

平成 30 年 6 月 4 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H02012

研究課題名(和文)スピフォノニクス創生

研究課題名(英文)Creation of spin-phononics

研究代表者

内田 健一 (UCHIDA, Ken-ichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・グループリーダー

研究者番号：50633541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 32,900,000円

研究成果の概要(和文)：スピントロニクスとフォノニクスの融合により、熱スピン変換の高性能化・自在制御に資する物理と材料技術を開拓した。主な研究対象は、熱流からスピン流を生成するスピンゼーベック効果と、その逆効果であるスピネルチェ効果である。スピンゼーベック効果の系統的な測定により、ナノ構造化によるマグノン・フォノン伝搬の独立制御、及び磁気弾性結合を介した熱的スピン流生成を実現した。さらにロックインサーモグラフィ法に基づく熱スピン効果のイメージング計測技術を確立し、スピン流に空間的に局在した温度変化が伴うことを見出した。これらの成果は、フォノニクスを取り込んだ次世代スピントロニクスの基盤となることが期待される。

研究成果の概要(英文)：The goal of this research project is to develop physical principles and material technologies enabling efficient and controllable thermo-spin conversion by combining spintronics with phononics. To accomplish this objective, we mainly investigated the spin Seebeck and Peltier effects, which refer to the generation of a spin current as a result of a heat current and vice versa, respectively. By systematically measuring the spin Seebeck effect, we demonstrated the independent control of magnon and phonon propagations by nanostructuring and the thermal spin-current generation by magnetoelastic coupling. Furthermore, we developed imaging techniques for thermo-spin effects by means of the lock-in thermography, and observed spatially-localized temperature modulation induced by spin currents. These achievements will provide a platform for next-generation spintronics combined with phononics.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス スピン流 スピンゼーベック効果 スピネルチェ効果 マグノン フォノン 異常エッチングスハウゼン効果 ロックインサーモグラフィ

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスにおいては、電流のスピントロニクス版である「スピン流」の生成・検出・制御技術の拡充が必須であり、世界中で研究が進められている。スピン流はその概念の重要性が認識された当初から、磁気メモリや量子情報の低電力輸送への応用可能性が指摘され、スピントロニクス研究の本流を担ってきた。それに加えて近年、スピン流を用いた新原理エネルギー変換技術が提案され、注目を集めている。その端緒となったのは、研究代表者らが2008年に発見した熱流によるスピン流生成現象「スピンゼーベック効果」である。さらに我々は、スピンゼーベック効果の原理を応用することで、2011年に音波によるスピン流生成を実現した。2013年には、表面スピン波の非相反性を利用した新しい熱輸送現象の観測にも成功している。これらの発見により、固体中の熱・音波利用技術をスピントロニクスに融合することが可能になった。

一方で、固体中にナノ構造や微細周期構造を形成することでフォノンを制御する、フォノン技術が急速な進展を遂げている。フォノンスペクトルは低周波音響から超音波や熱まで広範囲に効果を及ぼすため、フォノンニック結晶、メタマテリアル、熱電材料等、様々な長さスケールでフォノンを制御する技術が提案・実証されている。例えば熱電分野では、粒径を制御したナノ結晶から成るバルク材料(ナノ構造化バルク材料)を用いるアプローチが成功を収めており、熱電性能指数の向上に大きく貢献している。注目すべきはナノ構造化によってフォノン熱伝導と電気伝導を独立に制御できる点であり、このコンセプトに基づき、熱伝導はガラスのように悪く、電子伝導は結晶のように良い材料(Phonon-Glass Electron-Crystal)の実現を目指した研究が進められている。

以上の研究背景は、磁性体における各種素励起の長さスケールと相互作用を念頭においてナノ構造化を行うことにより、スピン流輸送と熱輸送を独立制御できる可能性を示唆する。本研究は、このようなアイデアに基づいて立案されたものである。

2. 研究の目的

本研究の目的は、スピントロニクスによるスピン流生成・検出技術とフォノン技術とを融合することで、熱スピン変換の高性能化原理や新奇なスピン流・熱流・フォノン制御技術を構築することである。この目的を達成するためには、スピンゼーベック効果・スピンペルチェ効果を含む熱スピン変換物性を系統的かつ体系的に測定・評価するための実験基盤が必要であり、まずは計測技術の拡充を目指した。この計測技術を駆使して、

- ナノ構造化によるマグノンスピン流とフォノン伝搬の独立制御の実現
- 新奇熱電・熱スピン効果の開拓と応用の2項目について研究を行った。

3. 研究の方法

(1) 試料構造

スピンゼーベック効果及びスピンペルチェ効果の測定は、主にフェリ磁性絶縁体であるイットリウム鉄ガーネット(YIG)上に常磁性金属薄膜(Pt, W等)を成膜した系を用いて行った。4-(1)節で述べる実験ではフラックス法で作製した単結晶YIG基板、4-(2)節では単結晶YIG基板をベースに合成したナノ構造化バルク材料、4-(3)節・4-(4)節では液相エピタキシー法で作製した単結晶YIG膜を用いた。各種YIGの表面を鏡面研磨・洗浄し、研磨面にスパッタリング法により常磁性金属薄膜を成膜した。

4-(4)節で述べる異常エッチングスハウゼン効果の実験は、スパッタリング法により成膜したFePt垂直磁化膜を用いて行った。

(2) スピンゼーベック効果

磁性絶縁体/常磁性金属接合において、接合界面の法線方向に温度勾配を与えると、スピンゼーベック効果によって温度勾配に沿った方向にスピン流が生成される。このスピン流は、常磁性金属層の逆スピンホール効果によってスピン流の空間成分(界面の法線方向)と磁性絶縁体層の磁化の両方に直交する方向の起電力に変換される。上記種々のYIG/常磁性金属接合を用いてスピンゼーベック効果を観測するために、接合界面に沿った方向に磁場を掃引しながら、常磁性金属層に生じた熱起電力を測定した。

(3) スピンペルチェ効果

スピンペルチェ効果はスピンゼーベック効果の相反現象であり、磁性絶縁体/金属接合界面にスピン流が流れた際に温度変化が生じる現象である(図1)。スピンペルチェ効果の実験的観測は2014年にオランダのFlipseらによって初めて報告された。彼らは、YIG/Pt接合構造において生じたスピン注入に伴う温度変化を、微細熱電対を用いて電気的に検出した。磁性絶縁体/金属接合において、金属層に電流を印加するとスピンホール効果によって磁性絶縁体層にスピン流が注入される。このスピン流輸送にはエネルギー輸送が伴うことから、界面近傍にスピン流の強度・方向に依存した温度変化が生じる。注入されるスピン流の偏極方向が磁性絶縁体の磁化と平行か反平行かによって吸熱/発熱が変化することが特徴である。しかし、Flipseらの報告以降2年以上もの間、スピンペルチェ効果の実験研究は全く報告されず、その物理的理解も不十分であった。

本研究では、3-(4)節で述べるロックインサーモグラフィ(LIT)法を初めてスピントロニクス研究に導入し、スピンペルチェ効果のイメージング計測を実現することで、その振る舞いやスピン流がもたらす新しい熱制御機能を明らかにした。

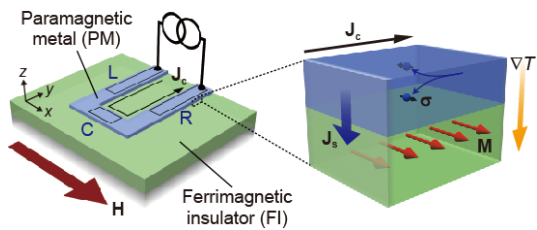


図1. スピンペルチェ効果の模式図.
(doi:10.1038/ncomms13754 より抜粋)

(4) ロックインサーモグラフィ法

LIT 法とは、測定対象への熱的励起を周期的に行いながら赤外線カメラにより熱画像を測定し、励起に追従する温度変化成分のみを選択的かつ高感度にイメージング計測する手法である。通常のサーモグラフィの温度分解能は20-30 mK 程度であるが、LIT 法を用いればサブ mK オーダーの高感度温度分布計測を比較的容易に実現できる。

熱電・熱スピン効果のLIT計測を図2に模式的に示した。本研究では、スピンペルチェ効果の励起手段にスピンホール効果を採用したため、入力は電流、出力は熱流（に伴う温度変化）となる。入力として、オフセットゼロ・周波数 f の矩形波電流を与えた場合を考える。入力電流に対して線形応答する熱電・熱スピン効果に伴う温度変化も同周波数で変動するため、撮影した熱画像をフーリエ解析することで、電流に反応して変化する温度変化信号のみを抽出することができる。フーリエ解析の結果、熱画像は温度変化の基本振動成分の強度分布を表す振幅像、入力信号に対する温度変化の位相遅延分布を表す位相像の2つに分割される。位相像は熱拡散に伴う温度変化の時間遅れを示すと共に、温度変化の符号情報を含む。ここで重要なことは、オフセットゼロの矩形波電流に伴うジュール熱は時間的に一定であるため、フーリエ解析で基本振動成分のみを抽出することによって除去される点である。よって、熱電・熱スピン効果の信号が小さく、通常のサーモグラフィ測定ではバックグラウンド信号に埋もれてしまうような場合であっても、LIT 法を用いれば高感度かつ純粋に線形応答成分のみを検出することができる。

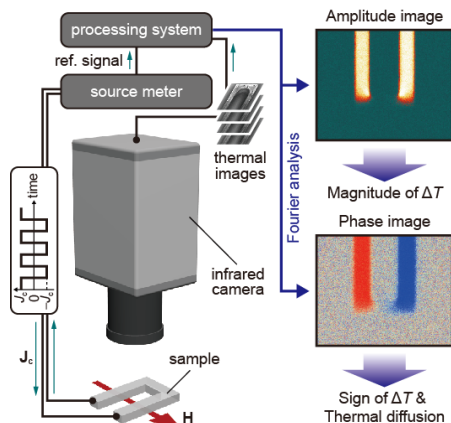


図2. LIT 法による熱電・熱スピン効果計測.

4. 研究成果

(1) スピンゼーベック効果の計測・評価基盤の確立

本研究の第一段階として、マグノンによるスピン流伝導特性及びフォノンによる熱伝導特性を解明し、それらの独立制御を実現するための土台を構築した。具体的には、スピンゼーベック素子の熱電特性（熱起電力・電気伝導率・熱伝導率）の正確な温度依存性をすべて同時に測定するための測定手法・装置を開発した（論文⑤）。本手法を用いれば、実験装置由来の外因的な効果を排除可能であり、異なる素子間のスピン・熱輸送特性を定量的に比較することができる。

本手法の有効性を実証するために、単結晶 YIG 基板/Pt 薄膜接合に適用して測定を行ったところ、スピンゼーベック効果は YIG のフォノン熱伝導率と強い相関を示し、30 K 付近に鋭いピークを持つ温度依存性を示すことが明らかになった（図3）。これはスピンゼーベック効果の発現機構におけるフォノン媒介プロセスの重要性を再認識させる結果である。

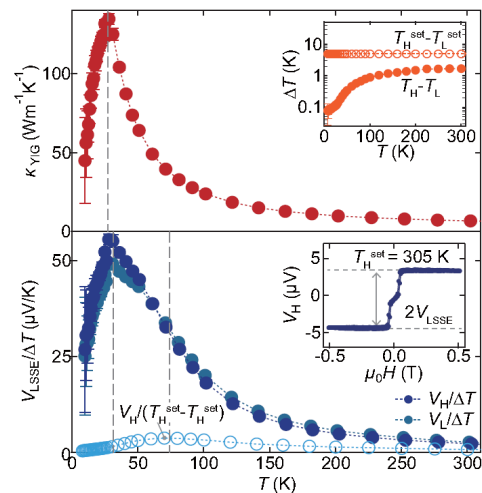


図3. 単結晶 YIG 基板/Pt 薄膜接合におけるスピンゼーベック効果と熱伝導率の同時測定.
(doi:10.1103/PhysRevB.95.174401 より抜粋)

(2) ナノ構造化によるスピンゼーベック効果とフォノン熱伝導率の独立制御

マグノン・フォノン伝搬の独立制御の実現を目指し、ナノ構造サイズの異なる数種類のナノ構造化バルク YIG を合成し、そのスピンゼーベック効果（マグノン伝搬）と熱伝導率（フォノン伝搬）の温度依存性を4-(1)節で確立した計測法により評価・比較した。母材料は単結晶 YIG 基板とし、これをボールミル粉砕して粒径を制御した YIG ナノ粒子を作製した後、放電プラズマ焼結することによってナノ構造化バルク YIG を合成した。ナノ構造化バルク YIG におけるスピンゼーベック効果と熱伝導率が YIG ナノ結晶の平均粒径に対して異なる依存性を示すことを明らかにし、磁性材料のナノ構造を制御することによりマ

グノン伝搬とフォノン伝搬を独立に制御可能であることを実証した(図4、論文③; Phys. Rev. Materials 誌の創刊号に掲載)。ナノ構造化によるスピントラック性能指数の向上は実現できなかったが、本研究によって温度勾配下のマグノン・フォノン伝搬の長さスケールに関する重要な知見が得られた。この知見に基づいて、ナノ構造化磁性絶縁体の母材料の最適選定・粒径サイズの最適設計を行えば、スピン伝導断熱材料「Phonon-Glass Magnon-Crystal」を創製できるであろう。

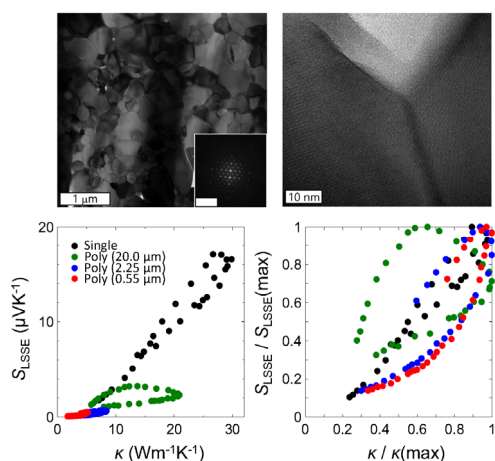


図4. ナノ構造化バルクYIGの断面TEM像及びスピントラック効果と熱伝導率の相関のYIG粒径依存性。(doi:10.1103/PhysRevMaterials.1.014601より抜粋)

(3) 磁気弾性結合によって駆動されるスピントラックの観測

スピントラック効果の磁場依存性・温度依存性を系統的に測定することにより、磁性絶縁体中のフォノンとマグノンの混成モードによって熱流-スピン流変換能が増強される原理を見出した(図5、論文⑦)。

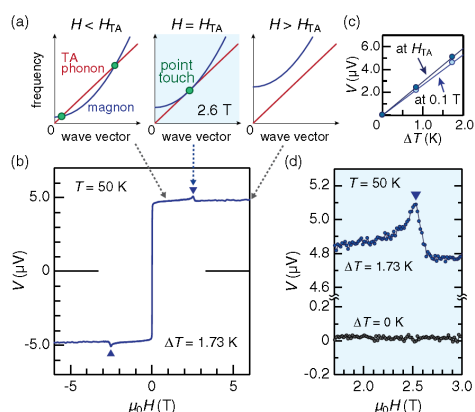


図5. 低温・高磁場環境下の単結晶YIG薄膜/Pt薄膜接合におけるスピントラック効果の磁場依存性。(doi:10.1103/PhysRevLett.117.207203より抜粋)

(4) スピンペルチェ効果の熱画像計測

LIT法によってスピン偏極に依存した温度変化成分のみを抽出し、その電流(スピン流)・磁化方向依存性を調べることで、スピンペルチェ効果の高感度なイメージング計

測を実現した(図6、論文②、⑥)。この手法によって、従来は検出すら困難であったスピンペルチェ効果を系統的に探索することが可能になり、スピン流-熱流変換の相反性・特性長・磁場依存性に関する重要な知見が得られた。YIG/Pt接合を用いた基礎データの蓄積に加えて、Fe₃O₄/Pt交互積層多層膜を用いた実験も行い、積層数の増加に伴いスピンペルチェ係数が飛躍的かつ単調に増大していくことを見出した(論文④)。

本研究で得られた最も重要な知見は、スピンペルチェ効果によって生じた温度変化が、磁性絶縁体/金属接合界面近傍に局在していることを明らかにしたことにある。この実験結果は従来のペルチェ効果のような単なる一つの熱源生成では説明できず、スピン流により界面近傍に双極子型の熱源(等量の正と負の熱源ペア)が生成されると仮定することにより再現される。空間分布情報を得ることができない従来研究では、この特異な温度分布は解析においても考慮されておらず、スピン流-熱流変換の大きさは実に一桁以上も過小評価されていたことが明らかになった。このように、未知の熱スピン効果の探索において、イメージング計測により得られるメリットは計り知れない。

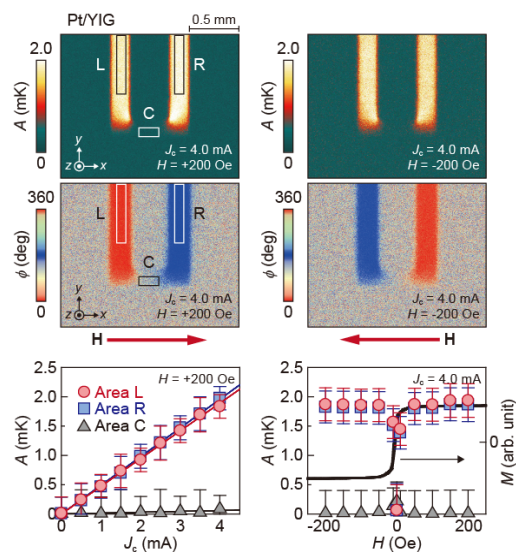


図6. YIG/Pt接合におけるスピンペルチェ効果のイメージング計測。(doi:10.1038/ncomms13754より抜粋)

さらに本研究では、強磁性体において発現する熱電効果の一つである異常エッチングスハウゼン効果の薄膜における初めての観測と、磁化方向に応じた三次元的な熱流方向制御の実証も、LIT法を用いることにより実現された。YIG/Pt接合とFePt垂直磁化膜における電流誘起温度変化を、面内磁化配置・垂直磁化配置の2つのセットアップにおいて測定・比較することで、スピンペルチェ効果と異常エッチングスハウゼン効果が示す対称性の違いを直接観測することに成功した(図7、論文①; Appl. Phys. Lett. 誌のEditor's Pickに選定)。

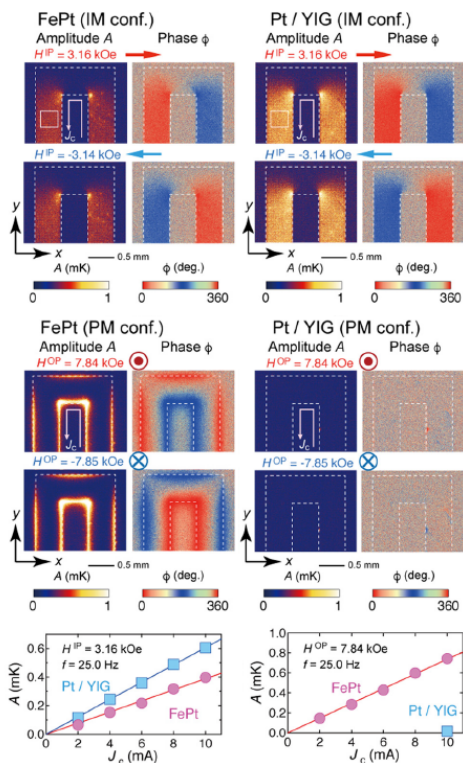


図7. FePt 垂直磁化膜における異常エッチングスハウゼン効果と YIG/Pt 接合におけるスピネルチェ効果の比較。 (doi:10.1063/1.5022759 より抜粋)

(5) まとめと展望

本研究の遂行によって、低温領域におけるスピントロニクス効果とフォノン熱伝導率との強い相関の実証 (4-(1)節)、ナノ構造化バルク YIG におけるマグノンとフォノンの長さスケールの独立制御 (4-(2)節)、磁気弾性結合によって駆動されるスピントロニクス効果の観測 (4-(3)節)、スピネルチェ効果のイメージング計測の実現と熱源分布の解明 (4-(4)節) など、スピントロニクスと熱・フォノンの融合効果によって発現する新たな知見が多数得られ、研究開始当初は想定していなかった発見も相次いだ。特に進展したのは、LIT 法に基づく熱電・熱スピントロニクス効果の実験研究である。LIT 法を用いれば、温度分布をサブ mK オーダーの温度分解能、 μm スケールの空間分解能で非接触測定できる上、外場に対する熱電・熱スピントロニクス効果の応答を従来手法よりも効率的・系統的・定量的に評価することができる。

スピネルチェ効果のイメージング計測によって明らかになった応用面における重要な点は、スピントロニクス効果によってスピントロニクスデバイスの局所温度変調を実現できる可能性を示した点にある。双極子型熱源を用いれば対象の温度のみを (周りの温度に影響を与えずに) 変調することが可能になるため、新しい熱制御技術に繋がる可能性がある。スピネルチェ効果によって生成される温度変化は現状では小さい値に留まっているが、スピントロニクス-熱変換効率を向上するための材料探索・開発も日々進展している。今後、

本研究で開拓した物理・技術が、スピントロニクス現象の更なる原理説明・材料探索や新たな応用の創出に繋がり、“スピントロニクス”分野の基盤となることを期待したい。

補足:

研究開始当初の実験計画の一つとして、空間反転対称性の破れた人工微細構造によってスピントロニクス効果の整流機能を発現させることを提案していた。本研究では、レーザー加工法を用いて磁性絶縁体薄膜上にフォノンニック微細構造を作製し、主にマイクロ波分光法を用いてスピントロニクス透過特性を評価した。研究期間内に明瞭な整流特性を得るには至らなかったが、LIT 法を用いて非対称構造におけるスピントロニクス伝搬特性・スピントロニクス-熱変換特性を評価する研究を継続している。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 34 件)

- ① T. Seki, R. Iguchi, K. Takanashi, K. Uchida, Visualization of anomalous Ettingshausen effect in a ferromagnetic film: Direct evidence of different symmetry from spin Peltier effect, Applied Physics Letters, 査読有, 112, 2018, 152403. doi:10.1063/1.5022759
- ② S. Daimon, K. Uchida, R. Iguchi, T. Hioki, E. Saitoh, Thermographic measurements of the spin Peltier effect in metal/yttrium-iron-garnet junction systems, Physical Review B, 査読有, 96, 2017, 024424. doi:10.1103/PhysRevB.96.024424
- ③ A. Miura, T. Kikkawa, R. Iguchi, K. Uchida, E. Saitoh, J. Shiomi, Probing length-scale separation of thermal and spin currents by nanostructuring YIG, Physical Review Materials, 査読有, 1, 2017, 014601. doi:10.1103/PhysRevMaterials.1.014601
- ④ K. Uchida, R. Iguchi, S. Daimon, R. Ramos, A. Anadon, I. Lucas, P. A. Algarabel, L. Morellon, M. H. Aguirre, M. R. Ibarra, E. Saitoh, Enhancement of the spin Peltier effect in multilayers, Physical Review B, 査読有, 95, 2017, 184437. doi:10.1103/PhysRevB.95.184437
- ⑤ R. Iguchi, K. Uchida, S. Daimon, E. Saitoh, Concomitant enhancement of the longitudinal spin Seebeck effect and the thermal conductivity in a Pt/YIG/Pt system at low temperatures, Physical Review B, 査読有, 95, 2017, 174401. doi:10.1103/PhysRevB.95.174401
- ⑥ S. Daimon, R. Iguchi, T. Hioki, E. Saitoh, K. Uchida, Thermal imaging of

spin Peltier effect, Nature Communications, 査読有, 7, 2016, 13754, doi:10.1038/ncomms13754

- ⑦ T. Kikkawa, K. Shen, B. Flebus, R. A. Duine, K. Uchida, Z. Qiu, G. E. W. Bauer, E. Saitoh, Magnon-polarons in the spin Seebeck effect, Physical Review Letters, 査読有, 117, 2016, 207203, doi:10.1103/PhysRevLett.117.207203

[学会発表] (計 2 4 件)

- ① 内田健一, スピントロニクスを用いたナノスケール熱制御 (招待講演), 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018/3/18, 早稲田大学 (東京都新宿区)
- ② K. Uchida, Thermal imaging of spin Peltier effects (招待講演), 2017 MRS Spring Meeting, 2017/4/19, Phoenix (USA)
- ③ 内田健一, スピントロニクスを用いた熱電変換 / Thermoelectric conversion base on spintronics (招待講演), 日本物理学会 第 72 回年次大会, 2017/3/19, 大阪大学 (大阪府豊中市)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 磁気特性観察装置及び磁気特性観察方法

発明者: 内田健一、大門俊介、井口亮、齊藤英治

権利者: 国立大学法人東北大学

種類: 特許

番号: 特願 2016-081799

出願年月日: 2016 年 4 月 15 日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

内田 健一 (UCHIDA, Ken-ichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・グループリーダー

研究者番号: 5 0 6 3 3 5 4 1

(2) 研究分担者

塩見 淳一郎 (SHIOMI, Junichiro)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授

研究者番号: 4 0 4 5 1 7 8 6

井口 亮 (IGUCHI, Ryo)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・研究員

研究者番号: 4 0 7 0 7 7 1 7

(3) 連携研究者
なし

(4) 研究協力者
なし