

# Co<sub>x</sub>Fe<sub>100-x</sub>/Pt 薄膜におけるテラヘルツ時間領域分光法を用いた

## パルスレーザー励起スピン流の強磁性層膜厚依存性

佐々木悠太<sup>1</sup>, 高橋有紀子<sup>1</sup>, 葛西伸哉<sup>1,2</sup>

(<sup>1</sup> 物材機構, <sup>2</sup>JST さきがけ)

Ferromagnetic layer thickness dependence of laser pulse stimulated spin current in Co<sub>x</sub>Fe<sub>100-x</sub>/Pt thin films measured by terahertz time-domain spectroscopy

Y. Sasaki, Y. K. Takahashi, S. Kasai

(<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>JST-PRESTO)

### はじめに

近年、強磁性金属/非磁性重金属薄膜に対して超短パルスレーザーを照射した際の数十フェムト秒から数百フェムト秒の間に発生するスピン流が報告された.[1, 2] 発生したスピン流が非磁性重金属層に注入されることで、逆スピンホール効果を介したパルス電流およびテラヘルツ(THz)波が発生し、その大きさからスピン流の大きさや逆スピンホール効果の大きさを評価できる。スピン流を増大させることで、THz 光源や超高速磁化反転などへの利用が可能となるため、高効率なスピン流発生方法を調べることは応用上重要であるが、強磁性材料に関して系統的に調べた報告は少ない。本発表では、強磁性金属層膜厚の異なる Co<sub>x</sub>Fe<sub>100-x</sub> 薄膜において THz 波放射を測定し、組成比による超高速スピン流の強磁性金属層膜厚依存性の変化を系統的に調べた。

### 実験方法

MgO(001)基板上に超高真空マグネトロンスパッタ法を用いて試料を作製した。薄膜構成は基板側から、MgO(20)/Co<sub>x</sub>Fe<sub>100-x</sub>( $d_{\text{FM}}$ )/Pt(2) (膜厚単位 nm)である。組成比を  $x=0, 13, 50$  とし、強磁性層膜厚  $d_{\text{FM}}$  を様々変化した。中心波長 1030 nm, パルス幅 230 fs の Yb:KGW レーザーおよび 800  $\mu\text{m}$  の厚みを有する CdTe(110)単結晶を用いて、テラヘルツ時間分解分光法(THz-TDS)によって放射 THz 波を測定した。

### 実験結果

図2に THz 波放射強度  $S_{\text{peak}}$  を示す。全ての試料において、 $d_{\text{FM}}$  が小さくなるとともに  $S_{\text{peak}}$  が増大した。また、 $x$  によって  $S_{\text{peak}}$  の  $d_{\text{FM}}$  依存性が変化した。試料の THz 波放射効率および  $S_{\text{peak}}$  から見積もった超高速スピン流のピーク値  $j_s^{\text{peak}}$  を図 1(b)に示す。 $x$  が増大するとともに、 $j_s^{\text{peak}}$  が最大値をとる  $d_{\text{FM}}$  が大きくなった。スピン依存平均自由行程の  $x$  依存性との比較から、 $j_s^{\text{peak}}$  が平均自由行程でスケールされていることが示唆された。

本研究は JSPS 科研費 18H03787 の助成を受けて行われた。

### 参考文献

(1) T. Seifert, *et al.*, Nature Photon. **10**, 483 (2016)., (2) Y. Wu, *et al.*, Adv. Mater. **29**, 163031 (2017).

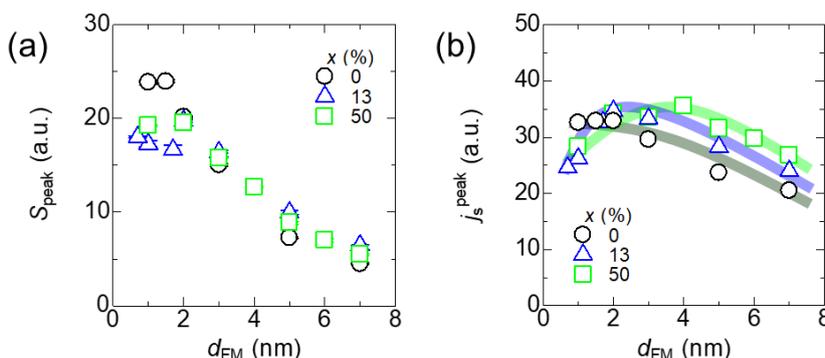


Figure 1. The peak intensity of THz wave signal  $S_{\text{peak}}$  and (b) peak intensity of the ultrafast spin current  $j_s^{\text{peak}}$  as a function of ferromagnetic layer thickness  $d_{\text{FM}}$ . Open circles, triangles, and squares are the data for the sample with  $x=0, 13$ , and  $50$ , respectively. The bold lines are guides to see.

# 磁気相転移に伴う Dy/NiFe 2 層膜のスピンの吸収効率の変化

慶大<sup>A</sup>, 中国科学院大<sup>B</sup>, 原研<sup>C</sup>, 理研<sup>D</sup>, 慶大スピン研<sup>E</sup>

山野井 一人<sup>A</sup>, 榊原有理<sup>A</sup>, 藤本純治<sup>B</sup>, 松尾衛<sup>B,C,D</sup>, 能崎幸雄<sup>A,E</sup>

Variation of spin sink efficiency in Dy/NiFe bilayer owing to magnetic phase transition

<sup>A</sup>Dept. of Phys. Keio Univ., <sup>B</sup>UCAS., <sup>C</sup>JAEA, <sup>D</sup>RIKEN, <sup>E</sup>Keio Spintronics Center

K. Yamanoi<sup>A</sup>, Y. Sakakibara<sup>A</sup>, J. Fujimoto<sup>B</sup>, M. Matsuo<sup>B,C,D</sup>, and Y. Nozaki<sup>A,E</sup>

## はじめに

4f希土類金属は強いスピン軌道相互作用を有するため、次世代のスピンロニクス材料や永久磁石の要素元素として不可欠な材料群である。中でも Dy は温度により強磁性と反強磁性（らせん磁性）の2種類の磁気秩序状態を同一材料で実現できるため、磁気とスピン散乱の相関を系統的に調べる上で理想的な系である。Dy のらせん磁性はハイゼンベルグ型の交換相互作用と RKKY 相互作用の競合により実現することが知られている。近年、反強磁性体を用いた長距離スピン流輸送<sup>1</sup>やスピン揺らぎを用いた巨大スピンホール効果<sup>2</sup>など興味深い物理現象も報告されている。そこで本研究では、Dy と強磁性 NiFe を接合した2層膜のギルバートダンピング定数を測定することにより、磁気相転移に伴う Dy のスピン吸収効率の変化を評価した。

## 実験方法及び結果

マグネトロンスパッタリング法により、熱酸化 Si 基板上に Ta(3 nm)/Dy(50 nm)/NiFe(20 nm) 多層膜を連続成膜した。Dy 成膜時のみ基板を 350 度に加熱し、他の金属は室温成膜した。その後、イオンミリング装置とレーザー描画装置を用いて、多層膜を細線形状に加工し、その上から Ti/Au で構成されるマイクロ波導波路を作製した。まず、Dy 薄膜の磁気特性の温度依存性を評価するために、200 mT の静磁場で Dy-磁化の温度依存性を測定した。その結果、130~178 K の温度範囲にて反強磁性相が出現することが分かった。図 1 に、ベクトルネットワークアナライザを用いて測定した室温における導波路の  $S_{11}$  パラメータの周波数依存性を示す。マイクロ波の吸収が見られる周波数が静磁場強度に依存して変化しており、Dy に接合した NiFe の FMR 周波数と一致した。同様の実験を 110 ~ 300 K の範囲の任意の温度にて実施し、スペクトルの半値幅の周波数依存性から有効ダンピングの温度依存性を評価した。更に、NiFe/Dy の有効ダンピングから、NiFe 単層でのダンピング定数の温度依存性を差し引くことで、Dy のスピン吸収効果を算出した結果を図 2 に示す。Dy のスピン吸収効果は、常磁性(PM) から反強磁性(AFM) への相転移点では極大を示した一方で、AFM から強磁性(FM) への相転移点では単調に増加した。前者は、スピン吸収効果が相転移点近傍におけるスピン揺らぎにより増大することを示している<sup>3</sup>。また FM に対して AFM ではスピン吸収効果が大幅に低下し、PM と同程度であることが分かった。

発表では、Dy のスピンポンピング効果に加えて、Dy のスピンホール角についても議論する予定である。

## 参考文献

- 1) R. Lebrun, A. Ross, S. A. Bender, A. Qaiumzadeh, L. Baldrati, J. Cramer, A. Brataas, R. A. Duine and M. Kläui, Nature (2018).
- 2) Y. Niimi, M. Kimata, Y. Omori, B. Gu, T. Ziman, S. Maekawa, A. Fert and Y. Otani, PRL 115, 196602 (2015).
- 3) Y. Ohnuma, H. Adachi, E. Saitoh and S. Maekawa, PRB 89, 174417 (2014).

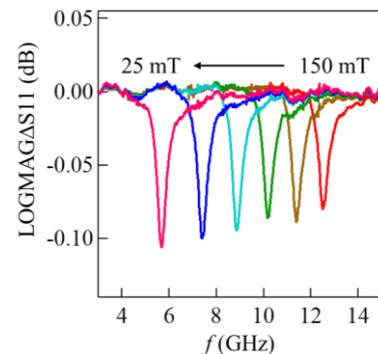


図 1. 25~150 mT の範囲の異なる静磁場で測定した Dy/NiFe 2 層膜の FMR スペクトル

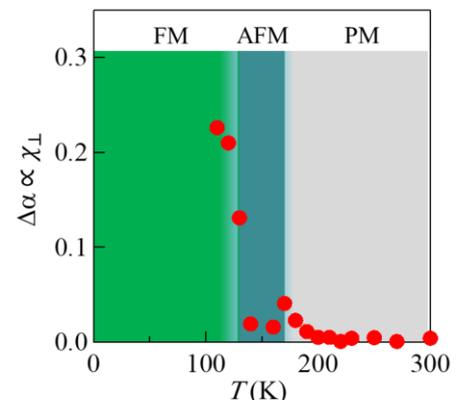


図 2. Dy/NiFe 多層膜のスピン注入効率の温度依存性

# 熱励起スピンの流を用いた Dy のスピンのホール電圧測定

榊原有理<sup>A</sup>、山野井一人<sup>A</sup>、能崎幸雄<sup>A,B</sup>  
(慶大理工<sup>A</sup>、慶大スピン研<sup>A,B</sup>)

Measurement of the spin Hall voltage of Dy using thermally excited spin current

Yuri Sakakibara<sup>A</sup>, Kazuto Yamanoi<sup>A</sup>, Yukio Nozaki<sup>A,B</sup>

(<sup>A</sup>Dept. of Phys. Keio Univ., <sup>A,B</sup>Keio Spintronics Center)

## 背景

反強磁性体は THz 領域の超高速特性や、外部磁場への耐久性など優れた特性を有しており、その応用に向けた研究が盛んに行われている。さらに近年では、反強磁性体のスピン輸送特性に由来する興味深い物理現象が報告されている[1]。マンガン合金など副格子の磁気モーメントが反平行に配列したコリニアな反強磁性体に対し、希土類元素ジスプロシウム(Dy) は RKKY 相互作用によりノンコリニアならせん型の反強磁性特性を示すことで知られている。さらに Dy は、低温でらせん磁性から強磁性への磁気相転移が生じるため、磁気秩序とスピン輸送特性の相関を調べる系として最適である。そこで本研究では、マグネトロンスパッタリング法により Dy 薄膜を作製し、その結晶構造及び磁気特性の温度依存性を調べた。さらに、熱励起スピンの流を用いて Dy のスピンのホール効果を評価した。

## 実験方法と結果

スパッタ Dy 薄膜の結晶構造及び磁気特性を評価するために、熱酸化被膜付 Si 基板上に Ta(5 nm)/Dy(50 nm)/Ta(5 nm)を連続成膜した。ただし、Dy の成膜温度は室温と 350 °C の 2 種類と比較した。図 1(a)は 350 °C で成膜した Dy 薄膜に対し、200 mT の磁場を印加しながら測定した磁化の温度依存性である。176 K で磁化が極大を示した後、130 K 以下で磁化が急増した。これはそれぞれ、常磁性かららせん磁性、さらには強磁性への磁気相転移に伴う効果である。室温で成膜した場合には 176 K 付近の磁化の極大が消滅し、らせん磁性への磁気相転移が見られなかった。図 1(b) は 350 °C 成膜の Dy 薄膜について観察した二次元 X 線回折像である。室温成膜に比べて、hcp(002)の配向度が高く、これがらせん磁性発現に重要であることが分かった。

次に、熱励起スピンの流を用いたスピンのホール電圧の測定系を評価するため、まずはスピンのホール効果がよく知られている Pt を用いた対照実験を行った。Pt/NiFe 二層膜を作製し、その上にヒータ電極を取り付けて膜厚方向に熱勾配を与えて、NiFe から Pt への熱励起スピンの流を注入した。図 2 にスピンのホール電圧の Pt 膜厚依存性を示す。膜厚がスピン拡散長よりも厚い場合のスピンのホール電圧の理論式とのフィッティングにより Pt のスピン拡散長は 1.8 nm 程度と求められ、Pt の文献値とよく一致した[2]。発表では、らせん磁性を発現した Dy 薄膜に対して同様の実験を行い、Dy のスピンのホール角を評価した結果について議論する。

## 参考文献

- 1) V. Baltz, *et al.* Rev. Mod. Phys. **90**, 015005 (2018).
- 2) Kouta Kondou, *et al.* Appl. Phys. Express **5**, 073002 (2012).

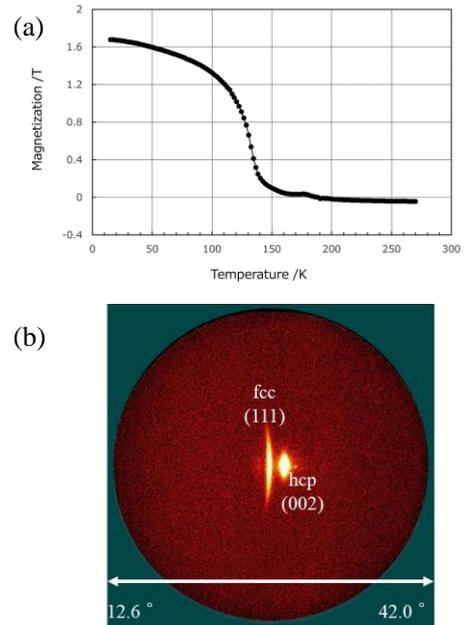


図 1. 成膜温度 350°C で作製した Dy 薄膜の (a)磁化の温度依存性と、(b)二次元 X 線回折像

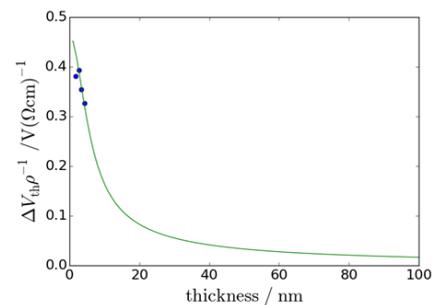


図 2. NiFe/Pt 二層膜におけるスピンのホール電圧の Pt 膜厚依存性

# Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/VO<sub>2</sub> 二層接合における強磁性共鳴下での起電力の温度依存性

田村和真、神吉輝夫<sup>1</sup>、白井俊、田中秀和<sup>1</sup>、手木芳男<sup>2</sup>、仕幸英治  
(阪市大院工、<sup>1</sup>阪大産研、<sup>2</sup>阪市大院理)

Temperature dependence of electromotive forces in Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/VO<sub>2</sub> bilayer junctions under the ferromagnetic resonance

Kazuma Tamura, Teruo Kanki<sup>1</sup>, Shun Shirai, Hidekazu Tanaka<sup>1</sup>, Yoshio Teki<sup>2</sup>, Eiji Shikoh  
(Osaka City Univ. Eng., <sup>1</sup>ISIR, Osaka Univ., <sup>2</sup>Osaka City Univ. Sci.)

## はじめに

スピントロニクスにおいて、スピン流を外場で制御するスピン流スイッチの実現は重要な課題である。本研究では、遷移金属酸化物である二酸化バナジウム(VO<sub>2</sub>)に着目した。VO<sub>2</sub>はある温度付近で抵抗値が急激に変化する金属絶縁体転移という特性を持つ<sup>1)</sup>。この金属絶縁体転移を利用し、スピン流を熱スイッチングできるデバイスの創成が期待できる。最近、フェリ磁性絶縁体である YIG からスピンポンピングを用いて VO<sub>2</sub> へのスピン注入が達成された<sup>2)</sup>。しかし、実用化には良質な YIG を作製することが必要であるが、非常に困難である。本研究では、代表的な強磁性金属である Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> を利用し、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/VO<sub>2</sub> 二層接合における強磁性共鳴下での起電力の温度依存性を評価した。

## 実験方法

Fig. 1 に、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(25nm)/VO<sub>2</sub>(10nm)二層接合の試料構造を示す。真空蒸着装置を用いて、TiO<sub>2</sub>(001)基板の上に、VO<sub>2</sub>はパルスレーザー堆積法、Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>とPdは電子ビーム蒸着法を用いて作製した。Pdは電圧計によって起電力を測定する際の電極として用いた。伝送線路によって発生させた高周波磁界と電磁石による静磁界を試料に印加することで強磁性共鳴(FMR)を励起し、スピンポンピングを行った。注入されたスピン流は、VO<sub>2</sub>薄膜中で逆スピンホール効果(ISHE)<sup>3)</sup>によって電流に変換される。この電流をVO<sub>2</sub>の抵抗を介して起電力として検出することにより、VO<sub>2</sub>薄膜へのスピン注入特性を評価した。また、ペルチェ素子により温度制御を行い、温度依存性について評価した。

## 実験結果

Fig. 2 に、Fig. 1 の試料における抵抗値 $R$ 及びFMR下での起電力 $V_{\text{FMR}}$ の温度依存性を示す。抵抗値が急激に変化していることから、金属絶縁体転移が発生していることがわかる。また、VO<sub>2</sub>薄膜が絶縁体から金属に変化すると、 $V_{\text{FMR}}$ は小さくなった。ここで得られる起電力 $E$ は(1)式のように表せる。

$$E = R \vec{J}_C \propto R \theta_{\text{SHE}} \vec{J}_S \times \vec{\sigma} \quad (1)$$

$J_C$ 、 $\theta_{\text{SHE}}$ 、 $J_S$ 及び $\sigma$ はそれぞれ電流、スピンホール角、純スピン流及びスピン偏極ベクトルである。(1)式より、 $R$ の変化量に対して $E$ がそれほど変化していないことから、 $E$ の大きさには $\theta_{\text{SHE}}$ と $J_S$ の寄与が大きいと考えられる。つまり、金属絶縁体転移によってVO<sub>2</sub>薄膜のスピン-電流変換効率やスピン注入効率が変化したと考えられる。学会時には、研究の詳細について議論する。

## 参考文献

- 1) H. Takami, et al., Appl. Phys. Lett., 101, 263111(2012).
- 2) T.S. Safi, et al., Nat. Commun., Vol.11, p.476 (2020).
- 3) E. Saitoh, M. Ueda, and H. Miyajima, Appl. Phys. Lett., 88, 182509(2006).

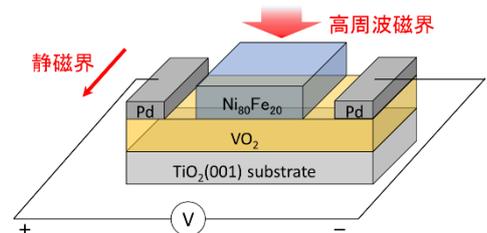


Fig. 1. Structure of sample.

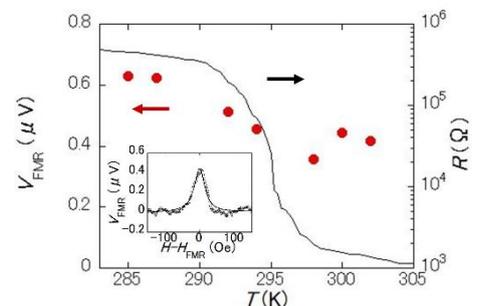


Fig. 2. Temperature dependence of  $V_{\text{FMR}}$  and  $R$ . The inset shows output voltage at 300K.

# 剛直性分子蒸着膜中のスピンプンピングによるスピン輸送

西田和弘、手木芳男\*、仕幸英治  
(阪市大院工、\*阪市大院理)

Spin-pump-induced spin transport in thermally-evaporated rigid molecular films

K. Nishida, Y. Teki\*, E. Shikoh

(Osaka City Univ. Grad. of Eng., \*Osaka City Univ. Grad. of Sci.)

## はじめに

分子薄膜は一般にスピン軌道相互作用が小さく、スピン輸送の点において有望であり、スピントロニクスデバイスへの応用が期待されているが、分子薄膜は金属に比べて電気抵抗が高いため、スピン偏極電流によるスピン注入は困難である<sup>1)</sup>。そこで、この困難を回避できると考えられるスピンプンピングによる純スピン流注入により、これまでに様々な分子薄膜のスピン輸送特性が評価されてきた<sup>2-5)</sup>。一方、分子薄膜材料は一般に物理的耐久性が低い。そこで本研究では分子エレクトロニクス分野で実績のある剛直性分子 PTCDA 薄膜に着目し、その純スピン流輸送を達成することによりスピントロニクス材料としての有望性を調査した。

## 実験方法

電子ビーム蒸着法および抵抗加熱蒸着法を用いて「Pd(膜厚 10 nm)/PTCDA( $d$ )/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(25 nm)」の三層構造試料(Fig. 1)を作製した。強磁性共鳴 FMR を用いたスピンプンピングにより Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> から PTCDA 分子膜へ純スピン流  $J_s$  が生成される。その  $J_s$  は Pd へと吸収され、Pd 中で逆スピホール効果 ISHE<sup>6)</sup>により起電力  $E$  に変換される。そのため Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> の FMR 下において、Pd の ISHE による起電力が観測されれば PTCDA 薄膜中のスピン輸送達成の証拠になる。FMR 励起には ESR 装置を、起電力検出にはナノボルトメータを用いた。評価は全て室温で実施した。

## 実験結果

Fig. 2 に  $d = 30$  nm 試料の(a)FMR 特性と(b)FMR 磁界付近における Pd からの起電力特性を示す。高周波の出力は 200 mW である。FMR 磁界付近において、静磁界  $H$  に対して反転対称性を示す起電力特性が観測された。また、観測された起電力は高周波出力に比例した。一方 Pd の代わりにスピン軌道相互作用の小さな Cu を用いた試料からは大きな起電力は得られなかった (Fig. 2(C)&(d))。以上より Pd 試料で観測された起電力は Pd の ISHE による起電力と結論した。即ち、PTCDA 薄膜の室温スピン輸送を達成した<sup>7)</sup>。更に起電力の PTCDA 膜厚依存性の評価により PTCDA 蒸着膜のスピン拡散長を約  $14 \pm 2.0$  nm と見積もった<sup>7)</sup>。これらにより PTCDA 薄膜はスピントロニクス材料としても有望であると結論した。学会時には詳細を議論する。

## 参考文献

- 1) G. Schmidt, *et al.*, Phys. Rev. B **67**, R4790 (2000).
- 2) S. Watanabe, *et al.*, Nature Phys. **10**, 308 (2014).
- 3) M. Kimata, *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 224422 (2015).
- 4) Y. Tani, Y. Teki, E. Shikoh, Appl. Phys. Lett. **107**, 242406 (2015).
- 5) Y. Tanaka, K. Kono, Y. Teki, E. Shikoh, IEEE Trans. Mag., **55**, 1400304 (2019).
- 6) E. Saitoh, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **88**, 182509 (2006).
- 7) K. Nishida, Y. Teki, E. Shikoh, Solid State Commun., **312**, 113898 (2020).

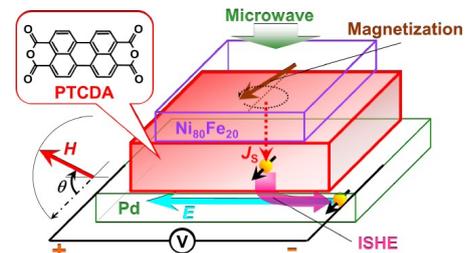


Fig. 1. A sample structure in this study.

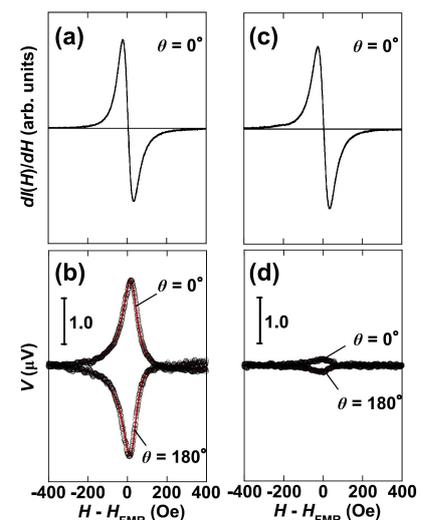


Fig. 2. (a) FMR spectrum and (b) output voltage properties of a sample with a Pd layer<sup>7)</sup>. (c) FMR spectrum and (d) output voltage properties of a sample with a Cu layer<sup>7)</sup>.

# 有機半導体ナフチルジアミン蒸着薄膜中のスピンの輸送

大西裕一郎、手木芳男\*、仕幸英治  
(阪市大院工、\*阪市大院理)

Spin transport in thermally-evaporated organic-semiconductor naphthyl diamine films

Y. Onishi, Y. Teki\*, E. Shikoh  
(Osaka City Univ. Eng., \*Osaka City Univ. Sci.)

## はじめに

近年、純スピン流の輸送材料として分子材料が注目され、先行研究では真空蒸着法で成膜した結晶性分子の薄膜でスピン輸送が達成されている<sup>1)</sup>。本研究では、真空蒸着法で成膜した際にアモルファス構造をとる有機半導体ナフチルジアミン、*N,N'*-ジ-1-ナフチル-*N,N'*-ジフェニルベンジジン(alpha-NPD)に注目する<sup>2)</sup>。alpha-NPDは有機発光ダイオードの正孔輸送層として実用されている有機半導体であり、良好な電荷移動度を有する<sup>3)</sup>。このような発光素子への純スピン流の応用のため alpha-NPD におけるスピン輸送実験を行った。純スピン流の生成方法としては材料界面でのコンダクタンスミスマッチ<sup>4)</sup>を無視できる動力学的手法、スピンプンピングを用いて alpha-NPD 薄膜の室温におけるスピン輸送特性を評価した。

## 実験方法

真空蒸着装置を用いた電子ビーム蒸着、抵抗加熱蒸着によって Pd(10 nm)/alpha-NPD(*d*)/Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>(25 nm)の三層構造の試料を作製した(Fig.1)。強磁性共鳴を用いたスピンプンピングによって強磁性層 Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> から輸送層 alpha-NPD に純スピン流  $J_s$  が伝わり、さらに検出層 Pd に伝播される。純スピン流は Pd の大きいスピン軌道相互作用に由来した逆スピンホール効果(ISHE)<sup>5)</sup>によって起電力( $V_{ISHE}$ )に変換される。よって alpha-NPD 薄膜中のスピン輸送の達成は、Pd で起電力が観測され、それが逆スピンホール効果によるものであると確かめることで示される。強磁性共鳴の励起には電子スピン共鳴装置を、起電力の観測にはナノボルトメータを使用した。実験はすべて室温で行った。

## 実験結果

Fig.2 に  $d = 50$  nm の試料における強磁性共鳴スペクトルと共鳴磁界付近における Pd の出力電圧特性を示す。マイクロ波の出力は 200 mW で、静磁界の印加角度は  $0^\circ$  と  $180^\circ$  の両方で評価した。共鳴磁界付近において静磁界方向の逆転に伴った起電力の反転が観測された。またこの出力電圧はマイクロ波パワーと正の相関を持っていることがわかった。またスピン軌道相互作用の影響を調べるため Pd を、その大きさが小さい Cu に変えて同様の実験を行ったところ起電力は Pd のときと比べ小さかった。以上のことから Pd の試料における出力電圧は主に逆スピンホール効果によるものと結論した。つまり alpha-NPD 薄膜中のスピン輸送を達成した。学会時には上記の詳細なデータに加えて起電力の alpha-NPD 膜厚依存性についても議論する。

## 参考文献

- 1) Y.Tani, et al., Appl. Phys. Lett., 107,242406, (2015).
- 2) José C.S.Costa, et al., J. Mater. Sci., 53,12974-12987, (2018).
- 3) 時任静士, et al., 有機 EL ディスプレイ, オーム社, (2004).
- 4) G. Schmidt, et al., Phys. Rev. B 67, R4790 (2000).
- 5) E. Saitoh, et al., Appl. Phys. Lett. 88, 182509 (2006).

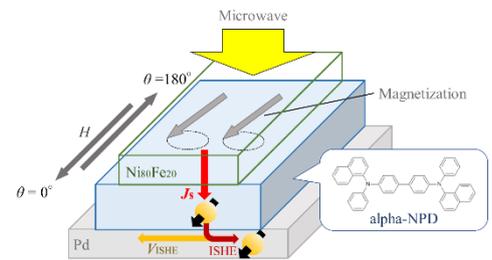


Fig. 1. sample structure and spin-pumping.

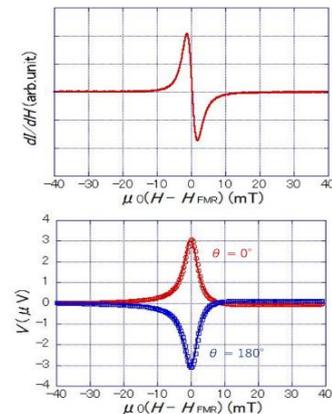


Fig. 2. (a) FMR spectrum. (b) Output voltage under the FMR.