

# 半導体/強磁性体積層構造における界面導入と周期長制御による

## 横ゼーベック係数の増大

北浦 怜旺奈<sup>1</sup>, 石部 貴史<sup>1</sup>, 水口 将輝<sup>2</sup>, 中村 芳明<sup>1</sup>  
(阪大院基礎工<sup>1</sup>, 名大未来研<sup>2</sup>)

Enhancement of transverse Seebeck coefficient in semiconductor/ ferromagnetic metal multilayer by introducing interface and controlling periodic thickness

Reona Kitaura, Takafumi Ishibe, Masaki Mizuguchi, Yoshiaki Nakamura  
(Osaka Univ.<sup>1</sup>, Nagoya Univ.<sup>2</sup>)

### はじめに

熱から直接発電可能な熱電発電における一つの効果である異常ネルンスト効果は、同じ無次元性能指数  $ZT$  が得られた際、ゼーベック効果を用いる場合と比較して、デバイスの熱電変換効率が高いと予測されるため、多大な注目を集めている[1]。異常ネルンスト効果の  $ZT$  向上には熱伝導率の低減と横ゼーベック係数の増大が必要である。近年、薄膜化に伴う電子状態変化[2]、積層化に伴う界面効果[3]などの様々な横ゼーベック係数増大法が報告されてきた。従来研究では、金属材料を用いているため、熱伝導率が高く、 $ZT$  は低い値に留まる。一方、ゼーベック効果を用いた熱電変換では、アモルファス半導体や半導体ナノ構造の導入によって、劇的な熱伝導率の低減が達成されている[4-6]。そこで我々は、低熱伝導率なアモルファス半導体層と強磁性金属層からなる積層構造に着目し、熱伝導率の低減と横ゼーベック係数の増大の同時実現に成功してきた[7]。本研究では、積層周期長の減少に伴う電子状態変化及び界面効果を同時に取り入れることで横ゼーベック係数のさらなる増大を狙う。具体的には、各層の層厚を制御した半導体 Si/強磁性金属 Co 積層構造を作製し、横ゼーベック係数増大の観測を目的とした。

### 実験方法

電子線蒸着装置を用いて、Si (001)基板上に室温で Co, Si をそれぞれ同じ膜厚で交互に積層し Si/Co 積層構造を作製した。比較用試料として、室温で Co 単層膜を作製した。構造評価には、ラマン分光法、X線回析法、走査型電子顕微鏡法(SEM)を用いた。横ゼーベック係数評価には、物理特性測定装置を用いた。

### 実験結果

Si/Co 積層構造を SEM で観察したところ、各層で均一に積層されていることが分かった。横ゼーベック係数を測定したところ、周期長 20 nm の Si/Co 積層構造は、参照用の Co 単層膜よりも 2.4 倍程度高い横ゼーベック係数を示した。さらに周期長を 10 nm まで減少させると、Si/Co 積層構造の横ゼーベック係数は、周期長 20 nm のものと比較して 1.6 倍増大し、0.34  $\mu\text{V}/\text{K}$  を達成した。本講演で詳細を報告する。

### 参考文献

[1] M. Mizuguchi, et al, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **20**, 262 (2019). [2] T. C. Chuang, et al, *Phys. Rev. B* **96**, 174406 (2017). [3] K. Uchida, et al., *Appl. Phys. Lett.* **114**, 113902 (2019). [4] Y. Nakamura, et al, *Nano Energy* **12**, 845 (2015). [5] T. Taniguchi, et al, *ACS Appl. Mater. Interface* **12**, 25428 (2020). [6] Y. Nakamura *Sci. Technol. Adv. Mater. Interface* **19**, 31 (2018). [7] R. Kitaura, et al., *Appl. Phys. Express* **14**, 075002 (2021).

# 強磁性共鳴発熱効果により誘引される動的熱スピン注入の定量的評価

大日方初良、飯森陸、大西紘平、木村崇  
(九大院理)

Quantitative analysis of dynamical thermal spin injection induced by FMR heating effect  
S. Obinata, R. Iimori, K. Ohnishi, T. Kimura  
(Dept. of Physics, Kyushu Univ.)

## はじめに

近年、強磁性体 / 非磁性体 2 層構造において、FMR を励起することで、強磁性体から非磁性体にスピンを注入する動的スピン注入法が注目されている。この動的スピン注入法は、素子作製が容易で、ワイヤレスにスピン流を生成可能であるという点から、スピン流関連の物理現象の評価・検証に頻繁に活用されている。動的スピン注入の主な機構としては、スピンポンピングがよく知られているが、近年、新たな機構として、FMR 時に生じる強磁性共鳴発熱効果に起因した熱スピン注入の寄与も指摘されている<sup>1</sup>。しかしながら、これら 2 つの機構を実験的に区別することは単純ではなく、更に、熱スピン注入において生成されるスピン流には、スピン偏極伝導電子とマグノンの 2 つの寄与が混在する。したがって、これらの機構の詳細解明及び、素子構造の最適化により、動的スピン注入効率の飛躍的増大が期待される。本発表では、熱スピン注入の寄与を意識した素子を作製し、様々な条件下における動的スピン注入測定結果について議論する。

## 実験方法

試料は、図 1 に示すような、強磁性体である CoFeB(10 nm) と非磁性体とである Pt(5 nm) からなる 3 層構造及び、電極である Cu(100 nm) から構成される。測定では、外部磁場を試料面内方向に印加しながら、Cu 電極に振幅変調を施した高周波電流を印加し、動的スピン注入時に非磁性体内で生成される逆スピンホール電圧を Cu 電極において、間接的かつ、高精度に検出した。ここで、この 3 層構造においては、その対称的な構造から CoFeB / Pt 界面のスピンポンピングの寄与は相殺されることが期待される。素子構造内の温度勾配を変化させ、熱スピン注入を抽出するために、室温 298 K および、液体窒素下 77 K での測定を行った。

## 実験結果

図 2 に、(a) 室温および、(b) 液体窒素下で動的スピン注入測定を行った結果を示す。室温では正の対称的なスペクトルが得られたのに対し、液体窒素下では、負の対称的なスペクトルが観測された。このスペクトルの符号反転は、3 層構造内の温度勾配が変化することで、スピン注入方向が変化したことを表しており、動的スピン注入における熱スピン注入の存在を示している<sup>2</sup>。本発表では、この結果に加え、熱スピン注入におけるスピン偏極伝導電子とマグノンの寄与を明らかにするために、動的スピン注入における強磁性体の膜厚依存性を調査した結果についても議論する。

## 参考文献

- 1) K. Yamanoi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **107**(18), 182410 (2015)
- 2) S. Obinata *et al.*, Scientific Reports. **12**, 3467 (2022).

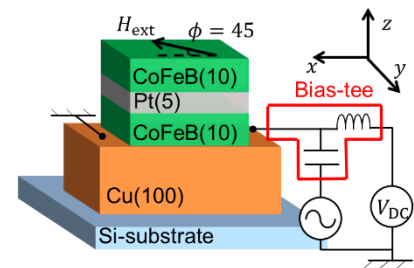


図 1 素子構造

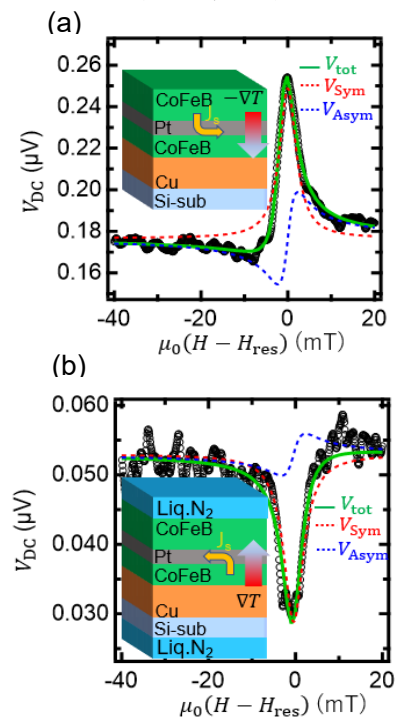


図 2 動的スピン注入スペクトル

# アモルファス GdFe フェリ磁性薄膜における異常ネルンスト係数への異常ホール抵抗率の寄与

小林祐希<sup>1</sup>, 笠谷雄一<sup>2</sup>, 吉川大貴<sup>2</sup>, 塚本新<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>日本大学大学院理工学研究科, <sup>2</sup>日本大学理工学部)

The effect of Anomalous Hall resistivity on Anomalous Nernst coefficient in amorphous GdFe ferrimagnetic thin film

Yuki Kobayashi<sup>1</sup>, Yuichi Kasatani<sup>2</sup>, Hiroki Yoshikawa<sup>2</sup>, Arata Tsukamoto<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Graduate school of Science and Technology, Nihon Univ.,

<sup>2</sup>College of Science and Technology, Nihon Univ.)

**はじめに** 磁性が介在する熱電デバイスへの礎となる結晶系強磁性体における異常ネルンスト係数  $S_{ANE}$  の体系的な検討がされており<sup>[1]</sup>, 温度勾配(y 方向)が勾配に直交(x)方向の電界に直接変換される寄与とゼーベック効果により生じた電流と異常ホール効果による横電圧への寄与との和  $S_{ANE} = \rho_{yy}\alpha_{yx} - \rho_{AHE}\alpha_{yy}$  として表されることが報告されている<sup>[2]</sup>. 本報告ではこの表式を用い, アモルファスフェリ磁性体における各項の寄与を検討するため, GdFe 薄膜にて合金組成比を変えた際の  $S_{ANE}$  と異常ホール抵抗率  $\rho_{AHE}$  の相関につき検討・報告する.

**実験方法** 異なる合金組成比の試料群 SiN(60 nm)/Gd<sub>x</sub>Fe<sub>100-x</sub>(20 nm)/SiN(5 nm)/glass sub. ( $x = 16.7, 20, 25, 30, 40, 50, 60$  at.%) をマグネトロンスパッタリング法により作製(以下試料 A, B, C, D, E, F, G)した. 室温における磁化補償組成は  $20 < x < 25$  にあることを試料振動型磁力計による磁化曲線測定で確認した. 低温側試料温度  $T_1$  を 310 K として膜面垂直(z)方向に外部磁界  $H$  を印加し, 膜面内(y)方向に温度勾配  $\nabla T$  を与え, それらに直交する膜面内(x)方向の電極間電圧  $V_x$  を測定した. また, 温度勾配を 0 K/cm として, y 方向に直流電流 0.1 mA を印加した際の x 方向の異常ホール電圧  $V_{AHE}$  を測定した.

**実験結果と考察**  $\nabla T = 20$  K/cm の際の  $V_x$  の外部磁界依存性を Fig. 1 に示す. いずれの試料においても温度勾配と磁化方向に応じた  $V_x$  が測定された. 外部磁界  $H$  における異常ネルンスト電圧  $V_{ANE}(H)$  を  $2V_{ANE}(H) = V_x(+H) - V_x(-H)$  と定義し, 電極間距離を  $W$  として,  $V_{ANE}(H) = S_{ANE} \nabla T \cdot W$  より求めた異常ネルンスト係数  $S_{ANE}$  と, 異常ホール抵抗率  $\rho_{AHE}$  の組成依存性を Fig. 2 に示す. Gd 含有量が増大すると  $|S_{ANE}|, |\rho_{AHE}|$  は試料 B, C で極大値を示し, それ以降  $|S_{ANE}|, |\rho_{AHE}|$  は単調に減少する傾向を示した.  $\rho_{AHE}$  と  $S_{ANE}$  の GdFe 組成比依存性が極めて類似し,  $\alpha_{yy}$  は組成比に対し符号は変わらず単調変化すると考えられることからアモルファス GdFe フェリ磁性薄膜では  $S_{ANE} = \rho_{yy}\alpha_{yx} - \rho_{AHE}\alpha_{yy}$  に対し右辺第二項の寄与が支配的であると考えられる. 当日は, ゼーベック係数  $S_{SE}$  の GdFe 組成比に対する変化傾向も併せ, 各項の寄与につき検討を行う.

**謝辞** 本研究の一部は, JSPS 科研費(21K04184)の支援を受けたものである.

## 参考文献

- [1] K. Hasegawa *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 252405 (2015).  
 [2] W. Zhou *et al.*, *Nat. Mater. Lett.* **20**, 463-467(2021).

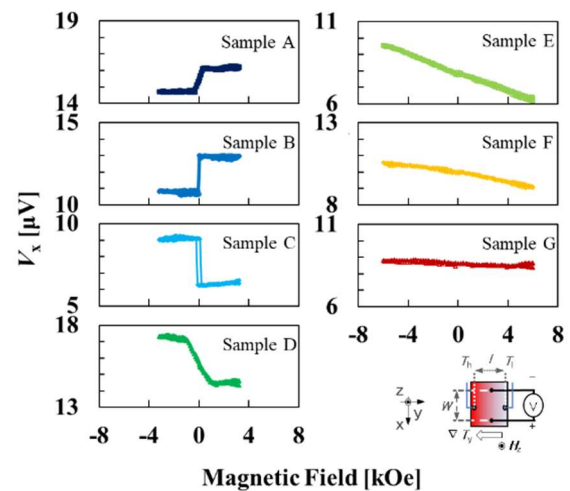


Fig. 1 External magnetic field dependence of transverse voltage  $V_x$  of GdFe thin films

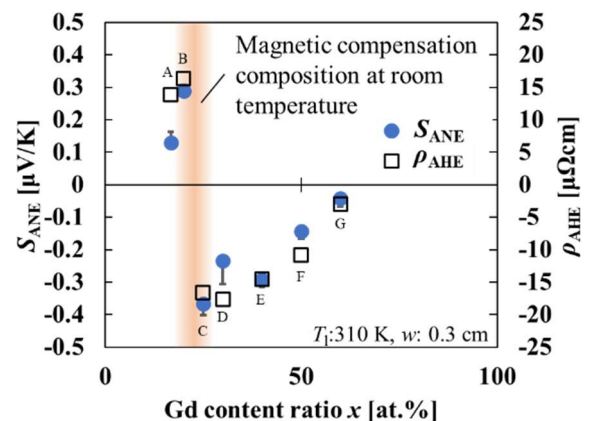


Fig. 2 Composition dependence of Nernst coefficient of GdFe thin films

## SrTiO<sub>3</sub> 基板上の窒化物薄膜における異常ネルンスト効果の変調

伊藤啓太<sup>1</sup>、Himanshu Sharma<sup>1,2</sup>、水口将輝<sup>1,2,3</sup>、高梨弘毅<sup>1,4</sup>  
(東北大金研<sup>1</sup>、名古屋大<sup>2</sup>、阪大 CSRN<sup>3</sup>、原子力機構先端研<sup>4</sup>)

Modulation of the anomalous Nernst effect in nitride films on SrTiO<sub>3</sub> substrates

Keita Ito<sup>1</sup>, Himanshu Sharma<sup>1,2</sup>, Masaki Mizuguchi<sup>1,2,3</sup>, Koki Takanashi<sup>1,4</sup>

(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, Nagoya Univ.<sup>2</sup>, CSRN, Osaka Univ.<sup>3</sup>, ASRC, JAEA<sup>4</sup>)

**【背景】**近年、新たなエネルギーハーベスト技術として金属強磁性体材料における異常ネルンスト効果(ANE)を利用した熱電変換が注目されている。しかし、現状では半導体材料におけるゼーベック効果(SE)を利用した熱電変換に対して、熱電能が大幅に及ばない点が課題となっている。したがって、ANEによる発電出力の向上には、大きな異常ネルンスト係数( $S_{ANE}$ )を示す、新奇強磁性体材料の開発が必須の状況である。強磁性金属窒化物の Fe<sub>4</sub>N および Mn<sub>4</sub>N 薄膜では、それぞれ  $2.2 \mu\text{V/K}^1$  および  $0.50 \mu\text{V/K}^2$  の Fe 等の 3d 遷移金属よりも大きな  $S_{ANE}$  が報告されている。本研究では、異なる窒化物基板上に Fe<sub>4</sub>N および Mn<sub>4</sub>N 薄膜をエピタキシャル成長することで、窒化物薄膜における  $S_{ANE}$  の成長基板依存性を評価した。

**【実験方法】**Fe または Mn および高周波ラジカル N の同時供給による分子線エピタキシー法により、MgO(001) および SrTiO<sub>3</sub>(STO)(001)基板上に、基板温度 450 °C で Fe<sub>4</sub>N および Mn<sub>4</sub>N 薄膜(27 nm)のエピタキシャル成長を試みた。構造は X 線回折(XRD)で評価した。作製した薄膜をホールバー形状の素子に加工し、ANE、SE、異常ホール効果(AHE)を評価した。熱電効果の測定時には、温度勾配( $\nabla T$ )を膜面内のホールバー長手方向(Fe<sub>4</sub>N, Mn<sub>4</sub>N[110])に、外部磁場を膜面外方向に印加した。 $\nabla T$  の測定には素子上に作製したオンチップ温度計を用いた<sup>3)</sup>。

**【結果】**XRD 測定の結果から、各基板上への Fe<sub>4</sub>N および Mn<sub>4</sub>N 薄膜のエピタキシャル成長を確認できた。MgO(001)基板上の Fe<sub>4</sub>N 薄膜の  $S_{ANE}$  は  $1.4 \mu\text{V/K}$ 、ゼーベック係数( $S_{SE}$ )は  $-2.9 \mu\text{V/K}$  となった。STO(001)基板上の Fe<sub>4</sub>N 薄膜では、MgO(001)基板上の試料の 2 倍程度の  $S_{ANE} = 2.8 \mu\text{V/K}$  と、10 倍程度の  $S_{SE} = -27 \mu\text{V/K}$  が得られた。Fe<sub>4</sub>N 薄膜の成膜温度や膜厚を変えた実験の結果から、STO(001)基板の表面付近に酸素空孔が形成され、酸素欠損領域において大きな負の  $S_{SE}$  が発現し<sup>4)</sup>、それにより生じたゼーベック電流が Fe<sub>4</sub>N 層へと流れ込み、AHE により横方向電流へと変換され、実効的な  $S_{ANE}$  が増強されたと考えられる。 $|S_{SE}|$  が大きな層を基板との界面付近に形成することで、隣接する強磁性体薄膜の実効的な  $S_{ANE}$  が増強できることを示せた。MgO(001)基板上の Mn<sub>4</sub>N 薄膜では  $S_{ANE} = 0.20 \mu\text{V/K}$ 、 $S_{SE} = -13 \mu\text{V/K}$  が得られた。一方で、STO(001)基板上の Mn<sub>4</sub>N 薄膜においては  $S_{ANE} = 0.15 \mu\text{V/K}$ 、 $S_{SE} = -19 \mu\text{V/K}$  となり、MgO(001)基板上に作製した Mn<sub>4</sub>N 薄膜よりも小さな  $S_{ANE}$  が得られた。縦抵抗率を  $\rho_{xx}$ 、横ペルチェ係数を  $\alpha_{xy}$ 、異常ホール角を  $\tan\theta_{AHE}$  とすると、 $S_{ANE} = \rho_{xx}\alpha_{xy} - S_{SE}\tan\theta_{AHE}$  で示される。Fe<sub>4</sub>N は  $\alpha_{xy}$  と  $\tan\theta_{AHE}$  の双方が正であり、酸素欠損した STO 層の影響で試料全体としての  $S_{SE}$  が負に増強されたことで、実効的な  $S_{ANE}$  が正に増強された。しかし、Mn<sub>4</sub>N は  $\alpha_{xy}$  が正である一方で  $\tan\theta_{AHE}$  が負であり、 $S_{SE}$  が負に増強されたことで実効的な  $S_{ANE}$  が減少したと考えられる。

**【参考文献】** 1) S. Isogami *et al.*, Appl. Phys. Express **10**, 073005 (2017). 2) S. Isogami *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 092407 (2021). 3) J. Wang *et al.*, Adv. Electron. Mater. **8**, 2101380 (2022). 4) H. P. R Frederikse *et al.*, Phys. Rev. **134**, A442 (1964).

**【謝辞】**本研究は JSPS 科研費基盤 C(JP21K04859)および基盤 S(JP18H05246, JP21H05016)、東北大学スピントロニクス学術連携研究教育センター、東北大学金属材料研究所先端エネルギー材料理工共創研究センター、東北大学電気通信研究所共同プロジェクトの支援を受けた。

## Characterization of the anomalous Nernst effect in $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ films

W. Yin<sup>1</sup>, K. Ito<sup>1</sup>, Y. Tsubowa<sup>2</sup>, M. Tsujikawa<sup>2</sup>, M. Shirai<sup>2</sup>, K. Takanashi<sup>1,3</sup>  
(IMR, Tohoku Univ.<sup>1</sup>, RIEC, Tohoku Univ.<sup>2</sup>, ASRC, JAEA<sup>3</sup>)

### 【Introduction】

Thermoelectric power generation devices have a promising prospect because they can directly convert thermal energy to electric energy without pollution and noise. As one of the thermoelectric effects, the anomalous Nernst effect (ANE) generates an electric field ( $E_{\text{ANE}}$ ) orthogonal to both magnetization and temperature gradient ( $\nabla T$ ) in ferromagnetic materials.  $\text{Fe}_4\text{N}$  is a promising ferromagnetic material with relatively large anomalous Nernst coefficient ( $S_{\text{ANE}}$ ) of 2.2  $\mu\text{V}/\text{K}$  [1]. In this study,  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were fabricated and their ANEs were characterized. The Fermi level of  $\text{Fe}_4\text{N}$  was tuned by adding Ni atoms and  $S_{\text{ANE}}$  was modulated.

### 【Experiments】

The  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were epitaxially grown on  $\text{MgAl}_2\text{O}_4(\text{MAO})(001)$  substrates at 450 °C by molecular beam epitaxy. Fe and Ni were supplied by electron beam gun and N was simultaneously supplied by radio-frequency plasma gun. The structures of the samples were characterized by x-ray diffraction. The Ni/Fe ratio,  $x$ , in  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films was characterized by electron probe micro analyzer, and  $x$  was changed in the range of  $0 \leq x \leq 2.8$ . The samples were microfabricated into a Hall bar shape, and ANE, the Seebeck effect, and the anomalous Hall effect (AHE) were characterized [2]. The external magnetic field dependence of  $E_{\text{ANE}}$  was measured at different  $\nabla T$  for all the samples and  $S_{\text{ANE}}$  was estimated. The transverse conductivity ( $\sigma_{xy}$ ) and the transverse thermoelectric conductivity of  $\text{Fe}_3\text{NiN}$  was calculated by the first-principles calculation [3].

### 【Results】

The  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  films were epitaxially grown on the MAO(001) substrates at 450 °C, but the uniform  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$  phase was hard to form with the increase of  $x$  and started to decompose into FeNi at about  $x = 2.3$ . As for the result of ANE, the  $S_{\text{ANE}}$  decreased from 1.7 to 0.6  $\mu\text{V}/\text{K}$  with the increase of  $x$  from 0 to 2.8. The addition of Ni did not improve the ANE in  $\text{Fe}_{4-x}\text{Ni}_x\text{N}$ . The Seebeck coefficient ( $S_{\text{SE}}$ ) increased from -2.3 to 1.2  $\mu\text{V}/\text{K}$  with the increase of  $x$  from 0 to 2.8. By using the experimental data of  $S_{\text{ANE}}$ ,  $S_{\text{SE}}$ , and the anomalous Hall angle,  $\alpha_{xy}$  was calculated. The result showed that  $\alpha_{xy}$  decreased with the increase of  $x$  and the change of  $\alpha_{xy}$  dominated the change of  $S_{\text{ANE}}$ . In order to enhance ANE in  $\text{Fe}_4\text{N}$ , another third element, which increases  $\alpha_{xy}$  of  $\text{Fe}_4\text{N}$ , needs to be found. In the presentation, the obtained  $\sigma_{xy}$  and  $\alpha_{xy}$  values of the sample with  $x = 1.2$  will be compared with the calculation results.

### 【Acknowledgments】

This work was supported by the Grants-in-Aid for Scientific Research (S) (Grant No. JP18H05246) and (C) (Grant No. JP21K04859) from JSPS KAKENHI, Collaborative Research Center on Energy Materials, Institute for Materials Research, Tohoku University, and the Cooperative Research Project of the Research Institute of Electric Communication, Tohoku University.

### 【References】

- [1] S. Isogami, K. Takanashi, and M. Mizuguchi, Appl. Phys. Express **10**, 073005 (2017).
- [2] J. Wang, Y.-C. Lau, W. Zhou, T. Seki, Y. Sakuraba, T. Kubota, K. Ito, and K. Takanashi, Adv. Electron. Mater. **8**, 2101380 (2022).
- [3] Y. Tsubowa, M. Tsujikawa, and M. Shirai, the 69th JSAP spring meeting 2022, 23a-E205-5 (2022).

## 強磁性/重金属界面における動的スピンの注入の圧力効果

飯森陸、大日方初良、光田暁弘、木村崇  
(九大院理)

Pressure effects on dynamical spin injection at ferromagnet/heavy metal interface

R. Iimori, S. Obinata, A. Mitsuda, T. Kimura  
(Dept. of Phys, Kyushu Univ.)

### はじめに

近年、強磁性(FM)/非磁性重金属(HM)二層膜におけるスピン軌道相互作用に起因した電流とスピン流の相互変換が注目されている。FM/HMにおける電流-スピン流変換の起源として、バルクのスピンホール効果や界面のラシュバ・エデルシュタイン効果が知られているが、電流-スピン流変換効率は数パーセントと極めて小さい。一方で、FM/HM界面におけるラシュバ型スピン軌道相互作用や交換相互作用は界面の原子間距離に極めて敏感であることが予想され、界面状態を何らかの外的作用により制御できれば、スピン流生成効率の飛躍的増大が期待され、スピン流のデバイス応用に向けて極めて重要な結果となる。そこで最近我々は、高圧力下において強磁性共鳴によるスピン流注入を行う手法を新たに開発した<sup>1,2</sup>。今回の発表では、この手法を用いて、FM/HM二層膜におけるスピンホール信号の圧力依存性について議論する。

### 実験方法

本研究で用いた試料は、CoFeB(10 nm)/Pt(5 nm)およびCoFeB(10 nm)/Ag(5 nm)/Bi(10 nm)であり、DCスパッタリング法により成膜した。圧力印加にはピストンシリンダー型圧力セルを用いて、数GPa程度の圧力下において動的スピン流注入による逆スピンホール信号を測定した(図1)。加えて、圧力印加前後の膜質・界面状況を断面TEMやX線反射率法を用いて解析した。

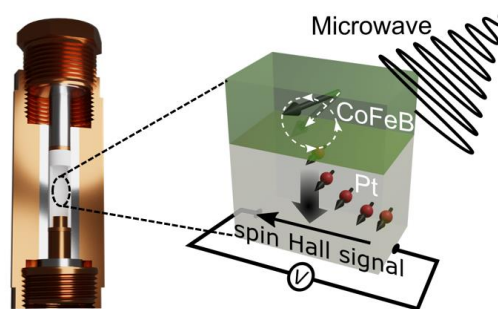


図1: 圧力セルを用いた動的スピン注入測定

### 実験結果

図2に、CoFeB(10 nm)/Pt(5 nm)二層膜における動的スピン流注入による逆スピンホール信号の圧力依存性の結果を示す。1 GPaまでの圧力印加により、逆スピンホール信号が約10%増加した。また、同時に強磁性層のダンピング定数の増大も確認した。これらの増強効果の起源として、界面スピンミキシングコンダクタンスの増強やPt層のスピンホール角の増強効果が予想される。そこで、これらの起源を解明するため、同積層構造における磁気抵抗効果やトンネル接合を用いたPt層のスピンホール角の精密測定、更には、スピンホール伝導度の圧力依存性に関するDFT計算を行い、界面の交換相互作用の圧力増強が支配的であると結論付けた。

当日はこの結果に加え、CoFeB(10 nm)/Ag(5 nm)/Bi(10 nm)におけるラシュバ型スピン軌道相互作用の圧力変調を狙った研究についても紹介する。

### 参考文献

- 1) S. Obinata *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 152401 (2021)
- 2) R. Iimori *et al.*, Appl. Phys. Express **15**, 033003 (2022)

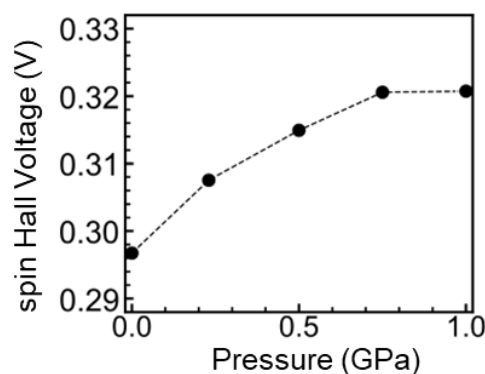


図2: 逆スピンホール信号の圧力依存性

## ST-FMR 測定における周波数依存アーティファクト

洞口泰輔<sup>1</sup>、山野井一人<sup>1</sup>、松尾衛<sup>2</sup>、能崎幸雄<sup>1,3</sup>( <sup>1</sup>慶大理工、<sup>2</sup>中国科学院大学 Kavli-ITS UCAS、<sup>3</sup>慶大スピン研)

Frequency-dependent Artifact in ST-FMR Measurements

T. Horaguchi<sup>1</sup>, K.Yamanoi<sup>1</sup>, M.Matsuo<sup>2</sup>, Y.Nozaki<sup>1,3</sup><sup>1</sup>Keio Univ., <sup>2</sup>Kavli-ITS UCAS, <sup>3</sup>CSRN Keio Univ.**はじめに**

スピントルク強磁性共鳴(ST-FMR)法[1]は、非磁性体(NM)/強磁性体(FM)二層膜におけるスピントルク効率の評価に広く用いられる手法である。二層膜に交流電流を印加すると、スピンホール効果等により NM が生成するスピン流のスピントランスファートルクと、電流のエルステッド磁場由来のトルク協奏により FMR が誘引される。その際、それぞれのトルクに由来する FMR スペクトルを対称成分と反対称成分として分離できるため、単位電流あたりのスピントルク効率を求めることができる。しかし、NM/FM 二層膜では NM から FM へのスピン流注入と同時に、逆スピンホール効果や縦型スピンゼーベック効果に起因する起電力などのアーティファクト信号がスペクトルに重畳するため、これがスピントルク効率の評価を阻害することが指摘されており、その分離手法についてこれまで精力的に研究されてきた[2,3]。

われわれは、これまでの ST-FMR 測定ではほとんど無視されてきた周波数依存性に着目して FMR スペクトルの分析をしたところ、NM/FM 二層膜に印加した交流電流の周波数に依存した大きなアーティファクト電圧を発見した。本発表では、この周波数依存アーティファクトの起源を検討した結果を報告する。

**実験方法・結果**

マグネトロンスパッタリングを用いたリフトオフ法により、Si 基板上に NM(10 nm)/Ni<sub>95</sub>Cu<sub>5</sub>(10 nm)二層膜の細線を作製し、これに交流電流印加用のコプレーナ線路を取り付けた。このような素子にマイクロ波信号発生器を接続し、外部磁場を細線から 45°方向に印加しながら、交流電流印加時に発生する整流電圧をバイアステー経由で測定した。NM 層としてスピン軌道相互作用(SOI)の強い Pt と、弱 SOI の Al, Cu を用いた場合について、 $f=5\sim 30$  GHz の周波数領域でスピントルク効率を評価した。

**実験結果**

図1に NM = Pt, Al, Cu の NM/Ni-Cu 細線について測定したスピントルク効率の周波数依存性を示す。30 GHz でのスピントルク効率は、Pt : 0.07、Al: 0.02、Cu:0.006 であり、先行研究の報告値と矛盾しない。しかし、10GHz 以下の低周波数領域を見ると、スピントルク効率が周波数の低下にしたがって急激に増加しており、Cu では 5 GHz で 30 GHz の時の 4 倍にも達した。ST-FMR 理論によると、スピントルク効率は周波数に依存しないと考えられるため、何らかのアーティファクト信号が重畳していると考えられる。本発表では、低周波数領域でみられたアーティファクトの原因として、(1) FM 層からのスピンポンピングによる逆スピンホール電圧、(2) 磁化ダイナミクス誘引による発熱が膜厚方向に作る温度勾配によって生じる熱スピン起電力、(3) 低磁場領域での磁化未飽和の影響、および(4) 非線形マグノン散乱によるポンピングスピン流増大について、それぞれの可能性を定量的に検討した結果を報告する。

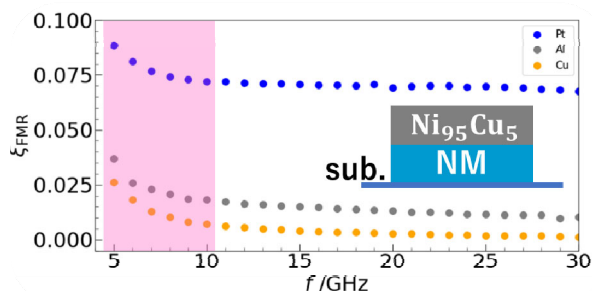


図1 スピントルク効率の周

波数依存性

**参考文献**

- [1] L.Liu *et al.* Phys. Rev. Lett., **106**, 036601 (2011).  
 [2] Kondo *et al.* APEX **9** 023002 (2016)  
 [3] Karimeddy *et al.* PRAppl. **14** 024024

# Ti/W 傾斜材料におけるスピントルク効率の成膜条件依存性

中山颯人<sup>1</sup>, 洞口泰輔<sup>1</sup>, Thomas Scheike<sup>1</sup>, 山野井一人<sup>1</sup>, 能崎幸雄<sup>1,2</sup>  
(慶大理工<sup>1</sup>, 慶大スピン研<sup>2</sup>)

Sputtering condition dependence of spin-torque efficiency in Ti/W composition graded material

H. Nakayama<sup>1</sup>, T. Horaguchi<sup>1</sup>, T. Scheike<sup>1</sup>, K. Yamanoi<sup>1</sup>, and Y. Nozaki<sup>1,2</sup>

(Dept. of Phys., Keio Univ.<sup>1</sup>, CSRN, Keio Univ.<sup>2</sup>)

## はじめに

近年、新奇なスピン流生成機構としてスピン渦度結合(SVC)が注目を集めている。しかし、SVCにおけるスピン軌道相互作用(SOI)の寄与など、その微視的機構には未解明な点が多い。われわれは、異種材料の接合界面をナノスケールで組成変調させた材料(傾斜材料)を作製し、界面構造と生成されるスピン流の相関を調べることで、組成傾斜部の電気伝導度勾配が作る電流渦のSVC由来のスピン流に関する研究を行っている。今回、SOIの大きさや符号が違うTiとWからなる傾斜材料を異なる成膜条件で作製し、そのスピントルク効率の成膜条件依存性を調べたので報告する。

## 実験方法

マグネトロンスパッタリングとフォトリソグラフィを用いたリフトオフ法により、Si基板上にTi(10)/W( $t_i/2$ )/Ti( $t_i/2$ )/W(10)/Ni<sub>95</sub>Cu<sub>5</sub>(10)/SiO<sub>2</sub>(20)多層膜を成膜した(膜厚の単位はnm)。Ti(10)とW(10)の間に挿入した極薄のW/Ti層の厚さ $t_i$ は、0から2.0nmまで0.5nm刻みで変化させた。本実験では、TiとWのスパッタ成膜レートが異なる2種類の条件(F: 0.99 Å/s (W), 0.82 Å/s (Ti)とS: 0.46 Å/s (W), 0.22 Å/s (Ti))で多層膜を作製した。これらの試料に対し、原子間力顕微鏡(AFM)で表面観察を行い、ラフネスの成膜条件依存性を調べた。さらに、スピントルク強磁性共鳴(ST-FMR)法[1]を用いて、各々のTi/W傾斜材料のスピントルク効率 $\xi_{\text{FMR}}$ を評価し、 $\xi_{\text{FMR}}$ の $t_i$ 依存性が成膜条件によりどのように変化するかを調べた。

## 実験結果

Fig.1に成膜条件(F)と(S)で作製した多層膜表面の二乗平均平方根粗さ $R_{\text{ms}}$ の $t_i$ 依存性を示す。スパッタリング速度を遅くすることにより、試料表面の粗さが大きく低減されている様子がわかる。また、成膜条件(F)の表面には、高さ1.5nm程度の島状の析出物が見られたのに対し、成膜条件(S)の表面には全く見られなかった。Fig.2は、成膜条件(F)と(S)で作製した多層膜について測定した $\xi_{\text{FMR}}$ の $t_i$ 依存性である。成膜条件(S)の場合、Si/Al傾斜材料を用いた先行研究の結果[2]と同様に、 $t_i$ の減少に伴い $\xi_{\text{FMR}}$ が正方向に増加する傾向が見られた。一方、成膜条件(F)では、 $t_i$ に対する $\xi_{\text{FMR}}$ 変化にばらつきが大きい。したがって、組成傾斜幅によるスピントルク効率の制御には、傾斜界面の凹凸を抑えることが重要であると考えられる。

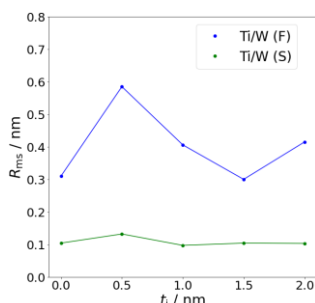


Fig.1 Root mean square roughness  $R_{\text{ms}}$  as a function of insertion layer thickness  $t_i$

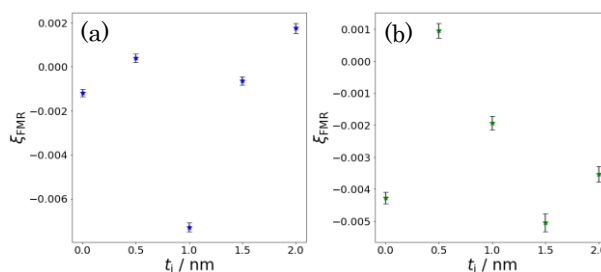


Fig.2 (a)  $t_i$  dependence of spin-torque efficiency  $\xi_{\text{FMR}}$  for samples prepared under sputtering condition (F)  
(b)  $t_i$  dependence of  $\xi_{\text{FMR}}$  for samples prepared under sputtering condition (S)

## 参考文献

[1] L. Liu et al., Phys. Rev. Lett. **106**, 036601 (2011).

[2] T. Horaguchi et al., submitted (<https://www.researchsquare.com/article/rs-955888/v1>).



# 反強磁性絶縁体 NiO を介した熱スピン効果の光学測定

山崎匠, 関剛斎, 窪田崇秀, 高梨弘毅  
(東北大金研)

Optical measurement of thermo-spin effects through antiferromagnetic insulator NiO

T. Yamazaki, T. Seki, T. Kubota, and K. Takanashi  
(IMR, Tohoku Univ.)

## はじめに

スピнкаロリトロニクス進展に伴い、磁性材料が新たな熱電発電・熱マネジメント技術のコア材料として注目を集めている。熱流とスピン流の相互変換現象である熱スピン効果はスピнкаロリトロニクス現象の一種であり、熱流を出力とする熱スピン効果にはマグノンや伝導電子により駆動する2種類の効果がある[1]。非磁性金属/強磁性金属という金属接合系においては複数の熱スピン効果が同時に発現する上、強磁性金属層において磁気熱電効果である異常エッチングスハウゼン効果 (AEE) [2]による熱流も生成される。このように、金属接合系における温度変化は複数の物理的起源が寄与しており、温度変化の詳細を理解するためには、これらの寄与を分離することが不可欠である。そこで本研究では、非磁性金属 (Pt) /強磁性金属 ( $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$ ) 間に反強磁性絶縁体 NiO を挿入し、強磁性金属層を電氣的に絶縁することで、AEE の寄与を排除した熱スピン効果の測定を試みた。

## 実験結果

Pt/NiO/ $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$  (CoFeB)三層構造において Pt に電流を流すと、スピホール効果によりスピン流が生成される。このスピン流は反強磁性絶縁体である NiO を介して CoFeB に注入され、最終的に熱スピン効果による熱流が生じる。NiO はマグノンやスピン揺らぎによってスピン角運動量を輸送する一方、Pt-CoFeB 間を電氣的に絶縁するため、CoFeB における AEE を排除した測定が可能となる。マグネトロンスパッタリング法により MgO(111)基板上に Pt(10 nm)/NiO( $t$ )/CoFeB(20 nm)を作製した後、Al-O(20 nm)/Cr(5 nm)/Au(100 nm)をイオンビームスパッタリング法により成膜した。ここで Au 層は測温用トランスデューサーとなる。そして薄膜試料を幅 400  $\mu\text{m}$ 、長さ 2.5 mm の矩形状に微細加工した。熱スピン効果による温度変化の測定には、反射率の温度依存性 (サーモリフレクタンス) を利用した光学的測温技術とロックイン検出を組み合わせたロックインサーモリフレクタンス法[3]を用いた。ロックインサーモリフレクタンス法では試料の温度振幅  $A$  と位相  $\phi$  の温度変化情報を取得できる。 $t = 10$  nm のデバイスにおいて、入力電流の位相での温度変化を表す  $\Delta T (= A \cos \phi)$  の磁場  $H$  依存性を測定したところ、CoFeB の磁化曲線と同じ挙動を示した。Pt 層と CoFeB 層の間の抵抗測定により NiO 層が絶縁体であることは確認されており、熱スピン効果は強磁性層の磁化に比例することから、 $\Delta T$  が熱スピン効果に由来することが示された。続いて、熱スピン効果の信号強度を最大化する最適な  $t$  を決定するため、 $t = 5 - 50$  nm の範囲で  $A_{\text{odd}}$  の  $t$  依存性を調査した。ここで  $A_{\text{odd}}$  は、 $A_{\text{odd}} = |A(+H)e^{i\phi(+H)} - A(-H)e^{i\phi(-H)}|/2$  で定義され、 $H$  に依存しないバックグラウンド信号が除去された温度振幅を表す。 $A_{\text{odd}}$  は  $t = 10$  nm で最大値を示し、 $t$  の増加とともに単調に減少した。この結果から、本研究で用いた三層構造において AEE の寄与を排除し熱スピン効果を最大化できる最適な NiO 層厚さは、 $t = 10$  nm であることがわかった。また、 $A_{\text{odd}}$  の  $t$  依存性から NiO のスピン透過長を見積もったところ、得られた値は先行研究[4,5]と同じオーダーであり、 $A_{\text{odd}}$  の  $t$  依存性が NiO 中のスピン輸送を反映した結果となった。

## 謝辞

本研究は JSPS 科研費 (JP18H05246, JP21K20392) の支援を受けて行われた。

## 参考文献

- 1) K. Uchida, Proc. Jpn. Acad., Ser. B **97**, 69 (2021).
- 2) T. Seki *et al.*, Appl. Phys. Lett. **112**, 152403 (2018).
- 3) T. Yamazaki *et al.*, J. Phys. D: Appl. Phys. **54**, 354001 (2021).
- 4) Y. Wang *et al.*, Science **366**, 1125 (2019).
- 5) T. Ikebuchi *et al.*, Appl. Phys. Express **14**, 123001(2021).