

# 論文の内容の要旨

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

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ラシュバ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・逆エデルシュタイン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・逆エデルシュタイン効果は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ことから、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・逆エデルシュタイン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, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, AgOx (自然酸化膜), HfO<sub>2</sub>, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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 Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(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ン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 $\Delta R_s$ の距離依存性からスピン拡散長の算出を行った。Ag/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 界面の場合ではスピン拡

散長は 127 nm となり、Ag/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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 $\epsilon_{\text{surf}}$ の算出を行った。MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, AgO<sub>x</sub>, HfO<sub>2</sub> の 4 種は従来報告されている Ag 中でのスピン反転確率( $\sim 0.002-0.005$ )[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エリオット-ヤフェ機構によって説明出来る事が分かった。一方で Ag/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 界面では反転確率 $\epsilon_{\text{surf}}$ 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ラシュバ効果[C. R. Ast *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 186807 (2007)]が非磁性体(Ag)/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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ラシュバ効果によってもたらされる場合、冒頭で述べた逆エデルシュタイン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/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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)/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(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/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> と Cu/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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がある事が分かった。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 $\lambda_{\text{IEE}}$ が減少することが分かった (Cu 10 nm の時、 $\lambda_{\text{IEE}} = 0.4$  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/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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、ラシュバ系では、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)/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 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、ラシュバ係数 $\alpha_{\text{R}}$ を算出した。見積りの結果、 $\alpha_{\text{R}}$ 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、ラシュバ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<sub>x</sub> を作製した。測定ではフェルミ準位にかかる明瞭なラシュバ分裂が観測され、前述した変換現象がラシュバ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<sub>x</sub> 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。

次に正エデルシュタイン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)/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(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 $q_{\text{DEE}}$ 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、エデルシュタイン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、エデルシュタイン効果では、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 $\eta$ 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ラシュバ係数 $\alpha_{\text{R}}$ 、本測定から得られたエデルシュタイン係数 $q_{\text{DEE}}$ を代入して算出を行った。スピン脱出率 $\eta$ 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、エデルシュタイン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(Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)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/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>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/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Cu/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>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/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とCu/Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>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 $\lambda_{\text{IEE}}$ の符号が逆である事実と似た傾向であるため、エデルシュタイン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。