

令和 2 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2018～2019

課題番号：18H05845・19K21035

研究課題名（和文）スピン流-熱流変換現象を支配する長さスケールの実験的解明

研究課題名（英文）Investigation of length scale of spin-heat conversion phenomena

研究代表者

大門 俊介 (Daimon, Shunsuke)

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・助教

研究者番号：20825434

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,300,000円

研究成果の概要（和文）：スピンペルチェ効果/スピンゼーベック効果はスピン流（電子の自転の流れ）を利用した次世代の熱電変換技術として注目を集めている。これらの現象の理解は未だ基礎研究の段階にあり、熱電変換効率の低さが課題となっている。この課題解決に向け、本研究では長さスケールの観点から熱電変換の原理を究明した。スピン流の流れる物質の厚さを系統的に変化させ熱電効果を測定し、測定結果を理論および数値計算を用いて解析することで、スピン流と熱流の長さスケールを解明した。本成果により、スピン流熱電効果の原理が明らかになり、熱電変換効率向上へ向けた重要な指針が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の学術的意義は、スピン流熱流変換現象を支配する長さスケールを解明することにある。従来のエレクトロニクスに用いられてきた電流とは対照的に、スピン流は非保存流であるという事実から、スピン流熱流変換現象には物質固有の長さスケールが現れる。この長さスケールを実験および理論の両面から解析し、スピン流と熱流がそれぞれ特有の拡散長が存在することを明らかにした。本成果により、長さスケールという観点からスピン流を最大限に利用するための方策が導かれ、熱電変換効率向上に向けた指針が示された。

研究成果の概要（英文）：The spin Peltier and Seebeck effects refer to thermoelectric conversion effects using spin currents. These effects are still under the basic research stage, and our aim is to improve the thermoelectric conversion efficiency of these effects. To achieve this aim, we have investigated the principle of the thermoelectric conversion effects in terms of length scales. In this work, we measured thermoelectric effects with systematically changing thickness of spin current materials. Detailed analyses based on theoretical and numerical approaches reveal the length scales of the spin and heat current in the spin current materials. These results provide an important guideline for the improvement of the thermoelectric conversion efficiency.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：熱流スピン流変換現象 スピン流

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスは、電子のスピンの自由度を利用することで、従来のエレクトロニクスには実現できなかった新機能の創出を目指す分野である。エレクトロニクスでは電荷の流れである電流が利用されてきたのに対して、スピントロニクスではスピンの流れであるスピン流が重要な役割を果たす。このスピン流を利用した熱電変換技術として、スピン流による熱流生成現象「スピンペルチェ効果」が知られている。スピンペルチェ効果は、絶縁体をも加熱冷却可能であることや、空間的に局在した温度変調を可能にすることなど、従来の熱電変換現象とは異なる特性を有しており、デバイス応用への期待がもたれている。一方で、熱電変換効率の低さが課題となっており、スピンペルチェ効果の発現機構の理解を目指した基礎研究が盛んに行われている。

そこで本研究では、長さスケールという観点からスピン流熱流変換現象の原理解明を目指し、長さスケールを決定する物理要因を実験的に解明することで、スピン流の特性を最大限に生かしたデバイスの設計へと繋げる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、スピン流による熱流生成現象である「スピンペルチェ効果」の長さスケールを実験的に明らかにし、その特徴的な長さを支配する物理原理を解明することである。スピン流の長さスケールは、スピンの自由度であることから必然的に現れる。電子の持つ電荷はその総量が保存するため、電流は導体中を長い距離流れられる。一方、電子のスピンの自由度は物質中で散乱を受けて総量が変化してしまうため、特徴的な長さスケールで拡散することが知られている。さらに、スピンの自由度の運ぶスピン流と熱流は密接に関連している。物質中でスピンの自由度が輸送される時、スピン流が生じると同時に、スピンの自由度の熱ゆらぎが輸送されることにより熱流が生じる[図 1(a)]。したがって、スピン流は必然的に熱流を伴い、それぞれの流れに対して相関をもった長さスケールが存在する。スピン流熱流変換現象はこれらの長さスケールによって支配され、熱電変換効率やデバイス構造はこれらの長さに制約される。したがって、長さスケールを決定する物理原理を解明することができれば、スピン流熱電変換現象の性能向上に向けた重要な指針を導くことが可能である。

そこで本研究では、スピンペルチェ効果におけるスピン流と熱流の長さスケールを実験的に理解し、理論計算と比較することによって物理原理を明らかにする。具体的には、スピンペルチェ効果の磁性体膜厚依存性の解析による長さスケールの解明、マグノンフォノン混成に伴う長距離スピン輸送を利用したスピンペルチェ効果増大現象の観測、常磁性絶縁体中の長距離スピン輸送現象の観測を目指す。

3. 研究の方法

本研究では、(1)常磁性金属/磁性絶縁体接合におけるスピンペルチェ効果の磁性体膜厚依存性の解析、(2) マグノンフォノン結合を利用したスピンペルチェ信号の測定、(3) 常磁性絶縁体中における非局所スピン輸送測定を行った。

(1)の研究では、常磁性金属 Pt/フェリ磁性絶縁体 $Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG) の 2 層接合構造を用いた[図 1(b)]。常磁性金属層に用いた Pt は大きなスピンホール効果 (電流スピン流変換現象) を示すことが知られており、Pt に電流を流すことで界面垂直方向にスピン流が生成される。このスピン流に反応して熱流が生成されることで、試料に温度変化が生じる。この温度変化を YIG の膜厚を系統的に変化させながら測定することで、スピン流熱流変換現象の長さスケールを検証することが可能である。本研究では、スピンペルチェ効果の YIG 膜厚依存性測定結果に基づき、スピン拡散方程式および熱拡散方程式を用いた長さスケールの解析を行った。

(2)の研究では、常磁性金属 Pt/フェリ磁性絶縁体 $Lu_3Fe_5O_{12}$ (LuIG) の 2 層接合構造を用いた。LuIG は熱励起が支配的な低エネルギー領域でマグノン (磁化の集団歳差運動) とフォノン (格子の集団運動) が強く結合することが知られており、マグノンフォノン混成波を形成する。欠陥の少ない結晶では、一般にフォノンはマグノンよりも長い拡散長を示すため、マグノンフォノン

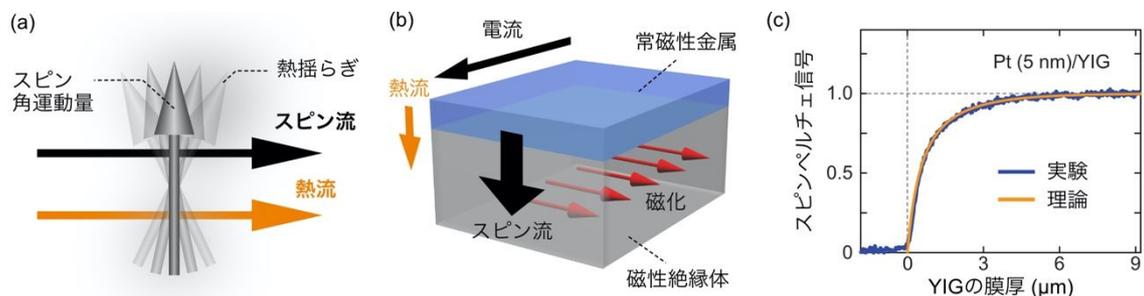


図 1. (a) スピンの角運動量の運ぶスピン流と熱流. (b) スピンペルチェ効果の模式図. (c) スピンペルチェ信号のフェリ磁性絶縁体 YIG 膜厚依存性.

混成波は長距離のスピンの流輸送を可能とし、スピンペルチェ信号の増大が期待される。本効果を検証するべく、Pt/LuIG 接合のスピンペルチェ効果に伴う温度変化を熱電対を用いて測定し、磁場依存性を詳細に解析することでマグノンフォノン混成波の寄与を検証した。

(3)の研究では、常磁性絶縁体 $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG) 中を流れるスピンの長さスケールを解明するべく、Pt/GGG/Pt 接合試料におけるスピン輸送現象の測定および解析を行った。先行研究では、強磁性体などの磁気秩序をもった物質のスピン流輸送特性が研究されてきた一方で、磁気秩序をもたない常磁性体中ではスピンが輸送されないと信じられてきた。本研究では GGG 中のスピン輸送を解明するため、Pt/GGG/Pt を用いた非局所スピン輸送測定を行い、一方の Pt からスピンホール効果により GGG へスピン流を注入し、もう一方の Pt の逆スピンホール効果を用いて検出することで、GGG 中を流れるスピンの長さスケールを検証した。

4. 研究成果

本研究で得られた主な成果は以下の3点に集約される。

- (1). スピンペルチェ効果およびスピンゼーベック効果の磁性体膜厚依存性の解明
- (2). マグノンフォノン混成波によるスピンペルチェ信号増大現象の観測
- (3). 常磁性絶縁体中における長距離スピン輸送現象の解明

以下ではこれらの成果の詳細について述べる。

(1). スピンペルチェ効果およびスピンゼーベック効果の磁性体膜厚依存性の解明

スピンペルチェ効果の実験結果に基づき、磁性体膜厚依存性の数値解析を行った[図 1(c)]。Pt/YIG 接合中の熱流とスピン流はそれぞれ温度とスピン蓄積の勾配に比例するとし、温度とスピン蓄積の分布を熱拡散方程式およびスピン拡散方程式を連立させることによって求めた。スピン流注入に伴う熱流の大きさは、それぞれの拡散長に応じて大きく変化し、Pt/YIG の界面熱抵抗や熱浴との境界条件にも大きく影響を受ける。様々な条件の計算モデルと実験的に得られた磁性体膜厚依存性を比較したところ、熱流がスピン流よりも十分短い拡散長を持つ場合に実験結果が良く再現されることが明らかになった[図 1(c)]。従来の解析では、スピン流熱流変換現象が 1 つの長さスケールに支配されると仮定したモデルが多く用いられてきたが、本解析によってスピン流と熱流に対してそれぞれ異なる拡散長が存在することが重要であることが示された。

ここで提案した理論モデルは、スピンペルチェ効果の逆効果であるスピンゼーベック効果にも適用可能である。スピンゼーベック効果の磁性体膜厚依存性のデータに対しても上記で導出された理論式を用いてフィッティングを行うと良く実験結果を再現することがわかっている。これは、スピン流熱流変換現象の相反性の存在を示唆する結果である。

(2). マグノンフォノン混成波によるスピンペルチェ信号増大現象の観測

Pt/LuIG 接合試料においてスピンペルチェ効果を測定し、マグノンフォノン混成に起因した信号増大を観測することに成功した。実験では Pt 中のスピンホール効果を用いて LuIG にスピン流を注入し、スピン流に反応して生じた温度変化を熱起電力 ΔV_{TC} として測定した[図 2(b)]。Pt/YIG などの典型的な試料では、磁場が大きい領域でスピンペルチェ信号が単調減少することが報告されているが、LuIG の場合には 0.2 および 1.0T 付近に特徴的な電圧ピークが観測された。この磁場値は、LuIG 中のマグノンとフォノンの分散関係が接触し、混成状態の割合が最大化する磁場値に対応しており[図 2(a)]、マグノンフォノン混成波が信号増大に対して重要な役割を果たしていることを示す結果である。混成領域での信号増大は、マグノンフォノン混成波が通常のマグノンよりも長い寿命を持つことから、長い距離スピン流を輸送した結果、熱流が多く運ばれたと解釈できる。すなわち、フォノンや他の素励起を利用した長さスケールの変調により、スピンペルチェ効果の熱電変換効率を向上させられる可能性が示された。

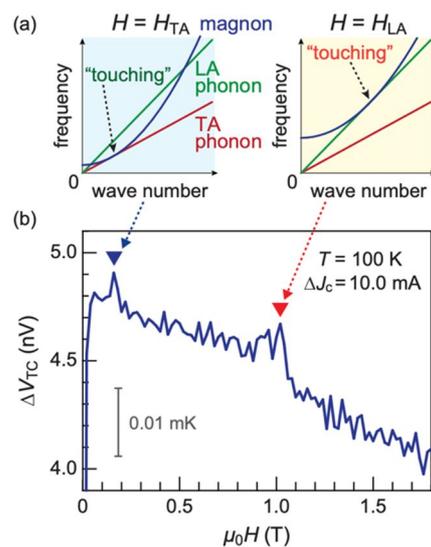


図 2. マグノンフォノン結合によるスピンペルチェ信号の増大

(3). 常磁性絶縁体中における長距離スピン輸送現象の解明

これまでスピン流を通し難いと考えられていた常磁性絶縁体が、スピン流を長いスケールで輸送できることを解明した。実験では Pt/GGG/Pt 接合を用い、一方の Pt から GGG にスピン流を注入し、GGG 中で輸送されたスピン角運動量をもう一方の Pt の逆スピンホール効果を用いて測定した。測定の結果 100K 以下の低温、5T 程度の高磁場のもとで、明瞭な逆スピンホー

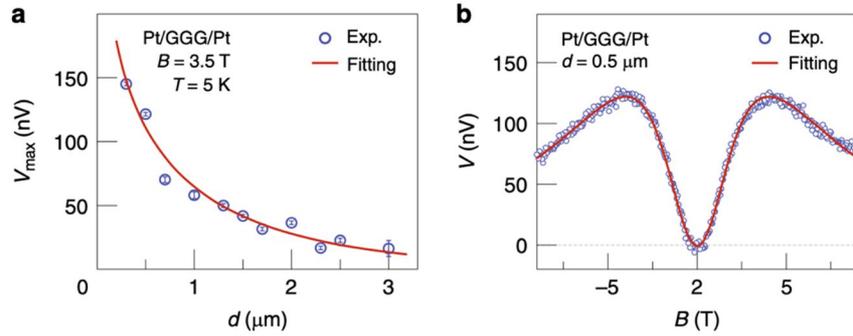


図 3. Pt/GGG/Pt 接合における非局所スピン輸送測定の実験結果

ル電圧が観測された（図 3b）。また、観測されたスピン輸送の長さスケールを解明するため、Pt 端子間の距離 d を系統的に変化させながら逆スピンホール電圧を測定したところ、マイクロメートルのオーダーでスピンの輸送されていることが明らかになった（図 3a）。この値は、スピン流研究の典型材料であるフェリ磁性絶縁体 YIG と同程度のスピン輸送距離であり、常磁性絶縁体がこれまでの予想よりも非常に長い距離スピン流を運ぶことを実証する結果である。さらに、常磁性絶縁体中のスピン拡散を説明する理論モデルを提唱し、実験結果が良く再現されることを示した[図 2 の青丸（実験値）と赤線（計算値）を比較されたい]。

以上の成果により、長さスケールの観点からスピン流熱流変換現象の物理が切り開かれた。スピン流と熱流の相互変換には、スピン流と熱流それぞれの長さスケールが重要であることが見出され、マグノンフォノン混成波を利用することで更なる変換効率の向上に繋がることを解明した。さらに、従来スピントロニクス材料として用いられてきた強磁性体、フェリ磁性体、反強磁性体のみならず、常磁性体すらもスピン流を長距離輸送可能であることが実証され、材料選択の自由度が広がった。これらの結果は、スピン流熱流変換現象の熱電変換効率向上やデバイス設計の指針へと繋がる成果であり、スピントロニクスデバイスとしての応用への広がりが期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 H. Arisawa, S. Daimon, Y. Oikawa, Y.-J. Seo, K. Harii, K. Oyanagi, and E. Saitoh	4. 巻 114
2. 論文標題 Magnetomechanical sensing based on delta-E effect in Y3Fe5O12 micro bridge	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 122042 1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5090272	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Oyanagi Koichi, Takahashi Saburo, Cornelissen Ludo J., Shan Juan, Daimon Shunsuke, Kikkawa Takashi, Bauer Gerrit E. W., van Wees Bart J., Saitoh Eiji	4. 巻 10
2. 論文標題 Spin transport in insulators without exchange stiffness	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-019-12749-7	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Yahiro Reimei, Kikkawa Takashi, Ramos Rafael, Oyanagi Koichi, Hioki Tomosato, Daimon Shunsuke, Saitoh Eiji	4. 巻 101
2. 論文標題 Magnon polarons in the spin Peltier effect	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 024407 1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.024407	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 2件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 大門俊介、内田健一、吉川貴史、井口亮、Rafael Ramos、廣部大地、齊藤英治
2. 発表標題 スピン流-熱流変換現象
3. 学会等名 ナノマグネティクス専門研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大門俊介、内田健一、吉川貴史、井口亮、齊藤英治
2. 発表標題 スピントロニクス熱電技術
3. 学会等名 スピントロニクス専門研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----