

学位論文 博士(工学)

金属薄膜系におけるスピン流・軌道流
の生成現象と電流誘起トルクに関する研究

2023 年度

慶應義塾大学大学院 理工学研究科

鈴木 隆起

指導教員: 安藤和也 准教授

目次

第 1 章	序論	1
1.1	スピントロニクス発展の歴史的背景	1
1.2	イオン液体	4
1.2.1	イオン液体の一般的特徴	5
1.2.2	イオン液体による電気二重層及び電気化学エッチング	6
1.3	ファンデルワールス材料	8
1.3.1	ファンデルワールス強磁性材料	10
1.4	電子と角運動量間の相互作用	10
1.4.1	交換相互作用	11
1.4.2	スピン-軌道相互作用	11
1.5	伝導電子の角運動量流	12
1.6	角運動量保存則と角運動量流	13
1.7	磁化ダイナミクス	15
1.7.1	磁化の運動方程式	15
1.7.2	強磁性共鳴	16
1.8	ホール効果	18
1.8.1	正常ホール効果・異常ホール効果	18
1.8.2	スピンホール効果・軌道ホール効果	19
1.9	磁化と角運動量流の間に作用するトルク	21
1.9.1	スピントルク	21
1.9.2	軌道トルク	22
1.10	本研究の目的	24
1.11	本研究の構成	25
第 2 章	実験方法・解析方法	27

2.1	スピントルク強磁性共鳴法	27
2.1.1	スピントルク強磁性共鳴測定における直流電圧の導出	27
2.1.2	磁化の歳差角の導出	29
2.1.3	スピン軌道トルクによる有効場の導出	31
2.1.4	スピン軌道トルクの定量	33
2.2	異常ホール効果のスケーリング則	37
2.2.1	内因性異常ホール効果	38
2.2.2	外因性異常ホール効果	39
2.2.3	異常ホール効果の経験的スケーリング則	40
2.3	測定デバイス作製	40
2.3.1	マグネトロンスパッタリングによる成膜法	41
2.3.2	フォトリソグラフィによる微細加工法	41
2.3.3	Ar イオンビームミリングによる微細加工法	44
第 3 章	Fe/Pt 二層膜におけるスピホール効果及びスピントルクの電気化学制御	47
3.1	はじめに	47
3.2	イオン液体を用いたスピントルク強磁性共鳴測定	49
3.2.1	実験系のセットアップ	49
3.2.2	電気化学エッチングのサイクル	51
3.3	Fe/Pt 二層膜のスピントルク強磁性共鳴	51
3.3.1	電気化学エッチング手法に関する検討	54
3.4	本章のまとめ	56
第 4 章	ファンデルワールス強磁性体 Fe_5GeTe_2 における異常ホール効果	59
4.1	はじめに	59
4.2	Fe_5GeTe_2 薄膜の作製及び膜厚定量	61
4.3	Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスの作製	62
4.4	Fe_5GeTe_2 薄膜の異常ホール効果の測定	62
4.4.1	異常ホール抵抗の算出手法	62
4.4.2	異常ホール効果の温度依存性	63
4.5	異常ホール抵抗率及び縦抵抗率の温度依存性	63
4.6	異常ホール伝導度の温度依存性	66

4.7	低温領域での異常ホール効果のスケーリング	67
4.8	本章のまとめ	70
第 5 章	強磁性体/Ti 二層膜における軌道ホール効果および軌道トルクの観測	71
5.1	はじめに	71
5.2	コンビナトリアルスパッタリングによる組成傾斜膜の作製	73
5.3	デバイス作製及び実験系セットアップ	75
5.4	$\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}/\text{Ti}$ 二層膜のスピントルク強磁性共鳴	75
5.5	トルク効率の定量に用いた物理量	77
5.6	ダンピングライク (フィールドライク) トルク効率の定量	77
5.7	本章のまとめ	81
第 6 章	結論	83
6.1	まとめ	83
6.2	今後の展望	84
参考文献		87

第 1 章

序論

1.1 スピントロニクス発展の歴史的背景

スピントロニクス (Spintronics) について説明するには、エレクトロニクス (Electronics) の歴史にも触れる必要がある。両者の中心となる電子の存在は、1897 年に、Joseph J. Thomson によって発見された [1]。これは、電場を印加すると陰極線が曲がることから、負の電荷を有する粒子の存在を、実験的に明らかにしたというものである。電池の発明が 1800 年前後であり、その後 1864 年には、James Clerk Maxwell の Maxwell 方程式によって、古典電磁気学が整理されたが、当初は電子という存在は明らかになっていなかったため、Joseph J. Thomson による電子の発見は、非常に重要な仕事であった。

この発見を契機として、電子の電荷という自由度を利用したエレクトロニクスという分野が発展し、身の回りの電子機器に応用され、一大産業となるに至った。それに伴い、微細加工技術も発展し、人類は、マイクロメートルさらにはナノメートルスケールの素子を取り扱うことができるようになった。このスケールでは、量子力学的な効果は無視できず、古典電磁気学では、説明ができない現象が多数発見されるようになってきた。量子力学に基づいて考えると、電子には電荷の他にスピン及び軌道という自由度が存在する。このスピンという自由度に着目して、電荷と合わせて利用することで、革新的なデバイス機能の創出を目指す分野をスピントロニクスと呼ぶ*1。

歴史的には、1988 年に、Albert Fert と Perter Grünberg らによって巨大磁気抵抗 (Giant magnetoresistance : GMR) 効果の発見されたことを契機として [2-4]、1990 年代からスピントロニクスは発展を遂げた*2。その後 1995 年には、さらに高感度な磁気抵抗効果を示すトンネル磁気抵抗効果 (Tunnel magnetoresistance : TMR) が発見され [5,6]、大幅に改善されていき応

*1 スピントロニクスとは、スピンとエレクトロニクスから生まれた造語である。

*2 Albert Fert と Perter Grünberg は、2007 年にノーベル物理学賞を受賞するに至った。

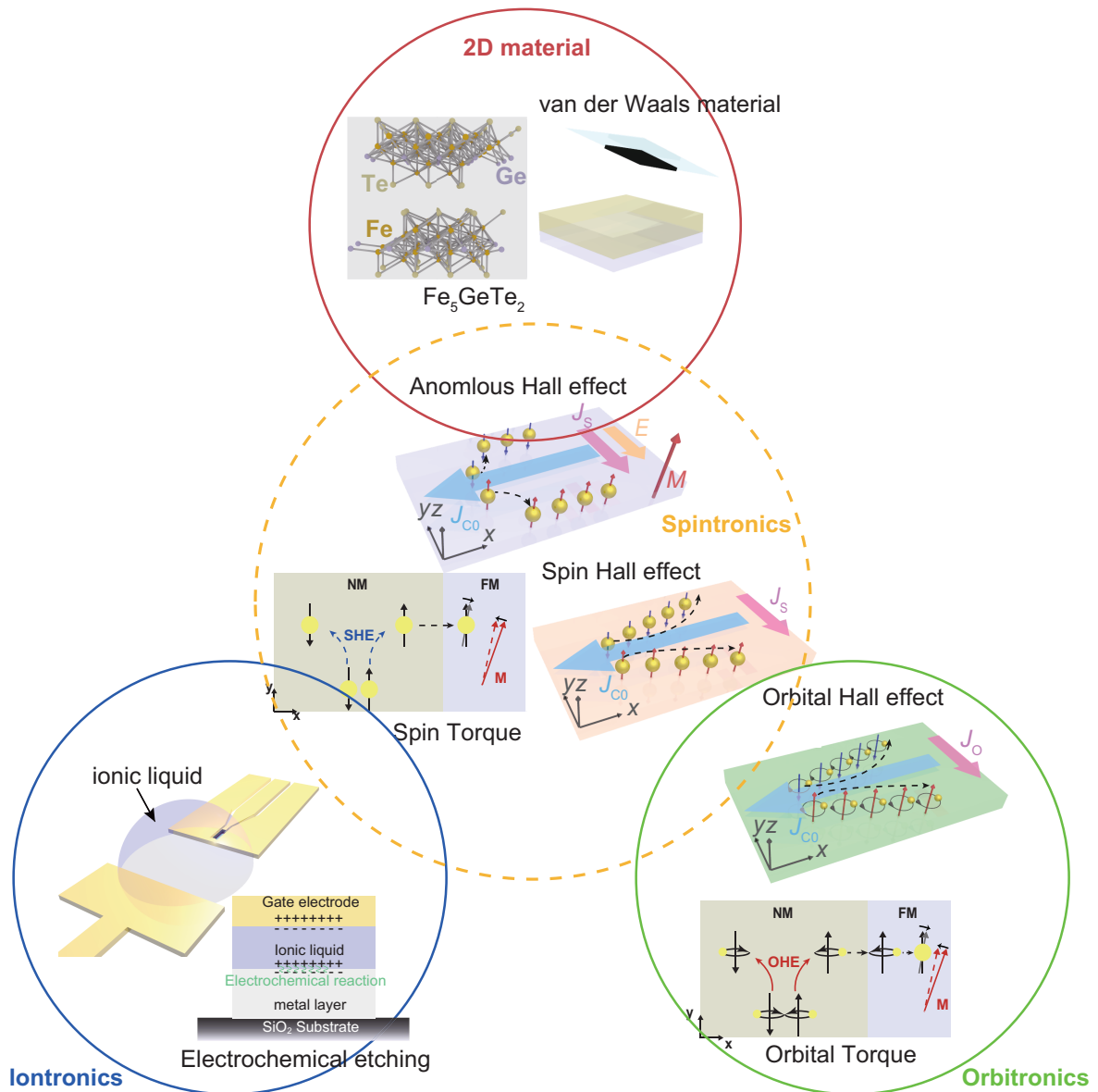


図 1.1 本研究は、イオントロニクス・二次元材料・オービトロニクスの複合領域におけるものである。中央：スピントロニクスの研究を示す。左下：イオントロニクスでは、イオン液体の電気化学エッチングの可能性が期待されている。上：二次元材料をスコッチテープによって機械的剥離することで薄膜を得て物性を詳しく調べる潮流が生じている。右下：オービトロニクスにおいて、軌道ホール効果・軌道トルクの観測は注目を集めている。

用範囲が格段に広がった [7,8]。現在のコンピュータのほとんどにこの技術が利用されており、スピントロニクスも一大産業となるに至った。

次第に、電荷の流れが電流であるように、スピンの流れ、いわゆるスピン流の存在に注目が集まるようになった。しかしながら、スピン流は保存流ではなく、マイクロスケール伝播する

うちに緩和してしまうため、ナノテクノロジーが発展するまではスピン流の観測そのものが難しかった(1.5節及び1.6節を参照)。そのため、実際には2000年以降に、スピン流による磁化反転現象の実験が世界中で報告されるようになってきた。特に、Daniel C. Ralphらによって報告された現象は、スピン移行トルク (Spin transfer torque : STT) と呼ばれ、磁化方向を磁場に頼らずに電氣的に制御できるというものである [9] (1.9.1節を参照)。ほぼ同時期である2004年には、常磁性体に電流を印加すると、スピン軌道相互作用によって、その直交方向にスピン流が生成するというスピホール効果 (Spin Hall Effect : SHE) が観測され、その数年後には、逆スピホール効果 (Inverse Spin Hall Effect : ISHE) によるスピン流の電氣的測定方法が発見された [10–13]。ISHEは、SHEの逆現象で、スピン軌道相互作用の強い常磁性体にスピン流を流すと、電場が生じることを明らかにしたものである。スピントロニクスの中でも、スピン軌道相互作用を介して発現する現象を用いて、革新的なデバイスを創出する分野を、特にスピンオービトロニクス (Spin-Orbitronics) と呼ぶ [14, 15]。SHEに加え、古くから知られていた強磁性体中の異常ホール効果 (Anomalous Hall Effect : AHE) もスピン軌道相互作用を介して発現する現象であり、近年再び注目を集めるようになった。

さらに、近年では、軌道の流れ、いわゆる軌道流の存在に注目する潮流が生じてきた。実際に、2020年以降、軌道ホール効果 (Orbital Hall Effect : OHE) の存在が、電流誘起トルク [16–18] や軌道磁気モーメントの蓄積 [19] として観測されるようになってきた。OHEは、スピン軌道相互作用を必要としない基本的な現象である。そのため、これまでにスピントロニクス研究の中心であったPtをはじめとする重金属だけでなく、軽金属でも発現する現象であることが明らかになってきた。このような、スピントロニクスに電子の持つ軌道の自由度を合わせて利用するようなオービトロニクス (Orbitronics) が発展しつつある。

また、スピントロニクスの周辺分野として、イオン液体の特徴を活かして電気化学エッチングやキャリアドーピングに利用するようなイオントロニクス (Iontronics) という分野やファンデルワールス材料をはじめとする二次元材料を機械的剥離することで薄膜を得て特異な現象 (超伝導・強磁性・反強磁性) を明らかにする二次元材料 (2D material) という分野が盛んに研究されている。

本研究は、イオントロニクス・二次元材料・オービトロニクスの複合領域におけるものであり、角運動量流の生成現象の観測及び強磁性体中で発現する電流誘起トルクに着目した (図 1.1 を参照)。1.2節及び1.3節では、イオントロニクスにおける中心的役割を果たすイオン液体、二次元材料の中心的な存在であるファンデルワールス材料についてそれぞれ説明する。

1.2 イオン液体

本研究では、第 3 章において電気化学エッチングする際に用いたため、イオン液体に関して説明する。一般に、イオンのみ (アニオン、カチオン) からなる物質は、「塩」と呼ばれる。通常ではイオン同士の強い Coulomb 相互作用により、融点が高いことで知られており、代表的には NaCl などが挙げられ、室温付近では固体で存在する。一方で、イオン液体とは、室温付近であっても塩が液体の状態で存在する物質のことである。1914 年に Paul Walden によって、室温融解塩であるエチルアンモニウム硝酸塩が初めて報告された [20]。しかしながら、その後の 60 年間では大きな進展はなく、1983 年に Charles L. Hussey に ionic liquid と名付けられたことをきっかけに広がった [21]。

イオン液体が室温付近でも液体で存在できる理由としては、通常の塩と比較して、「Coulomb 相互作用が弱いこと」及び「イオンの規則的な配列が妨げられていること」の二点が挙げられる。初めに前者に関して説明する。塩の結晶化において、Coulomb 相互作用は最も大きな役割を担う。Coulomb 相互作用は一般に、

$$\mathbf{F} = \frac{q_1 q_2}{4\pi\epsilon_0} \frac{\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^3} \quad (1.2.1)$$

と表せて、電荷間の距離の 2 乗に反比例する。そのため、イオン間の距離が大きくなるような嵩高いイオン*3を用いることで、Coulomb 相互作用を劇的に弱めることが可能となる*4。また、有機イオンを用いると、共鳴構造により電子を非局在化させることができるため、さらに Coulomb 相互作用を弱めることができる。次に後者に関して説明する。粒子が規則的に並ぶと液体は固体に相転移し、結晶化する。したがって、結晶化を阻害するには、立体配座の多様性や柔軟性があるようなイオンを用いる必要がある。つまり、立体配座が複数存在するようなイオンであれば相転移が生じにくくなり、比較的小さなエネルギー障壁で複数の立体配座を行き来できるような柔軟性の高いイオンもまた相転移が生じにくいということである。

ここまでで述べた、イオン液体が室温付近で液体で存在できる理由を、熱力学的にまとめてみると、液体と固体の相転移を支配するのは Gibbs 自由エネルギー ΔG であるから、

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (1.2.2)$$

*3 一般に、嵩高いイオンほどイオン半径が大きい。

*4 ここで注意点として、イオンが大きすぎると、分子としての性質が現れて融点が上昇することにつながってしまう。

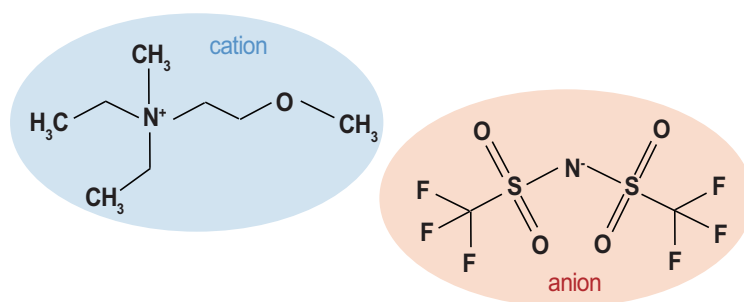


図 1.2 イオン液体 DEME-TFSI の構造式。嵩高いカチオン及びアニオンから構成される塩である。

と表せる^{*5}。式 (1.2.2) をもとに、上記の二点を考えると、前者で述べた「Coulomb 相互作用が弱いこと」は、エンタルピー項 ΔH を小さくすることに相当し、後者で述べた「イオンの規則的な配列が妨げられていること」は、エントロピー項 ΔS を増大させることに相当する。

1.2.1 イオン液体の一般的特徴

本小節では、イオン液体の特徴について説明する。一般的には、

1. 低融点または結晶化しにくい
2. 高い熱安定性を有する
3. 広い電位窓を有する
4. 高いイオン伝導性を有する
5. 難揮発性である
6. 物性や機能のデザインが可能である
7. 難溶性物質の可溶化を実現できる
8. 特定ガスの吸着が可能である
9. 両親媒性を有する

などが挙げられる [22]。なお、スピントロニクスや超伝導の分野では、主に、1～5 の特徴を活かして、キャリアドーピング [23] や電気化学エッチング [24] に利用されることが多い。本研究では、これらの特徴を備えたイオン液体である N-dethyl-N-methyl-N-(2-methoxyethyl) ammonium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (DEME-TFSI) を用いた。これは、図 1.2 に示すようなカチオン及びアニオンから構成される塩であり、化学式は $C_8H_{20}NO \cdot C_2F_6NO_4S_2$ で

^{*5} ただし、温度変化による項が生じないこと ($S\Delta T = 0$) を仮定している。

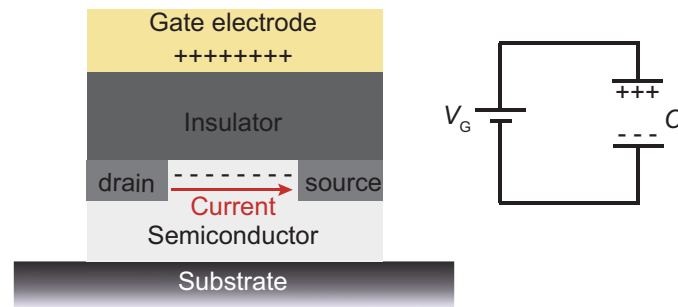


図 1.3 電界効果トランジスタ (MOS-FET) の模式図及びその等価回路。

ある。

1.2.2 イオン液体による電気二重層及び電気化学エッチング

前小節で、スピントロニクスや超伝導の分野においてもイオン液体が利用されることに触れた。初めに、電界効果トランジスタの原理をもとに、イオン液体による電気二重層を考える。

電界効果トランジスタ (Metal Oxide Semiconductor Field Effect Transistor : MOS-FET) は、半導体の電気伝導度を制御するデバイスであり、電子機器において主にスイッチの役割として用いられる電子回路素子である。図 1.3 で示すように、MOS-FET は、基板、半導体層、ドレイン電極、ソース電極、絶縁体^{*6}、ゲート電極から構成される。なお、半導体層には、ホールがキャリアとなる P 型半導体と電子がキャリアとなる N 型半導体のいずれかが用いられるが、今回は前者を仮定する。通常、ドレイン-ソース間に電圧を印加しても、P 型半導体中の電子はホールに阻まれて移動することができず、ドレイン-ソース間に電流は流れない。しかしながら、ゲート電圧 $V_G (> 0)$ を印加すると、絶縁体層の直下に電子が集まり、ホールよりも電子が多くなる領域が形成され^{*7}、ドレイン-ソース間に電流が流れる。これが、MOS-FET の動作原理である。

等価回路に基づいて考えると、絶縁体層は平行平板コンデンサであると考えることができる。この時、コンデンサに蓄積した電荷 Q は、

$$Q = CV_G \quad (1.2.3)$$

と表せる。ここで、 C はコンデンサの静電容量であり、

$$C = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r S}{d} \quad (1.2.4)$$

*6 一般的には、絶縁体層に SiO_2 などが用いられることが多い。

*7 一般に、反転層と呼ばれる。

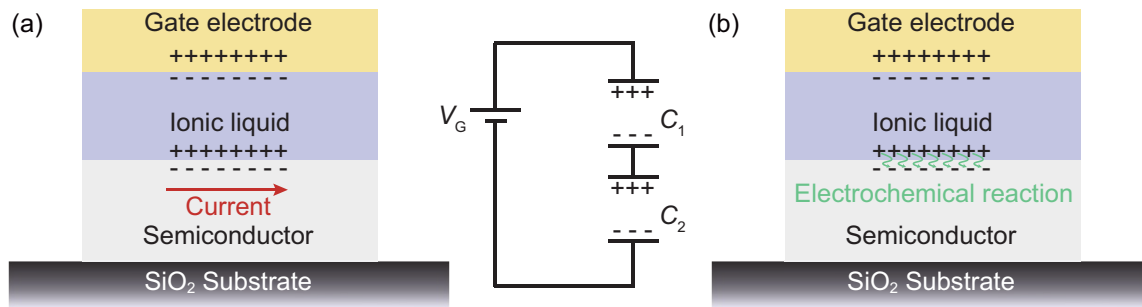


図 1.4 (a) イオン液体による電気二重層の模式図及びその等価回路。(b) イオン液体による電気化学反応の模式図。

と表せ、 ϵ_0 は真空の誘電率、 ϵ_r は比誘電率、 S は平行平板の面積、 d は極板間距離である。また、飽和領域におけるドレイン-ソース間の電流 I_d は、

$$I_d \propto \mu C (V_G - V_t)^2 \quad (1.2.5)$$

である。ここで、 μ はキャリアの移動度、 V_t はゲート電圧の閾値である。式 (1.2.4) と式 (1.2.5) から、比誘電率 ϵ_r が大きいほど、あるいは極板間距離 d が小さいほど、ドレイン-ソース間の電流 I_d が流れやすくなるということが理解できる。MOS-FET に使用されるのは、一般的には SiO_2 などの固体の絶縁層であるため、最大でも $C = 17 \text{ nF/cm}^2$ 程度であり、半導体界面には、 $10^{13}/\text{cm}^2$ 程度の電荷しか注入できない [25]。

そこで、絶縁層の代わりにイオン液体を用いることができる。図 1.4(a) に示すように、イオン液体を用いてゲート電圧を $V_G (> 0)$ を印加すると、イオン液体を構成するアニオンとカチオンが、それぞれゲート電極付近と半導体界面付近に集まって、電気二重層が形成され、半導体界面付近に電流が流れる。

等価回路に基づいて考えると、イオン液体による電気二重層は、アニオンによる静電容量 C_1 のコンデンサとカチオンによる静電容量 C_2 のコンデンサの直列回路と考えることができる。このとき、回路全体の静電容量 C' は、

$$C' = C_1 + C_2 = \frac{\epsilon_0 (\epsilon_{r1} + \epsilon_{r2}) S}{d} \quad (1.2.6)$$

と定式化できる。ここで ϵ_{r1} はアニオンによる比誘電率、 ϵ_{r2} はカチオンによる比誘電率である*8。イオン液体の比誘電率 $\epsilon'_r (= \epsilon_{r1} + \epsilon_{r2})$ は、10 程度であり絶縁体層と比較しても格段に

*8 簡単のために、アニオン及びカチオンのコンデンサにおいて、平行平板の面積 S 及び極板間距離 d は同じであると仮定した。

大きいというわけではない [26]。一方で、極板間距離 d が 1 nm 程度^{*9}であるため、結果的には、 $C' \sim 10 \mu\text{F}/\text{cm}^2$ 程度が実現可能となる [28, 29]。これは、半導体界面に $10^{15}/\text{cm}^2$ 程度の電荷を注入できることに相当する。このため、絶縁体層にとって代わりイオン液体がキャリアドーピングに利用されるようになってきた。

一方で、イオン液体を用いてゲート電圧 $V_G (> 0)$ を印加すると、図 1.4(b) に示すような電気化学反応が生じる。物質表面の電気化学反応は、金属の腐食や電解研磨として古くから知られており、イオン液体を使った電気化学エッチングも類似手法であるといえる。これは、キャリアドーピングのように半導体界面に電荷を注入してドレイン電流 I_d を制御する効果とは異なり、大きなゲート電圧 (電場) を印加することによって、イオン液体と半導体界面で電極反応が生じ、電極材料である半導体がイオン液体中へ溶解されていき、結果的に半導体層がエッチングされるというものである^{*10}。ただし、電極材料が酸化物である場合には、大きな電場を印加した際に、格子自体が溶出して薄膜化するのではなく、酸素イオンのみが抜け出して格子自体は保持されることがある [30, 31]。言い換えると、酸化物はエッチングされにくいことが明らかとなっている^{*11}。

実際に、 V_G が大きいと電気化学エッチングが支配的となり、 V_G が小さいとキャリアドーピングが支配的になることが報告されている [30]。そこで、本研究では、イオン液体を用いて電気化学エッチングを実現し、単一デバイスにおけるスピントルク定量手法の確立へとつなげた。

1.3 ファンデルワールス材料

本研究では、第 4 章においてファンデルワールス強磁性材料を用いた。ファンデルワールス材料とは、層状物質で、層間がファンデルワールス力によって結合している物質である。層状物質に関する歴史は古く、その起源は 1841 年まで遡るとされている [32]。代表的にはグラファイトなどが挙げられるが、20 世紀頃までは、層状物質を結晶のまま用いて研究することが主流であった。

しかしながら、近年では、層状物質から 1 原子層レベルの厚さしかない究極に薄い膜を得て、研究・開発を行うことが主流になりつつある。この薄膜のことを一般に、二次元物質また

^{*9} 極板間距離 d は、イオン液体中の Debye 長さによって決定される [27]。

^{*10} 電気化学エッチングは、半導体にとどまらず金属薄膜やファンデルワールス薄膜にも利用することができる効果である。

^{*11} 酸化物はイオン結合が支配的であり、金属結合やファンデルワールス結合よりも結合エネルギーが大きいことが起因している。

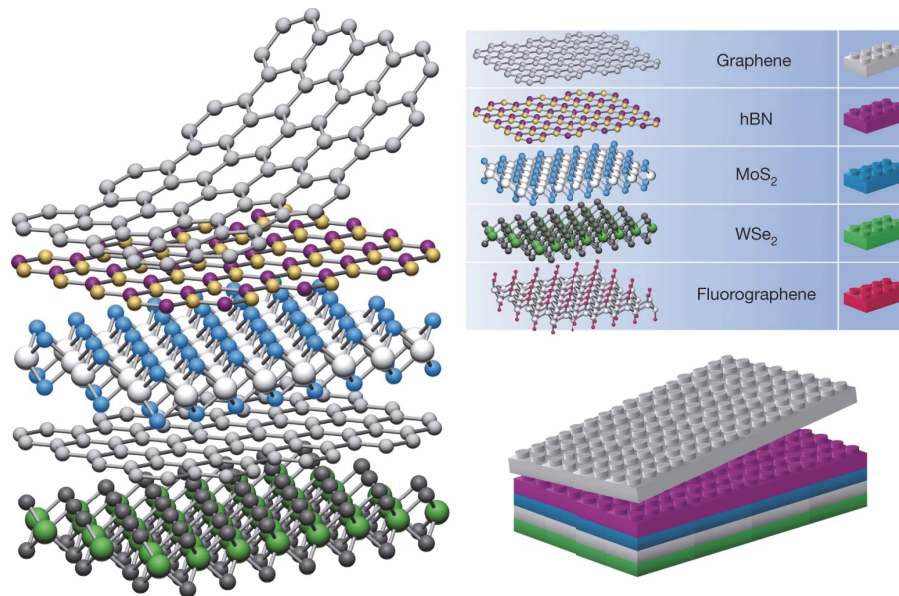


図 1.5 ファンデルワールスヘテロ構造の模式図。それぞれの二次元物質を Lego ブロックのように見立てて、自由に組み上げて積層構造を構築できる。[Reprinted figure with permission from A. K. Geim, I. V. Grigorieva, Nature 499, 419-425 (2013). Copyright (2019) by the Nature Publishing Group UK London. <https://doi.org/10.1038/nature12385>]

は準二次元物質と呼ぶ。注目を集める契機となったのは、2004年に K. S. Novoselov と A. K. Geim が、グラファイトの 1 原子層であるグラフェンを発見したことである [33]^{*12}。彼らは、スコッチテープを用いてグラファイトを機械的に剥離し、基板状に転写するという簡便な方法により、1 原子層のグラファイト (グラフェン) を得ることで、その物性を調べた。二次元物質の発見当初は、グラフェンは物質中で最高とも言われるキャリア移動度を有する材料であったため、中心的に研究されていた [34, 35]。さらに近年では、遷移金属ダイカルゴゲナイドや強磁性体、超伝導体、トポロジカル絶縁体などの材料にも着目されるようになり、ファンデルワールス材料を用いた二次元物質・準二次元物質に関する研究が、飛躍的に活発化した [36, 37]。

これに加えて、二次元物質の転写法などの進展に伴い、二次元物質同士を積層させて、物理特性を観測することさえも可能となりつつある [38, 39]。これは、ファンデルワールス力によって接合するために、格子定数の制限を受けず、材料選択の幅が非常に広い。そのため、スパッタリングなどによって作製するヘテロ構造界面よりも綺麗な界面となり、ユニークな物性を観測できると期待されている (図 1.5 を参照)。さらに、積層させるときに、任意の角度に回転させて接合させることも可能であると報告されていたり [40]、ロボット積層システムを用

*12 K. S. Novoselov と A. K. Geim は、2010 年にノーベル物理学賞を受賞するに至った。

いて複数の二次元物質を積層し、ヘテロ構造を作製できるような手法が提案されていたりする [41]。

以上、ファンデルワールス材料をスコッチテープで機械的に剥離することで、二次元物質または準二次元物質を容易に得ることができ、さまざまな物理現象の探索に用いられることを述べた。次小節では、本研究で用いたファンデルワールス強磁性材料に焦点を当てて説明する。

1.3.1 ファンデルワールス強磁性材料

ファンデルワールス強磁性材料とは、ファンデルワールス材料の中でも特に強磁性秩序を持つ材料のことであり、強磁性絶縁体、強磁性半導体、強磁性金属に分けられる。

強磁性絶縁体や強磁性半導体としては、これまでに CrI_3 [42–44] や $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ [45–47] などが報告されている。特に、 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ に関しては、 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6/\text{Pt}$ ヘテロ構造を作成し、磁気近接効果によって磁気モーメントの情報を抽出するという方法で、トルクを検出できると報告されている [45]。また、 $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$ のキュリー温度は 60 K 程度として報告されている [48]。

一方で、強磁性体金属としては、 CrTe_2 [49] や Fe_xGeTe_2 ($x = 3, 4, 5$) などが報告されている。 Fe_xGeTe_2 の中では、 Fe_3GeTe_2 が、高いキュリー温度 ($T_C \approx 230$ K) を持つということから初めに注目を集めた [50–57]。次いで、2019 年、 Fe_5GeTe_2 は、さらに高いキュリー温度 ($T_C \approx 270 - 310$ K) を持つ上に、複雑な磁気構造を有するということが Andrew F. May らによって報告された [58]。これは、室温付近にキュリー温度を持つことから非常に注目を集める材料となり、研究が活発化しつつある [58–65]。しかしながら、磁気構造が複雑であることから、異常ホール効果 (Anomalous Hall Effect : AHE) をはじめとする電子の伝導メカニズムが解明されていないため、本研究にて詳しく調べた。

次節以降では、電子の持つ角運動量の性質及び角運動量同士の相互作用、角運動量流について述べてから、LLG 方程式に基づいて磁化ダイナミクスについて説明する。さらに、ホール効果及び磁化と角運動量流間のトルクなど、本研究での前提知識となる事項を説明する。

1.4 電子と角運動量間の相互作用

電子は、質量が $m_e = 9.11 \times 10^{-31}$ kg、負電荷 $-e = 1.60 \times 10^{-16}$ C の性質を有する粒子として知られている^{*13}。また、電荷以外の自由度として、スピン角運動量がある^{*14}。スピン角運動

*13 SI 単位系で示しており、特に電荷は SI 組立単位として知られる $\text{C}(= \text{s} \cdot \text{A})$ で表している。

*14 この名前は、発見当時に、電子自体が自転していると考えられていたことに由来する。

量は、磁性の起源について考えるときに重要であり、その大きさは、 $|s| = \hbar/2 = 0.52 \times 10^{-34} \text{ Js}$ である。なお、スピンは、2つの固有状態のみを取るため上向きスピン $s = \hbar/2$ 及び下向きスピン $s = -\hbar/2$ として表すことができる。さらに、物質中の電子は、原子核が作る Coulomb ポテンシャルによって束縛されることに起因して、電荷及びスピンのに加えて、軌道自由度も有する。角運動量間には相互作用が働く。主な相互作用としては、2つの電子のスピン角運動量間に働く相互作用 (交換相互作用) と電子のスピン角運動量と電子の軌道運動の相互作用 (スピン-軌道相互作用) がある。それぞれに関して、以下で説明する。

1.4.1 交換相互作用

隣り合うスピンを平行 (反平行) に揃えようとするスピン-スピン相互作用は、強磁性をはじめとした物質中の磁気秩序の起源である。まず、二つの異なる原子軌道からなる系を考えて、原子軌道の重なりがないとし、それぞれの軌道に電子スピンの一つずつ局在すると仮定する。それぞれの原子におけるスピン演算子を \mathbf{S}_1 、 \mathbf{S}_2 とすると、交換エネルギーのハミルトニアン \mathcal{H}_{ex} は、

$$\mathcal{H}_{\text{ex}} = -J_{\text{ex}} \mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2 \quad (1.4.1)$$

と表せる。ここで、 J_{ex} は交換積分とした。 $J_{\text{ex}} > 0$ であると、 \mathcal{H}_{ex} の固有値は、スピン同士が平行の時に負となり、エネルギーが低くなる。そのため、二つのスピン間には強磁性相互作用が働く。一方で、 $J_{\text{ex}} < 0$ であると、 \mathcal{H}_{ex} の固有値は、スピン同士が反平行の時に負となってエネルギーが低くなる。そのため、二つのスピン間には反強磁性相互作用が働く。

1.4.2 スピン-軌道相互作用

スピン-軌道相互作用 (Spin-Orbit Coupling: SOC) とは、電子のスピンと電子の軌道運動の相互作用である。この相互作用は、電子の運動座標系から見た電場と磁場の変換に起源がある。例えば、静止系で電場 E がある状態を、静止系に対して相対速度 v を持つような運動座標系から見ると、電場 E' とともに磁場 B' も生じる。つまり、電子は磁場を受けて運動すると考えることが可能である。ここで生じた磁場 B' と電子が Zeeman 相互作用するというのが、SOC の正体である。SOC のハミルトニアン \mathcal{H}_{soc} は、

$$\mathcal{H}_{\text{soc}} = \lambda(r) \mathbf{L} \cdot \mathbf{S} \quad (1.4.2)$$

と表せる。ここで原点からの距離 r の関数である $\lambda(r)$ はスピン軌道相互作用の強さを示す比例係数であり、物質中では電子構造に大きく依存する^{*15}。また、単原子が持つスピン軌道相互作用の強さ λ_{nl} は、

$$\lambda_{nl} = \int_0^\infty R_{nl}^2 \lambda(r) d^3r = \frac{\alpha^2 Z^4}{n^3 l(l+1/2)(l+1)} \text{Ry} \quad (1.4.3)$$

である [67]。ここで、 R_{nl} は動径分布関数、 α は微細構造定数、 Z は原子番号、 n は主量子数、 l は方位量子数である。式 (1.4.3) からスピン軌道相互作用の大きさは、 Z^4 にスケールすると分かるが、実際の物質中では、最外殻電子が実質的には関与するので、 Z^2 にスケールすると明らかになっている [67]^{*16}。

1.5 伝導電子の角運動量流

金属中には、 10^{23} cm^{-3} 程度の非局在な電子が存在している。これらの電子は物質中を運動し、電気伝導に寄与する。この系に、電場を与えると電場に平行な方向に、電子が流れる。これが電流 (Charge current) である。この時、常磁性体金属では、電荷の他の自由度として知られるスピン (軌道) 角運動量の向きはランダムに分布しているため、図 1.6(a) のように、角運動量の流れは全体で打ち消され、電荷の流れだけが生じる。また、スピン (軌道) 角運動量の自由度も考慮すると、電子の流れは、図 1.6(b)-(d) のように分類することができる。ここで、図 1.6(b) はスピン偏極電流 (Spin polarized current) と呼ばれる電荷とスピン角運動量の流れであり、図 1.6(c) はスピン流 (Spin current) と呼ばれるスピン角運動量の流れであり、図 1.6(d) は軌道流 (Orbital current) と呼ばれる軌道角運動量の流れである^{*17}。なお、1.8 節で詳しく説明するが、スピン偏極電流は磁化によって時間反転対称性が破れている強磁性体などに電流を流すことで生成され、スピン流及び軌道流は時間反転対称性を有する常磁性体に電流を流すことで生成される。

z 方向に平行なスピンを持つ電子流を j_\uparrow 、 z 方向に反平行なスピンを持つ電子流を j_\downarrow とすると、電流 J_c は、

$$J_c = j_\uparrow + j_\downarrow \quad (1.5.1)$$

と表せて、スピン同士は打ち消されて、ゼロになる。一方で、スピン流 J_s は、

$$J_s = j_\uparrow - j_\downarrow \quad (1.5.2)$$

^{*15} スピン軌道相互作用の強さ λ は、遷移元素や希土類の不完全殻に対しては $10^{-2} \sim 1 \text{ eV}$ 程度である [66]。

^{*16} これは、内殻電子による原子核ポテンシャルの遮蔽を考慮することに相当する。

^{*17} スピン流及び軌道流には、電荷の流れが存在しないため、電位は常にゼロである。

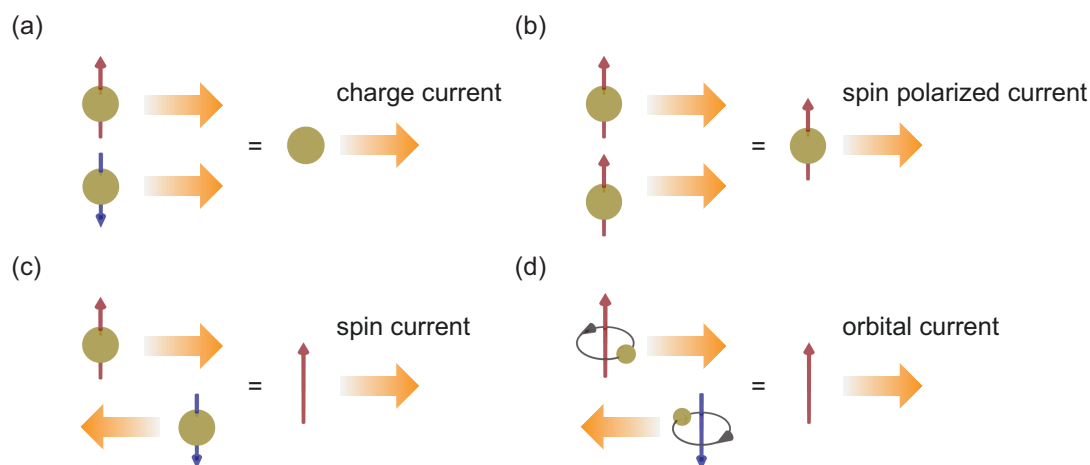


図 1.6 伝導電子が作る電流及び角運動量流の模式図。それぞれ (a) 電流 (charge current) 及び (b) スピン偏極電流 (spin polarized current)、(c) スピン流 (spin current)、(d) 軌道流 (orbital current) を示す。

と表せる。(1.5.2) 式を見ると、 $j_{\uparrow} = -j_{\downarrow}$ の場合は電流は打ち消されて、スピン流だけが流れるため、特に純スピン流 (Pure spin current) と呼ばれることもある^{*18}。スピン流と電流の式は大差がないように見えるが、スピン流は従来のエレクトロニクスではほとんど扱われてこなかった。その理由は、スピン流は厳密には保存流ではなく、伝播する間に、スピンの向きが緩和^{*19}してしまうからである。この緩和するまでの特徴的な長さをスピン緩和長 λ と呼び、通常の金属中では、長くてもせいぜい数百ナノメートルスケールであるため、マイクロメートルスケール以上を主に扱うエレクトロニクスでは、スピン流を考慮する必要がなかった。しかしながら、近年、ナノメートルスケール以下のデバイスが日常的になってきたため、電流とスピン流を同時に扱わざるを得なくなってきた。実際に、スピン緩和長よりも十分に短いスケールでは、スピン流も近似的に保存流と見なすことが可能である。

1.6 角運動量保存則と角運動量流

電子は、電荷及びスピン、軌道の自由度を持っている。本節では、電子が作る角運動量流 (スピン流、スピン偏極電流、軌道流) を、電流の定義を基にして説明する。なお、この時、角運動量流が保存量であるという仮定をおく [68]。

*18 スピン流も電流も流れる状態は、スピン偏極電流と呼ばれる。

*19 緩和の主な原因は、スピン軌道相互作用や磁性不純物との相互作用である。

まず、体積 V の空間に電荷 ρ_e が存在する状況を考えると、電荷保存則により、

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_V \rho_e dV = - \int_S \mathbf{j}_c \cdot d\mathbf{S} \quad (1.6.1)$$

と書け、ガウスの定理を用いて、さらに変形すると、

$$\frac{\partial \rho_e}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{j}_c \quad (1.6.2)$$

となる。ここで、 \mathbf{j}_c は電流密度である。式 (1.6.2) は、電荷の時間変化することで、電流が生じることを示しており、電流の定義である。同様に、スピン流及び軌道流を考えると、

$$\frac{\partial \mathbf{S}}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{j}_s \quad (1.6.3)$$

$$\frac{\partial \mathbf{L}}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{j}_o \quad (1.6.4)$$

と表せる。ここで、 $\mathbf{S}(\mathbf{L})$ は磁気モーメントが有するスピン (軌道) 角運動量であり、 $\mathbf{j}_{s(o)}$ は、スピン (軌道) 流密度テンソルである。スピン (軌道) 角運動量は磁化に比例するため、スピン磁化 $\mathbf{M}_S = -\gamma_S \mathbf{S}$ 及び、軌道磁化 $\mathbf{M}_L = -\gamma_L \mathbf{L}$ を導入して考えると、

$$\frac{\partial \mathbf{M}_S}{\partial t} = \gamma_S \nabla \cdot \mathbf{j}_s \quad (1.6.5)$$

$$\frac{\partial \mathbf{M}_L}{\partial t} = \gamma_L \nabla \cdot \mathbf{j}_o \quad (1.6.6)$$

となる [69]。ここで、 $\gamma_S (> 0)$ 及び $\gamma_L (> 0)$ は、スピン磁気回転比及び軌道磁気回転比とした。したがって、磁化と角運動量流は連続方程式で結び付けられることが分かり、磁化と角運動量流は相互作用することが理解できる (1.9 説にて詳しく説明)。ここまでの説明では、角運動量流が保存量であると仮定している。実際に、ナノメートルのような微小スケールでは、角運動量流は近似に保存流として取り扱うことができる。だが、角運動量保存則はある程度破れており、厳密には、スピン流及び軌道流は保存流ではない。

以降では、角運動量が保存しないことを考慮して進める。なお、スピン角運動量と軌道角運動量は、量子力学的に性質が類似しているため、以降はスピン角運動量に焦点を当てて説明する。電子のスピン角運動量は、スピン軌道相互作用や磁性不純物との相互作用などによって反転することで情報を失うため、十分に時間が経過した時には、上向きスピンと下向きスピンの数が同数になる。これをスピンの緩和と呼び、スピン流の強度が $1/e$ 程度まで減衰する距離をスピン緩和長 λ と呼ぶ。スピン流の定義式は、現象論的に緩和項 \mathbf{T} を組み込んで、

$$\frac{\partial \mathbf{M}_S}{\partial t} = \gamma_S \nabla \cdot \mathbf{j}_s + \mathbf{T} \quad (1.6.7)$$

と書ける。なお、最も単純な緩和項 \mathbf{T} は、

$$\mathbf{T} = -\frac{\mathbf{M}_S - \mathbf{M}_0}{\tau} \quad (1.6.8)$$

である。ここで、 \mathbf{M}_0 は平衡状態の磁化であり、 τ は実験と整合するように決定するパラメータである。スピン緩和の機構の代表的なモデルとしては、D'yakonov-Perel 機構 [70, 71] 及び Elliott-Yafet 機構 [72–74] が知られている。

1.7 磁化ダイナミクス

本研究では、強磁性体中の磁化ダイナミクスに着目して、強磁性体に注入される角運動量流の情報を磁化トルクとして抽出した。磁化ダイナミクスは、Laudau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式により記述することが可能である。本節では、LLG 方程式を説明することでトルクの種類を述べてから、本研究で取り扱った強磁性共鳴までを説明する。

1.7.1 磁化の運動方程式

LLG 方程式とは、磁化ダイナミクスの半古典的な非線形微分方程式であり、磁化の運動方程式として広く用いられる。歴史的には、1935 年に Lev Davidovich Landau と Evgeny Mikhailovich Lifshitz により LL 方程式が提案され、その後、1955 年に Thomas L. Gilbert によって緩和項が考慮されることで、現在の LLG 方程式が完成した [75]。

まず、 z 方向の静磁場 $\mathbf{H} = (0, 0, H_z)$ 中に存在するスピン $\mathbf{s} = (s_x, s_y, s_z)$ を持つ単一電子を考える。この電子の磁気モーメント \mathbf{m} は、 $\mathbf{m} = -\frac{g\mu_B}{\hbar}\mathbf{s}$ と表せる。ここで、 g は g 因子、 $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m} = 9.274 \times 10^{-24} \text{ JT}^{-1}$ は Bohr 磁子で磁気の最小単位を表す量である。この時、Zeeman 相互作用ハミルトニアン \mathcal{H} は、

$$\mathcal{H} = -\mathbf{m} \cdot \mathbf{H} = \frac{g\mu_B}{\hbar} H_z s_z = \gamma H_z s_z \quad (1.7.1)$$

となる。ここで、 $\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar}$ は磁気回転比とした。また、スピン演算子に対する交換関係から、

$$\begin{aligned} [\mathcal{H}, s_x] &= \gamma H_z (s_z s_x - s_x s_z) \\ &= i\hbar \gamma H_z s_y \end{aligned} \quad (1.7.2)$$

同様にして、

$$[\mathcal{H}, s_y] = -i\hbar \gamma H_z s_x, [\mathcal{H}, s_z] = 0 \quad (1.7.3)$$

と表せる。さらに、

$$[\mathcal{H}, m_x] = i\hbar\gamma H_z m_y, \quad [\mathcal{H}, m_y] = -i\hbar\gamma H_z m_x, \quad [\mathcal{H}, m_z] = 0 \quad (1.7.4)$$

となるので、Heisenberg の運動方程式を考えると、

$$\frac{\partial m_x}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar}[m_x, \mathcal{H}] = -\gamma H_z m_y, \quad \frac{\partial m_y}{\partial t} = \gamma H_z m_x, \quad \frac{\partial m_z}{\partial t} = 0 \quad (1.7.5)$$

と書ける。したがって、単位体積あたりの磁気モーメントである磁化 \mathbf{M} についての運動方程式は、式 (1.7.5) について空間平均をとって、

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H} \quad (1.7.6)$$

と表せ、これが、Landau と Lifshitz により提案された LL 方程式である。この時、Lamor 周波数 $\omega = \gamma H$ で歳差運動をする*20。式 (1.7.6) に基づいて考えると、 \mathbf{M} と \mathbf{H} のなす角がゼロでない時、磁化 \mathbf{M} は、永久に歳差運動を続けることを表現している。しかしながら、現実的には、格子振動や不純物などの歳差運動を妨げる要因が存在する。したがって、LL 方程式に緩和項を導入して説明したのが Gilbert であり、この項は Gilbert 緩和項

$$\mathbf{D} = \frac{\alpha}{M} \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \quad (1.7.7)$$

と呼ばれる。ここで、 α は磁気ダンピング定数で、 M は飽和磁化である。

以上から、LLG 方程式は、磁化 \mathbf{M} における歳差運動の緩和を考慮して、

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma \mathbf{M} \times \mathbf{H} + \frac{\alpha}{M} \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \quad (1.7.8)$$

となる。左辺は磁化(角運動量)の時間変化を示し、右辺は磁化が受けるトルクを示しており、特に、第1項をフィールドトルク、第2項をダンピングトルクと呼ぶ(図 1.7 を参照)。なお、ダンピング定数 α も、典型的な遷移金属強磁性体 Ni、Fe、Co について報告されている [76]。

1.7.2 強磁性共鳴

強磁性体にマイクロ波及び磁場を印加した時に、外部磁場強度で決まる磁化歳差周波数とマイクロ波周波数が一致すると、共鳴現象が生じる。これを強磁性共鳴と呼ぶ [77]。本小節では、式 (1.7.6) で示した Gilbert 項を含まない LL 方程式を用いて、強磁性共鳴が起こる固有角周波数 ω_0 を算出する。

*20 $\gamma \sim 28 \text{ GHz} \cdot \text{T}^{-1}$ であるため、数 GHz から数十 GHz で歳差運動を起こす。

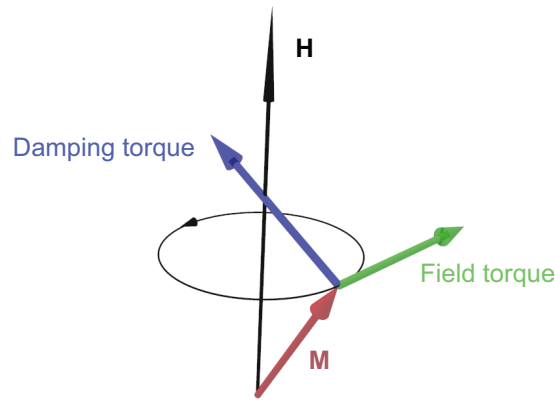


図 1.7 磁化における歳差運動の模式図。磁化 \mathbf{M} が受けるトルクは、歳差接線方向のフィールドトルクと緩和方向のダンピングトルクに分けられる。

本研究で用いたデバイスは、 z 方向の厚みがナノメートルスケールであり、 x 、 y 方向の長さはマイクロスケール以上であるので、その状況を仮定すると、 x - y 平面に広がる無限平板とみなせる。この時、 y 方向に、定常磁場 $\mathbf{H}_{\text{ext}} = (0, H_{\text{ext}}, 0)$ を印加しながら、角周波数 ω の振動磁場 $\mathbf{h}(\omega) = (h_x e^{i\omega t}, 0, h_z e^{i\omega t})$ を与える。この時、 z 方向には反磁場 $\mathbf{H}_{\text{d}} = (0, 0, -M_{\text{eff}} m_z e^{i\omega t})$ が生じる。ここで、 M_{eff} は、有効反磁場である。したがって、有効的に働く磁場 \mathbf{H} は、

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} h_x e^{i\omega t} \\ H_{\text{ext}} \\ h_z e^{i\omega t} - M_{\text{eff}} m_z e^{i\omega t} \end{pmatrix} \quad (1.7.9)$$

と表せる。強磁性共鳴が生じる時に、磁化 \mathbf{M} は歳差運動を起こすので、

$$\mathbf{M} = M_s \begin{pmatrix} m_x e^{i\omega t} \\ 1 \\ m_z e^{i\omega t} \end{pmatrix} \quad (1.7.10)$$

と表せる^{*21}。ここで、 M_s は飽和磁化である。式 (1.7.6) に、式 (1.7.9) と式 (1.7.10) を代入して、磁気モーメント \mathbf{m} の x 成分、 z 成分について整理すると、

$$\underbrace{\begin{pmatrix} i\omega & -\gamma(H_{\text{ext}} + M_{\text{eff}}) \\ \gamma H_{\text{ext}} & i\omega \end{pmatrix}}_A \begin{pmatrix} m_x \\ m_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \gamma h_z \\ -\gamma h_x \end{pmatrix} \quad (1.7.11)$$

*21 y 方向に外部磁場が印加されているため、 x - z 平面で歳差運動を起こす。

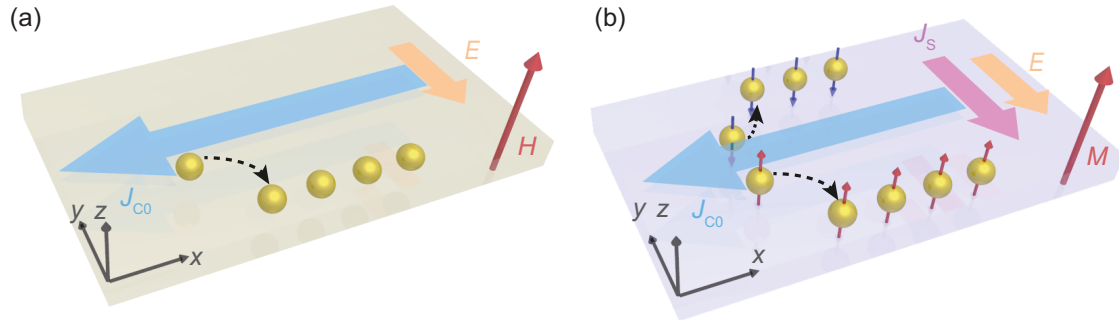


図 1.8 (a) 正常ホール効果 (NHE) と (b) 異常ホール効果 (AHE) の模式図。 J_{CO} は、印加した電流であり、 E 、 J_S は、それぞれの系から生じた電場、スピン流である。

となる。強磁性共鳴の時に、磁化の歳差振幅が最大である。この時の固有角周波数 ω_0 は、 $\det A = 0$ より、

$$\begin{aligned}
 -\omega_0^2 + \gamma^2 H_{\text{res}}(H_{\text{res}} + M_{\text{eff}}) &= 0 \\
 \left(\frac{\omega_0}{\gamma}\right)^2 &= H_{\text{res}}(H_{\text{res}} + M_{\text{eff}})
 \end{aligned} \tag{1.7.12}$$

となる。なお、この時の磁場を H_{res} とし、強磁性共鳴磁場と呼ぶ。また、式 (1.7.12) は、Kittel の式と呼ばれており [78]、本研究では H_{res} の固有周波数 $f_0 (= \omega_0/2\pi)$ 依存性を測定することで、 M_{eff} を算出するために用いた。

1.8 ホール効果

電場や熱を印加した際に、それと直交する方向に電流・スピン流などの流れが生成する現象を広義的にホール効果と呼ぶ。ホール効果には、様々な種類があることが実験・理論の両方で報告されている。本研究で関連のあるホール効果は、正常ホール効果・異常ホール効果・スピンホール効果・軌道ホール効果であるため、以下で説明する。

1.8.1 正常ホール効果・異常ホール効果

一般にホール伝導度 σ_{ij} は、系に時間反転対称性があるときは 0 となる。そのため、有限のホール伝導度 $\sigma_{ij} (\neq 0)$ を得るためには、時間反転対称性を破る必要がある。正常ホール効果では磁場を印加することによって、異常ホール効果では系がもつ磁化によって時間反転対称性を破る。

正常ホール効果

正常ホール効果 (Normal Hall Effect : NHE) は、1879 年に、Edwin H. Hall によって発見された [79]。図 1.8(a) に示すように、導体における $-x$ 方向に電流 J_{C0} を流しながら、 z 方向に外部磁場 H を印加すると、電子にローレンツ力が働き、系の両端に電荷が蓄積する。その結果、 y 方向に電場 E が生じ、ローレンツ力と電場によるクーロン力が釣り合う。NHE は、次で説明する異常ホール効果 (Anomalous Hall Effect : AHE) の発見にもつながった。さらには、得られた起電力から系における電子のキャリア密度を見積もることができるため、1940 年以降の半導体物理の発展における大きな役割を担う現象となった。

異常ホール効果

異常ホール効果 (AHE) は、1881 年に、Edwin H. Hall によって発見された [80]。これは、強磁性金属である Fe で、常磁性金属の 10 倍以上大きなホール効果を観測したというものであった。図 1.8(b) に示すように、強磁性体のような磁化 M を有する系に、 $-x$ 方向に電流 J_{C0} を流すと、系の両端に電荷とスピン角運動量が蓄積する。その結果、 y 方向に電場 E 及びスピン流 J_S が生じる。つまり、AHE は、スピン流の生成現象とも言え、NHE とは異なり、古典電磁気学では、説明がつかない現象であった。その後、1954 年に、Robert Karplus と J. M. Luttinger が、スピン軌道相互作用を考慮することで、AHE のメカニズムを解明した [81]。彼らは、結晶構造や電子配置など物質固有な性質によって決定される内因性寄与によって、AHE を説明した*22。しかしながら、不純物や格子欠陥による散乱によって決定される外因的寄与が考慮されていなかったため、十分な説明ではなかった。1955 年から 1970 年にかけて、Jan Smit や Luc Berger によって外因性寄与を考慮して、AHE が説明された [82–84]。

1.8.2 スピンホール効果・軌道ホール効果

AHE の内因性メカニズムの理論発展に伴い、量子ホール効果及びスピンホール効果、軌道ホール効果に関しても、AHE と同様に、Berry 曲率の考え方によって記述できると明らかになってきた。また、NHE や AHE と異なり、これらの効果は、系の時間反転対称性がある時に生じる。本小節では、スピンホール効果及び軌道ホール効果を説明する。

*22 内因性 AHE は、Berry 曲率の考え方を取り込んだ半古典的な方程式で説明可能である。

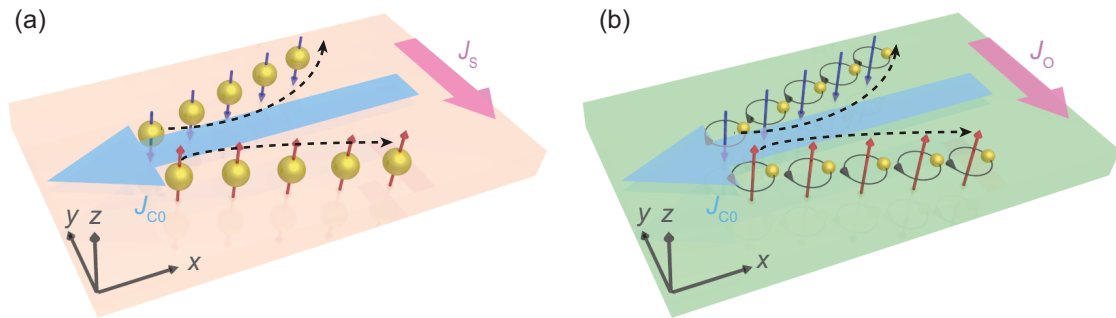


図 1.9 (a) スピンホール効果 (SHE) と (b) 軌道ホール効果 (OHE) の模式図。 J_{Co} は、印加した電流であり、 J_S 、 J_O は、それぞれの系から生じたスピン流、軌道流である。

スピンホール効果

スピンホール効果 (Spin Hall Effect : SHE) は、2004 年に、Yuichiro K. Kato らによって発見された [85]。図 1.9(a) に示すように、常磁性体における $-x$ 方向に電流 J_{Co} を流し入れると、系における y 方向の両端に、 z 方向に偏極したスピン角運動量が蓄積する。その結果、 y 方向にスピン流 J_S が生成される。また、系が時間反転対称性を有するため、逆現象として、逆スピンホール効果 (Inverse Spin Hall Effect : ISHE) が存在し、2006 年頃に、三つのグループでほぼ同時に観測された [10–12]。

軌道ホール効果

軌道ホール効果 (Orbital Hall Effect : OHE) は、2005 年に、B. Andrei Bernevig らによってその存在が理論的に予測され [86]、Soogil Lee ら (2021 年) [16] や Dongjoon Lee ら (2021 年) [17]、Hiroki Hayashi ら (2023 年) [18] によって、電流誘起トルクとして初めて観測された。また、磁気光学カー効果 (MOKE) を用いた実験では、Young-Gwan Choi ら (2023 年) [19] によって、軌道磁気モーメントの蓄積として観測されており、Ti 単層でナノラジアンスケールの非常に小さなカー回転角を測定することによって実現している。

図 1.9(b) に示すように、常磁性体における $-x$ 方向に電流 J_{Co} を流し入れると、 y 方向に軌道流 J_O が生成される。近年、スピン角運動量と同様に、軌道角運動量も固体中で輸送可能であることが示唆されているため [86–89]、 z 方向に偏極した軌道角運動量が y 方向に流れていると理解できる。スピントロニクスでは、Pt などの重金属を用いたスピン流による観測が中心であり、軌道流による観測は注目されてこなかった。しかしながら、SHE は、スピン軌道相互作用 (SOC) を考慮した OHE の二次効果であることが明らかとなってきた [88]。つまり、

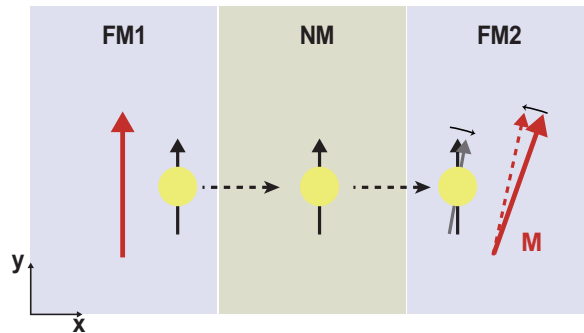


図 1.10 スピン移行トルク (STT) の概略図。FM1 から FM2 に注入されたスピン偏極電流によって、FM2 の磁化がトルクを受けることを示している。NM は常磁体を示す。

OHE は、SOC がなくても生じる基本的な現象であり^{*23}、SOC を通して、SHE に変換されることが判明した [89]。SHE と同様に、系が時間反転対称性を有するため、逆現象として、逆軌道ホール効果 (Inverse Orbital Hall Effect : IOHE) が存在する。

1.9 磁化と角運動量流の間に作用するトルク

角運動 (スピン、軌道) 流を、Ni、Fe、Co などの強磁性体に注入することで、磁化トルクが作用する。このトルクを測定することで、角運動量流を検出可能である。本節では、スピン流由来のスピントルク及び軌道流由来の軌道トルクについて説明する。

1.9.1 スピントルク

スピントルクには、スピン移行トルク (Spin transfer torque : STT) とスピン軌道トルク (Spin orbit torque : SOT) が存在する。1996 年に、J. C. Slonczewski [90] や Luc Berger [91] によって、磁化とスピンの相互作用が、初めて提案されたが、これは STT によるトルクであった。図 1.10 に示すような磁化同士が平行でないデバイスに、 $-x$ 方向に電場を印加して、スピン偏極電流を強磁性体 FM1 から強磁性体 FM2 に注入することで、FM2 の磁化に作用し、スピン偏極電流の情報を磁化トルクとして抽出できるというものである。FM2 に外部から角運動量 (スピン流、スピン偏極電流) を注入すると、FM2 中で角運動量の総量が保存する。すなわち、外部から注入した分を補償するように、FM2 内部の角運動量を変化させる必要があり、 $s-d$ 相

*23 OHE は、Ti のような軽金属であっても発現する。

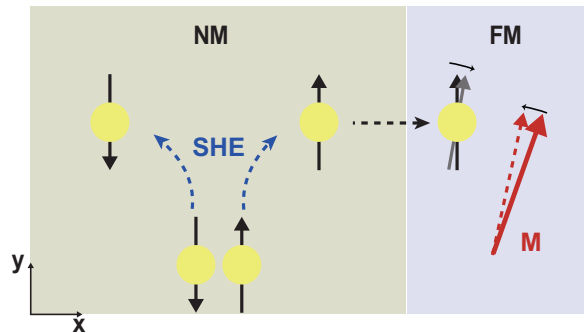


図 1.11 スピンホール効果 (SHE) によるスピン軌道トルク (SOT) の概略図。常磁体 NM で y 方向に電場を印加すると、SHE によりスピン流が生成される。NM から FM に注入されたスピン流によって、FM の磁化がトルクを受けることを示している。

相互作用^{*24}を介して、磁化を担う d 電子の角運動量を変化させる。ゆえに、磁化がトルクを受ける。一方で、SHE や Rashba Edelstein Effect など、スピン軌道相互作用によって生じたスピン流から受けるトルクを SOT と呼び、近年では、広く研究される対象となっている (図 1.11 を参照)。

1.9.2 軌道トルク

軌道トルクとは、強磁性体に注入された軌道流が有する軌道角運動量が、強磁性体内のスピン軌道相互作用によってスピン角運動量に変換された上で、磁化に作用し、誘起されるトルクのことである。軌道トルクの存在は、2020 年に、Dongwook Go らによって、初めて理論的に示唆された [92]。図 1.12 に示すように、 y 方向に電場を印加すると、常磁性体 NM において軌道ホール効果 (OHE) が生じる。生成した OHE によって、 y 方向に偏極した軌道流が生じて、NM/強磁性体 FM 界面に到達すると、強磁性体のスピン軌道相互作用によって、スピンに変換され、交換相互作用でトルクを与えるという理論である。この時、SHE 及び OHE によるトルク生成効率 ξ_{DL}^E は、

$$\xi_{DL}^E \propto (\sigma_{SHE}^{NM} + C_{FM}\sigma_{OHE}^{NM}) \quad (1.9.1)$$

となる [17]。ここで、 $\sigma_{SHE(OHE)}^{NM}$ は、SHE(OHE) 由来のスピン (軌道) ホール伝導度を表す。 C_{FM} は、FM 内の実効スピン軌道相関係数であり、NM から注入された OHE 由来の軌道流に

*24 $s - d$ 相互作用とは、伝導電子 (s 電子) と局在電子 (d 電子) 間の相互作用のことである。

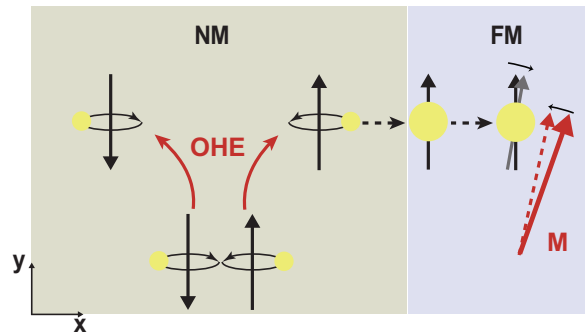


図 1.12 最初に理解された軌道ホール効果 (OHE) によるスピン軌道トルク (SOT) の概略図。常磁体 NM で y 方向に電場を印加すると、OHE により軌道流が生成される。NM で生成された軌道流が、NM/FM 界面でスピン流に変換されて、FM の磁化がトルクを受けることを示している。

応答して FM にどれだけスピン蓄積が生じるかを示している^{*25}。NM が同一の場合、遷移金属強磁性体である Ni、Fe、Co に対して、 $C_{\text{Ni}} > C_{\text{Co}} > C_{\text{Fe}}$ の大小関係があると理論的に示唆され、Ni で軌道トルクが発現しやすいことが明らかになった [17]。実験的にも、Ni を用いて、Cr 及び Ta、Mn、Pt、Ti、Zr による軌道トルクが観測されている [16–18, 93, 94]。

上述した軌道トルクの生成メカニズムに加えて、2021 年には、Dongwook Go らによって、軌道トルクに関する新たな理論提案がなされた [95]。図 1.13 に示すように、 y 方向に電場を印加すると、NM において OHE が生じ、 y 方向に偏極した軌道流が生じて、FM に注入される。注入された軌道流は、NM/FM 界面でスピンに変換されずに、軌道流として強磁性体中を伝播し、FM 内のサイトごとに、FM のスピン軌道相互作用と局所交換相互作用の複合効果によって、軌道角運動量からスピン角運動量に変換され、FM の磁化に作用し、トルクを与えると考えられている [95]。つまり、軌道トルクは、スピン軌道相互作用を介して、軌道角運動量からスピン角運動量に変換される必要があるとわかる。

^{*25} C_{FM} の符号は、FM のフェルミエネルギー付近のスピン軌道相関係数 $R_{\text{FM}} = \langle \mathbf{L} \cdot \mathbf{S} \rangle$ の符号と本質的に同じで、その大きさは FM 内で発生した軌道流の軌道-スピン変換に対応する R_{FM} にほとんど比例する。

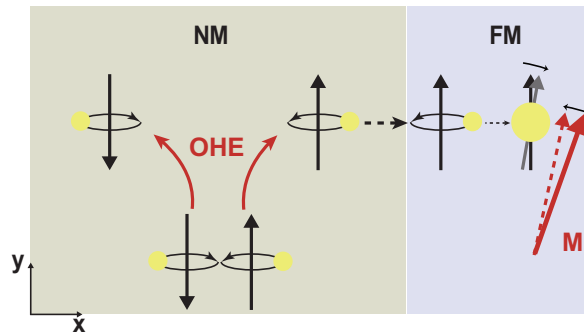


図 1.13 後に理解された軌道ホール効果 (OHE) によるスピントルク (SOT) の概略図。常磁体 NM で y 方向に電場を印加すると、OHE により軌道流が生成される。NM から FM に注入された軌道流が、FM 内でスピントルクへ変換されて、FM の磁化がトルクを受けることを示している。

1.10 本研究の目的

本研究では、金属薄膜系における角運動量流の生成現象 (SHE、AHE、OHE) の観測及び強磁性体中で発現する電流誘起トルクに関する新たな知見を得ることを目指した。より具体的には、角運動量流の生成現象である SHE 及び AHE、OHE を観測し、強磁性体膜厚または温度、強磁性体組成を変化させながら詳しく調べた上で、強磁性体内で発現するスピントルク及び軌道トルクを定量して知見を得ることを目指す。

従来の SHE に由来するスピントルク効率は、強磁性体膜厚が異なる複数の二層膜デバイスを用意して定量されたが、全デバイスにおける界面状態などが完全に同じ物理特性を有しているという仮定をおく必要があった。そこで、単一のデバイスにおける強磁性体膜厚を変化させて定量することにより、この問題点を解決することを狙った。また、一般的な強磁性体 (Ni、Co、Fe) と比較して、ファンデルワールス強磁性材料における電子の伝導メカニズムは、まだ十分に理解されておらず、AHE を温度を変化させながら測定し、電子の伝導メカニズムを解明することを狙った。さらに、OHE に由来する軌道トルク効率は、強磁性体の電子状態に依存して変化するということが理論的に報告されており、実験的にはまだ明らかではないため、強磁性体組成を連続的に変化させて、軌道トルク効率を定量し、軌道トルクと強磁性体組成の関係を明らかにすることを狙った。

1.11 本研究の構成

第 1 章では、スピントロニクス発展の歴史的背景について最新の動向まで含めて説明し、イオントロニクスの中心的役割を果たすイオン液体、二次元材料の中心的な存在であるファンデルワールス材料についても触れた。その後、電子の持つ角運動量の性質及び角運動量同士の相互作用、角運動量流について述べてから、LLG 方程式に基づいて磁化ダイナミクスについて説明した。さらに、ホール効果及び磁化と角運動量流間のトルクなど、本研究での前提知識となる事項を説明した。

次いで、第 2 章では、本研究における実験方法や解析方法について説明する。具体的には、角運動量流をトルクとして検出する際に用いたスピン強磁性共鳴測定法、AHE の解析を行う際に用いたスケーリング則、測定デバイス作製に用いたスパッタリング原理や微細加工法などを説明する。

最後に、第 3 章から第 5 章にかけて本研究における重要な 3 つの研究結果を説明する。第 3 章では、強磁性体/常磁性体二層膜におけるスピホール効果 (SHE) を観測し、電流誘起トルクの電氣的制御を実現した実験を示す。第 4 章では、近年注目を集めるファンデルワール強磁性体における異常ホール効果 (AHE) の観測及びスケーリング則に基づいて物理的特性を調べた。第 5 章では、強磁性体/常磁性体二層膜における軌道ホール効果 (OHE) に起因する軌道トルクを観測し、軌道トルクの強磁性層依存性を明らかにした。以下で、章ごとに要約して説明する。

第 3 章: Fe/Pt 二層膜におけるスピホール効果及びスピントルクの電気化学制御

巨大な SHE を示す代表的な重金属である Pt と、強磁性体である Fe を用いて、Fe/Pt 二層膜を作製し、SHE に由来する電流誘起トルク効率を定量した。従来のスピントルク強磁性共鳴 (ST-FMR) による電流誘起トルク効率の定量では、強磁性体膜厚が異なる複数の二層膜デバイスを用意し、それぞれを測定して算出する必要があった。さらに、この方法を用いる場合は、特に界面状態などにおいて、全ての二層膜デバイスが同じ物理特性を有していると仮定する必要があり、実験的には定量化の適応範囲が限られていた。そこで本研究では、イオン液体を用いた電気化学エッチングと ST-FMR を組み合わせることで、強磁性体をエッチングして膜厚を変化させながら、繰り返し測定を行い、単一のデバイスで電流誘起トルク (DL トルク、FL トルク) 効率を定量した。

第 4 章: ファンデルワールス強磁性体 Fe_5GeTe_2 における異常ホール効果

近年、特異な現象 (超伝導、強磁性など) を発現する材料としてファンデルワールス材料が注目を集めるようになった。特に、ファンデルワールス強磁性材料はスピントロニクスデバイスの構成要素となる可能性を秘めていると考えられているが、スピン輸送特性をはじめとする電子の伝導メカニズムはまだ十分に理解されるに至っていない。本研究では、ファンデルワールス強磁性体 Fe_5GeTe_2 に注目し、磁化 M が温度 T にほとんど依存しない低温領域 ($T < 100$ K) において、AHE のスケーリング則に基づいて電子の伝導メカニズムを詳しく調べた。

第 5 章: 強磁性体/Ti 二層膜における軌道ホール効果および軌道トルクの観測

SHE の発現には、スピン軌道相互作用が必要であるのに対し、OHE は、スピン軌道相互作用を必要とせず、より基本的な現象である。したがって OHE を観測するためにはスピン軌道相互作用が小さい軽金属が有望である。本研究では、スピン軌道相互作用が小さい軽金属である Ti と、強磁性体 (FM) を用いて、FM/Ti 二層膜を作製し、Ti の OHE に由来する電流誘起トルク効率を定量した。Ni から Fe にかけて連続的に強磁性体組成を変化させたデバイスを複数作製し、ST-FMR により電流誘起トルク (DL トルク、FL トルク) 効率の強磁性合金組成依存性を調べた。

第 2 章

実験方法・解析方法

本章では第 3 章以降で行った実験方法及び実験結果の解析方法に関して述べる。まず、スピントルク強磁性共鳴法に関して、説明する。

2.1 スピントルク強磁性共鳴法

スピントルク強磁性共鳴 (Spin-torque ferromagnetic resonance : ST-FMR) 測定とは、スピン軌道トルクによって駆動される強磁性共鳴のことであり、スピントルクを定量するためにもっとも広く利用されている方法の一つである [96,97]。強磁性体を含む薄膜に外部磁場 \mathbf{H} を印加しながら、電流を印加すると、Spin Hall effect や Orbital Hall effect、Rashba Edelstein effect によってスピン流・軌道流が生成され、強磁性体の磁化 \mathbf{M} にトルクが働く。特に、磁化歳差周波数と一致する高周波電流 $I \cos(\omega t)$ を流すとこのスピン軌道トルクによって強磁性共鳴が駆動される。これが ST-FMR の原理である。ST-FMR スペクトルを解析することで、電流誘起トルクを見積もることが可能となる。

図 2.1 に示すように、実験的には、磁化 \mathbf{M} の歳差運動によって振動する抵抗 $R(t)$ と交流電流 $I \cos(\omega t)$ の結合によって、DC 電圧と AC 電圧が生じることになる。バイアスティーによって DC 電圧 V_{DC} のみを取り出して磁場依存性を測定することで、測定を行う。

2.1.1 スピントルク強磁性共鳴測定における直流電圧の導出

ここでは、DC 電圧 V_{DC} が生じる過程を述べる。強磁性体を含む薄膜に高周波電流 $I(t) = I \cos(\omega t)$ を印加時の電圧は、

$$V(t) = R(t)I(t) = R(t)I \cos(\omega t) \quad (2.1.1)$$

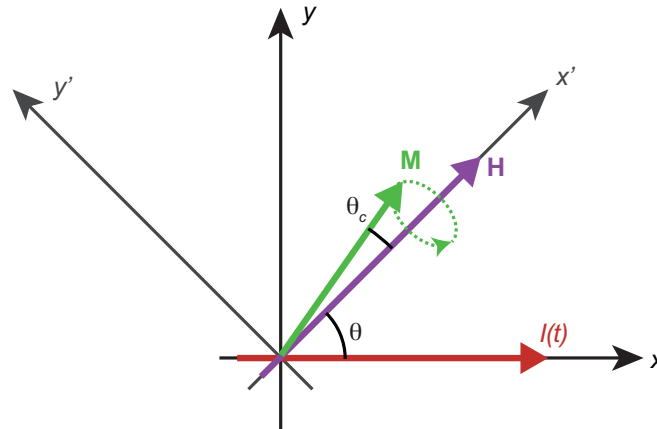


図 2.1 スピントルク強磁性共鳴における磁化 \mathbf{M} の x - y 平面における運動の概略図。外部磁場 \mathbf{H} を印加しながら、交流電流 $I(t)$ を流し入れると、磁化 \mathbf{M} が歳差運動を行う。

となる。この時、電流が流れる方向と平行方向 (x 方向) の抵抗は、強磁性体の異方性磁気抵抗 (Anisotropic magnetoresistance : AMR) 効果を考慮すると、

$$R(t) = R_{\perp} - \Delta R \cos^2 \theta(t) \quad (2.1.2)$$

と表せる。ここでは、AMR による抵抗変化を $\Delta R = R_{\perp} - R_{\parallel}$ とし、 R_{\perp} 、 R_{\parallel} は磁化 \mathbf{M} と電流 $I(t)$ のなす角 θ が垂直、平行の時の抵抗とする。強磁性体の磁化 \mathbf{M} が歳差運動を行っている時、外部磁場 \mathbf{H} と磁化 \mathbf{M} のなす角を θ_c 、外部磁場 \mathbf{H} と電流 $I(t)$ のなす角を θ とすると、磁化 \mathbf{M} と電流 $I(t)$ のなす角は、

$$\theta(t) = \theta + \theta_c \cos(\omega t - \psi) \quad (2.1.3)$$

となる。ここで、 ψ は、電流 $I(t)$ と磁化 \mathbf{M} の歳差運動との位相差である。式 (2.1.2) に式 (2.1.3) を代入すると、

$$R(t) = R_{\perp} - \Delta R \{ \cos^2 \theta - 2\theta_c \sin \theta \cos \theta \cos(\omega t - \psi) \} \quad (2.1.4)$$

となる。ただし、歳差角 θ_c が微小の時 ($\theta_c \ll 1$) のみ上記の近似が成り立つ。式 (2.1.4) を式 (2.1.1) に代入すると、

$$\begin{aligned} V(t) &= R(t)I \cos(\omega t) \\ &= R_{\perp} I \cos(\omega t) - \Delta R I \cos^2 \theta \cos(\omega t) + 2\Delta R I \theta_c \sin \theta \cos \theta \cos(\omega t - \psi) \cos(\omega t) \end{aligned} \quad (2.1.5)$$

となる。ここで、 $\cos(\omega t)$ は偶関数であり、時間平均をとると第 3 項のみが非ゼロとなりうる
ので、着目すると、

$$\text{(Third term)} = \frac{1}{2} \Delta R I \theta_c \sin 2\theta \cos \psi + \Delta R I \theta_c \sin 2\theta \left(\frac{\cos 2\omega t}{2} \cos \psi + \frac{\sin 2\omega t}{2} \sin \psi \right) \quad (2.1.6)$$

と変形できる。式 (2.1.6) より、時間平均をとっても、ゼロとならない項 V_{DC} は、

$$V_{\text{DC}} = \frac{1}{2} \Delta R I \theta_c \sin 2\theta \cos \psi \quad (2.1.7)$$

となる。以上が、ST-FMR 測定において、DC 電圧が生じる過程である。

2.1.2 磁化の歳差角の導出

この小節では、歳差角 θ_c を求めるために、電流によって生じる Oersted 磁場とスピン軌道
トルクによる有効場を含めた磁化ダイナミクスを考える。図 2.1 において、 x' - y' 座標系で外
部磁場 \mathbf{H} 及び磁化 \mathbf{M} を記述すると、

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} H_{x'} \\ H_{y'} \\ H_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} H_0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.1.8)$$

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} M_s \\ m_{y'} e^{i\omega t} \\ m_z e^{i\omega t} \end{pmatrix} \quad (2.1.9)$$

と表せる。歳差角 θ_c は、微小であるので、以下の近似が成り立つ。

$$\theta_c \approx \tan \theta_c = \frac{m_{y'}}{m_{x'}} = \frac{m_{y'}}{M_s} \quad (2.1.10)$$

また、電流から生じる Oersted 磁場とスピン軌道トルクによる有効場 \mathbf{h} は、

$$\mathbf{h} = \begin{pmatrix} h_x \cos \theta + h_y \sin \theta \\ -h_x \sin \theta + h_y \cos \theta \\ h_z \end{pmatrix} e^{i\omega t} = \begin{pmatrix} h_{x'} \\ h_{y'} \\ h_z \end{pmatrix} e^{i\omega t} \quad (2.1.11)$$

と書ける。式 (2.1.11) を含めた磁化ダイナミクスを LLG 方程式を用いて記述すると、

$$\dot{\mathbf{M}} = -\gamma \mathbf{M} \times (\mathbf{H}_{\text{eff}} + \mathbf{h}) - \frac{\alpha}{M} \mathbf{M} \times \dot{\mathbf{M}} \quad (2.1.12)$$

となる。ここで、 \mathbf{H}_{eff} は、外部磁場 \mathbf{H} 及び反磁場 \mathbf{H}_m ^{*1} を含む項である。本研究で用いた薄膜デバイスは、形状から x - y 平面に広がる無限平板とみなせるため^{*2}、反磁場 \mathbf{H}_m は、

$$\mathbf{H}_m = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ -m_z e^{i\omega t} \end{pmatrix} \quad (2.1.13)$$

$\mathbf{H}_{\text{tot}} = \mathbf{H}_{\text{eff}} + \mathbf{h} = (\mathbf{H} + \mathbf{H}_m) + \mathbf{h}$ とすると、

$$\mathbf{H}_{\text{tot}} = \begin{pmatrix} H_0 + h_{x'} e^{i\omega t} \\ h_{y'} e^{i\omega t} \\ (-m_z + h_z) e^{i\omega t} \end{pmatrix} \quad (2.1.14)$$

式 (2.1.10) より、歳差角 θ_c を求めるには、 $m_{y'}$ を求めれば良い。式 (2.1.12) に式 (2.1.9)、式 (2.1.14) を代入すると、

$$i\omega \begin{pmatrix} 0 \\ m_{y'} e^{i\omega t} \\ m_z e^{i\omega t} \end{pmatrix} = -\gamma \begin{pmatrix} M_s \\ m_{y'} e^{i\omega t} \\ m_z e^{i\omega t} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} H_0 + h_{x'} e^{i\omega t} \\ h_{y'} e^{i\omega t} \\ -m_z + h_z e^{i\omega t} \end{pmatrix} - \frac{\alpha}{M_s} \begin{pmatrix} M_s \\ m_{y'} e^{i\omega t} \\ m_z e^{i\omega t} \end{pmatrix} \times i\omega \begin{pmatrix} 0 \\ m_{y'} e^{i\omega t} \\ m_z e^{i\omega t} \end{pmatrix} \quad (2.1.15)$$

となる。これより y' 成分と z 成分について解くと、

$$\underbrace{\begin{pmatrix} \frac{i\omega}{\gamma} & \frac{i\alpha\omega}{\gamma} + H_0 + M_s \\ \frac{i\alpha\omega}{\gamma} + H_0 & -\frac{i\omega}{\gamma} \end{pmatrix}}_{\Lambda} \begin{pmatrix} m_{y'} \\ m_z \end{pmatrix} = M_s \begin{pmatrix} h_z \\ h_{y'} \end{pmatrix} \quad (2.1.16)$$

となる。したがって、

$$\begin{pmatrix} m_{y'} \\ m_z \end{pmatrix} = M_s \Lambda^{-1} \begin{pmatrix} h_z \\ h_{y'} \end{pmatrix} \quad (2.1.17)$$

と変形できる。一方で、 Λ の行列式は、

^{*1} 強磁性体内部では、スピンの揃っている時に隣り合う磁極は打ち消し合うが、端の部分では打ち消し合わない磁極が残り、磁化している状態になる。両端で磁極が異なっているため、磁化している状態となる。この磁場を反磁場と呼ぶ。

^{*2} ST-FMR 測定で用いた強磁性体の形状は、典型的に、厚さ $d = 10\text{nm}$ 、幅 $W = 10\mu\text{m}$ 、長さ $L = 150\mu\text{m}$ であった。

$$\det\Lambda = \left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 - (H_0 + iW)(H_0 + M_s + iW) \quad (2.1.18)$$

と表せる。ここでは、

$$W \equiv \frac{\alpha\omega}{\gamma} \quad (2.1.19)$$

と定義し、一般に、半値半幅を表す。式 (2.1.16)、式 (2.1.19) より、

$$\begin{pmatrix} m_{y'} \\ m_z \end{pmatrix} = \frac{M_s}{\det\Lambda} \begin{pmatrix} -\frac{i\omega}{\gamma} & -iW - H_0 - M_s \\ -iW - H_0 & \frac{i\omega}{\gamma} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} h_z \\ h_{y'} \end{pmatrix} \quad (2.1.20)$$

となり、特に、 $m_{y'}$ について、

$$m_{y'} = -M_s \frac{\frac{i\omega}{\gamma} h_z + (iW + H_0 + M_s) h_{y'}}{\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 - (H_0 + iW)(H_0 + M_s + iW)} \quad (2.1.21)$$

と表せる。式 (2.1.10) に代入すると、歳差角 θ_c は

$$\begin{aligned} \theta_c &\approx \frac{m_{y'}}{M_s} \\ &= \frac{\gamma}{i\omega} \left\{ h_z + \frac{(H_0 + iW)(H_0 + M_s + iW) h_z - \frac{i\omega}{\gamma} (iW + H_0 + M_s) h_{y'}}{\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 - (H_0 + iW)(H_0 + M_s + iW)} \right\} \end{aligned} \quad (2.1.22)$$

となる。以降では、次の小節では、歳差角 θ_c を DC 電圧 V_{DC} に代入することで、Orsted 磁場とスピン軌道トルクによる有効場を導出し、実験的に分離する方法を詳細に述べる。

2.1.3 スピン軌道トルクによる有効場の導出

本実験は、周波数 ω を固定し、外部磁場 H_0 を掃引して行う。共鳴磁場 H_{res} 付近での電圧スペクトルを決めるために、外部磁場と共鳴磁場の差 δH を

$$\delta H = |H_0 - H_{\text{res}}| \quad (2.1.23)$$

と定義する。ただし、 δH は微小であるとする。式 (2.1.22) の分母は、

$$\begin{aligned} &\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 - (H_0 + iW)(H_0 + M_s + iW) \\ &= -(2H_{\text{res}} + M_s)(\delta H + iW) \end{aligned} \quad (2.1.24)$$

と変形できる。ただし、 $\delta H \ll H_{\text{res}}$ 、 $W \ll H_{\text{res}}$ であることを用いて近似した。また、Kittelの理論式

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = H_{\text{res}}(H_{\text{res}} + M_s) \quad (2.1.25)$$

を用いた。式(2.1.7)に式(2.1.22)、式(2.1.23)を代入すると、

$$V_{\text{DC}} = \frac{1}{2} \Delta R I \sin 2\theta \cos \psi \left[\frac{\gamma}{i\omega} \left\{ -\frac{H_{\text{res}}(H_{\text{res}} + M_s)}{(2H_{\text{res}} + M_s)(\delta H + iW)} h_z + \frac{i\omega}{\gamma} \frac{(iW + H_{\text{res}} + \delta H + M_s)}{(2H_{\text{res}} + M_s)(\delta H + iW)} h_{y'} \right\} \right] \quad (2.1.26)$$

となる。大括弧内の項をそれぞれ整理すると、

$$\text{(First term)} = A_{\text{sym}} \frac{W \{i(H_0 - H_{\text{res}}) + W\}}{(H_0 - H_{\text{res}})^2 + W^2} h_z \quad (2.1.27)$$

$$\text{(Second term)} = A_{\text{asym}} \frac{W(H_0 - H_{\text{res}} - iW)}{(H_0 - H_{\text{res}})^2 + W^2} h_{y'} \quad (2.1.28)$$

と表せる。ここで、

$$\begin{aligned} A_{\text{sym}} &= \frac{\gamma H_{\text{res}}(H_{\text{res}} + M_s)}{\omega W(2H_{\text{res}} + M_s)} \\ &= \frac{H_{\text{res}} + M_s}{W(2H_{\text{res}} + M_s)} \sqrt{\frac{H_{\text{res}}}{H_{\text{res}} + M_s}} \end{aligned} \quad (2.1.29)$$

$$A_{\text{asym}} = \frac{H_{\text{res}} + M_s}{W(2H_{\text{res}} + M_s)} \quad (2.1.30)$$

と定義した。測定できる DC 電圧 V_{DC} は、実部をとり、

$$\begin{aligned} \Re[V_{\text{DC}}] &= \frac{1}{2} \Delta R I \sin 2\theta \cos \psi \left[A_{\text{sym}} \frac{W^2}{(H_0 - H_{\text{res}})^2 + W^2} h_z + A_{\text{asym}} \frac{W(H_0 - H_{\text{res}})}{(H_0 - H_{\text{res}})^2 + W^2} h_{y'} \right] \\ &= V_{\text{sym}} \frac{W^2}{(H_0 - H_{\text{res}})^2 + W^2} + V_{\text{asym}} \frac{W(H_0 - H_{\text{res}})}{(H_0 - H_{\text{res}})^2 + W^2} \end{aligned} \quad (2.1.31)$$

と書き表せ、対称成分と反対称成分 Lorentz 関数の和として表せることが分かる。ここでは、

$$\begin{aligned} V_{\text{sym}} &= \frac{1}{2} \Delta R I \sin 2\theta \cos \psi A_{\text{sym}} h_z \\ &= \frac{1}{2} \Delta R I \sin 2\theta \cos \psi A_{\text{sym}} H_{\text{DL}} \end{aligned} \quad (2.1.32)$$

$$\begin{aligned} V_{\text{asym}} &= \frac{1}{2} \Delta R I \sin 2\theta \cos \psi A_{\text{asym}} h_{y'} \\ &= \frac{1}{2} \Delta R I \sin 2\theta \cos \psi A_{\text{asym}} (H_{\text{FL}} + H_{\text{Oe}}) \end{aligned} \quad (2.1.33)$$

とした。なお、スピン軌道トルクによる面直の有効場 h_z を H_{DL} 、面内の有効場 $h_{y'}$ をスピン軌道トルクによる有効場 H_{FL} と電流による Oersted 磁場 H_{Oe} の和として書き換えた。ここで、本研究における Oersted 磁場は、デバイスの常磁性体を流れる電流のみによって生成されるので、電流密度を j_{NM} とすると、

$$\begin{aligned} H_{\text{Oe}} &= \frac{j_{\text{NM}} w d_{\text{NM}}}{2(w + d_{\text{NM}})} \\ &\approx \frac{j_{\text{NM}} d_{\text{NM}}}{2} \end{aligned} \quad (2.1.34)$$

となる。ここでは、 $d_{\text{NM}} \ll w$ であることを用いて近似した。したがって、面内の有効場 $h_{y'}$ においても、スピン軌道トルクによる有効場 H_{FL} と電流による Oersted 磁場 H_{Oe} の分離が可能である。

2.1.4 スピン軌道トルクの定量

本小節では、 H_{DL} から生じる Damping-like(DL) トルクと H_{FL} から生じる Field-like(FL) トルクの生成効率 ξ_{DL} , ξ_{FL} を求めることで、スピン軌道トルクを定量する。なお、トルク効率の解析には、電圧スペクトル比 $V_{\text{sym}}/V_{\text{asym}}$ から求める方法と、AMR の大きさ ΔR 及びマイクロ波電流 I から求める方法について述べる [98, 99]。

(1) 電圧スペクトル比 $V_{\text{sym}}/V_{\text{asym}}$ による電流密度 j あたりのトルク効率 ξ^j の算出

電圧スペクトルの比をとり、新たにスピン軌道トルク生成効率 ξ_{FMR} を

$$\xi_{\text{FMR}} \equiv \frac{V_{\text{sym}}}{V_{\text{asym}}} \frac{e}{\hbar} M_s t_{\text{FM}} d_{\text{NM}} \sqrt{1 + \frac{M_s}{H_{\text{res}}}} \quad (2.1.35)$$

と定義すると、式 (2.1.32)、式 (2.1.33) より、

$$\begin{aligned}
\xi_{\text{FMR}} &= \frac{A_{\text{sym}}}{A_{\text{asym}}} \frac{H_{\text{DL}}}{H_{\text{FL}} + H_{\text{Oe}}} \frac{e}{\hbar} M_s t_{\text{FM}} d_{\text{NM}} \sqrt{1 + \frac{M_s}{H_{\text{res}}}} \\
&= \frac{H_{\text{DL}}}{H_{\text{FL}} + H_{\text{Oe}}} \frac{e}{\hbar} M_s t_{\text{FM}} d_{\text{NM}} \\
&= \frac{\frac{\hbar}{2e} \frac{\xi_{\text{DL}} j_{\text{NM}}}{M_s t_{\text{FM}}}}{\frac{\hbar}{2e} \frac{\xi_{\text{FL}} j_{\text{NM}}}{M_s t_{\text{FM}}} + \frac{j_{\text{NM}} d_{\text{NM}}}{2}} \frac{e}{\hbar} M_s t_{\text{FM}} d_{\text{NM}} \\
\frac{1}{\xi_{\text{FMR}}} &= \frac{1}{\xi_{\text{DL}}} \left(1 + \frac{\hbar}{e} \frac{\xi_{\text{FL}}}{M_s t_{\text{FM}} d_{\text{NM}}} \right) \tag{2.1.36}
\end{aligned}$$

となる。ただし、

$$\xi_{\text{DL,FL}} = \frac{2e}{\hbar} M_s t_{\text{FM}} \frac{H_{\text{DL,FL}}}{j_{\text{NM}}} \tag{2.1.37}$$

と定義した。ここで、 t_{FM} は強磁性体の膜厚である。

式 (2.1.36) から分かるように、スピン軌道トルク生成効率 ξ_{FMR} の強磁性体膜厚 t_{FM} 依存性を測定することで、DL トルク効率 ξ_{DL} 及び FL トルク効率 ξ_{FL} を定量することができる。

(2) AMR の大きさ ΔR 及びマイクロ波電流 I による電場 E あたりのトルク効率 ξ^E の算出

AMR の大きさ ΔR とマイクロ波電流 I を定量し、スピン軌道トルクによる面直（面内）の有効場 H_{DL} (H_{FL}) とともに用いることでもスピン軌道トルク生成効率を求めることが可能である。 ΔR 、 I それぞれに関して、測定方法を述べる。

抵抗角度依存測定による ΔR の定量

図 2.2 に示したのは、ST-FMR デバイスにおける抵抗 R の角度依存性である。デバイスに直流電流 0.1 mA を印加しながら、面内磁場 215 mT を印加する角度を変えて測定することにより実施した。角度に依存しない抵抗値 R_{\perp} 及び AMR の大きさ ΔR は、式 (2.1.2) でフィッティングすることにより求められ、図示したデバイスでは、 $R_{\perp} = 1131.6 \Omega$ 、 $\Delta R = 4.638 \Omega$ であった。

Joule Heating 法による I の定量

マイクロ波電流 I は、Joule Heating 法により見積もった。この方法は、マイクロ波パワー P を変化させながらデバイスの抵抗変化 $\Delta R_{\text{RF}} (= R_{\text{RF}} - R_0)$ を測定し、直流電流 I_{DC} を流し

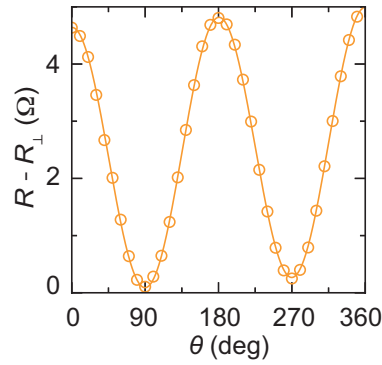


図 2.2 Ti(6)/Ni(5.5)/SiO₂ における抵抗 R の角度依存性を示す。角度に依存しない抵抗値 R_{\perp} を差し引いた結果を図示している。

た時のデバイスの抵抗変化 $\Delta R_{\text{DC}} (= R_{\text{DC}} - R_0)$ と照らし合わせることで、ST-FMR 測定において実際に印加されているマイクロ波電流 I を見積もる方法である*3。一般に、デバイスに電流 J を流し入れるとジュール熱

$$W = RJ^2 \quad (2.1.38)$$

が発生する。

初めに、デバイスにマイクロ波電流 I を流し入れた場合について考える。パワー P との間に、 $P \propto I^2$ の関係が成り立つ。式 (2.1.38) より、電流量 I が一定の時、 $P \propto \Delta R_{\text{RF}}$ が成立する。つまり、抵抗 R_{RF} のマイクロ波パワー P 依存性は、

$$R_{\text{RF}} = AP + R_0 \quad (2.1.39)$$

と表せる。ここで A は定数である。なお、本実験では、0.5 mA 程度の直流電流を流しながらマイクロ波電流 I による抵抗変化 ΔR_{RF} を測定した。

次に、デバイスに直流電流 I_{DC} を流し入れた場合について考える。測定を行なっている室温付近では、金属薄膜の抵抗 R は温度 T に比例して変化するので、 $R \propto T$ が成り立つ。電流が ΔI_{DC} だけ変化する時に、ジュール熱の変化 ΔP とデバイス抵抗の温度変化 ΔT との間に、 $\Delta P \propto \Delta T$ が成立するような状況では、式 (2.1.38) も含めて考えると、 $\Delta R_{\text{DC}} \propto \Delta P \propto \Delta I_{\text{DC}}^2$ となる。つまり、抵抗 ΔR_{DC} の直流電流 ΔI_{DC} 依存性は、

$$R_{\text{DC}} = BI_{\text{DC}}^2 + R_0 \quad (2.1.40)$$

と表せる。ここで B は定数である。

*3 ここで、 R_0 は、ジュール熱の影響を除外したデバイスの抵抗値である

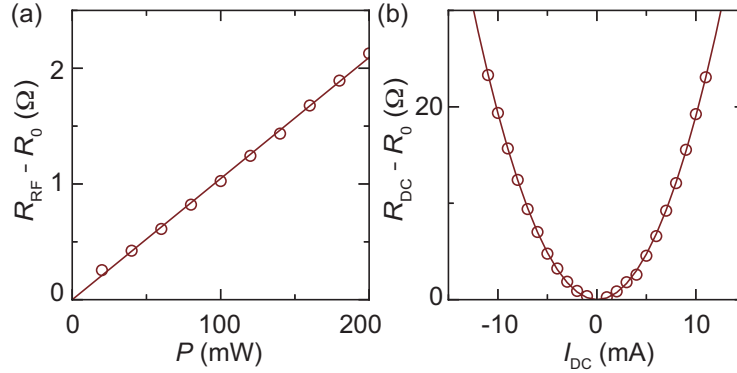


図2.3 Ti(6)/Ni(5.5)/SiO₂における(a)抵抗 R_{RF} のマイクロ波電流パワー P 依存性 ($f = 12$ GHz) と (b) 抵抗 R_{DC} の直流電流 I_{DC} 依存性を示す。ジュール熱の影響を除外したデバイスの抵抗値 R_0 を差し引いた結果を図示している。

マイクロ波電流 I と直流電流 I_{DC} には、 $I = \sqrt{2}I_{\text{DC}}$ の関係が成り立ち、式 (2.1.39)、(2.1.40) より、

$$I = \sqrt{\frac{2A}{B}} \times \sqrt{P} \quad (2.1.41)$$

となる。Ti(6)/Ni(5.5)/SiO₂ における具体的な測定結果を図 2.3 に示す。このデバイスでは、 $P = 100$ mW のマイクロ波電流を流して ST-FMR 測定を行ったため、 $R_0 = 1135.0 \Omega$ 、 $I = 3.303$ mA と見積もられた。

電場 E あたりのトルク効率 ξ^E の定量

デバイスに印加される電場 E を考えると、電極間距離 l として、

$$E = \frac{R_0 I}{l} \quad (2.1.42)$$

と表せる*4。式 (2.1.37) と同じようにして、電場 E あたりの DL トルク効率 ξ_{DL}^E と FL トルク効率 ξ_{FL}^E は、

$$\xi_{\text{DL,FL}}^E = \frac{2e}{\hbar} M_s t_{\text{FM}} \frac{H_{\text{DL,FL}}}{E} \quad (2.1.43)$$

と表せる。なお、式 (2.1.32)、(2.1.33) から H_{DL} 、 H_{FL} を求める際に、 ΔR の測定値を用いた。この方法では、スピン軌道トルク生成効率 ξ_{FMR} の強磁性体膜厚 t_{FM} 依存性を測定せずに、DL トルク効率 ξ_{DL}^E 及び FL トルク効率 ξ_{FL}^E を定量することができる。

*4 R_0 に含まれる接触抵抗は非常に小さいと考え、無視している。

最後に、方法 (1) で求めた $\xi_{\text{DL(FL)}}$ との関係式は、

$$\xi_{\text{DL(FL)}}^E = \frac{\xi_{\text{DL(FL)}}}{\rho_{\text{NM}}} \quad (2.1.44)$$

として表せる。ここで、 ρ_{NM} は、常磁性体における抵抗率である。言い換えると、方法 (2) を用いることで、常磁性体における抵抗率 ρ_{NM} が明らかでない場合でも二層膜の電場 E を算出することで、トルク効率の定量が可能である。

2.2 異常ホール効果のスケーリング則

1.8 節では、ホール効果全体の説明を行い、特に 1.8.1 小節では、正常ホール効果 (NHE) 及び異常ホール効果 (AHE) の定性的な説明を行った。本節では、第 4 章におけるファンデルワールス強磁性 Fe_5GeTe_2 の AHE の起源を明らかにする際に用いたスケーリング則に関して述べる。

一般に、強磁性体金属に対して、ホール効果を測定すると、NHE に加えて AHE が観測できる。AHE に関連して生じる異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} は、電子の緩和時間 τ や縦抵抗率 ρ_{xx} などの物質固有の値に強く依存して決定されるが、内因性異常ホール抵抗率 ρ_{int} と外因性異常ホール抵抗率 ρ_{ext} に大別して考えることができる。つまり、Matthiessen rule を用いると、

$$\rho_{\text{AHE}} = \rho_{\text{int}} + \rho_{\text{ext}} \quad (2.2.1)$$

として表せる。一方で、異常ホール伝導度 σ_{AHE} ^{*5} は、

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{AHE}} &= -\frac{\rho_{\text{AHE}}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{\text{AHE}}^2} \\ &\approx -\frac{\rho_{\text{AHE}}}{\rho_{xx}^2} \end{aligned} \quad (2.2.2)$$

と書け^{*6}、 $\sigma_{\text{AHE}} \propto \rho_{\text{AHE}}$ であるため、

$$\sigma_{\text{AHE}} = -\sigma_{\text{int}} - \sigma_{\text{ext}} \quad (2.2.3)$$

と表すこともできる^{*7}。ここで、 σ_{int} 、 σ_{ext} はそれぞれ内因性異常ホール伝導度、外因性異常ホール伝導度とした。なお、式 (2.2.2) では縦抵抗率 ρ_{xx} 、異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} を用いており、 $\rho_{xx} \gg \rho_{\text{AHE}}$ として近似した。図 2.4 に示すように、縦伝導度 σ_{xx} ^{*8} が、 $10^3 - 10^6 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$

^{*5} 異常ホール伝導度 σ_{AHE} 及び異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} はテンソルであるため、縦伝導度 σ_{xx} と縦抵抗率 ρ_{xx} のように単純に逆数で書き表すことができない。

^{*6} NHE 及び AHE では、オームの法則に基づいて $\mathbf{E} = \boldsymbol{\rho}\mathbf{J}$ 、 $\mathbf{J} = \boldsymbol{\sigma}\mathbf{E}$ を定義し、それぞれ \mathbf{J} について解いた行列式を係数比較することで、 $\boldsymbol{\rho}$ と $\boldsymbol{\sigma}$ の関係式が得られる。

^{*7} $\rho_{\text{int}}(\rho_{\text{ext}})$ から $\sigma_{\text{int}}(\sigma_{\text{ext}})$ への変換は、 $\rho_{\text{int}}(\rho_{\text{ext}})$ が 2 階のテンソルであるために、符号が逆になる。

^{*8} 縦伝導度 σ_{xx} は、縦抵抗率 ρ_{xx} を用いて、 $\sigma_{xx} = 1/\rho_{xx}$ で定義される。

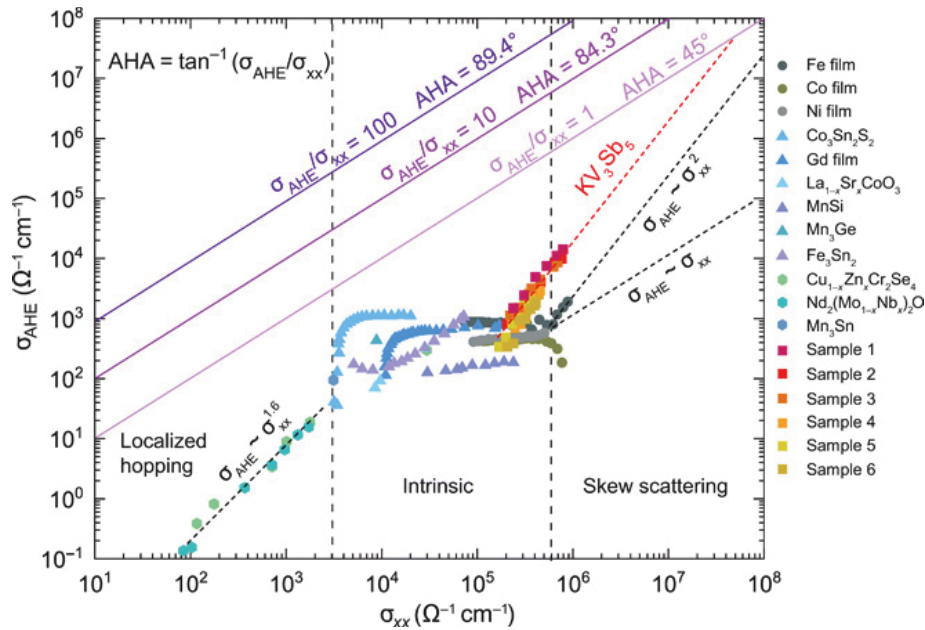


図 2.4 様々な AHE 領域における縦伝導度 σ_{xx} に対する異常ホール伝導度 σ_{AHE} のスケーリングプロットを示す [100]。[Reprinted S.-Y. Yang, Y. Wang, B. R. Ortiz, D. Liu, J. Gayles, E. Derunova, R. Gonzalez-Hernandez, L. Šmejkal, Y. Chen, S. S. P. Parkin, S. D. Wilson, E. S. Toberer, T. McQueen, and M. N. Ali, Sci. Adv. 6, eabb6003 (2020). © The Authors, some rights reserved; exclusive licensee AAAS. Distributed under a CC BY-NC 4.0 License (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>).

程度の領域では、内因性寄与が支配的であり、 $10^6 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ よりも大きい領域では、外因性寄与 (スキュー散乱、サイドジャンプ) が支配的であることが、強磁性体金属をはじめとした様々な材料で報告されている [100, 101]^{*9}。次小節以降では、内因性寄与及び外因性寄与に関して説明する。

2.2.1 内因性異常ホール効果

内因性異常ホール伝導度 σ_{int} は、式 (2.2.2) と同様にして、

$$\sigma_{\text{int}} \approx -\frac{\rho_{\text{int}}}{\rho_{xx}^2} \quad (2.2.4)$$

^{*9} 本研究では取り扱わないが、スピンホール効果 (SHE) の起源を明らかにする際にもスケーリング則が用いられる [102]。

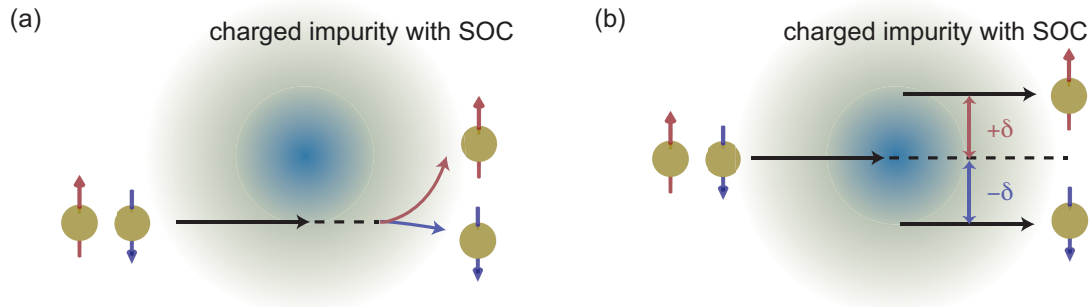


図 2.5 スピン軌道相互作用を有する荷電不純物によって生じる (a) スキュー散乱及び (b) サイドジャンプの模式図。

と書ける^{*10}。内因性 AHE は、電子の不純物による散乱に影響されない。言い換えると、内因性異常ホール伝導度 σ_{int} は、電子の運動量緩和時間 τ に依存せず、一定である。したがって、内因性異常ホール効果が支配的な AHE 領域では、 $\sigma_{\text{int}} = \text{const.}$ となる^{*11}。

2.2.2 外因性異常ホール効果

1954 年に、Robert Karplus と J. M. Luttinger が、AHE のメカニズムを解明をした際には、内因性寄与のみを取り扱っており、着目されなかった寄与である [81]。その後、Jan Smit (1955 年、1958 年) [82, 83] や Luc Berger (1970 年) [84] によって、外因性寄与を考慮して AHE のメカニズムが説明された。外因性 AHE は、電子の不純物による散乱に影響されて生じる現象であり、スキュー散乱による寄与とサイドジャンプによる寄与に大別できる。それぞれの散乱機構に関して定性的に説明する。

スキュー散乱

図 2.5(a) に示すように、スキュー散乱は、スピン軌道相互作用を有する荷電不純物に、電子が接近し、散乱されて進行方向がずれる現象である。この散乱は、運動量が保存しない非弾性散乱であるので、スキュー散乱に由来する異常ホール伝導度 σ_{SK} は、電子の運動量緩和時間 τ に依存して決定される。したがって、

$$\sigma_{\text{SK}} \propto \tau \propto \sigma_{xx} \quad (2.2.5)$$

^{*10} ただし、縦抵抗率 ρ_{xx} 、内因性異常ホール抵抗率 ρ_{int} を用いており、 $\rho_{xx} \gg \rho_{\text{int}}$ として近似した。

^{*11} 内因性異常ホール抵抗率 ρ_{int} について式を整理すると、 $\rho_{\text{int}} \propto \rho_{xx}^2$ であるため、 ρ_{xx} の 2 乗にスケールすることも解釈できる。

が成立する*12。

サイドジャンプ

図 2.5(b) に示すように、サイドジャンプは、スピン軌道相互作用を有する荷電不純物に、電子が接近し、電子の位置が波数ベクトルと直交する方向にジャンプする現象である。この散乱は、運動量が保存する弾性散乱であるので、サイドジャンプに由来する異常ホール伝導度 σ_{SJ} は、電子の運動量緩和時間 τ に依存しない。したがって、 $\sigma_{\text{SJ}} = \text{const.}$ が成立する*13。

2.2.3 異常ホール効果の経験的スケーリング則

2.2.1 小節及び 2.2.2 小節を踏まえると、AHE のメカニズムは、内因性寄与と外因性スキュー散乱寄与と外因性サイドジャンプ寄与で分離することができる。これを異常ホール伝導度 σ_{AHE} の式で表すと、

$$\begin{aligned}\sigma_{\text{AHE}} &= -\sigma_{\text{int}} - \sigma_{\text{ext}} \\ &= -\sigma_{\text{int}} - (\sigma_{\text{SK}} + \sigma_{\text{SJ}}) \\ &= -\sigma_{\text{int}} - \alpha_{\text{SK}}\sigma_{xx} - \sigma_{\text{SJ}}\end{aligned}\quad (2.2.6)$$

と書ける。ここで、 α_{SK} は、スキュー散乱係数とした。また、外因性であるスキュー散乱及びサイドジャンプの寄与は、温度には依存せずに、不純物の散乱確率に依存して決まるため、より厳密には、残留縦抵抗率 ρ_{xx0} にも依存して決定することが経験的に明らかになった [103]。この経験的なスケーリング則は、

$$\sigma_{\text{AHE}} = -\sigma_{\text{int}} - (\alpha_{\text{SK}}\sigma_{xx0}^{-1} + \sigma_{\text{SJ}}\sigma_{xx0}^{-2})\sigma_{xx}^2\quad (2.2.7)$$

と表せる。第 4 章では、主に式 (2.2.7) を用いて、議論及び考察を行った。

2.3 測定デバイス作製

本研究では、100 nm 程度の熱酸化膜が付いた Si 基板 (クリスタルベース社) を使用した。Si はホウ素がドーパされた P 型半導体で、結晶面方位は (100)、抵抗率は 1 ~ 50 Ω cm 程度である。なお、Si 基板のサイズは、10 mm 角、17 mm 角、20 mm 角のいずれかで実験に対して適

*12 スキュー散乱に由来する異常ホール抵抗率 ρ_{SK} について式を整理すると、 $\rho_{\text{SK}} \propto \rho_{xx}$ であり、縦抵抗率 ρ_{xx} に比例するとも解釈できる。

*13 サイドジャンプに由来する異常ホール抵抗率 ρ_{SJ} について式を整理すると、 $\rho_{\text{SJ}} \propto \rho_{xx}^2$ であり、縦抵抗率 ρ_{xx} の 2 乗に比例するとも解釈できる。

切なものを使用しており、基板の厚さは $625 \mu\text{m}$ である。Si 基板を用いて、測定の種類に応じたデバイスを作製したため、主な成膜法や加工法などを説明する。

2.3.1 マグネトロンスパッタリングによる成膜法

気相で薄膜を形成するためには、主に物理気相成長法 (PVD) と化学気相成長法 (CVD) がある。本研究では、PVD の一種である、スパッタリングという手法を用いて、薄膜を成膜した。

スパッタリングとは、減圧した Ar ガス雰囲気下で、基板 (アノード) - ターゲット (カソード) 間に高電圧を印加することで、Ar イオンをターゲットに衝突させて、ターゲット表面の原子を放出させて、基板に薄膜が形成されるという手法である。なお、電圧印加により Ar が浮遊する電子と衝突してイオン化する際には、プラズマ状態に励起されるエネルギーで紫色などに発光する。特に、本研究で用いたマグネトロンスパッタリングとは、カソード部分に磁石を配置することで、磁場によってターゲット付近の電子密度及びプラズマ密度を高めて、スパッタリング効率を向上させる手法である。

本研究では、マグネトロンスパッタリング装置 (エイコー・エンジニアリング社) におけるチャンバー内の真空度を $1.0 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 以下まで減圧してから、純度 6N(99.9999%) の Ar ガス^{*14}を充填させ、DC または RF 電源^{*15}により高電圧を印加させてプラズマ状態を実現し、成膜した^{*16}。

なお、各章におけるスパッタリング条件を簡潔に記載する。第 3 章及び第 4 章では、マグネトロンスパッタリングによる成膜を実施したため、その成膜条件について表 2.1 及び表 2.2 に示す。また、第 5 章では、コンビナトリアルスパッタリング^{*17}による成膜を実施したため、その成膜条件について表 2.3 に示す。なお、コンビナトリアルスパッタリングにおいても、チャンバー内の真空度を $1.0 \times 10^{-5} \text{ Pa}$ 以下まで減圧してから、Ar ガスを充填させ、DC または RF 電源により高電圧を印加させてプラズマ状態を実現し、成膜した。

2.3.2 フォトリソグラフィによる微細加工法

フォトリソグラフィとは、フォトレジスト溶液を塗布してから、レーザー光を照射し、現像することで、任意のマスクパターンを形成できる技術である。本研究では、ネガ型フォト

*14 ガス流量は、マスフローコントローラにより制御し、 10 cc/min 程度とした。

*15 一般に、 SiO_2 のような絶縁体は、チャージアップを防ぐために、RF マグネトロンスパッタリングにより成膜する。

*16 本研究では、プラズマが安定する最低圧力で成膜を実施し、 0.4 Pa 程度であった。

*17 コンビナトリアルスパッタリングについては 5.2 節で説明する。

表 2.1 第3章における成膜条件。アスタリスクがついた材料はケーサイエンススパッタ装置、ついてない材料はエイコー・エンジニアリング社製のマグネトロンスパッタリング装置で成膜した。

ターゲット	成膜時圧力 (Pa)	スパッタ電力 (W)	成膜レート (Å/s)	ターゲット直径 (inch)
Ti(2 nm)	0.40	RF 50	0.09	3
Pt(10 nm)	0.40	RF 50	0.40	3
Fe*(7 nm)	0.40	RF 50	0.25	2
SiO ₂ *(4 nm)	0.40	RF 50	0.12	2
Ti*(2 nm)	0.40	RF 50	0.17	2
Au*(50 nm)	0.40	RF 50	1.19	2

表 2.2 第4章における成膜条件。アスタリスクがついた材料はケーサイエンススパッタ装置、ついてない材料はエイコー・エンジニアリング社製のマグネトロンスパッタリング装置で成膜した。

ターゲット	成膜時圧力 (Pa)	スパッタ電力 (W)	成膜レート (Å/s)	ターゲット直径 (inch)
MgO*(4 nm)	0.40	RF 60	0.07	2
SiO ₂ (5 nm)	0.24	RF 50	0.13	3
Pt(60 nm)	0.30	RF 60	0.47	3
Ti*(3 nm)	0.40	RF 50	0.16	2
Au*(220 nm)	0.40	RF 50	1.83	2

レジスト溶液 (日本ゼオン社、ZPN1150-90) を用いたため、レーザー光が照射された部分のみが、化学増強して固まり、現像液に浸漬しても溶け出さずにマスクパターンとして残る。なお、レーザー照射には、卓上型マスクレスリソグラフィ装置 (Heidelberg 社、 μ PG 501) を用いており、光源の波長は 390 nm、最小加工線幅は 1 μ m である。

本研究におけるフォトリソグラフィによる微細加工手順を、図 2.6 に示しながら、詳しく説明する。初めに、Si 基板を用意し、アセトン溶液に入れて超音波洗浄を 100 Hz で 10 min 行い、洗浄した。エタノール溶液でも同様に行ってから、N₂ ガスでブローし、エタノール溶液及

表 2.3 第 5 章における成膜条件。アスタリスクがついた材料はケーサイエンススパッタ装置、ついてない材料は Comet 社製のコンビナトリアルスパッタリング装置で成膜した。

ターゲット	成膜時圧力 (Pa)	スパッタ電力 (W)	成膜レート (Å/s)	ターゲット直径 (inch)
Ti(6 nm)	0.50	DC 60	0.22	2
Ni	0.50	RF 100	0.36	2
Fe	0.50	RF 100	0.34	2
SiO ₂	0.40	RF 50	0.35	1
Ti*(3 nm)	0.40	RF 50	0.16	2
Au*(220 nm)	0.40	RF 50	1.83	2

び有機物を除去した (図 2.6(a) を参照)。その後、洗浄した Si 基板をスピコーターに設置し、ネガ型フォトリソ液 (日本ゼオン社、ZPN1150-90) を数滴塗布し、レジストのコーティングを行った^{*18}。その後、レジストを固化させるために、ホットプレートを用いて、Si 基板を 100 °C で 90 秒間加熱した (図 2.6(b) を参照)。次に、卓上型マスクレスリソグラフィ装置 (Heidelberg 社、 μ PG 501) によりあらかじめ作成した描画ファイルに基づいたマスクパターンを描画してから、ホットプレートで Si 基板を 100 °C で 60 秒間加熱し、現像液 (MERCK 社、AZ 300MIF DEVELOPER 2.38 wt%) に 20 ~ 40 秒間浸漬、超純水に 30 秒間浸漬した。最後に、N₂ ガスでブローし、水分を除去すると、レーザー照射された部分のレジストだけが溶け出さずに残り、マスクパターンが形成される (図 2.6(c) を参照)^{*19}。次に、2.3.1 小節で説明したマグネトロンスパッタリングにより、マスクパターン付きの Si 基板に薄膜を成膜した (図 2.6(d) を参照)。最後に、成膜された Si 基板をアセトン溶液に浸漬し、マスクで覆われた部分に堆積した薄膜のみを除去することで、任意の形状の薄膜を作製できる (図 2.6(e) を参照)。なお、この工程をリフトオフと呼ぶ。

上記の図 2.6(b) から図 2.6(e) の工程を繰り返すことで、測定素子部分や電極部分のスパッタリングを行い、測定デバイスを作製した。

*18 回転速度に関して、500 rpm を 5 秒間、3500 rpm または 4000 rpm を 30 秒間実行するコーティングレシピを用いており、この時コーティングされるレジストの膜厚は数 μ m 程度である。

*19 レジスト塗布から現像までの一連の流れは、途中で感光を防ぐためにイエロールームで行う。過程途中で運搬が必要な場合は、太陽に含まれる紫外線でも容易に感光するため、アルミホイルなどで覆って運搬する。

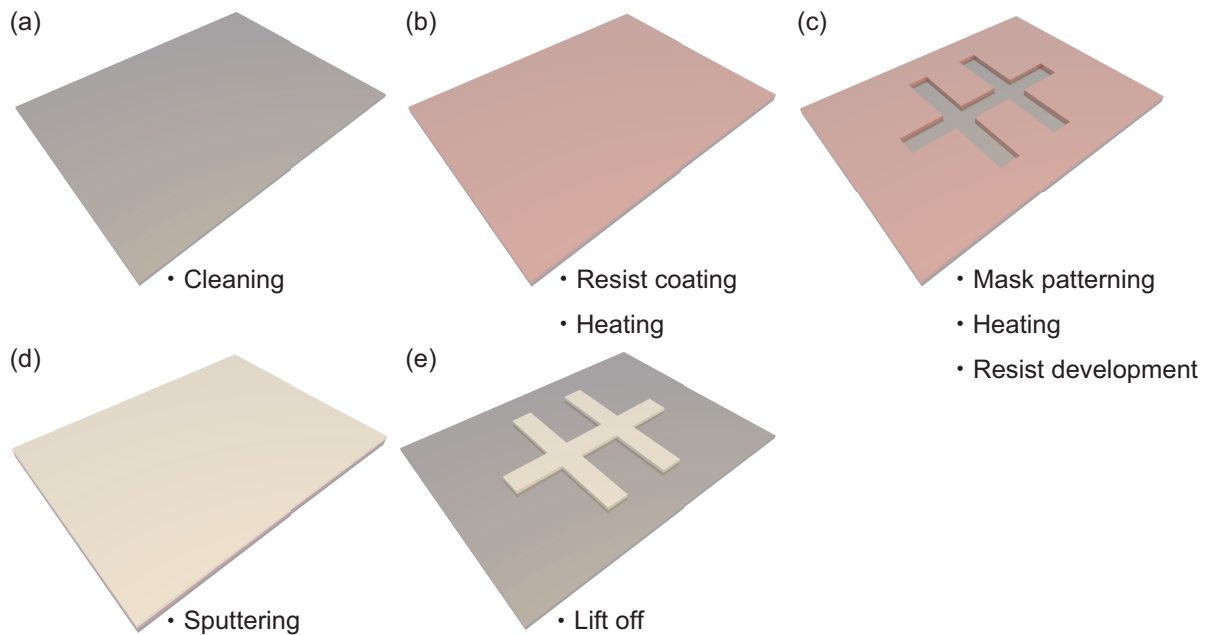


図 2.6 フォトリソグラフィによるホールバー形状デバイスの微細加工手順。(a) 洗浄した Si 基板。(b) フォトレジストを塗布した Si 基板。(c) レーザー描画及び現像により Si 基板上にマスクパターンを形成した。(d) マグネトロンスパッタリングにより Si 基板上に薄膜を成膜した。(e) リフトオフによりホールバー形状に薄膜を作製した。

2.3.3 Ar イオンビームミリングによる微細加工法

Ar イオンビームミリングとは、ドライエッチングの一種であり、レジストがない部分をエッチングすることによって微細加工を行う手法である。この手法を用いる際には、フォトリソグラフィによる手順とは少し異なり、マグネトロンスパッタリングにより薄膜を成膜してから、レジストによるマスクパターンを形成し、エッチングを行って微細加工を実現する。

図 2.7 に示しながら、Ar イオンビームミリングの原理を簡潔に説明する。基本的には、2.3.1 小節で説明したマグネトロンスパッタリングの原理と類似している。減圧した Ar ガス雰囲気下で、タングステンフィラメントに電流を流すことで、熱電子を放出し、Ar ガスをイオン化させる。その後、Ar イオンに高電圧を印加することで、加速させてから、ニュートライザーにより Ar イオンを中性化させた状態で、基板へ衝突させる。衝突で受け渡された運動エネルギーが原子の表面結合エネルギーを超えると、基板表面の原子が放出する。これによって、エッチングが実現する。

本研究では、イオンビームミリング装置 (エヌエス/伯東社、10IBE) におけるチャンバー内

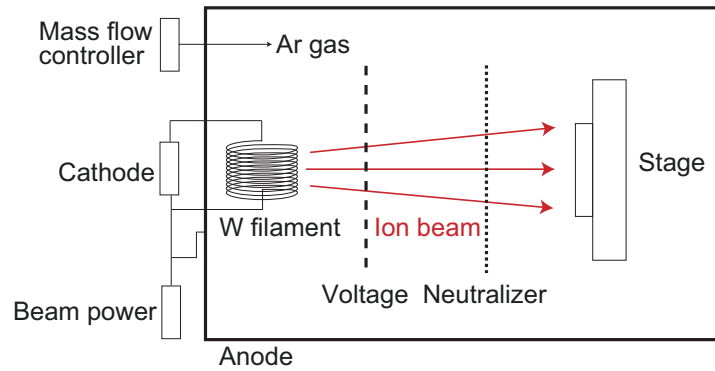


図 2.7 イオンビームミリング装置の概略図。

の真空度を 5.0×10^{-4} Pa 以下まで減圧してから、純度 6N(99.9999%) の Ar ガスを充満させ、ビーム電圧を 300 V、ビーム電流を 17 mA、加速電圧を 100 V としてエッチングを実施した^{*20}。

*20 本研究では、ミリング開始時のウォームアップ時間は 120 秒程度、ミリング中の圧力は 0.05 Pa 程度とした。

第 3 章

Fe/Pt 二層膜におけるスピホール効果及びスピントルクの電気化学制御

3.1 はじめに

電流誘起スピントルクは、磁化を電氣的に操作することで、スピントロニクスメモリーやロジックデバイスを開発する有望な手法である [15, 104–115]。スピントルクは、SHE や Rashba-Edelstein Effect により、強磁性体/重金属二層膜で生成されることが報告されている [85, 116–122]。どちらの場合も、2 種類のトルクまたは等価的な有効場が生成され、それらは、ダンピングライク (DL) 有効場 $\mathbf{H}_{DL} \propto \boldsymbol{\sigma} \times \mathbf{m}$ 及びフィールドライク (FL) 有効場 $\mathbf{H}_{FL} \propto \boldsymbol{\sigma}$ として表せる。ここで、 $\boldsymbol{\sigma}$ と \mathbf{m} は、それぞれ SHE や Rashba-Edelstein Effect により生成される非平衡スピントルクと磁化の単位ベクトルである [15]。DL トルクと FL トルクの両方が、電流誘起磁化スイッチングにおいて重要な役割を果たすので [123]、DL トルク効率及び FL トルク効率を定量化することは、スピントルクの基礎的理解だけではなくスピントルクデバイスを開発するためにも不可欠である。

一方で、トルク効率の定量化における大きな困難は、強磁性体/重金属二層膜に電流を流し入れた際に、スピントルクに加えてエルステッド磁場由来の有効場も発生してしまうという事実にある。二層膜の磁化に作用するエルステッド磁場は、FL 有効場と同じ対称性を持っているため、実際に実験で測定できる面内の有効場 $H_{||}$ は、FL 有効場 H_{FL} とエルステッド磁場 H_{Oe} の和であり、 $H_{||} = H_{FL} + H_{Oe}$ となる。このような理由から FL トルク効率を決定するためには、測定された $H_{||}$ から H_{FL} を抽出する必要がある。

本章は、IOP 出版の許可を得て、R. Suzuki, S. Haku, H. Hayashi and K. Ando, *Spin-torque ferromagnetic resonance in electrochemically etched metallic device*, *Applied Physics Express*, Vol. 13, 043007 (2020) から一部転載している。

H_{FL} を抽出する信頼性の高い方法は、強磁性体の膜厚 d_{FM} が異なる複数の二層膜デバイスについて、 H_{\parallel} を測定することである*¹。 H_{Oe} は、 d_{FM} に依存しない一方で、 H_{FL} は、 d_{FM} に依存して変化するので、 H_{\parallel} の d_{FM} 依存性により、 H_{FL} と H_{Oe} を分離することが可能である。しかしながら、この抽出方法では、全ての二層膜デバイスが、同じ物理特性*²を有している必要があるため、スピントルク効率を定量化するための適応範囲が制限される。

本研究では、単一の強磁性体/重金属二層膜デバイスを用いて、強磁性体をエッチングして d_{FM} を変化させながら、繰り返し測定をすることで、2.1.4 小節の方法 (1) により DL トルク効率及び FL トルク効率を定量化した。より具体的には、スピントルク強磁性共鳴 (ST-FMR) とイオン液体を用いた Fe/Pt 二層膜の電気エッチングを組み合わせることで実現した。イオン液体に電圧を印加することで、Fe 層の表面を電気化学的にエッチングした*³。ST-FMR と電気化学エッチングを繰り返すことで、面直有効場 H_{\parallel} 及び面内有効場 H_{\parallel} の d_{FM} 依存性を得ることができ、DL トルク効率と FL トルク効率を定量化することができた。

結論を簡潔に述べると、**ST-FMR** と電気化学エッチングを組み合わせることで、単一デバイスで **DL** トルク効率及び **FL** トルク効率を堅牢に定量化する方法を確立した。この技術は、ファンデルワールスヘテロ構造のような特異な系を含む様々な系において、トルク効率を定量化するための方法となることが期待される。

*¹ 本研究のような強磁性体/重金属二層膜の場合、エルステッド磁場は、重金属に流れた電流からのみ生じる。つまり、 d_{FM} が異なるデバイスで測定することで、FL 有効場のみ大きさが変化すると考えることができる。

*² サンプル間誤差が大きい二層膜の場合、この方法で抽出した FL トルクを定量化することは難しい。

*³ Fe 層をエッチングするに際して、イオン液体を選択した理由は、ゲート電圧のオンオフによって、段階的に削ることができるからである。例えば、強酸などを用いてもエッチングできるが段階的に削ることは難しいと考えられる。

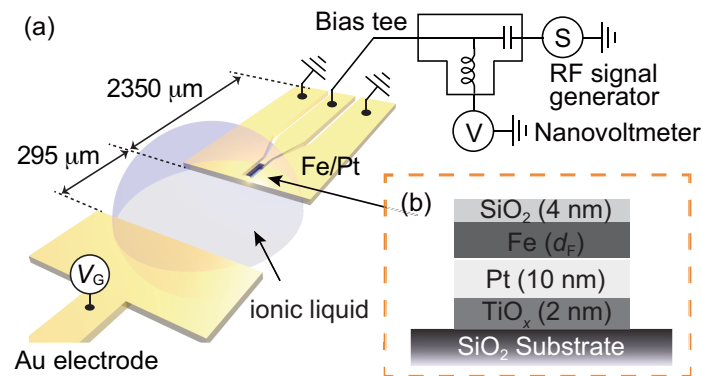


図 3.1 (a) イオン液体による電気化学エッチングと組み合わせた ST-FMR の概略図。(b) 測定デバイスである Fe/Pt 二層膜は、SiO₂ 基板上に Ti シード層を成膜してから成膜されている。エッチング開始前の Fe の膜厚は 7 nm である。成膜条件は、表 2.1 にまとめた。

3.2 イオン液体を用いたスピントルク強磁性共鳴測定

2.1 節でも説明したが、スピン軌道トルクによって駆動される FMR である ST-FMR は、トルク効率を定量化するために最も広く用いられる方法の一つである。ここにイオン液体のエッチング特性を組み合わせたのが本研究である。なお、イオン液体は、N-dethyl-N-methyl-N-(2-methoxyethyl) ammonium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (DEME-TFSI) を使用した (構造式は図 1.2 を参照)。実験の詳細を 3.2.1 小節及び 3.2.2 小節にて説明する。

3.2.1 実験系のセットアップ

本小節では、実験セットアップ及びデバイス構造について説明する。図 3.1(a) に、実験系の概略を示す。面内磁界マニュアルプローバー (東栄科学産業社、TKS-MP-1H-300-20mm) 及び RF シグナルジェネレーター (Keysight Technologies 社、MXG N5183A)、ナノボルトメーター (Tektronix 社、Keithley 2182A)、ゲート電圧源 (Tektronix 社、Keithley 2450) を使用した。なお、バイアスティー (Clear Microwave 社、B7S326) を用いて、DC 電圧を分離してナノボルトメーターにより、測定した。

また、図 3.1(b) に、デバイス構造を示す。2.3.2 小節で説明したネガ型レジストマスクを用いた標準的なフォトリソグラフィ技術によって、 $130 \times 20 \mu\text{m}$ のバーの形状にマスクパターンを形成してから、2.3.1 小節で説明したマグネトロンスパッタリングにより、SiO₂ 基板上に、厚さ 2 nm の Ti シード層及び 10 nm の Pt 層、7 nm の Fe 層をスパッタリングした。その後、デバイス表面の酸化を防ぐために、真空を破らずに、厚さ 4 nm の SiO₂ をキャップした。そ

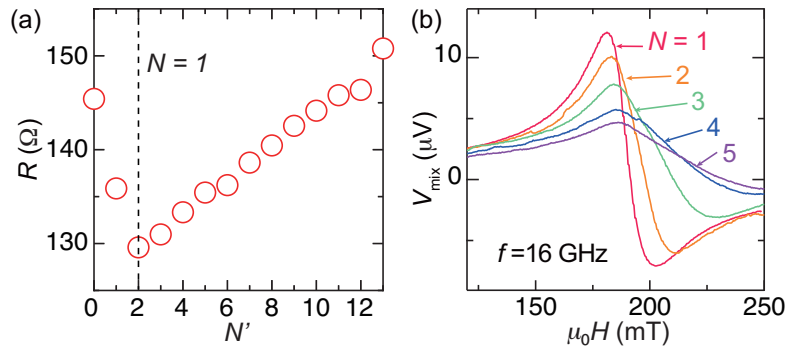


図 3.2 (a) Fe/Pt 二層膜の抵抗 R を示す。 N' はエッチング回数を示しており、本研究では、抵抗 R が系統的に増加し始める $N' = 2$ を $N = 1$ と定義した。(b) 電気化学エッチング後に測定された、周波数 $f = 16$ GHz における Fe/Pt 二層膜の DC 電圧 V_{mix} の磁場 $\mu_0 H$ 依存性。 N はエッチングサイクル数を示している。

の後、リフトオフ技術によってデバイスを作製した。

ST-FMR 測定では、面内外部磁場 H をデバイスの長手方向から 45° の角度で印加しながら、RF 電流をデバイスの長手方向に沿って印加した。原理について、2.1 節で述べたが、RF 電流は、DL 有効場及び FL 有効場、エルステッド磁場を発生させるため、強磁性層の磁化の歳差運動を駆動する [98]。磁化の歳差運動は、RF 電流と異方性磁気抵抗効果 (AMR) による振動抵抗により、DC 電圧 V_{mix} を生じるので [124, 125]、これを測定することで、トルク効率を定量できる。なお、 V_{mix} は、

$$V_{\text{mix}} = V_{\text{sym}} \frac{W^2}{(\mu_0 H - \mu_0 H_{\text{res}})^2 + W^2} + V_{\text{asym}} \frac{W(\mu_0 H - \mu_0 H_{\text{res}})}{(\mu_0 H - \mu_0 H_{\text{res}})^2 + W^2} \quad (3.2.1)$$

と書ける。ここで、 V_{sym} 、 V_{asym} 、 W 、 H_{res} は、それぞれ対称成分の大きさ、反対称成分の大きさ、スペクトル線幅、強磁性共鳴磁場である。さらに、 $V_{\text{sym}} \propto H_{\text{DL}}$ 及び、 $V_{\text{asym}} \propto H_{\parallel} = H_{\text{DL}} + H_{\text{Oe}}$ である [98]。最後に、イオン液体を Fe/Pt 二層膜と Au ゲート電極を覆うようにして滴下する。なお、液滴の直径は、 $500 \mu\text{m}$ 程度であり、図 3.1(a) に示すように、2 つの電極を覆うようにスポイトを用いて滴下を行った*4。この時、ST-FMR のプローブ針にはイオン液体が付着しないように注意した。以上が、実験系のセットアップである。

3.2.2 電気化学エッチングのサイクル

セットアップが完了した後、イオン液体にゲート電圧 V_G を印加することで、強磁性体 Fe 層をエッチングした。トルク効率の d_{FM} 依存性を複数点で測定し、系統的な変化を観測するために、

- $V_G = 5 \text{ V}^{*5}$ を 4 秒間印加
- ゲート電圧 V_G をオフ
- ST-FMR により Fe/Pt 二層膜の DC 電圧 V_{mix} を測定
- Fe/Pt 二層膜の抵抗を測定

のサイクルを繰り返し行った。図 3.2(a) に示すように、Fe/Pt 二層膜の抵抗 R が系統的に増加し始めた $N' = 2$ を $N = 1$ と定義した。なお、 N はエッチングサイクル数を表している^{*6}。図 3.2(b) に、各サイクルにおける Fe/Pt 二層膜の ST-FMR スペクトルを示す。ここで、横軸 $\mu_0 H$ は面内磁場である。この結果から、DC 電圧 V_{mix} の振幅が N の増加によって、系統的に変化していることが確認できる。これは電気化学エッチングにより強磁性体 Fe 層の膜厚が変化していることを示している。

3.3 Fe/Pt 二層膜のスピントルク強磁性共鳴

2.1.4 小節での導出をもとに、FMR スピントルク効率 ξ_{FMR} を

$$\xi_{FMR} = \frac{V_{sym}}{V_{asym}} \frac{e}{\hbar} \mu_0 M_S d_{FM} d_{NM} \sqrt{1 + \frac{\mu_0 M_S}{H_{FMR}}} \quad (3.3.1)$$

と定義した時、DL(FL) トルク効率 $\xi_{DL(FL)}$ を用いて、 ξ_{FMR} の d_{FM} 依存性を表すことができ、

$$\frac{1}{\xi_{FMR}} = \frac{1}{\xi_{DL}} \left(1 + \frac{\hbar}{e} \frac{\xi_{FL}}{\mu_0 M_S d_{FM} d_{NM}} \right) \quad (3.3.2)$$

となる。ただし、ST-FMR では、検討した範囲において $\xi_{DL(FL)}$ が、 d_{FM} に強い依存性を持たないと仮定している。ここで、 d_{NM} 、 M_S 、 M_{eff} は、それぞれ Pt 層の膜厚、Fe 層の飽和磁化、

*4 イオン液体を滴下するのはエッチング測定の開始前のみであり、実験中は追加の滴下を行わないものとする。なおイオン液体は、難揮発性であるためほとんど揮発しない。

*5 図 3.1(a) より、極板間距離が $295 \mu\text{m}$ であると考え、 $1.69 \times 10^4 \text{ V/m}$ の電場が印加されていることに相当する。

*6 エッチング開始直後は、Fe 層の上に成膜された SiO_2 層がエッチングされるため、系統的な抵抗変化がない。

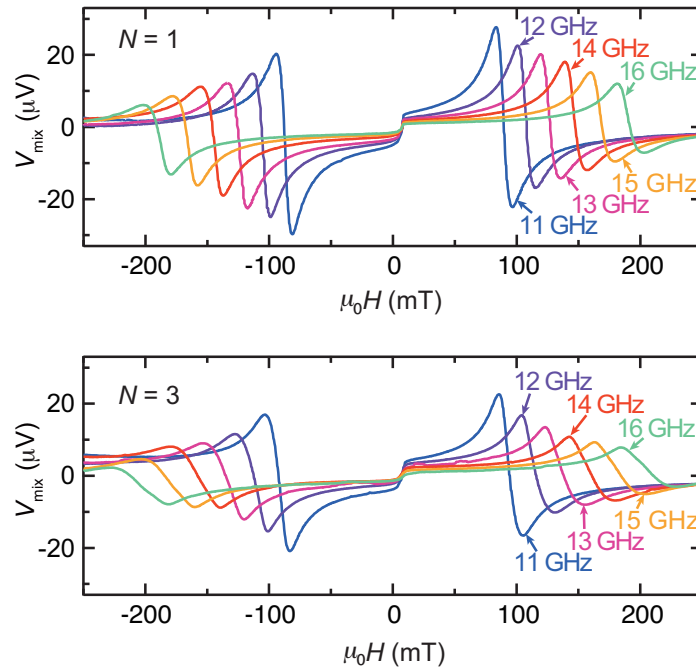


図 3.3 (a) $N = 1$ 及び (b) $N = 3$ のエッチングサイクル後の Fe/Pt 二層膜における DC 電圧 V_{mix} の磁場 H 依存性を示す。

Fe 層の有効的反磁場である。なお、 $\xi_{\text{DL(FL)}}$ は、

$$\xi_{\text{DL(FL)}} = \frac{2e}{\hbar} \mu_0 M_S d_{\text{FM}} \frac{H_{\text{DL,FL}}}{j_{\text{NM}}} \quad (3.3.3)$$

である。ここで、 j_{NM} は、Pt 層の電流密度である。

式 (3.3.2) を用いて、DL(FL) トルク効率を決定するために必要なパラメータを決めるために、図 3.3 に示すように、各サイクルごとに様々な RF 周波数 f で ST-FMR 測定を行った^{*7}。ST-FMR スペクトルから、外部磁場の向きを正から負に反転させると V_{mix} の符号が反転しており、一般的に ST-FMR で発生する電圧信号と一致している。測定されたスペクトルを式 (3.2.1) を用いてフィッティングすることにより、 V_{sym} 、 V_{asym} 、FMR 磁場 H_{FMR} を抽出した。

図 3.4 に、フィッティングによって得られた f と H_{FMR} の関係を示す。この結果は、Kittel formula と良く一致する。なお、Kittel formula は、1.7.2 小節で示したように、

$$\frac{2\pi f}{\gamma} = \sqrt{\mu_0 H_{\text{FMR}} (\mu_0 H_{\text{FMR}} + \mu_0 M_{\text{eff}})} \quad (3.3.4)$$

で表せる。ここで、 γ は、磁気回転比である。図 3.4 の結果より、 M_{eff} の $1/d_{\text{FM}}$ が得られて、プロットすることができる (図 3.5 の挿入図を参照)。なお、 d_{FM} は、Fe 層及び Pt 層の抵抗率

*7 実際には、 $N = 1 \sim 5$ まで実施したが、代表的な信号を図示した。

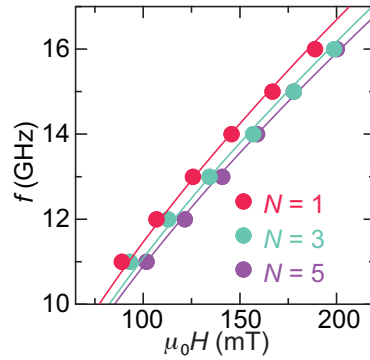


図 3.4 $N = 1$ 及び $N = 3$, $N = 5$ の Fe/Pt 二層膜を電気化学的にエッチングした場合の RF 周波数 f と FMR 磁場 H_{FMR} の関係を示す。プロットは実験データであり、実線は Kittel formula を用いたフィッティング曲線である。

の測定値 ($\rho_{\text{Fe}} = 99.3 \mu\Omega\text{cm}$, $\rho_{\text{Pt}} = 23.2 \mu\Omega\text{cm}$) を用いた並列抵抗モデルに基づいて、各エッチングサイクル後の二層抵抗の変化から求めており、本デバイスでは 1 回のエッチングサイクルにつき 0.5 ~ 0.8 nm 程度削られたと算出できる。ここで、 ρ_{Pt} は、厚さ 10 nm の Fe/Pt 二層膜の抵抗値を測定することによって得られ、 ρ_{Fe} は、電気化学エッチング前に測定された Fe/Pt 二重層の抵抗値から計算された。図 3.5 の挿入図より、 M_{eff} は、 $1/d_{\text{FM}}$ に対して、直線的に減少することが確認でき、 M_{eff} の d_{FM} 依存性を表す式、

$$\mu_0 M_{\text{eff}} = \mu_0 M_S - \frac{2K_S}{M_S d_F} \quad (3.3.5)$$

に一致することが分かった。ここで、 K_S は界面の垂直磁気異方性エネルギー密度であり、 $\mu_0 M_{\text{eff}}$ は、式 (3.3.5) の第一項 $\mu_0 M_S$ に対して界面の磁気異方性の寄与を考慮することで得られる値である*8。なお、エッチングにより Fe 層に対して大きなダメージがないことを仮定し、エッチングのダメージに起因する M_S の減少及び界面の磁気異方性の変化は生じていないものとする。この結果から、 $\mu_0 M_S = 1.85 \text{ T}$ 及び $K_S = 2.94 \text{ mJ m}^{-2}$ が得られた。これらの値は、先行研究の Pt(5 nm)/Fe(6 nm) 二層膜における $\mu_0 M_S = 2.10 \text{ T}$ [126]、Pt(7.4 nm)/Fe(d_{FM}) 二層膜*9における $\mu_0 M_S = 1.93 \text{ T}$ 及び $K_S = 1.24 \text{ mJ m}^{-2}$ [127] と比較しても妥当な値であることが確認できた。

次に、抽出した V_{sym} , V_{asym} から、DL(FL) トルク効率を求める。図 3.5 に、 $1/\xi_{\text{FMR}}$ の $1/d_{\text{FM}}$ 依存性を示す。 $1/\xi_{\text{FMR}}$ は、 $1/d_{\text{FM}}$ とともに減少し、式 (3.3.2) をもとに考えると、 $\xi_{\text{FL}} < 0$ であることがわかる。FL トルクの符号が負であることは、FL 有効場 H_{FL} がエルステッド磁

*8 特に、界面の磁気異方性が無視できるときは、 $M_{\text{eff}} \approx M_S$ と近似できる。

*9 $d_{\text{FM}} = 2 - 6 \text{ nm}$ である。

場 H_{Oe} ^{*10}と反対であることを示す。また、参照データとして、Fe 層がエッチングされる前の $N' = 1$ における $1/\xi_{FMR}$ の結果も星印にてプロットし、Fe 層エッチング後のフィッティング直線からはほとんど逸脱していないことが確認でき、エッチングにより Fe 層に対して大きなダメージがないことを示唆する。したがって、式 (3.3.2) を用いて、DL(FL) トルク効率 $\xi_{DL(FL)}$ の大きさを見積もると、それぞれ、 $\xi_{DL} = 0.068 \pm 0.009$ 、 $\xi_{FL} = 0.103 \pm 0.007$ と得られる。また、本章では、2.1.4 小節の方法 (2) を用いていないが、式 (2.1.44) により、 $\xi_{DL}^E = (2.93 \pm 0.39) \times 10^3 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ 、 $\xi_{FL}^E = (4.44 \pm 0.30) \times 10^3 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ と換算することも可能である。

本研究における DL トルク効率 ξ_{DL} の結果は、先行研究の Pt(5 nm)/Fe(6 nm) 二層膜 [126] における有効的スピホール角 $\theta_{SHE}^{\text{effect}} = 0.051$ ^{*11}とほとんど一致しており、本結果も Pt バルクから生じた SHE 由来のトルクであると考えられる。また、先行研究の Pt(7.4 nm)/Fe(d_{FM}) 二層膜^{*12} [127] において、 $\xi_{DL}^E = (2.99 \pm 0.11) \times 10^3 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ 及び $\xi_{FL}^E = (2.18 \pm 0.11) \times 10^3 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ であり、FL トルク効率は本研究結果の方が大きな値となっているものの、大きく矛盾しないことが確認できた。

さらに、先行研究の Pt/Fe 二層膜 [127] では、強磁性膜厚 d_{FM} の異なる複数デバイスを用いて FL トルク効率を求めているが、FL 有効場と Oersted 磁場は、同じ方向に生じるため、複数デバイスにおける Oersted 磁場が完全に等しく、FL トルク有効場のみが d_{FM} に依存すると仮定している。しかしながら厳密には、複数デバイス間で誤差が生じている可能性があり、正確に見積もることは難しい。この点で、今回のエッチングを用いた手法では、Oersted 磁場が全て等しいため、より信頼性の高い手法と言える。

以上より、イオン液体を用いた ST-FMR デバイスの電気化学エッチングが、スピントロニクスデバイスのスピントルク効率を定量化する方法として利用できることを明らかにした。

3.3.1 電気化学エッチング手法に関する検討

最後に、電気化学エッチング手法において、Fe/Pt 二層膜の Fe 層がどのようにエッチングされているかを検討する。この手法では、イオン液体を用いて強磁性膜厚 d_{FM} を変化させることで、スピントルク効率を算出した。図 3.5 の結果からエッチングにより Fe 層に対して大きなダメージがないことを上述したが、より厳密にはエッチングにより二層膜デバイス内の Fe

*10 H_{Oe} の符号は、一般的に正である。

*11 有効的スピホール角 $\theta_{SHE}^{\text{effect}}$ は、スピホール角から二層膜界面での減衰を考慮した値であり、本研究における DL トルク効率 ξ_{DL} と同義である。

*12 $d_{FM} = 2 - 6 \text{ nm}$ である。

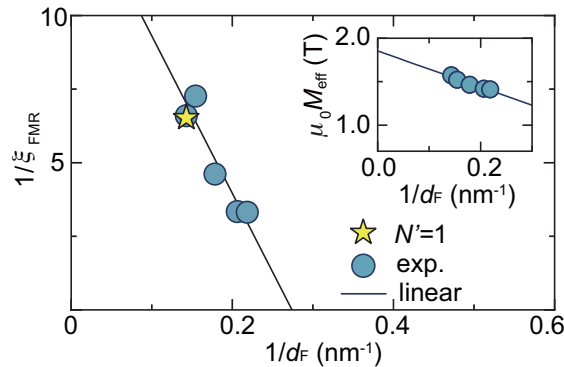


図 3.5 Fe/Pt 二層膜における $1/\xi_{\text{FMR}}$ の $1/d_{\text{FM}}$ 依存性 ($f = 16$ GHz)。 ξ_{FMR} は、対称関数と反対称関数の和を用いてフィッティングすることで得られた。挿入図は、有効反磁場 M_{eff} の $1/d_{\text{FM}}$ 依存性を示す。円は実験データであり、線はフィッティング結果である。また、星は Fe 層がエッチングされる前の $N' = 1$ における実験データである。

の膜厚分布が存在していたり、Fe 層にダメージが生じて表面のラフネス増大していたりする可能性が考えられる。ここでは、ST-FMR スペクトルの線幅 W に比例して変化する磁気ダンピング定数 α 、表面ラフネスや膜質の均一性などによって変化する不均一線幅 W_0 に着目して検討を進める。なお、これらの物理量は周波数 f を用いて、

$$W = \frac{2\pi\alpha f}{\gamma} + W_0 \quad (3.3.6)$$

と表せる [127]。図 3.2 より、ST-FMR スペクトルの線幅 W はエッチングサイクルが大きくなるほど、増大しているように見える。線幅 W の変化は、式 (3.3.6) に基づいて考えると、磁気ダンピング定数 α の変化による寄与と不均一線幅 W_0 の変化による寄与に分けて考えることができる。図 3.6(a) にエッチングサイクル N ごとの磁気ダンピング定数 α を示す。なお、赤色の破線で示したのは、Fe 層がエッチングされる前の $N' = 1$ における α の大きさであり、 $\alpha_{(N'=1)} = 0.0186$ であった。この大きさは、従来の膜厚変化法^{*13}を用いた Pt/Fe 二層膜の α は 0.01 ~ 0.03 程度であるため、ほとんど一致する [127]。しかしながら、 $N = 3$ 以降では、磁気ダンピング定数 α が増大し、従来の膜厚変化法で算出する値よりも大きくなる。これは、エッチングによりデバイス内の Fe 膜厚に分布が生じていることに起因すると考えられる。

また、図 3.6(b) にエッチングサイクル N ごとの不均一線幅 W_0 を示す。なお、赤色の破線で示したのは、Fe 層がエッチングされる前の $N' = 1$ における W_0 の大きさであり、 $W_{0(N'=1)} = -1.05$ mT であった。 N が増大すると W_0 の大きさが増大し、 $N = 4$ のときに最大で 15.8 倍程度に増大することが確認できる。一般に不均一線幅 W_0 は、表面ラフネスや強

*13 従来の膜厚変化法とは、複数デバイスを用いる方法を示す。

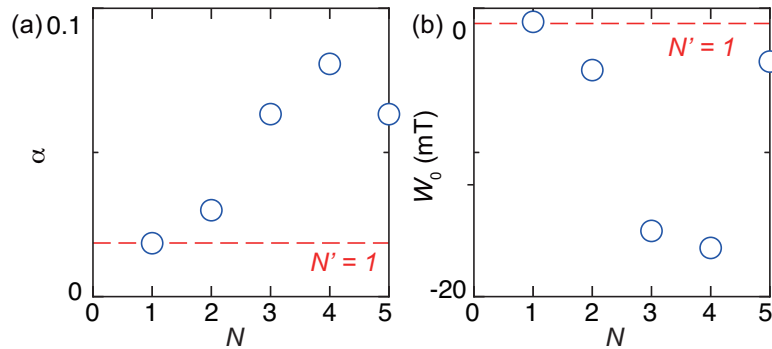


図 3.6 (a)Fe/Pt 二層膜におけるエッチングサイクル N ごとの磁気ダンピング定数 α 。赤色の破線で示しているのは $N' = 1$ における α の大きさである。(b)Fe/Pt 二層膜におけるエッチングサイクル N ごとの不均一線幅 ΔH_0 。赤色の破線で示しているのは $N' = 1$ における W_0 の大きさである。

磁性体の質的な変化に関連して変化するとされているため、エッチング前後で Fe 層の膜質が変化したことが示唆される。

実際に、本研究における FL トルク効率 ξ_{FL} は、先行研究に比べてやや大きい値となっていた。 ξ_{FL} は、図 3.5 におけるフィッティング直線の傾きから算出される値であるため、強磁性体膜厚 d_{FM} の見積もりに依存することが考えられる。本研究では Fe/Pt 二層膜の抵抗から d_{FM} を算出しており、表面ラフネスや Fe 層の膜質の変化に由来して表面散乱の抵抗が変化することを考慮していないため、より厳密に FL トルク効率を定量するためには、これらの影響を考慮する必要があると明らかになった。

以上の結果から、電気化学エッチング手法は、単一のデバイスにおける強磁性膜厚 d_{FM} を変化させることでトルク定量を可能にする一方で、エッチングによって強磁性層の膜厚分布が生じていたり、表面ラフネスをはじめとして強磁性体の膜質が変化していたりする可能性があり、今後は、これらの影響を最小にするようなデバイス構造を検討する余地があると考えられる。

3.4 本章のまとめ

まとめると、本章では以下の点を明らかにした。

- ST-FMR と金属ヘテロ構造の電気化学エッチングを組み合わせることで、スピン軌道トルク効率の定量手法を確立した。
- スピントロニクスにおいて、イオン液体は、静電的キャリアドーピングによってスピン

依存輸送を制御するために用いられてきたが [23, 128–133]、本研究では、スピン軌道トルクを定量化するために、もう一つの特徴である電気化学反応が利用可能であることを明らかにした [30, 134]。

- 電気化学エッチングによって単一の Fe/Pt デバイスの Fe 層膜厚を変化させて ST-FMR 測定を行い、DL トルク効率及び FL トルク効率を定量した。

以上の結果から、DL トルク効率及び FL トルク効率を堅牢に定量する手法を確立した。この手法は、遷移金属ダイカルゴゲナイドなどの二次元材料をはじめとして、膜厚が容易に制御できない特異な材料や特異な系におけるスピン軌道トルクの探索可能性を開く*14。

*14 査読付き論文誌である Applied Physics Express **13**, 043007 (2020) に掲載されている。

第 4 章

ファンデルワールス強磁性体 Fe_5GeTe_2 における異常ホール効果

4.1 はじめに

2004 年に、K. S. Novoselov らによって、ファンデルワールス材料であるグラフェンが発見された [33]。この時に用いた手法は、スコッチテープによって、機械的に剥離するというものであった。この手法は、比較的簡便でありながら、マイクロ・ナノメートルスケールの薄膜を得ることができるため、グラフェンの発見を発端として、ファンデルワールス材料は、盛んに研究されるようになってきた [34–39]。

ファンデルワールス材料は、特異な現象をもつ物質として注目されており、これまでに、超伝導、強磁性、反強磁性のような相転移を示すことが報告されている。特に、ファンデルワールス強磁性材料は、スピントロニクスデバイスの構成要素となる可能性を有している [135]。現在までに、ファンデルワールス強磁性である Fe_3GeTe_2 は、高いキュリー温度 ($T_C \approx 230$ K) を持つ有望な材料であることが明らかになっている [50–57]。さらには、イオン液体によってゲート電圧を印加させることによって室温付近までキュリー温度を高めることも報告されている [136]。

近年、さらに高いキュリー温度を持つファンデルワールス強磁性材料 Fe_5GeTe_2 の研究が活発になってきており、そのキュリー温度は、室温付近 ($T_C \approx 270 - 310$ K) と報告されている [58–65]。 Fe_5GeTe_2 の結晶構造は、図 4.1 に示すような三方晶構造をとる [137]。単位格子は、3 つの類似したブロックから構成され、各ブロックは Te 原子層で挟まれた 4 つの磁性単

本章は、AIP 出版の許可を得て、R. Suzuki, T. Gao, H. Nakayama and K. Ando, *Extrinsic anomalous Hall effect in van der Waals ferromagnet Fe_5GeTe_2* , *AIP Advances*, Vol. 13, 055311 (2023) から一部転載している。

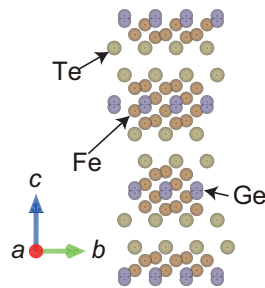


図 4.1 Fe_5GeTe_2 の結晶構造の模式図。Te、Fe、Ge 原子はそれぞれ黄色、橙色、紫色で示されている。

原子層からなり、 c 軸における格子定数は、 29.26 \AA である [64]。また、Fe(1)、Fe(2)、Fe(3) サイトを持つことも報告されている [58, 59]。このため、磁気構造が複雑になり、強磁性状態とフェリ磁性状態の間の遷移を含むような、複数の磁気相転移を生じることが報告されている [58]。以上のような特異な性質から、 Fe_5GeTe_2 は、スピントロニクスデバイスに向けたファンデルワールス強磁性体として期待されているにも関わらず、スピン輸送特性はまだ十分には理解されていない。

本研究では、 Fe_5GeTe_2 における異常ホール効果 (AHE) を調べた*¹。その結果、大きな外因性異常ホール効果を発見した。磁化 M が温度 T にほとんど依存しない領域 ($T < 100 \text{ K}$) において、異常ホール伝導度 σ_{AHE} が縦伝導度 σ_{xx} とともに変化することを見出した。この結果に基づき、異常ホールの内因性寄与と外因性寄与を算出し、定量的に評価した。

結論を簡潔に述べると、 Fe_5GeTe_2 の外因性寄与であるスキュー散乱係数は、遷移金属強磁性体よりも一桁程度大きいことを明らかにした。

*¹ AHE はスピン流の生成現象の一つであり、スピン輸送特性を理解する上で、重要である。

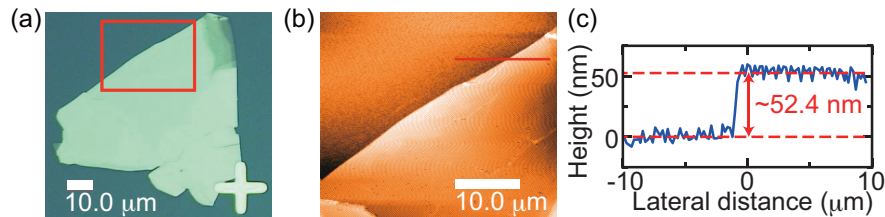


図 4.2 (a)Fe₅GeTe₂ 薄膜の光学顕微鏡像。赤色の枠線で囲った部分を原子力顕微鏡で確認した。(b)Fe₅GeTe₂ 薄膜の原子力顕微鏡像。赤線部分の測定結果を膜厚定量に用いた。(c)Fe₅GeTe₂ の膜厚定量結果を示す。この薄膜の膜厚は、52.4 nm であることが算出できた。なお、Fe₅GeTe₂ は一原子層あたり 0.98 nm であるため、53 層に相当する [140]。

4.2 Fe₅GeTe₂ 薄膜の作製及び膜厚定量

本研究では、Fe₅GeTe₂ 結晶 (HQ Graphene 社) をニットテープ (日東電工社、SPV) で機械的に剥離し、その後、MgO(4 nm)/Ti(3 nm)/SiO₂ 基板上に転写することによって Fe₅GeTe₂ 薄膜を得た^{*2}。MgO 層は、ほとんどの金属に対して優れた密着性を示す^{*3}ので、MgO 表面を形成することで Fe₅GeTe₂ の密着性が向上すると考え、成膜した [138]。大面積の薄膜を得るために、Fe₅GeTe₂ 結晶が付着しているテープを基板上に貼り付けた後、基板を 100°C のホットプレートに 2 分間静置し、Fe₅GeTe₂ と基板の接着を促進した。なお、上記の全ての剥離プロセスは、N₂ 雰囲気及び 10 ppm 以下の O₂ 濃度のグローブボックス (UNICO 社、UN-650L) 内の不活性条件下で実施した。剥離した Fe₅GeTe₂ が酸化することを防ぐために、グローブボックス内でロータリーポンプで 10⁻³ Pa 程度の真空状態にしてから成膜装置へ搬送し、4 nm の SiO₂ をキャッピング層として成膜した。その後、原子間力顕微鏡 (Nanosurf 社、NaioAFM) を用いて、本研究に用いた全ての Fe₅GeTe₂ 薄膜の膜厚 t_F を定量した。一例として、具体的な膜厚定量結果を図 4.2 に示す。

^{*2} MgO 層と Ti 層は、基板のプラズマ酸化と同様に、Fe₅GeTe₂ と基板の密着性を高める可能性があるため、転写前の基板に、高周波マグネトロンスパッタリングにより成膜した [138, 139]。

^{*3} MgO の熱膨張係数が金属に近いことが起因するとされている。

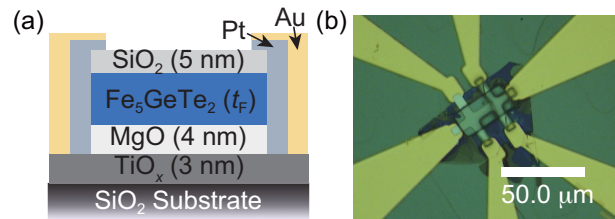


図 4.3 (a) 電気測定用デバイス構造の概略図。括弧内の数字は膜厚を示す。Au/Pt 電極も図示している。成膜条件は、表 2.2 にまとめた。(b) Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスの光学顕微鏡像。電極と良好に接着させるため、 Fe_5GeTe_2 薄膜の側面を Ar イオンビームミリングで微細加工し、6 端子ホールバーの形状にした。

4.3 Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスの作製

電気測定を実施するために、 Fe_5GeTe_2 薄膜を、2.3.2 小節で説明したネガ型レジストマスクを用いた標準的なフォトリソグラフィ技術によって、6 端子ホールバーの形状にパターン描画した後に、Ar イオンビームミリングで微細加工を行った。デバイスの構造を図 4.3(a) に示し、実際のデバイスの光学顕微鏡像を図 4.3(b) に示す^{*4}。

4.4 Fe_5GeTe_2 薄膜の異常ホール効果の測定

4.4.1 異常ホール抵抗の算出手法

$\text{Fe}_5\text{GeTe}_2/\text{MgO}/\text{Ti}/\text{SiO}_2$ における縦抵抗率 R_{xx} とホール抵抗率 R_{xy} を物理特性システム (Quantum Design 社、PPMS-14T) の ACT モード^{*5}を用いて測定・評価した。デバイスに印加する電流振幅は $10 \mu\text{A}$ または $30 \mu\text{A}$ 、周波数は 17 Hz とした。このとき、図 4.4(a) に示すように、面直方向に印加磁場 H を最大で 1 T 印加しながら、 5 K から 300 K の温度範囲で測定を行った。実際には、ホール電圧 V_{xy} を測定し、印加電流で割ったものをホール抵抗 R_{xy} とすると、磁場掃引しながらホール抵抗 R_{xy} を測定した結果は、図 4.4(b) のようになる。ここで、異常ホール抵抗 R_{AHE} は、 Fe_5GeTe_2 の磁化を飽和させるために十分な大きさの外部磁場

^{*4} 矩形領域の外側にあるホールバーの端子は、Au(220 nm)/Ti(3 nm) 電極とホールバーの接着を高めるために、Pt(60 nm)/Ti(3 nm) のスパッタ堆積によって伸長した。

^{*5} ACT モードとは、高精度な電流源及び電圧源を用いて、サンプルに既知の周波数の AC 電流を流し、サンプルを横切る一方向の電圧降下を測定する手法である。同一の周波数である電圧のみを取り出すことで、周波数に依存するノイズや DC オフセットなどを除去して精度良く測定することが可能である。

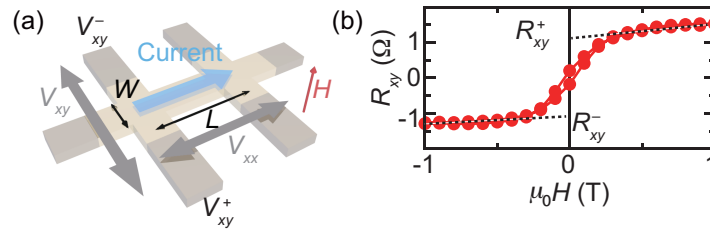


図 4.4 (a) ホールバーの概略図。 W と L はそれぞれホールバーの幅と長さである。(b) 52.4 nm の Fe_5GeTe_2 薄膜の 90 K におけるホール抵抗 R_{xy} の面直磁場依存性を示す。 $R_{xy}^{+(-)}$ は、正（負）の強磁場において R_{xy} を一次関数でフィッティングして得られたホール抵抗値を示す。

H の関数として、正磁場及び負磁場でそれぞれの R_{xy} を線形フィッティングしたときの切片 R_{xy}^+ 、 R_{xy}^- から抽出することができ、

$$R_{\text{AHE}} = (R_{xy}^+ - R_{xy}^-)/2 \quad (4.4.1)$$

と表せる。なお、印加電流に対するホール電圧 V_{xy} の向きから、キャリアが正孔であることが確認できた。

4.4.2 異常ホール効果の温度依存性

図 4.5(a) に、52.4 nm の Fe_5GeTe_2 の薄膜デバイスを、5 K から 260 K にかけて異なる温度 T で測定したホール抵抗 R_{AHE} を示す。5 K から温度が高くなるにつれて R_{xy} が増大していくことが確認できる。また、磁気異方性の変化から導出することができる磁気転移温度 T_M ^{*6} は、ホール抵抗 R_{xy} のデータにおいてヒステリシスループが閉じているかどうかによっても判断することができ、150 K 付近であることが明らかになった。図 4.5(b) に示すように、 Fe_5GeTe_2 における磁気容易軸が、面直方向であればヒステリシスループが開き、面内方向であればヒステリシスループが閉じると報告されている [141]。

4.5 異常ホール抵抗率及び縦抵抗率の温度依存性

異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} は、式 (4.5.1) を用いて、

^{*6} T_M は磁気異方性が転移する温度である。磁気容易軸が面内と面直で変化することを示しており、磁気相転移とは異なる。

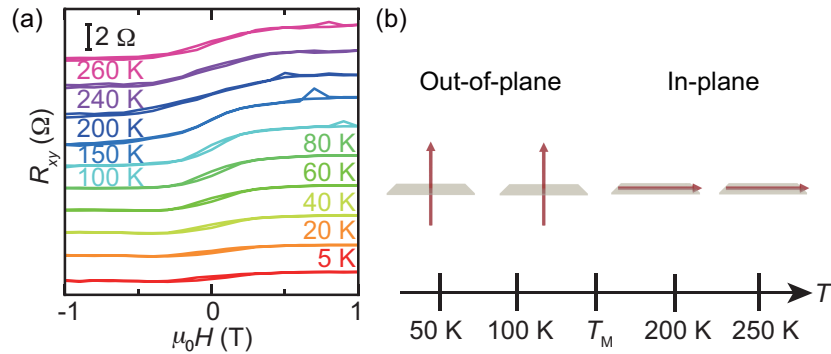


図 4.5 (a) 52.4 nm の Fe_5GeTe_2 薄膜におけるホール抵抗 R_{xy} 。薄膜に対して面直に磁場 H を印加しながら、5 K から 260 K にかけて異なる温度で測定をした。(b) 磁気転移温度 T_M 付近の磁気容易軸方向を表す模式図。磁気容易軸が、面直方向であればヒステリシスループが開き、面内方向であればヒステリシスループが閉じる。本研究では $T_M = 150$ K 付近であると算出できた。

$$\rho_{\text{AHE}} = R_{\text{AHE}} \cdot t_{\text{F}} \quad (4.5.1)$$

と表せる^{*7}。ここで、 t_{F} は、 Fe_5GeTe_2 薄膜の膜厚である。各温度における異常ホール効果の測定結果から、異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} を算出し、プロットすると、図 4.6(a) のようになる。 ρ_{AHE} の温度依存性は、非単調であり、300 K 付近から温度を低下させると ρ_{AHE} が増加し、100 K 付近から ρ_{AHE} が減少することが確認できる。この傾向は、先行研究で報告されている Fe_5GeTe_2 単結晶で観測されたものと類似している [59]。

100 K $< T < T_C$ の温度範囲では、 Fe_5GeTe_2 はフェリ磁性か磁気モーメントが傾いた状態であることが先行研究により示唆されている [58]。この温度範囲では、図 4.7 に示すように、 M が大きく変化しており、観測された ρ_{AHE} も、 M に伴って変化していると考えられる。具体的に、図 4.6(a) より、100 K から 260 K にかけての ρ_{AHE} の変化は、最大でも 50% 程度である。また、図 4.7 より、100 K から 260 K における M の変化も、35% 程度であることが確認できる。つまり、 M の変化に起因して ρ_{AHE} が変化していることが示唆される^{*8}。ここで、 ρ_{AHE} の振る舞いが M の変化で完全に説明できない理由として、 ρ_{AHE} の測定には $t_{\text{F}} = 3.86$ nm、52.4 nm の Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスを用いた一方で、 M の測定には Fe_5GeTe_2 結晶を用

^{*7} 長手方向の長さは常に電流の流れる方向に沿って定義される必要があり、ホール電流が流れる方向の長さは図 4.4(a) における W となる。従って、ホール電圧端子間距離 L に依らずに異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} が決定される。

^{*8} 異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} は、異常ホール係数 R_s 及び磁化 M を用いて、 $\rho_{\text{AHE}} = 4\pi R_s M$ と書き表せる。

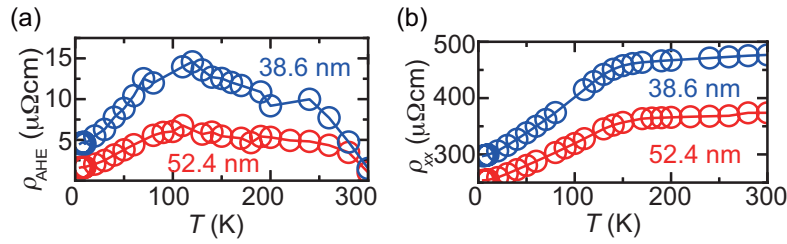


図 4.6 Fe_5GeTe_2 薄膜における (a) 異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} 及び (b) 縦抵抗率 ρ_{xx} の温度 T 依存性。 $t_{\text{F}}=38.6 \text{ nm}$ 、 52.4 nm のデバイスにおける結果をそれぞれ青色、赤色で示した。

いていることが挙げられる。

また、低温領域 ($T < 100 \text{ K}$) では M は、ほぼ一定であることが確認でき、先行研究と一致している [64, 142, 143]^{*9}。また、 $T < 100 \text{ K}$ の温度範囲では、 Fe_5GeTe_2 の磁性相は、長距離の磁気秩序が欠如しているような glassy cluster 状態 [64] や、反強磁性の一種であるらせん磁性を持つ状態に発展すると報告されている [65]。4.6 節以降では、異常ホール伝導度を考えることによりさらに考察を深める。

一方、図 4.4(a) における縦電圧 V_{xx} を測定し、印加電流で割ったものを縦抵抗 R_{xx} とすると、縦抵抗率 ρ_{xx} は、

$$\rho_{xx} = R_{xx} \cdot \frac{Wt_{\text{F}}}{L} \quad (4.5.2)$$

と表せる。ここで、 W と L はそれぞれホールバーの幅と長さである^{*10}。 Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスにおける縦抵抗率 ρ_{xx} の温度依存性は図 4.6(b) のようになる。ここでは、 $T = 150 \text{ K}$ 付近より低温で ρ_{xx} が大きく低下していることが確認できる。この低下は、 $\text{Fe}(1)$ サイトの磁気秩序が低温にかけて向上していくことに関連していると考えられており、先行研究における縦抵抗率の振る舞いとも一致する [58, 60]。また、この温度は、先に述べた磁気転移温度 T_{M} と一致している [141]。つまり、抵抗率 ρ_{xx} を温度に依存しない残留抵抗率 ρ_{xx0} および温度係数 α を用いて

$$\rho_{xx} = \rho_{xx0}(1 + \alpha T) \quad (4.5.3)$$

と表すと、磁気容易軸が面内から面直方向へ変化することに伴って、温度係数 α が変化したことが示唆される。

^{*9} 本研究では、 $t_{\text{F}} = 3.86 \text{ nm}$ 、 52.4 nm の Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスを用いたが、これらの磁気特性は、バルク結晶のものと同じであることに留意されたい [55]。

^{*10} 本研究で用いた Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスは、 $L \approx 8 - 12 \mu\text{m}$ 、 $W \approx 6 \mu\text{m}$ であった。

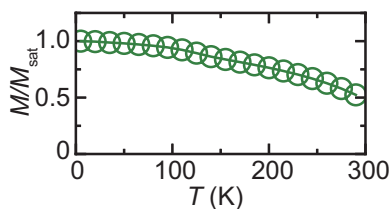


図 4.7 2 T の磁場下における Fe_5GeTe_2 バルク結晶の磁化 M の温度 T 依存性。超伝導量子干渉デバイスを用いた磁気特性測定システム (Quantum Design 社、MPMS) を用いて測定した。本研究のバルク結晶では、300 K においても磁化が消失しないため、キュリー温度 T_C は 300 K よりも高いと示唆されており、室温付近であるという先行研究の報告と矛盾しない [58–65]

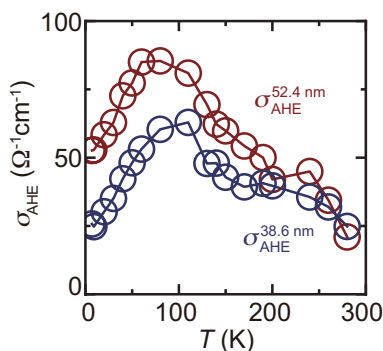


図 4.8 Fe_5GeTe_2 薄膜における異常ホール伝導度 σ_{AHE} の温度 T 依存性。 $t_{\text{F}}=38.6$ nm、52.4 nm のデバイスにおける結果をそれぞれ濃紺色、暗赤色で示した。

4.6 異常ホール伝導度の温度依存性

異常ホール伝導度 σ_{AHE} は、異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} 及び縦抵抗率 ρ_{xx} を用いて、

$$\begin{aligned}\sigma_{\text{AHE}} &= -\frac{\rho_{\text{AHE}}}{\rho_{xx}^2 + \rho_{\text{AHE}}^2} \\ &\approx -\frac{\rho_{\text{AHE}}}{\rho_{xx}^2}\end{aligned}\quad (4.6.1)$$

と表せる。ただし、 $\rho_{xx} \gg \rho_{\text{AHE}}$ として近似した。 Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスにおける異常ホール伝導度 σ_{AHE} の温度依存性は図 4.8 のようになる。 σ_{AHE} のピークは、52.4 nm (38.6 nm) のデバイスで 90 K (110 K) であることから、100 K 付近に存在することが確認でき、これは、先に述べた磁気転移温度 $T_{\text{M}} = 150$ K よりも低いことが分かる。4.7 節では、 $T < 100$ K の Fe_5GeTe_2 薄膜で観測される異常ホール効果に焦点を当てる。なお、この低温領域では、簡単のため、温度 T による磁化 M の変化は、ほとんどないとみなして考察する (図 4.7 を参照)。

4.7 低温領域での異常ホール効果のスケーリング

低温領域における異常ホール効果 (AHE) のメカニズムを探り、観測した異常ホール伝導度 σ_{AHE} の各寄与を分離するために、AHE 解析の経験的關係式 [103]

$$\sigma_{\text{AHE}} = -(\alpha\sigma_{xx0}^{-1} + \beta\sigma_{xx0}^{-2})\sigma_{xx}^2 - \sigma_{\text{int}} \quad (4.7.1)$$

を用いて考える。ここで、 σ_{xx} は縦伝導度^{*11}、 σ_{xx0} は残留縦伝導度であり、第 1 項及び第 2 項、第 3 項はそれぞれ、外因性スキュー散乱及び外因性サイドジャンプ、内因性ベリ一位相メカニズムからの寄与に対応する。内因性伝導度 σ_{int} は、 Fe_5GeTe_2 薄膜の膜厚に依存しないと仮定しているが、外因性スキュー散乱伝導度 σ_{SK} は膜厚によって異なる。その理由は、式 (4.7.1) で示すように、 σ_{int} は、 σ_{xx} と σ_{xx0} に依存しないのに対し、 σ_{SK} は、

$$\sigma_{\text{SK}} = \alpha\sigma_{xx0}^{-1}\sigma_{xx}^2 \quad (4.7.2)$$

で表せるように、 σ_{xx} と σ_{xx0} ^{*12} に依存するためである。ここでは、スキュー散乱係数 α は膜厚に依存しないと仮定する。

Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスにおける σ_{AHE} を σ_{xx}^2 の関数としてプロットした結果を図 4.9 に示す。 $T < 100 \text{ K}$ の温度範囲では、 σ_{AHE} は、 σ_{xx}^2 に対して、線形に変化することが確認でき、これは、異常ホール効果の内因性寄与と外因性寄与の共存を示唆すると考えられる。式 (4.7.1) を用いると、それぞれの膜厚について、 α と σ_{int} を求めることができ、 $\alpha_{38.6 \text{ nm}} = -3.80\%$ 、 $\alpha_{52.4 \text{ nm}} = -3.11\%$ 、 $\sigma_{\text{int } 38.6 \text{ nm}} = 178 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ 、 $\sigma_{\text{int } 52.4 \text{ nm}} = 147 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ となる^{*13}。ここでは、5 K での σ_{xx} を σ_{xx0} として近似し、外因性サイドジャンプの寄与を無視した^{*14} [100, 144]。

一方、 $\rho_{xx} \gg \rho_{\text{AHE}}$ が成り立つとき、式 (4.7.1) を用いて、異常ホール抵抗率 ρ_{AHE} への変換で

$$\rho_{\text{AHE}} = (\alpha\rho_{xx0} + \beta\rho_{xx0}^2) + \sigma_{\text{int}}\rho_{xx}^2 \quad (4.7.3)$$

*11 縦伝導度 σ_{xx} は、 $\sigma_{xx} = 1/\rho_{xx}$ で表せる。

*12 一般に、金属の電気抵抗率 ρ_{metal} は、 $\rho_{\text{metal}} = at_{\text{metal}}^{-1} + \rho_{\text{metal}}^{\text{bulk}}$ で書き表せて、膜厚が薄い領域では t_{metal} に依存して変化することが知られているので、伝導度も膜厚に依存して変化すると考えられる。

*13 $\alpha_{t_{\text{F}}}$ 及び $\sigma_{\text{int } t_{\text{F}}}$ は、厚さ t_{F} でのスキュー散乱係数と内因性異常ホール伝導度である。

*14 一般に、本研究で取り扱う moderately dirty 領域における外因性サイドジャンプの寄与は、内因性の寄与と外因性スキュー散乱の寄与に比べて無視できるほど小さい。

とできる [103]。さらに、Matthiessen rule によると、式 (4.7.3) は、5K において、

$$\rho_{\text{AHE0}} = \alpha\rho_{xx0} + (\beta + \sigma_{\text{int0}})\rho_{xx}^2 \quad (4.7.4)$$

と簡略化できる。従って、 $t_{\text{F}}=38.6$ nm、52.4 nm の Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスで観測された 5 K における $\rho_{\text{AHE}} = \rho_{\text{AHE0}}$ と $\rho_{xx} = \rho_{xx0}$ を代入すると、外因性スキュー散乱係数 α が算出でき、 $\alpha = -4.60\%$ と決定できた [103]。さらに、算出した α 及び各膜厚における ρ_{AHE0} 、 ρ_{xx0} を式 (4.7.3) に代入することで、各温度 T における内因性異常ホール伝導度 σ_{int} を抽出できる。図 4.10(a) に示すように、 σ_{int} は、5 K から 80 K の範囲でほとんど温度に依存せず、 $\sigma_{\text{int}} \approx 200 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ である。これは、第一原理計算から見積もられた Fe_5GeTe_2 バルク ($90 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$) [145] 及び Fe_5GeTe_2 二層膜 [146] について報告された値と同程度である。ここで、 α 、 σ_{int} は、式 (4.7.1) から求めた $\alpha_{t_{\text{F}}}$ 及び $\sigma_{\text{int } t_{\text{F}}}$ と一致することも留意されたい。

また、 Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスの外因性スキュー散乱伝導度 σ_{SK} 及び縦伝導度 σ_{xx} の温度 T 依存性も示した (図 4.10(a) と図 4.10(b) を参照)。式 (4.7.2) より、 σ_{SK} は、 σ_{xx}^2 に比例するので、温度 T が低いほど、大きさが増大することが確認できる。

最後に、本研究で得られた Fe_5GeTe_2 のスキュー散乱係数 α について考察する。 $\alpha = -4.60\%$ という値は、3d 遷移金属強磁性体やスキュー散乱寄与が大きい材料と比較しても、非常に大きいことが明らかとなった。具体的には、Pt/Co/Pt/Cr/MgO(001) ($\alpha = -0.165\%$) 及び Fe/MgO(001) ($\alpha = -0.149\%$)、Co/MgO(001) ($\alpha = -0.151\%$)、Ni/MgO(001) ($\alpha = -0.070\%$)、Fe/GaAs(001) ($\alpha = -0.370\%$)、Fe-Co 合金 ($\alpha \approx 1.12\%$)、 KV_3Sb_5 ($\alpha = 0.75 - 1.72\%$) などが報告されている [100, 103, 144, 147–150]。

その他の大きいスキュー散乱に関しては、最近、Y. Fujishiro らがカイラル磁性体 MnGe 薄膜において、主にスキュー散乱寄与による巨大なホール角 18% を報告した [151]。また、理論的にも、Anderson impurity model に基づいて多重スピンによるスキュー散乱を考えると、AHE のスキュー散乱によるホール角は、スピнкаイラリティに似た振る舞いをするということが示唆されており、実験面では大きなスキュー散乱によるホール角は、AHE のスケーリングプロットを変化させて、moderately dirty 領域のような低い伝導度スケールにおいても支配的に寄与する可能性があるとして報告している*15 [152]。そのため、本研究における大きな AHE も、3 スピクラスター形成によるスキュー散乱、すなわちスピクラスター散乱に起因する可能性が示唆される。

*15 一般に、moderately dirty 領域では、縦伝導度 σ_{xx} にかかわらず異常ホール伝導度 σ_{AHE} が一定になるとされている。

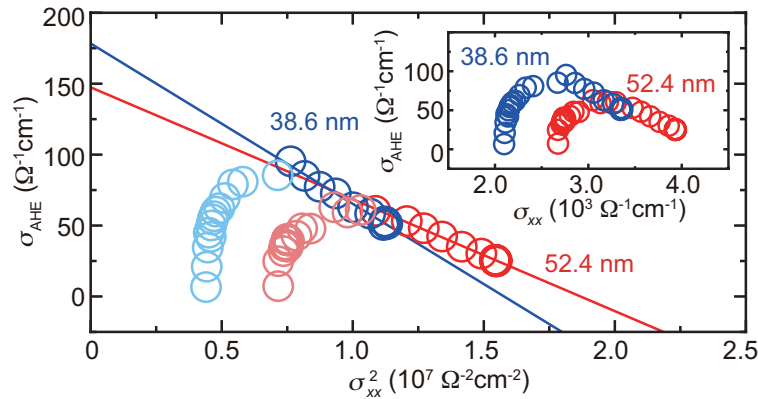


図 4.9 Fe_5GeTe_2 薄膜において σ_{xx}^2 の関数としてプロットされた異常ホール伝導度 σ_{AHE} 。 $t_{\text{F}}=38.6$ nm、52.4 nm のデバイスにおける結果をそれぞれ青色、赤色の点で示し、5 K から 80 K の温度範囲における各デバイスの線形フィッティングを行なったものをそれぞれ青色、赤色の線で示した。挿入図は、 Fe_5GeTe_2 薄膜において σ_{xx} の関数としてプロットされた異常ホール伝導度 σ_{AHE} を示す。

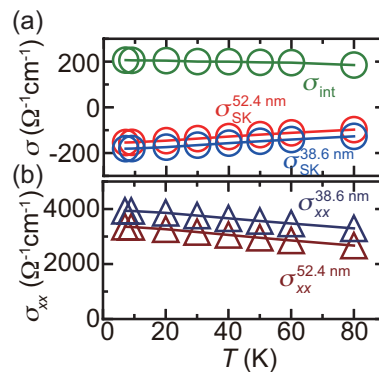


図 4.10 (a) Fe_5GeTe_2 薄膜デバイスにおける (a) 内因性異常ホール伝導度 σ_{int} の温度 T 依存性及び $t_{\text{F}}=38.6$ nm、52.4 nm のデバイスにおける外因性スキュー散乱伝導度 σ_{SK} の温度 T 依存性。 (b) $t_{\text{F}}=38.6$ nm、52.4 nm のデバイスにおける縦伝導度 σ_{xx} の温度 T 依存性。 $T = 5 - 80$ K の温度範囲で示した。

実際に、 Fe_5GeTe_2 において、110 K 未満で、glassy cluster 状態^{*16}へ遷移することが報告 [64] されていたり、275 K 以下でらせん磁性が発現し、特に 20-100 K の範囲では他の共線性と競合してスピン再配向が生じることが報告 [65] されていたりすることから、本研究における AHE もスピンスラスタースカatteringのシナリオと同じように、スキュー散乱の寄与が増大した可能性が示唆される。

*16 glassy cluster 状態では、長距離の磁気秩序が欠如している。

4.8 本章のまとめ

まとめると、本章では以下の点を明らかにした。

- 近年、注目されているファンデルワールス強磁性体 Fe_5GeTe_2 の異常ホール効果を調べ、異常ホール伝導度 σ_{AHE} の温度 T 依存性が非単調であり、100 K 付近にピークを持つことを明らかにした。
- 磁化 M が温度 T によってほとんど依存しない $T < 100$ K の温度領域では、 σ_{AHE} が縦伝導度 σ_{xx} に対して線形に変化し、 Fe_5GeTe_2 における異常ホール効果の外因性寄与が大きいことを示唆した。
- スキュー散乱係数 α が、遷移金属強磁性体の α よりも一桁大きいことを明らかにした。さらに、大きな α は、Glassy cluster 状態やらせん磁性に起因する可能性が示唆された。

以上の発見は、ファンデルワールス磁性体の異常ホール効果における外因性メカニズムの重要性を示し、スピン輸送現象の基礎的な理解を与える^{*17}。

*17 査読付き論文誌である AIP Advances **13**, 055311 (2023) に掲載されている。

第 5 章

強磁性体/Ti 二層膜における軌道ホール効果 および軌道トルクの観測

5.1 はじめに

スピン流の概念は、スピントロニクス発展において重要な役割を果たしてきた [3, 153, 154]。特に、スピンホール効果 (SHE) は、スピン軌道相互作用を通じて電流からスピン流を生成する現象であり、注目を集めてきた [155, 156]。近年では、SHE は、OHE とスピン軌道相互作用から生じる二次効果であることが理論的に予測されている [88, 89]。

OHE は、SHE と類似し、印加電場と直交する方向に軌道流を発生させる現象であり、電場によって誘起される異なる軌道特性を持つブロッホ状態の非平衡バンドの重ね合わせに由来する。この過程では、角運動量が格子から電子系の軌道部分へ輸送され、軌道角運動量もまたスピン軌道相互作用を介して電子系のスピン部分へ輸送される [157]。したがって、軌道輸送は、スピン輸送よりも基本的であることが示唆される [89]。実際に、スピン軌道相互作用が小さい Ti のような軽金属においても、OHE の存在が確認されつつある [18, 19]。

OHE が生み出す軌道トルクは、強磁性体の電子構造に強く依存することが理論的に示唆された [17]。これは、1.9.2 小節にて説明したように、軌道流が強磁性体内のスピン軌道相互作用によってスピン流に変換されることに由来するものであり、一般的な遷移金属強磁性体では、Ni における変換効率 C_{FM} が最大であると報告されている [17]。実験的にも、Ni を用いて、Cr 及び Ta、Mn、Pt、Ti、Zr による軌道トルクが観測されている [16–18, 93, 94]。しかしながら、理論的に強磁性合金中の軌道応答を明らかにすることは難しいという背景から、強磁性体組成に着目して、OHE の観測及び軌道トルクの定量をすることは、未だになされてこなかった。

本研究では、強磁性体 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}$ の組成を $x = 100$ から $x = 50$ へと連続的に変化させることで、 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}/\text{Ti}$ 二層膜における OHE の観測及び DL トルク効率、FL トルク効率を定

量した。より具体的には、Ni から Fe にかけて強磁性体組成を変化させたデバイスを複数作製し、スピントルク強磁性共鳴 (ST-FMR) と Joule Heating を組み合わせることで 2.1.4 小節の方法 (2) によりトルク効率の定量を行なった。その結果、 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}/\text{Ti}$ 二層膜における DL トルク効率は、Ni/Ti で最大となり、Ni 組成の低下とともに減少し、 $\text{Ni}_{84}\text{Fe}_{16}/\text{Ti}$ ではほとんど消失することが実験的に明らかとなった。

結論を簡潔に述べると、強磁性体組成のわずかな変化に対して、DL トルク効率が急激に変化することを明らかにした。これらの発見は、強磁性体における軌道流変換をさらに理解するための、重要な情報を提供するものである。

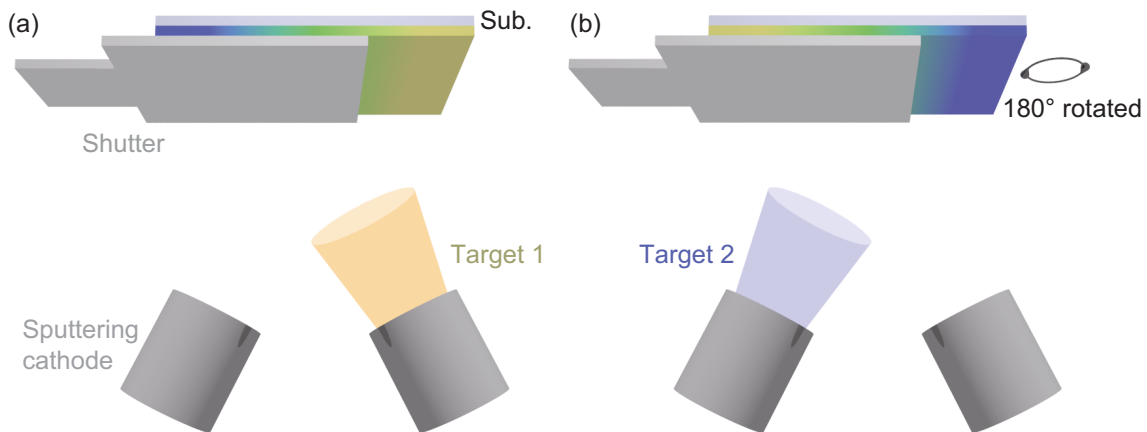


図 5.1 コンビナトリアルスパッタリングの模式図。Target 1 と Target 2 のマグネトロンスパッタリングを交互に行うことにより合金薄膜を作製する。(a) 基板右端側から左端側へシャッターを移動させながら、マグネトロンスパッタリングを実施する。この際に、基板右端には、Target 1 の元素が厚さ 0.5 nm 積層する。(b) 基板を 180° 回転させてから、基板右端側から左端側へシャッターを移動させながら、マグネトロンスパッタリングを行う。この際に、基板右端には、Target 2 の元素が厚さ 0.5 nm 積層する。

5.2 コンビナトリアルスパッタリングによる組成傾斜膜の作製

本研究では、強磁性体の組成を Ni から $\text{Ni}_{50}\text{Fe}_{50}$ へと連続的に変化させるために、コンビナトリアルスパッタリングシステム (Comet 社、CMS-3200) を用いた。コンビナトリアルスパッタリングシステム (Combinatorial sputtering system) とは、2.3.1 小節で説明したマグネトロンスパッタリングを用いたスパッタリングシステムのことであり、主に、合金薄膜を作製する際に使用される [158, 159]。その動作原理を図 5.1 に基づいて、簡潔に説明する。

一般的なマグネトロンスパッタリングによる成膜方法は、シャッターを用いることなく均一な厚さの一樣膜を作る方法とシャッターを用いた厚さ傾斜のある膜を作る方法の二つがある。後者は、マグネトロンスパッタリングを行いながら、シャッターを移動させることで、シャッターが被っている時間が長い基板の端ともう一方の端で、厚さに違いが生じることを利用して連続的に厚さが変化する傾斜膜を作製できるというものである。

一方で、コンビナトリアルスパッタリングシステムでは、シャッターと基板回転機構を組み合わせて用いることで、均一な厚さの組成傾斜膜を作ることが可能である。具体的には、基板右端側から左端側へシャッターを移動させながら、マグネトロンスパッタリングを実施する (図 5.1(a) を参照)。次に、基板を 180° 回転させ、再び基板右端側から左端側へシャッターを

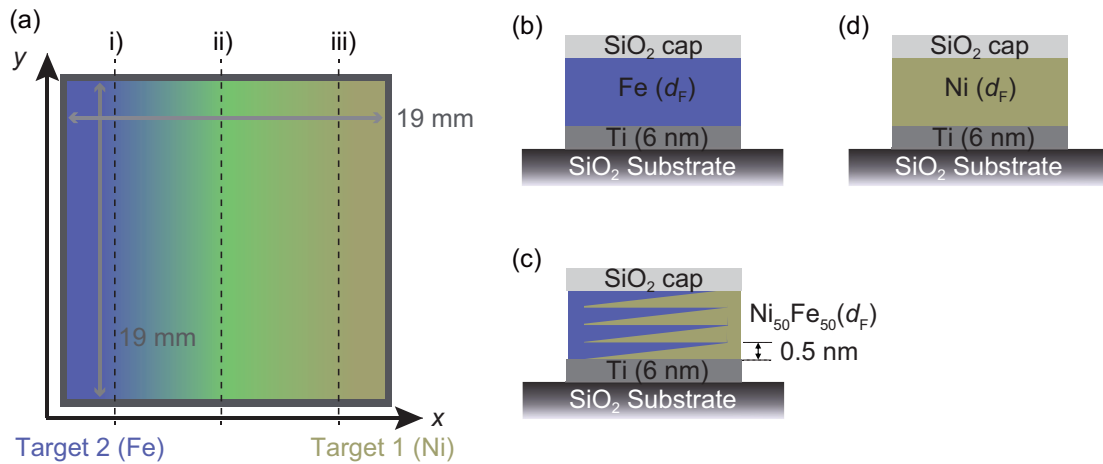


図 5.2 (a) コンビナトリアルスパッタリングシステムによって得られた均一な厚さの組成傾斜膜の上面図。ここでは、Target 1 に Ni、Target 2 に Fe を用いるものとする。(b) 領域 i) 付近におけるデバイス構造の模式図。Fe/Ti 二層膜となる。(c) 領域 ii) 付近におけるデバイス構造の模式図。Ni と Fe が交互に積層することで、合金薄膜を作製でき、 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}/\text{Ti}$ 二層膜となる。(d) 領域 iii) 付近におけるデバイス構造の模式図。Ni/Ti 二層膜となる。成膜条件は、表 2.3 にまとめた。

移動させながら、マグネトロンスパッタリングを実施する(図 5.1(b)を参照)。これを交互に繰り返すことによって、均一な厚さの組成傾斜膜を作製することができる。なお、図 5.1(a)と図 5.1(b)を 1 Cycle として考えると、1 Cycle あたりで得られる薄膜の厚さは 0.5 nm となるように実施した。その理由は、1 原子層レベルでの交互積層が実現されることによって、得られた組成傾斜膜が、合金薄膜であると見なせるからである。実際に、本研究で用いたコンビナトリアルスパッタリングシステムによって CuIr 合金薄膜を作製した研究 [158] では、エネルギー分散型 X 線分光法 (Energy-dispersive X-ray spectroscopy : EDX) により、それぞれの原子が均一に分布していることを確認しているため、本研究においても、Ni と Fe が層上構造ではなく合金となっているとみなせる*1。

以上が、コンビナトリアルスパッタリングシステムの原理であり、本研究では、SiO₂ 基板の上に Ti を成膜してから、Target 1 に Ni、Target 2 に Fe を用いて、 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}$ の組成傾斜膜を成膜し、 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}/\text{Ti}$ 二層膜を作製した。

5.3 デバイス作製及び実験系セットアップ

前節で説明したように、初めに、図 5.1 に示したコンビナトリアルスパッタリングシステムによって、均一な厚さの組成傾斜膜を作製した。組成傾斜膜の上面図を図 5.2(a) に示す。なお、本研究では、20 mm 角の SiO_2 基板を用いて、 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}/\text{Ti}$ 二層膜を作製し、組成傾斜方向は x 方向とした*2。

次に、2.3.2 小節で説明したフォトリソグラフィによる微細加工法と、2.3.3 小節で説明した Ar イオンビームミリングによる微細加工法を用いて、 $150 \times 10 \mu\text{m}$ のバーの形状のデバイスを複数作製した。具体例として、組成傾斜膜の領域 i)、ii)、iii) におけるデバイス構造をそれぞれ図 5.2(b)-(d) に示す。

$\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}/\text{Ti}$ 二層膜における測定には、2.1 節で説明したスピントルク強磁性共鳴測定 (ST-FMR) を用いた。具体的には、3.2.1 小節とほぼ同様に、面内磁界マニュアルプローバー (東栄科学産業社、TKS-MP-1H-300-20mm) 及び RF シグナルジェネレーター (Keysight Technologies 社、MXG N5183A)、ナノボルトメーター (Tektronix 社、Keithley 2182A) を使用した。なお、バイアスティー (Clear Microwave 社、B7S326) を用いて、DC 電圧を分離してナノボルトメーターにより、測定した。さらに、2.1.4 小節 (2) で説明した ΔR の定量と Joule Heating 法による電流 I の定量を行った。以上により、電場 E あたりの DL(FL) トルク効率 $\xi_{\text{DL(FL)}}^E$ を定量した。

5.4 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}/\text{Ti}$ 二層膜のスピントルク強磁性共鳴

単位電場 E あたりの DL(FL) トルク効率 $\xi_{\text{DL(FL)}}^E$ を決定するために必要なパラメータを決めるために、強磁性体組成を変化させた複数のデバイスにおいて、様々な RF 周波数 f で ST-FMR 測定を行なった。特に、 $\text{Ni}(5.5)/\text{Ti}(6)$ と $\text{Ni}_{84}\text{Fe}_{16}(5.5)/\text{Ti}(6)$ における結果を図 5.3(a)、(b) として示す。図 5.3(a)、(b) では、RF 電流に対して $\theta = 45^\circ$ の面内外磁場 H を印加しながら測定した DC 電圧 V_{mix} の H 依存性を示しており、ST-FMR の予測結果と一致している。また、強磁性体組成の変化がトルク効率に及ぼす影響を評価するために、 $\text{Ni}(5.5)/\text{Ti}(6)$ から $\text{Ni}_{84}\text{Fe}_{16}(5.5)/\text{Ti}(6)$ までの ST-FMR も測定を実施し、電圧スペクトルを図 5.3(c) に示した。

*1 なお、Ni 及び Fe の原子半径は、0.5 nm よりも十分に小さいことが知られている。

*2 本研究での成膜領域は、19 mm \times 19 mm である。

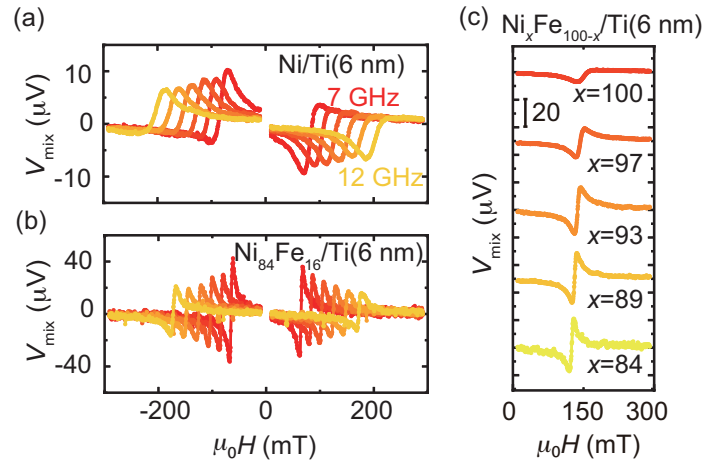


図 5.3 (a)Ni(5.5)/Ti(6) 及び (b)Ni₈₄Fe₁₆(5.5)/Ti(6) 二層膜における DC 電圧 V_{mix} の磁場 H 依存性を示す。100 mW の RF 電流を異なる周波数 ($f = 7\text{--}12$ GHz) で印加した。(c) $f = 10$ GHz における Ni _{x} Fe_{100- x} (5.5)/Ti(6) 二層膜の ST-FMR 電圧スペクトル。 x は Ni の組成比率を示す。

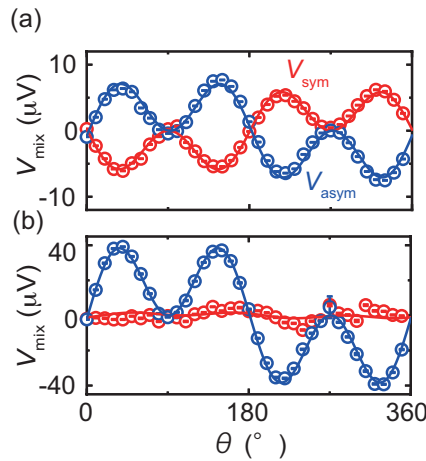


図 5.4 (a)Ni(5.5)/Ti(6) 及び (b)Ni₈₄Fe₁₆(5.5)/Ti(6) 二層膜における ST-FMR 電圧スペクトルの対称 (反対称) V_{sym} (V_{asym}) 成分の面内磁場角度 θ 依存性を示す。100 mW の RF 電流を $f = 10$ GHz で印加した。

なお、 V_{mix} は、

$$V_{\text{mix}} = V_{\text{sym}} \frac{W^2}{(\mu_0 H - \mu_0 H_{\text{res}})^2 + W^2} + V_{\text{asym}} \frac{W(\mu_0 H - \mu_0 H_{\text{res}})}{(\mu_0 H - \mu_0 H_{\text{res}})^2 + W^2} \quad (5.4.1)$$

であり、ここで、 V_{sym} 、 V_{asym} 、 W 、 H_{res} は、それぞれ対称成分の大きさ、反対称成分の大きさ、スペクトル線幅、強磁性共鳴磁場である。さらに、 $V_{\text{sym}} \propto H_{\text{DL}}$ 及び、 $V_{\text{asym}} \propto H_{\parallel} = H_{\text{DL}} + H_{\text{Oe}}$ であり [98]、 V_{sym} と V_{asym} は、測定された V_{mix} を式 (5.4.1) によってフィッティングすることにより抽出できる。

図 5.4 に、 V_{sym} 、 V_{asym} の面内磁場角度 θ 依存性を示す。ここで、図 5.4(a) は Ni(5.5)/Ti(6) 二層膜、図 5.4(b) は Ni₈₄Fe₁₆(5.5)/Ti(6) 二層膜における結果である。Ni(5.5)/Ti(6) 二層膜では、 $V_{\text{sym}} \propto \sin 2\theta \cos \theta$ と $V_{\text{asym}} \propto \sin 2\theta \cos \theta$ を示し、ST-FMR モデルと一致した [160]*³。一方で、Ni₈₄Fe₁₆(5.5)/Ti(6) 二層膜では、 $V_{\text{asym}} \propto \sin 2\theta \cos \theta$ のみ示し、 V_{sym} は面内磁場角度 θ 依存性を示さないことが確認できた。これは、DL トルク由来の有効場 H_{DL} が非常に小さいことに起因すると示唆され、先行論文の結果とも一致する [161, 162]。

そこで本研究では、Ni から Ni₄₉Fe₅₁ にかけて、強磁性組成の異なるデバイスを複数用意し、それぞれのデバイスで DL(FL) トルク効率 $\xi_{\text{DL(FL)}}^E$ を定量した。つまり、Ni_{*x*}Fe_{100-*x*}/Ti における $\xi_{\text{DL(FL)}}^E$ の強磁性体の組成依存性を観測した。ここで、 $\xi_{\text{DL(FL)}}^E$ は、二層膜に流れる RF 電流 I と AMR による抵抗変化 ΔR を定量して、ST-FMR から得られた V_{sym} (V_{asym}) とともに用いることで算出できる*⁴。

5.5 トルク効率の定量に用いた物理量

図 5.5 に、DL(FL) トルク効率 $\xi_{\text{DL(FL)}}^E$ を算出する際に定量されたデバイス抵抗 R_0 及び AMR による抵抗変化 ΔR 、電流 I_{RF} 、電場 E の強磁性体組成依存性を示す。さらに、各デバイスにおける飽和磁化 M_S を算出する必要がある。図 5.6 に、Ni 薄膜及び Fe 薄膜における磁化 $\mu_0 M$ の磁場 $\mu_0 H$ 依存性を示す。Ni では $M_S = 395$ mT、Fe では $M_S = 1564$ mT と求められ、測定範囲において、合金の飽和磁化 M_S は線形に変化すると仮定し、算出された [163]。

また、FL トルク効率 ξ_{FL}^E を算出するには、2.1.3 小節で説明したように、SiO₂/Ni_{*x*}Fe_{100-*x*}/Ti//sub. 構造における常磁性体 Ti を流れる電流から生じる Oersted 磁場 H_{Oe} を算出して、面内の有効場 h_y から除外する必要がある。本研究では、デバイスにおける Ti のバルク抵抗率 $\rho_{\text{Ti}}^{\text{bulk}}$ を膜厚 t_{Ti} 依存性から算出した (図 5.7 を参照)。図 5.7 を $\rho_{\text{Ti}} = at_{\text{Ti}}^{-1} + \rho_{\text{Ti}}^{\text{bulk}}$ でフィッティングすることにより、 $\rho_{\text{Ti}}^{\text{bulk}} = 141.28 \mu\Omega\text{cm}$ と算出された。

5.6 ダンピングライク (フィールドライク) トルク効率の定量

図 5.8(a) では、電場あたりの DL トルク効率 ξ_{DL}^E の強磁性体の組成依存性を示す。ここでは、SiO₂/Ni_{*x*}Fe_{100-*x*}(5.5)/Ti(6)//sub. 構造に加えて、参照データとして、SiO₂/Ni_{*x*}Fe_{100-*x*}(5.5)//sub.

*³ 1.9.2 小節にて、軌道トルクは二通りのメカニズムによって生成される可能性があることを説明したが、メカニズムごとに角度依存性の振る舞いの変化するかどうかはまだ明らかになっていない。

*⁴ I と ΔR の定量に関しては、測定結果の具体例とともに、2.1.4 小節 (2) で説明した。

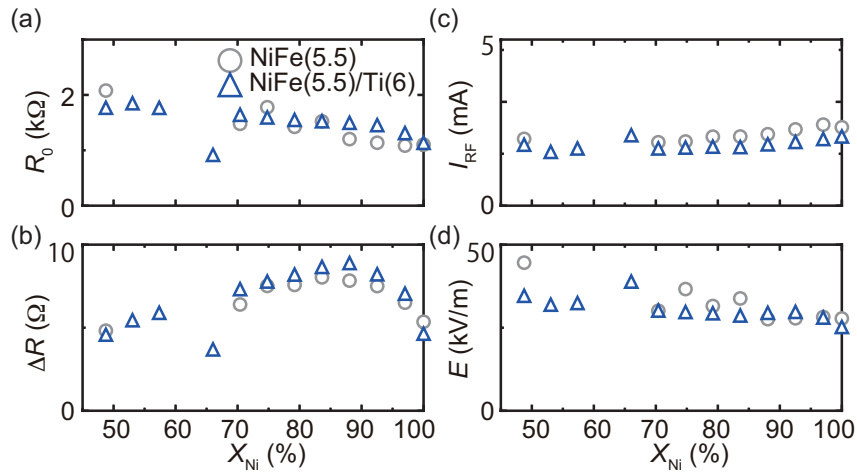


図 5.5 $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)/\text{Ti}(6)/\text{sub.}$ 構造と $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)/\text{sub.}$ 構造における (a) R_0 及び (b) ΔR 、(c) I_{RF} 、(d) E の強磁性体組成依存性。いずれも図 5.8(a) 及び図 5.9 の $\xi_{\text{DL(FL)}}^E$ を算出した際に用いた物理量である。

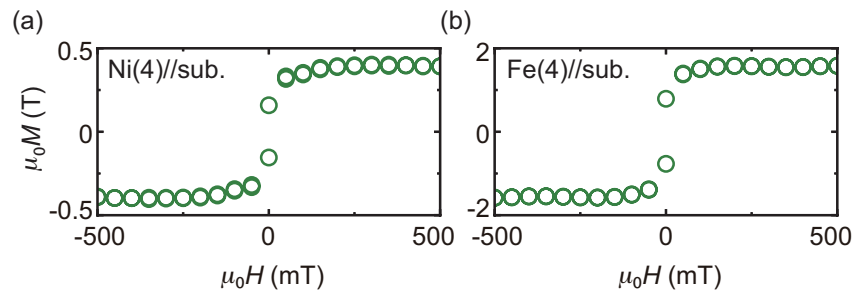


図 5.6 (a) $\text{SiO}_2/\text{Ni}(4)/\text{sub.}$ 構造及び (b) $\text{SiO}_2/\text{Fe}(4)/\text{sub.}$ 構造における磁化 $\mu_0 M$ の磁場 $\mu_0 H$ 依存性。

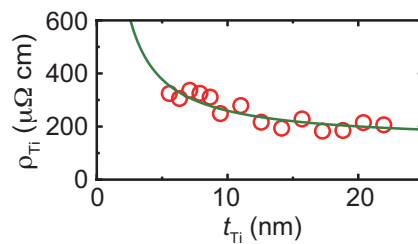


図 5.7 $\text{SiO}_2/\text{Ti}(t_{\text{Ti}})/\text{sub.}$ 構造における抵抗率 ρ_{Ti} の t_{Ti} 依存性。

構造についても観測した^{*5}。ここで、 $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)/\text{sub.}$ 構造では、常磁性体が含まれない構造となっており、軌道流由来の電流誘起トルク (DL トルク、FL トルク) が生成されないと考えられるが、近年では、強磁性体単層で生じる自己誘起トルクの存在が報告されてい

*5 ここでは、デバイスに印加される電場に対するトルク効率を考えているため、常磁性体がなくても ST-FMR モデルは成立する。

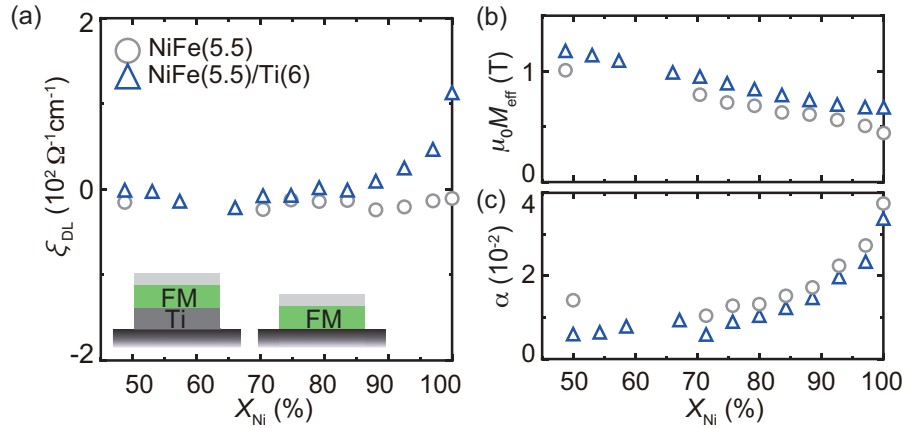


図 5.8 (a) $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)/\text{Ti}(6)//\text{sub.}$ 構造と $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)//\text{sub.}$ 構造における DL トルク効率 ξ_{DL}^E の強磁性体組成依存性 ($f = 12 \text{ GHz}$)。 (b) $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)/\text{Ti}(6)//\text{sub.}$ 構造と $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)//\text{sub.}$ 構造における有効的反磁場 $\mu_0 M_{\text{eff}}$ の強磁性体組成依存性。 (c) $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)/\text{Ti}(6)//\text{sub.}$ 構造と $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)//\text{sub.}$ 構造における磁気ダンピング定数 α の強磁性体組成依存性。

る [164]。そのため、面直方向に生じる有効場を DL トルクによる有効場 H_{DL} として算出した。なお、 ξ_{DL}^E は、式 (2.1.43) をもとに、

$$\xi_{\text{DL}}^E = \frac{2e}{\hbar} M_S d_{\text{FM}} \frac{H_{\text{DL}}}{E} \quad (5.6.1)$$

と表せる。図 5.8(a) より、 $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)/\text{Ti}(6)//\text{sub.}$ 構造では、 ξ_{DL}^E は強磁性体が Ni の組成となっている時に最大となり、Ni の組成比率が低下するに伴って減少し、 $\text{Ni}_{84}\text{Fe}_{16}$ の組成以降では、ほぼ消失することが確認できる。また、 $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)//\text{sub.}$ 構造ではその同様の振る舞いが確認できないため、 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}$ 層の効果ではないことが明らかである。 $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)/\text{Ti}(6)//\text{sub.}$ 構造における DL トルクの振る舞いは、Ni/Ti 二層膜の DL トルク効率 ξ_{DL}^E が $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Ti}$ 二層膜よりも一桁以上大きく、FM 層の電子構造がトルク生成に重要な役割を担う可能性を示唆した先行研究 [18] と一致している。ゆえに、本研究で観測されたトルクが、Ti で生成された OHE 由来の軌道トルクであると確認できた。さらに、軌道トルクであることは、Ti の軌道ホール伝導度が $\sigma_{\text{OHE}}^{\text{Ti}} > 0$ である一方で、スピンホール伝導度は $\sigma_{\text{SHE}}^{\text{Ti}} < 0$ であるという理論的な報告によっても裏付けられる [19, 165]*6。

また、図 5.8(b) に反磁場 $\mu_0 M_{\text{eff}}$ の強磁性体組成依存性を示す。Ni の組成が低下するにつれて、系統的に増大していく振る舞いが確認できるが、これは、Ni と Fe の飽和磁化 M_S の大小関係を考えると予想と一致する結果である。加えて、 $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}(5.5)/\text{Ti}(6)//\text{sub.}$ 構造と

*6 $\sigma_{\text{SHE}}^{\text{Ti}} = -1.2(\hbar/e) \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ であり、軌道ホール伝導度の大きさと比較しても 3 桁以上小さい [18]。

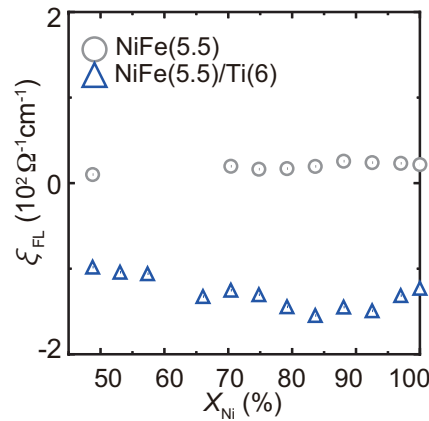


図 5.9 SiO₂/Ni_xFe_{100-x}(5.5)/Ti(6)//sub. 構造と SiO₂/Ni_xFe_{100-x}(5.5)//sub. 構造における FL トルク効率 ξ_{FL}^E の強磁性体組成依存性 ($f = 12$ GHz)。

SiO₂/Ni_xFe_{100-x}(5.5)//sub. 構造において、Ni_xFe_{100-x} 層の磁気的な性質変化がないことも明らかである。図 5.8(c) には、磁気ダンピング定数 α の強磁性体組成依存性を示す。この結果からは、Ni の組成が高いほど、 α は大きいことが確認できる。磁気ダンピング定数 α は、フェルミエネルギーにおける全状態密度に依存して変化することが知られており [166]、これは、SiO₂/Ni_xFe_{100-x}(5.5)/Ti(6)//sub. 構造における ξ_{DL}^E の振る舞いともほとんど一致している。つまり、強磁性体のフェルミエネルギーにおける電子状態の変化に依存して ξ_{DL}^E が変化する可能性が考えられる*7。

最後に、図 5.9 では、単位電場あたりの FL トルク効率 ξ_{FL}^E の強磁性体の組成依存性を示す。DL トルク効率と同様に、SiO₂/Ni_xFe_{100-x}(5.5)/Ti(6)//sub. 構造に加えて、参照データとして、SiO₂/Ni_xFe_{100-x}(5.5)//sub. 構造についても観測した。なお、 ξ_{FL}^E は、式 (2.1.43) をもとに、

$$\xi_{\text{FL}}^E = \frac{2e}{\hbar} M_S d_{\text{FM}} \frac{H_{\text{FL}}}{E} \quad (5.6.2)$$

と表せる。ここで、FL トルクによる有効場 H_{FL} を算出するには、面内方向の有効場 H_{\parallel} から常磁性体を流れる電流から生じる Oersted 磁場 H_{Oe} を差し引く必要があるため、あらかじめ、常磁性体である Ti の抵抗率を算出した (付録 5.5 の図 5.7 を参照)。ここで、SiO₂/Ni_xFe_{100-x}(5.5)//sub. 構造では、常磁性体が含まれない構造となっているため、Oersted 磁場 H_{Oe} が発生せず、面内方向の有効場 H_{\parallel} が FL トルクによる有効場 H_{FL} であるとして算出した。図 5.9 より、SiO₂/Ni_xFe_{100-x}(5.5)/Ti(6)//sub. 構造では、一貫して負の FL トルクが生成されることが確認でき、 ξ_{FL}^E は強磁性体が Ni から Ni₈₄Fe₁₆ の組成にかけて、わずかに増

*7 磁気ダンピング定数 α の大きさは、強磁性体におけるバンド構造に依存して決定される

大することがわかる。また、 $\text{SiO}_2/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}$ (5.5) // sub. 構造ではその同様の振る舞いが確認できないため、 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}$ 単層の効果ではないことが明らかである。このため、本結果で生じた FL トルクは、Ti バルクか $\text{Ti}/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}$ 界面のどちらかによって生じる効果であると考えられる。一方で、Joule Heating 法を用いた解析では、FL トルクを見積もることが難しいとされている。その理由は、各デバイスにおける電流分布を正確に見積もって、Oersted 磁場を差し引く必要があるからである*⁸。第 3 章では、この困難を避けて FL トルクを見積もるためにより信頼性の高い手法として、強磁性膜厚依存性を測定する方法があり、イオン液体を利用して単一デバイスによって実施できることを明らかにしたが、本章では Joule Heating 法を用いて FL トルクを見積もっている。そのため、FL トルクに関して、より深い議論に発展せずに留める。

5.7 本章のまとめ

まとめると、本章では以下の点を明らかにした。

- 理論的には振る舞いを明らかにすることが難しい $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}/\text{Ti}$ 二層膜において、強磁性体 $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}$ の組成を連続的に変化させながら、Ti バルク由来の OHE 及び軌道トルクを観測した。
- Ni/Ti 二層膜における $V_{\text{sym}}(V_{\text{asym}})$ から DL(FL) トルクの存在が示唆されたことに対し、 $\text{Ni}_{84}\text{Fe}_{16}/\text{Ti}$ 二層膜では DL トルクは存在せず、FL トルクの存在のみ示唆された。
- Ni から $\text{Ni}_{49}\text{Fe}_{51}$ にかけて DL トルク効率 ξ_{DL}^E の強磁性体組成依存性を確認すると、Ni/Ti 二層膜において最大となり、Ni の組成が低くなるにつれて急激に減少し、 $\text{Ni}_{84}\text{Fe}_{16}/\text{Ti}$ でほとんど消失することが確認できた。
- Ni から $\text{Ni}_{49}\text{Fe}_{51}$ にかけて FL トルク効率 ξ_{FL}^E の強磁性体組成依存性を確認すると、強磁性体組成によらず一貫して負の FL トルクが存在することが明らかとなった。この FL トルクは、Ti バルクか $\text{Ti}/\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}$ 界面のどちらかによって生じる効果であると考えられる。

以上の結果から、理論でのアプローチが難しい強磁性体合金薄膜において、軌道トルク効率の振る舞いを観測した。

*⁸ 各デバイスの長さや幅は、統一された設計となっているものの、微細加工時にわずかに異なる可能性がある。

第 6 章

結論

本研究では、金属薄膜系において、角運動量流の生成現象であるスピホール効果 (SHE) 及び異常ホール効果 (AHE)、軌道ホール効果 (OHE) を観測し、強磁性膜厚または温度、強磁性体組成を変化させて、詳しく調べた。加えて、強磁性体内で発現するスピントルク及び軌道トルクを定量し、新たな知見を得ることを目指した。

本研究で対象としたのは、SHE 及びスピントルクの観測が期待される強磁性体/重金属常磁性体薄膜、特異な AHE の観測が期待されるファンデルワールス強磁性体薄膜、OHE 及び軌道トルクの観測が期待される強磁性体合金/軽金属常磁性体薄膜である。本研究により得られた主な成果を以下にまとめた上で、今後の展望についてもそれぞれ述べる。

6.1 まとめ

1. 強磁性体/重金属常磁性体薄膜において、電気化学エッチングと ST-FMR を組み合わせることで、スピントルク効率の定量手法を確立した。従来の手法では、強磁性体の膜厚が異なる複数の二層膜デバイスを用意し、同じ物理特性を持つと仮定して、それぞれ測定してスピントルク効率を定量する必要があった。本研究では、エッチングによって強磁性体膜厚を制御し、単一デバイスで、重金属由来の SHE によるスピントルク効率の定量を可能にした。本研究で得られたスピントルク (DL トルク、FL トルク) 効率は、先行研究とも一致しているため、スピントロニクス分野における新規の堅牢な定量手法を確立したと言え、特異な材料や系におけるスピントルクの探索可能性を開いた。
2. ファンデルワールス強磁性体薄膜 Fe_5GeTe_2 における、AHE の温度依存性を測定することで、スケーリング則に基づいて電子の伝導メカニズムを調べた。この結果、AHE の外因性寄与であるスキュー散乱係数が、遷移金属強磁性体よりも一桁程度大きいことを明らかにした。この巨大な外因性 AHE の観測は、ファンデルワールス強磁性性におけ

る外因性 AHE の重要性を示すものであり、スピン輸送現象の基礎的な理解を与える。

3. 強磁性合金/軽金属常磁性体薄膜において、OHE による軌道トルク効率の強磁性合金組成依存性を調べた。この結果、軌道トルク (DL トルク) 効率は強磁性体合金組成のわずかな変化に対して著しく変化することを明らかにした。この結果は、強磁性体中の軌道応答が電子構造に強く依存することを示すものであり、これは強磁性層の電子構造の詳細にほとんど依らないスピントルクの振る舞いとは本質的に異なる。

本研究により、得られた手法及び知見は、スピントロニクス及びオービトロニクス分野における発展に寄与すると期待される。

6.2 今後の展望

第3章では、強磁性体/重金属常磁性体薄膜において、イオン液体を用いることで、新たなトルク効率の定量手法を確立したが、3.3.1 小節で述べたように、エッチング層へのダメージを最小化することで、より堅牢に定量できる余地があると考えられる。具体的には、ST-FMR デバイスの幅や長さ、電極間の距離を最適化し、強磁性層に膜厚分布が生じることなくより均一にエッチングされる構造を明らかにすることで、実現できると考えられる。さらにこの手法は、遷移金属ダイカルゴゲナイドなどのような膜厚が容易に制御することができない材料に対して、膜厚をエッチングしながら測定することで、トルク効率やスピン (軌道) 輸送特性を明らかにする際に、本領を發揮すると予想される。

第4章では、ファンデルワールス強磁性体薄膜 Fe_5GeTe_2 において、外因性スキュー散乱由来の大きな AHE を観測した。これは、Ni、Co、Fe などの遷移金属強磁性体と比較しても非常に大きなものであったため、ファンデルワールス強磁性体薄膜におけるスピン輸送特性が特異であることを示唆した。しかしながら、ファンデルワールス薄膜は、スコッチテープを用いた機械的剥離によって得られるため、膜厚を制御したデバイスを作製することが非常に難しいという課題を有している。そこで、イオン液体を用いて、膜厚をエッチングしながら測定することで、膜厚に依存するスピン輸送特性の解明が可能となると予想される。さらに、ファンデルワールス常磁性材料及びファンデルワールス強磁性材料を張り合わせて、強磁性膜厚を変化させることで、スピン (軌道) の輸送特性を明らかにすることさえ可能であると考えられる。

第5章では、強磁性体合金/軽金属常磁性体薄膜において、OHE 由来の軌道トルクを観測し、強磁性体の組成に依存して著しく変化することを明らかにした。本研究では、参照データとして強磁性体単層を用いてトルク効率を定量したが、軌道ホール伝導度とスピンホール伝導度ど

ちらも小さいような Al などの軽金属常磁性体を用いて、Ti における本結果との比較を行うことで、強磁性体/常磁性体界面の存在を残しつつ、OHE 由来の軌道トルクに関する洞察を得ることができると考えられる。さらに、磁気ダンピング定数 α が大きい Ni において、軌道トルク (DL トルク効率) が最大となることから、フェルミエネルギーにおける電子状態、つまり強磁性体の電子構造に依存して軌道トルクが変化する可能性を示唆した。しかしながら、より決定的な証拠を得るには、 α が大きい他の強磁性体 (PtCo 合金など) を用いて、軌道トルクを定量する必要があると考えられる。軌道トルクが、強磁性体の電子構造に依存して著しく変化することが明らかになれば、これまでのスピントルクの振る舞いとは本質的に異なるため、スピントロニクス及びオービトロニクスにおける全く新しい展開が幕を開けることが予想される。

参考文献

- [1] J. J. Thomson, *XL. Cathode rays*, The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **44**, 293 (1897).
- [2] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas, *Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices*, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
- [3] A. Fert, *Nobel Lecture: Origin, development, and future of spintronics*, Rev. Mod. Phys. **80**, 1517 (2008).
- [4] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*, Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).
- [5] T. Miyazaki and N. Tezuka, *Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al₂O₃/Fe junction*, J. Magn. Magn. Mater. **139**, L231 (1995).
- [6] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey, *Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions*, Phys. Rev. Lett. **74**, 3273 (1995).
- [7] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando, *Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions*, Nat. Mater. **3**, 868 (2004).
- [8] S. Ikeda, J. Hayakawa, Y. Ashizawa, Y. Lee, K. Miura, H. Hasegawa, M. Tsunoda, F. Matsukura, and H. Ohno, *Tunnel magnetoresistance of 604% at 300K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/ MgO/ CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature*, Appl. Phys. Lett. **93**, (2008).
- [9] D. C. Ralph and M. D. Stiles, *Spin transfer torques*, J. Magn. Magn. Mater. **320**, 1190 (2008).

- [10] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara, *Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-Hall effect*, Appl. Phys. Lett. **88**, (2006).
- [11] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa, *Room-temperature reversible spin Hall effect*, Phys. Rev. Lett. **98**, 156601 (2007).
- [12] S. O. Valenzuela and M. Tinkham, *Direct electronic measurement of the spin Hall effect*, Nature **442**, 176 (2006).
- [13] Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Transmission of electrical signals by spin-wave interconversion in a magnetic insulator*, Nature **464**, 262 (2010).
- [14] Y. Cao, G. Xing, H. Lin, N. Zhang, H. Zheng, and K. Wang, *Prospect of spin-orbitronic devices and their applications*, iScience **23**, (2020).
- [15] A. Manchon, J. Železný, I. M. Miron, T. Jungwirth, J. Sinova, A. Thiaville, K. Garello, and P. Gambardella, *Current-induced spin-orbit torques in ferromagnetic and antiferromagnetic systems*, Rev. Mod. Phys. **91**, 035004 (2019).
- [16] S. Lee, M.-G. Kang, D. Go, D. Kim, J.-H. Kang, T. Lee, G.-H. Lee, J. Kang, N. J. Lee, Y. Mokrousov, S. Kim, K.-J. Kim, K.-J. Lee, and B.-G. Park, *Efficient conversion of orbital Hall current to spin current for spin-orbit torque switching*, Commun. Phys. **4**, 234 (2021).
- [17] D. Lee, D. Go, H.-J. Park, W. Jeong, H.-W. Ko, D. Yun, D. Jo, S. Lee, G. Go, J. H. Oh, K.-J. Kim, B.-G. Park, B.-C. Min, H. C. Koo, H.-W. Lee, O. Lee, and K.-J. Lee, *Orbital torque in magnetic bilayers*, Nat. Commun. **12**, 6710 (2021).
- [18] H. Hayashi, D. Jo, D. Go, T. Gao, S. Haku, Y. Mokrousov, H.-W. Lee, and K. Ando, *Observation of long-range orbital transport and giant orbital torque*, Commun. Phys. **6**, 32 (2023).
- [19] Y.-G. Choi, D. Jo, K.-H. Ko, D. Go, K.-H. Kim, H. G. Park, C. Kim, B.-C. Min, G.-M. Choi, and H.-W. Lee, *Observation of the orbital Hall effect in a light metal Ti*, Nature **619**, 52 (2023).
- [20] P. Walden, *Molecular weights and electrical conductivity of several fused salts*, Bull. Acad. Imper. Sci.(St. Petersburg) **1800**, 405 (1914).
- [21] C. L. Hussey, *Room temperature molten salt systems*, Advances in molten salt chemistry **5**, 185 (1983).
- [22] 西川恵子, 真空下でも使える液体 『イオン液体』の概説, J. Vac. Soc. Japan **56**, 43 (2013).

- [23] S. Dushenko, M. Hokazono, K. Nakamura, Y. Ando, T. Shinjo, and M. Shiraishi, *Tunable inverse spin Hall effect in nanometer-thick platinum films by ionic gating*, Nat. Commun. **9**, 3118 (2018).
- [24] J. Shiogai, Y. Ito, T. Mitsuhashi, T. Nojima, and A. Tsukazaki, *Electric-field-induced superconductivity in electrochemically etched ultrathin FeSe films on SrTiO₃ and MgO*, Nat. Phys. **12**, 42 (2016).
- [25] 小野新平, イオン液体を利用した電子デバイスの開発—トランジスタから振動発電素子まで—, Electrochemistry **85**, 105 (2017).
- [26] P. Bonhote, A.-P. Dias, N. Papageorgiou, K. Kalyanasundaram, and M. Grätzel, *Hydrophobic, highly conductive ambient-temperature molten salts*, Inorg. Chem. **35**, 1168 (1996).
- [27] 福井賢一, 電気化学界面のその場観測技術, 電気化学 **87**, 57 (2019).
- [28] S. Ono, K. Miwa, S. Seki, and J. Takeya, *A comparative study of organic single-crystal transistors gated with various ionic-liquid electrolytes*, Appl. Phys. Lett. **94**, (2009).
- [29] T. Fujimoto and K. Awaga, *Electric-double-layer field-effect transistors with ionic liquids*, Phys. Chem. Chem. Phys. **15**, 8983 (2013).
- [30] K. Ueno, H. Shimotani, Y. Iwasa, and M. Kawasaki, *Electrostatic charge accumulation versus electrochemical doping in SrTiO₃ electric double layer transistors*, Appl. Phys. Lett. **96**, (2010).
- [31] T. Nojima, H. Tada, S. Nakamura, N. Kobayashi, H. Shimotani, and Y. Iwasa, *Hole reduction and electron accumulation in YBa₂Cu₃O_y thin films using an electrochemical technique: Evidence for an n-type metallic state*, Phys. Rev. B **84**, 020502 (2011).
- [32] 吾郷浩樹, 斎藤理一郎, グラフェンから広がる二次元物質の新技术と応用: 世界の動向, CVD 合成, 転写積層, 量子物性, センサ・デバイス, THz 応用 (NTS, 東京, 2020).
- [33] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D.-e. Jiang, Y. Zhang, S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, *Electric field effect in atomically thin carbon films*, Science **306**, 666 (2004).
- [34] K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. Booth, V. Khotkevich, S. Morozov, and A. K. Geim, *Two-dimensional atomic crystals*, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **102**, 10451 (2005).
- [35] K. S. Novoselov, V. I. Fal'ko, L. Colombo, P. R. Gellert, M. G. Schwab, and K. Kim, *A roadmap for graphene*, Nature **490**, 192 (2012).
- [36] K. S. Burch, D. Mandrus, and J.-G. Park, *Magnetism in two-dimensional van der Waals*

- materials*, Nature **563**, 47 (2018).
- [37] D. Jariwala, T. J. Marks, and M. C. Hersam, *Mixed-dimensional van der Waals heterostructures*, Nat. Mater. **16**, 170 (2017).
- [38] A. K. Geim and I. V. Grigorieva, *Van der Waals heterostructures*, Nature **499**, 419 (2013).
- [39] K. Novoselov, A. Mishchenko, A. Carvalho, and A. Castro Neto, *2D materials and van der Waals heterostructures*, Science **353**, aac9439 (2016).
- [40] Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, and P. Jarillo-Herrero, *Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices*, Nature **556**, 43 (2018).
- [41] S. Masubuchi, M. Morimoto, S. Morikawa, M. Onodera, Y. Asakawa, K. Watanabe, T. Taniguchi, and T. Machida, *Autonomous robotic searching and assembly of two-dimensional crystals to build van der Waals superlattices*, Nat. Commun. **9**, 1413 (2018).
- [42] A. Mukherjee, K. Shayan, L. Li, J. Shan, K. F. Mak, and A. N. Vamivakas, *Observation of site-controlled localized charged excitons in CrI_3/WSe_2 heterostructures*, Nat. Commun. **11**, 5502 (2020).
- [43] J. Arneth, M. Jonak, S. Spachmann, M. Abdel-Hafiez, Y. Kvashnin, and R. Klingeler, *Uniaxial pressure effects in the two-dimensional van der Waals ferromagnet CrI_3* , Phys. Rev. B **105**, L060404 (2022).
- [44] S. Jiang, H. Xie, J. Shan, and K. F. Mak, *Exchange magnetostriction in two-dimensional antiferromagnets*, Nat. Mater. **19**, 1295 (2020).
- [45] V. Gupta, T. M. Cham, G. M. Stiehl, A. Bose, J. A. Mittelstaedt, K. Kang, S. Jiang, K. F. Mak, J. Shan, R. A. Buhrman, and D. C. Ralph, *Manipulation of the van der Waals magnet $Cr_2Ge_2Te_6$ by spin-orbit torques*, Nano Lett. **20**, 7482 (2020).
- [46] S. Rahman, B. Liu, B. Wang, Y. Tang, and Y. Lu, *Giant photoluminescence enhancement and resonant charge transfer in atomically thin two-dimensional $Cr_2Ge_2Te_6/WS_2$ heterostructures*, ACS Appl. Mater. Interfaces **13**, 7423 (2021).
- [47] A. O. Fumega, S. Blanco-Canosa, H. Babu-Vasili, P. Gargiani, H. Li, J.-S. Zhou, F. Rivadulla, and V. Pardo, *Electronic structure and magnetic exchange interactions of Cr-based van der Waals ferromagnets. A comparative study between $CrBr_3$ and $Cr_2Ge_2Te_6$* , J. Mater. Chem. C **8**, 13582 (2020).
- [48] W. Xing, Y. Chen, P. M. Odenthal, X. Zhang, W. Yuan, T. Su, Q. Song, T. Wang, J. Zhong,

- S. Jia, X. C. Xie, Y. Li, and W. Han, *Electric field effect in multilayer $\text{Cr}_2\text{Ge}_2\text{Te}_6$: a ferromagnetic 2D material*, *2D Mater.* **4**, 024009 (2017).
- [49] M. Huang, S. Wang, Z. Wang, P. Liu, J. Xiang, C. Feng, X. Wang, Z. Zhang, Z. Wen, H. Xu, G. Yu, Y. Lu, W. Zhao, S. A. Yang, D. Hou, and B. Xiang, *Colossal anomalous hall effect in ferromagnetic van der waals CrTe_2* , *ACS Nano* **15**, 9759 (2021).
- [50] H.-J. Deiseroth, K. Aleksandrov, C. Reiner, L. Kienle, and R. K. Kremer, *Fe_3GeTe_2 and Ni_3GeTe_2 —Two New Layered Transition-Metal Compounds: Crystal Structures, HRTEM Investigations, and Magnetic and Electrical Properties*, *Eur. J. Inorg. Chem.* **2006**, 1561 (2006).
- [51] B. Chen, J. Yang, H. Wang, M. Imai, H. Ohta, C. Michioka, K. Yoshimura, and M. Fang, *Magnetic properties of layered itinerant electron ferromagnet Fe_3GeTe_2* , *J. Phys. Soc. Japan* **82**, 124711 (2013).
- [52] V. Y. Verchenko, A. A. Tsirlin, A. V. Sobolev, I. A. Presniakov, and A. V. Shevelkov, *Ferromagnetic order, strong magnetocrystalline anisotropy, and magnetocaloric effect in the layered telluride $\text{Fe}_{3-\delta}\text{GeTe}_2$* , *Inorg. Chem.* **54**, 8598 (2015).
- [53] A. F. May, S. Calder, C. Cantoni, H. Cao, and M. A. McGuire, *Magnetic structure and phase stability of the van der Waals bonded ferromagnet $\text{Fe}_{3-x}\text{GeTe}_2$* , *Phys. Rev. B* **93**, 014411 (2016).
- [54] Z. Fei, B. Huang, P. Malinowski, W. Wang, T. Song, J. Sanchez, W. Yao, D. Xiao, X. Zhu, A. F. May, W. Wu, D. H. Cobden, J.-H. Chu, and X. Xu, *Two-dimensional itinerant ferromagnetism in atomically thin Fe_3GeTe_2* , *Nat. Mater.* **17**, 778 (2018).
- [55] C. Tan, J. Lee, S.-G. Jung, T. Park, S. Albarakati, J. Partridge, M. R. Field, D. G. McCulloch, L. Wang, and C. Lee, *Hard magnetic properties in nanoflake van der Waals Fe_3GeTe_2* , *Nat. Commun.* **9**, 1554 (2018).
- [56] Y. Zhang, H. Lu, X. Zhu, S. Tan, W. Feng, Q. Liu, W. Zhang, Q. Chen, Y. Liu, X. Luo, D. Xie, L. Luo, Z. Zhang, and X. Lai, *Emergence of Kondo lattice behavior in a van der Waals itinerant ferromagnet, Fe_3GeTe_2* , *Sci. Adv.* **4**, eaao6791 (2018).
- [57] K. Kim, J. Seo, E. Lee, K. T. Ko, B. S. Kim, B. G. Jang, J. M. Ok, J. Lee, Y. J. Jo, W. Kang, J. H. Shim, C. Kim, H. W. Yeom, B. Il Min, B.-J. Yang, and J. S. Kim, *Large anomalous Hall current induced by topological nodal lines in a ferromagnetic van der Waals semimetal*, *Nat. Mater.* **17**, 794 (2018).

- [58] A. F. May, D. Ovchinnikov, Q. Zheng, R. Hermann, S. Calder, B. Huang, Z. Fei, Y. Liu, X. Xu, and M. A. McGuire, *Ferromagnetism near room temperature in the cleavable van der Waals crystal Fe_5GeTe_2* , ACS Nano **13**, 4436 (2019).
- [59] A. F. May, C. A. Bridges, and M. A. McGuire, *Physical properties and thermal stability of $Fe_{5-x}GeTe_2$ single crystals*, Phys. Rev. Materials **3**, 104401 (2019).
- [60] T. Ohta, K. Sakai, H. Taniguchi, B. Driesen, Y. Okada, K. Kobayashi, and Y. Niimi, *Enhancement of coercive field in atomically-thin quenched Fe_5GeTe_2* , Appl. Phys. Express **13**, 043005 (2020).
- [61] A. F. May, M.-H. Du, V. R. Cooper, and M. A. McGuire, *Tuning magnetic order in the van der Waals metal Fe_5GeTe_2 by cobalt substitution*, Phys. Rev. Materials **4**, 074008 (2020).
- [62] C. Tan, W.-Q. Xie, G. Zheng, N. Aloufi, S. Albarakati, M. Algarni, J. Li, J. Partridge, D. Culcer, X. Wang, J. B. Yi, M. Tian, Y. Xiong, Y.-J. Zhao, and L. Wang, *Gate-controlled magnetic phase transition in a van der Waals magnet Fe_5GeTe_2* , Nano Lett. **21**, 5599 (2021).
- [63] C. Tian, F. Pan, S. Xu, K. Ai, T. Xia, and P. Cheng, *Tunable magnetic properties in van der Waals crystals $(Fe_{1-x}Co_x)_5GeTe_2$* , Appl. Phys. Lett. **116**, (2020).
- [64] H. Zhang, R. Chen, K. Zhai, X. Chen, L. Caretta, X. Huang, R. V. Chopdekar, J. Cao, J. Sun, J. Yao, R. Birgeneau, and R. Ramesh, *Itinerant ferromagnetism in van der Waals $Fe_{5-x}GeTe_2$ crystals above room temperature*, Phys. Rev. B **102**, 064417 (2020).
- [65] T. T. Ly, J. Park, K. Kim, H.-B. Ahn, N. J. Lee, K. Kim, T.-E. Park, G. Duvjir, N. H. Lam, K. Jang, C.-Y. You, Y. Jo, S. K. Kim, C. Lee, S. Kim, and J. Kim, *Direct Observation of Fe-Ge Ordering in $Fe_{5-x}GeTe_2$ Crystals and Resultant Helimagnetism*, Adv. Funct. Mater. **31**, 2009758 (2021).
- [66] 楠瀬博明, スピンと軌道の電子論 (講談社, 東京, 2019).
- [67] K. Shanavas, Z. S. Popović, and S. Satpathy, *Theoretical model for Rashba spin-orbit interaction in d electrons*, Phys. Rev. B **90**, 165108 (2014).
- [68] 齊藤英治, 村上修一, スピン流とトポロジカル絶縁体—量子物性とスピントロニクス の発展—(基本法則から読み解く物理学最前線 1) (共立出版, 東京, 2014).
- [69] S. Maekawa, S. O. Valenzuela, E. Saitoh, and T. Kimura, *Spin Current* (Oxford University Press, Oxford, 2017).
- [70] M. I. D'yakonov and V. I. Perel, *Spin relaxation of conduction electrons in noncentrosym-*

-
- metric semiconductors*, Sov. Phys. Solid State **13**, 3023 (1972).
- [71] M. I. D'yakonov and V. Y. Kachorovskii, *Spin relaxation of two-dimensional electrons in noncentrosymmetric semiconductors*, Sov. Phys. Semicond. **20**, 110 (1986).
- [72] R. J. Elliott, *Theory of the effect of spin-orbit coupling on magnetic resonance in some semiconductors*, Phys. Rev. **96**, 266 (1954).
- [73] Y. Yafet, *g Factors and Spin-Lattice Relaxation of Conduction Electrons*, Solid State Physics **14**, 1 (1963).
- [74] I. Žutić, J. Fabian, and S. Das Sarma, *Spintronics: Fundamentals and applications*, Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
- [75] T. L. Gilbert, *A Lagrangian Formulation of the Gyromagnetic Equation of the Magnetization Field*, Phys. Rev. D **100**, 1243 (1955).
- [76] M. Oogane, T. Wakitani, S. Yakata, R. Yilgin, Y. Ando, A. Sakuma, and T. Miyazaki, *Magnetic damping in ferromagnetic thin films*, Jpn. J. Appl. Phys. **45**, 3889 (2006).
- [77] 安藤和也, 金属酸化物を用いたスピン軌道トルク生成と電流-スピン流変換の分子制御, 応用物理 **87**, 660 (2018).
- [78] C. Kittel, *On the theory of ferromagnetic resonance absorption*, Phys. Rev. **73**, 155 (1948).
- [79] E. H. Hall, *On a new action of the magnet on electric currents*, Am. J. Math. **2**, 287 (1879).
- [80] E. H. Hall, *On the possibility of transverse currents in ferromagnets*, Philos. Mag **12**, 157 (1881).
- [81] R. Karplus and J. Luttinger, *Hall effect in ferromagnetics*, Phys. Rev. **95**, 1154 (1954).
- [82] J. Smit, *The spontaneous Hall effect in ferromagnetics I*, Physica **21**, 877 (1955).
- [83] J. Smit, *The spontaneous Hall effect in ferromagnetics II*, Physica **24**, 39 (1958).
- [84] L. Berger, *Side-jump mechanism for the Hall effect of ferromagnets*, Phys. Rev. B **2**, 4559 (1970).
- [85] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, *Observation of the spin Hall effect in semiconductors*, Science **306**, 1910 (2004).
- [86] B. A. Bernevig, T. L. Hughes, and S.-C. Zhang, *Orbitronics: The intrinsic orbital current in p-doped silicon*, Phys. Rev. Lett. **95**, 066601 (2005).
- [87] T. Tanaka, H. Kontani, M. Naito, T. Naito, D. S. Hirashima, K. Yamada, and J. Inoue, *Intrinsic spin Hall effect and orbital Hall effect in 4d and 5d transition metals*, Phys. Rev. B **77**, 165117 (2008).

- [88] H. Kontani, T. Tanaka, D. Hirashima, K. Yamada, and J. Inoue, *Giant orbital Hall effect in transition metals: Origin of large spin and anomalous Hall effects*, Phys. Rev. Lett. **102**, 016601 (2009).
- [89] D. Go, D. Jo, C. Kim, and H.-W. Lee, *Intrinsic spin and orbital Hall effects from orbital texture*, Phys. Rev. Lett. **121**, 086602 (2018).
- [90] J. C. Slonczewski, *Current-driven excitation of magnetic multilayers*, J. Magn. Magn. Mater. **159**, L1 (1996).
- [91] L. Berger, *Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current*, Phys. Rev. B **54**, 9353 (1996).
- [92] D. Go and H.-W. Lee, *Orbital torque: Torque generation by orbital current injection*, Phys. Rev. Research **2**, 013177 (2020).
- [93] G. Sala and P. Gambardella, *Giant orbital Hall effect and orbital-to-spin conversion in 3d, 5d, and 4f metallic heterostructures*, Phys. Rev. Research **4**, 033037 (2022).
- [94] R. Fukunaga, S. Haku, H. Hayashi, and K. Ando, *Orbital torque originating from orbital Hall effect in Zr*, Phys. Rev. Research **5**, 023054 (2023).
- [95] D. Go, D. Jo, K.-W. Kim, S. Lee, M.-G. Kang, B.-G. Park, S. Blügel, H.-W. Lee, and Y. Mokrousov, *Long-Range Orbital Torque by Momentum-Space Hotspots*, Phys. Rev. Lett. **130**, 246701 (2023).
- [96] Y. Wang, R. Ramaswamy, and H. Yang, *FMR-related phenomena in spintronic devices*, J. Phys. D **51**, 273002 (2018).
- [97] R. Suzuki, S. Haku, H. Hayashi, and K. Ando, *Spin-torque ferromagnetic resonance in electrochemically etched metallic device*, Appl. Phys. Express **13**, 043007 (2020).
- [98] C.-F. Pai, Y. Ou, L. H. Vilela-Leão, D. Ralph, and R. Buhrman, *Dependence of the efficiency of spin Hall torque on the transparency of Pt/ferromagnetic layer interfaces*, Phys. Rev. B **92**, 064426 (2015).
- [99] V. Tshitoyan, C. Ciccarelli, A. Mihai, M. Ali, A. Irvine, T. Moore, T. Jungwirth, and A. Ferguson, *Electrical manipulation of ferromagnetic NiFe by antiferromagnetic IrMn*, Phys. Rev. B **92**, 214406 (2015).
- [100] S.-Y. Yang, Y. Wang, B. R. Ortiz, D. Liu, J. Gayles, E. Derunova, R. Gonzalez-Hernandez, L. Šmejkal, Y. Chen, S. S. P. Parkin, S. D. Wilson, E. S. Toberer, T. McQueen, and M. N. Ali, *Giant, unconventional anomalous Hall effect in the metallic frustrated magnet candi-*

-
- date, KV_3Sb_5 , *Sci. Adv.* **6**, eabb6003 (2020).
- [101] S. Onoda, N. Sugimoto, and N. Nagaosa, *Quantum transport theory of anomalous electric, thermoelectric, and thermal Hall effects in ferromagnets*, *Phys. Rev. B* **77**, 165103 (2008).
- [102] E. Sagasta, Y. Omori, M. Isasa, M. Gradhand, L. E. Hueso, Y. Niimi, Y. Otani, and F. Casanova, *Tuning the spin Hall effect of Pt from the moderately dirty to the superclean regime*, *Phys. Rev. B* **94**, 060412 (2016).
- [103] Y. Tian, L. Ye, and X. Jin, *Proper scaling of the anomalous Hall effect*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 087206 (2009).
- [104] K. Ando, S. Takahashi, K. Harii, K. Sasage, J. Ieda, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Electric manipulation of spin relaxation using the spin Hall effect*, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 036601 (2008).
- [105] I. Mihai Miron, G. Gaudin, S. Auffret, B. Rodmacq, A. Schuhl, S. Pizzini, J. Vogel, and P. Gambardella, *Current-driven spin torque induced by the Rashba effect in a ferromagnetic metal layer*, *Nat. Mater.* **9**, 230 (2010).
- [106] L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li, H. Tseng, D. Ralph, and R. Buhrman, *Spin-torque switching with the giant spin Hall effect of tantalum*, *Science* **336**, 555 (2012).
- [107] J. Kim, J. Sinha, M. Hayashi, M. Yamanouchi, S. Fukami, T. Suzuki, S. Mitani, and H. Ohno, *Layer thickness dependence of the current-induced effective field vector in Ta—CoFeB—MgO*, *Nat. Mater.* **12**, 240 (2013).
- [108] G. Yu, P. Upadhyaya, Y. Fan, J. G. Alzate, W. Jiang, K. L. Wong, S. Takei, S. A. Bender, L.-T. Chang, Y. Jiang, M. Lang, J. Tang, Y. Wang, Y. Tserkovnyak, P. K. Amiri, and K. L. Wang, *Switching of perpendicular magnetization by spin-orbit torques in the absence of external magnetic fields*, *Nat. Nanotechnol.* **9**, 548 (2014).
- [109] Y. Fan, P. Upadhyaya, X. Kou, M. Lang, S. Takei, Z. Wang, J. Tang, L. He, L.-T. Chang, M. Montazeri, G. Yu, W. Jiang, T. Nie, R. N. Schwartz, Y. Tserkovnyak, and K. L. Wang, *Magnetization switching through giant spin-orbit torque in a magnetically doped topological insulator heterostructure*, *Nat. Mater.* **13**, 699 (2014).
- [110] X. Fan, J. Wu, Y. Chen, M. J. Jerry, H. Zhang, and J. Q. Xiao, *Observation of the nonlocal spin-orbital effective field*, *Nat. Commun.* **4**, 1799 (2013).
- [111] S. Fukami, C. Zhang, S. DuttaGupta, A. Kurenkov, and H. Ohno, *Magnetization switching by spin-orbit torque in an antiferromagnet-ferromagnet bilayer system*, *Nat. Mater.* **15**,

- 535 (2016).
- [112] H. Nakayama, Y. Kanno, H. An, T. Tashiro, S. Haku, A. Nomura, and K. Ando, *Rashba-Edelstein magnetoresistance in metallic heterostructures*, Phys. Rev. Lett. **117**, 116602 (2016).
- [113] H. An, Y. Kageyama, Y. Kanno, N. Enishi, and K. Ando, *Spin-torque generator engineered by natural oxidation of Cu*, Nat. Commun. **7**, 13069 (2016).
- [114] T. Gao, A. Qaiumzadeh, H. An, A. Musha, Y. Kageyama, J. Shi, and K. Ando, *Intrinsic spin-orbit torque arising from the Berry curvature in a metallic-magnet/Cu-oxide interface*, Phys. Rev. Lett. **121**, 017202 (2018).
- [115] Y. Kageyama, Y. Tazaki, H. An, T. Harumoto, T. Gao, J. Shi, and K. Ando, *Spin-orbit torque manipulated by fine-tuning of oxygen-induced orbital hybridization*, Sci. Adv. **5**, eaax4278 (2019).
- [116] M. I. Dyakonov and V. Perel, *Current-induced spin orientation of electrons in semiconductors*, Phys. Lett. A **35**, 459 (1971).
- [117] J. Hirsch, *Spin hall effect*, Phys. Rev. Lett. **83**, 1834 (1999).
- [118] S. Murakami, N. Nagaosa, and S.-C. Zhang, *Dissipationless quantum spin current at room temperature*, Science **301**, 1348 (2003).
- [119] J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. Sinitsyn, T. Jungwirth, and A. H. MacDonald, *Universal intrinsic spin Hall effect*, Phys. Rev. Lett. **92**, 126603 (2004).
- [120] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, *Experimental observation of the spin-Hall effect in a two-dimensional spin-orbit coupled semiconductor system*, Phys. Rev. Lett. **94**, 047204 (2005).
- [121] V. M. Edelstein, *Spin polarization of conduction electrons induced by electric current in two-dimensional asymmetric electron systems*, Solid State Commun. **73**, 233 (1990).
- [122] V. Bel'kov and S. Ganichev, *Magneto-gyrotropic effects in semiconductor quantum wells*, Semicond. Sci. Technol. **23**, 114003 (2008).
- [123] J. Yoon, S.-W. Lee, J. H. Kwon, J. M. Lee, J. Son, X. Qiu, K.-J. Lee, and H. Yang, *Anomalous spin-orbit torque switching due to field-like torque-assisted domain wall reflection*, Sci. Adv. **3**, e1603099 (2017).
- [124] L. Liu, T. Moriyama, D. Ralph, and R. Buhrman, *Spin-torque ferromagnetic resonance induced by the spin Hall effect*, Phys. Rev. Lett. **106**, 036601 (2011).

-
- [125] W. Zhang, W. Han, X. Jiang, S.-H. Yang, and S. SP Parkin, *Role of transparency of platinum–ferromagnet interfaces in determining the intrinsic magnitude of the spin Hall effect*, Nat. Phys. **11**, 496 (2015).
- [126] C. Guillemard, S. Petit-Watelot, S. Andrieu, and J.-C. Rojas-Sánchez, *Charge-spin current conversion in high quality epitaxial Fe/Pt systems: Isotropic spin Hall angle along different in-plane crystalline directions*, Appl. Phys. Lett. **113**, 262404 (2018).
- [127] H. Hayashi, A. Musha, H. Sakimura, and K. Ando, *Spin-orbit torques originating from the bulk and interface in Pt-based structures*, Phys. Rev. Res. **3**, 013042 (2021).
- [128] Y. Yamada, K. Ueno, T. Fukumura, H. Yuan, H. Shimotani, Y. Iwasa, L. Gu, S. Tsukimoto, Y. Ikuhara, and M. Kawasaki, *Electrically induced ferromagnetism at room temperature in cobalt-doped titanium dioxide*, Science **332**, 1065 (2011).
- [129] H. An, S. Haku, Y. Kanno, H. Nakayama, H. Maki, J. Shi, and K. Ando, *Manipulation of spin-torque generation using ultrathin Au*, Phys. Rev. Applied **9**, 064016 (2018).
- [130] J. G. Checkelsky, J. Ye, Y. Onose, Y. Iwasa, and Y. Tokura, *Dirac-fermion-mediated ferromagnetism in a topological insulator*, Nat. Phys. **8**, 729 (2012).
- [131] B. Cui, C. Song, G. Wang, Y. Yan, J. Peng, J. Miao, H. Mao, F. Li, C. Chen, F. Zeng, and F. Pan, *Reversible ferromagnetic phase transition in electrode-gated manganites*, Adv. Funct. Mater. **24**, 7233 (2014).
- [132] S. Shimizu, K. S. Takahashi, T. Hatano, M. Kawasaki, Y. Tokura, and Y. Iwasa, *Electrically tunable anomalous Hall effect in Pt thin films*, Phys. Rev. Lett. **111**, 216803 (2013).
- [133] L. Liang, Q. Chen, J. Lu, W. Talsma, J. Shan, G. R. Blake, T. T. Palstra, and J. Ye, *Inducing ferromagnetism and Kondo effect in platinum by paramagnetic ionic gating*, Sci. Adv. **4**, eaar2030 (2018).
- [134] H. Yuan, H. Shimotani, J. Ye, S. Yoon, H. Aliah, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, and Y. Iwasa, *Electrostatic and electrochemical nature of liquid-gated electric-double-layer transistors based on oxide semiconductors*, J. Am. Chem. Soc. **132**, 18402 (2010).
- [135] J. F. Sierra, J. Fabian, R. K. Kawakami, S. Roche, and S. O. Valenzuela, *Van der Waals heterostructures for spintronics and opto-spintronics*, Nat. Nanotechnol. **16**, 856 (2021).
- [136] Y. Deng, Y. Yu, Y. Song, J. Zhang, N. Z. Wang, Z. Sun, Y. Yi, Y. Z. Wu, S. Wu, J. Zhu, J. Wang, X. H. Chen, and Y. Zhang, *Gate-tunable room-temperature ferromagnetism in two-dimensional Fe₃GeTe₂*, Nature **563**, 94 (2018).

- [137] J. Stahl, E. Shlaen, and D. Johrendt, *The van der Waals ferromagnets $Fe_{5-\delta}GeTe_2$ and $Fe_{5-\delta-x}Ni_xGeTe_2$ —crystal structure, stacking faults, and magnetic properties*, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **644**, 1923 (2018).
- [138] P. Vuoristo, T. Mäntylä, and P. Kettunen, *Adhesion and structure of rf-sputtered magnesium oxide coatings on various metal substrates*, *J. Vac. Sci. Technol.* **4**, 2932 (1986).
- [139] Y. Huang, E. Sutter, N. N. Shi, J. Zheng, T. Yang, D. Englund, H.-J. Gao, and P. Sutter, *Reliable exfoliation of large-area high-quality flakes of graphene and other two-dimensional materials*, *ACS Nano* **9**, 10612 (2015).
- [140] X. Lv, K. Pei, C. Yang, G. Qin, M. Liu, J. Zhang, and R. Che, *Controllable Topological Magnetic Transformations in the Thickness-Tunable van der Waals Ferromagnet Fe_5GeTe_2* , *ACS Nano* **16**, 19319 (2022).
- [141] M. Tang, J. Huang, F. Qin, K. Zhai, T. Ideue, Z. Li, F. Meng, A. Nie, L. Wu, X. Bi, C. Zhang, L. Zhou, P. Chen, C. Qiu, P. Tang, H. Zhang, X. Wan, L. Wang, Z. Liu, Y. Tian, Y. Iwasa, and H. Yuan, *Continuous manipulation of magnetic anisotropy in a van der Waals ferromagnet via electrical gating*, *Nat. Electron.* **6**, 28 (2023).
- [142] M. Schmitt, T. Denneulin, A. Kovács, T. G. Saunderson, P. Rüßmann, A. Shahee, T. Scholz, A. H. Tavabi, M. Gradhand, P. Mavropoulos, B. V. Lotsch, R. E. Dunin-Borkowski, Y. Mokrousov, S. Blügel, and M. Kläui, *Skyrmionic spin structures in layered Fe_5GeTe_2 up to room temperature*, *Commun. Phys.* **5**, 254 (2022).
- [143] J. Seo, D. Y. Kim, E. S. An, K. Kim, G.-Y. Kim, S.-Y. Hwang, D. W. Kim, B. G. Jang, H. Kim, G. Eom, S. Y. Seo, R. Stania, M. Muntwiler, J. Lee, K. Watanabe, T. Taniguchi, Y. J. Jo, J. Lee, B. I. Min, M. H. Jo, H. W. Yeom, S.-Y. Choi, J. H. Shim, and J. S. Kim, *Nearly room temperature ferromagnetism in a magnetic metal-rich van der Waals metal*, *Sci. Adv.* **6**, eaay8912 (2020).
- [144] L. Ye, Y. Tian, X. Jin, and D. Xiao, *Temperature dependence of the intrinsic anomalous Hall effect in nickel*, *Phys. Rev. B* **85**, 220403 (2012).
- [145] J. Sau, S. Hassan, N. Kumar, and M. Kumar, *Anomalous transport in itinerant van der Waals ferromagnets Fe_nGeTe_2 ($n=3, 4, 5$)*, arXiv preprint arXiv:2207.03547 (2022).
- [146] X. Yang, X. Zhou, W. Feng, and Y. Yao, *Strong magneto-optical effect and anomalous transport in the two-dimensional van der Waals magnets Fe_nGeTe_2 ($n=3, 4, 5$)*, *Phys. Rev. B* **104**, 104427 (2021).

-
- [147] J. Qi, Y. Zhao, H. Lyu, G. Yang, H. Huang, J. Zhang, J. Shen, W. Qin, C. Hu, Y. Gao, Y. Guo, B. Shao, Y. Zhang, Z. Zhu, H. Wei, B. Shen, and S. Wang, *Enhancement of phonon skew scattering in epitaxial Pt/Co/Pt trilayers by crystal engineering*, Phys. Rev. B **104**, 214417 (2021).
- [148] D. Hou, G. Su, Y. Tian, X. Jin, S. A. Yang, and Q. Niu, *Multivariable scaling for the anomalous Hall effect*, Phys. Rev. Lett. **114**, 217203 (2015).
- [149] D. Hou, Y. Li, D. Wei, D. Tian, L. Wu, and X. Jin, *The anomalous Hall effect in epitaxial face-centered-cubic cobalt films*, J. Phys. Condens. Matter **24**, 482001 (2012).
- [150] Y. Shiomi, Y. Onose, and Y. Tokura, *Extrinsic anomalous Hall effect in charge and heat transport in pure iron, $Fe_{0.997}Si_{0.003}$, and $Fe_{0.97}Co_{0.03}$* , Phys. Rev. B **79**, 100404 (2009).
- [151] Y. Fujishiro, N. Kanazawa, R. Kurihara, H. Ishizuka, T. Hori, F. S. Yasin, X. Yu, A. Tsukazaki, M. Ichikawa, M. Kawasaki, N. Nagaosa, M. Tokunaga, and Y. Tokura, *Giant anomalous Hall effect from spin-chirality scattering in a chiral magnet*, Nat. Commun. **12**, 317 (2021).
- [152] H. Ishizuka and N. Nagaosa, *Large anomalous Hall effect and spin Hall effect by spin-cluster scattering in the strong-coupling limit*, Phys. Rev. B **103**, 235148 (2021).
- [153] S. Wolf, D. Awschalom, R. Buhrman, J. Daughton, v. S. von Molnár, M. Roukes, A. Y. Chtchelkanova, and D. Treger, *Spintronics: a spin-based electronics vision for the future*, Science **294**, 1488 (2001).
- [154] I. Žutić, J. Fabian, and S. D. Sarma, *Spintronics: Fundamentals and applications*, Rev. Mod. Phys. **76**, 323 (2004).
- [155] A. Hoffmann, *Spin Hall effects in metals*, IEEE Trans. Magn. **49**, 5172 (2013).
- [156] J. Sinova, S. O. Valenzuela, J. Wunderlich, C. Back, and T. Jungwirth, *Spin Hall effects*, Rev. Mod. Phys. **87**, 1213 (2015).
- [157] D. Go, F. Freimuth, J.-P. Hanke, F. Xue, O. Gomonay, K.-J. Lee, S. Blügel, P. M. Haney, H.-W. Lee, and Y. Mokrousov, *Theory of current-induced angular momentum transfer dynamics in spin-orbit coupled systems*, Phys. Rev. Research **2**, 033401 (2020).
- [158] H. Masuda, R. Modak, T. Seki, K.-i. Uchida, Y.-C. Lau, Y. Sakuraba, R. Iguchi, and K. Takanaishi, *Large spin-Hall effect in non-equilibrium binary copper alloys beyond the solubility limit*, Commun. Mater. **1**, 75 (2020).
- [159] R. Modak, K. Goto, S. Ueda, Y. Miura, K. Uchida, and Y. Sakuraba, *Combinatorial tuning*

- of electronic structure and thermoelectric properties in $\text{Co}_2\text{MnAl}_{1-x}\text{Si}_x$ Weyl semimetals*, APL Mater. **9**, (2021).
- [160] D. Fang, H. Kurebayashi, J. Wunderlich, K. Vybörny, L. P. Zârbo, R. Campion, A. Casiraghi, B. Gallagher, T. Jungwirth, and A. Ferguson, *Spin-orbit-driven ferromagnetic resonance*, Nat. Nanotechnol. **6**, 413 (2011).
- [161] S. Emori, T. Nan, A. M. Belkessam, X. Wang, A. D. Matyushov, C. J. Babroski, Y. Gao, H. Lin, and N. X. Sun, *Interfacial spin-orbit torque without bulk spin-orbit coupling*, Phys. Rev. B **93**, 180402 (2016).
- [162] L. Zhu and R. A. Buhrman, *Absence of Significant Spin-Current Generation in Ti/Fe- Co-B Bilayers with Strong Interfacial Spin-Orbit Coupling*, Phys. Rev. Applied **15**, L031001 (2021).
- [163] M. Tsunoda, H. Takahashi, and M. Takahashi, *Systematic Study for Magnetization Dependence of Exchange Anisotropy Strength in Mn-Ir/FM (FM =Ni-Co, Co-Fe, Fe-Ni) Bilayer System*, IEEE Trans. Magn. **45**, 3877 (2009).
- [164] W. Wang, T. Wang, V. P. Amin, Y. Wang, A. Radhakrishnan, A. Davidson, S. R. Allen, T. J. Silva, H. Ohldag, D. Balzar, B. L. Zink, P. M. Haney, J. Q. Xiao, D. G. Cahill, V. O. Lorenz, and X. Fan, *Anomalous spin-orbit torques in magnetic single-layer films*, Nat. Nanotechnol. **14**, 819 (2019).
- [165] C. Du, H. Wang, F. Yang, and P. C. Hammel, *Systematic variation of spin-orbit coupling with d-orbital filling: Large inverse spin Hall effect in 3d transition metals*, Phys. Rev. B **90**, 140407 (2014).
- [166] B. Zhang, A. Cao, J. Qiao, M. Tang, K. Cao, X. Zhao, S. Eimer, Z. Si, N. Lei, Z. Wang, X. Lin, Z. Zhang, M. Wu, and W. Zhao, *Influence of heavy metal materials on magnetic properties of Pt/Co/heavy metal tri-layered structures*, Applied Physics Letters **110**, 012405 (2017).

謝辞

本研究は、慶應義塾大学大学院 理工学研究科基礎理工学専攻 量子スピントロニクス・スピン量子物性研究室 (安藤和也 准教授) における博士課程での研究をまとめたものです。筆者に研究の場を与えてくださったことに心から感謝の意を表します。

慶應義塾大学理工学部物理情報工学科 安藤和也准教授には、本研究を遂行する機会を与えていただいたばかりではなく、研究生活において多くのご指導をいただきました。特に、学術論文執筆の際には、論理の問題点に関するご指摘や全体的なサポートをはじめとした格別なご指導・ご助言をいただきました。また国内・国際学会にも参加させていただき、貴重な経験を得ることができました。心より深く感謝申し上げます。

慶應義塾大学理工学部物理情報工学科 海住英生教授には、博士審査の際に大変お世話になりました。磁性・スピンなどに関するご助言や、本論文の細かな表現に関するご指摘をいただき、大変勉強になりました。この場を借りて感謝申し上げます。

慶應義塾大学理工学部物理情報工学科 神原陽一教授には、博士審査の際に大変お世話になりました。物性全般・材料などに関するご助言や、本論文の構成に関するご指摘をいただき、大変勉強になりました。この場を借りて感謝申し上げます。

慶應義塾大学理工学部物理学科 能崎幸雄教授には、博士審査の際に大変お世話になりました。同じスピントロニクス分野でご活躍されている先生からのご指摘は、鋭いものばかりで、大変勉強になり、本論文の完成度を飛躍的に高めることができました。この場を借りて感謝申し上げます。

国立研究開発法人物質・材料研究機構 内田健一博士には、同機構にてコンビナトリアルスパッタリングシステムを利用させていただく際に、快く受け入れていただき、大変お世話になりました。スピンカロリトロニクス分野で世の中にはない現象を発見しようと探究されている姿に感銘を受けました。また、筆者が同機構にて測定をしている際には、ご多忙の中、測定素子のインジウム圧着について丁寧に教えてくださったり、研究の進捗具合について気にかけてくださったりしたことを鮮明に覚えております。この場を借りて感謝申し上げます。

国立研究開発法人物質・材料研究機構 平井孝昌博士には、同機構にてコンビナトリアルスパッタリングシステムを利用させていただき、多くのご指導をいただきました。学会会場でお会いした際にも気さくに話しかけていただき、研究の励みになりました。この場を借りて感謝申し上げます。

Wuhan University of Technology Tenghua Gao 准教授には、研究に対する直向きな姿勢を学ばせていただきました。慶應義塾大学に在籍時には、本研究におけるファンデルワールス強磁性体の剥離方法及び加工方法などの相談に乗っていただいた上に、結果に関するディスカッションもさせていただきました。この場を借りて感謝申し上げます。

白怜士助教には、研究室に入って間もない頃に、イオン液体を用いた実験系の組み上げ方などに関して多くのご指導をいただきました。この場を借りて感謝申し上げます。

林宏樹助教 (Kipas 研究員) には、研究に対する熱意や知識量にいつも驚かされておりました。緻密に条件を設定し、試料を作製したり、測定をしたりする姿は、大変勉強になりました。この場を借りて感謝申し上げます。

国立研究開発法人物質・材料研究機構 Weng Wei 博士には、修士課程在籍時から公私ともに懇意にさせていただき、本課程においても研究に関するディスカッションに何度もお付き合いいただきました。研究分野は異なりますが、Weng 博士の研究内容を伺う度に、筆者自身も大変多くの刺激をいただきました。また、同機構に滞在した際には、仲の良い研究者を誘って食事の機会なども設けていただき、大変励みになりました。この場を借りて感謝申し上げます。

Shaoxing University Wang Jian 講師には、学部在籍時から公私ともに懇意にさせていただき、本課程においても研究に関するディスカッションにお付き合いいただきました。研究分野は異なりますが、Wang 博士の研究内容を伺う度に、筆者自身も大変多くの刺激をいただきました。この場を借りて感謝申し上げます。

安藤研究室の皆様にも大変お世話になりました。研究が行き詰まった時などにも相談に乗っていただき、助けていただきました。博士課程前半ではコロナ禍の影響で研究以外での交流は難しかったですが、後半では食事や遊びに誘っていただきありがとうございました。皆様のおかげで、彩りのある博士課程を過ごすことができました。

博士課程に進学する際に、理解を示し、応援をしていただいた両親に深く感謝申し上げます。

最後に、研究を行う上で常に支えてくださった家族、友人をはじめとする全ての方々に深く感謝致します。

鈴木 隆起