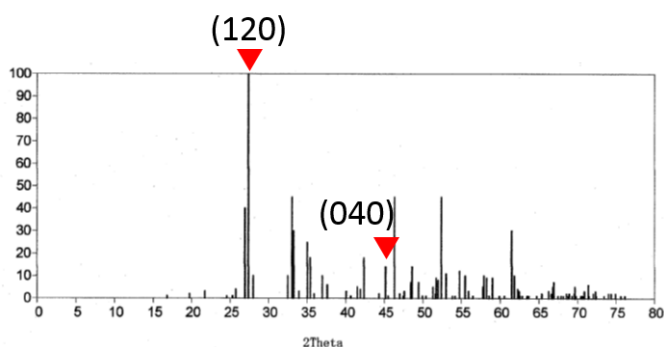


図 5-10 データベースにおける多結晶 Bi_2O_3 の回折パターン[5-13]

$\text{Cu}(111)$ 、 $\text{Bi}_2\text{O}_3(040)$ 、 $\text{Cu}(200)$ のピークパターンが観測されている事が分かる。ここで Bi_2O_3 の結果に着目すると、(040)のピークが強く出ており、シングルピークである。本来 Bi_2O_3 は多結晶であれば図5-10に示したように $2\theta = 27\text{ deg}$ 付近に(120)が強く現れるが、(040)のみ観測された事から(040)配位の単結晶であると考えられる。次に Cu の結晶性について述べる。X線回折測定では(111)と(200)のピークが現れているので、 Cu 全体が多結晶で構成されている事が分かる。本研究では $\text{Cu}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 界面の結晶性を知る必要があるため、特に Cu 表面近傍の結晶性を観察する必要がある。そこでX線を膜面内に対して低角度で入射するX線回折によりそれを明らかにする。以下の図5-11に低角度入射X線回折ピークパターンを示す。

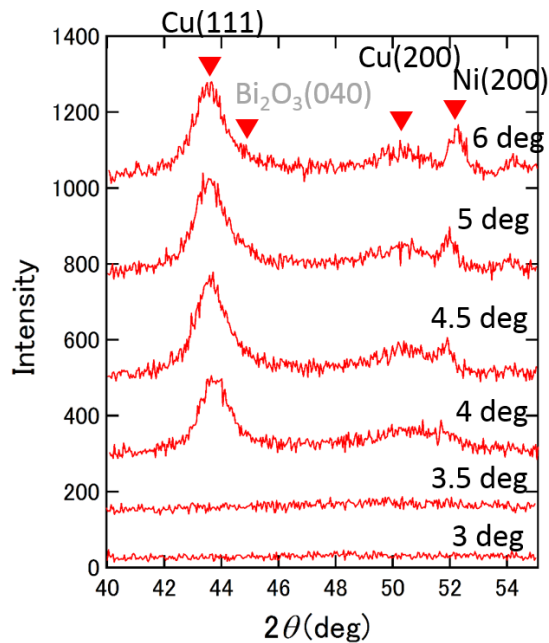


図 5-11 Py/Cu/Bi₂O₃ の 3 層膜における低角度入射 X 線回折パターン. 入射角度 3, 3.5, 4, 4.5, 5, 6 deg の場合の結果

X 線入射角度 3, 3.5 deg の場合は膜に対して入射が浅すぎるため、X 線が全反射を起こし、ピークは観測されない。4.5, 5, 6 deg の場合は Ni(200)ピークが見られる事から、3 層膜全体の結晶性を観測している事が分かる。一方で 4 deg の場合は Ni ピークが消失している事から Cu/Bi₂O₃ 界面近傍の結晶性を捉えている事が分かる。この時のピークを見ると、Cu(200)に比べ Cu(111)が強く現れている。つまり Cu/Bi₂O₃ 界面近傍では Cu(111)配向を好んで取っていると推測される。この結果は、Cu の表面エネルギーが(111)配位で一番小さくなる理論計算[5-14]と整合性が取れている。以上をまとめると界面近傍では、Cu(111)/Bi₂O₃(040)の結晶性である事が分かった。

次にそのような結晶性を有した界面系で Rashba 効果が発現しているかどうかは興味深い。よって角度分解高電子分光測定によって本界面のエネルギー分散を調べた結果について述べていく。本測定は東京大学 小森研究室との共同研究であり、実験はまだ続いている状況であるが、現状観測されている結果を図 5-12 に示す。実験では Cu(111)基板を用いて、その上に初めに Bi を成膜し、その後酸素雰囲気下で Bi を酸化させ、BiO_xを形成した。実験では Cu(111)清浄面のエネルギー分散が金属的な放物線を取ることを確認後、Cu 上へ BiO_xの成膜を行い、分光測定を行った。図 5-12 は観測された Cu/BiO_x 界面状態のエネルギー分散であり、明瞭な Rashba スピン分裂が観測されている。この分裂幅から算出される Rashba 係数は約 0.89 eVÅ であり、本章でスピンプンピング実験により見積もつ

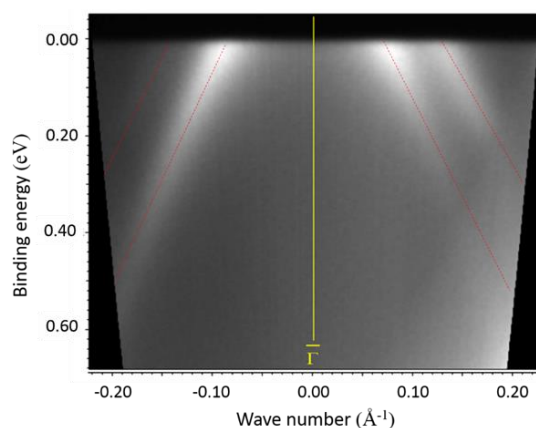


図 5-12 Cu/BiO_x のエネルギー分散

た値の 2 倍程度となる事が分かった。また本界面系と類似した Cu(111)/Bi 界面では Rashba 係数が 1.00 eVÅ 程度になる事が報告されており [2-18]、その値とも異なった値となっている。現状、同一界面が形成されているかなどが定かではないため、酸素量などを制御しながら様々な条件で実験を行い、検討を行っている。いずれにしても同オーダーである事からスピンプンピング実験により得られた値はある程度妥当性のある結果である事が分かっている。

第 6 章

非磁性金属/ビスマス酸化物界面における電流-スピン流変換

第 5 章では非磁性金属/ビスマス酸化物界面におけるスピン流-電流変換現象に関して述べた。通常、遷移金属などのバルク中で生じる電流-スピン流変換であるスピントルク効果は、Onsager の相反性[6-1]により、スピン流-電流変換である逆スピントルク効果も生じる。本研究で扱う非磁性金属/ビスマス酸化物界面におけるスピン流-電流変換である逆 Edelstein 効果にも、正変換に相当する電流-スピン流変換である Edelstein 効果が発現する事が期待される。そこで本章ではこの Edelstein 効果に関する研究について述べる。

6-1 スピントルク強磁性共鳴法による検出電圧信号

電流-スピン流変換の検出手法として、本研究では 3-4 節で述べたスピントルク強磁性共鳴法を用いた。具体的な測定系は図 3-7 に示した通りであり、実験で実際に得られる電圧スペクトルを以下の図 6-1 に示す。ここで印加する rf 電流は周波数 6 GHz であり、パワーが 20 dBm、DC 電流は印加していない。

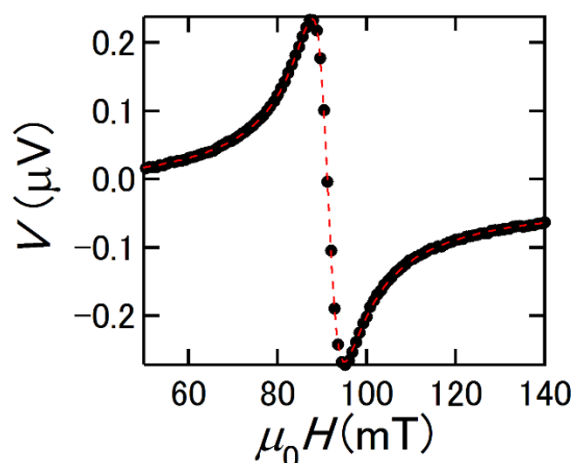


図 6-1 スピントルク強磁性共鳴測定により得られる電圧スペクトル

2.6 節でも述べたように、ダンピングトルクにどれくらいスピントルクが作用するかで生成されたスピン流密度の大きさを議論する測定であるので、図 6-1 の電圧スペクトルの解析を(2.88)式により行う。解析により得られるスペクトルの半値半幅 $\mu_0\Delta H$ を用いて、(5.1)式からダンピング定数が計算される。

6-2 スピントルクによるダンピング変調実験および電流-スピン流変換係数 q_{DEE} の見積もり

6-1 節ではスピントルク強磁性共鳴測定により得られる電圧スペクトルについて紹介した。本実験では実際に注入されるスピン流密度を見積もるために、スピントルク強磁性共鳴測定において、測定系に rf 電流を流すのと同時に、DC 電流も流し、スピントルクの大きさを変えながらダンピング変調実験を行った。実験では Cu 膜厚 $t_{Cu} = 10$ nm、細線幅 $w = 20$ μm 、細線長さ $l = 100$ μm で周波数 $f = 10$ GHz において実験を行った。また外部から印加する静磁場の角度は図 3-7 で示した方向に基づいて 45, 225 度で実験を行った。以下の図 6-2 にダンピング変調実験の結果を示す。

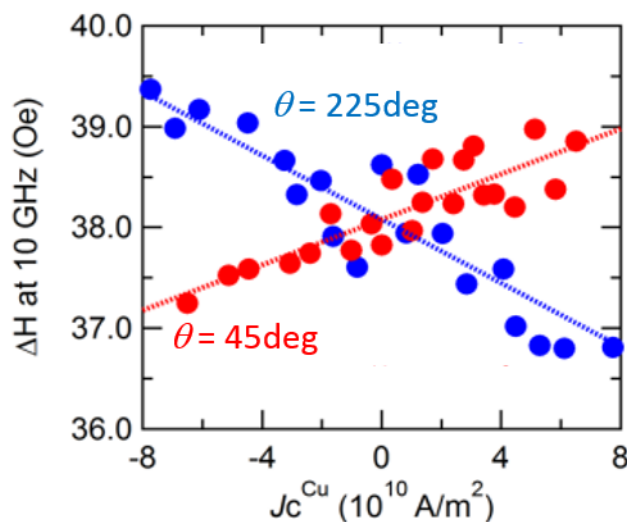


図 6-2 半値半幅の Cu 電流密度依存性

電流密度の変化に伴って明瞭な半値幅の変化を観測した。また磁場の向きを反転させる事によって、傾きの符号が反転する傾向も確認できた。これは磁化の向きが磁場で変わる事によって、スピントルクの向きとダンピングトルクの向きが反対になる事に由来する。このような傾向はスピントルクが生成されている事を裏付ける結果である。磁場印加角度 $\theta = 45$ 度 (赤)、 $\theta = 225$ 度 (青) の半値幅の変化量それぞれ $+1.1 \times 10^{-11}$ Oe/(A/m²)、 -1.5×10^{-11} Oe/(A/m²) から平均をとり、 1.3×10^{-11} Oe/(A/

m^2)を得た。(2.93)式で示したダンピング変調式を簡単のため、以下の(6.1)式のような Edelstein 係数角 q_{DEE} の形式で表すと、

$$q_{\text{DEE}} = \frac{J_S}{t_{\text{int}} J_C^{\text{Cu}} / \xi} = \frac{2e (H_R + M_{\text{eff}}/2) \mu_0 M_S t_F}{\hbar t_{\text{int}} \sin \theta} \left| \frac{\Delta \delta_{\text{eff}}}{\Delta J_C^{\text{Cu}} / \xi} \right| \quad [\text{m}^{-1}] \quad (6.1)$$

となる。5章でも前述したように、スピン流密度は3次元量、電流密度は2次元量のため、Edelstein 係数も次元を持ち、 $[\text{m}^{-1}]$ となる。ここで、 H_R は共鳴磁場、 M_{eff} は有効磁化、 $\mu_0 M_S$ は飽和磁化、 t_F は強磁性金属の膜厚、 t_{int} は界面の厚み、 ξ は分流因子を指す。先ほど示した傾きの値は(6.1)式中の絶対値の部分に相当する。この表式は本来 Cu 全体で電流-スピン流変換が生じたという仮定の下、計算が行われている。本研究では Cu/Bi₂O₃ 界面の電流-スピン流変換に着目しているため、5章で述べたように電流密度は2次元量である必要がある。5章のスピン流-電流変換の場合、界面で変換によって生成された電流が細線全体を流れて電圧として観測できるので、細線の抵抗で電圧を割れば生成された電流が算出可能であり、2次元電流密度が分かる。一方で本章の電流-スピン流変換の場合は流した総電流量に対してどれくらい界面に電流が流れたか分流の概算を行う必要がある。そこでまず界面層の抵抗率を考える。2次元電子系では有効質量が自由電子質量に比べ軽いことが良く知られており、特に Cu/Bi₂O₃ 界面と類似した Cu(111)/Bi 界面系では ARPES のバンド構造測定によって有効質量 $m_e^* = 0.35m_e$ となる事が報告されている[6-2]。そこでこの有効質量を用いて Drude の関係式から界面抵抗率を $\rho_I = m_e^*/ne^2\tau_e$ と定義した。また界面の厚みについては、Cu の1原子層程度であるとすると、界面厚み $t_{\text{int}} = 0.4 \text{ nm}$ 程度と考えられる。 ρ_I, t_{int} を用いる事によって、Cu 層との分流を考慮した。更に本実験では各パラメータが、 $H_R = 111.7 \text{ kA/m}$ 、 $M_{\text{eff}} = 598 \text{ kA/m}$ 、 $\mu_0 M_S = 0.75 \text{ T}$ 、 $t_F = 5 \text{ nm}$ 、 $|\Delta \delta_{\text{eff}}/\Delta J_C| = 3.88 \times 10^{-15} \text{ 1/(A/m}^2\text{)}$ を用いて計算を行った。(6.1)式を用いて Edelstein 係数を計算すると、 $q_{\text{DEE}} = 0.025 \text{ nm}^{-1}$ となった。比較のため、Cu 全体で起こった変換現象であると仮定してスピンホール角の見積もりを行ったところ、 $\theta_{\text{SH}} = 0.0256$ となった。Cu 全体でスピン流-電流変換が起こったと仮定しても、従来スピンホール効果が大きい事で知られる Pt のスピンホール角 $0.03 - 0.05$ [5-8, 6-3]と同程度であるので、非常に大きな変換効率を有した系である事がわかる。次節では q_{DEE} の値を用いて、界面からのスピン脱出と界面におけるスピン緩和について述べる。

6-3 スピン脱出率と界面スピン緩和率

6-2 節ではスピントルク強磁性共鳴測定において、ダンピング変調を行うことにより、Edelstein 係数 q_{DEE} の算出を行った。本節ではこの q_{DEE} を用いることによって(2.41)式中で定義したスピン脱出率 η 、および残りのスピン緩和に相当する界面スピン緩和率 $1 - \eta$ に関する議論をする。

Edelstein 係数 q_{DEE} は(2.45)式で表され、6-2 節で実験的に決定した値が正にこの q_{DEE} に相当する。よってこの値からスピン脱出率 η の算出を行う事が出来る。この η は(2.45)式によって次のように表される。

$$\eta = \frac{2e^2\hbar\varepsilon_F D(\varepsilon_F)t_{\text{int}}}{3m_e^*\alpha_R G_r} \times q_{\text{DEE}} \quad (6.2)$$

この式に基づいて η の概算を行う。ここで、Rashba 係数は第 5 章のスピンポンピング実験から決定した $\alpha_R = 0.46 \text{ eV\AA}$ を用い、Edelstein 係数は本章のスピントルク強磁性共鳴実験から決定した $q_{\text{DEE}} = 0.025 \text{ nm}^{-1}$ を用いる。更に Cu の Fermi エネルギー $\varepsilon_F = 7 \text{ eV}$ [2-7]、Fermi エネルギーにおける状態密度 $D(\varepsilon_F) = 1.56 \times 10^{28} \text{ m}^{-3} \text{ eV}^{-1}$ [6-4, 6-5]、電子の有効質量 $m_e^* = 0.35m_e$ [6-2]、強磁性金属/Cu 界面におけるスピンミキシング伝導度 $G_r = 2.6 \times 10^{15} \Omega^{-1} \text{ m}^{-2}$ [6-6]とした。以上のパラメータからスピン脱出率は $\eta = 0.32$ となる事が分かった。これは Edelstein 効果によって界面に生成されるスピン蓄積が 32 %脱出し (図 6-3(a))、Py 磁化にスピントルクを与えていると理解することが出来る。また残りの $1 - \eta = 0.68$ の 68 %は界面スピン緩和率と解釈出来る (図 6-3(b))。これらのスピン脱出率 η および界面スピン緩和率 $1 - \eta$ の値は大部分のスピンが界面で緩和される事を意味しており、スピン軌道相互作用が強い界面系であると理解出来る。このような傾向はスピンポンピング実験においても既に確認されている。第 5 章でも述べたように、Py/Cu/Bi₂O₃ の 3 層膜では $g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} = 1.0 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$ となり、Py/Pt の 2 層膜と同程度の値[5-8]となる事から Pt と同様に Cu/Bi₂O₃ 界面が強いスピン軌道相互作用を有した系である事を示唆している。また別の測定手法として、我々のグループでは現在、磁気抵抗から Edelstein 効果を議論している。この実験からも本論文で議論してきたようにスピン脱出率 η を算出した。すると $\eta \approx 0.30$ となる事が分かり同様に界面から少量のスピンしか脱出して来ない事が分かっている[6-7]。本研究ではこのように、Rashba 系で発現する Edelstein 効果が、バルク金属中で発現するスピンホール効果とは質的に異なる物理現象である事を明らかにした。

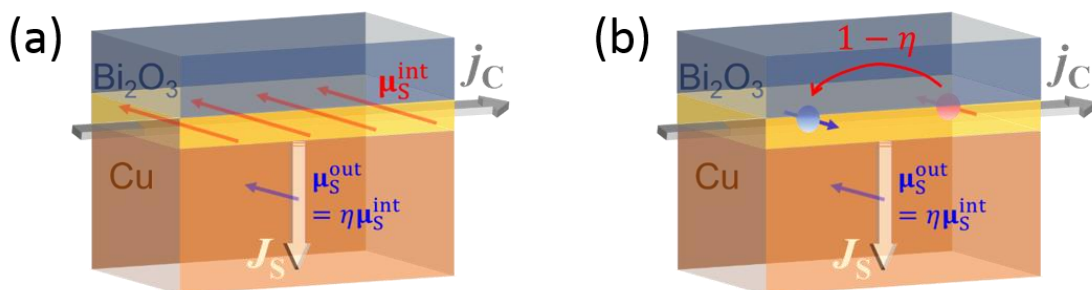


図 6-3 (a)スピン脱出、(b)界面スピン緩和の様子

第 7 章

非磁性金属/ビスマス酸化物界面スピン軌道相互作用を用いた関連実験

これまで第 5 章、第 6 章では非磁性金属/ビスマス酸化物界面におけるスピン流-電流相互変換現象に関わる研究について述べてきた。実験を行う過程で、この非磁性金属/ビスマス酸化物界面が存在する系では、興味深いことに強磁性金属の異常ホール効果に加え、付加的な異常ホール効果が発現する事が分かった。本章では強磁性金属 Py/非磁性金属(Ag or Cu)/酸化物(Bi₂O₃ or Al₂O₃)の三層膜を用いた異常ホール効果の実験について紹介する。

7-1 強磁性金属 Py/非磁性金属/酸化物三層膜における異常ホール効果

これまで非磁性金属/Bi₂O₃ 界面におけるスピン流および電流の相互変換現象を直接調べる実験を行ってきた。本界面はスピン依存伝導現象にも影響を与える事が本研究から明らかとなったので本節で紹介する。実験には 3-5 節でも述べたように、強磁性金属 Py/非磁性金属(Cu or Ag)/酸化物(Bi₂O₃ or Al₂O₃)3 層膜から成るホールバーを用いた。非磁性金属 2 種、酸化物 2 種の組み合わせ計 4 種の素子において実験を行い、更に非磁性金属の膜厚が異なる素子の測定を各場合において行った。以下の図 7-1 に測定結果を示す。図 7-1(a)は Cu/Bi₂O₃、図 7-1(b)は Cu/Al₂O₃、図 7-1(c)は Ag/Bi₂O₃、図 7-1(d)は Ag/Al₂O₃ の場合を表す。異常ホール効果の信号を簡潔に示すため、正常ホール効果の磁場に対する線形寄与は差し引いて示している。Py/Bi₂O₃ と Py/Al₂O₃ 間の違い、Ag/Bi₂O₃ と Cu/Bi₂O₃ 間の違い、更には各場合の非磁性金属の膜厚によって異常ホール抵抗が変わっている事が分かる。より詳細に異常ホール効果を議論するために、各素子の異常ホール角の非磁性金属膜厚依存性を図 7-2 に示す。ここで、磁場正負におけるホール抵抗の飽和値の差の 1/2 を異常ホール抵抗 ΔR_{xy} とし、異常ホール抵抗率を $\rho_{AH} = \Delta R_{xy} t_F$ から算出した。 t_F は Py の膜厚を表す。またこの異常ホール抵抗率と縦抵抗率 ρ_{xx} の比を取り、異常ホール角 $\theta_{AH} = \rho_{AH}/\rho_{xx}$ の算出を行った。また 2 層膜では縦抵抗および横抵抗における 2 重の分流因子が存在するため、以下のような式を用い、Py の異常ホール抵抗率を算出した[7-1]。

$$\rho_{AH} \equiv \rho_{AH}^{Py} = \rho_{AH}^{Py/NM} \left(\frac{\rho_{Py} t_{NM}}{\rho_{NM} t_{Py}} + 1 \right)^2 \quad (7.1)$$

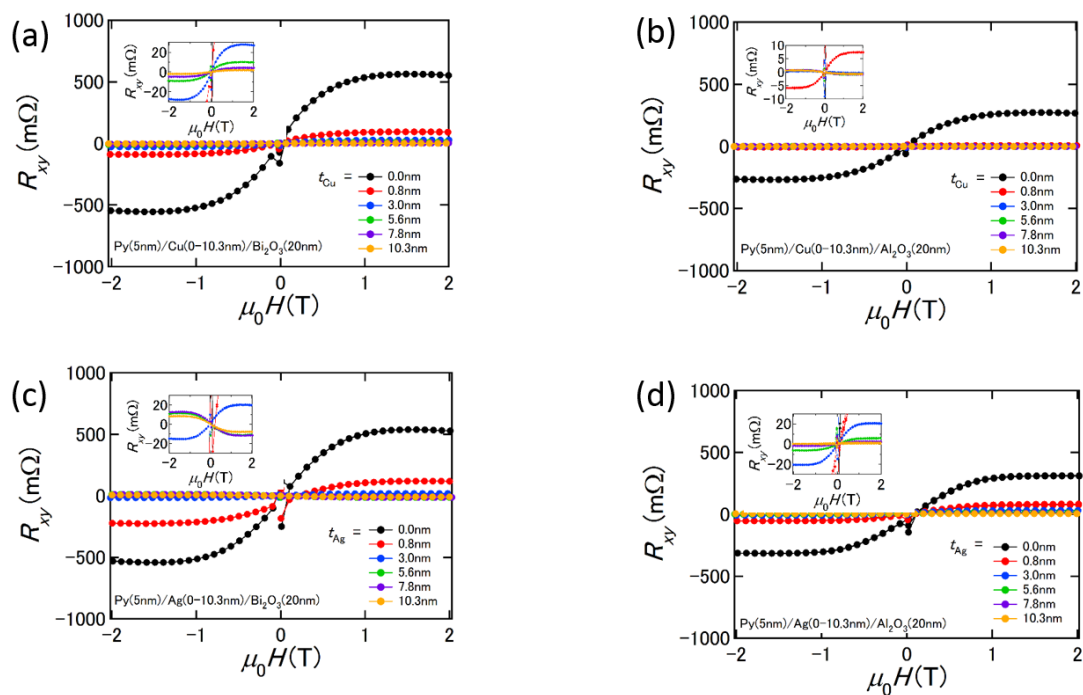


図 7-1 検出した異常ホール抵抗の磁場掃引依存性
 (a)Cu/Bi₂O₃, (b)Cu/Al₂O₃, (c)Ag/Bi₂O₃, (d)Ag/Al₂O₃ の場合を表す

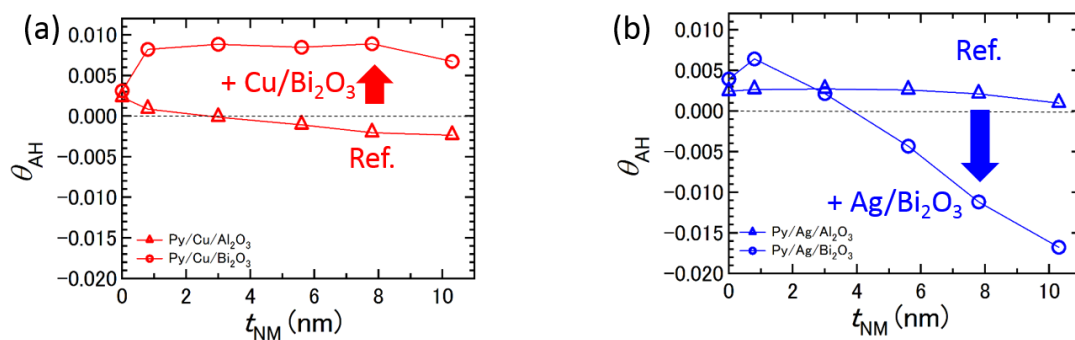


図 7-2 (a)Py/Cu/Oxide(Bi₂O₃ or Al₂O₃), (b)Py/Ag/Oxide(Bi₂O₃ or Al₂O₃)における
 異常ホール角 θ_{AH} の非磁性金属膜厚依存性

ここで $\rho_{AH}^{Py/NM}$ は測定により得られる値を意味する。 $t_{NM} = 0$ nmの時、Py/Al₂O₃の場合と比べPy/Bi₂O₃の場合は異常ホール角が若干大きくなっている事が見て取れる。スピンプンピング実験において図 5-5(a)に示したように、Py/Bi₂O₃界面ではダンピングが増強される

事から、当界面の強いスピン軌道相互作用が原因で異常ホール効果が大きくなったと推測される。次に $\text{Py}/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ の場合には、異常ホール角が Cu の膜厚に依存している事が分かる。これは $\text{Py}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 界面同様、 $\text{Py}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 界面におけるスピン軌道相互作用が原因であると考えられる。スピンプンピング実験では $\text{Py}/\text{Al}_2\text{O}_3$ の 2 層膜においてダンピングの増強が観測されている。5-2 節で示したように、 Py (Py/Cu) 本来のダンピング定数は $\delta = 0.0095$ であるが、 $\text{Py}/\text{Al}_2\text{O}_3$ の場合は $\delta = 0.0125$ 程度であった。よって定かではないが、 $\text{Py}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 界面には有限のスピン軌道相互作用が存在し、異常ホール効果に重畳したものと考えられる。 Cu の膜厚を厚くすると Py は Al_2O_3 から遠ざかり、本来の Py の異常ホール角になる。本測定では $t_{\text{Cu}} = 10 \text{ nm}$ の時、異常ホール角が $\theta_{\text{AH}} = 0.002$ となるが、この値は先行研究の値[7-2]と一致する。一方で $\text{Py}/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ の場合は Ag の膜厚に依存していない。これは Ag 中のスピン軌道相互作用に起因して現れた傾向であると考えている。先ほどの $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ の場合に見られたように、 $\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ の場合の膜厚依存性を打ち消すように Ag の効果が重畳している事が示唆される。これは近年理論的に予測されているスピンホール効果を介した非局所異常ホール効果が起源なのではないかと推測される[7-3]。この効果は強磁性層とスピン軌道相互作用を有した非磁性金属層界面のスピン依存電子散乱に起因して現れると考えられている。この効果の概要を簡単に説明するために、図 7-3 に示すような強磁性層 FM/非磁性金属層 NM の 2 層膜系を考える。図 7-3(a) では系に電流を流すとまず初めに界面においてスピン依存電子散乱が生じ、スピン偏極電流が生成される。その後非磁性層における逆スピンホール効果によってホール電圧が生成される。一方図 7-3(b) では電流を流すとスピンホール効果によって純スピン流が生成される。その後、界面でのスピン依存電子散乱により、スピン偏極電流となり、最終的にホール電圧が生成される。これら 2 つの過程は同時に発現すると考えられている。この効果が $\text{Py}/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 素子

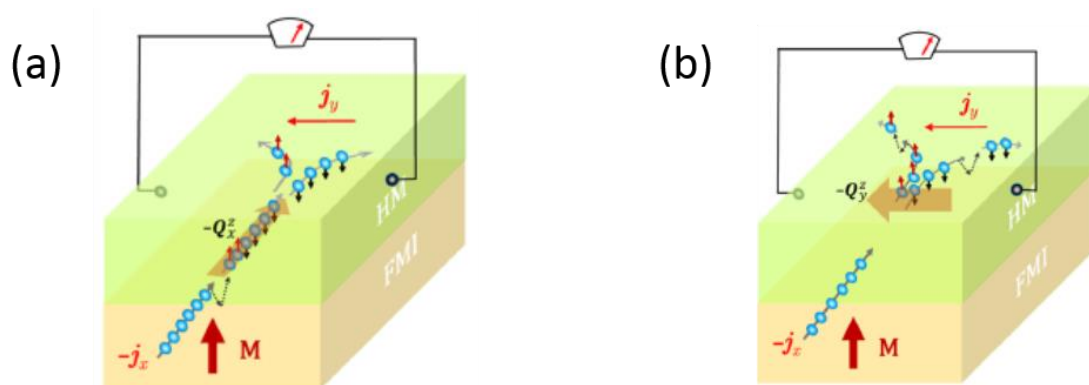


図 7-3 強磁性層/非磁性層における非局所異常ホール効果のイメージ図 [7-3]

(a)界面スピン依存電子散乱と逆スピンホール効果を介した場合、(b)スピンホール効果と界面スピン依存電子散乱を介した場合の非局所異常ホール効果

においても現れていると推測される。本効果は界面でのスピン依存電子散乱に起因している事から、非磁性層の電子の平均自由行程に強く依存する。本実験から得られる Ag と Cu の電子の平均自由行程を図 7-4 に示す。何れも平均自由行程が約 10 nm 程度である事が分かり、同程度の膜厚領域では Py/非磁性金属界面におけるスピン依存電子散乱が顕著に現れる。このような結果から Py/Ag/Al₂O₃ の場合では Py/Ag による非局所異常ホール効果が現れ、更に Py/Cu/Al₂O₃に見られたような膜厚依存性を打ち消し、膜厚に依存しない傾向が観測されたと考えている。

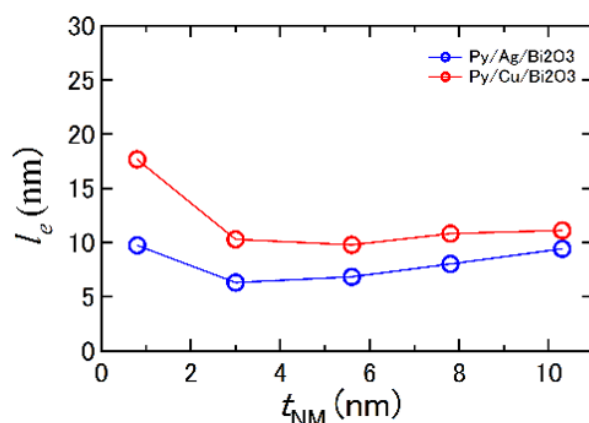


図 7-4 Ag および Cu の電子の平均自由行程 l_e の膜厚依存性

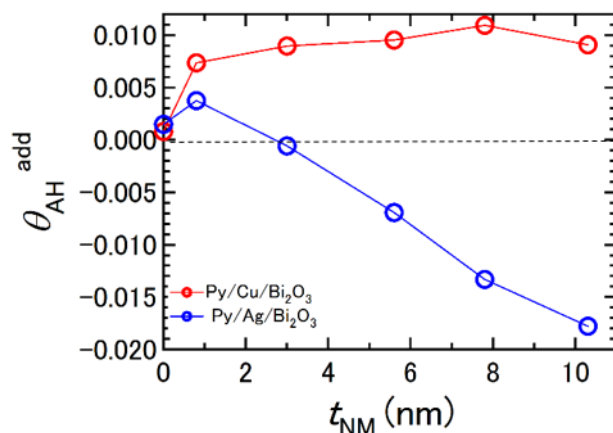


図 7-5 Py/Cu/Bi₂O₃ および Py/Ag/Bi₂O₃ における付加的異常ホール角 θ_{AH}^{add} の非磁性金属膜厚依存性

最後に本研究で着目している Py/Cu/Bi₂O₃ および Py/Ag/Bi₂O₃ と、参照素子である Py/Cu/Al₂O₃ および Py/Ag/Al₂O₃ の比較を行う。Ag/Oxide の場合では、Ag による非局所異常ホール効果を含むため、Py/Ag/Bi₂O₃ の参照素子は Py/Ag/Al₂O₃、Py/Cu/Bi₂O₃ の参照

素子は Py/Cu/Al₂O₃ に対応するとする。今、図 7-2(b)を見ると、各参照素子に対して Cu の場合では値が大きくなり、Ag の場合では値が小さくなっている事が分かる。この事から通常の異常ホール効果（および Ag による非局所異常ホール効果）の他に異なる異常ホール効果が存在すると理解できる。そこで参照素子である Py/Cu/Al₂O₃ および Py/Ag/Al₂O₃ の異常ホール角を $\theta_{\text{AH}}^{\text{NM/Al}_2\text{O}_3}$ と定義し、Py/Cu/Bi₂O₃ および Py/Ag/Bi₂O₃ の異常ホール角を $\theta_{\text{AH}}^{\text{NM/Bi}_2\text{O}_3}$ と定義し、その差分を付加的な異常ホール角 $\theta_{\text{AH}}^{\text{add}} = \theta_{\text{AH}}^{\text{NM/Bi}_2\text{O}_3} - \theta_{\text{AH}}^{\text{NM/Al}_2\text{O}_3}$ と考える。 $\theta_{\text{AH}}^{\text{add}}$ の膜厚依存性を図 7-5 に示す。膜厚が厚い領域では、Py/Cu/Bi₂O₃ および Py/Ag/Bi₂O₃ の場合で符号が反転している事が分かる。この $\theta_{\text{AH}}^{\text{add}}$ の符号が反転する傾向から、図 5-1 に示したような非磁性金属/ビスマス酸化物界面の Edelstein 効果が発現している可能性が示唆される。また非磁性金属層の膜厚にも強く依存している傾向が見て取れる。非磁性金属膜厚 t_{NM} および図 7-4 で示した平均自由行程 l_e の比 t_{NM}/l_e で付加的異常ホール効果を表したグラフが図 7-6(a) である。Cu、Ag 何れも $t_{\text{NM}}/l_e = 1$ で急激に大きくなる傾向がある。非局所異常ホール効果においても同様の振る舞いとなる事が報告されており、図 7-6(b) は YIG/Pt における同グラフである。図中赤点線枠が実験領域と対応している。以上の事から、本実験から得られた Py/非磁性金属/ビスマス酸化物の 3 層膜の付加的異常ホール効果は理論的に予測されている非局所異常ホール効果と類似した現象である事が示唆される。

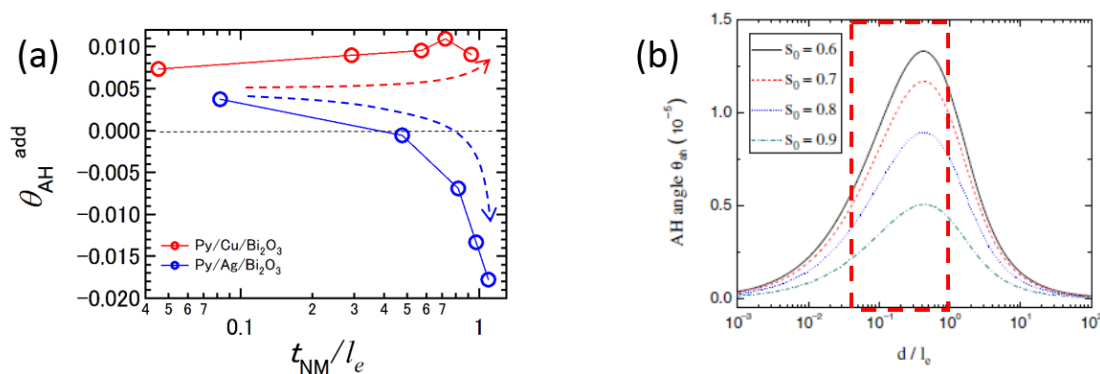


図 7-6 (a) Py/Cu/Bi₂O₃ および Py/Ag/Bi₂O₃ における付加的異常ホール角 $\theta_{\text{AH}}^{\text{add}}$ の t_{NM}/l_e 依存性, (b) YIG/Pt の 2 層膜を想定した理論予測[7-3]

そこで Edelstein 効果を介した非局所異常ホール効果が発現可能か以下に考察する。図 7-7 を用いて簡単に説明する。まず Rashba 界面系に電場 E を印加すると、Fermi 面が $\Delta k \sim eEt$ だけシフトする。ここで τ は運動量緩和時間を指す。この時、伝導電子は有効磁場 $B_{\text{eff}} \sim \Delta k$ を感じ、その際に z 方向偏極する。 $+k_y$ ではスピン偏極が $+s_z$ 、 $-k_y$ ではスピン偏極が $-s_z$ となるので、 $+y$ 方向に $+z$ 方向偏極したスピン流が流れる。このスピン流が界面で生

成可能であるとする、スピン偏極電子が Cu 中を伝導し、Py/Cu 界面に衝突した際にスピン依存電子散乱が生じる。つまり、Rashba 界面における Edelstein 効果を介しても非局所異常ホール効果が発現する可能性がある。また図 7-5 に示したように、観測される付加的な異常ホール角が非磁性金属層の膜厚に強く依存している事も、非磁性金属層の電子の平均自由行程に起因すると考える事も出来る。

以上を示してきた結果は定性的な議論にのみ留まっており、Edelstein 効果と付加的な異常ホール効果の関連性や、定量的な議論を行っていく事が今後の方針である。

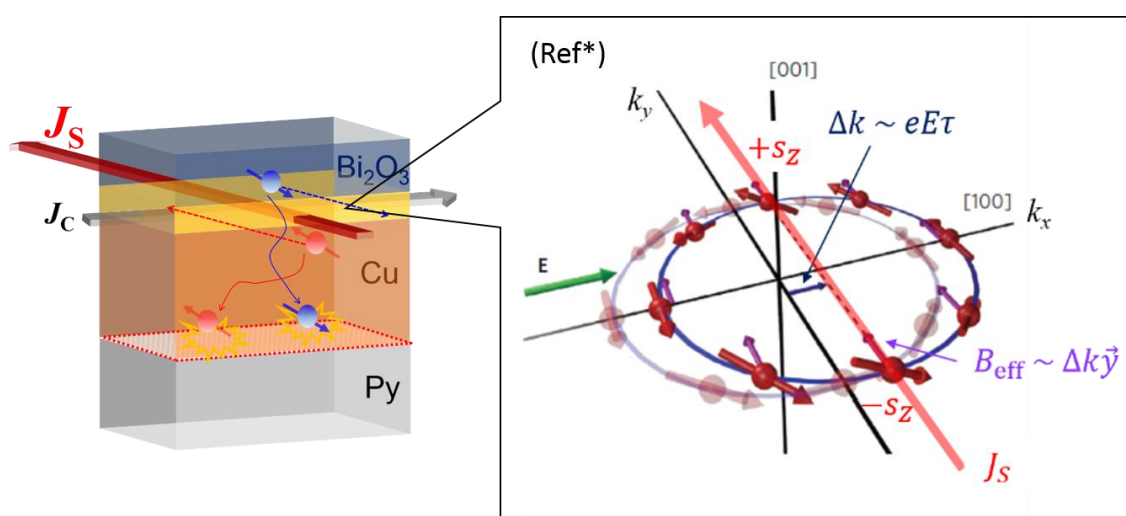


図 7-7 Cu/ Bi_2O_3 に発現していると考えられる Rashba 界面において、 z 方向偏極スピン流が生成されるイメージ図および z 方向偏極伝導電子が Py/Cu 界面で散乱される様子 (吹出の Ref*は[7-4]より引用)。

第 8 章

総括

8-1 本研究の総括

スピン輸送実験において、非磁性金属/ビスマス酸化物界面でスピン緩和の増強効果を発見した。この効果は Rashba 効果が起源で発現しているものであると考えられる。

同界面を用いて、スピン流-電流変換現象(逆 Edelstein 効果)の観測に成功した。本変換が起こる際、界面に隣接した非磁性金属層内の運動量緩和が、界面での運動量緩和に強く影響し、変換係数が変化する事が分かった。非磁性金属/ビスマス酸化物界面、特に Cu/Bi₂O₃ 界面において、X 線回折を用いることにより、Cu(111)/Bi と良く似た結晶性である事が分かった。また現在進行中の実験ではあるが、角度分解高電子分光法により、Cu/BiO_x 界面において Rashba スピン分裂が発現している可能性がある結果も得られており、逆 Edelstein 効果が起源となって現れた結果である事を裏付けている。

同界面において電流-スピン流変換現象(Edelstein 効果)の観測にも成功した。得られた Edelstein 変換係数を元にスピン脱出率を計算すると約 32 % となり、Cu/Bi₂O₃ 界面でスピン緩和が支配的になっている事を明らかにした。この結果から本変換現象が、界面および隣接する Cu 層 2 つのスピン緩和パスによって特徴付けられている事が分かった。

関連実験として、Py/NM/Bi₂O₃ の 3 層膜系でホール測定を行うと、NM/Bi₂O₃ 界面における Edelstein 効果由来であると考えられる付加的な異常ホール効果が発現し、スピン依存伝導現象にも影響を与える事が分かった。

このように、非磁性金属/ビスマス酸化物界面という今までに報告例の無かった新奇的な系において、スピントロニクスにおいて重要な様々な現象の観測を行い、基礎物性を明らかにした。

8-2 今後の展望

今後は 1-2 節でも述べたように、高抵抗酸化物を利用している点を活かし、電界効果による非磁性金属/ビスマス酸化物界面スピン流-電流変換現象の変調を試みる。具体的な素子構造を以下の図 8-1 に示す。第 5 章で示したスピンプンピング実験の際と同様、Py/Cu/Bi₂O₃ の 3 層膜を用い、更に Bi₂O₃ 上にゲート電極の成膜を行い、ゲート構造を作製する。これにより Cu/Bi₂O₃ 界面の Rashba 効果を変調し、スピン流-電流変換の制御を行う事を計画している。

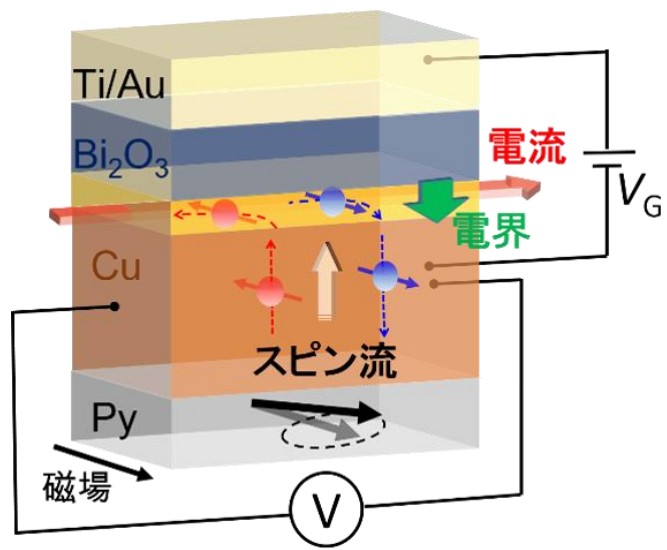


図 8-1 ゲート構造を有した Py/Cu/Bi₂O₃ の 3 層膜におけるスピン流-電流変換制御実験の様子.

8-3 謝辞

本研究を行うにあたり、明確なご助言およびご指導頂き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。研究の楽しさ、難しさをお教え頂きました。また恵まれた研究環境および学会発表の機会などを与えて頂き、様々な事を研究生活の中で学ばせて頂きました。

理化学研究所 研究員 近藤浩太様には、測定や議論など研究におけるあらゆる側面でご指導を頂きました。誠にありがとうございます。また日常生活における相談等も親身になって聞いて頂きました。心より御礼申し上げます。

九州工業大学 准教授 福間康裕先生、東京大学物性研究所 元助教（現大阪大学准教授） 新見康洋様、元助教（現東北大学准教授） 木俣基様、助教 一色弘成様には研究方針のご指導や的確なご助言を頂き、本研究を行う上で、大変お世話になりました。心より感謝致します。

理化学研究所 秘書 石鍋道子様、東京大学物性研究所 元秘書 川村順子様、元秘書 大田千絵美様、現秘書 金田洋子様には日々の研究活動を始め、様々なサポートを頂きました。また、新領域創成科学研究科物質系専攻事務の飯村祐枝様、丹由紀子様には事務手続き等でお世話になりました。心より感謝致します。

理化学研究所 創発物性科学研究支援チームの秋元彦太様、柳沢圭一様、小日向一様、伊藤良二様、四方山和彦様、塩川高雄様には、微細加工技術、成膜、電子顕微鏡に関するご助言を頂き、またクリーンルーム全般においてお世話になりました。また同研究所 物質評価支援チームの橋爪大輔様には X 線回折測定で大変お世話になりました。心より感謝致します。

東京大学物性研究所 教授 小森文夫先生、助教 矢治光一郎様、技術職員 飯盛拓嗣様には角度分解光電子分光装置の使用およびご指導を頂き大変お世話になりました。心より感謝致します。

研究室の先輩である井土宏様には、研究設備の使い方など技術的な指導をはじめ、研究に関するあらゆる事をご指導頂きました。日常面においても色々と相談に乗って頂き、楽しく研究生活を送る事ができました。本当に感謝しております、ありがとうございます。

本学リーディング大学院プログラム MERIT では、異分野学生と交流する場や、産官学 3 分野をそれぞれ牽引されている企業や人々のセミナーなどを聴く貴重な機会を頂きました。また資金的な援助も賜りました。誠にありがとうございます。

本プログラムを通じて、フランスの CNRS/THALES へ 3 ヶ月間共同研究しに行く機会も頂きました。研究所では上席研究員 Jean-Marie George 様、研究員 Piotr Laczowski 様、研究員 Carolina Cerqueira 様、またパリ南大学 教授 Albert Fert 先生、同学 研究員 若村太郎様、東北大学 助教 永沼博様に大変お世話になりました、心より御礼申し上げます。

また、理化学研究所 特別研究員 Olivier Rousseau 様、青木達也様、Bivas Rana 様、Junyeon Kim 様、Jorge Puebla 様、東京大学物性研究所 特別研究員 Prasanta Kumar Muduli 様、研究支援パートタイマー 皆藤真智恵様、飯塚紀子様、先輩の杉本聡志様、鈴木裕様、藤森啓晃様、同期の長谷川徳信君、修士時代の同期 野崎大輔君、後輩の大森康智君、児玉大地君、穴見陵君、Vincent Verdeu 君、Hanshen Tsai 君、Florent Auvray 君、瀧澤誓君、内田悠介君、松本健太君、栗原暢人君、Mingran Xu 君、Hee-man Kim 君には、日々の研究生生活でお世話になりました。心より感謝致します。

最後に、研究生生活を支えてくれた家族たちや友人たちに感謝しています。

8-4 引用文献

第 1 章

- [1-1] I. Žutić, J. Fabian, and S. D. Sarma, *Reviews of modern physics* **76**, 323 (2004).
- [1-2] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Physical Review Letters*. **61**, 2472 (1988).
- [1-3] G. Binasch, Z. Grünberg, and Z. Saurenbach, *Physical Review B*. **39**, 4828 (1989).
- [1-4] Hartmann, *Magnetic Multilayers and Giant Magnetoresistance –Fundamentals and Insutrial Applications-*, Springer (2000).
- [1-5] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Science*, **306**, 5703 (2004).
- [1-6] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara, *Applied Physics Letters*, **88**, 182509 (2006).
- [1-7] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa, *Physical Review Letters* **98**, 156601 (2007).
- [1-8] P. Jacquod, R. S. Whitney, J. Meair, and M. Büttiker, *Physical Review B*. **86**, 155118 (2012).
- [1-9] L. Liu, C-F. Pai, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, R. A. Buhrman, *Science* **336**, 6081 (2012).
- [1-10] C-F. Pai, L. Liu, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph and R. A. Buhrman, *Applied Physics Letters*, **101**, 122404 (2012).
- [1-11] L. Liu, O. J. Lee, T. J. Gudmundsen, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, *Physical Review Letters*, **109**, 096602 (2012).
- [1-12] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Nature*, **455**, 778 (2008).
- [1-13] K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Applied Physics Letters*, **97**, 172505 (2010).
- [1-14] H. Adachi, K. Uchida, E. Saitoh, and S. Maekawa, *Reports on Progress in Physics* **76**, 036501 (2013).

- [1-15] K. Uchida, M. Ishida, T. Kikkawa, A. Kirihara, T. Murakami and E. Saitoh, *Journal of Physics: Condensed Matter*, **26**, 389601 (2014).
- [1-16] R. J. Elliott, *Physical Review* **96**, 266 (1954).
- [1-17] Y. Yafet, *Solid State Physics* **14**, 1 (1963).
- [1-18] M. D'yakonov and V. Perel, *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics* **33**, 1053 (1971).
- [1-19] T. Kimura, T. Sato, and Y. Otani, *Physical Review Letters* **100**, 066602 (2008).
- [1-20] G. Mihajlović, J. E. Pearson, S. D. Bader, and A. Hoffmann, *Physical Review Letters* **104**, 237202 (2010).
- [1-21] H. Idzuchi, Y. Fukuma, L. Wang, and Y. Otani, *Applied Physics Letters* **101**, 022415 (2012).
- [1-22] P. Drude, *Annalen der Physik*. **306**, 566 (1900).
- [1-23] F. Bloch, *Z. Physik* **59**, 208 (1930).
- [1-24] E. Grüneisen, *Annalen der Physik* **408**, 530 (1933).
- [1-25] M. Shanabarger, Ph. D. dissertation, University of California, San Diego, 1970.
- [1-26] J. C. Rojas Sánchez, L. Vila, G. Desfonds, S. Gambarelli, J. P. Attané, J. M. De Teresa, C. Magén, and A. Fert, *Nature Communications* **4**, 2944 (2013).
- [1-27] J.-C. Rojas-Sánchez, S. Oyarzún, Y. Fu, A. Marty, C. Vergnaud, S. Gambarelli, L. Vila, M. Jamet, Y. Ohtsubo, A. Taleb-Ibrahimi, P. Le Fèvre, F. Bertran, N. Reyren, J.-M. George, and A. Fert, *Physical Review Letters* **116**, 096602 (2016).
- [1-28] V. M. Edelstein, *Solid State Communications* **73**, 233(1990).
- [1-29] K. Shen, G. Vignale, and R. Raimondi, *Physical Review Letters* **112**, 096601 (2014).
- [1-30] A. Hoffmann, *IEEE Transactions on Magnetics*, **49**, 5172 (2013).
- [1-31] S. Datta and B. Das, *Applied Physics Letters*. **56**, 665 (1990).

第 2 章

- [2-1] F. J. Jedema, A. T. Filip, and W. B. Van, *Nature*, **410**, 345 (2001).

- [2-2] F. J. Jedema, H. B. Heersche, A. T. Filip, J. J. Baselmans, and W. B. van, *Nature*, **416**, 713 (2002).
- [2-3] H. Idzuchi, Y. Fukuma, and Y. Otani, *Physica E* **68**, 239 (2015).
- [2-4] N. F. Mott, *Advances in Physics*, **13**, 325 (1964).
- [2-5] S. Takahashi and S. Maekawa, *Science and Technology of Advanced Materials*, **9** (2008): S. Takahashi and S. Maekawa, *Journal of the Physical Society of Japan*, **77**, 031009 (2008).
- [2-6] T. Kimura and Y. Otani, *Physical Review Letters*, **99**, 196604 (2007).
- [2-7] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics 7th*, WILEY (1996).
- [2-8] Y. A. Bychkov, & E. I. Rashba, *JETP Letters* **39**, 78 (1984).
- [2-9] Yu. M. Koroteev, G. Bihlmayer, J. E. Gayone, E. V. Chulkov, S. Blugel, P. M. Echenique, and P. Hofmann, *Physical Review Letters* **93**, 046403 (2004).
- [2-10] J. Nitta, T. Akazaki, H. Takayanagi, and T. Enoki, *Physical Review Letters* **78**, 1335 (1997).
- [2-11] C. R. Ast, J. Henk, A. Ernst, L. Moreschini, M. C. Falub, D. Pacile, P. Bruno, K. Kern and M. Grioni, *Physical Review Letters*, **98**, 186807 (2007).
- [2-12] H. A. Kramers, *Proceedings of the Royal Academy of Sciences at Amsterdam* **33**, 959 (1930).
- [2-13] A. Manchon, H. C. Koo, J. Nitta, S. M. Frolov, and R. A. Duine, *Nature Materials* **14**, 871 (2015).
- [2-14] U. Höfer, I. L. Shumay, C. Reuß, U. Thomann, W. Wallauer, T. Fauster, *Science* **277**, 1480 (1997).
- [2-15] S. LaShell, B. McDougall and E. Jensen, *Physical Review Letters* **77**, 3419 (1996).
- [2-16] M. Nagano, A. Kodama, T. Shishidou and T. Oguchi, *Journal of Physics: Condensed matter*, **21**, 064239 (2009).
- [2-17] L. Moreschini, A. Bendounan, H. Bentmann, M. Assig, K. Kern, F. Reinert, J. Henk, C. R. Ast, and M. Grioni, *Physical Review B* **80**, 035438 (2009).
- [2-18] H. Bentmann, T. Kuzumaki, G. Bihlmayer, S. Blügel, E. V. Chulkov, F.

- Reinert, and K. Sakamoto, *Physical Review B* **84**, 115426 (2011).
- [2-19] M. B. Jungfleisch, W. Zhang, J. Sklenar, W. Jiang, J. E. Pearson, J. B. Ketterson, and A. Hoffmann, *Physical Review B* **93**, 224419 (2016).
- [2-20] A. R. Mellnik, J. S. Lee, A. Richardella, J. L. Grab, P. J. Mintun, M. H. Fischer, A. Vaezi, A. Manchon, E.-A. Kim, N. Samarth, and D. C. Ralph, *Nature*, **511**, 449 (2014)
- [2-21] K. Kondou, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, Y. Fukuma, J. Matsuno, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, Y. Tokura, and Y. Otani, *Nature Physics*, **12**, 1027 (2016).
- [2-22] P. Gambardella and I. M. Miron, *Philosophical Transactions of the Royal Society A* **369**, 3175, (2011).
- [2-23] C. H. Li, M. J. van't Erve, J. T. Robinson, Y. Liu, L. Li and B. T. Jonker, *Nature Nanotechnology* **9**, 218 (2014).
- [2-24] Y. Ando, T. Hamasaki, T. Kurokawa, K. Ichiba, F. Yang, M. Novak, S. Sasaki, K. Segawa, Y. Ando, and M. Shiraishi, *Nano Letters*, **14**, 6226 (2014).
- [2-25] S. Zhang, and A. Fert, *Physical Review B* **94**, 184423 (2016).
- [2-26] J. C. Sankey, Y. -T. Cui, J. Z. Sun, J. C. Slonczewski, R. A. Buhrman, and D. C. Ralph, *Nature Physics* **4**, 67 (2008).
- [2-27] Y. Tserkovnyak and A. Brataas. "Enhanced Gilbert Damping in Thin Ferromagnetic Films," *Physical Review Letters*, **88**, 117601 (2002).
- [2-28] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, and G. E. W. Bauer. "Spin pumping and magnetization dynamics in metallic multilayers," *Physical Review B*, **66**, 224403 (2002).
- [2-29] 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).
- [2-30] L. Liu, T. Moriyama, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, *Physical Review Letters*. **106**, 036601 (2011).
- [2-31] W. Thomson, *Proceedings of the Royal Society London* **8**, 546 (1856).
- [2-32] S. Kokado, and M. Tsunoda, *Journal of the Physical Society of Japan*, **84**, 094710 (2015).
- [2-33] K. Kondou, H. Sukegawa, S. Mitani, K. Tsukagoshi, and S. Kasai, *Applied*

Physics Express, **5**, 073002 (2012).

[2-34] S. Kasai, K. Kondou, H. Sukegawa, S. Mitani, K. Tsukagoshi, and Y. Otani, Applied Physics Letters **104**, 092408 (2014).

第 3 章

[3-1] H. Idzuchi, Doctoral thesis, University of Tokyo (2014).

[3-2] Y. Chen, Microelectronic Engineering, **135**, 57 (2015).

[3-3] A. Pimpin, and W. Srituravanich, Engineering Journal, **16**, 37 (2012).

[3-4] K. S. S. Harsha, Principles of Physical Vapor Deposition of Thin Films, Elsevier (2006).

[3-5] P. L. Kelly, and R. D. Arnell, Vacuum, **56**, 159 (2000).

第 4 章

[4-1] S. Karube, H. Idzuchi, K. Kondou, Y. Fukuma, and Y. Otani, Applied Physics Letters **107**, 122406 (2015).

[4-2] D. A. Papaconstantopoulos, in Handbook of the Band Structure of Elemental Solids (Plenum, New York, 1986).

[4-3] L. Vitos a, A.V. Ruban a, H.L. Skriver a,*, J. Kollar, Surface Science **411**, 186 (1998).

[4-4] Z. Jung, Kristallogr. Kristallgeom. Kristallphys. Kristallchem. **64**, 422 (1926).

[4-5] A. Walsh, G. W. Watson, D. J. Payne, R. G. Edgell, J. Guo, P.-A. Glans, T. Learmonth, and K. E. Smith, Physical Review B **73**, 235104 (2006).

[4-6] K. Shiraishi, and T. Nakayama, Surface Science **29**, 92 (2008).

第 5 章

[5-1] S. Karube, K. Kondou, and Y. Otani, Applied Physics Express **9**, 033001 (2016).

[5-2] Y. Niimi, Y. Kawanishi, D. H. Wei, C. Deranlot, H. X. Yang, M. Chshiev, T. Valet, A. Fert, and Y. Otani, Physical Review Letters **109**, 156602 (2012).

- [5-3] K. A. Gschneidner Jr., J.-C. G. Bunzli, and V. K. Pecharsky, *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths* **39**, North-Holland.
- [5-4] J. Robertson, *Eur. Phys. Journal of Applied Physics* **28**, 265 (2004).
- [5-5] 猪俣浩一郎 監修, *スピントロニクス基礎と応用*, CMC 出版, 107 (2004).
- [5-6] C. Kittel, *Physical Review* **73**, 155 (1948).
- [5-7] A. Nomura, T. Tashiro, H. Nakayama, and K. Ando, *Applied Physics Letters* **106**, 212403 (2015).
- [5-8] O. Mosendz, V. Vlaminck, J. E. Pearson, F. Y. Fradin, G. E. W. Bauer, S. D. Bader, and A. Hoffmann, *Physical Review B*, **82**, 214403 (2010).
- [5-9] M. Obstbaum, M. Härtinger, H. G. Bauer, T. Meier, F. Swientek, C. H. Back, and G. Woltersdorf, *Physical Review B* **89**, 060407(R) (2014).
- [5-10] T. Kimura, T. Sato, and Y. Otani, *Physical Review Letters* **100**, 066602 (2008).
- [5-11] L. K. Werake, B. A. Ruzicka, and H. Zhao, *Physical Review Letters* **106**, 107205 (2011).
- [5-12] M. Hajlaoui, E. Papalazarou, J. Mauchain, L. Perfetti, A. Taleb-Ibrahimi, F. Navarin, M. Monteverde, P. Auban-Senzier, C. R. Pasquier, N. Moisan, D. Boschetto, M. Neupane, M. Z. Hasan, T. Durakiewicz, Z. Jiang, Y. Xu, I. Miotkowski, Y. P. Chen, S. Jia, H. W. Ji, R. J. Cava, and M. Marsi, *Nature Communications* **5**, 3003 (2014).
- [5-13] H. A. Harwig, *Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie* **444**, 151 (1978).
- [5-14] M. Fishman, H. L. Zhuang, K. Mathew, W. Dirschka, and R. G. Hennig, *Physical Review B* **87**, 245402 (2013).

第 6 章

- [6-1] L. Onsager, *Physical Review* **37**, 405 (1931).
- [6-2] H. Bentmann, F. Forster, G. Bihlmayer, E. V. Chulkov, L. Moreschini, M. Grioni, and F. Reinert, *Europhysics Letters*, **87**, 37003 (2009).
- [6-3] M. Morota, Y. Niimi, K. Ohnishi, D. H. Wei, T. Tanaka, H. Kontani, T. Kimura, and Y. Otani, *Physical Review B*, **83**, 174405 (2011).

[6-4] E. C. Snow, and J. T. Waber, *Physical Review* **157**, 570 (1967).

[6-5] J. F. Janak, *Physics Letters* **28A**, 570 (1968).

[6-6] C. T. Boone, Hans T. Nembach, Justin M. Shaw, and T. J. Silva, *Journal of Applied Physics* **113**, 153906 (2013).

[6-7] J. Kim, Y. -T. Chen, S. Karube, S. Takahashi, K. Kondou, G. Tatara, and Y. Otani, Unpublished.

第 7 章

[7-1] W. J. Xu, B. Zhang, Z. Wang, S. S. Chu, W. Li, Z. B. Wu, R. H. Yu, and X. X. Zhang, *European Physical Journal B* **65**, 233 (2008).

[7-2] Y. Q. Zhang, N. Y. Sun, R. Shan, J. W. Zhang, S. M. Zhou, Z. Shi, and G. Y. Guo, *Journal of Applied Physics* **114**, 163714 (2013).

[7-3] S. S.-L. Zhang, and G. Vignale, *Physical Review Letters* **116**, 136601 (2016).

[7-4] H. Kurebayashi, J. Sinova, D. Fang, A. C. Irvine, T. D. Skinner, J. Wunderlich, V. Novák, R. P. Campion, B. L. Gallagher, E. K. Vehstedt, L. P. Zárbo, K. Výborný, A. J. Ferguson, and T. Jungwirth, *Nature Nanotechnology* **9**, 211–217 (2014).