

多結晶 Bi 薄膜におけるスピン変換

江本裕行¹、安藤裕一郎^{1,2}、江口学²、新庄輝也²、仕幸英治³、伏屋雄紀⁴、○白石誠司^{1,2}

1. 阪大院基礎工、2. 京大院工、3. 大阪市大院工、4. 電通大先進理工

Spin Conversion in polycrystalline Bi thin Films

H. Emoto¹, Y. Ando^{1,2}, G. Eguchi², T. Shinjo², E. Shikoh³, Y. Fuseya⁴, M. Shiraishi^{1,2}

1. Osaka Univ., 2. Kyoto Univ., 3. Osaka City Univ., 4. Univ. Electro-communication

1. はじめに

ビスマス(Bi)は Nernst-Ettingshausen 効果[1]、Shubnikov-de Haas 振動[2]、Seebeck 効果[3]など様々な効果が最初に発見された物質として知られ、その豊かな物性は広く研究者の興味を喚起している。スピントロニクスの観点から見ると、Bi は非放射性元素の中で最大のスピン軌道相互作用(SOI, 1.8 eV[4])を有し、またそのバンド構造が L 点における狭バンドギャップ(10 meV)の Dirac 的線型バンド構造[5]であることから、電荷(スピン)の高速移動や SOI によるスピン制御・スピン変換など、こちらも様々な物性が発現することが期待され、近年大きな関心を集めている。2013 年の Rojas-Sanchez らによる Bi/Ag 系における逆 Rashba-Edelstein 効果(IREE)の発見[6]は逆スピンホール効果(ISHE)[7,8]に次ぐ Bi 系での新たなスピン変換効果としてこの分野に更なる注目を集めるきっかけとなったが、Bi/Ag 界面に注入されたスピン流は NiFe の強磁性共鳴下でのスピンポンピングによるものであったため、NiFe の自発的 ISHE[9]などの spurious な効果との切り分けが十分でない、という問題が残っている。本研究ではスピン源に磁性絶縁体であるイットリウム=鉄=ガーネット(YIG)を用いることでこの問題を回避しながら Bi におけるスピン変換物性を精査した[10]。

2. 実験結果

Bi は抵抗加熱法を用いて YIG 上に成長させた。Bi 膜厚は 10-60 nm と変化させた。X 線回折実験からこの Bi は多結晶構造を有していることがわかった。YIG からの純スピン流注入のために試料を ESR 装置 (JEOL, FA-200, TE₀₁₁ キャビティ) 中にセットし 9.12 GHz の高周波磁場を印加した。スピンポンピング実験は室温で行った。

IREE は Bi と接合物質との界面における Rashba 効果とその界面で形成される 2 次元電子系が起源であるため、スピン変換によって生成された電流は Bi の膜厚に依存しないが、ISHE はスピン緩和長の距離スケールにおけるスピン散乱が起源のため、Bi 膜厚依存性を持つという本質的違いがある。Bi は半金属、YIG は絶縁体であるため両者の界面には一定の無視できない界面電場が存在すると期待されるが、実験結果は生成電流量が Bi 膜厚に対して明瞭な依存性を有しておりスピン変換機構が IREE でなく ISHE であることを強く示唆する。また ISHE を記述する理論式からスピン緩和長は約 20 nm と見積もられた。

講演では実験結果の詳細を紹介しながら Bi のスピン緩和機構も議論する。

参考文献

1. A. V. Ettingshausen and W. Nernst, *Annalen der Physik und Chemie* **265**, 343 (1886).
2. L. Schubnikov and W. J. de Haas, *Comm. Phys. Lab. Leiden*, **207d**, 35 (1930).
3. T.J. Seebeck, *Abh. Alad. Wiss. Berlin* **289**, 1820 (1822).
4. D. Shoenberg and M.Z. Uddin, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **156**, 687 (1936).
5. M. H. Cohen and E. I. Blount, *Phil. Mag.* **5**, 115 (1960).
6. J.-C. Rojas-Sanchez et al., *Nature Comm.* **4**, 3944 (2013).
7. D. Hou et al., *Appl. Phys. Lett.* **101**, 042403 (2012).
8. H. Emoto, Y. Ando, E. Shikoh, Y. Fuseya, T. Shinjo and M. Shiraishi, *J. Appl. Phys.* **115**, 17C507 (2014).
9. A. Tsukahara, Y. Ando, Y. Kitamura, H. Emoto, E. Shikoh, M.P. Delmo, T. Shinjo and M. Shiraishi, *Phys. Rev. B* **89**, 235317 (2014).
10. H. Emoto, Y. Ando, G. Eguchi, E. Shikoh, Y. Fuseya, T. Shinjo and M. Shiraishi, submitted.

伝導性 d 軌道電子を用いたスピン輸送の実現

大島諒¹、安藤裕一郎²、新庄輝也²、松崎功佑³、須崎友文³、白石誠司²
 (¹ 阪大院基礎工、² 京大院工、³ 東工大応セラ研)

Detection of the Spin Transport with Itinerant d-orbital Electrons

R. Ohshima¹, Y. Ando², T. Shinjo², K. Matsuzaki³, T. Susaki³, and M. Shiraiishi²
 (¹Osaka Univ., ²Kyoto Univ., ³MSL, Tokyo Tech.)

はじめに

電子スピンの伝達は主に伝導電子を介して達成されてきたが、通常局在して磁性を担う d 軌道電子はこのスピン輸送へのキャリアとしての寄与は小さく、その特性は不明瞭である。近年注目を集めている酸化物絶縁体界面に形成される 2 次元電子系は d 軌道電子がキャリアを担うことが知られており[1]、それを用いたスピン輸送特性は従来の s 軌道電子を用いた結果と起源の異なる結果が得られることが期待できる。本研究では共に酸化物絶縁体である LaAlO₃ (LAO) と SrTiO₃ (STO) の界面に形成される 2 次元系におけるスピン輸送の観測に成功したので報告する。

実験方法

Fig. 1 に示すように、LAO/STO 基板上にスピン注入源として Ni₈₀Fe₂₀ (Py)、検出電極として白金 (Pt) を成膜した。Py から注入されたスピンが LAO/STO 界面を伝搬し、Pt においてスピン流から電流へと変換することでスピン輸送を観測した。スピンの注入方法にはスピンポンピング法[2, 3]、電流への変換には逆スピンホール効果[4]をそれぞれ用いた。

実験結果

Fig. 2 に実験結果を示すが、Py の強磁性共鳴下における、Pt からの明瞭な起電力が観測できた。これはスピン源から注入されたスピンの検出電極における観測、つまりスピン輸送の達成を示唆する結果と言える。逆スピンホール効果による起電力は通常共鳴点に対称なローレンツ型を示すため、解析を用いて対称成分と非対称成分の分離を行いその電圧の大きさを評価したところ、逆スピンホール効果による起電力の大きさを 0.47 μV と見積もった。また、その極性は逆スピンホール効果の理論式通りの振る舞いを示した。一方、非対称成分も同様に見積もったところ 1.62 μV と対称成分に比べて大きく、スピン輸送における常とは異なる振る舞いが見られた。講演では LAO/STO 界面でのスピン輸送を裏付けるさらなる実験結果と、その信号についての詳細を議論する。

参考文献

- 1) M. Salluzzo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 166804 (2009).
- 2) Y. Tserkovnyak *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 117601 (2002).
- 3) S. Mizukami *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 104413 (2002).
- 4) E. Saitoh *et al.*, Appl. Phys. Lett. **88**, 182509 (2006).

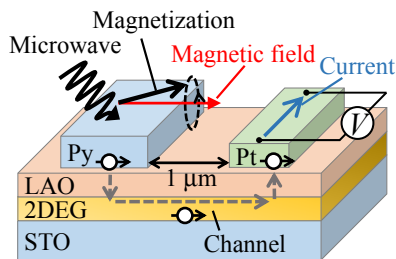


Fig. 1 Measurement concept

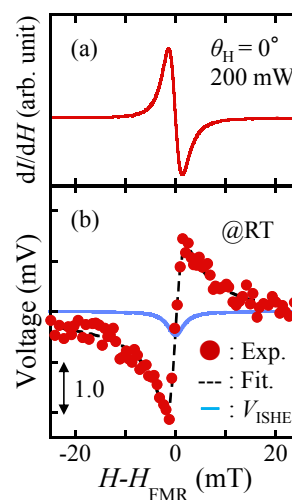


Fig. 2 (a) Ferromagnetic resonance signal and (b) voltage at this point (red circles are experimental data, black break line is fitting curve and blue solid line is electromotive force of inverse spin Hall effect)

第一原理計算を用いた FePt, FePd 合金の異常ホール伝導度の規則度依存性

兵頭一茂, 小田洋平*, 佐久間昭正

(東北大, *福島高専)

First-principles study on the dependence of anomalous Hall conductivity on degree of order in FePt and FePd alloys

K. Hyodo, Y. Kota*, and A. Sakuma

(Tohoku Univ., *Fukushima National College of Technology)

はじめに

$L1_0$ -FePd, FePt 合金は価電子数・結晶構造の観点で類似の材料であるが, その異常ホール伝導度 (σ_{xy}) の起源は大きく異なるとされている. 実際に先行研究^{1),2)}において, FePt の σ_{xy} は電子の散乱を必要としない内因性機構が主要な起源であるのに対し, FePd の σ_{xy} は電子散乱から生じるサイドジャンプ機構が支配的であるという結果が得られている. これらの先行研究では, 内因性機構の σ_{xy} を理想的な結晶における第一原理計算の値とし, 電子散乱が起源の σ_{xy} をこの計算値と実験で得られた値との差として求めている. このような結果に対して, 計算からも電子散乱を考慮した電子状態から σ_{xy} を計算し, 散乱の効果を議論することが, σ_{xy} の理解を深めるために重要である.

以上の背景から本研究では, 電子散乱の強さを結晶の規則度で表現し, 不規則 2 元合金 FePt, FePd における σ_{xy} の規則度に関する依存性を調べた. また比較のため, σ_{xy} と併せて σ_{xx} についても計算を行った.

計算手法として局所スピン密度近似に基づいた強結合線形マフィンティン軌道法を用い, Fe サイトと Pd(Pt) サイトを不規則配列させた合金について異なる規則度での σ_{xy} を計算した. 不規則合金の電子状態は coherent-potential 近似から計算した. σ_{xx} 及び σ_{xy} の計算には Kubo-Streda 公式³⁾ の Fermi-surface 項を用いた.

結果および考察

Fig. 1(a) は FePt, FePd 合金における σ_{xx} の, 規則度 (S) 依存性の結果である. 両者の σ_{xx} は S の低下と共に共通して単調に低下し, 規則度の低下が散乱の増加として振る舞うことを確かめた. また, σ_{xx} の値については, 全ての S で FePd の方が FePt より 5 倍程度大きな値となっている.

Fig. 1(b) は二つの合金の σ_{xy} の S 依存性である. FePt の σ_{xy} は S の減少に伴う電子散乱の増加に対し, σ_{xx} とは逆に単調に増加する結果となった. また, FePd については $S = 1$ から 0.9 に規則度が低下した際, σ_{xy} は 4 倍程度に上昇し, 散乱により σ_{xy} が大きく増加した. 加えて, $S = 0.9$ の σ_{xy} は実験値¹⁾ $\sigma_{xy} = 806(\Omega^{-1}\text{cm}^{-1})$ にほぼ一致し, 有限の電子散乱を考慮することで実験値をよく再現できることが分かった. $S = 0.9$ から S がさらに低下すると, σ_{xy} は単調に減少していき, 最終的に $S = 0$ での σ_{xy} は $S = 1$ と比較して 2 倍程度大きな値となった.

結果として FePt, FePd について σ_{xy} の S 依存性を比較すると, FePd のみが $S = 0.9$ 近傍でピークを持つが, 両者とも $S = 1$ からの低下に対し σ_{xy} が増加することが明らかとなった. 講演ではさらに, それぞれの合金における σ_{xy} の規則度依存性の起源に関し, σ_{xx} の値や電子状態の観点から議論する.

References

- 1) K. M. Seeman *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **104**, 076402 (2010)
- 2) P. He *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **109**, 066402 (2012)
- 3) P. Streda *et al.*, *J. Phys. C: Solid State Phys.*, **15**, L717 (1982)

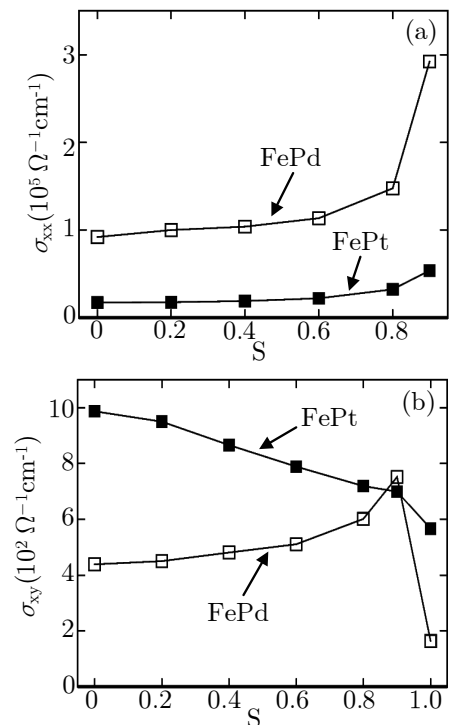


Fig. 1 calculated (a) σ_{xx} and (b) σ_{xy} values in FePd, FePt alloys as a function of long-range order parameter S

異常ネルンスト効果の規則合金薄膜材料依存性

水口将輝^{1,2}、長谷川浩太¹、桜庭裕弥¹、窪田崇秀³、水上成美³、高梨弘毅¹
 (¹東北大金研、²JST-さきがけ、³東北大 WPI)

Material dependence of anomalous Nernst effect in ordered-alloy thin films
 M. Mizuguchi¹, K. Hasegawa¹, Y. Sakuraba¹, T. Kubota², S. Mizukami², K. Takanashi¹
 (¹IMR-Tohoku Univ., ²JST-PRESTO, ³WPI-Tohoku Univ.)

はじめに

強磁性規則合金は、その多様な機能性から、スピントロニクス材料として注目を集めている。しかしながら、熱とスピントロニクスの相関を取り扱う「スピントロニクス」の分野^[1]では、規則合金の特性に関しては未解明な部分が多い。我々は、これまでに $L1_0$ 型規則合金 FePt 薄膜について、熱磁気効果の一つである異常ネルンスト効果の系統的な測定を行ってきた。その結果、 $L1_0$ 型 FePt が比較的大きな異常ネルンスト効果を示すことを見出し^[2]、異常ネルンスト効果を用いた熱電素子の開発の可能性について、報告した^[3]。本研究では、熱スピン流から電圧への変換過程についてさらに考察を深めるため、様々な規則合金系薄膜における異常ネルンスト効果の測定を行った。特に、規則合金の磁気異方性と異常ネルンスト効果の関係について、詳細な検討を行った^[4]。

実験方法

超高真空マグネトロンスパッタリングにより試料を作製した。作製した規則合金材料は、 $L1_0$ 型 FePt、 $L1_0$ 型 FePd、 $L1_0$ 型 MnGa、 $D0_{22}$ 型 MnGa である。試料の膜厚は 30 nm とした。参照試料として、[Co (0.2 nm) / Ni (0.4 nm)]₂₀ の多層膜試料も分子線エピタキシー法により作製した。作製した薄膜の磁気特性の評価を超伝導量子干渉計 (SQUID) を用いて行った。異常ネルンスト効果の測定は、薄膜面内方向に温度勾配を付与した状態で、物理特性測定装置 (PPMS) により試料面直方向の磁場を掃引し、薄膜面内で温度勾配と垂直方向に発生する異常ネルンスト電圧を 4~300 K の温度範囲で測定した。

実験結果

図 1 に、様々な規則合金薄膜について測定した 300 K での異常横ゼーバック係数の絶対値と磁気異方性の関係を示す。磁気異方性の増加に従い、異常ネルンスト効果が概ね単調に増加することが分かった。これは、熱スピン流からネルンスト電圧への変換の機構において、スピン軌道相互作用が強く関与していることを示す結果である。また、それぞれの材料について、異常ネルンスト効果の温度依存性の測定を行った。温度の増加にともない、規則合金ではネルンスト角が増加する一方、Co/Ni 多層膜では逆にネルンスト角が減少することが明らかになり、材料系に依存して散乱機構が異なることが示唆された。

本研究の一部は、科学研究費補助金・基盤(S) (25220910)および JST さきがけ研究の支援を受けた。

参考文献

- [1] G. E. W. Bauer *et al.*, Phys. Rev. B, **81**, 024427 (2010).
- [2] M. Mizuguchi *et al.*, Appl. Phys. Express, **5**, 093002 (2012).
- [3] Y. Sakuraba, M. Mizuguchi *et al.*, Appl. Phys. Express, **6**, 033003 (2013).
- [4] K. Hasegawa, M. Mizuguchi *et al.*, Appl. Phys. Lett., *in press*.

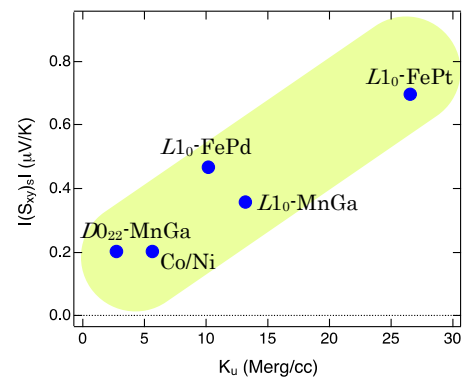


Fig. 1 Material dependence of absolute value of anomalous term of transverse Seebeck coefficient ($|S_{xy}|_s$) at 300 K as a function of K_u .

スピンゼーベック効果を用いた Ni-Zn フェライト熱電変換素子の研究

佐知嵩之, 竹本洋祐, 若松孝志, 栗巢普揮, 赤井光治, 山本節夫
(山口大)

Spin Seebeck effect in Ni-Zn ferrite thermoelectric conversion elements

T. Sachi, Y. Takemoto, T. Wakamatsu, H. Kurisu, K. Akai and S. Yamamoto

(Yamaguchi Univ.)

はじめに

エネルギーハーベスティング技術としてスピンゼーベック効果を利用した熱電変換技術が注目されている。¹⁾ スピンゼーベック効果を利用すれば磁性絶縁体を用いて熱電発電が可能である。本研究では、フェライト薄膜を Si 基板上とポリイミド(PI)フィルム基板上に成膜してスピンゼーベック素子を作成し、比較検討した。

実験方法

RF マグネトロンスパッタ装置を用いて、Si 基板及び PI フィルム(Upilex-50S、宇部興産株、耐熱温度 290 °C)上に、YIG フェライト薄膜と Ni-Zn フェライト薄膜をとともに膜厚 100 nm で堆積し、その上に電極として Pt 薄膜を膜厚 6.7 nm ほど成膜して、熱電変換素子を作成した。

Si 基板上への Ni-Zn フェライト薄膜のスパッタ堆積は、室温と 200°C の基板温度で行った後に、結晶化を行うために大気中で 1000°C でのポストアニール処理を行った。PI フィルム基板の場合には、フェライト薄膜を室温でスパッタ堆積したのみで、ポストアニールは行わなかった。

実験結果と考察

Fig.1 に、Si 基板上に室温でスパッタ成膜した Ni-Zn 薄膜のポストアニール前後での M-H ループを示す。ポストアニールを行うと飽和磁化が大幅に増加し、角形比が大きくなった。Fig.2 に、Si 基板上に室温でスパッタ成膜した YIG フェライト薄膜と Ni-Zn フェライト薄膜の熱電変換起電力 E_{ISHE} の磁場依存性を示す。YIG フェライト薄膜では起電力は全く出なかった。YIG フェライト薄膜を結晶化させるためには 1000°C 程度でのポストアニール処理が不可欠である。²⁾ Ni-Zn フェライト薄膜ではポストアニール前の試料では 0.4[$\mu\text{V}/\text{K}$]であった起電力が、ポストアニール後の試料では 0.5[$\mu\text{V}/\text{K}$]に増加した。これはポストアニールによって結晶性が向上し、飽和磁化も増加したことによる。起電力はヒステリシスを描き、スピンゼーベック効果による起電力であると確認した。

基板に PI フィルムを用いた場合には、Ni-Zn フェライト薄膜を室温でスパッタ成膜すると、薄膜が基板から剥離する問題が生じた。そこで、下地層として ZnO 薄膜を導入することで解決した。Fig.3 に、PI フィルム上に成膜した Ni-Zn フェライト薄膜の起電力 E_{ISHE} の磁場依存性を示す。0.2[$\mu\text{V}/\text{K}$]の起電力を観測した。

まとめ

Pt 電極/Ni-Zn フェライト薄膜/ZnO 下地膜構造をスパッタ法で PI フィルム基板上に作成し、スピンゼーベック効果による起電力 0.2[$\mu\text{V}/\text{K}$]を得た。

参考文献

- 1) 内田健一, 齊藤英治, “熱・音波を用いたスピン流生成技術,” *Magnetics Society of Japan*, Vol.8, No.1, pp.18-20 (2013).
- 2) S. Yamamoto, et al., “Post-annealing effect of YIG ferrite thin-films epitaxially grown by reactive sputtering,” *Physica Status Solidi*, (a) 201, No.8, pp.1810-1814 (2004).

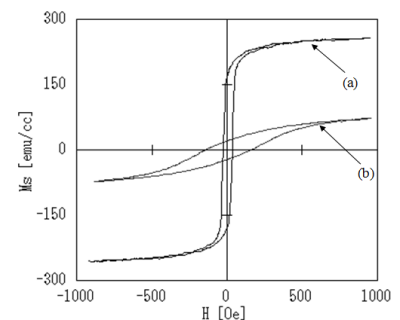


Fig.1 M-H loops for Ni-Zn ferrite/Si-sub. (sputtered at room temperature), (a) Post-annealed at 1000 °C, (b) As-deposited.

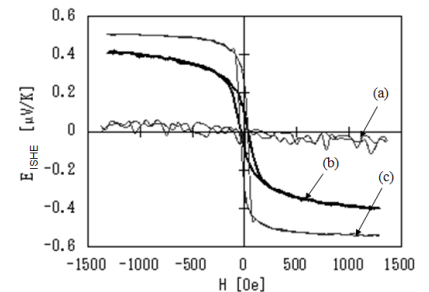


Fig.2 Magnetic field H dependence of the electromotive force E_{ISHE} in YIG/Si-sub. and Ni-Zn ferrite/Si-sub. sputtered at room temperature. (a) YIG ferrite: as-sputtered, (b) Ni-Zn ferrite: as-deposited, and (c) Ni-Zn ferrite: post-annealed at 1000°C.

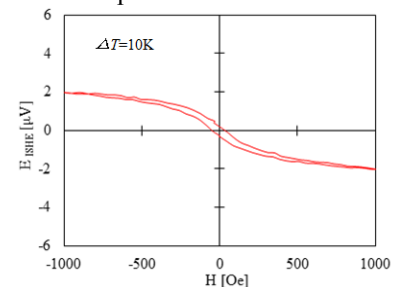


Fig.3 Magnetic field H dependence of the electromotive force E_{ISHE} in Ni-Zn ferrite thin films on the polyimide film substrate.

強磁性共鳴による磁性体加熱効果と熱スピン注入

山野井一人^A, 横谷有紀^A, 植松銀河^A, 家形諭^B, 木村崇^{A,C}
(九大物理^A, 福工大^B, スピン物性セ^C)

Heating effect and thermal spin injection by the ferromagnetic resonance

K. Yamanoi^A, Y. Yokotani^A, G. Uematsu^A, S. Yakata^B, T. Kimura^{A,C}

(^ADept. of Physics, Kyushu Univ., ^BFIT, ^CResearch Center for Quantum Nano-spin Sciences.)

はじめに

強磁性体/非磁性体界面に熱勾配が存在すると、熱スピン注入を介して、スピン流が生成できる⁽¹⁾。上記の現象は、電気の代わりに熱を利用したスピン流生成手法であり、新たなスピンドバイスの創生が期待される。一方で、強磁性薄膜においては、磁化のダイナミクス時のダンピングにより発熱が生じることが知られている⁽²⁾。特に、強磁性共鳴(FMR)時の同現象は、FMRヒーティング効果と呼ばれている。この手法を用いるとFMRを励起することで、強磁性体のみを局所的に加熱可能なため、強磁性体/非磁性体構造において高い熱勾配が生成され、高効率な熱スピン注入が期待される。FMRは、マイクロ波などを用いてワイヤレスで励起可能であり、更に、FMR周波数は、物質や形状などで制御できるため、マイクロ波・熱・スピンの融合による新奇デバイスの創出が期待できる。今回我々は、FMR時の強磁性体の温度上昇を簡便、且つ定量的に評価する手法を開発したので報告する。

実験方法

試料は、導波路的な役割を持つCu細線とその直下に埋め込まれた強磁性細線からなる。この試料に、高周波を重畳した電流を流し、直流抵抗の磁場依存性を測定し、更に、直流抵抗の温度依存性と比較することで、共鳴時の温度上昇を定量的に評価した。

実験結果

Fig. 1に、強磁性細線としてCoFeAlを採用した際のCu細線抵抗の磁場依存性を示す。ここで、重畳された高周波電流の周波数は16 GHzである。FMR時にCu細線の直流抵抗が上昇しているのが確認され、更に、この抵抗変化 ΔR_{Cu} は、照射するマイクロ波強度の増大と共に大きくなることを確認した。この抵抗変化と直流抵抗の温度依存性を比較することで、マイクロ波印加時の温度変化 ΔT を定量的に算出した。Fig. 2に示すように、高強度なマイクロ波照射時においては、系の温度が10度近く上昇することが確認できる。他の強磁性体に関しても同様の加熱効果が観測されたが、物質間では顕著な違いは観測されなかった。

更に、上記実験に加えて、本技術を熱スピン注入技術へと高度化し、逆スピンホール効果を用いて熱スピン注入効率を評価したところ、室温にて約0.1 (V/m)程度の電界を生成できることが分かった。

参考文献

- 1) S. Hu, H. Itoh and T. Kimura. NPG Asia Mater. **6**, e 127 (2014)
- 2) F. L. Bakker, J. Flipse, A. Siachter, D. Wagenaar, and b. J. van Wees. Phys. Rev. Lett. **108**, 167602 (2012)

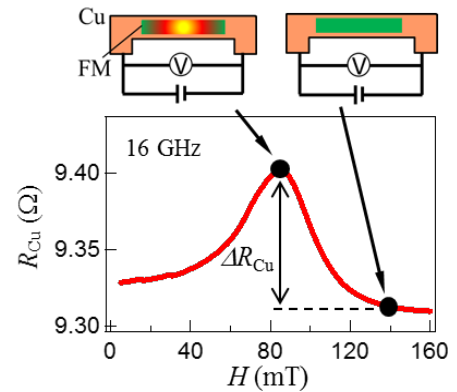


Fig.1 高周波磁界印加時のCu細線抵抗の磁場依存性。

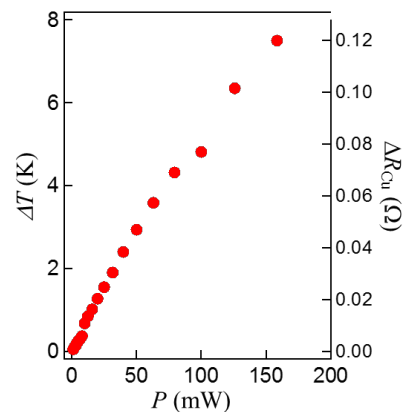


Fig.2 FMRによる温度変化の入力マイクロ波強度依存性。