

東京大学大学院新領域創成科学研究科
基盤科学研究系物質系専攻

平成 25 年度

修士論文

Ag/Bi₂O₃ 界面誘起スピン流-電流変換

2014 年 1 月 28 日提出

指導教員：大谷 義近 教授

47-126010: 軽部 修太郎

平成二十五年度修士論文 $\text{Ag/Bi}_2\text{O}_3$ 界面誘起スピンの流・電流変換

軽部

修太郎

第1章	序論	
1.1.	研究背景 –スピントロニクス–	1
1.1.1.	スピン流	1
1.1.2.	スピンホール効果	2
1.1.3.	強磁性体からのスピン注入	3
1.1.4.	スピンプンピング	4
1.1.5.	Rashba 効果	5
1.1.6.	Edelstein 効果	6
1.2.	本研究の目的	7
第2章	基礎理論	
2.1.	スピンプンピング	8
2.2.	面内スピンバルブによるスピン注入	16
2.2.1.	スピン拡散	16
2.2.2.	スピン蓄積	17
2.2.3.	スピン蓄積の検出	18
第3章	実験方法	
3.1.	素子作製 –リフトオフ法–	20
3.1.1.	フォトリソグラフィ	20
3.1.2.	電子線リソグラフィ	21
3.1.3.	電子線加熱蒸着	21
3.1.4.	面内スピンバルブ素子の作製	24
3.2.	測定手法	25
3.2.1.	スピンプンピング誘起スピン流由来の直流電圧検出	25
3.2.2.	面内スピンバルブ素子を用いた非局所測定	26
第4章	測定結果および考察	
4.1.	Py/Ag/(Bi ₂ O ₃ or Al ₂ O ₃)三層構造における直流電圧の観測	27
4.2.	Py/Ag/ Bi ₂ O ₃ 三層構造におけるスピンプンピングの各種依存性	29
4.2.1.	印加周波数依存性	29
4.2.2.	素子長さ依存性	30
4.2.3.	入力電力依存性	30
4.3.	Ag 膜厚依存性	33
4.4.	考察 考えられるスピン流-電流変換メカニズム	37
第5章	面内スピンバルブ素子を用いた Ag/ Bi ₂ O ₃ 界面のスピン緩和観測	39
第6章	結論	41
	引用文献	42
	謝辞	45

第 1 章 序論

1.1. 研究背景 -スピントロニクス-

電子には電荷の他に、量子力学的な特性としてスピンという自由度が存在することが知られている。現在のエレクトロニクスの根幹を担う半導体演算子やハードディスクなどの磁気記録媒体は、それぞれ電荷とスピンの性質が利用されてきた。しかし、これらの自由度は個々に利用され、独立に研究分野が発展してきた。その一方で、電荷、スピンの両方の自由度を利用するスピントロニクスと呼ばれる分野が現在盛んに研究されるようになった。スピントロニクスではスピン依存の電気伝導が中核的な役割を担っている。そのため、素子サイズはスピン依存伝導を反映できる電子の平均自由行程程度である必要がある。旧来の素子加工技術では、作製できる素子サイズが平均自由行程よりはるかに大きかったため、スピン依存伝導を観測できるような状況になかった。しかしながら近年の急速な微細加工技術の発展により、ナノメートルオーダーの素子が作製可能となり、様々なスピン依存伝導現象が報告され始めた。中でも 1988 年の Fert らや Grünberg らにより報告された巨大磁気抵抗効果 (GMR) は非常に大きなインパクトを与えた[1,2]。この効果は積層周期が平均自由行程より小さい Fe/Cr の多層膜におけるもので、Cr を介した隣同士の Fe 層の磁化は互いに反強磁性的に結合する。この時、電子は強磁性層で頻繁に散乱されるため抵抗が大きくなるが、外部から磁場を印加して Fe 層の磁化方向を揃えることによって電子の散乱を抑え抵抗を小さくすることが可能となる。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。これは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。このような GMR 効果の発見は、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[3]。最近では GMR 効果を利用した読み取りのみならず、電流誘起磁化反転を利用した書き込みに関する応用も行われている[3]。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。

1.1.1. スピン流

スピン流には、スピン偏極電流および純スピン流の 2 種類が存在する。スピン偏極電流は、強磁性体中で Fermi 準位におけるアップ、ダウンのスピンの状態密度の違いにより生じるスピン偏極した電流である。1.1 のスピントロニクスの背景において説明した現象では、この強磁性体を舞台としたスピン偏極電流が主体であった。一方で、純スピン流とは、実効的な電荷の流れを伴わないスピン角運動量のみの流れを指す。現在、スピントロニクスにおいて盛んに研究が行われているのは、この純スピン流に関する物理現象である。この純スピン流の生成にはいくつか方法があり、強磁性体/非磁性体接合間に電流を流しスピン蓄積を生じさせるスピン注入、スピンホール効果、そしてスピンプンピングが知

られている。次節においてそれぞれ紹介していく。

1.1.2. スピンホール効果

強磁性体を用いずにスピン流を誘起できるのがスピンホール効果である。この効果により、電流からスピン流への変換を行う事ができる。この効果の歴史的背景として、ホール効果がある。1879 年、Hall は伝導体素子面直に磁場を印加し素子に電流を流した場合、電流方向と垂直に電圧（ホール電圧）が生じる現象を見出した[4]。これは進行中の電子の軌道が Lorentz 力によって曲げられる事により生じる。後に彼は更に強磁性体中では、ホール電圧が単に印加磁場の大きさに比例しないことを見出し、強磁性体中の磁化の影響も付随的に効いてくることを発見した[5]。こちらも今日、異常ホール効果としてよく知られている。1954 年、この異常ホール効果がスピン軌道相互作用と関係があることを Karplus と Luttinger により初めて指摘された[6]。スピン軌道相互作用はアップスピンとダウンスピンに対して互いに異なる方向に散乱を与える。この事は内因性のスピンホール効果の起源として今日知られている。更にその後、Smit や Berger らによって外因性（不純物散乱）のスピンホール効果であるスキュー散乱[7]やサイドジャンプ[8]が提案された。

本論文ではスピン軌道相互作用起因のスピン流-電流変換を調べることに重きを置いているので、ここでは内因性のスピンホール効果について紹介する。スピン軌道相互作用は原子核周りを運動する電子による有効磁場との結合と捉える事ができ[9]、以下の式のように表すことができる。

$$H_{\text{SO}} = \frac{\hbar}{4m^2c^2} \boldsymbol{\sigma} \cdot (\mathbf{p} \times \nabla U) \quad (1.1)$$

ここで、 $\boldsymbol{\sigma}, \mathbf{p}, U$ はそれぞれ Pauli 行列、運動量、原子核のポテンシャルである。原子核のポテンシャルは原子番号に依存して大きくなっていくため、原子番号が大きい金属ほどスピン軌道相互作用が大きくなる。このような強いスピン軌道相互作用をもつ原子番号の大きな金属中では、図 1.1(a)のように、アップスピンとダウンスピンは異なる方向に散乱される。これにより、スピン流は電流と垂直方向に生じる。またこの逆の効果(スピン流から電流への変換)として逆スピンホール効果が知られている。図 1.1(b)にその概略を表す。非磁性体中をスピン流が流れている場合、スピン流に対して垂直に電流が流れるので電圧として観測する事が可能となる[10,11]。また、スピン流-電流変換効率 θ_{ISHE} はスピン流密度 j_s および電流密度 j_c の比で表され、スピンホール角 $\theta_{\text{ISHE}} (= j_c/j_s)$ と呼ばれている。

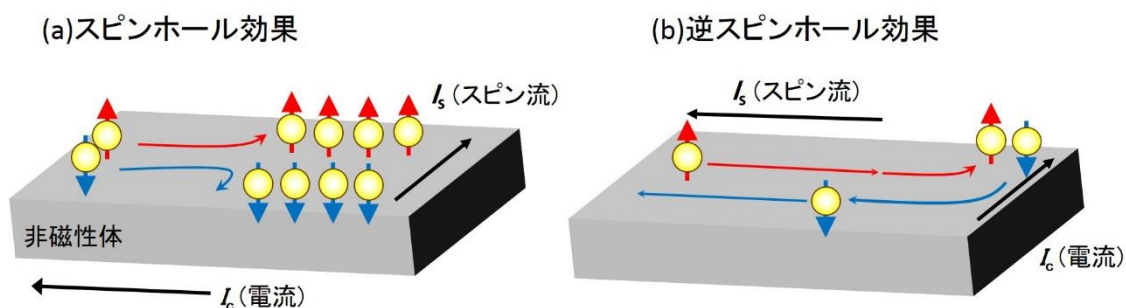


図 1.1 (a)スピホール効果と(b)逆スピホール効果の概略図

1.1.3. 強磁性体からのスピン注入

強磁性体/非磁性体の複合構造を用いてもスピン流を発生させる事が出来る。具体的には、強磁性体/非磁性体接合間に電流を流す方法と、強磁性体の磁化を高速で歳差運動させて非磁性体中へスピン注入を行うスピポンピング法と 2 種類存在する。この節では電流を流した場合のスピン注入について紹介する。強磁性体/非磁性体間に電流を流すと界面にスピン蓄積が生じる。このスピン蓄積は非磁性体にとって非平衡状態であるため、界面からの距離が長くなるにつれ、その量は指数関数的に減衰していく。このスピン蓄積の空間勾配をスピン流と呼ぶ。

スピン蓄積の実験は 1985 年、Johnson らによって初めて報告された[12]。幅 100 マイクロメートル、厚さ 50 マイクロメートルの単結晶 Al に強磁性体を接合した系を用いて行われた。しかしながら検出信号が 100 pV と微小であったため、あまり注目されなかった。しかし、微細加工技術の発展に伴って 2001 年に Jedema らによって以下の図 1.2 のような強磁性体/非磁性体の複合構造の系をナノメートルオーダーまで小さくすることで検出信号は数 μV まで増大した[13,14]。Jedema らの用いた 2 本の強磁性体細線を非磁性体細線で架橋した系を、面内スピバルブ構造と呼ぶ。片側の強磁性体/非磁性体接合に電流を流すことによってスピン注入を行い、もう片方の接合においてスピン流検出を行うことができる。

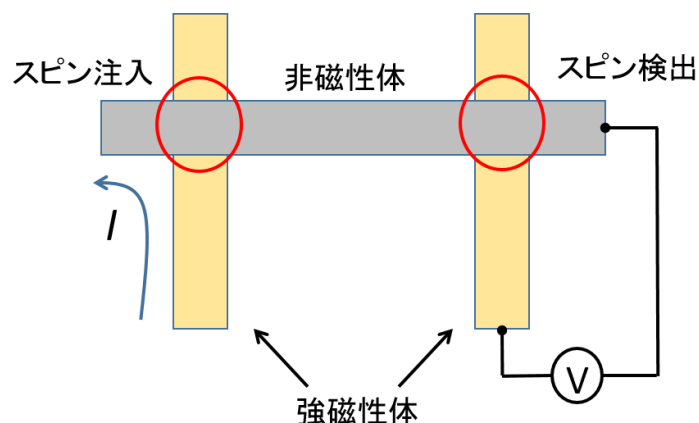


図 1.2 面内スピバルブ素子構造

1.1.4. スピンポンピング

強磁性体/非磁性体接合構造において、前節で述べた電流によるスピン注入の他にも、強磁性体中の磁化のダイナミクスを利用したスピンポンピング法によるスピン注入がある。2002年に、Mizukami らや Tserkovnyak らのグループによってそれぞれ理論が提唱され、実験においても確認された。Mizukami らは強磁性体中の電子の拡散に基づいた理論[15,16]、Tserkovnyak らは強磁性体/非磁性体界面の電子の散乱に基づいた理論[17,18]によりスピンポンピングを提唱しており、アプローチの仕方は異なる。しかしながら、界面において電子が強磁性体のスピンを非磁性体へ持ち去り、どのように拡散するかといった点において両者は共通である。このスピンポンピングに関する理論的な導入は第2章で紹介する。今節ではスピンポンピングの直感的理解を述べる[3]。図1.3(a)に磁化の歳差運動の概念図を示す。静磁場により磁化方向を定めておき、この磁化方向に対して垂直に交流磁場を印加すると磁化にトルクが働き、磁化は静磁場周りに歳差運動を始める。またこのような歳差運動トルクが生じることにより、ダンピングトルクも働く事になる。図1.3(a)はその様子を表している。このような磁化が歳差運動している強磁性体に隣接した非磁性体には、どのようにしてスピン流が流れこむのか、磁化の運動を振り子に例えて考えるとわかりやすい。図1.3(b)のように、振り子は周りの空気分子（グレーの丸）と擦れ合うことで回転の角運動量とエネルギーが空気分子に奪われ、結果として振り子の回転は減衰する。強磁性体/非磁性体の接合では、非磁性体中の空気分子は接合界面で回転する振り子と擦れ合い、回転を奪って非磁性体中に戻ってくる（非磁性体中をスピン流が流れる）。これが直感的なスピンポンピングの概念である。スピンポンピングによるスピン流注入は、強磁性体の強磁性共鳴（FMR: Ferro Magnetic Resonance）現象を利用しており、共鳴周波数または共鳴磁場の時、最も効率的に磁化の歳差運動を誘起して、スピン流を注入することが出来る。

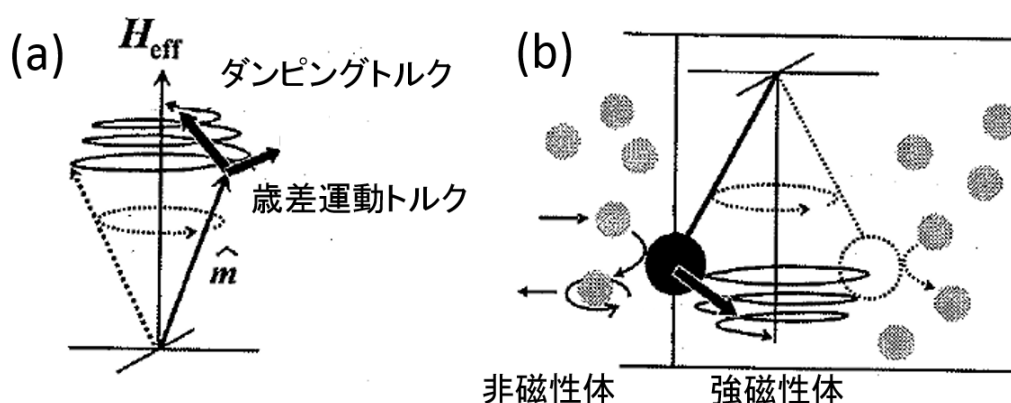


図 1.3 (a)磁化の歳差運動の概念図 (b)磁化の歳差運動を振り子に例えた概念図[3]

1.1.5. Rashba 効果

Rashba 効果は物質の空間反転対称性の破れに起因した相対論的效果で、アップスピン、ダウンスピンの縮退が解ける現象である。この効果は Rashba によって 1960 年に提唱された[19,20]。通常、非磁性体では、時間反転および空間反転対称が守られているため、アップ、ダウンの両スピンのエネルギーバンドは縮退している。しかし空間反転対称性が破れると、図 1.4 のようにスピンの縮退が解ける。半導体中での格子欠陥等に起因してスピン縮退が解ける場合はバルク反転非対称性（BIA: Bulk Inversion Asymmetry）に分類され、Dresselhaus 効果[21]と呼ばれる。また表面や界面などでスピン縮退が解ける場合は構造反転非対称性（SIA: Structure Inversion Asymmetry）に分類され、Rashba 効果と呼ばれる。Rashba 効果で具体的にどのようにしてスピンの縮退が解けるか古典的モデルにおいて、直感的理解が可能である[22]。図 1.5(a)のように、2 次元電子系を進行する電子を考える。空間反転対称性の破れにより、電子には電場が印加されている状況になり、それをプラス、マイナスの電荷により表している。図 1.5(a)は 2 次元電子系を進行している電子の様子を表しているが、図 1.5(b)のように、相対的に電子が静止して周りの系が動いている状況と考えることも出来る。これは図 1.5(c)のように上下の界面を電流が互いに逆向きに流れていると取ることもでき、これにより 2 次元電子系を進行中の電子には有効磁場が働く事が理解出来る。この有効磁場により、アップスピンとダウンスピンの縮退は解け、図 1.4(a)のようなバンド分裂が起こる。

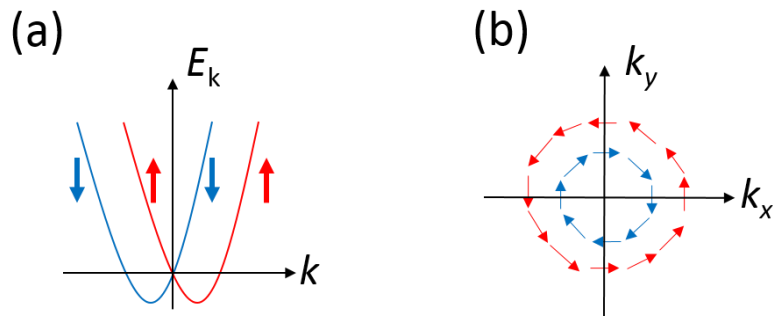


図 1.4 (a)アップスピン、ダウンスピンのエネルギーバンドの分裂
(b) アップスピン、ダウンスピンの k 空間におけるエネルギーバンドの分裂

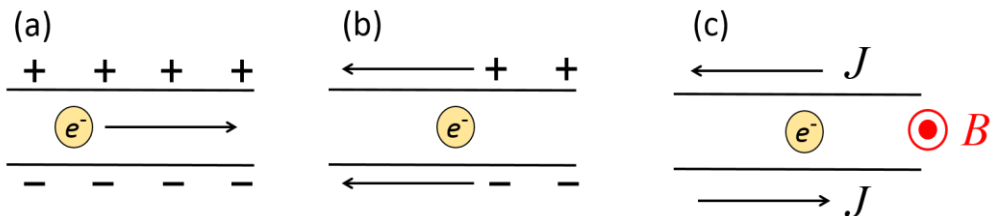


図 1.5 Rashba 効果の古典的なモデルによる理解 (a)2 次元電子系を進行中の電子の様子
(b)電子を静止させた(a)に対する相対的な系 (c)界面を流れる電流誘起の有効磁場

1.1.6. Edelstein 効果

Edelstein 効果とは、図 1.6(a)のような Rashba 効果が発現している 2 次元電子ガスに、電流を流すとアップスピンとダウンスピンの数に偏りが生じ、スピン蓄積が生じる現象である。この現象は、1990 年に Edelstein によって理論的に示された[23]。以下、Fermi 円を用いて現象を理解する。

Rashba 効果で分裂したアップスピンとダウンスピンの Fermi 円は、図 1.6(b)のように、直径が大きな Fermi 円（赤）と小さな Fermi 円（青）で表すことができる。このような系に電場をかけると、それぞれの Fermi 円はともに Δk だけ偏心する。その場合、2 つの Fermi 円の直径が異なるため、その分だけスピン蓄積が生じる。実空間でみると、図 1.6(a)の 2DEG 平面にスピン蓄積が生成することになる。もし、金属/酸化物界面などで Rashba 効果を誘起できた場合、面内方向に電場を印加する（電流を流す）と、界面でスピン蓄積が生じて、スピン緩和によって面直方向にスピン流が流れることが予想される。

また、Rashba 効果がある系にスピン流を注入してスピン蓄積を誘起できれば、Edelstein 効果の逆効果(逆 Edelstein 効果)でスピン流・電流変換が行われると考えられる[24]。

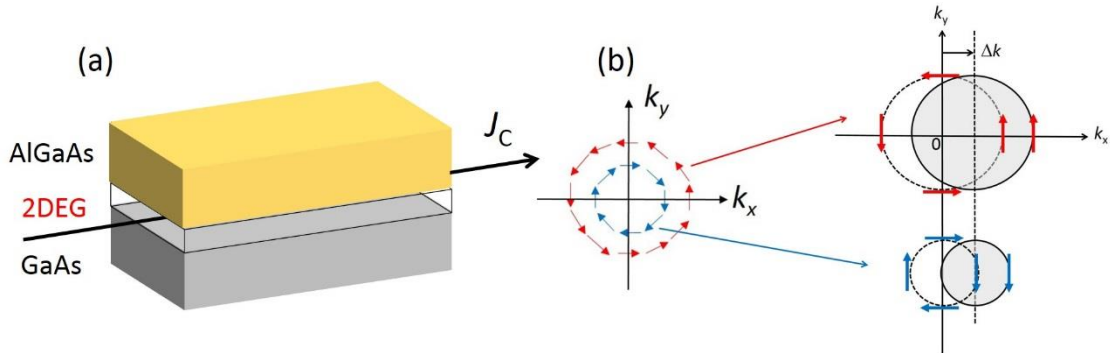


図 1.6 (a)AlGaAs/GaAs ヘテロ構造の 2 次元電子ガスに電流が流れる概略図
(b)Rashba 効果下にある Fermi 円の偏心の概念図

1.2. 本研究の目的

図 1.7(a)のように非磁性体/酸化物界面に誘起されるバンドベンディングに起因した Rashba 効果によるスピン流・電流変換（図 1.7(b)）の観測を目的に研究を行った。非磁性体/酸化物界面では遮蔽長範囲内の 0.1 nm 程度では Rashba 効果が発現していることが、理論的に示唆されている[25]。本研究では、そのような界面誘起の効果を調べるために、スピンプンピングによる直流電圧の観測実験および面内スピバルブ素子による非局所実験を行った。

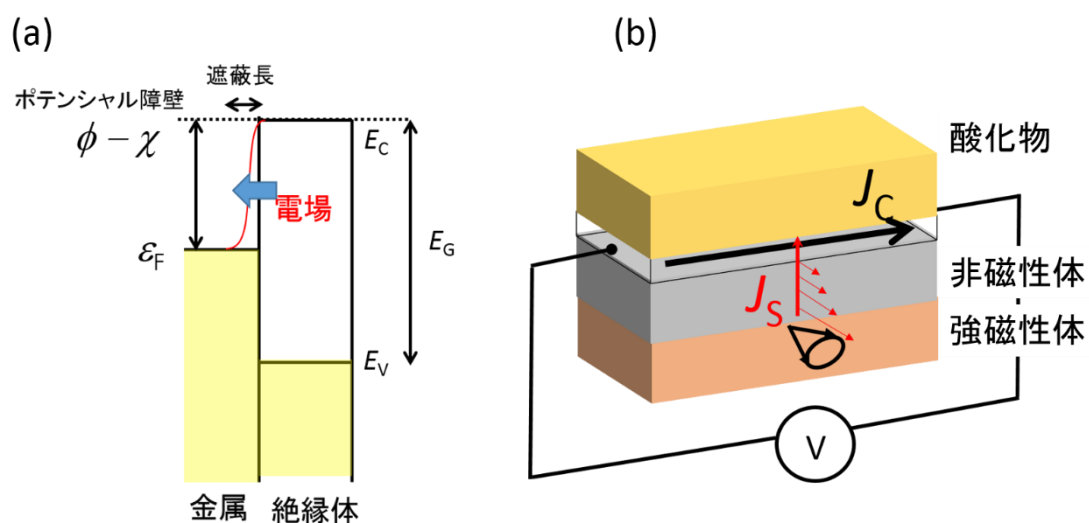


図 1.7(a)非磁性体/酸化物界面のバンドベンディングに起因した電場発生の様子
(b)強磁性体/非磁性体/酸化物の三層構造におけるスピン流注入およびスピン流・電流変換の概念図

第 2 章 基礎理論

2.1. 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 [17,18]。

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 2.1 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。

$$\hat{I} = \frac{I_c}{2} \hat{1} + \frac{e}{\hbar} \hat{\sigma} \cdot \mathbf{I}_s \quad (2.1)$$

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。(2.1) 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 (2.2) 式のようなになる。

$$\hat{I}(t)^{\text{pump}} = e \frac{\partial \hat{n}(l)}{\partial X} \frac{dX(t)}{dt} \quad (2.2)$$

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。

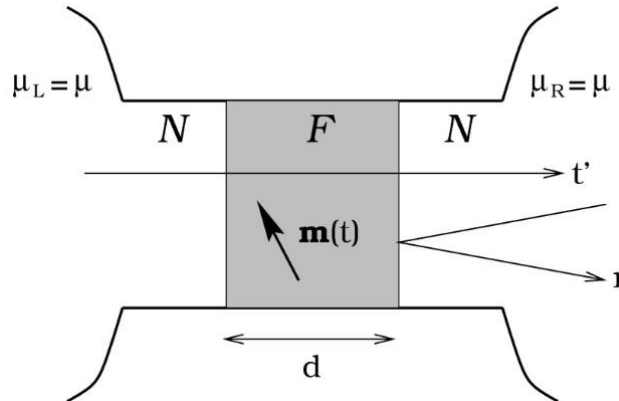


図 2.1 N/F/N の系において電子の透過や反射を表している概念図[18]

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。(2.1)式と異なる表記の電流演算子を(2.3)式のように定める。

$$\hat{I}_l^{\alpha\beta}(t) = \frac{e}{h} \sum_m \int dE dE' e^{\frac{i}{\hbar}(E-E')t} \{ a_{\beta,m,l}^\dagger(E) a_{\alpha,m,l}(E') - b_{\beta,m,l}^\dagger(E) b_{\alpha,m,l}(E') \} \quad (2.3)$$

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、消滅演算子の間は(2.4)式のような関係が成り立つ。

$$b_{\alpha,m,l}(E) = \sum_{\beta,n,l'} \hat{s}_{mn,ll'}^{\alpha,\beta}(E) a_{\beta,n,l'}(E) \quad (2.4)$$

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、(2.5)式のようになる。

$$b_{\alpha,m,l}^\dagger(E) = \sum_{\beta,n,l'} a_{\beta,n,l'}^\dagger(E) \hat{s}_{nm,l'l}^{\beta,\alpha}(E) \quad (2.5)$$

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 中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、(2.6)式のような関係が成り立つ。

$$\langle a_{\alpha,m,l}^\dagger(E) a_{\beta,n,l'}(E') \rangle = f_l^{\alpha\beta}(E) \delta_{mn} \delta_{ll'} \delta(E - E') \quad (2.6)$$

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、

$$\langle \hat{I}_l(\omega) \rangle = \hat{g}_{X,l}(\omega) X(\omega) \quad (2.7)$$

$$\hat{g}_{X,l}(\omega) = -\frac{e\omega}{4\pi} \sum_{l'} \int dE \left(-\frac{\partial f_{l'}(E)}{\partial E} \right) \sum_{m,n} \left(\frac{\partial \hat{s}_{mn,ll'}(E)}{\partial X} \hat{s}_{mn,ll'}^\dagger(E) - \text{H.c.} \right) \quad (2.8)$$

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、(2.9)式のような近似ができる。

$$-\frac{\partial f_{l'}(E)}{\partial E} = \delta(E - \varepsilon_F) \quad (2.9)$$

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(2.10)式のようにになる。

$$\langle \hat{I}_l(\omega) \rangle = -\frac{e\omega}{4\pi} \sum_{m,n,l'} \left\{ \frac{\partial \hat{s}_{mn,ll'}}{\partial X} \hat{s}_{nm,l'l}^\dagger - \text{H. c.} \right\} X(\omega) \quad (2.10)$$

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、

$$\hat{Q}(t) = \frac{e}{4\pi i} \sum_{m,n,l'} \left\{ \frac{\partial \hat{s}_{mn,ll'}}{\partial X} \hat{s}_{nm,l'l}^\dagger - \text{H. c.} \right\} X(t) \quad (2.11)$$

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、(2.2)式のようにになる。これにより、

$$\frac{\partial \hat{n}_l}{\partial X} = \frac{1}{4\pi i} \sum_{m,n,l'} \frac{\partial \hat{s}_{mn,ll'}}{\partial X} \hat{s}_{nm,l'l}^\dagger + \text{H. c.} \quad (2.12)$$

となる。ここで(2.1)式の電流演算子に立ち返ると、電流成分が無視でき、 $\hat{I}^{\text{pump}} = -(e/\hbar)\hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \mathbf{I}_S^{\text{pump}}$ となることは (2.2)、(2.12)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(2.13)式のように表せる。

$$\mathbf{I}_S^{\text{pump}} = \frac{\hbar}{4\pi} \left(A_r \mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} - A_i \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right) \quad (2.13)$$

$$g^{\sigma\sigma'} = \sum_{mn} \left[\delta_{mn} - r_{mn}^\sigma (r_{mn}^{\sigma'})^* \right], \quad t^{\uparrow\downarrow} = \sum_{mn} t_{mn}^\uparrow (t_{mn}^\downarrow)^* \quad (2.14)$$

$$A = g^{\uparrow\downarrow} - t^{\uparrow\downarrow}, \quad A_r = \text{Re}[A], \quad A_i = \text{Im}[A] \quad (2.15)$$

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 はミキシングコンダクタンスを表す。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(2.16)のような形式で表すことが出来る。

$$I_S^{\text{pump}} = \frac{\hbar}{4\pi} g^{\uparrow\downarrow} \left[\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \right]_i \quad (2.16)$$

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。これによりスピンプンピングにより生成されるスピン流密度の直流成分は(2.17)式のように表される[26]。

$$j_s = \frac{\omega}{2\pi} \int_0^{2\pi/\omega} \frac{\hbar}{4\pi} g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \frac{1}{M_S^2} \left[\mathbf{m}(t) \times \frac{d\mathbf{m}(t)}{dt} \right]_i dt \quad (2.17)$$

このように、スピンプ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。1.1.4 で概説したように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。

次にスピンプンピングにおける基礎的な式の導出を行う[26]。具体的な指針としては、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流が非磁性体に注入されるか紹介する。

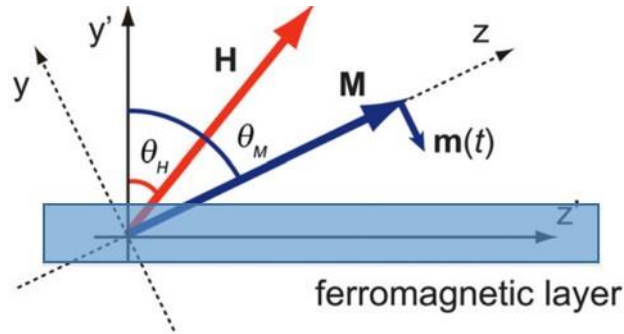


図 2.2 強磁性体の系における磁化や外部磁場方向の概形図 [26]

まず図 2.2 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(2.18)のようになる。

$$\mathbf{H}_{\text{eff}} = \mathbf{H} + \mathbf{H}_M \quad (2.18)$$

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(2.19)式のように与えられる。

$$2H \sin(\theta_H - \theta_M) + 4\pi M_S \sin 2\theta_M = 0 \quad (2.19)$$

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(2.20)式のようになる。

$$\mathbf{H}_{\text{eff}}(t) = \mathbf{H} + \mathbf{H}_M + \mathbf{H}_m(t) + \mathbf{h}_{\text{rf}}(t) \quad (2.20)$$

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(2.21)式のような LLG 方程式により記述される。

$$\frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} = -\gamma_e \mathbf{M}(t) \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha_{\text{eff}}}{M_S} \mathbf{M}(t) \times \frac{d\mathbf{M}(t)}{dt} \quad (2.21)$$

ここで、 $\gamma_e, \alpha_{\text{eff}}$ はそれぞれ電子の磁気回転比、ダンピング定数である。上記のような系を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、(2.21)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(2.19)式を用い、(2.22)式のように共鳴条件が決まる。

$$\left(\frac{\omega}{\gamma_e}\right)^2 = [H_R \cos(\theta_H - \theta_M) - 4\pi M_S \cos 2\theta_M] \times [H_R \cos(\theta_H - \theta_M) - 4\pi M_S \cos^2 \theta_M] \quad (2.22)$$

FMR 条件下にある $\mathbf{m}(t)$ の動的成分は、(2.19)、(2.22)式を用い、(2.21)式の LLG 方程式を解く事により決めることが出来る。

$$m_x(t) = \frac{4\pi M_S h \gamma_e \left\{ 2\alpha\omega \cos \omega t + \left[4\pi M_S \gamma_e \sin^2 \theta_M + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2} \right] \sin \omega t \right\}}{8\pi\alpha\omega \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2}} \quad (2.23)$$

$$m_y(t) = -\frac{4\pi M_S h \gamma_e \cos \omega t}{4\pi\alpha \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2}} \quad (2.24)$$

(2.17)、(2.23)、(2.24)式を用いて、スピン流密度は(2.25)式のような具体的な表式を得る。

$$j_s = \frac{g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \gamma_e^2 h_{\text{rf}}^2 \hbar \left[4\pi M_S \gamma_e \sin^2 \theta_M + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2} \right]}{8\pi\alpha^2 [(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2]} \quad (2.25)$$

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、

$$j_s = \frac{g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \gamma_e^2 h_{\text{rf}}^2 \hbar \left[4\pi M_S \gamma_e + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 + 4\omega^2} \right]}{8\pi\alpha^2 [(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 + 4\omega^2]} \quad (2.26)$$

と表される。また(2.26)式の α は、Py の FMR の半値幅を、半値全幅 (FWHM: Full Width at Half Maximum) として扱った場合の式である。本研究では半値幅を半値半幅 (HWHM: Half Width Half Maximum) として扱うため、 $\alpha \sim \Delta H$ において、 $\Delta H' = \Delta H/2$ として扱う。そのため、(2.26)式の j_s は(2.27)式ようになる。

$$j_s = \frac{g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \gamma_e^2 h_{\text{rf}}^2 \hbar \left[4\pi M_S \gamma_e + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 + 4\omega^2} \right]}{2\pi\alpha^2 [(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 + 4\omega^2]} \quad (2.27)$$

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。

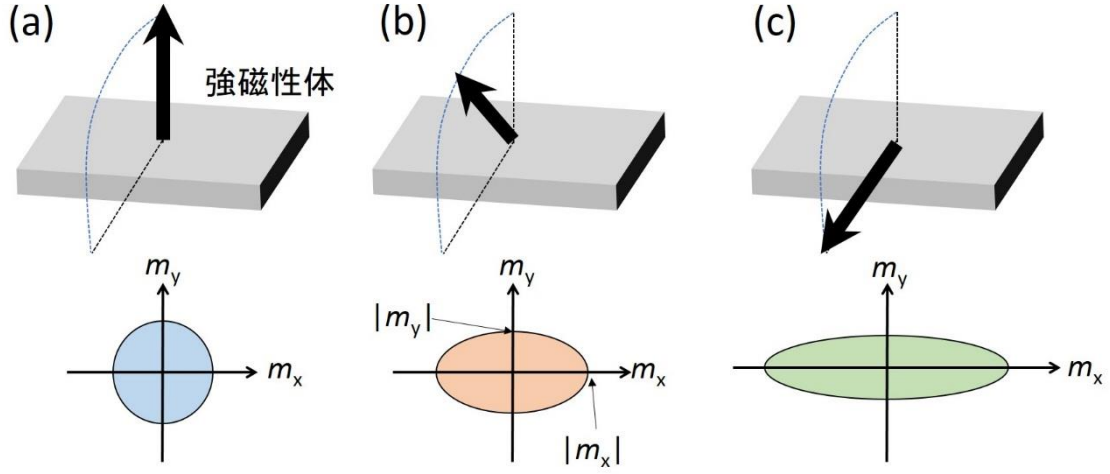


図 2.3 異なる磁化方向による歳差運動軌道 (a)面直 (b)斜め (c)面内

図 2.3 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 2.3(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。(2.23)、(2.24)式を用いることにより、 P は(2.28)のようになる。

$$P = \frac{2\omega[4\pi M_S \gamma_e \sin^2 \theta_M + \sqrt{(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2}]}{[(4\pi M_S)^2 \gamma_e^2 \sin^4 \theta_M + 4\omega^2]} \quad (2.28)$$

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。先ほど示した(2.25)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。(2.27)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(2.29)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。

$$j_s(z) = \frac{\sinh\left(\frac{t_N - z}{\lambda_{\text{sf}}}\right)}{\sinh\left(\frac{t_N}{\lambda_{\text{sf}}}\right)} j_s \quad (2.29)$$

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、逆スピンホール効果によって、スピン流・電流変換が行われて、(2.30)式のような電流密度を得る。

$$j_C(z) = \theta_{\text{SHE}} \left(\frac{2e}{\hbar} \right) j_S(z) \quad (2.30)$$

ここで、 θ_{SHE} はスピンホール角である。

また、(2.30)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。

$$\langle j_C \rangle = \frac{1}{t_N} \int_0^{t_N} j_C(z) dz \quad (2.31)$$

これにより、逆スピンホール電圧 V_{ISHE} は、

$$V_{\text{ISHE}} = \frac{R_F R_N}{R_F + R_N} I_C = \frac{L}{\sigma_N + (t_F/t_N)\sigma_F} \langle j_C \rangle = \frac{\theta_{\text{SHE}} L \lambda_{\text{sf}} \tanh(t_F/2\lambda_{\text{sf}})}{t_N \sigma_N + t_F \sigma_F} \left(\frac{2e}{\hbar} \right) j_S \quad (2.32)$$

となり、最終的に(2.33)式のように表せる。

$$V_{\text{ISHE}} = \frac{\theta_{\text{SHE}} e L P \omega \lambda_{\text{sf}} g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} \sin^2 \theta}{2\pi(\sigma_N t_N + \sigma_F t_F)} \tanh\left(\frac{t_N}{2\lambda_{\text{sf}}}\right) \quad (2.33)$$

$$\theta = h_{\text{rf}}/\Delta H \quad (2.34)$$

ここで、 $R_F, R_N, L, \sigma_N, \sigma_F, t_F, \theta, h_{\text{rf}}, \Delta H$ 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 HWHM 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。

2.2. 面内スピバルブによるスピン注入

面内スピバルブにおいても、スピポンピング法と同様スピン流の生成が可能である。以下に面内スピバルブに用いる基礎理論を紹介する[27, 28]。

2.2.1. スピン拡散

スピン流は、非磁性体中に生じた非平衡なスピン蓄積量の空間勾配を指し、それを記述するためにはスピン依存伝導を取り扱う必要がある。それはスピンのアップ、ダウンに関して異なる伝導チャネルを用意するモデルで、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[29]。これを 2 電流モデルと呼ぶ。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 はスピンのアップあるいはダウンに対応)。

$$j_\sigma = \sigma_\sigma E - eD_\sigma \nabla \delta n_\sigma \quad (2.35)$$

ここで、1 項目は電場によるドリフト電流密度、2 項目は電子密度における定常状態から変位 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 $E = -\nabla\phi$ 、Einstein の関係式 $\sigma_\sigma = e^2 N_\sigma D_\sigma$ および $\delta n_\sigma = N \delta \varepsilon_\sigma$ により(2.36)式のように変形する。

$$\begin{aligned} j_\sigma &= -\frac{\sigma_\sigma}{e} \left[e \nabla \phi + \frac{\nabla \delta n_\sigma}{N_\sigma(\varepsilon_F)} \right] \\ &= -\frac{\sigma_\sigma}{e} [e \nabla \phi + \nabla \delta \varepsilon_\sigma] \end{aligned} \quad (2.36)$$

電気化学ポテンシャル(ECP) $\mu_\sigma = e\phi + \varepsilon_\sigma$ を定義する事により、電流密度は

$$j_\sigma = -\frac{\sigma_\sigma}{e} \nabla \mu_\sigma \quad (2.37)$$

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、

$$\nabla \cdot (j_\uparrow + j_\downarrow) = 0 \quad (2.38)$$

$$\nabla \cdot (j_\uparrow - j_\downarrow) = -e \left(\frac{\delta n_\uparrow}{\tau_{\uparrow\downarrow}} - \frac{\delta n_\downarrow}{\tau_{\uparrow\downarrow}} \right) \quad (2.39)$$

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

$$\nabla^2(\sigma_{\uparrow}\mu_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow}\mu_{\downarrow}) = 0 \quad (2.40)$$

$$\nabla^2(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) = \frac{1}{\lambda_{\text{sf}}^2}(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) \quad (2.41)$$

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

$$\frac{1}{\tau_{\text{sf}}} = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_{\uparrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}} \right) \quad (2.42)$$

$$\frac{1}{D} = \frac{1}{D_{\uparrow}} \frac{N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} + \frac{1}{D_{\downarrow}} \frac{N_{\uparrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} \quad (2.43)$$

である。スピン拡散は(2.38)および(2.39)を基礎方程式として議論される。

2.2.2. スピン蓄積

面内スピ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 2.4(a)のような強磁性体/非磁性体(F/N)の接合系について、(2.39)式を解く[27]。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。(2.37)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。

$$\mu_N^{\sigma} = \overline{\mu_N} + \sigma(a_1 e^{-|x|/\lambda_N} - a_2 e^{-|x-L|/\lambda_N}) \quad (2.44)$$

$$\mu_{F1}^{\sigma} = \overline{\mu_{F1}} + \sigma b_1 \frac{\sigma_{F1}}{\sigma_{\sigma}} e^{-z/\lambda_F} \quad (2.45)$$

ここで $x < 0$ において、 $\overline{\mu_N} = -(eI/\sigma_N A_J)x$ であり、 $x > 0$ において、 $\overline{\mu_N} = 0$ である。また $z > 0$ において、 $\overline{\mu_F} = -(eI/\sigma_N A_J)z + eV_1$ であり、 $z < 0$ において、 $\overline{\mu_F} = 0$ である。また $\lambda_N, \lambda_F, A_J$ 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 (2.44) 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-を表す。 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 2.4(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 2.4(b)のようにスピン流 ($j_S = j_N^{\uparrow} - j_N^{\downarrow}$) が流れる。

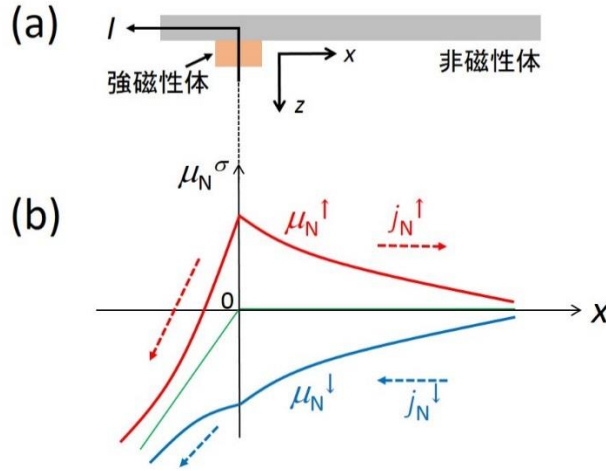


図 2.4 (a)F/N 接合の断面図 (b) 非磁性体中の各 σ の電気化学ポテンシャル

2.2.3. 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(ECP)は図 2.5(a)の F2 中でのように、非対称に緩和する[27]。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 2.5(a)の F2 中の点線部のように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 2.5(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てやり、2つの強磁性体の磁化方向を平行、反平行かの状態を作れば、スピン信号 ΔR_S を見積もることが可能となる[13,14,30]。

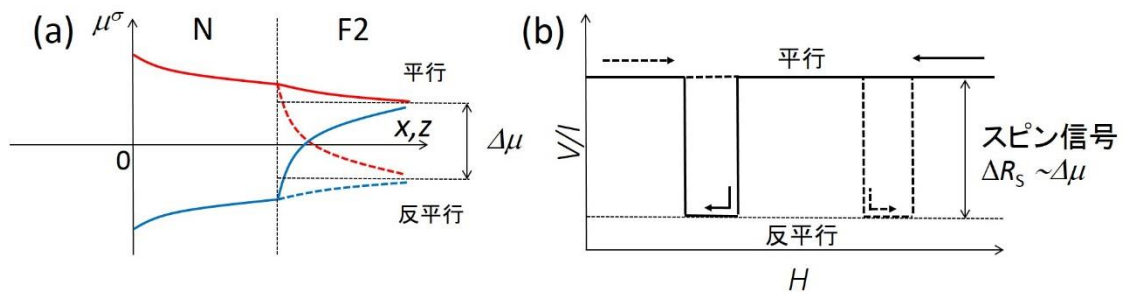


図 2.5 (a) 非磁性体および強磁性体中の各 σ の ECP (b) 検出スピン信号の概形

またスピン信号の大きさ ΔR_S であるが、2.2.2 同様に、N/F2 界面での(2.39)式を解くことにより導出が可能である[27]。得られた ECP の解の未知係数を境界条件により定めることによって、

$$\Delta R_S = \frac{4R_S^N \left[\frac{P_I}{1-P_I^2} \left(\frac{R_I}{R_S^N} \right) + \frac{P_F}{1-P_F^2} \left(\frac{R_S^F}{R_S^N} \right) \right]^2 e^{-L/\lambda_N}}{\left[1 + \frac{2}{1-P_I^2} \left(\frac{R_I}{R_S^N} \right) + \frac{2}{1-P_F^2} \left(\frac{R_S^F}{R_S^N} \right) \right]^2 - e^{-2L/\lambda_N}} \quad (2.46)$$

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、

$$R_S \equiv \frac{1}{\sigma} \frac{\lambda}{(1-P^2)A} \quad (2.47)$$

と定義される（ここで、 λ, σ, 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となっている。

(2.46) 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 を算出することができる。

第 3 章 実験手法

3.1. 素子作製 -リフトオフ法-

本研究で用いた素子はリフトオフ法を用いて作製した。リフトオフ法とは、基板上に紫外光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う手法である。その後、有機溶剤などを用いてレジストを溶解し、素子のみを得ることができる。これがリフトオフ法である。以下にリフトオフ法を行うための過程を示す。

3.1.1. 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。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ncer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ブンにて 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ncer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。

(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。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、ブロワーで水分を吹き飛ばす。

以上が PL の過程である。

3.1.2. 電子線リソグラフィー

面内スピナバルブ素子（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ー（EBL）を用いた。EBLはPLとは異なり、1 μm スケール以下の描画が可能である。スピナバルブ素子では、強磁性体と非磁性体の接合界面を清浄に保つために（酸化させずに）立体レジストを用いた斜め蒸着により作製される。立体レジストとは、電子線の感光率の異なった2つのレジスト材料からなるものである。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。以下にリソグラフィー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、スピン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で90秒間180度でベーキングする。

(ii) PMMAを滴下し、スピンコータ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で90秒間180度でベーキングする。

(3) EBL

(4) 現像

現像液に30秒間浸し現像を行う。その後IPAでリンスを行う。

3.1.3. 電子線加熱蒸着

リソグラフィーにより、パターンニングされたレジストマスク付き基板に対して蒸着を行う。抵抗加熱に比べて電子線（EB）加熱蒸着の利点は、加熱源であるEBを発生させるフィラメントをるつぼ直下に設置することができるので、るつぼを冷却しながらターゲットのみを加熱することができ、るつぼの汚染を防ぐことができる点である。

以下、実際にPy/Ag/Bi₂O₃のスピンプンピングの実験に用いた試料の作製方法を示す。（図3.1）。

(a) Py/Ag/Bi₂O₃ 三層構造の作製

(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

ンバーヘフォルダーをロードする。

(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) 蒸着(Ag)_試料搬送および真空引き

その後、非磁性体 Ag を蒸着する。そのためにまず、磁性不純物の混入を避けるために、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(トランスファー)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。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ため、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。そのためフォ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) 蒸着(Ag)

メインチャンバー内にあるムービングシャッターを利用し、Ag をレート 0.2 nm/s で 0 - 20 nm ウェッジ蒸着する。メインチャンバーから LL チャンバーへサンプルホルダーをトランスファーする。

(6) 蒸着(Bi₂O₃)

Bi₂O₃ を 10 nm 蒸着する (今回、Bi₂O₃ に対する参照素子として Al₂O₃ 10 nm の素子も同様に作製した)。

(7) リフトオフ

LL チャンバーの大気開放を行い、サンプルホルダーを取り出す。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 1 時間程度、超音波洗浄を行う。

(b) 直流電圧検出用 Cu 電極の作製

次に電圧を検出するための Cu 電極を作製する (図 3.1 (b))。まず 3.1.1. で前述した方法で、PL を行い、Cu 電極用のマスクを作製しておく。Cu や Au などの電極はクリーンルーム内の共用設備である汎用 EB 蒸着チャンバーを用いて成膜した。

(8) 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。

(9) Cu をレート 0.2 nm/s 程度で 50 nm 蒸着する。

(10) (7)の手順のように、リフトオフ、洗浄を行う。

(c) 絶縁層 Al_2O_3 の作製

次に Cu 電極と Au ウェーブガイド間が導通しないように、 Al_2O_3 絶縁層を蒸着する（図 3.1 (c)）。3.1.1.で前述した方法で、PL を行い、 Al_2O_3 絶縁層用のマスクを作製しておく。

(11) (2)のベースプレッシャーにおいて、 Al_2O_3 をレート 0.1 nm/s 程度で 100 nm 蒸着する。

(12) (7)の手順のように、リフトオフ、洗浄を行う。

(d) コプレナー・ウェーブガイド(WG)用 Ti/Au 電極の作製

最後に、Oersted 磁場発生用のウェーブガイドを作製するため、Ti/Au を蒸着する（図 3.1 (d)）。3.1.1.で前述した方法で、PL を行い、Au ウェーブガイド用のマスクを作製しておく。

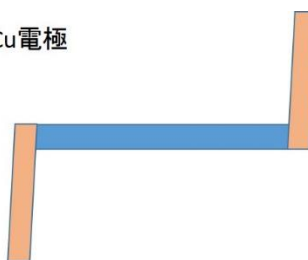
(13) クリーンルーム内の蒸着チャンバーにおいて、始めにバッファーとなる Ti を 0.01-0.02 nm/s 程度で 5 nm 蒸着する。次に Au をレート 0.2 nm/s 程度で 200 nm 蒸着する。

(14) (7)の手順のように、リフトオフ、洗浄を行う。

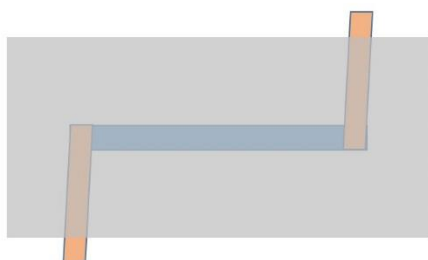
(a) Py/Ag/ Bi_2O_3 トリレイヤー



(b) Cu電極



(c) Al_2O_3 絶縁層



(d) Au waveguide

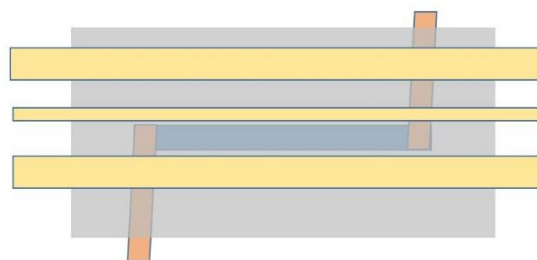


図 3.1 スピンポンピング測定用素子の作製手順

上記の 4 工程を経て、スピンポンピング測定用素子を作製した。

3.1.4. 面内スピバルブ素子の作製

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

- (1) 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、2 回ずつ PL、Au 蒸着を行う。この時、EBL における位置合わせを行うためのマークも電極と一緒にパターンニングしておく。
- (2) EBL を行う（図 3.2(a), (b)）。
- (3) EB 蒸着により成膜を行う。まず LL チャンバーにおいて、Py をレート 0.05 nm/s 程度で 20 nm を 45 度の斜め蒸着を行う。その後、メインチャンバーにサンプルホルダーをトランスファーし、Mg をレート 0.01 nm/s 以下で 0.5 nm 45 度斜め蒸着する。再び LL チャンバーへトランスファーを行い、MgO をレート 0.01 nm/s で 2 nm 45 度斜め蒸着する（図 3.2(c)）。その後、メインチャンバーにトランスファーをし、図 3.2(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、Bi₂O₃ をレート 0.01 nm/s で 10 nm 蒸着する（リファレンスとして Al₂O₃ も同条件で作製する）。
- (4) リフトオフを行う（図 3.2(e)）。

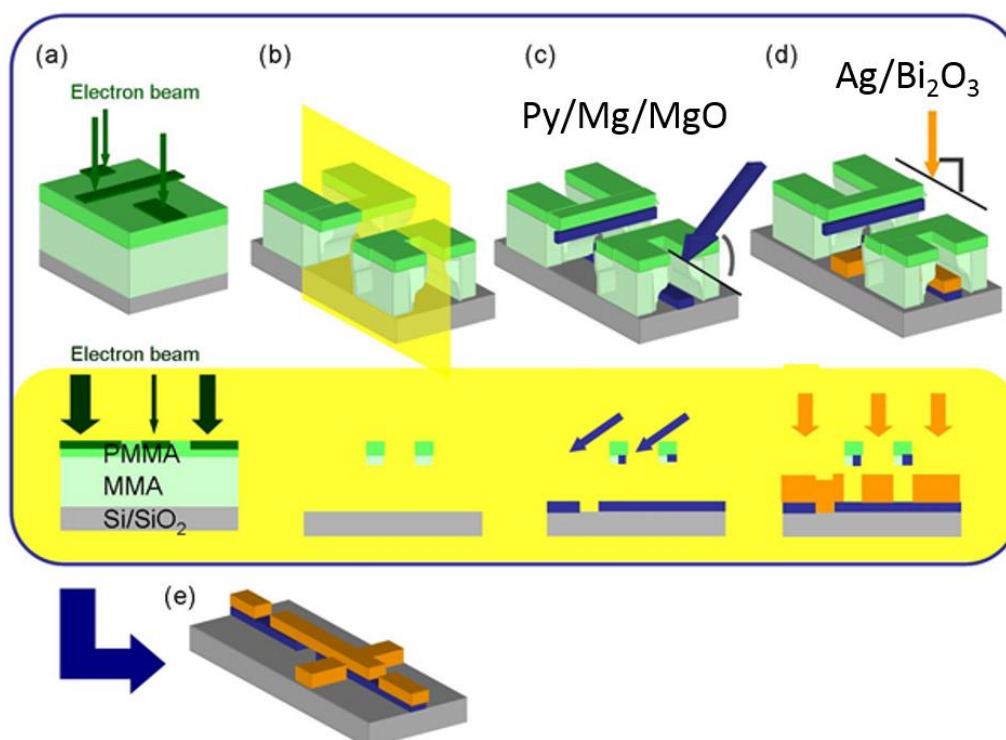


図 3.2 面内スピバルブ素子の作製手順 (a)EBL (b)現像後の立体レジストマスク (c)Py/Mg/MgO の斜め蒸着 (d)Ag/ Bi₂O₃ の蒸着 (e)リフトオフ後の素子

3.2. 測定手法

本研究では、スピンプンピングによるスピン流注入および直流電圧の測定と面内スピントル素子を用いた非局所測定を行った。以下に各測定の手法を示す。

3.2.1. スピンプンピング誘起スピン流由来の直流電圧検出法

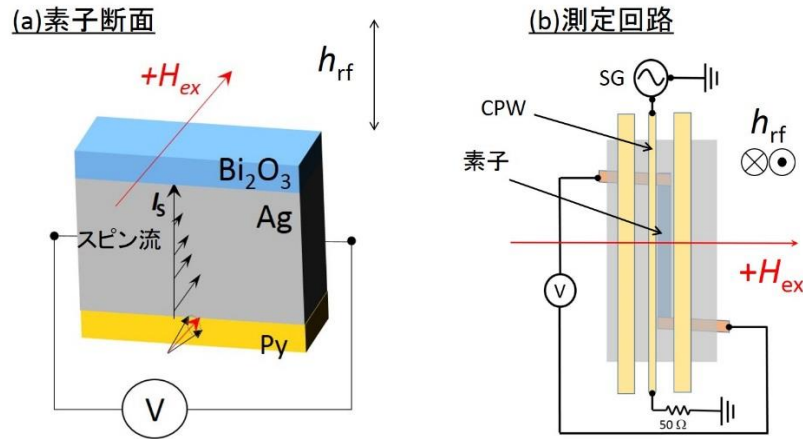


図 3.3 (a)素子断面図、(b)測定回路図

図 3.3(a)に素子断面図を示す。静磁場 H_{ex} や Oersted 磁場（交流磁場） h_{rf} の印加方向、スピン流 I_s の注入方向を示している。また図 3.3(b)は測定回路図を示している。電圧検出にはナノボルトメーターを使用した。

測定は以下のような手順で行った。

- 1) 静磁場 H_{ex} を印加し Py の磁化を磁場方向に一様に向かせる。
- 2) シグナルジェネレータ(SG)から WG に交流電流 I_{rf} を印加する。その結果、 I_{rf} により生じた Oersted 磁場 h_{rf} が図 3.3 (a-b)に示されているような方向に印加され強磁性共鳴が励起される。

*共鳴磁場において最も効率的に Ag 中へスピン流が注入される。

- 3) 注入されたスピン流 I_s は、Ag もしくは Ag/Bi₂O₃ 界面でスピン流・電流変換が起これば、直流電圧として検出できる。FMR 効果誘起であるので、検出電圧はローレンチアンの形状のスペクトルとして観測される。

一般的に Py/Pt などの強磁性金属/非磁性金属二層膜で行われるスピンプンピングによる逆スピントル電圧 V は(2.33)式で表すことができる [31]。

3.2.2. 面内スピバルブ素子を用いた非局所測定

面内スピバルブ素子とは以下の図 3.4 のように、2 つの強磁性体細線 F1, F2 に対して、非磁性体細線 N を橋渡しした構造をもつ。

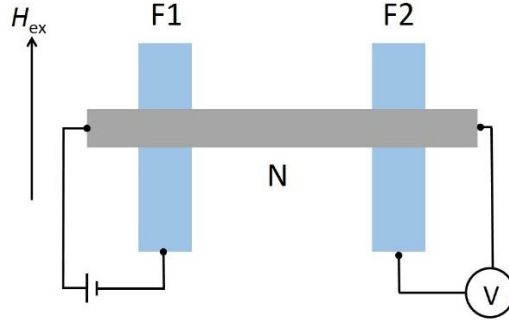


図 3.4 面内スピバルブ素子における測定回路

左側の F1/N 接合に電流を流すパスを設け、右側の F2/N 接合において電圧を検出するパスを作る（電圧の検出はナノボルトメーターを用いて行う）。このような測定手法を非局所測定といい、F1, F2 間の非磁性体中を電流が流れず、スピンのみの伝搬を測定することができる。また F1, F2 の磁化のスイッチングを行うために、外部磁場（静磁場） H_{ex} を強磁性体細線に沿って掃引する。すると 2.2.3 で前述してある通り、2 つの磁化方向は平行か反平行かで検出される電圧に違いが生じる。この時の電圧の差分を電流により割った値をスピン信号 ΔR_S として得ることが出来る。本研究では、このスピン信号の距離依存性を調べることにより [30]、スピン緩和を調べた。

第 4 章 測定結果および考察

金属/酸化物界面では、Fermi 準位におけるバンドベンディングに起因した電場が生じ、相対論的效果により Rashba 効果の発現が理論的に報告されている[25]。本研究ではこの金属/酸化物界面における Rashba 効果起因のスピンの流れ-電流変換の検出を試みた。実験では、スピンプンピング法を用いてスピンの流れを注入し、スピンの流れ-電流変換による直流電圧の観測を行った。

4.1. Py/Ag/(Bi₂O₃ or Al₂O₃)三層構造における直流電圧の観測

測定試料は、Py(5 nm)/Ag(9.8 nm)/(Bi₂O₃(10 nm) or Al₂O₃(10 nm))三層膜を、素子長さ $L = 3.0$ mm, 幅 $w = 5$ μ m の長方形に加工して作製した。測定回路は図 3.3(b)に示す。図 4.1 に入力電力 $P_E = 0.06$ mW, 周波数 $f = 9$ GHz の rf 電流をウェーブガイド(Wave Guide : WG)に印加し測定した結果を示す。黒線が Bi₂O₃, 緑線が Al₂O₃ を成膜した試料の結果である。外部磁場 $H_{\text{ex}} = \pm 1050$ Oe 付近で電圧の観測に成功した。

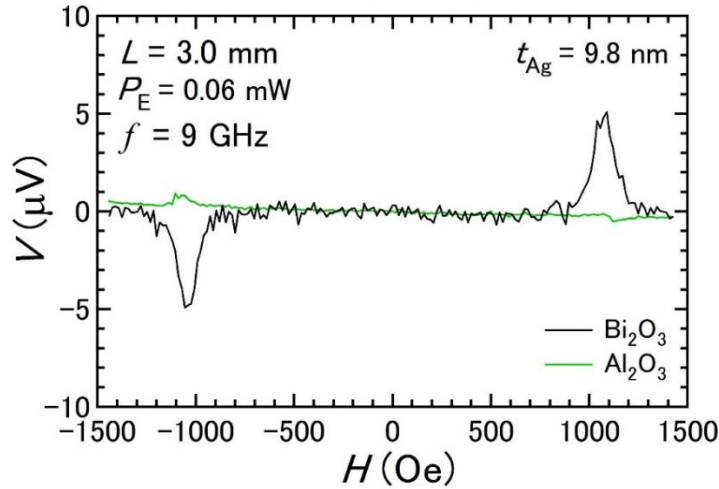


図 4.1 Py/Ag/(Bi₂O₃ or Al₂O₃) に対して
スピンプンピングを行い観測された直流電圧の概形

今回 Bi₂O₃ を成膜した試料において明確な電圧を観測した。この電圧を(4.1)式で示す逆スピンのホール効果の定義に代入するとスピンの流れ-電流変換効率 $\theta_{\text{SHE}} (\approx j_c/j_s)$ は正となった。

$$j_c \propto \theta_{\text{SHE}} (j_s \times \sigma) \quad (4.1)$$

ここで、 j_c : 電流密度、 j_s : スピン流密度、 σ : Pauli 行列、 θ_{SHE} : スピン流・電流変換効率である。

この系では、電圧変換メカニズムとして、1)Ag 中に Bi が拡散してできる AgBi 合金の逆スピンホール効果と 2) Ag/Bi₂O₃ 界面誘起のスピン流・電流変換の 2 つが考えられる。1)が支配的な場合、非局所スピバルブを用いたスピン吸収の実験[32]からスピン流・電流変換効率が負になることが考えられ、今回得られた結果とは逆符合になる。また、Ag-Bi 二元系の相図(図 4.2)[33]を見ると、AgBi 合金が形成される温度が 540 K 付近なのに対し、素子作製過程では最大で 380 K (レジストバーク時)なので、Bi が Ag に溶け込んでいるとは考えにくい。以上のことから、Bi₂O₃ の試料で観測された電圧は 2) Ag/Bi₂O₃ 界面誘起のスピン流・電流変換が支配的であることが予想される。

一方、Al₂O₃ の試料でも、Bi₂O₃ と同じ磁場付近で約 0.5 μ V (Bi₂O₃ に比べて 10 分の 1 程度)の非常に小さな電圧が観測された。この直流電圧は共鳴磁場に対して非対称なスペクトルとして観測されていることから、Ag/Al₂O₃ 界面の効果ではなく、Py の AMR 効果由来の信号であると考えられる[34]。

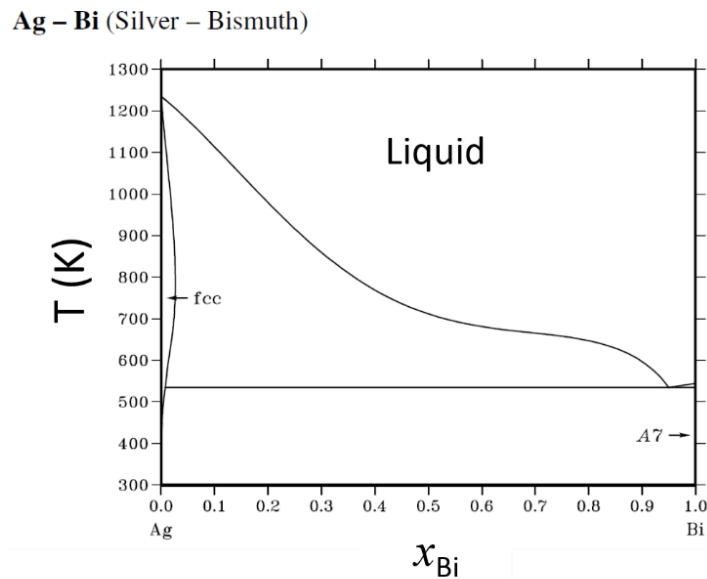


図 4.2 Ag-Bi の二元系相図[33]

4.2. Py/Ag/Bi₂O₃ 三層構造における スピンプンピングの各種依存性

4.1 において、スピンプンピングにより Py から Ag へスピン流注入を行い、Py/Ag/Bi₂O₃ 試料において直流電圧の観測に成功した。ここでは、検出された直流電圧がスピンプンピング誘起のスピン流に起因しているのかを検討するため、1) 印加周波数依存性 2) 素子長さ依存性 3) 入力電力依存性の 3 つについて調べたので、その結果を順次示していく。

4.2.1 印加周波数依存性

Ag 膜厚 $t_{\text{Ag}} = 1.9 \text{ nm}$, 長さ $L = 3.0 \text{ mm}$ の試料に電力 $P_E = 0.05 \text{ mW}$, 周波数 6-9 GHz の rf 電流を印加したときの測定結果を図 4.3 に示す。

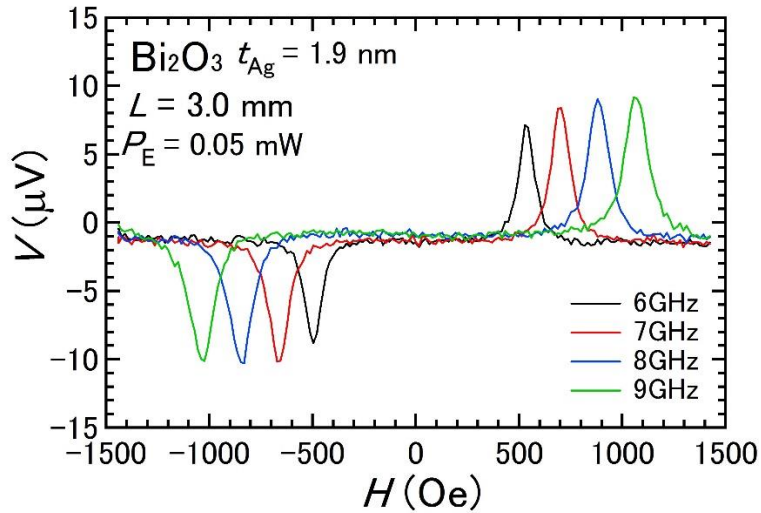


図 4.3 Py/Ag/ Bi₂O₃ での検出電圧の周波数依存性

各周波数（6~9 GHz）において共鳴磁場がシフトしているのが分かる。また図 4.4 に共鳴磁場と印加周波数の関係を示す。 Kittel の式((4.2)式)[31,35]で解析した結果、飽和磁化 $4\pi M_S$ が 0.87 T であることが分かった。この値は、スピンプンピングを用いた実験報告の Py の $4\pi M_S$ と同程度であることから[26,31]、検出された電圧が Py の強磁性共鳴によって励起されたものであることが明確に示された。

$$f_R = \frac{\gamma_e}{2\pi} \sqrt{H_R(H_R + 4\pi M_S)} \quad (4.2)$$

f_R, H_R はそれぞれ印加周波数と共鳴磁場を表す。

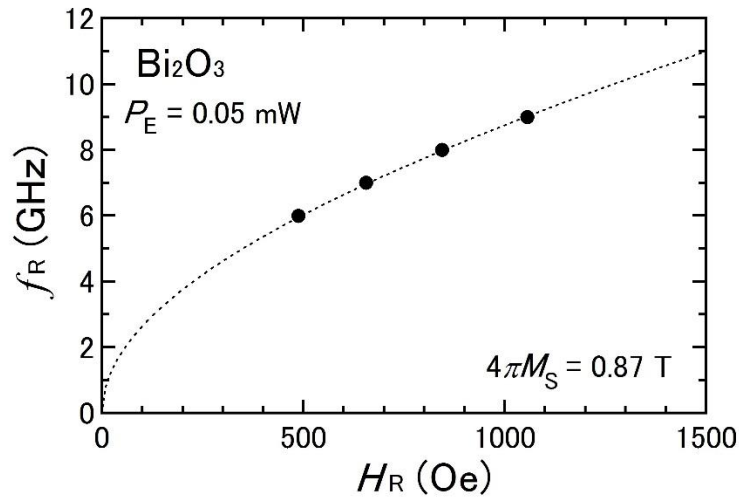


図 4.4 印加周波数と共鳴磁場の関係

4.2.2 素子長さ依存性

三層構造の素子長さ L の異なる試料における直流電圧の測定結果を図 4.5 に示す。試料は $t_{Ag} = 1.9$ nm, $L = 1.5, 2.0, 2.5, 3.0$ mm, $f = 9$ GHz, $P_E = 0.05$ mW である。図 4.6 (a) に出力電圧の素子長さ依存性を示す。検出電圧は、素子長さの増加に対しわずかに増加していることが分かった。

本来 (2.33) 式から、出力電圧は素子長さ L に比例することが知られている。しかし、今回の場合、素子の長さに応じて WG の長さも変化させているため、WG の透過特性が一様でなく実際に入力される電力が試料の長さに依存している。そこで、入力電力の大きさが磁化の歳差運動角の 2 乗に比例することを利用して検出電圧を歳差運動角で規格化を行った。その結果を図 4.6(b) に示す。素子長さが長くなるにつれて検出電圧が上昇しているのがわかる。しかし、式(2.33)から予測される検出電圧の線形増加は見られなかった。今後、WG の設計を見直し、より大きな出力電圧が出る試料において、出力電圧の素子長さ依存性を再度確認する必要がある。

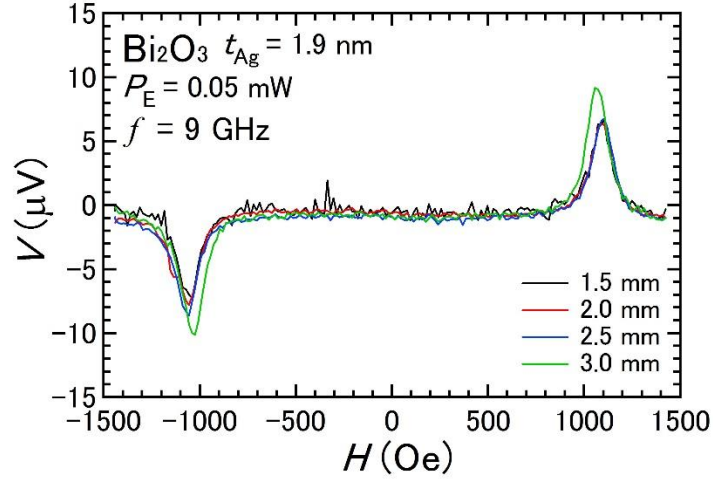


図 4.5 Py/Ag/ Bi₂O₃ での検出電圧の素子長さ依存性

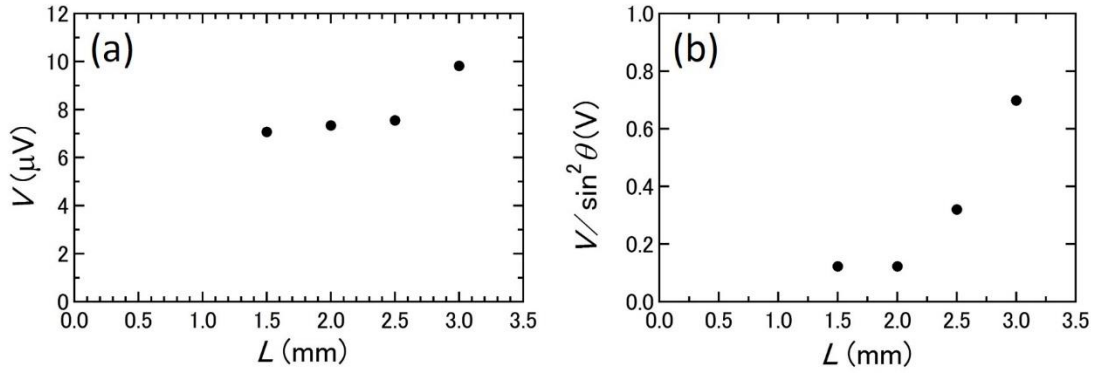


図 4.6 検出電圧の素子長さ依存性 (a)検出電圧 (b)歳差運動角 θ で規格化した検出電圧

4.2.3 入力電力依存性

WG に印加する rf 電流の電力の大きさを変えて測定した結果を図 4.7 に示す。 $t_{\text{Ag}} = 1.9$ nm, $f = 9$ GHz, $P_{\text{E}} = 0.49\text{--}47.3$ μW , $L = 3.0$ mm において測定を行った。入力電力の増加は、歳差運動角の増加につながる。その関係式(歳差運動角の 2 乗と入力電力の関係)を (4.3)式に示す。

$$\theta^2 = \frac{P_{\text{E}}}{4\pi^2 l^2 R_{\text{SA}} \Delta H^2} \quad (4.3)$$

$l, R_{\text{SA}} = 50$ Ω , P_{E} はそれぞれ WG 中心から素子中心までの距離、スペクトルアナライザの内部抵抗、スペクトルアナライザで測定した透過電力である。歳差運動角の 2 乗は出力電

圧に比例するため、(2.33)式より、出力電圧は入力電力と線形関係になることが予測される。図 4.8 に検出電圧および歳差運動角の 2 乗の入力電力依存性を示す。式から予測されたように、完全に線形関係になることが分かった。またこの結果から、今回用いた入力電力では、歳差運動は線形領域にあることを示している[31]。

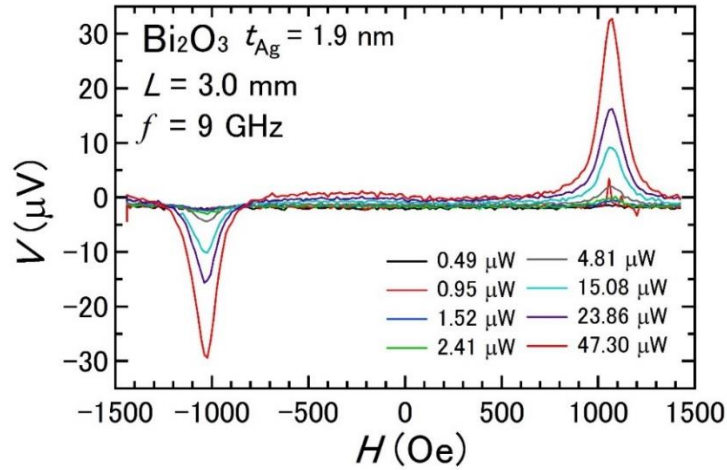


図 4.7 Py/Ag/ Bi_2O_3 での検出電圧の入力電力依存性

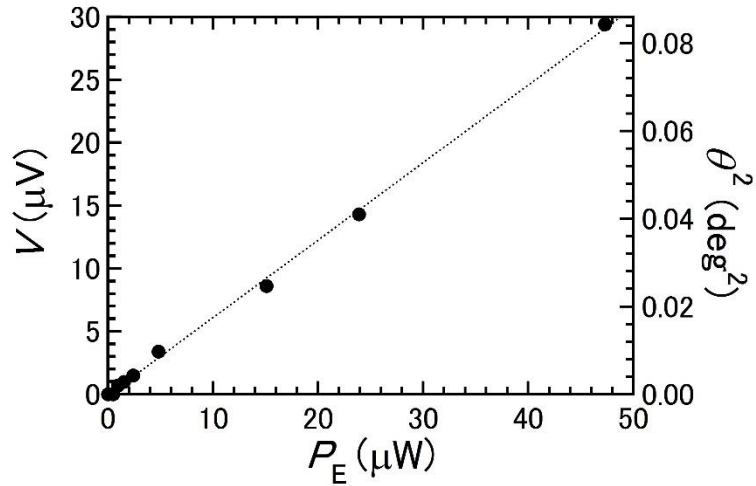


図 4.8 検出電圧および
Py の歳差運動角の 2 乗の入力電力依存性

4.3. Ag 膜厚依存性

次に検出された電圧が Ag/Bi₂O₃ 界面か Ag 中で誘起されているのかをより明確にするため、Ag の膜厚依存性について調べた。図 4.9 に検出スペクトルと検出電圧の Ag 膜厚依存性を示す。検出電圧は Ag の膜厚増加によって減少していくことが分かる。しかし、この検出電圧の Ag 膜厚依存性は、入力されたスピン流密度 j_S に依存するので、単位スピン流密度 (j_S) あたりに換算して判断する必要がある。そこで、まずスピン流密度 j_S の算出に必要なスピンミキシングコンダクタンスの見積り結果を以下に示していく。

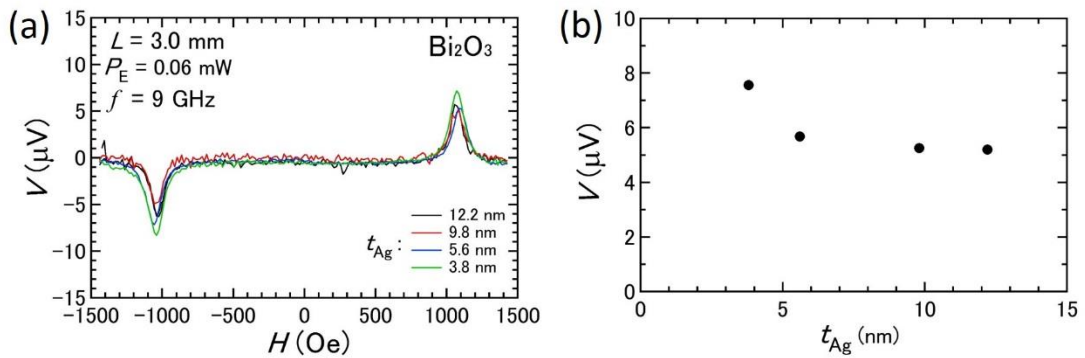


図 4.9 (a) Py/Ag(3.8-12.2 nm)/ Bi₂O₃ での検出スペクトルの Ag 膜厚依存性 (b) 検出電圧の Ag 膜厚依存性

スピンミキシングコンダクタンスの見積り

スピン流密度 j_S を見積もるためには、スピンミキシングコンダクタンスを実験結果から算出する必要がある。Py/NM 二層膜におけるスピンミキシングコンダクタンスは、式 (4.4) に示すように Py 単層のダンピング定数 $\alpha_{\text{eff}}^{\text{F}}$ と Py/NM 二層膜のダンピング定数 $\alpha_{\text{eff}}^{\text{F/N}}$ を使って算出することができる [31]。

$$g_{\text{eff}}^{\uparrow\downarrow} = \frac{t_{\text{F}} 4\pi M_{\text{S}}}{g\mu_{\text{B}}} (\alpha_{\text{eff}}^{\text{F/N}} - \alpha_{\text{eff}}^{\text{F}}) \quad (4.4)$$

$g = 2$, $\mu_{\text{B}} = 9.27 \times 10^{-24} \text{ J T}^{-1}$ はそれぞれ電子の g 因子、ボーア磁子を表す。

そのためダンピング定数の見積りも必要となる。図 4.10 に Ag の膜厚が異なる試料での半値半幅の周波数依存性を示す。この結果を式 (4.5) [36] に代入し、各々の試料でのダンピング定数を算出した。算出されたダンピング定数と Py のみの場合のダンピング定数 ($\alpha_{\text{eff}}^{\text{F}} = 0.008$) [37] を用いて、スピンミキシングコンダクタンスを見積もった。ダンピング定数およびスピンミキシングコンダクタンスの膜厚依存性を図 4.11 に示す。

$$\Delta H(f) = \Delta H(0) + \frac{2\pi f}{\gamma_e} \alpha_{\text{eff}} \quad (4.5)$$

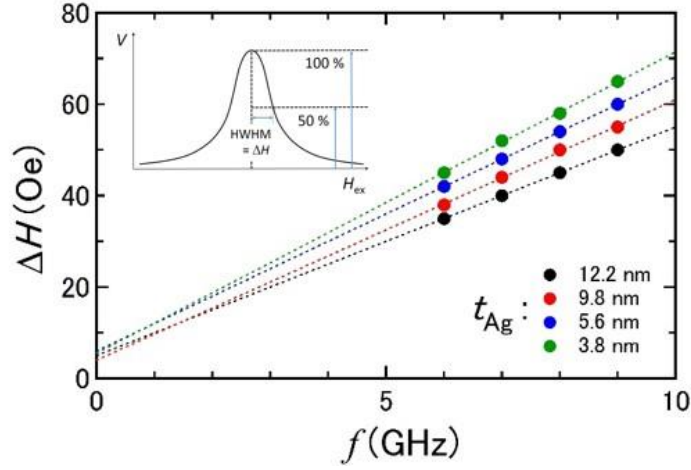


図 4.10 各 Ag 膜厚での半値幅の周波数依存性

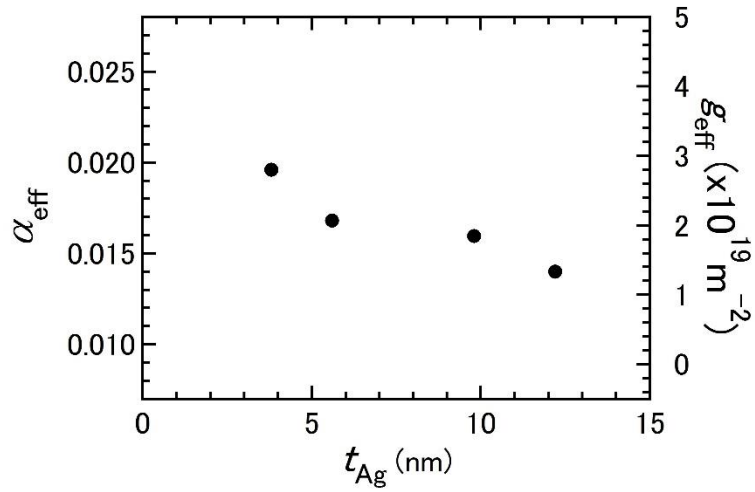


図 4.11 ダンピング定数およびスピンミキシングコンダクタンスの膜厚依存性

ダンピング定数とスピンミキシングコンダクタンスは共に、Ag 膜厚の増加に伴って減少することが分かった。この結果は、Py/Cu/Pt のような系において Cu の膜厚が増加するにつれ、ダンピング定数が Py 本来の値に近づいていく結果と一致している[16]。

電荷電流密度/スピンの流密度(j_c/j_s)の Ag 膜厚依存性

図 4.12(a)に検出電圧、素子抵抗、素子幅、および膜厚を用いて計算した電荷電流密度 j_c を示す。図 4.12(b)にスピンミキシングコンダクタンスを用いて計算したスピンの流密度 j_s を示す。また Ag 中でのスピンの流の減衰も考えられるため、Ag のスピン拡散長($\lambda_{Ag} = 300$ nm)を用いて計算したスピンの流密度 j'_s も赤プロットで示した。図 4.12(c)に(a) j_c を(b) j_s で割った j_c/j_s の値を示す。(b)と同様に、 j'_s の場合も考え、 j_c/j'_s を赤プロットで示した。計算された j_c/j'_s は Ag の膜厚が減少するにつれて、増加することが分かった。この結果も、今回の検出した電圧が、Ag/Bi₂O₃ 界面でのスピン流-電流変換に起因していることを示す結果である。なぜなら、Py/Pt など Pt 層へスピンの流 I_s を注入した場合、Pt の膜厚が増加すれば、逆スピンホール効果で出てくる電流 I_e も比例して増加する[26]。そのため、 j_c/j'_s の Pt 膜厚依存性は一定になる(つまり、Pt のスピン流-電流変換効率はスピン拡散長以下の領域では一定になる)。しかし、今回は図 4.12(c)のように Ag 膜厚依存性に反比例するように j_c/j'_s が減少していることから、スピン流-電流変換は Ag 中ではなく、Ag/Bi₂O₃ 界面で引き起こされていると考えられる。

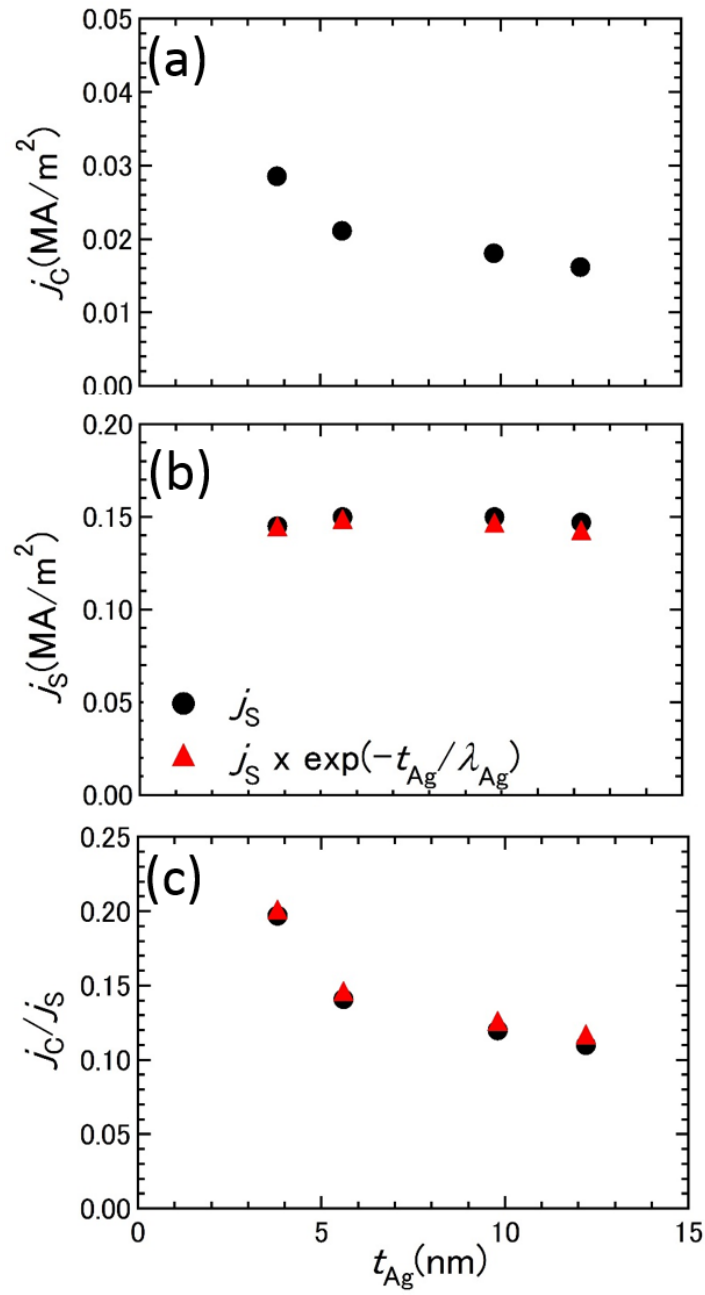


図 4.12 Ag 膜厚依存性 (a)検出電流密度 j_c (b)スピン流密度 j_s および j'_s
(c) j_c/j_s および j_c/j'_s

4.4. 考察 考えられるスピン流-電流変換メカニズム

最近になって、J.C. Rojas-Sánchez らによって Ag/Bi 界面におけるスピン流-電流変換の検出が報告された[38]。この報告でも本研究と同じスピンプンピング法を用いて実験が行われ、実験結果も酷似している。そこで、この論文を参考に本研究で検出されたスピン流-電流変換のメカニズムについて考察する。

Ag(111)/Bi 界面では、Bi 表面よりも大きな Rashba 効果が観測できることが ARPES(Angle-Resolved PhotoEmission Spectroscopy)を用いた先行研究により知られている[39]。そのため Rojas-Sánchez らは、Py/Ag/Bi 三層構造で Py からスピン流を注入した場合、Ag/Bi 界面で Rashba 効果によるスピン流-電流変換が引き起こされ、その結果、直流電圧を検出できたと報告している。

本研究でも、Ag 膜厚依存性や検出電圧の符合からスピン流-電流変換は Ag/Bi₂O₃ 界面で引き起こされていることが分かった。さらに、Bi₂O₃ を成膜した試料では直流電圧を明確に検出できたが、Al₂O₃ では微小な信号であったことから、今回 Bi₂O₃ で観測されたスピン流-電流変換にはスピン軌道相互作用が大きく影響していることが予想できる。

そこで、図 4.12(c)で示した j_c/j_s の Ag 膜厚依存性のグラフに、Rojas-Sánchez らの実験結果を重ねてプロットした結果を図 4.13 に示す。黒プロットが本研究(Ag/Bi₂O₃)の結果、赤プロットが Rojas-Sánchez ら(Ag(111)/Bi)の実験結果である。この図から、Ag/Bi₂O₃ の方が、よりスピン流-電流変換が効率的に行われていることが分かる。もし、このスピン流-電流変換の起源が Rashba 効果だとすると、Ag(111)/Bi よりも Ag/Bi₂O₃ の方が大きな Rashba 効果を示すことになる。現段階では、Ag/Bi₂O₃ での実験結果が他に例がなく、第一原理計算などの理論的な報告もないので判断は難しいが、巨大な Rashba 効果を示すことで知られる Ag(111)/Bi よりも大きくなるというのは、直ちには納得しがたい。しかし、Ag/Bi よりも Ag/Bi₂O₃ のほうが界面にかかる電場は大きいことが予測されるため、スピン流-電流変換がより促進される可能性はある。この可能性については今後の実験で検討していきたいと考えている。

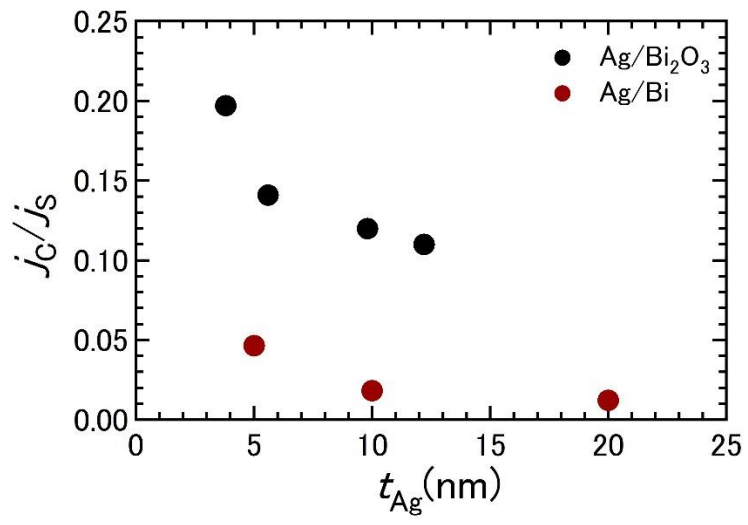


図 4.13 Ag/Bi₂O₃ 界面および Ag/Bi 界面における j_c/j_s の Ag 膜厚依存性

第5章 面内スピバルブ素子を用いた Ag/Bi₂O₃ 界面のスピ緩和観測

4.1.で述べた Ag/ Bi₂O₃ 界面誘起の直流電圧観測を裏付けるために、面内スピバルブ素子を用いた実験を行った。図 5.1 に素子の SEM 像を示す。強磁性体(Py)から Ag 中に注入されたスピン蓄積量は、フォノンや不純物などの散乱により距離を経る事によって減衰していく[27]。この減衰されたスピン蓄積量をスピン信号という量において議論でき、更に注入・検出体間距離(L)の依存性からスピン拡散長と呼ばれる量を算出する事もできる。これら量は非磁性体中でのスピン緩和を特徴付ける量であり、もし Ag/ Bi₂O₃ 界面でスピン緩和が生じているのであれば、これらの量の減少が予想される。今回 Py(20)/Mg(0.5)/MgO(2)/Ag(50)/ Bi₂O₃ (10)といったような素子において、スピン信号とスピン拡散長を算出した。また強磁性体 Py と非磁性体 Ag 間に Mg/MgO という二層を挿入しているが、これはスピン信号の出力を増強するためである[40]。

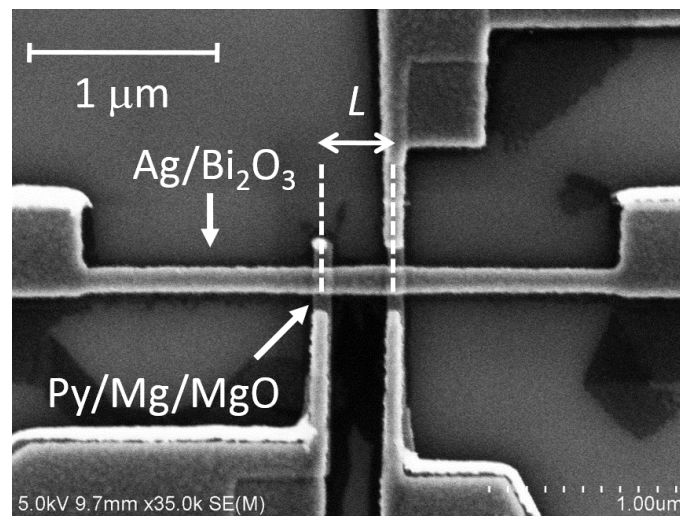


図 5.1 面内スピバルブ素子 Py/Mg/MgO/Ag/Bi₂O₃ 素子の SEM 像

2つの強磁性体(Py 細線)でスピン流の注入・検出を行い、それらに対して橋渡ししている細線(非磁性体 Ag)中をスピン流を伝搬する。スピン流などのスピン依存伝導では注入・検出体の磁化状態が影響し、2つの強磁性体の磁化方向が平行か反平行かによって検出される電圧に違いが生じる。その電圧の差分をとって注入側の強磁性体/非磁性体間に流した電流量で規格化した抵抗がスピン信号 ΔR_s となる。磁化方向の反転は、Py 細線に沿って磁場 H を掃引することによって行う。以下にスピン信号 ΔR_s の概形とその距離依存性の測定

結果を示す。また Bi_2O_3 の参照素子として Al_2O_3 を用いた場合（つまり $\text{Py}(20)/\text{Mg}(0.5)/\text{MgO}(2)/\text{Ag}(50)/\text{Al}_2\text{O}_3(10)$ の素子）も作製し、同様の測定を行った。図 5.2(a) はスピン信号の概形で、温度 $T = 10 \text{ K}$ で、 $L = 300 \text{ nm}$ の時の結果である。スピン信号は、 Bi_2O_3 では $\Delta R_s = 2 \text{ m}\Omega$ 、 Al_2O_3 では $\Delta R_s = 18 \text{ m}\Omega$ であり、 Ag 上に堆積している酸化物の違いのみでこれだけ大きな差が観測された。また図 5.2(b) はスピン信号の距離依存性を表している。スピン信号と距離の対応は(2.46)式で表すことができる。ここで $R_N = \rho_N \lambda_N / t_N w_N = 0.3 \text{ }\Omega$ ($\rho_N = 1.8 \text{ }\mu\Omega\text{cm}$, $t_N = 50 \text{ nm}$, $w_N = 150 \text{ nm}$), $R_F = \rho_F \lambda_F / (1 - P_F^2) w_F w_N = 0.2 \text{ }\Omega$ ($\rho_F = 50 \text{ }\mu\Omega\text{cm}$, $\lambda_F = 5 \text{ nm}$ [41], $w_N = 110 \text{ nm}$), $R_I = 5.0 \text{ }\Omega$, $P_I, P_F = 0.25$ [42], L, λ_{sf} はそれぞれ非磁性体のスピン抵抗、強磁性体のスピン抵抗、 MgO を挿入した Py/Ag 間界面抵抗、界面スピン偏極率、強磁性体のスピン偏極率、スピン注入・検出体間距離、非磁性体のスピン拡散長である。この式を用いて図 5.2(b) の距離依存性の解析を行うと、 Bi_2O_3 の場合、 $\lambda_{sf} = 130 \pm 10 \text{ nm}$, $P_I = 0.23 \pm 0.04$ となり、 Al_2O_3 の場合、 $\lambda_{sf} = 460 \pm 70 \text{ nm}$, $P_I = 0.19 \pm 0.03$ となった。 Al_2O_3 の場合のスピン拡散長は MgO 層を Ag 上に積層した素子の報告[42]のものと同程度である。しかし、 Bi_2O_3 の場合のスピン拡散長はそれに比べ非常に小さくなった。

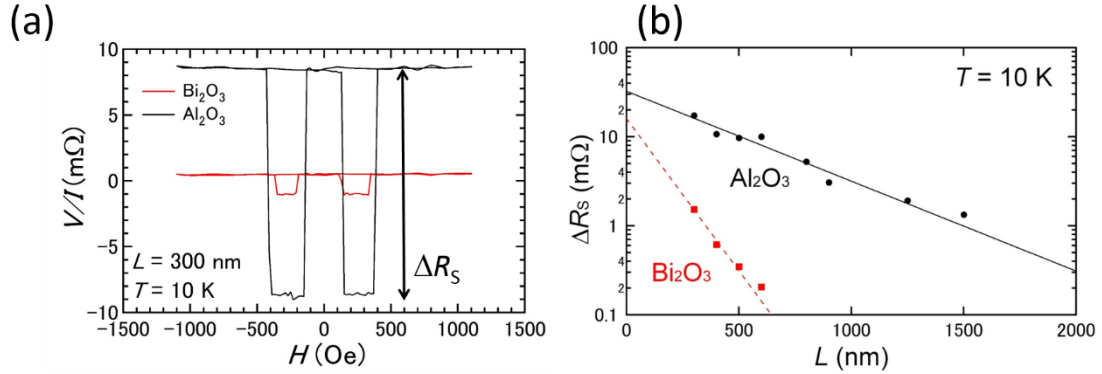


図 5.2 (a) スピン信号の概形（赤プロットは Bi_2O_3 、黒プロットは Al_2O_3 の測定結果）(b) スピン信号の距離依存性（赤、黒プロット共に(a)に同じ）

以上の結果から $\text{Ag}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 界面において、強いスピン緩和が生じていることがわかり、4.1 で述べた $\text{Ag}/\text{Bi}_2\text{O}_3$ 界面誘起の直流電圧観測の結果と一致する結果が得られた。

第 6 章 結論

本研究では、金属/酸化物界面における Rashba 効果に起因したスピン流・電流変換の観測を目的に行った。本研究により得られた結果を以下に示す。

1. Py/Ag/Bi₂O₃ 三層構造における直流電圧の観測

スピンプンピング法によりスピン流注入を行い、Py/Ag/Bi₂O₃ 三層構造において直流電圧の検出に成功した。検出された電圧の符号から、スピン流・電流変換効率の符号は正であることがわかった。面内スピバルブ素子を用いた先行研究では、AgBi 合金のスピン流・電流変換効率の符号は負になることが知られているため、今回観測した電圧は、Bi が Ag 中に拡散してできた AgBi 合金による逆スピホール効果ではなく、Ag/Bi₂O₃ 界面誘起のスピン流・電流変換を観測していることがわかった。また Al₂O₃ の素子では微小な電圧しか観測できない点から、酸化物において期待される界面での電場の効果よりも、スピン軌道相互作用が強く影響している事が推察された。

2. Ag/Bi₂O₃ 界面誘起スピン流・電流変換の検証

Py/Ag/Bi₂O₃ 試料において検出した直流電圧が Ag/Bi₂O₃ 界面か Ag 中で誘起されているのかをより明確にするため、スピン流・電流変換効率 j_c/j_s の Ag の膜厚依存性について調べた。その結果、Ag の膜厚が減少するにつれて、 j_c/j_s が増加することが分かった。このように変換効率が膜厚に依存することから、Ag/Bi₂O₃ 界面でスピン流・電流変換が起こっていることがより明確になった。

3. 面内スピバルブ素子を用いた Ag/Bi₂O₃ 界面のスピン緩和観測

Ag/Bi₂O₃ 界面誘起の直流電圧観測を裏付けるために、面内スピバルブ(LSV)素子を用いた実験を行った。Py(20)/Mg(0.5)/MgO(2)/Ag(50)/(Bi₂O₃(10) or Al₂O₃(10))多層構造をもつ素子において、スピン信号とスピン拡散長を算出した。スピン拡散長は、Bi₂O₃ の素子では参照素子の Al₂O₃ に比べ、非常に小さい値になることがわかり、Ag/Bi₂O₃ 界面で強いスピン緩和が起こっていることが分かった。この結果は、結論 1, 2 で示したスピンプンピングでの結果と一致する結果である。

参考文献

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, “Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices,” *Phys. Rev. Lett.*, **61**, 2472 (1988).
- [2] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, “Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange,” *Phys. Rev. B*, **39**, 4828 (1989).
- [3] 猪俣浩一郎、「スピンエレクトロニクスの基礎と応用」、シーエムシー出版(2004)。
- [4] E. H. Hall, “On a new action of the magnet on electric currents,” *Am.J. Math.*, **2**, 3, 287 (1879).
- [5] E. H. Hall, “On the rotational coefficient in nickel and cobalt,” *Philos. Mag.*, **12**, 74, 157 (1881).
- [6] R. Karplus and J. M. Luttinger, “Hall effect in ferromagnetics,” *Phys. Rev.*, **95**, 5, 1154 (1954).
- [7] J. Smit, “The spontaneous Hall effect in ferromagnetics ii,” *Physica*, **24**, 1–5, 39 (1958).
- [8] L. Berger, “Side-jump mechanism for the Hall effect in ferromagnets,” *Phys. Rev. B*, **2**, 11, 4559 (1970).
- [9] 太田恵造、「磁気工学の基礎Ⅱ」、共立出版 (1973)。
- [10] S. O. Valenzuela and M. Tinkham, “Direct electronic measurement of the spin Hall effect,” *Nature*, **442**, 176(2010).
- [11] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara, “Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-Hall effect,” *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 18, 182509 (2006).
- [12] M. Johnson and R. H. Silsbee, “Interfacial charge-spin coupling: Injection and detection of spin magnetization in metals,” *Phys. Rev. Lett.*, **55**, 1790 (1985).
- [13] F. J. Jedema, A. T. Filip, and W. B. Van, “Electrical spin injection and accumulation at room temperature in an all-metal mesoscopic spin valve,” *Nature*, **410**, 345 (2001).
- [14] F. J. Jedema, H. B. Heersche, A. T. Filip, J. J. Baselmans, and W. B. van, “Electrical detection of spin precession in a metallic mesoscopic spin valve,” *Nature*, **416**, 713 (2002).
- [15] S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki. “Magnetic relaxation of normal-metal(NM)/80NiFe/NM films.” *J. Magn. Magn. Mater.*, **239**, 42 (2002).

- [16] S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki. “Effect of spin diffusion on Gilbert damping for a very thin permalloy layer in Cu/permalloy/Cu/Pt films,” *Phys. Rev. B*, **66**, 104413 (2002).
- [17] Y. Tserkovnyak and A. Brataas. “Enhanced Gilbert Damping in Thin Ferromagnetic Films,” *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 117601 (2002).
- [18] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, and G. E. W. Bauer. “Spin pumping and magnetization dynamics in metallic multilayers,” *Phys. Rev. B*, **66**, 224403 (2002).
- [19] E. I. Rashba, “Properties of semiconductors with an extremum loop. 1. Cyclotron and combinational resonance in a magnetic field perpendicular to the plane of the loop,” *Sov. Phys. Solid State* **2**, 1109 (1960).
- [20] Y. A. Bychkov, & E. I. Rashba, “Properties of a 2D electron gas with lifted spectral degeneracy,” *JETP Lett.* **39**, 78 (1984).
- [21] G. Dresselhaus, “Spin-orbit coupling effects in Zinc blende structures,” *Phys. Rev.* **100**, 580 (1955).
- [22] 江藤幹雄、半導体中のスピン軌道相互作用（その1）、*固体物理*、**43**、145 (2008)。
- [23] V. M. Edelstein, “Spin polarization of conduction electrons induced by electric current in two-dimensional asymmetric electron systems,” *Solid State Commun.* **73**, 233(1990).
- [24] K. Shen, G. Vignale, R. Raimondi,
“Inverse Edelstein Effect,” *arXiv:1311.651v1*(2013).
- [25] X. Wang, J. Xiao, A. Manchon, and S. Maekawa, “Spin-Hall conductivity electric polarization in metallic thin films,” *Phys. Rev. B*, **87**, 081407(R) (2013).
- [26] 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,” *J. Appl. Phys.*, **109**, 103913 (2011).
- [27] S. Takahashi and S. Maekawa, “Spin injection and detection in magnetic nanostructures,” *Phys. Rev. B*, **67**, 052409 (2003); S. Takahashi and S. Maekawa, “Spin current, spin accumulation and spin Hall effect,” *Science and Technology of Advanced Materials*, **9** (2008); S. Takahashi and S. Maekawa, “Spin Current in Metals and Superconductors,” *J. Phys. Soc. J.*, **77**, 031009 (2008).
- [28] T. Valet and A. Fert, “Theory of the perpendicular magnetoresistance in magnetic multilayers,” *Phys. Rev. B*, **48**, 7099 (1993).
- [29] N. F. Mott, “Electrons in transition metals,” *Adv. in Phys.*, **13**, 325 (1964).
- [30] T. Kimura and Y. Otani, “Large spin accumulation in a permalloy-silver lateral spin valve,” *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 196604 (2007).
- [31] O. Mosendz, V. Vlaminc, J. E. Pearson, F. Y. Fradin, G. E. W. Bauer, S. D. Bader,

- and A. Hoffmann, “Detection and quantification of inverse spin Hall effect from spin pumping in permalloy/normal metal bilayers,” *Phys. Rev. B*, **82**, 214403 (2010).
- [32] 川西庸平、本学修士論文「ビスマス添加による外因性スピホール効果の観測」(2012)。
- [33] Binary Systems: Ag-Bi, Landolt-Börnstein New Series **IV/19B**, 42.
- [34] A. Azevedo, L. H. Vilela-Leao, R. L. Rodriguez-Suarez, A. F. Lacerda Santos, and S. M. Rezende, “Spin pumping and anisotropic magnetoresistance voltages in magnetic bilayers: Theory and experiment,” *Phys. Rev. B*, **83**, 144402 (2011).
- [35] C. Kittel, “On the theory of ferromagnetic resonance absorption,” *Phys. Rev.* **73**, 155 (1948).
- [36] B. J. Kuanr, R. E. Camley, and Z. Celinski, “Extrinsic contribution to Gilbert damping in sputtered NiFe films by ferromagnetic resonance,” *J. Magn. Magn. Mater.*, **286**, 276 (2011).
- [37] D. J. Twisselmann and R. D. McMichael, “Intrinsic damping and intentional ferromagnetic resonance broadening in thin permalloy films,” *J. Appl. Phys.*, **93**, 10, 6903 (2003).
- [38] J. C. Rojas Sanchez, L. Vila, G. Desfonds, S. Gambarelli, J.P. Attane, J. M. Teresa, C. Magen and A. Fert, “Spin to charge conversion using Rashba coupling at the interface between non-magnetic materials,” *Nature commun.*, **4**, 2944 (2013).
- [39] C. R. Ast, J. Henk, A. Ernst, L. Moreschini, M. C. Falub, D. Pacile, P. Bruno, K. Kern and M. Grioni, “Giant spin splitting through surface alloying,” *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 186807 (2007).
- [40] Y. Fukuma, L. Wang, H. Idzuchi, S. Takahashi, S. Maekawa and Y. Otani, “Giant enhancement of spin accumulation and long-distance spin precession in metallic lateral spin valves,” *Nature Mater.*, **10**, 527 (2011).
- [41] S. Dubois, L. Piraux, J. M. George, K. Ounadjela, J. L. Duvail, and A. Fert, “Evidence for a short spin diffusion length in permalloy from giant magnetoresistance of multilayered nanowires,” *Phys. Rev. B*, **60**, 477 (1999).
- [42] L. Wang, Y. Fukuma, H. Idzuchi and Y. Otani, “Efficient spin injection into nonmagnetic metals through low-resistance MgO,” *J. Appl. Phys.*, **109**, 07C506 (2011).

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、様々な事を研究生生活の中で学ばせて頂きました。

九州工業大学 准教授 福間康裕先生、理化学研究所 特別研究員 近藤浩太様、東京大学物性研究所 助教 新見康洋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 秘書 川村順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。新領域創成科学研究科物質系専攻事務の丹由紀子様には事務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。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した。

また、理化学研究所 特別研究員 **Olivier Rousseau** 様、青木達也様、研究支援パートナー 皆藤真智恵様、飯塚紀子様、東京大学物性研究所 助教 木俣基様、先輩の杉本聡志様、若村太郎様、鈴木裕様、藤森啓晃様、同期の長谷川徳信君、野崎大輔君、後輩の大森康智君、児玉大地君、穴見陵君には、日々の研究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。