磁性三層構造におけるスピン流生成と 界面スピン交換相互作用に関する研究

菊池大介

平成 27 年

目次

第1章	研究(の背景と目的	5
1.1	諸言		5
1.2	本論	文の構成	6
1.3	本研究の背景、目的・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・		
	1.3.1	スピンゼーベック効果の増大	7
	1.3.2	常磁性金属/非磁性磁性絶縁体/磁性絶縁体三層構造でのスピン流	
		現象	8
1.4	スピ	ン流の物理..................................	9
	1.4.1	スピン流の定義・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	9
	1.4.2	伝導電子スピン流	9
	1.4.3	スピン波スピン流	10
	1.4.4	スピン拡散方程式	11
	1.4.5	常磁性体/磁性体二層構造におけるスピン流	12
	1.4.6	スピンホール効果と逆スピンホール効果	16
1.5	スピン	ン流によって誘起される現象	17
	1.5.1	スピンゼーベック効果...............................	17
	1.5.2	スピンホール磁気抵抗効果	18
	1.5.3	スピンポンピング	21
1.6	イッ	トリウム鉄ガーネットの基礎物性	22
110			
第2章	実験ス	方法	25
2.1	試料設計・作製方法		
	2.1.1	マグネトロンスパッタによる金属薄膜の製膜..........	25
	2.1.2	単結晶 YIG の作製	25
	2.1.3	原子層堆積 ($ m Atomic \ Layer \ Deposition : ALD$) 法による $ m Al_2O_3$	
		薄膜の作製................................	26

2.2	実験系の設計と測定方法............................	27	
	2.2.1 スピンゼーベック効果(Spin Seebeck effect:SSE)の測定	27	
	2.2.2 スピンホール磁気抵抗効果(Spin-Hall magnetoresistance:SMR)		
	の測定	27	
	2.2.3 スピンポンピングによる逆スピンホール効果の測定	27	
	2.2.4 X 線磁気円二色性 (X-ray magnetic circular dichroism : XMCD)		
	測定	28	
第3章	磁性三層構造におけるスピンゼーベック効果の増大	31	
3.1	常磁性金属/強磁性金属/磁性絶縁体におけるスピンゼーベック効果の増大	32	
3.2	実験設計	33	
3.3	Pt/BiYIG におけるスピンゼーベック効果	34	
	3.3.1 Pt/Fe ₇₀ Cu ₃₀ /BiYIG におけるスピンゼーベック効果	34	
	$3.3.2$ $Pt/Fe_{70}Cu_{30}/BiYIG$ におけるスピンゼーベック効果の $Fe_{70}Cu_{30}$		
	膜厚依存性................................	35	
	3.3.3 Pt/Fe ₇₀ Cu ₃₀ /BiYIG におけるスピンゼーベック効果の増大	38	
3.4	本章のまとめ................................	40	
第4章	Pt/Al ₂ O ₃ /YIG 構造におけるスピン流現象	43	
4.1	ALD 法による $\mathrm{Al}_2\mathrm{O}_3$ 試料の評価	44	
4.2	$ m Pt/Al_2O_3/YIG$ におけるスピンゼーベック効果 $\dots \dots \dots \dots \dots$	47	
4.3	${ m Pt/Al_2O_3/YIG}$ におけるスピンポンピング誘起逆スピンホール効果...		
4.4	$ m Pt/Al_2O_3/YIG$ におけるスピンホール磁気抵抗効果 \ldots \ldots \ldots	54	
4.5	$\mathrm{Al}_2\mathrm{O}_3$ 挿入による減衰定数のまとめ......................	57	
4.6	$ m Pt/Al_2O_3/YIG$ における $ m Pt$ 層への磁気近接効果..........	59	
	4.6.1 Pt/Al ₂ O ₃ /YIG 試料の作製・評価	60	
	$4.6.2$ Pt/Al ₂ O ₃ /YIG 試料を用いた XAS 測定 \ldots \ldots \ldots	60	
	4.6.3 Pt/Al ₂ O ₃ /YIG 試料を用いた ESM 測定	61	
4.7	磁気近接効果とスピン流起源現象の比較...............	62	
4.8	本章のまとめ..................................	62	
第5章	結論	67	
参考文献			

第1章

研究の背景と目的

1.1 諸言

電子は「電荷」「スピン」「軌道」の3つの自由度を有している。エレクトロニクスで は、これら自由度のうち「電荷」の自由度のみを利用し、電荷の流れである電流が主役と なって様々なデバイスが開発され発展を遂げてきた。近年、電子のもつ「電荷」の自由度 だけでなく「スピン」の自由度も利用することでエレクトロニクスをさらに発展させよう という研究が活発となっている。この分野が「スピントロニクス」[1]-[4] である。エレク トロニクスで電流が主役となったように、スピントロニクスではスピンの流れである「ス ピン流」が主役となる。スピン流は非保存流であり、物質中の散乱によってスピンが反転 し、その情報を失ってしまう。このスピンが情報を失う長さスケールはスピン拡散長と呼 ばれ、物質によって数ナノメートル~数マイクロメートル程度の値をとる。近年、微細加 工技術の発展に伴い、スピン拡散長以下のスケールを持つデバイスの作製が可能になり、 スピントロニクスが注目を集め、重点的な研究分野となっている。こうした背景もあり、 近年、スピントロニクス分野ではスピン流を起源とする新規現象の発見が相次いでいる。 その引き金の一つとなったのが 2005 年の逆スピンホール効果の発見である [5]-[9]。逆ス ピンホール効果はスピン流を電流に変換する現象であり、微細構造を有せずとも常磁性金 属薄膜を用いることによりスピン流の検出を可能とした。逆スピンホール効果の発見は、 磁化の歳差運動を用いたスピンポンピングによるスピン流生成 [10]-[13]、熱によるスピン 流生成現象であるスピンゼーベック効果の発見へと繋がった [14]-[28]。更にこれらデバイ スと同様の構造で発現する磁気抵抗効果であるスピンホール磁気抵抗効果 [29]-[31] の発 見も成された。このように、新規発見の相次ぐスピントロニクス分野は、非常に興味深く 研究の余地のある現象が多く存在し、盛んに研究が行われている。

先に挙げたスピン流を起源とする現象はいずれも常磁性金属/磁性体の二層構造を基本 としている。これら二層構造では常磁性金属/磁性体界面のパラメータであるスピンミキ シングコンダクタンス [38] と呼ばれるスピン流の注入効率を表す量が重要となっている。 スピンミキシングコンダクタンスは接合物質、界面の状態によって決まる量であり、二層 構造では制御が難しい。本研究では常磁性体/磁性体二層構造の界面に極薄の中間層を挿 入し、三層構造に拡張することで界面のスピンミキシングコンダクタンスを制御し、こ れら現象のより深い理解を得ることを目的とした。具体的には、常磁性金属/磁性体の二 層構造のプロトタイプの素子である常磁性金属 Pt/フェリ磁性絶縁体 Y₃Fe₅O₁₂(YIG) 複 合構造に注目した。第3章では常磁性金属 Pt/フェリ磁性絶縁体 BiYIG の界面に極薄の 強磁性 Fe₇₀Cu₃₀ を挿入し、界面のスピンミキシングコンダクタンスを増大させ、スピン ゼーベック効果の増大を目指した。第4章では Pt/YIG 二層構造に中間層として非磁性 絶縁体層を界面に挿入し、スピンミキシングコンダクタンスを抑制させる。このように二 層構造から三層構造に拡張することで、Pt/YIG 界面のスピンミキシングコンダクタンス を挿入した極薄の中間層によって制御し、スピン流誘起現象に界面からアプローチする。

1.2 本論文の構成

本論文は以下の通りに構成される。

第1章では、本研究の背景・目的を述べ、研究の遂行にあたり必要となるスピン流の概 念を概説した後、スピン流によって発現する現象の概説を行った。

第2章では、本研究で用いた試料の作製方法を述べ、各種スピン流を起源とする現象の 実験方法を概説した。

第3章では、常磁性金属/強磁性金属/磁性絶縁体三層構造において、スピンゼーベック 効果が常磁性金属/磁性絶縁体二層構造に比べ増大することを示した。この増大の起源は、 極薄の強磁性体(Fe₇₀Cu₃₀)を Pt/BiYIG 二層構造の界面のに挿入することで、界面の スピン流注入効率が改善されることに起因する。具体的には、試料 Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG を用い、Fe₇₀Cu₃₀の膜厚が 0.3 nm の時、スピンゼーベック効果の出力が Pt/BiYIG に 比べ 1.7 倍に増大することを示した。

第4章では、非磁性絶縁体 Al_2O_3 を Pt/YIG 界面に挿入した試料 Pt/Al_2O_3/YIG を 用いた 2 つの実験について述べる。一つ目は Pt/Al_2O_3/YIG を用いてスピンゼーベック 効果、スピンポンピング誘起逆スピンホール効果、スピンホール磁気抵抗効果の実験につ いて述べる。実験結果としては、挿入した Al_2O_3 層が Pt/YIG 界面のスピン交換相互作 用を抑制し、スピンゼーベック効果、スピンポンピング誘起逆スピンホール効果、スピ ンホール磁気抵抗効果の出力信号を減衰させることを示した。2 つ目は、Pt/Al_2O_3/YIG 試料を用いて元素選択的磁化測定を行うことで、 Al_2O_3 を挿入した際でも YIG 層が Pt 層に磁化を誘起していることを示した。これら 2 つの測定で得られた減衰の長さスケール が大きく異なることから、YIG 層が Pt 層に誘起する磁化は、スピンゼーベック効果、ス ピンポンピング誘起逆スピンホール効果、スピンホール磁気抵抗効果において本質的では ないことを明らかにした。

第5章では、本研究の結論をまとめた。

1.3 本研究の背景、目的

1.3.1 スピンゼーベック効果の増大

スピンゼーベック効果は 2008 年に Uchida らによって発見された [14]。この研究で は、常磁性金属/強磁性金属(Pt/Ni₈₁Fe₁₉)二層構造の薄膜に、強磁性体薄膜面内に温度 勾配を印加し、常磁性層に誘起されるスピン流を逆スピンホール効果によって電気的に 観測することに成功した。この構造によって発現するスピンゼーベック効果は横型スピ ンゼーベック効果と呼ばれている。横型スピンゼーベック効果は Fe、Ni 等の強磁性体金 属 [15]、強磁性半導体 (Ga,Mn)As[16]、ホイスラー合金 Co₂MnSi[17]、フェリ磁性絶縁 体 LaY₂Fe₅O₁₂[19] 等の様々な物質でも発現することが報告されている。横型スピンゼー ベック効果の測定は試料の薄膜面内方向に均一な温度勾配を印加する必要があり、また、 既存の熱電・熱磁気効果に由来する信号とスピン流に由来する信号の分離が難しく、スピ ン流由来の現象を議論する際に困難を伴う。

2010年にはこうした困難を取り除く、試料薄膜面直方向に温度勾配を印加するスピン ゼーベック効果、「縦型スピンゼーベック効果」の観測の報告がなされた [19]。この研究 では、 $Pt/Y_3Fe_5O_{12}$ の二層構造を用い、 $Pt/Y_3Fe_5O_{12}$ 界面に垂直方向に温度勾配を印加 することで温度勾配方向にスピン流を生成し、逆スピンホール効果によって電気的に検出 することに成功した。

さて、このようにスピンゼーベック効果は数多くの物質で測定されている訳である が、その出力を増大させることは応用上重要である。縦型スピンゼーベック効果を用い て、出力の増大を目指した研究として、常磁性層をスピンホール角の異なる物質を用いて ジグザグ構造にしたものや Pt/Fe₃O₄ を多層構造にしたもの等が挙げられる。

本研究では、プロトタイプの縦型スピンゼーベック素子である常磁性金属/磁性絶縁体 の界面に極薄の強磁性体金属層を挿入することによって縦型スピンゼーベック効果の増 大を目指した。2011年にJiaらはスピンゼーベック効果の信号の大きさを支配するパラ メータの1つであるスピンミキシングコンダクタンス(界面でのスピン流注入効率を表 す)が界面の磁気モーメントの値に依存することを第一原理計算によって予見した[44]。 この指針に則れば、常磁性金属/磁性絶縁体界面に強磁性体を挿入することでスピンゼー ベック効果の出力を増大させることが可能になると予想される。また、本手法は先に述べ たスピンゼーベック効果の増大手法と容易に共存が可能である。

1.3.2 常磁性金属/非磁性磁性絶縁体/磁性絶縁体三層構造でのスピン流 現象

常磁性金属/非磁性磁性絶縁体/磁性絶縁体三層構造でのスピン流現象の抑制

常磁性金属/磁性絶縁体の二層構造では、温度勾配やマイクロ波を印加することでス ピンゼーベック効果やスピンポンピングといったスピン流に由来する効果が観測される。 また、常磁性金属/磁性絶縁体の二層構造に電流を印加すると、スピンホール効果に由来 したスピンホール磁気抵抗効果と呼ばれる磁気抵抗効果も生じる。これら現象は常磁性金 属/磁性絶縁体界面のミキシングコンダクタンスによって支配されている。常磁性金属/ 磁性絶縁体界面に非磁性絶縁体を挿入すると、常磁性金属/磁性絶縁体界面でのスピン流 注入が抑制され、これら現象の信号が減少するもとと考えられる。実際に、2013年にDu らは Pt/非磁性絶縁体/YIG の三層構造において、スピンポンピングの信号が、非磁性絶 縁体の膜厚の増大に伴い指数関数的に減衰することを実験的に示している [53]。本研究で は、これをスピンゼーベック効果のおよびスピンホール磁気抵抗効果にまで拡張し、常磁 性金属/非磁性絶縁体/磁性絶縁体の三層構造において、スピンゼーベック効果のおよびス ピンホール磁気抵抗効果の信号が挿入した非磁性絶縁体の膜厚に対しどのように振る舞う のかを調べた。

常磁性金属/磁性絶縁体における磁気近接効果

Ptはstorner強磁性不安定状態に近い物質であり、Co等の強磁性体を接合させることで、磁気近接効果によってPt層に磁化が誘起されることが知られている[54]-[57]。 本研究ではPtにフェリ磁性絶縁体であるYIGを接合しているため、磁気近接効果に よってPt層に磁化が誘起されている可能性がある。2012年にGeprägsらはPt(2-10 nm)/YIGの二層構造において、XMCD測定を行うことで、YIGの磁気近接効果によ るPt層への磁化の誘起がPt/Feの二層構造に比べ非常に小さいことを示した[49]。一方 で、2013年にLuらはPtの膜厚を1.5 nmとしたPt/YIGの二層構造において、XMCD 測定を行うことで、Ptに有意な磁気モーメントが誘起されていることを示し、磁気近接 効果とスピンホール磁気抵抗効果の関係性を議論した[51]。この結果に対し、Geprägsら は、Pt(1.6 nm)/YIGの試料においてXMCD測定を行い、Pt層に誘起される磁化はLu らの主張に比べ非常に小さく、Pt層の磁化とスピンホール磁気抵抗効果の起源ではない と主張している[52]。このように、Pt/YIG二層構造においてPtに磁気近接効果によっ て誘起される磁化の大きさについて議論があり、前節までに述べたスピンゼーベック効 果、スピンポンピング誘起逆スピンホール効果、スピンホール磁気抵抗効果といった現象 にPt層に誘起された磁化が寄与しているかどうかを調べることは重要な課題となってい る。本研究では、常磁性金属/非磁性磁性絶縁体/磁性絶縁体三層構造で XMCD 測定を行うことで磁気近接効果の非磁性絶縁体層の挿入による効果を測定し、スピン流由来の現象と比較することでその分離を目指す。

1.4 スピン流の物理

1.4.1 スピン流の定義

まず電荷の流れである電流との比較することにより、スピンの流れであるスピン流を定 義することから始める。電流 **j**_c は電荷保存則を示す電荷密度 ρ の連続方程式

$$\frac{\mathrm{d}\rho}{\mathrm{d}t} = -\nabla \cdot \mathbf{j}_{\mathrm{c}} \tag{1.1}$$

によって定義される。同様に、スピン流 js は角運動量保存を示す磁化 M の連続方程式

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\mathrm{d}\mathbf{M}}{\mathrm{d}t} = -\nabla \cdot \mathbf{j}_{\mathrm{s}} \tag{1.2}$$

によって定義される。ここで γ は磁気回転比である。これらの式に注目すると、電流は 電荷を輸送するのに対し、スピン流は磁気モーメントを輸送することが分かる。また、ス ピン流は空間成分とスピン偏極成分の二つの自由度が存在するため二階のテンソル量とな る。

スピン流には、スピン角運動量を運ぶキャリアとして伝導電子とスピン波(マグノン) が考えられ、それぞれ伝導電子スピン流およびスピン波スピン流と呼ばれる。

1.4.2 伝導電子スピン流

金属中の伝導電子に電場を印加すると、電場に平行な成分を持つ電子と反平行な成分を 持つ電子の速度分布にわずかなアンバランスが生じ、電子の集団としてはある方向に流れ ることとなる。この流れが電流であるが、この伝導電子の流れに付随してスピン角運動量 も輸送される場合がある。これが伝導電子スピン流である。図 1.1 に電流と伝導電子スピ ン流の模式図を示す。図 1.1(a) に示すように電流は伝導電子が運ぶ正味の電荷の流れで あるのに対し、図 1.1(b) に示すように伝導電子スピン流は伝導電子が運ぶ正味のスピン 角運動量の流れである。スピンの量子化軸を固定し、量子化軸に平行な(反平行な)アッ プスピン(ダウンスピン)の電子流密度を $j_{\uparrow}(j_{\downarrow})$ と定義すると、電流 $j_{c,e}$ および伝導電子 スピン流 **j**_{s.e} は

$$\mathbf{j}_{\mathrm{c,e}} = e(\mathbf{j}_{\uparrow} + \mathbf{j}_{\downarrow}) \tag{1.3}$$

$$\mathbf{j}_{\mathrm{s,e}} = \frac{\hbar}{2} (\mathbf{j}_{\uparrow} - \mathbf{j}_{\downarrow}) \tag{1.4}$$

と表現することができる。



図 1.1 (a) 電流の模式図。伝導電子の持つスピン方向はランダムであるため、電流の み流れ、スピン流は流れない。(b) 伝導電子スピン流の模式図。アップスピン電子とダ ウンスピン電子が逆方向に運動し、正味の電荷(電流)は流れないがスピン角運動量の みが流れている(伝導電子スピン流)。

1.4.3 スピン波スピン流

動的な磁化変調構造であるスピン波の運ぶスピン流がスピン波スピン流である。スピン 波とは、磁性体中の局在磁気モーメントの集団励起モードであり、平衡磁化周りの磁化の 微小歳差運動が波動として伝搬する状態である。このスピン波の注目すべき点は、伝導電 子の自由度が凍結している磁性絶縁体でも存在し、スピン角運動量を伝搬できる点にあ る。スピン波スピン流の模式図を図 1.2 に示す。



図 1.2 スピン波スピン流の模式図

スピン波スピン流の定式化するため、磁気モーメント $\mathbf{M}(\mathbf{r},t)$ に対する運動方程式であるランダウ・リフシッツ・ギルバート (Landau-Lifshitz-Gilbert: LLG) 方程式 [36]

$$\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{M}(\mathbf{r},t) = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \frac{D}{\hbar M_s}\mathbf{M} \times \nabla^2 \mathbf{M} + \frac{\alpha}{M_s}\mathbf{M} \times \frac{\partial}{\partial t}\mathbf{M}$$
(1.5)

を考える。ここで γ は磁気回転比、 \mathbf{H}_{eff} はz 軸方向の有効磁場、D は交換スティフネス 係数、 α はギルバートダンピング定数である。式 (1.5) の右辺第1項は磁気モーメントが 有効磁場方向を軸に歳差運動すること、第2項は磁気モーメント間の強磁性交換相互作用 を表している。また、第3項は磁気モーメントが歳差運動をしながら有効磁場方向に緩和 することを現象論的に導入した項である。簡単のため、緩和が無視できる($\alpha = 0$)状態 を考えると、式 (1.5) は、

$$\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{M}(\mathbf{r},t) = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} - \gamma \nabla \cdot \mathbf{J}_{\text{s,M}}$$
(1.6)

と書き換えられ、この $\mathbf{J}_{\mathrm{s,M}}$ がスピン波スピン流と呼ばれ、成分表示すると、

$$\mathbf{J}_{\mathrm{s,M}}^{i,j} = \frac{D}{M_{\mathrm{s}}} [\mathbf{M} \times \nabla_{i} \mathbf{M}]_{j} = \frac{D}{M_{\mathrm{s}}} \varepsilon_{j\mu\nu} M_{\mu} \nabla_{i} \nabla_{\nu}$$
(1.7)

となる(i:空間成分、j:スピン成分、 $\varepsilon_{j\mu\nu}$:レビ・チビタの完全反対称テンソル)。

1.4.4 スピン拡散方程式

金属中のスピン輸送現象は伝導電子スピン流によって支配される。本研究では常磁性金属/磁性体接合によって常磁性金属層に注入された伝導電子純スピン流を扱う。磁性体から注入されたスピン流は、常磁性金属中で散乱され、接合部を離れるにつれて減衰し、充分に接合部から離れるとゼロに(↑と↓の電子の数が等しく)なる。この、電子がスピンの情報を失う長さスケールはスピン拡散長と呼ばれる。

次にこの様子を数式で表す。アップスピンとダウンスピンの電子を別々のキャリアとして記述すると、スピン $\sigma(=\uparrow,\downarrow)$ の電子流密度は、

$$\mathbf{j}_{\sigma} = \mathbf{j}_{\sigma}^{\text{Drift}} + \mathbf{j}_{\sigma}^{\text{Diffusion}} = \sigma_{\sigma} \mathbf{E} + e D_{\sigma} \nabla \delta n_{\sigma}$$
(1.8)

の様に書ける。ここで δn_{σ} はスピン σ 粒子の平衡状態から測った局所濃度、 σ は電気伝 導度、D は拡散係数である。統計力学によると、アインシュタインの関係式

$$\sigma_{\sigma} = e^2 N_{\sigma} D_{\sigma} \tag{1.9}$$

が成り立つため、式 (1.8) は、

$$\mathbf{j}_{\sigma} = \frac{\sigma_{\sigma}}{e} (-e\nabla\phi + \nabla\delta\mu_{\sigma}^{c}) = \frac{\sigma_{\sigma}}{e}\nabla\mu_{\sigma}$$
(1.10)

と書き直せる。ここで電気化学ポテンシャル $\mu_{\sigma} = -e\phi + \delta\mu_{\sigma}^{c} + \overline{\mu}^{c}$ ($\overline{\mu}^{c}$: 平衡状態における化学ポテンシャル)を導入した。この式 (1.10) より、式 (1.3) および式 (1.4) は、

$$\mathbf{j}_{c} = \frac{1}{e} \nabla (\sigma_{\uparrow} \mu_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow} \mu_{\downarrow}) \tag{1.11}$$

$$\mathbf{j}_{\mathrm{s}} = \frac{\hbar}{2e^2} \nabla (\sigma_{\uparrow} \mu_{\uparrow} - \sigma_{\downarrow} \mu_{\downarrow}) \tag{1.12}$$

と表される。非磁性体中を考えると、 $\sigma_{\uparrow} = \sigma_{\downarrow}$ であるので、電気化学ポテンシャルのス ピン間の差 $\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow} \equiv \mu_{s}$ が存在する領域のみスピン流が存在することとなる。ここで定 義した μ_{s} をスピン圧と呼ぶ。このように拡散スピン流が流れている状態を表したのが図 1.3 である。

次に μ_{σ} の空間分布を計算する。スピン流の連続方程式、式 (1.2) に現象論的にスピン 緩和 T を導入し、

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\mathrm{d}\mathbf{M}}{\mathrm{d}t} = -\nabla \cdot \mathbf{j}_{\mathrm{s}} + \mathbf{T} \tag{1.13}$$

$$T_z = \frac{\hbar}{2} \left(-\frac{1}{\tau_{\uparrow\downarrow}} \delta n_{\uparrow} + \frac{1}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \delta n_{\downarrow} \right)$$
(1.14)

とする。電荷保存則を表す式 (1.3) に式 (1.11)、式 (1.13) に式 (1.12) を代入し計算す ると、

$$\nabla^2 (\sigma_{\uparrow} \mu_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow} \mu_{\downarrow}) = 0 \tag{1.15}$$

$$\nabla^2(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) = \frac{1}{D\tau_{\rm sf}}(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) \equiv \frac{1}{\lambda^2}(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) \tag{1.16}$$

$$D^{-1} = \frac{1}{4} \left(\frac{N_{\uparrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} D_{\uparrow} \right)^{-1} + \left(\frac{N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} D_{\uparrow} \right)^{-1}$$
(1.17)

$$\tau_{\rm sf}^{-1} = \left(\frac{N_{\uparrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}}\right) \tau_{\uparrow\downarrow}^{-1} + \left(\frac{N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}}\right) \tau_{\downarrow\uparrow}^{-1} \tag{1.18}$$

と計算される。ここでは詳細つり合いの式 $N_{\uparrow}\tau_{\uparrow\downarrow}^{-1} = N_{\downarrow}\tau_{\downarrow\uparrow}^{-1}$ を用いた。式 (1.16) はスピン拡散方程式 [32] と呼ばれ、 μ の分布を与える方程式てある。また、 $\lambda = \sqrt{D\tau_{sf}}$ はスピン拡散長と呼ばれ、スピン流が生じる即ち \uparrow と \downarrow の電子の電気化学ポテンシャルの勾配に差が生じる長さを決めるパラメータである。

1.4.5 常磁性体/磁性体二層構造におけるスピン流

Pt/YIG 界面における交換相互作用

 $\operatorname{Pt}/\operatorname{YIG}$ 界面に交換相互作用 $J_{\mathrm{ex}}M\cdot\sigma$ が働いているとする。

YIG 近傍の Pt 中の電子は有効磁場

$$\boldsymbol{H}_{\text{eff}} = J_{\text{ex}}\boldsymbol{M} \tag{1.19}$$

を感じる。この様子を図 1.4 に示す。

これにより Pt 層の電子は分極し、 $N_0 = \chi J_{ex} M$ の磁気モーメントを持つ。ここで χ は スピンの帯磁率である。この Pt 中の電子が分極した状態が平衡状態である。

この状態で磁化が時間変化することを考える。平衡状態からの磁気モーメントのずれ



図 1.3 電気化学ポテンシャルの空間分布。



図 1.4 Pt/YIG 界面における交換相互作用によるスピン蓄積

 ΔN を定義すると、

$$\boldsymbol{N} = \chi J_{\rm ex} \boldsymbol{M} + \Delta \boldsymbol{N} \tag{1.20}$$

と書け、これの時間変化を考える。 $|\Delta N| \ll \chi J_{
m ex} |M|$ なので、簡単のため Mの時間変化のみ考える。まず、緩和を現象論的に導入した磁化の運動方程式

$$\dot{N} = \gamma N \times J_{\text{ex}} M - \frac{\Delta N}{\tau}$$
 (1.21)

に、 $\dot{N} \approx \chi J_{\mathrm{ex}} \dot{M}$ を代入すると、

$$\Delta \boldsymbol{N} \approx -J_{\rm ex} \tau (\gamma \Delta \boldsymbol{N} \times \boldsymbol{M} + \chi \dot{\boldsymbol{M}}) \tag{1.22}$$

$$= -\frac{\chi}{\Gamma\gamma} \dot{\boldsymbol{m}} - \frac{1}{\Gamma} \Delta \boldsymbol{N} \times \boldsymbol{m}$$
(1.23)

ここで、 $m \equiv M / | M |$ と無次元量に書き換え、

$$\frac{1}{\Gamma} \equiv J_{\rm ex} \tau \gamma \mid \boldsymbol{M} \mid \tag{1.24}$$

を定義する。さらに ΔN を逐次代入すると、

$$\Delta \boldsymbol{N} \approx -\frac{\chi}{\Gamma \gamma} \left(\dot{\boldsymbol{m}} + \frac{1}{\Gamma} \boldsymbol{m} \times \dot{\boldsymbol{m}} \right) - \frac{1}{\Gamma^2} \Delta \boldsymbol{N}$$
(1.25)

と計算でき、

$$\Delta \boldsymbol{N} \approx -\frac{\chi}{\gamma} \frac{\Gamma^2 + 1}{\Gamma} \left(\frac{1}{\Gamma} \boldsymbol{m} \times \dot{\boldsymbol{m}} + \dot{\boldsymbol{m}} \right)$$
(1.26)

と計算できる。この結果から、交換相互作用によって界面の非平衡スピン蓄積がスピン流 を生成することを示せた。常磁性体中では

$$\mathbf{J}_{\rm s} = -\frac{\hbar\sigma}{4e^2} \nabla(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) \tag{1.27}$$

となる。

スピン回路理論におけるスピンミキシングコンダクタンス

次にスピン回路理論を用いて Pt/YIG 二層構造の界面でのスピン角運動量の交換を議論する。ここでは常磁性体/強磁性体二層構造界面おいて生じる電流、スピン流をスピン回路理論によって表現する。スピン空間を考えるため、生成消滅演算子を $\hat{a} = (a_{\uparrow}, a_{\downarrow})$ のように表現する必要がある。この標識を用いて、常磁性体中および強磁性体中の分布関数をそれぞれ

$$\langle a^{N\dagger}a^N \rangle = \mathbf{f}_N \tag{1.28}$$

$$\langle a^{F\dagger}a^F \rangle = \mathbf{f}_F$$
 (1.29)

と表す。次に常磁性層に流れ込む粒子を生成消滅演算子 $b^{N\dagger}, b^N$ を界面での反射係数 \mathbf{r} および透過係数 \mathbf{t} を用いて表すと、

$$b^{N\dagger} = \mathbf{r}^{\dagger} a^{N\dagger} + \mathbf{t}^{\dagger} a^{F\dagger} \tag{1.30}$$

$$b^N = a^N \mathbf{r} + a^F \mathbf{t} \tag{1.31}$$

で書くことができ、常磁性層に流れ込む粒子数は

$$\langle b^{N\dagger}b^{N} \rangle - \langle a^{N\dagger}a^{N} \rangle = \mathbf{t}^{\dagger}\mathbf{f}^{F}\mathbf{t} - (\mathbf{f}^{N} - \mathbf{r}^{\dagger}\mathbf{f}^{N}\mathbf{r})$$
(1.32)

と記述できる。

次にパウリ行列 σ を用いて分布関数および散乱係数をスピンに依存する項と依存しない 項に分類する。準備として、強磁性層の磁化を方向をmとし、mの方向に量子化軸を取る とする。また、常磁性体中のスピン蓄積の方向を n と取る。これらを m、 $\mathbf{m}_{ imes}\equivrac{\mathbf{n} imes\mathbf{m}}{|\mathbf{n} imes\mathbf{m}|}$ 、 $\mathbf{m}_{\perp}\equivrac{\mathbf{m} imes(\mathbf{n} imes\mathbf{m})}{|\mathbf{m} imes(\mathbf{n} imes\mathbf{m})|}$ とした基底で表現する。 \mathbf{m} と \mathbf{n} の成す角をhetaとすると、 \mathbf{n} は

$$\mathbf{n} = \cos\theta \mathbf{m} + \sin\theta \mathbf{m}_{\perp} \tag{1.33}$$

という形で書くことができる。スピンに依存する項と依存しない項に分類した分布関数お よび散乱係数は、

...

$$\mathbf{f}^F = f^F \mathbf{1} + f^F_s \mathbf{m} \cdot \boldsymbol{\sigma} \tag{1.34}$$

$$\mathbf{f}^N = f^N \mathbf{1} + f^N_s \mathbf{n} \cdot \boldsymbol{\sigma} \tag{1.35}$$

$$\mathbf{r} = r\mathbf{1} + r_s \mathbf{m} \cdot \boldsymbol{\sigma} \tag{1.36}$$

$$\mathbf{t} = r\mathbf{1} + t_s \mathbf{m} \cdot \boldsymbol{\sigma} \tag{1.37}$$

と書くことができ、これらを用いて常磁性層に流れ込む粒子数を $\mathbf{m}_{\mathbf{x}}, \mathbf{m}_{\mathbf{y}}$ の基底で 書くと、

$$\mathbf{t}^{\dagger}\mathbf{f}^{F}\mathbf{t} = \left[(|t|^{2} + |t_{s}|^{2})f^{F} + (t^{*}t_{s} + tt_{s}^{*})f_{s}^{F} \right] \mathbf{1} \\ + \left[(|t|^{2} + |t_{s}|^{2})f_{s}^{F} + (t^{*}t_{s} + tt_{s}^{*})f^{F} \right] \mathbf{m} \cdot \sigma$$
(1.38)
$$\mathbf{f}^{N} - \mathbf{r}^{\dagger}\mathbf{f}^{N}\mathbf{r} = \left[1 - (|r|^{2} + |r_{s}|^{2}) \right] f^{N}\mathbf{1} + \left[(1 - (|r|^{2} + |r_{s}|^{2}) \right] f_{s}^{N} \cos\theta \mathbf{m} \cdot \sigma \\ + \left[(1 - (|r|^{2} - |r_{s}|^{2}) \right] f_{s}^{N} \sin\theta \mathbf{m}_{\perp} \cdot \sigma \\ - (r^{*}r_{s} + rr_{s}^{*})f^{N}\mathbf{m} \cdot \sigma - (r^{*}r_{s} + rr_{s}^{*})f_{s}^{N} \cos\theta \mathbf{1} \\ - i(r^{*}r_{s} + rr_{s}^{*})f_{s}^{N} \sin\theta \mathbf{m}_{\times} \cdot \sigma$$
(1.39)

と書くことができる。

次に常磁性/磁性絶縁体界面のコンダクタンスをスピン依存の反射率および透過率で書 き下す。

$$G_{\sigma} \equiv \frac{1}{4\pi} (1 - |r_{\sigma}|^2) = \frac{1}{4\pi} |t_{\sigma}|^2$$
(1.40)

であるので、各スピンを持つ粒子のコンダクタンスから、電子(スピン依存しない)のコ ンダクタンスおよびスピンのコンダクタンスを下記のように定義して計算する。

$$G \equiv G_{\uparrow} + G_{\downarrow} = \frac{1}{2\pi} \left[1 - (|r|^2 + |r_s|^2) \right]$$
(1.41)

$$G_{s} \equiv G_{\uparrow} - G_{\downarrow} = -\frac{1}{2\pi} (r^{*} r_{s} + r r_{s}^{*})$$
(1.42)

ここで、 $r_{\uparrow} \equiv \frac{r+r_s}{2}$ 、 $r_{\downarrow} \equiv \frac{r-r_s}{2}$ 、 $t_{\uparrow} \equiv \frac{t+t_s}{2}$ 、 $t_{\downarrow} \equiv \frac{t-t_s}{2}$ を用いた。更にスピンミキシング コンダクタンスを下記のように定義する。

$$g_{\uparrow\downarrow} \equiv \frac{1}{4\pi} (1 - r_{\uparrow}^* r_{\downarrow}) = \frac{1}{4\pi} (1 - |r|^2 + |r_s|^2 + r^* r_s - rr_s^*)$$
(1.43)

これら標識を用いて電流およびスピン流成分を計算すると、

$$j_c \mathbf{1} + \mathbf{j}_s \equiv \frac{1}{4\pi} (\langle b^{N\dagger} b^N \rangle - \langle a^{N\dagger} a^N \rangle)$$
(1.44)

であるので、

$$j_c = G(\mathbf{f}^F - \mathbf{f}^N) + G_s(\mathbf{f}^F_s - \mathbf{f}^N_s \cos\theta)$$

$$j_s = \left[G_s(\mathbf{f}^F - \mathbf{f}^N) + G_s(\mathbf{f}^F_s - \mathbf{f}^N_s \cos\theta)\right] \mathbf{m}$$
(1.45)

$$= \begin{bmatrix} G_s(\mathbf{I} & -\mathbf{I} &) + G_s(\mathbf{I}_s & -\mathbf{I}_s & \cos\theta) \end{bmatrix} \mathbf{m} -2(\operatorname{Re}\left[g_{\uparrow\downarrow}\mathbf{f}_s^N \sin\theta\mathbf{m}_{\perp}\right] + \operatorname{Im}\left[g_{\uparrow\downarrow}\mathbf{f}_s^N \sin\theta\mathbf{m}_{\times}\right]$$
(1.46)

が得られ、これをエネルギー積分することにより電流とスピン流が求められる。各電気化 学ポテンシャルおよびスピン圧を $\mu^{F(N)},\,\mu_s^{F(N)}$ として、

$$\mathbf{f}^{F(N)}(E) = \mathbf{f}^{F(N)}_{\uparrow}(E) + \mathbf{f}^{F(N)}_{\downarrow}(E) \approx 2\mathbf{f}(E) + \mu^{F(N)}\partial_E\mathbf{f}(E)$$
(1.47)

$$\mathbf{f}_{s}^{F(N)}(E) = \mathbf{f}_{\uparrow}^{F(N)}(E) - \mathbf{f}_{\downarrow}^{F(N)}(E) \approx \mu_{s}^{F(N)} \partial_{E} \mathbf{f}(E)$$
(1.48)

の元、 $\partial_E \mathbf{f}(E) \approx \delta(E - E_F)$ の近似を用い計算すると、

$$J_c = G(\mu^F - \mu^N) + G_s(\mu_s^F - \mu_s^N)$$

$$\mathbf{J}_s = \left[G_s(\mu^F - \mu^N) + G_s(\mu_s^F - \mu_s^N \cos\theta)\right] \mathbf{m}$$
(1.49)

$$-2(\operatorname{Re}\left[g_{\uparrow\downarrow}\mu_{s}^{N}\sin\theta\mathbf{m}_{\perp}\right] + \operatorname{Im}\left[g_{\uparrow\downarrow}\mu_{s}^{N}\sin\theta\mathbf{m}_{\times}\right]$$
(1.50)

と書くことができる。ここで、完全反射 $(G_{\sigma} = 0)$ の場合でも、 $G = G_s = 0$ であるが $g_{\uparrow\downarrow}$ は有限となり、スピン流を生成することが可能である。

1.4.6 スピンホール効果と逆スピンホール効果

スピンホール効果

物質に磁場と電流を互いに直交する方向へ印加すると、それぞれに直交する方向に磁場 強度に比例する電圧が生じる。これは正常ホール効果と呼ばれ、キャリアがローレンツ力 で曲げられることによって生じる。同様に強磁性体中では磁化と電流方向に垂直なホール 電圧が生じる。この起源は強磁性体中のスピン軌道相互作用である。スピン軌道相互作用 によって、アップスピン電子とダウンスピン電子が逆方向に曲げらる。強磁性体中では伝 導電子数がスピン偏極しているため、正味の電荷蓄積が生じ起電力が生じる。この現象は 異常ホール効果と呼ばれる。 常磁性体中では、伝導電子数がスピン偏極していないため電荷蓄積は生じない。しか し、スピン軌道相互作用は存在し、アップスピン電子とダウンスピン電子が逆方向に曲げ らている。これによって、電流と磁化の双方に垂直方向にスピン流が誘起される。この現 象をスピンホール効果 [33]-[35] と呼ぶ。生成されるスピン流は、電子スピンの偏極方向 σ を用いて

$$\mathbf{J}_{\mathrm{s}} \propto \mathbf{J}_{\mathrm{c}} \times \boldsymbol{\sigma} \tag{1.51}$$

と表される。スピンホール効果の模式図を図 1.5(a) に示す。

逆スピンホール効果

次にスピンホール効果の逆効果を考える。スピンホール効果は、電流からスピン流を生 成する現象であるので対し、逆スピンホール効果はスピン流から電流を生成する現象であ る。逆スピンホール効果によって生成される電流は、

$$\mathbf{J}_{c} \propto \mathbf{J}_{s} \times \boldsymbol{\sigma} \tag{1.52}$$

と表される。逆スピンホール効果の模式図を図 1.5(b) に示す。



図 1.5 (a) スピンホール効果の模式図。(b) 逆スピンホール効果の模式図。

異常ホール効果

1.5 スピン流によって誘起される現象

1.5.1 スピンゼーベック効果

通常のゼーベック効果とは、物質中の温度勾配によって、温度勾配と平行な方向に電 圧が生じる現象である。これと比較して、スピンゼーベック効果とは、磁性体中の温度勾 配によってスピン圧が生じる現象である。

スピンゼーベック素子は磁性体/常磁性体二層から構成される。この素子にに温度勾配 を印加すると、素子内では熱揺らぎによって空間的に不均一な磁化の揺らぎが生じる。こ の時、磁性体層のスピン系の有効温度(スピンの熱揺らぎ)と常磁性金属層での電子系の 有効温度(電子の熱揺らぎ)に差が生じ、有限のスピン流が常磁性金属層に流れる。常磁 性金属層に注入されたスピン流は逆スピンホール効果によって電圧に変換される。常磁性 金属層としては、Pt等のスピン軌道相互作用の大きい(逆スピンホール効果の変換効率 の高い)物質が利用される。

以上がスピンゼーベック効果の概略である。スピンゼーベック効果の模式図を図 1.6 を 示す。また、スピンゼーベック効果によって生じるスピン流は、



Magnetization precession is generated in FM



Spin current is injected into PM layer

Spin current is converted to voltage signal in PM layer via

図 1.6 スピンゼーベック効果の模式図。

$$\mathbf{J}_{\mathrm{s}} = \frac{g_{\uparrow\downarrow}}{2\pi} \frac{\gamma\hbar}{M_{\mathrm{s}} V_{a}} k_{\mathrm{B}} \Delta T \tag{1.53}$$

で与えられる。ここで γ は磁気回転比、 M_s は磁性体層の飽和磁化である。

異常ネルンスト効果

スピンゼーベック効果と似た熱電効果として異常ネルンスト効果がある。異常ネルン スト効果とは、磁化した強磁性体に温度勾配を印加した際に、磁化と温度勾配に垂直な方 向に電場が生じる現象である。この対称性は、スピンゼーベック効果の対称性と同様であ り、常磁性金属/強磁性金属等の二層構造ではその分離が困難である。本研究では、常磁 性金属/磁性絶縁体の二層構造を用いることで異常ネルンスト効果の影響を排除し、純粋 にスピンゼーベック効果の測定を実施している。

1.5.2 スピンホール磁気抵抗効果

スピンホール磁気抵抗効果とはその名の示す通り、スピンホール効果を起源とする磁気 抵抗効果であり、その発現原理について述べる。常磁性金属/磁性絶縁体の二層構造を考 える。常磁性金属薄膜に電流を流すと、スピンホール効果によって伝導電子スピン流が生 成される。生成されたスピン流は常磁性金属界面で反射されバックフロースピン流を生成 する。この際、伝導電子のスピンは接合された磁性絶縁体の磁化と結合し、角運動量を交 換する。これは界面での伝導電子のスピン散乱は磁性絶縁体の磁化方向によって制御され ることを意味する。この結果、バックフロースピン流は磁性絶縁体の磁化方向によって変 調され、このバックフロースピン流が逆スピンホール効果によって生成する電流量の変 調、つまり電気抵抗値の変化へと繋がる。以上、スピンホール磁気抵抗効果の発現過程を 図 1.7、1.8 に示す。



図 1.7 スピンホール効果および逆スピンホール効果を介した電流の変調の模式図。



図 1.8 常磁性金属 (PM) 層に誘起されるバックフロースピン流の模式図。磁性絶縁体 (FM) 中の磁化方向によってバックフロースピン流の量が変調される。

スピンホール磁気抵抗効果の理論

常磁性/磁性体絶縁体二層構造に電流を x 方向に流すモデルを考える。常磁性層のスピン軌道相互作用を考慮すると、常磁性層に流れる電流、スピン流は以下で与えられる。

$$\begin{pmatrix} \overline{j}_{c} \\ \overline{j}_{sx} \\ \overline{j}_{sy} \\ \overline{j}_{sz} \end{pmatrix} = \sigma \begin{pmatrix} 1 & \theta_{SH} \hat{x} \times & \theta_{SH} \hat{y} \times & \theta_{SH} \hat{z} \times \\ \theta_{SH} \hat{x} \times & 1 & 0 & 0 \\ \theta_{SH} \hat{y} \times & 0 & 1 & 0 \\ \theta_{SH} \hat{z} \times & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\nabla \mu_0 / e \\ -\overline{\nabla} \mu_{sx} / (2e) \\ -\overline{\nabla} \mu_{sy} / (2e) \\ -\overline{\nabla} \mu_{sy} / (2e) \\ -\overline{\nabla} \mu_{sy} / (2e) \end{pmatrix} (1.54)$$

常磁性/磁性体絶縁体界面に生じたスピン蓄積はスピン拡散方程式

$$\nabla^2 \overrightarrow{\mu}_s = \frac{\overrightarrow{\mu}_s}{\lambda^2} \tag{1.55}$$

に従い拡散され、常磁性層でのスピン蓄積は界面からの距離 z を用いて

$$\overrightarrow{\mu}_s(z) = \overrightarrow{A} e^{-z/\lambda} + \overrightarrow{B} e^{z/\lambda}$$
(1.56)

と表される。ここで z 方向に流れるスピン流に注目すると、スピン流は z 方向のスピン蓄積の勾配と x 方向に流した電流によって生じるスピンホール効果によるスピン流 $\overrightarrow{\mu}_s - j_{s0}^{SH} = \theta_{SH}\sigma E_x$ の2項で表され、

$$\vec{j}_{s}^{z}(z) = -\frac{\sigma}{2e} \partial_{z} \vec{\mu}_{s} - j_{s0}^{\rm SH} \hat{y}$$
(1.57)

と書くことができる。常磁性体/磁性体界面を d = 0 とする座標を取り、常磁性層の膜厚 を d_N とすると、境界条件より $\overrightarrow{\mu}_s(d_N) = 0$ である。また常磁性体/磁性体界面 (d = 0) のスピン蓄積はスピンミキシングコンダクタンス

$$e \overrightarrow{j}_{s}^{(\mathrm{F})}(\hat{m}) = G_{r} \hat{m} \times (\hat{m} \times \overrightarrow{\mu}_{s}) + G_{i} (\hat{m} \times \overrightarrow{\mu}_{s})$$
(1.58)

によって表現される。これらを用いると、

$$\vec{\mu}_{s}(z) = \frac{2e\lambda}{\sigma} \left[-j_{s0}^{\rm SH} \hat{y} \cosh\frac{z}{\lambda} + (j_{s0}^{\rm SH} \hat{y} + \vec{j}_{s}^{(\rm F)}(\hat{m})) \cosh\frac{z - d_{N}}{\lambda} \right] / \sinh\frac{d_{N}}{\lambda} \\ = -\hat{y} \mu_{s}^{0} \frac{\sinh\frac{2z - d_{N}}{2\lambda}}{\sinh\frac{d_{N}}{2\lambda}} + \vec{j}_{s}^{(}F)(\hat{m}) \frac{2e\lambda}{\sigma} \frac{\cosh\frac{z - d_{N}}{\lambda}}{\sinh\frac{d_{N}}{\lambda}}$$
(1.59)

と書くことができる。ここで、 $\mu_s^0 \equiv |\overrightarrow{\mu}_s(0)| = (2e\lambda/\sigma)j_{s0}^{SH} \tanh[d_N/(2\lambda)]$ を用いた。ここに式 (1.58) を代入して

$$\vec{\mu}_s(0) = \hat{y}\mu_s^0 + \frac{2\lambda}{\sigma} [G_r\{\hat{m}[\hat{m}\cdot\vec{\mu}_s(0)] - \vec{\mu}_s(0)\} + G_i\hat{m}\times\vec{\mu}_s(0)] \coth\frac{d_N}{\lambda}$$
(1.60)

が得られる。これより界面でのスピン蓄積は、

$$\vec{\mu}_{s}(0) = \hat{y}\mu_{s}^{0} \frac{1 + \frac{2\lambda}{\sigma}G_{r} \coth\frac{d_{N}}{\lambda}}{(1 + \frac{2\lambda}{\sigma}G_{r} \coth\frac{d_{N}}{\lambda})^{2} + (\frac{2\lambda}{\sigma}G_{i} \coth\frac{d_{N}}{\lambda})^{2}} \\ + \hat{m}m_{y}\mu_{s}^{0} \frac{\frac{2\lambda}{\sigma}G_{r} \coth\frac{d_{N}}{\lambda}(1 + \frac{2\lambda}{\sigma}G_{r} \coth\frac{d_{N}}{\lambda})^{2} + (\frac{2\lambda}{\sigma}G_{i} \coth\frac{d_{N}}{\lambda})^{2}}{(1 + \frac{2\lambda}{\sigma}G_{r} \coth\frac{d_{N}}{\lambda})^{2} + (\frac{2\lambda}{\sigma}G_{i} \coth\frac{d_{N}}{\lambda})^{2}} \\ + (\hat{m} \times \hat{y})\mu_{s}^{0} \frac{\frac{2\lambda}{\sigma}G_{r} \coth\frac{d_{N}}{\lambda}}{(1 + \frac{2\lambda}{\sigma}G_{r} \coth\frac{d_{N}}{\lambda})^{2} + (\frac{2\lambda}{\sigma}G_{i} \coth\frac{d_{N}}{\lambda})^{2}}$$
(1.61)

と計算される。

$$\overrightarrow{\mu}_{s} = \frac{2e\lambda}{\sigma} \left[-(j_{s0}^{\mathrm{SH}}\hat{y} + \overrightarrow{j}_{s}^{z}(d_{N})) \cosh\frac{z}{\lambda} + (j_{s0}^{\mathrm{SH}}\hat{y} + \overrightarrow{j}_{s}^{(\mathrm{F})}(\hat{m})) \cosh\frac{z-d_{N}}{\lambda} \right] / \sinh\frac{d_{N}}{\lambda}$$
(1.62)

また、常磁性体/磁性体界面に生じるスピン流は、

$$\vec{j}_{s}^{(F)} = \frac{\mu_{s}^{0}}{e} \hat{m} \times (\hat{m} \times \hat{y}) \sigma \operatorname{Re} \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{\sigma + 2\lambda G_{\uparrow\downarrow} \operatorname{coth} \frac{d_{N}}{\lambda}} + \frac{\mu_{s}^{0}}{e} (\hat{m} \times \hat{y}) \sigma \operatorname{Im} \frac{G_{\uparrow\downarrow}}{\sigma + 2\lambda G_{\uparrow\downarrow} \operatorname{coth} \frac{d_{N}}{\lambda}}$$
(1.63)

となる。スピン蓄積は、

$$\frac{\overrightarrow{\mu}_{s}(z)}{\mu_{s}^{0}} = -\hat{y}\frac{\sinh\frac{2z-d_{N}}{2\lambda}}{\sinh\frac{d_{N}}{2\lambda}} + [\hat{m} \times (\hat{m} \times \hat{y})\text{Re} + (\hat{m} \times \hat{y})\text{Im}]\frac{2\lambda G_{\uparrow\downarrow}}{\sigma + 2\lambda G_{\uparrow\downarrow} \coth\frac{d_{N}}{\lambda}}\frac{\cosh\frac{z-d_{N}}{\lambda}}{\sinh\frac{d_{N}}{\lambda}}$$
(1.64)

となり、常磁性体中を流れるスピン流は、

$$\frac{\overrightarrow{j}_{s}^{z}(z)}{j_{s0}^{SH}} = \hat{y} \frac{\cosh\frac{2z-d_{N}}{2\lambda} - \cosh\frac{d_{N}}{2\lambda}}{\cosh\frac{d_{N}}{2\lambda}} - [\hat{m} \times (\hat{m} \times \hat{y})\text{Re} + (\hat{m} \times \hat{y})\text{Im}] \frac{2\lambda G_{\uparrow\downarrow} \tanh\frac{d_{N}}{2\lambda}}{\sigma + 2\lambda G_{\uparrow\downarrow} \coth\frac{d_{N}}{\lambda}} \frac{\sinh\frac{z-d_{N}}{\lambda}}{\sinh\frac{d_{N}}{\lambda}}$$
(1.65)

と計算される。この *z* 方向に流れるスピン流が逆スピンホール効果を介して *x* 方向に生じさせる電流は、

$$\frac{j_{c,\log}(z)}{j_C^0} = 1 + \theta_{\rm SH}^2 \left[\frac{\cosh\frac{2z-d_N}{2\lambda}}{\cosh\frac{d_N}{2\lambda}} + (1+m_y^2) \operatorname{Re} \frac{2\lambda G_{\uparrow\downarrow} \tanh\frac{d_N}{2\lambda}}{\sigma + 2\lambda G_{\uparrow\downarrow} \coth\frac{d_N}{\lambda}} \frac{\sinh\frac{z-d_N}{\lambda}}{\sinh\frac{d_N}{\lambda}} \right]$$
(1.66)

が得られ、ここから x 方向の電気抵抗率は、

$$\rho_{\text{long}} = \left(\frac{\overline{j_{c,\text{long}}}}{E_x}\right)^{-1} \approx \rho + \Delta\rho_0 + \Delta\rho_1(1 - m_y^2) \tag{1.67}$$

となる。ここで、

$$\frac{\rho_0}{\rho} = -\theta_{\rm SH}^2 \frac{2\lambda}{d_N} \tanh \frac{d_N}{2\lambda} \tag{1.68}$$

$$\frac{\rho_1}{\rho} = \theta_{\rm SH}^2 \frac{\lambda}{d_N} \operatorname{Re} \frac{2\lambda G_{\uparrow\downarrow} \tanh^2 \frac{d_N}{2\lambda}}{\sigma + 2\lambda G_{\uparrow\downarrow} \coth \frac{d_N}{2\lambda}}$$
(1.69)

である。これら式から、スピンホール磁気抵抗は磁性層の y 方向の磁化を反映した磁気抵抗効果であることが分かる。

1.5.3 スピンポンピング

スピンポンピングとは、磁化ダイナミクスを介したスピン流生成現象である。ここでは 磁性体/常磁性体金属の二層構造について考える。磁化のダイナミクスは式(1.5)で示し た LLG 方程式によって記述される。LLG 方程式では、磁気モーメントが有効磁場方向を 回転軸とし歳差運動しながら有効磁場方向に緩和することを示している。歳差運動を行う 磁気モーメントが失ったスピン角運動の一部が伝導電子スピンに受け渡され、接続された 常磁性層にスピン流が注入される。この時、磁性体層の磁気モーメントの歳差運動と角周 波数の等しい角周波数のマイクロ波を照射すると、磁気モーメントはマイクロ波のエネル ギー及び角運動量を吸収する。すなわち、定常的に磁気モーメントの歳差運動を持続させ ることができ、定常的にスピン流を常磁性層に注入することができる。この現象は強磁性 共鳴 (Ferro Magnetic Resonance : FMR)と呼ばれる。スピンポンピングの模式図を図 1.9 を示す。



図 1.9 スピンポンピングの模式図。

強磁性体/常磁性体金属2層構造において、常磁性金属層に注入されるスピン流は

$$j_{\rm s}^{sp} = g_r^{\uparrow\downarrow} (\mathbf{m} \times \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} + g_i^{\uparrow\downarrow} \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t})$$
(1.70)

で記述される。ここで、 $g_{r(i)}^{\uparrow\downarrow}$ はスピンミキシングコンダクタンスの実部(虚部)である。 スピンミキシングコンダクタンス [37]-[39] は強磁性体中の磁気モーメントと常磁性体中 の伝導電子スピンの界面交換相互作用の強さを表すパラメータであり、スピン流注入効率 を決める。式(1.70)で表されるように、常磁性層に注入されるスピン流はスピンミキシ ングコンダクタンスに比例する。

1.6 イットリウム鉄ガーネットの基礎物性

本研究で用いたイットリウム鉄ガーネット $(Y_3Fe_5O_{12}:YIG)$ は、希土類鉄ガーネット $(R_3Fe_5O_{12}:RIG)$ であり、代表的なガーネット型フェライトである。YIG はフェリ 磁性絶縁体であり、2.85 eV のバンドギャップを有する。YIG の結晶構造を図 1.10 に示

す。結晶は立方晶型であり、単位胞中に 160 個の原子を含んでる。磁性は Fe 原子が担っ ており、Fe 原子に注目することで YIG の磁性が理解される。Fe 原子は、正方晶に配置さ れた Fe (24(d) サイト)と O で八面体型に囲まれた Fe (16(a) サイト)の二つに分類さ れる。これらの Fe 原子が超交換相互作用によって反強磁性的に結合してフェリ磁性体と なっている。 $Y_3Fe_5O_{12}$ 分子あたりでは、24(d) サイトの Fe 原子 3 個と 16(a) サイトの Fe 原子 2 個が存在し、5 μ_B の磁気モーメントを持つ。



図 1.10 YIG の結晶構造。図は [43] より引用

第2章

実験方法

2.1 試料設計・作製方法

2.1.1 マグネトロンスパッタによる金属薄膜の製膜

本研究では、Pt 薄膜および単結晶 YIG をマグネトロンスパッタを用いて作製した。P tの製膜時の真空度は 7×10^{-3} Torr とした。また、電気抵抗測定用試料作製時は、図 2.1 に示すホールバー形状のメタルマスクを基板上に固定し、ホールバー型の Pt を製膜した。



図 2.1 メタルマスクの設計図

2.1.2 単結晶 YIG の作製

本研究では以下の単結晶 YIG を用いた。

● 液相エピタキシャル (Liquid Phase Epitaxy: LPE)法 (質の高い YIG が作製

できる)

- MOD(Metal OrganicDeposition) 法 (比較的容易に (Bi)YIG が作製できる)
- マグネトロンスパッタ (膜厚数 nm の YIG 薄膜が作製できる)
- フラックス法 (質の高い YIG が作成できる。本研究ではバルク YIG を作製。)

ここでは特に MOD 法における $BiY_2Fe_5O_{12}$ (BiYIG)の作製方法を述べる。単結晶 (GaGd)₃(ZrMgGa)₅ $O_12(SGGG)$ (111) 基板上に MOD 液体を塗布し、スピンコーターに て均一な膜とした。次に基板を 750 にてアニールし、単結晶の BiYIG を得た。作製し た単結晶 BiYIG の膜厚は 120 nm 程である。以上のプロセスを図 2.2 に示す。



図 2.2 MOD 法による BiYIG 作製手順の模式図

2.1.3 原子層堆積 (Atomic Layer Deposition: ALD) 法による Al₂O₃ 薄膜 の作製

ALD 法とは、均一で段差被膜性の高い(ピンホールフリーの)薄膜を作製する方法で あり、以下に Al₂O₃ 薄膜の作製手順を述べる。

- 1. 真空チャンバー中で基板にプリカーサと呼ばれるガス (Al_2O_3 の場合は Trimethylaluminium: TMA) を吹きかける。
- 2. チャンバー内を窒素でパージする。
- 3. 基板に O₃ を吹きかける。
- 4. チャンバー内を窒素でパージする。

以上の工程を繰り返すことにより所望の膜厚の Al_2O_3 薄膜を得る。原理としては TMA に O_3 を吹きかけることによりメチル基を飛ばし、 Al_2O_3 を得る。以上のプロセスを図 2.3 に示す。



図 2.3 ALD 法による Al₂O₃ の堆積手順の模式図

2.2 実験系の設計と測定方法

2.2.1 スピンゼーベック効果 (Spin Seebeck effect : SSE)の測定

本研究ではフェリ磁性絶縁体/常磁性金属複合構造試料に対し、試料面内垂直方向に温 度勾配を印加する縦型構造にてスピンゼーベック効果(Longitudinal-SSE:LSSE)の測 定を実施した。装置は試料を2枚の銅板ではさむ構造となっており、上面の銅版には絶縁 のためシリコンシートを接着してある。下面の銅板はペルチェ素子が圧着されており、ペ ルチェ素子に電流を流すことで試料に生成される温度勾配を制御する。また、2枚の銅板 にはT型熱電対が接続されており、2枚の銅板に生成される温度差をモニターできる。こ の温度勾配生成装置を用いて試料の上面と下面の間に一定の温度差を付けつつ、磁場を印 加することでLSSEの測定を行った。常磁性金属薄膜に生成される電圧は、タングステン ニードルを直接試料にプロープすることで測定した。

2.2.2 スピンホール磁気抵抗効果 (Spin-Hall magnetoresistance : SMR)の 測定

常磁性層をホールバー形状に作製したフェリ磁性絶縁体/常磁性体金属接合膜試料を用いて磁気抵抗測定を行った。試料への配線は、タングステンニードルを直接試料にプロー ブすることで行った。

2.2.3 スピンポンピングによる逆スピンホール効果の測定

スピンポンピングによる逆スピンホール効果の測定の測定には電子スピン共鳴(Electron Spin Resonance: ESR)装置を用いた。以下にその概要を示す。

磁性体/常磁性体接合膜試料を TE₀₀₁ モードマイクロ波共振器内に設置し、試料の面内 に外部磁場を印加しつつ 9.44GHz のマイクロ波を導入した。マイクロ波によって、試料 にはマイクロ波振動磁場が印加される。この状態で外部磁場を掃引することで、特定の磁 場強度の際にマイクロ波の吸収が増大し強磁性共鳴状態となる。強磁性共鳴状態では常磁 性層にスピン流が注入され常磁性層に逆スピンホール効果による起電力が生じる。常磁性 体両端に配線したポリウレタン導線をナノボルトメーターにつなぐことでこの起電力を測 定できる実験系を構築した。マイクロ波の吸収スペクトルおよび起電力スペクトルを同時 に測定することでスピンポンピングによる逆スピンホール効果の測定を実施した。

2.2.4 X 線磁気円二色性(X-ray magnetic circular dichroism: XMCD) 測定

第4章で述べる実験では、Pt/YIG 接合構造において Pt 層に誘起される磁気モーメントを測定するために XMCD 測定を実施した。本実験は SPring-8 の BL39XU にて実施した。測定は蛍光 X 線吸量法にて Pt の L₃ 吸収端 (11.569keV)付近にて行った。模式図を図 2.4 に示す。



図 2.4 XMCD および ESM 測定の模式図

XMCD 測定

試料に 2T の定常磁場を印加しつつ、円偏光した X 線を 5 度の角度で入射した。入射 X 線のエネルギーを掃引しつつ左右円偏光の切り替えを行い、Pt の蛍光 X 線の測定を実施した。

元素選択的磁化測定

次に Pt の磁化曲線 (M - H 曲線)を得るため、元素選択的磁化 (Element Specific Magnetization: ESM)測定を実施した。入射 X 線のエネルギーを Pt の L₃ 吸収端 (11.569keV)に固定し、外部磁場を掃引しつつ左右円偏光の切り替えを行い、Pt の蛍光 X 線の測定を行った。また、蛍光の検出はシリコンドリフトディテクターを用い、入射 X 線の円偏光およびヘリシティの切り替えはダイヤモンド位相子 (220 反射)を用いた。

第3章

磁性三層構造におけるスピンゼー ベック効果の増大

スピンゼーベック効果は、強磁性体/常磁性体二層構造で生じる熱電変換現象であり、 その熱電変換効率を増大させることは非常に重要な課題である。スピンゼーベック効果の 発見が成されてから、その熱電変換効率を増大を目的とした研究が盛んに行われてきたが [40]-[43]、その熱電変換効率は応用上充分でなく、更なる改善が求められている。

本章では、スピンゼーベック効果の熱電変換効率の改善を目的とした研究の結果を述べ る。本研究では、スピンゼーベック効果の熱電変換効率の改善のため、強磁性体/常磁性 体二層構造の界面に注目し研究を行った。スピンゼーベック効果では、強磁性層から常磁 性金属層に向けてスピン流が注入される訳であるが、そのスピン流の注入効率は界面の状 態に大きく左右される。先行研究では、スピン流の注入効率が強磁性/常磁性界面の結晶 構造に敏感であることが実験的に示されている [43]。更に、Jia らの理論 [44] によると、 スピン流注入効率は界面の磁気モーメントの増大に従って増大するという予見がある(図 3.1)。

そこで本章では、強磁性体/常磁性体二層構造に中間層として強磁性 Fe₇₀Cu₃₀ 薄膜を 挿入することで、界面の磁気モーメントを増大させ、スピンゼーベック効果の熱電変換効 率の改善を目指した。



図 3.1 ミキシングコンダクタンスと界面磁気モーメントの関係(文献 [44] より引用。).

3.1 常磁性金属/強磁性金属/磁性絶縁体におけるスピンゼー ベック効果の増大

スピンゼーベック効果の熱電変換効率を目指して、本研究では、Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG を用いてスピンゼーベック効果の測定を行った。温度勾配によって生成されたスピン流 は、BiYIG 層から Fe₇₀Cu₃₀ を通り Pt 層に注入される。Pt 層ではで逆スピンホール効 果によって電圧に変換され、その変換は

$$\mathbf{E}_{\text{ISHE}} \propto \mathbf{J}_s \times \sigma \tag{3.1}$$

に従う。

また、Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG の三層構造では中間層に強磁性体金属を含むため、強磁性 体で発現する異常ネルンスト効果 [46][47] という熱電効果も生じる。異常ネルンスト効果 は 強磁性体中の温度勾配によって生じた通常のゼーベック電流が異常ホール効果によっ て曲げられる現象である。つまり 、強磁性中間層中の温度勾配によって生じた電圧がス ピンゼーベック効果と同じ対称性で観測されてしまう。その結果、スピンゼーベック効果 と異常ネルンスト効果との分離が物理を議論する際に必要となってくる。応用上を考えれ ば、スピンゼーベック効果と異常ネルンスト効果の両方を用いて出力を大きくすることが 望ましい。しかし、代表的な強磁性体である Fe の異常ネルンスト効果は Pt/YIG 構造に おけるスピンゼーベック効果とは逆の符号で生じるため [45]、スピンゼーベック効果の信 号増大を目指す本研究にはふさわしくない。そこで本研究では Fe₇₀Cu₃₀ を中間層として 用いることとした。後に実験結果を示す様に Fe₇₀Cu₃₀ で生じる異常ネルンスト効果の符号は、Pt/YIG 構造におけるスピンゼーベック効果の符号と同じであり、スピンゼーベック効果信号の増大を目指す点では、Fe₇₀Cu₃₀ を中間層として挿入することが適切である。

3.2 実験設計

本実験の試料は Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG の三層構造であり、まずその作製方法を述べ る。試料は SGGG(111) 基板上に MOD 法にて製膜された膜厚 120 nm の BiYIG を 8×2 mm² にカットし、Fe₇₀Cu₃₀ および Pt をマグネトロンスパッタで製膜した。 それぞれの膜厚は、Fe₇₀Cu₃₀ 層は 0 から 10 nm の間で変化させ、Pt 層は 5nm で固 定した。Fe₇₀Cu₃₀ 層の構成はエネルギー分散型 X 線分光法 (Energy Dispersive Xray Spectroscopy : EDX) にて確認した。また、対照実験用に SGGG(111) 基板に直接 Fe₇₀Cu₃₀ および Pt を製膜した試料も作製した。作製した各試料の抵抗値を図 3.2 に示 す。図 3.2 にあるように、各試料の抵抗値は Fe₇₀Cu₃₀ 層の膜厚に依存せずほぼ一定であ



図 3.2 (a).Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG 試料および、(b)Pt/Fe₇₀Cu₃₀ 試料の電気抵抗値。

り、Fe₇₀Cu₃₀の中間層の存在によって生じる Pt 層の膜厚、表面ラフネス等の変化は小さいと考えられる。



次に、本研究で用いた実験セットアップを図 3.3(a) に示す。

図 3.3 (a)Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG および (b)Pt/Fe₇₀Cu₃₀ 試料の模式図 $\nabla T, H, \mathbf{J}_s$ は それぞれ温度勾配、外部磁場、温度勾配によって生成されるスピン流を示している。ま た、 \mathbf{E}_{ISHE} は逆スピンホール効果によって生じる起電力を示している。

試料に対し、面直方向に温度勾配を印加し、磁場を面内短辺方向に印加する。試料にかけられた温度勾配によってスピン流が Fe₇₀Cu₃₀ 層を通過して Pt 層に注入される。注入されたスピン流は逆スピンホール効果によって電圧に変換される。生成された電圧は、試料面内長辺方向に配線したナノボルトメータで測定される構造となっている。対照実験用に SGGG(111) 基板に直接 Fe₇₀Cu₃₀ および Pt を製膜した試料でも、同様の実験を行った(図 3.3(b))

3.3 Pt/BiYIG におけるスピンゼーベック効果

まず初めに本実験系でスピンゼーベック効果が正常に測定できるか確認するため、 Pt/BiYIG 二層構造においてスピンゼーベック効果を測定した。測定結果図 3.4 に示す。

図 3.4(a) では、Pt/BiYIG 試料に-7.1K の温度差を印加した際の起電力信号を示して いる。磁場の掃引に伴い、起電力はヒステリシスを描き、磁場の反転に伴いこの起電力信 号が反転している。これは、BiYIG 層の磁化過程を反映した起電力であり、式 (3.1) に示 す逆スピンホール効果の対称性と一致している。更に、図 3.4(b) では起電力の大きさは 印加した温度差に比例していることが分かる。以上のことから測定された起電力がスピン ゼーベック効果に由来のものであると確認された。

3.3.1 Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG におけるスピンゼーベック効果

続いて、Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG 三層構造においてスピンゼーベック効果を測定する。 理論的知見によると、界面の磁気モーメントとスピンミキシングコンダクタンス [37]-[39]



図 3.4 (a)Pt/BiYIG 試料における熱起電力信号の磁場依存性。試料上面下面間の 温度差は $\Delta T = -7.1$ K である。(b)Pt/BiYIG 試料における熱起電力信号の温度依 存性。

の間には正の相関があり、界面の磁気モーメントの増大、即ち Fe₇₀Cu₃₀ 層の挿入によっ て BiYIG から Pt へのスピン流注入効率は改善され、スピンゼーベック起電力が増大す るはずである。図 3.5 に Fe₇₀Cu₃₀ 層が 0.2nm の試料の熱起電力の測定結果を示す。図 3.5(a) を見ると、有限の温度勾配を印加した際には、磁場の反転に伴い反転する起電力信 号が測定された。また、温度勾配の方向を反転させると、起電力信号も反転することが 分かる。図 3.5(b) を見ると、Pt/Fe₇₀Cu₃₀(0.2 nm)/BiYIG における熱起電力は印加温 度差に比例することが分かる。続いて、Pt/BiYIG と Pt/Fe₇₀Cu₃₀(0.2 nm)/BiYIG に おける熱起電力の大きさを比較する。試料に印加する温度勾配を $\Delta T = -8.9$ K としたと きの熱起電力の磁場依存性を図 3.5(c) に示す。ここから、Pt/Fe₇₀Cu₃₀(0.2 nm)/BiYIG における熱起電力は Pt/BiYIG で測定された熱起電力よりも増大していることが分かる。 この熱起電力には Fe₇₀Cu₃₀ 層を挿入したことによる異常ネルンスト効果が含まれている 可能性があり、スピンゼーベック効果が増大していると結論付けることはできない。

3.3.2 Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG におけるスピンゼーベック効果の Fe₇₀Cu₃₀ 膜 厚依存性

前節では Fe₇₀Cu₃₀ 層を Pt/BiYIG 界面に挿入することで Pt/BiYIG における熱起電 力が増大することが示された。この熱起電力を最大化するため、Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG で 生じる熱起電力の Fe₇₀Cu₃₀ の膜厚依存性を測定する。また、この熱起電力の増大がス ピンゼーベック効果由来であることを示すため、BiYIG 由来のスピンゼーベック効果 の存在しない Fe₇₀Cu₃₀(d nm) でも同様の測定を実施した。Fe₇₀Cu₃₀(d nm) の膜厚を $(d = 0 \sim 10 \text{ nm})$ の間で変化させ、スピンゼーベック効果の測定を実施した。各試料にお



図 3.5 (a)Pt/Fe₇₀Cu₃₀(0.2 nm)/BiYIG における熱起電力の磁場依存性。(b) 熱起 電力の印加温度差依存性。(c)Pt/BiYIG と Pt/Fe₇₀Cu₃₀(0.2 nm)/BiYIG における 熱起電力の比較。

いて得られた熱起電力を図. 3.6(a) に示す。ここで、各試料間で起電力信号の比較をする ため、起電力は試料に印加した温度差で規格化してある。

図 3.6(a) では、 $Fe_{70}Cu_{30}$ の膜厚を変化させたすべての試料において磁場反転に伴い反転する起電力信号が得られた。また、熱起電力信号は $Fe_{70}Cu_{30}$ (dnm) の膜厚が 0.3 nmで最大値をとり、それ以上の膜厚では減少していくことが見て取れる。これは、BiYIGから Pt 層へ注入されるはずのスピン流が挿入された $Fe_{70}Cu_{30}$ 層で拡散されることに起因する。式(1.16)によると、スピン流は物質特有のスピン拡散長を減衰定数として、膜厚に対して指数関数的に減衰される。Fe のスピン拡散長は数 nm 程度と短く、本実験の $Fe_{70}Cu_{30}$ 層の膜厚と同程度のスケールである。

さて、ここで測定された Pt/Fe₇₀Cu₃₀(d nm)/BiYIG 試料における電圧信号には、す


図 3.6 (a).Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG 試料および(b)Pt/Fe₇₀Cu₃₀ 試料のにおいて測定さ れた熱起電力信号の磁場依存性。熱起電力信号は試料上面下面間に印加した温度差で 規格化した。.

でに述べたように $Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ 層に印加された温度差による異常ネルンスト効果が 含まれている。そこでスピンゼーベック効果による寄与と異常ネルンスト効果による寄与 を分離するため、 $Pt/Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ を SGGG 上に製膜した試料においても同様の測定 を実施した。 $Pt/Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ の試料では BiYIG 層からのスピン注入が存在しない ため、Fe₇₀Cu₃₀(d nm) 層の異常ネルンスト効果を測定可能である。その結果を図 3.6(b) に示す。

異常ネルンスト効果による寄与は、 $Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ 層が $d \leq 1.0nm$ の膜厚では無視で きるほど小さく、d > 1.0nmでは有限の値を取った。また、 $Fe_{70}Cu_{30}$ における異常ネルン スト効果の符号は Pt/YIG 二層構造におけるスピンゼーベック効果の符号と等しいこと が分かる。このような $Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ における異常ネルンスト効果の $Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ 膜厚依存性は、Pt 層と $Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ 層の shunting 効果によって説明される。異常ネ ルンスト効果によって生じる起電力 V_{ANE} が $Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ の膜厚によらず一定であ ると仮定すると、Pt/ $Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ で測定されるトータルの起電圧信号 V は以下の式 で表される。

$$V = \frac{r}{1+r} V_{\rm ANE} \tag{3.2}$$

ここで、

$$r = \frac{\rho_{\rm Pt} d_{\rm FeCu}}{\rho_{\rm FeCu} d_{\rm Pt}} \tag{3.3}$$

であり、 $\rho_{Pt(FeCu)}$ および $d_{Pt(FeCu)}$ は、それぞれ Pt(FeCu) 層の電気抵抗率及び Pt(FeCu)層の膜厚である。つまり、 $Fe_{70}Cu_{30}$ 層の膜厚が薄い際には、Pt の電気伝導が支配的であ り、異常ネルンスト効果の由来の電圧が測定に寄与しないと考えられる。

この結果より $Pt/Fe_{70}Cu_{30}(d nm)/BiYIG で測定された電圧信号は、<math>d \leq 1.0$ nm では $Fe_{70}Cu_{30}(d nm)$ 層からの異常ネルンスト効果の寄与がないため、純粋にスピンゼーベック効果によるものであると結論付けられる。

3.3.3 Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG におけるスピンゼーベック効果の増大

次に、スピンゼーベック効果によって生じる起電力の大きさについて注目する。 Pt/Fe₇₀Cu₃₀(0.3 nm)/BiYIG と Pt/BiYIG におけるスピンゼーベック効果の起電圧 信号の大きさを比較する。図 3.7 に結果を示す。

Pt/Fe₇₀Cu₃₀(0.3 nm)/BiYIG の試料では Pt/BiYIG 試料に比べ、1.7 倍増大している。この信号には異常ネルンスト効果による寄与が含まれていないため、Pt 層に注入されたスピン流の増大によるスピンゼーベック効果の増大、つまり Pt/BiYIG 界面でのスピンミキシングコンダクタンスの増大による効果であると結論づけられる。

また、各 Pt/Fe₇₀Cu₃₀(d nm)/BiYIG および Pt/Fe₇₀Cu₃₀(d nm)試料における熱起電 力信号の Fe₇₀Cu₃₀ 膜厚依存性を図 3.8 に示す。 スピンゼーベック効果が増大する Fe₇₀Cu₃₀ の膜厚は 0.2 および 0.3 nm の場合のみであり、スピンゼーベック効果を増大さ せるには非常に薄い Fe₇₀Cu₃₀ 層を挿入する必要があることが分かる。



図 3.7 (a)Pt/BiYIG 試料および Pt/Fe₇₀Cu₃₀(0.3 nm)/BiYIG 試料において測定 された熱起電力信号の磁場依存性の比較。

界面磁気モーメントを用いたスピンゼーベック効果増大の解析

続いて、図 3.8 で示したスピンゼーベック効果の $Fe_{70}Cu_{30}$ 膜厚依存性について議 論する。 $Pt/Fe_{70}Cu_{30}(0.3 \text{ nm})/BiYIG 三層構造において、起電力は 0.3 \text{ nm でピーク$ $を取り、<math>Fe_{70}Cu_{30}$ 層の膜厚の増大に伴い減少した。これは、 $Fe_{70}Cu_{30}$ 層の挿入による $Pt/BiYIG 界面でのスピンミキシングコンダクタンスの増大と Fe_{70}Cu_{30} 層挿入によるス$ ピン拡散による二つに起因するものであると考えられる。Jia らの理論によると、<math>Fe/Ag界面でのスピンミキシングコンダクタンスは、界面の磁気モーメントの増大に伴い線形に 増大し、Fe を 1 原子層程度堆積した際に一定の値をとることを予見している。またスピ ン拡散を考えると、 $Fe_{70}Cu_{30}$ を挿入すると、 $Fe_{70}Cu_{30}$ 層で BiYIG から注入されたスピ ン流が $Fe_{70}Cu_{30}$ のスピン拡散長の長さスケールで指数関数的に減衰する。これら二つの 要因により、スピンゼーベック効果の信号がある $Fe_{70}Cu_{30}$ 膜厚の膜厚でピークを取り、 その後指数関数的に減衰することが表現される。

次に、Fe₇₀Cu₃₀ 層を挿入することにより、界面の磁気モーメントがどの程度増大するか を考える。BiYIG は 1 単位胞あたり 8 個の BiYIG 分子を含み、格子定数は 1.26 nm で ある。BiYIG では Fe が磁性を担い、1 単位胞中に 24(d) サイトの Fe³⁺ が 24 個、16(a) サイトの Fe³⁺ が 16 個含まれている。その結果、8 × 5 $\mu_{\rm B}$ = 40 $\mu_{\rm B}$ の磁気モーメントを 持つ。これより、磁気モーメントの密度は 20 $\mu_{\rm B}$ / nm³ と得られる。一方で、Fe は室温で BCC 構造を取り、格子定数は 0.286 nm である。Fe 原子 1 個あたりの磁気モーメントを



図 3.8 Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG 試料および Pt/Fe₇₀Cu₃₀ 試料において測定された熱起 電力信号の Fe₇₀Cu₃₀ 膜厚依存性。図中の破線は Pt/BiYIG で測定されたスピンゼー ベック起電力を示す。

2.2 $\mu_{\rm B}$ とすると、単位格子あたり 2 × 2.2 $\mu_{\rm B}$ = 4.4 $\mu_{\rm B}$ の磁気モーメントを持つ。これよ り、磁気モーメントの密度は 54 $\mu_{\rm B}$ / nm³ と得られる。本研究では、Fe₇₀Cu₃₀ を用いて いるが、簡単のため Cu 原子の影響無視し、Fe₇₀Cu₃₀ が単位体積当たり 38 $\mu_{\rm B}$ / nm³ の 磁気モーメントを持つと仮定する。Pt/BiYIG 界面でのスピンミキシングコンダクタンス が、界面の磁気モーメントに単純に比例するとの仮定では、Fe₇₀Cu₃₀ を 1 原子層挿入す ることで、スピンミキシングコンダクタンスは 1.9 倍に増大すると考えらえれる。上記仮 定のもと、スピンゼーベック効果によって生じる起電力の Fe₇₀Cu₃₀ 膜厚依存性をフィッ トした結果が図 3.9 である。

フィッティングパラメータとして Fe₇₀Cu₃₀ のスピン拡散長が 2 nm と求まった。図 3.9 のフィッティングは実験結果を再現できていることから、本モデルに正当性があるこ とがいえる。

3.4 本章のまとめ

本章で得られた結果は以下の3点にまとめられる。

- Pt/Fe₇₀Cu₃₀(0.3 nm)/BiYIG 三層構造を用いることで、スピンゼーベック効果の 起電力を、Pt/BiYIG に比べ 1.7 倍増大させることに成功した。
- Pt/Fe₇₀Cu₃₀(d nm)/BiYIG 試料、Pt/Fe₇₀Cu₃₀(d nm) 試料で測定した熱起電力



図 3.9 Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG にて測定されたスピンゼーベック効果の起電力。

の結果より、このスピンゼーベック効果増大の起源が Pt/BiYIG 界面のスピンミ キシングコンダクタンスの改善にあることを示した。

Pt/Fe₇₀Cu₃₀/BiYIG 三層構造におけるスピンゼーベック効果の起電力のFe₇₀Cu₃₀ 膜厚依存性により、スピンゼーベック効果による起電力はFe₇₀Cu₃₀(d nm)の膜厚が 0.3 nmの際に最大となることを示した。これは、BiYIG 層から Fe₇₀Cu₃₀ 層を通過して Pt 層に注入されるスピン流が、Fe₇₀Cu₃₀ 層で散乱されることによる起電力の減衰と、Fe₇₀Cu₃₀ 層を挿入することによるスピンミキシングコンダクタンス改善の効果の競合によるものである。

第4章

Pt/Al₂O₃/YIG 構造におけるスピン 流現象

2013 年 Du らは Pt/Barrier/YIG の三層構造においてスピンポンピング誘起逆スピン ホール効果の測定を行った [53]。Barrier 層としては Sr₂GaTaO₆(SGTO) 等の非磁性絶 縁体を用いている。その結果、逆スピンホール起電力は barrier 層の膜厚に対して指数関 数的に減衰することを示した。この指数関数的な減衰は、barrier 層の挿入によるトンネ ル効果によって説明され、逆スピンホール起電力の減衰定数は、barrier 層の障壁の高さ によって決定されるというモデルを構築した。

常磁性金属/磁性体二層構造において出現するスピン流を起源とする現象として、スピンゼーベック効果、スピンポンピング、スピンホール磁気抵抗効果等が挙げられる。これら現象は、常磁性金属/磁性体界面においてs - d交換相互作用を介した角運動量の交換を起源とする。本章では、常磁性金属/磁性体界面に障壁として非磁性絶縁体 Al_2O_3 を挿入し、常磁性金属/磁性体界面における角運動量の受け渡しの長さスケールの同定を目指す。試料としてスピンゼーベック効果、スピンポンピング、スピンホール磁気抵抗効果のプロトタイプ素子であるPt/YIG二層構造を用いた。

また、常磁性金属 Pt はストーナー強磁性不安定性に近い物質なため、YIG からの磁 気近接効果によって Pt 層の磁化が誘起されることも考えられる [48]-[52]。誘起された Pt 層の磁化がスピンゼーベック効果、スピンポンピング、スピンホール磁気抵抗効果と いったスピン流が起源される現象に影響を及ぼしている可能性も示唆される。2012 年 Huangr らは Pt/YIG 構造で磁気手効果を測定した結果、Pt が YIG の近接効果によって 磁化し、近接効果誘起の異常ネルンスト効果が磁気抵抗効果に寄与していると主張した [48]。また、同様の原理でスピンゼーベック効果も磁気近接効果誘起の異常ネルンスト効 果による寄与があると主張した。一方で、2013 年に Kikkawa らはストーナー因子の小さ い Au を用いて、Au/YIG でスピンゼーベック効果の測定に成功し、スピンゼーベック効 果に磁気近接効果の影響が小さいことを示した proxi2。本研究では、この結果をふまえ、 元素選択的磁化測定 (ESM) を行うことで、Pt/YIG 二層構造および Pt/Al₂O₃/YIG 三 層構造における Pt の磁化を直接測定した。これら実験により、YIG から Pt への磁気近 接効果による Pt 層での磁化誘起の長さスケールの同定や、スピンゼーベック効果、スピ ンポンピング、スピンホール磁気抵抗効果といった現象と磁気近接効果との関連を調べる ことを目指した。

4.1 ALD 法による Al₂O₃ 試料の評価

Pt/YIG 二層構造の界面に非磁性絶縁体 Al_2O_3 を挿入した試料を作製する。Pt/YIG 界面でのスピン角運動量の交換の長さスケールはナノメートルスケールと非常に短いと予 想される。一方で、Pt 層と YIG 層を完全に分離するため (YIG 層を完全に Al_2O_3 で覆 うため)、 Al_2O_3 層はナノメートルスケールで均一な膜質が要求される。これらの要求を 満たす様な均一かつ膜厚制御性のよい Al_2O_3 の製膜方法として、本研究では ALD 法を 選択した。

TEM による試料の観察

まず初めに $Pt/Al_2O_3/YIG$ 試料において ALD 法にて製膜した Al_2O_3 層の評価を 行った。また、 Al_2O_3 層上の Pt はマグネトロンスパッタで 5 nm 製膜した。各 ALD サ イクル数における $Pt/Al_2O_3/YIG$ 試料の界面付近の断面 TEM 像を図 4.1、図 4.2 に示 す。これら断面 TEM 像により、 Al_2O_3 層の膜厚はナノメートル以下のオーダーで制御さ れており、一番薄い ALD1 サイクルの場合でも穴のない均一な膜質であることが分かる。



図 4.1 Pt/Al₂O₃/YIG における界面の断面 TEM 像。(a)Pt/YIG。(b)Al₂O₃1 サ イクル。(c)Al₂O₃2 サイクル。



図 4.2 Pt/Al₂O₃/YIG における界面の断面 TEM 像。(a)Al₂O₃3 サイクル。 (b)Al₂O₃4 サイクル。(c)Al₂O₃10 サイクル。

続いて、これら断面 TEM 像をもとに ALD で製膜された Al_2O_3 層の各 ALD サイクル数における膜厚を評価した。ALD サイクル数と Al_2O_3 層の膜厚の関係を図 4.3 に示す。



図 4.3 ALD サイクル数と Al₂O₃ の膜厚の関係。

4.2 $Pt/Al_2O_3/YIG$ におけるスピンゼーベック効果

Pt/YIG 界面付近の断面 TEM 像によって、各試料の Al_2O_3 層がピンホールフリーで あることや Al_2O_3 層の膜厚が分かったところで、 $Pt/Al_2O_3/YIG$ 構造において縦型スピ ンゼーベック効果の測定を実施した。実験系の模式図を図 4.4(a) に示す。試料は片側(低 温側)の温度を室温(300 K)に固定し、ペルチェ素子を用いてもう片側を 300+20 K に 固定し、試料の上面下面の間に 20K の温度差を付けた。磁場を試料の短辺方向に掃引し つつ、試料の長辺方向に接続したナノボルトメータで起電力を測定した。実験セットアッ プを図 4.4 に示す。



図 4.4 (a)Pt/Al₂O₃/YIG 三層構造における LSSE 測定の模式図。

次に Pt/YIG、Pt/Al₂O₃(d nm)/YIG (d =0.64, 0.95, 1.26, 1.37 nm)におけるスピンゼーベック効果の測定結果を図 4.5 に示す。

全ての Al_2O_3 の膜厚の試料において、磁場の反転に対応して起電力信号が反転する、 LSSE と同様の信号が得られた。また、起電力信号は Pt/YIG に挿入された Al_2O_3 の 膜厚に対応して減少していくことが見て取れる。これは Pt 電子トンネル効果によって、 YIG と相互作用できる Pt 電子の数が Al_2O_3 の膜厚とともに指数関数的に減衰すること に起因する [53]。



図 4.5 (a)-(d)Pt/Al₂O₃/YIG 三層構造における LSSE 起電力の磁場依存性。Al₂O₃の膜厚はそれぞれ (a) 0 nm。(b)0.64 nm。(c) 0.95 nm。(d) 1.26 nm。(e)1.37 nm。

 Al_2O_3 層の膜厚と LSSE による起電力信号の大きさの関係をプロットし、指数関数で フィッティングしたものが図 4.6 である。

起電力信号は $V = V_0 e^{-d/\lambda}$ でフィッティングでき、 λ は Al_2O_3 層を挿入した際の減衰 長となる。フィッティング結果より、スピンゼーベック効果の Al_2O_3 を挿入した際の減 衰長は 0.3 nm となることが分かる。



図 4.6 $Pt/Al_2O_3/YIG$ 構造における LSSE 起電力の Al_2O_3 の膜厚依存性。挿入図 は y 軸を指数表示とした。

4.3 Pt/Al₂O₃/YIG におけるスピンポンピング誘起逆スピン ホール効果

始めに Pt/YIG 二層構造において Pt/Al₂O₃/YIG におけるスピンポンピング誘起逆ス ピンホール効果の測定を行う。測定は電子スピン共鳴装置を利用した。試料に 9.44GHz、 50mW のマイクロ波を照射し、試料面内短辺方向に磁場を掃引した。磁場強度が強磁性 共鳴条件

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_{\rm FMR} + 4\pi M_{\rm s})H_{\rm FMR} \tag{4.1}$$

を満たすとき、マイクロ波吸収が起き、YIG 層で磁化の歳差運動が生じる。この際、スピン流が Pt 層に注入され、逆スピンホール効果により起電力信号に変換される。この起電力を試料長辺方向に接続した電圧計で検出する。実験セットアップを図 4.7 に示す。

測定された強磁性共鳴スペクトルおよび起電力スペクトルを図 4.8 に示す。

図 4.8(a)の強磁性共鳴スペクトルを見ると、270mT 付近でマイクロ波の吸収が生じ、 強磁性共鳴が誘起されている。図 4.8(b)では、強磁性共鳴状態の時に起電力信号が生じ



図 4.7 Pt/Al₂O₃/YIG 三層構造におけるスピンポンピング誘起逆スピンホール効果の実験セットアップ。

ている。強磁性共鳴時のマイクロ波の吸収強度は、

$$I(H) = \frac{h^2 \gamma M_{\rm s}}{4} \left(\frac{H_{\rm FMR} + 4\pi M_{\rm s}}{(H_{\rm FMR} + 2\pi M_{\rm s})} \right) \frac{\alpha (\omega/\gamma)^2}{(H - H_{\rm FMR})^2 + (\alpha \omega/\gamma)^2}$$
(4.2)

とローレンツ関数で書け、逆スピンホール効果による起電力はマイクロ波吸収強度に比例 するため、起電力信号もローレンツ関数となる。また、磁場方向を反転させると、起電力 信号も反転する。これは逆スピンホール効果の対称性と一致する。

続いて、各 Pt/Al₂O₃(d nm)/YIG 試料で測定された逆スピンホール起電力の結果を図 4.9 に示す。

測定された電圧信号はローレンツ関数でフィットしている。Pt/Al₂O₃(d nm)/YIG 試料のスピンゼーベック効果の測定結果と同様に、Al₂O₃層の膜厚の増大に伴い、スピンポンピング誘起逆スピンホール効果の電圧も減少している。

 $Pt/Al_2O_3/YIG3$ 構造におけるスピンポンピング誘起逆スピンホール効果の起電力の Al_2O_3 の膜厚依存性をプロットしたものを図 4.10 に示す。

スピンゼーベック効果の時と同様に、スピンポンピング誘起逆スピンホール効果の起電 力の強度の Al₂O₃ 挿入による減衰定数をフィッティングにより求めると、減衰定数は 0.2 nm となった。



図 4.8 (a)Pt/YIG における強磁性共鳴スペクトル。(b)Pt/YIG における起電力スペクトル。



図 4.9 Pt/Al₂O₃/YIG3 構造におけるスピンポンピング誘起逆スピンホール効果の 起電力の磁場依存性。Al₂O₃ の膜厚はそれぞれ (a)0.64 nm。(b) 0.95 nm。(c) 1.26 nm。(d)1.37 nm。



図 4.10 $Pt/Al_2O_3/YIG3$ 構造におけるスピンポンピング誘起逆スピンホール効果の 起電力の Al_2O_3 の膜厚依存性。挿入図は y 軸を指数表示とした。

4.4 $Pt/Al_2O_3/YIG$ におけるスピンホール磁気抵抗効果

 8×2 mm に切り出した GGG(111) 基板に YIG をマグネトロンスパッタで作製した後、 ALD 法で Al₂O₃ を作製した。その上に図 2.1 に示す形状に膜厚 5 nm の Pt を製膜した 試料を用いて磁気抵抗測定を行う。実験セットアップを図 4.11 に示す。

試料長辺方向の抵抗を測定しつつ、試料短辺方向に磁場を印加し掃引する。この実験 セットアップでは、スピンホール効果および逆スピンホール効果により、磁場が印加され ている時は抵抗値が減少し、ゼロ磁場で抵抗値が高くなるセットアップである。

この系で測定した磁気抵抗効果の結果を図 4.12 に示す。 $Pt/YIG(Al_2O_3)$ 層がない場合)では、|H| < 20Oeの磁場領域で明確な抵抗値の変化が測定された。YIG 層は絶縁体であり電流は流れないため、この抵抗値の変化は Pt 層の抵抗値が変化によるものである。更に、この電気抵抗値の変化は YIG 層の磁化過程とほぼ一致し、この磁気抵抗効果が YIG によって誘起されていること、即ち、スピンホール磁気抵抗効果が測定されたことを示している。Pt/YIG二層構造で発現したスピンホール磁気抵抗効果の磁気抵抗率は 0.0025% 程度と微小な磁気抵抗効果である。同様に、 Al_2O_3 を挿入した試料 $Pt/Al_2O_3(0.64, 0.95 \text{ nm})/YIG$ においても Pt/YIG構造と同様の磁場強度で生じる磁気





図 4.11 スピンホール磁気抵抗効果の実験系。電流に垂直に磁場を印加した際に電気 抵抗が小さくなる。

抵抗効果が測定された。



図 4.12 Pt/Al₂O₃/YIG3 構造におけるスピンホール磁気抵抗効果。

次に、挿入した Al₂O₃ 層の膜厚とスピンホール磁気抵抗効果の磁気抵抗率との関係を 図 4.13 に示す。磁気抵抗率は Al₂O₃ 層の膜厚が増えるにつれて指数関数的に減衰してい る。スピンホール磁気抵抗効果の信号の Al₂O₃ 挿入による減衰定数をフィッティングし た結果から求めると 0.3 nm となった。



図 4.13 $Pt/Al_2O_3/YIG3$ 構造におけるスピンホール磁気抵抗効果の Al_2O_3 の膜厚 依存性。挿入図は y 軸を指数表示とした。

4.5 Al₂O₃ 挿入による減衰定数のまとめ

ここまで、Pt/YIG 構造において Al₂O₃ を挿入した際のスピンゼーベック効果、スピンポンピング誘起逆スピンホール効果、スピンホール磁気抵抗効果の減衰定数を測定してきた。以下の表にその結果をまとめる。

スピンゼーベック効果	スピンポンピング	スピンホール磁気抵抗効果
0.3 nm	0.2 nm	$0.3 \ \mathrm{nm}$

3つの現象で測定された減衰定数は、同等(オーダーが等しい)の大きさで測定された。

この結果を Du らの論文と同様にトンネル効果を用いたモデルにより説明する。図 4.14 に模式図を示す。有限のポテンシャル U を考えた際に、波動関数の染み出し長は、

$$\lambda = \sqrt{\frac{\hbar^2}{2m^*U}} \tag{4.3}$$

で与えられる。文献値より Al_2O_3 のバンドギャップは 8.8 eV 程度であり、Pt のフェル ミ面が Al_2O_3 のバンドギャップの中央にあると仮定すると、Pt、 Al_2O_3 界面での障壁高 さは U = 4.4eV となる。また、Pt 電子の有効質量として $m^*/m = 2.1$ とする。この結果



図 4.14 $Pt/Al_2O_3/YIG 三層構造における波動関数の染み出し$

を用いて波動関数の染み出し長を計算すると、

$$\lambda \approx 0.1 \text{ nm}$$
 (4.4)

であると求められる。この結果は、実験によって求められた起電力信号の減衰長とほぼ一 致しており、起電力信号の減衰がトンネル効果によるものであるとの知見を得られた。

4.6 Pt/Al₂O₃/YIG における Pt 層への磁気近接効果

Ptはstorner強磁性不安定状態に近い物質であり、Co等の強磁性体を接合させることで、磁気近接効果によって Pt 層に磁化が誘起されることが知られている [54]-[57]。 本研究では Pt にフェリ磁性絶縁体である YIG を接合しているため、磁気近接効果に よって Pt 層に磁化が誘起されている可能性がある。2012 年に Geprägs らは Pt (2-10 nm)/YIG の二層構造において、XMCD 測定を行うことで、YIG の磁気近接効果によ る Pt 層への磁化の誘起が Pt/Fe の二層構造に比べ非常に小さいことを示した。一方で、 2013 年に Lu らは Pt の膜厚を 1.5 nm とした Pt/YIG の二層構造において、XMCD 測 定を行うことで、Pt に有意な磁気モーメントが誘起されていることを示し、磁気近接効果 とスピンホール磁気抵抗効果の関係性を議論した。この結果に対し、Geprägs らは、Pt(1.6 nm)/YIG の試料において XMCD 測定を行い、Pt 層に誘起される磁化は Lu らの主 張に比べ非常に小さく、Pt 層の磁化とスピンホール磁気抵抗効果の起源ではないと主張 している。このように、Pt/YIG 二層構造において Pt に磁気近接効果によって誘起され る磁化の大きさについて議論があり、前節までに述べたスピンゼーベック効果、スピンポ ンピング誘起逆スピンホール効果、スピンホール磁気抵抗効果といった現象に Pt 層に誘 起された磁化が寄与しているかどうかを調べることは重要な課題となっている。



図 4.15 Pt/YIG 試料の XMCD 測定結果。(a)Geprägs らによる Pt(1.6 nm)/YIG 試料の結果 [52]。(b)Lu らによる Pt(1.5 nm)/YIG 試料の結果 [51]。

本節では、Pt/Al₂O₃/YIG において XMCD および ESM 測定を行うことで、YIG

層が Pt 層に誘起する磁化の観測を行う。中間層として挿入した Al₂O₃ 層の膜厚を厚く することで誘起れる磁化の大きさも減少すると考えられる。この Al₂O₃ 層を挿入するこ とによる Pt 層の磁化の減衰と、Al₂O₃ 層を挿入することによるスピンゼーベック効果、 スピンポンピング誘起逆スピンホール効果、スピンホール磁気抵抗効果の信号の減衰具合 を比較し、両者の分離を目指した。

4.6.1 Pt/Al₂O₃/YIG 試料の作製・評価

試料として、フラックス法を用いて作製したバルク YIG を用いた。YIG を 4×4 mm² に切り出した後、YIG の平坦性を確保するために、サンドペーパーおよびアルミナ粒子 を用いて研磨を行った。アセトン、メタノール、純水で洗浄を行った後、ピラニア溶液で エッチングすることで、クリーンで平坦性の高い YIG を得た。続いて、 YIG 上に ALD を用いて Al₂O₃ を製膜した後、Pt をマグネトロンスパッタで 0.5nm 製膜し、XMCD・ ESM 測定用試料とした。また、比較用試料として非磁性 YAG (Y₃Al₅O₁₂)基板上に Pt を 0.5 nm 製膜した試料を作製した。

4.6.2 Pt/Al₂O₃/YIG 試料を用いた XAS 測定

作製した $Pt/Al_2O_3/YIG$ 試料 Pt/YAG 試料は、Pt 層が 0.5 nm と非常に薄く、Pt 層 からの蛍光 X 線は非常に微弱である。そのため、X 線を照射した際に基板から生じる弾 性散乱や、不純物等から生じる蛍光 X 線の影響ををできる限り小さくする必要がある。 ここでは、非常に高いエネルギー分解能を持つシリコンドリフト検出器を用い、検出器前 に Au 泊および Al 泊をフィルタとして設置することで Pt の蛍光 X 線エネルギー以外の 蛍光 X 線をできる限りカットし、非常に微弱な Pt の蛍光 X 線を高精度で観測すること に成功した。各試料において、Pt の L_3 エッジ付近のエネルギー(11.569 keV) の X 線を 照射際の吸収を測定した結果を図 4.16 に示す。測定結果は 11.61 keV の X 線を入射した 際の検出数を 1 と規格化した。Pt の L_3 吸収端は Pt の $2p_{3/2}$ から 5d バンドへの双極子 遷移による X 線の吸収を観測している。

Pt の L₃ エッジのエネルギー (11.569 keV) の X 線を入射した際に、X 線の吸収が急 峻に増大している。また、入射 X 線のエネルギーを低くしていくと、X 線の吸収は急激 に減少する。さらに、各 Pt/Al₂O₃(x nm)/YIG 試料や Pt/YAG の XAS の形状はほぼ 一致しており、各試料間の Pt の膜質も同程度であると示唆される。この結果から、本実 験系では Pt の蛍光を確実に測定できていることが分かり、Pt 層に誘起された磁化を測定 する準備が整った。



図 4.16 Pt/Al₂O₃(x nm)/YIG および YAG 試料における X 線吸収分光測定結果。

4.6.3 Pt/Al₂O₃/YIG 試料を用いた ESM 測定

次に、ESM 測定によって Pt の磁化曲線を測定する。11.569 keV の X 線を右円偏光と 左円偏光と切り替えつつ磁場を掃引した。Pt が磁化していれば、右円偏光と左円偏光の X 線を入射した際に生じる P t の蛍光 X 線強度に差が生じるはずである。Al₂O₃ の各膜 厚の試料において ESM 測定を行った結果を図 4.17 に示す。ここでは、磁気近接効果に よって Pt 層に誘起された強磁性的な磁化の振る舞いに着目するため、各 Pt/Al₂O₃/YIG 試料における磁化曲線は、Pt フィルムを用いて測定した P t のパウリ常磁性成分を引い てある。

測定の結果、全ての Pt/Al₂O₃/YIG 試料において Pt の磁化曲線は強磁性的な振る舞 いを示した。また、Pt/YAG で測定された Pt の磁化曲線は、Pt フィルムで測定したパ ウリ常磁性の磁化曲線とほぼ一致している。非磁性帯 YAG 上の P t は常磁性的な振る 舞いであるので、Pt/Al₂O₃/YIG で測定された Pt の強磁性的な振る舞いは、接合された YIG に磁気近接効果によって誘起されたものであると結論付けられる。

続いて、各試料において Pt に誘起された磁化の大きさを比較する。図 4.18 に $Pt/Al_2O_3/YIG$ 試料の Al_2O_3 層の膜厚と誘起された強磁性的な磁化の大きさの関係 を示す。

 Al_2O_3 の膜厚が増大するにつれ、Pt に誘起された強磁性的な磁化は指数関数的に減衰 していることが分かる。磁化の大きさが 1/e になる Al_2O_3 の膜厚をフィッティングした 関数から計算すると 4 ± 1 nm となった。磁気近接効果は極短い距離において生じる効果 であり、このような大きな減衰定数を持つことは考えにくい。 $Pt/Al_2O_3/YIG$ 試料が大 きな減衰定数を持った要因として、

- Pt 層に存在する微量の磁性不純物による影響。(不純物の周りに磁気モーメントが 誘起される)
- Pt の微粒子化によって磁気モーメントが誘起。
- 長距離の相互作用が存在し、今回測定された長距離の減衰定数が本質的である可能
 性。

 \rightarrow 磁気近接効果の大きな Pt/Co 等の金属複合構造に Al_2O_3 を挿入して、高精度 精度で XMCD 測定を行うことで確認可能である。

等が挙げられるが、本研究ではこれらを結論付けることはできない。

4.7 磁気近接効果とスピン流起源現象の比較

本章では、スピンゼーベック効果、スピンポンピングおよびスピンホール磁気抵抗効 果を Pt/Al₂O₃(x nm)/YIG 三層構造を用いて測定した。いずれの場合も、出力または 磁気低抵抗比は Al₂O₃ の膜厚の増大とともに指数関数的に減衰した。ESM の結果から Pt/Al₂O₃(x nm)/YIG 三層構造で、Pt に誘起される強磁性的な磁化も Al₂O₃ の膜厚の 増大とともに指数関数的に減衰した。しかし、両者には減衰の際の長さスケールに大きな 差があることが分かった。これにより、スピンゼーベック効果、スピンポンピングおよび スピンホール磁気抵抗効果といった現象の起源は、強磁性近接効果によって Pt に誘起さ れる磁化ではないことが明らかになった。Geprägs らや Lu らが議論していた磁気近接効 果がスピンゼーベック効果等のスピン流誘起現象の起源であるかどうかという議論に回答 を与えた。

4.8 本章のまとめ

本章で得られた結果は以下の3点にまとめられる。

Pt/Al₂O₃(x nm)/YIG 三層構造において、スピンゼーベック効果、スピンポンピングおよびスピンホール磁気抵抗効果の測定を行い、Al₂O₃層の膜厚の増大に伴い、それぞれの信号が指数関数的に減衰することを示した。

- Pt/Al₂O₃(x nm)/YIG 三層構造では Pt 層が磁化していることを示した。
- Al₂O₃ 層を挿入した際の信号の減衰定数の大きな乖離により、スピンゼーベック効果、スピンポンピングおよびスピンホール磁気抵抗効果の起源が、磁気近接効果による Pt に誘起される磁性でないことを示した。



図 4.17 (a)-(d)Pt/Al₂O₃(x nm)/YIG 試料における Pt の磁化曲線。実線は YIG の 磁化曲線を用いたフィッティング結果。(e)YAG 試料における Pt の磁化曲線。破線は Pt フィルムで測定したパウリ常磁性による磁化曲線。



図 4.18 $Pt/Al_2O_3/YIG$ における Pt の飽和磁化の Al_2O_3 膜厚依存性

第5章

結論

本稿では、従来調べられていた常磁性金属/磁性絶縁体二層膜構造でに極薄の中間層 を挿入し、三層構造に拡張することで常磁性金属/磁性絶縁体界面で生じるスピン交換相 互作用の知見を得ることことを目的とした。本研究で得られた主な結果は以下の2点に集 約される。

 スピンゼーベック素子である Pt/BiYIG 二層構造に中間層として極薄い Fe₇₀Cu₃₀ を挿入することで、スピンゼーベック効果の信号を 1.7 倍まで増大させることに成 功した。この時、Fe₇₀Cu₃₀ 層は自身が電流あるいはスピン流生成源として働いてい るわけではなく、BiYIG から Pt 層の注入されるスピン流の注入効率を改善する役 割を果たしていることを Fe₇₀Cu₃₀ 層の膜厚の起電力依存性、Pt/Fe₇₀Cu₃₀/GGG 試料による熱起電力測定の対照実験により示した。

熱起電力の Fe₇₀Cu₃₀ 層の膜厚依存性は、界面の磁気モーメントの増大と Fe₇₀Cu₃₀ 層のスピン拡散長を用いたモデルにより説明され、このスピン流注 入効率の改善は、Fe₇₀Cu₃₀ 層の膜厚挿入による界面磁気モーメントの増大による ものであると結論付けた。

 Pt/YIG 二層構造に中間層として Al₂O₃ 層を挿入した Pt/Al₂O₃(x nm)/YIG 三 層構造においてスピンゼーベック効果、スピンポンピング、スピンホール磁気抵抗 効果を測定した結果、それぞれの信号が Al₂O₃ 層の膜厚の増大につれて指数関数 的に減衰することを示した。この指数関数的な減衰は、Al₂O₃ 層挿入によるトンネ ル効果を用いたモデルによって説明されることを示した。

また、MCD 測定を実施した所、YIG 層は磁気近接効果によって Pt に磁化を誘 起していることが分かった。Pt に誘起される磁化は Al₂O₃ 層の膜厚の増大につれ て指数関数的に減衰した。この減衰の長さスケールはスピンゼーベック効果、スピ ンポンピング、スピンホール磁気抵抗効果で測定された信号の減衰の長さスケール とは大きく異なり、Pt 層に誘起された磁化はこれらの現象の発現に本質的な役割 を果たさないことを示した。

本論文により明らかになったスピン界面交換相互作用に関する知見は、スピンゼーベック効果、スピンポンピング、スピンホール磁気抵抗効果といった今後更なる発展が期待されるスピンロトニクスの基幹技術の本質的な理解を促進させることが期待される。

今後の展望

3章で示した強磁性極薄膜の挿入によるスピンゼーベック効果の増大手法は、試料の 多層膜化等のその他スピンゼーベック起電力の増大と共存することが可能であると考えられ、スピンゼーベック効果の応用に向けた研究に利用されることが期待される。

4 章で示した Al₂O₃ 層挿入による XMCD を用いた磁気近接効果の測定は、信号が小 さく減衰は定量的な評価が困難であった。そのため、大きな磁気近接効果が報告されてい る Pt/Co 等の金属二層構造を用いて、Al₂O₃ 層挿入による磁気近接効果の減数を定量的 に評価する必要がある。

参考文献

- [1] I. Zutic, J. Fabian, and S. Das Sarma, Rev. Mod. Phys. 76, 323 (2004).
- [2] S. Maekawa (Ed.) Concepts in Spin Electronics (Oxford University Press, 2006).
- [3] S. Maekawa (Ed.) Spin Current (Oxford University Press, 2012).
- [4] 齊藤英治,村上修一,スピン流とトポロジカル絶縁体 (共立出版, 2014).
- [5] A. Azevedo, L. H. Vilela Leao, R. L. Rodriguez-Suarez, A. B. Oliveira, and S. M. Rezende, J. Appl. Phys. 97, 10C715 (2005).
- [6] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara, Appl. Phys. Lett. 88, 182509 (2006).
- [7] S. O. Valenzuela and M. Tinkham, Nature 442, 176 (2006).
- [8] M. V. Costache, M. Sladkov, S. M. Watts, C. H. van der Wal, and B. J. van Wees, Phys. Rev. Lett. 97, 216603 (2006).
- [9] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa, Phys. Rev. Lett. 98, 156601 (2007).
- [10] R. H. Silsbee, Phys. Rev. B **19**, 4382 (1979).
- [11] S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki, Phys. Rev. B 66, 104413 (2002).
- [12] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara, Appl. Phys. Lett. 88, 182509 (2006).
- [13] K. Ando, Y. Kajiwara, S. Takahashi, S. Maekawa, K. Takemoto, M. Takatsu, and E. Saitoh, Phys. Rev. B 78, 014413 (2008).
- [14] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nature 455, 778 (2008).
- [15] K. Uchida, T. Ota, K. Harii, K. Ando, H. Nakayama, and E. Saitoh, J. Appl. Phys. 107, 09A951 (2010).
- [16] C. M. Jaworski, J. Yang, S. Mack, D. D. Awschalom, J. P. Heremans, and R. C. Myers, Nat. Mater. 9 898 (2010).
- [17] S. Bosu, Y. Sakuraba, K. Uchida, K. Saito, T. Ota, E. Saitoh, and K. Takanashi,

Phys. Rev. B 83, 224401 (2011).

- [18] J. Xiao, G. E. W. Bauer, K. Uchida, E. Saitoh, and S. Maekawa, Phys. Rev. B 81, 214418 (2010).
- [19] K. Uchida, J. Xiao, H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, J. Ieda, T. Ota, Y. Kajiwara, H. Umezawa, H. Kawai, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nat. Mater. 9, 894 (2010).
- [20] C. M. Jaworski, J. Yang, S. Mack, D. D. Awschalom, J. P. Heremans, and R. C. Myers, Nat. Mater. 9, 898 (2010).
- [21] K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, and E. Saitoh, Appl. Phys. Lett. 97, 172505 (2010).
- [22] H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, and S. Maekawa, Phys. Rev. B 83, 094410 (2011).
- [23] C. M. Jaworski, J. Yang, S. Mack, D. D. Awschalom, R. C. Myers, and J. P. Heremans, Phys. Rev. Lett. 106, 186601 (2011).
- [24] A. Kirihara, K. Uchida, Y. Kajiwara, M. Ishida, Y. Nakamura, T. Manako, E. Saitoh, and S. Yorozu, Nat. Mater. 11, 686 (2012).
- [25] T. Kikkawa, K. Uchida, Y. Shiomi, Z. Qiu, D. Hou, D. Tian, H. Nakayama, X.-F. Jin, and E. Saitoh, Phys. Rev. Lett. 110, 067207 (2013).
- [26] D. Meier, T. Kuschel, L. Shen, A. Gupta, T. Kikkawa, K. Uchida, E. Saitoh, J.-M. Schmalhorst, and G. Reiss, Phys. Rev. B 87, 054421 (2013).
- [27] R. Ramos, T. Kikkawa, K. Uchida, H. Adachi, I. Lucas, M. H. Aguirre, P. Algarabel, L. Morellon, S. Maekawa, E. Saitoh, and M. R. Ibarra, Appl. Phys. Lett. 102, 072413 (2013).
- [28] S. Hoffman, K. Sato, and Y. Tserkovnyak, Phys. Rev. B 88, 064408 (2013).
- [29] H. Nakayama, M. Althammer, Y.-T. Chen, K. Uchida, Y. Kajiwara, D. Kikuchi, T. Ohtani, S. Geprags, M. Opel, S. Takahashi, R. Gross, G. E. W. Bauer, S. T. B. Goennenwein, and E. Saitoh, Phys. Rev. Lett. 110, 206601 (2013).
- [30] Y.-T. Chen, S. Takahashi, H. Nakayama, M. Althammer, S. T. B. Goennenwein,E. Saitoh, and G. E. W. Bauer, Phys. Rev. B 87, 144411 (2013).
- [31] N. Vlietstra, J. Shan, V. Castel, B. J. van Wees, and J. Ben Youssef, Phys. Rev. B 87, 184421 (2013).
- [32] T. Valet and A. Fert, Phys. Rev. B 48, 7099 (1993).
- [33] M.I. Dyakonov and V.I. Perel, Phys. Lett. A 35, 459 (1971).
- [34] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, Science 306, 1910 (2004).

- [35] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, Phys. Rev. Lett., 94 047204 (2005).
- [36] J. C. Slonczewski, J. Magn. Magn. Mater. **159**, L1 (1996).
- [37] A. Brataas, Yu. V. Nazarov, and G. E. W. Bauer, Phys. Rev. Lett. 84, 2481 (2000).
- [38] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, G. E. W. Bauer, and B. I. Halperin, Rev. Mod. Phys. 77, 1375 (2005).
- [39] M. Weiler, M. Althammer, M. Schreier, J. Lotze, M. Pernpeintner, S. Meyer, H. Huebl, R. Gross, A. Kamra, J. Xiao, Y.-T. Chen, H. Jiao, G. E. W. Bauer, and S. T. B. Goennenwein, Phys. Rev. Lett. 111, 176601 (2013).
- [40] K. Uchida, T. Nonaka, T. Yoshino, T. Kikkawa, D. Kikuchi, and E. Saitoh, Appl. Phys. Express 5, 093001 (2012).
- [41] K.Uchida, T. Nonaka, T. Kikkawa, Y. Kajiwara, and E. Saitoh, Phys. Rev. B 87, 104412 (2013).
- [42] M. B. Jungfleisch, V. Lauer, R. Neb, A. V. Chumak, and B. Hillebrands, Appl. Phys. Lett. 103, 022411 (2013).
- [43] Z. Qiu, K. Ando, K. Uchida, Y. Kajiwara, R. Takahashi, H. Nakayama, T. An, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, Appl. Phys. Lett. 103, 092404 (2013).
- [44] X. Jia, K. Liu, K. Xia, and G. E. W. Bauer, Europhys. Lett. 96, 17005 (2011).
- [45] K. Uchida, T. Kikkawa, T. Seki, T. Oyake, J. Shiomi, Z. Qiu, K. Takanashi, and E. Saitoh, Phys. Rev. B 92, 094414 (2015).
- [46] W. Nernst, Ann. Phys. (Leipzig) 267, 760 (1887).
- [47] M. Mizuguchi, S. Ohata, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, Appl. Phys. Express 5, 093002 (2012).
- [48] S. Y. Huang, X. Fan, D. Qu, Y. P. Chen, W. G. Wang, J. Wu, T. Y. Chen, J. Q. Xiao, and C. L. Chien, Phys. Rev. Lett. 109, 107204 (2012).
- [49] S. Geprags, S. Meyer, S. Altmannshofer, M. Opel, F. Wihelm, A. Rogalev, R. Gross, and S.?T.?B. Goennenwein, Appl. Phys. Lett. 101, 262407 (2012).
- [50] T. Kikkawa, K. Uchida, Y. Shiomi, Z. Qiu, D. Hou, D. Tian, H. Nakayama, X.-F. Jin, and E. Saitoh, Phys. Rev. Lett. 110, 067207 (2013).
- [51] Y. M. Lu, Y. Choi, C. M. Ortega, X. M. Cheng, J. W.Cai, S. Y. Huang, L. Sun, and C. L. Chien, Phys. Rev. Lett. 110, 147207 (2013).
- [52] S. Geprags, S. T. B. Goennenwein, M. Schneider, F. Wilhelm, K. Ollefs, A. Rogalev, M. Opel, and R. Gross, arXiv:1307.4869v1 (2013).
- [53] C. H. Du, H. L. Wang, Y. Pu, T. L. Meyer, P. M. Woodward, F.Y. Yang, and P.

C. Hammel, Phys. Rev. Lett. 111, 247202 (2013).

- [54] H. Maruyama, F. Matsuoka, K. Kobayashi, and H. Yamazaki, J.Magn. Magn. Mater. 140, 43 (1995).
- [55] W. Grange, M. Maret, J.-P Kappler, J. Vogel, A. Fontaine, F. Petroff, G. Krill, A. Rogalev, J. Goulon, M. Finazzi, and N. B. Brookes, Phys. Rev. B 58, 6298 (1998).
- [56] W. Grange, I. Galanakis, M. Alouani, M. Maret, J. P. Kappler, and A. Rogalev, Phys. Rev. B 62, 1157 (2000).
- [57] M. Suzuki, H. Muraoka, Y. Inaba, H. Miyagawa, N. Kawamura, T. Shimatsu, H. Maruyama, N. Ishimatsu, Y. Isohama, and Y. Sonobe, Phys. Rev. B 72, 054430 (2005).
- [58] G. Y. Guo, Q. Niu, and N. Nagaosa, Phys. Rev. B 89, 214406 (2014).
- [59] B. F. Miao, S. Y. Huang, D. Qu, and C. L. Chien, Phys. Rev. Lett. 111, 066602 (2013).
- [60] T. Kikkawa, K. Uchida, S. Daimon, Y. Shiomi, H. Adachi, Z. Qiu, D. Hou, X.-F. Jin, S. Maekawa, and E. Saitoh, Phys. Rev. B 88, 214403 (2013).
- [61] A. Azevedo, O. Alves Santos, G. A. Fonseca Guerra, R. O. Cunha, R. Rodriguez-Suarez, and S. M. Rezende, Appl. Phys. Lett. 104, 052402 (2014).
- [62] K. Uchida, M. Ishida, T. Kikkawa, A. Kirihara, T. Murakami, and E. Saitoh, J. Phys.: Condens. Matter 26, 343202 (2014).
- [63] H. Nakayama, K. Ando, K. Harii, T. Yoshino, R. Takahashi, Y. Kajiwara, K. Uchida, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, Phys. Rev. B 85, 144408 (2012).
- [64] K. Uchida, T. Nonaka, T. Ota, and E. Saitoh, Appl. Phys. Lett. 97, 262504 (2010).
- [65] D. Meier, T. Kuschel, L. Shen, A. Gupta, T. Kikkawa, K. Uchida, E. Saitoh, J. -M. Schmalhorst, and G. Reiss, Phys. Rev. B 87, 054421 (2013).
謝辞

本研究を遂行するにあたり多くの方からご指導、ご協力をいただきました。この場を借 りて感謝の意を述べさせていただきます。

指導教員である東北大学金属材料研究所の齊藤英治教授には、本研究を遂行するにあた り懇切丁寧なご指導をいただきました。齊藤教授のご指導のもと、研究・物理学の面白さ に触れることができたのは、研究生活の充実のみならず、今後の私の人生の大きな糧とな りました。心より深く感謝致します。

東北大学金属材料研究所内田健一准教授にも、本研究を遂行するにあたり懇切丁寧なご 指導をいただきました。特に本研究のメインテーマであるスピンゼーベック効果につい て、第一人者であらせます内田准教授にご指導賜りましたことは、私にとって非常に幸運 かつ有益でございました。

日本電気株式会社の石田真彦氏、桐原明宏氏、萬真一氏には、スピンゼーベック効果の 応用に向けて、共同研究する機会を頂きました。産業会の視点から研究を見つめなおす機 会を頂けたことは大変有意義でした。

研究室での日常の議論を通して、様々なアドバイスやご協力を頂いた齊藤研究室スタッ フの皆様、学生の皆様にも心より感謝いたします。

JASRIの鈴木基寛氏、河村直己氏、水牧仁一朗氏には SPring-8 での MCD 測定に関して、多大なご協力を頂きました。この場を借りて感謝いたします。

金属材料研究所材料分析研究コアの伊藤俊氏には TEM 像の撮影で大変の世話になりました。ありがとうございました。

最後に、本研究、学生生活を支えてくれた家族・友人をはじめとするすべての方々に心 より御礼申し上げます。

出版物と学会発表

公刊論文

- K. Ando, H. Nakayama, Y. Kajiwara, <u>D. Kikuchi</u>, K. Sasage, K. Uchida, K. Ikeda, and E. Saitoh, "Measurement of spin current using spin relaxation modulation induced by spin injection" Journal of Applied Physics 05, 07C913 (2009).
- K. Uchida, T. Nonaka, T. Yoshino, T. Kikkawa, <u>D. Kikuchi</u>, and E. Saitoh, "Enhancement of spin-Seebeck voltage by spin-Hall thermopile "Applied Physics Express 5, 093001 (2012).
- 3. H. Nakayama, M. Althammer, Y.-T. Chen, K. Uchida, Y. Kajiwara, <u>D. Kikuchi</u>, T. Ohtani, S. Geprags, M. Opel, S. Takahashi, R. Gross, G. E. W. Bauer, S. T. B. Goennenwein, and E. Saitoh, "Spin Hall magnetoresistance induced by a non-equilibrium proximity effect "Physical Review Letters 110, 206601 (2013).
- Y. Kajiwara, K. Uchida, <u>D. Kikuchi</u>, T. An, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, "Spinrelaxation modulation and spin-pumping control by transverse spin-wave spin current in Y₃Fe₅O₁₂ " Applied Physics Letters 103, 052404 (2013).
- K. Uchida, H. Adachi, <u>D. Kikuchi</u>, S. Ito, Z. Qiu, S. Maekawa, and E. Saitoh, "Generation of spin currents by surface plasmon resonance" Nature Communications 6, 5910 (2015).
- 6. <u>D. Kikuchi</u>, M. Ishida, K. Uchida, Z. Qiu, T. Murakami, and E. Saitoh, "Enhancement of spin-Seebeck effect by inserting ultra-thin Fe₇₀Cu₃₀ interlayer

" Applied Physics Letters 106, 082401 (2015).

国内学会・国際学会

- <u>菊池大介</u>, 針井一哉, 齊藤英治, "強磁性微細リングにおける磁壁移動特性", 応用物 理学会第 70 回年次大会(富山大学), 2009 年 9 月 10 日.
- <u>D. Kikuchi</u>, Y. Kajiwara, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, "Spin injection and inverse spin-Hall effect in La_{0.67}Sr_{0.33}MnO₃"Annual ASPIMATT Meeting, July 4th, 2013, (Dresden, Germany).
- <u>D. Kikuchi</u>, Y. Kajiwara, Y. Shiomi, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, "Observation of spin injection and inverse spin-Hall effect in La_{0.67}Sr_{0.33}MnO₃", The 58th Magnetism and Magnetic Materials Conference, November 5th, 2013, (Denver, Colorado, USA).
- <u>D. Kikuchi</u>, M. Ishida, K. Uchida, Z. Qiu, T. Murakami, and E. Saitoh, "Enhancement of spin Seebeck effect in Pt/FeCu/BiYIG", The AIMR International Symposium 2015, February 17th, 2015, (Sendai, Japan).