

令和 6 年 5 月 30 日現在

機関番号：11201

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K14519

研究課題名（和文）磁性ナノ粒子におけるスピン輸送現象

研究課題名（英文）Spin transport in magnetic nanoparticles

研究代表者

大柳 洸一（Oyanagi, Koichi）

岩手大学・理工学部・助教

研究者番号：50881223

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：スピントロニクス分野では電子の持つ電荷の自由度に加えスピンの自由度をも利用した電子デバイスの開発が行われている。本研究では、近年、優れたスピン流輸送特性を示す常磁性絶縁体を用いたスピントロニクスを発展させることを目的に、(1) 常磁性絶縁体/金属界面において生じる熱的スピン流生成現象のメカニズム解明、(2) 強いゆらぎを示す磁性ナノ粒子を用いた新たなスピン流現象の実証に向けた磁性ナノ粒子の作製を行った。

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、磁性ナノ粒子を用いたスピントロニクス材料を開発することである。特に、磁性ナノ粒子が示す超常磁性は、優れたスピン流輸送特性を示す常磁性絶縁体の利点を室温・低磁場で利用できる可能性を秘めている。本研究によって、常磁性絶縁体で生じる熱的スピン流生成現象の原理が解明されたこと、および、自己組織化によって磁性ナノ粒子の薄膜上の試料を得るための条件が明らかになったこと、で超常磁性や常磁性を示すスピントロニクス材料の設計指針を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：In the field of spintronics, development of electronic devices utilizing the spin degree of freedom as well as the charge degree of freedom of electrons is underway. Recently, spintronics with paramagnetic insulators is getting much attention because they are found to show excellent spin current transport properties. To this end, we have (1) clarified the mechanism of thermal spin current generation at the paramagnetic insulator/metal interface and (2) fabricated magnetic nanoparticles to demonstrate a new spin current phenomenon using magnetic nanoparticles that show strong fluctuations.

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 常磁性絶縁体

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスでは、電子の持つ電荷の自由度に加え、スピンの自由度をも利用することで従来のエレクトロニクスでは成し得なかった機能性を実現する。その鍵となるのはスピン角運動量の流れであるスピン流である。スピン流はジュール熱の影響を受けないため省エネルギー情報演算への応用が期待されるが、そのためには長距離に渡ってスピン流を運べるキャリアを見つける必要がある。最も代表的なキャリアである伝導電子スピンの場合、スピン流はせいぜい数百ナノメートル程度で消失してしまう。一方で強磁性絶縁体では、強磁性秩序のゆらぎを利用することで数十マイクロメートルに渡ってスピン流を運ぶことが出来るため、強磁性絶縁体を用いたスピントロニクスが精力的に研究されている。

このような状況の中、強磁性秩序を欠いた常磁性の絶縁体が、強磁性体より高効率にスピン流を運ぶことが明らかになった [1]。この発見は、これまでのスピントロニクスの常識を覆し、常磁性絶縁体に立脚した新たな研究分野「常磁性スピントロニクス」を拓くものである。しかし、この常磁性体中でスピン流が流れるのはこれまで、低温 (5 K 以下)・高磁場 (3 T 以上) という極限環境下に限られており、応用のためには室温・低磁場環境下においてスピン流を担う物質群の開拓が急務である。

2. 研究の目的

そこで本研究の目的は、室温・低磁場環境下においてスピン流を担う新たな常磁性スピントロニクス材料を開発することである。そのために、本研究では磁性ナノ粒子に着目した。磁性ナノ粒子の持つ磁気モーメントは強いゆらぎを示し、室温・低磁場環境下において低温・高磁場環境下の常磁性体と類似した「超常磁性」と呼ばれる特異な磁気特性を示す。本研究ではこの超常磁性をスピントロニクスで利用することを目指す。

3. 研究の方法

本研究では、(1) 金属/常磁性絶縁体接合におけるスピンゼーバック効果の理論モデルの構築、(2) 磁性ナノ粒子の合成と薄膜化条件の検討、(3) 希土類置換による磁性ナノ粒子の磁化増大の試み、を行った。

(1) の研究では、常磁性金属と常磁性絶縁体の二層接合構造 (図 1) の界面において生じるスピン流を線形応答理論に基づいて定式化を行った。得られたモデルの妥当性を検討するために、熱的スピン流生成現象であるスピンゼーバック効果に着目し、スピン流の駆動源として温度差を与えた場合の磁場・温度応答を詳細に調べた。

さらに、典型的な系である常磁性金属 Pt/常磁性絶縁体 $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG) における物性値を用いて具体的な計算を行い、同じ系における実験で得られた結果と比較した。

(2) の研究では、磁性を有する鉄酸化物ナノ粒子を溶液化学法を用いて合成し、それらが薄膜状に自己組織化する条件を探索した。鉄酸化物 Fe_3O_4 は合成条件を操作することで粒子成長を制御が可能で、その粒子径、形状、粒度分布などだけでなく、表面修飾によって化学的性質を制御可能である。ここでは一般的な球状ではなく、一辺が 10 nm 程度の立方体形状の Fe_3O_4 を合成し、粒子が一様に密に整列する条件を探索し、将来のスピントロニクス研究に用いることができる薄膜試料の作製を目指した。

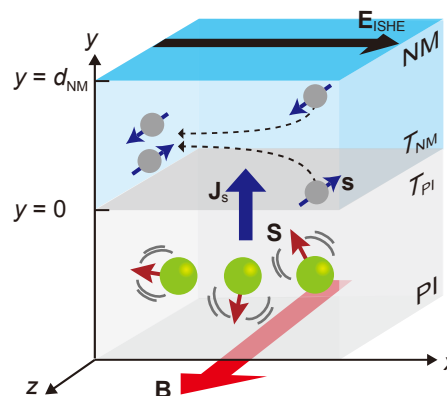


図 1: 常磁性絶縁体/常磁性金属の二層接合

4. 研究成果

本研究で得られた主な結果の詳細について以下に述べる。

(1) 金属/常磁性絶縁体接合におけるスピントラッキング効果の原理解明

はじめに常磁性金属/常磁性絶縁体界面におけるスピントラッキングを線形応答理論に基づき定式化し、以下の式を得た。

$$j_s = 2j_s^0 \left(\frac{\hbar\omega_B - \mu_{NM}}{k_B T_{NM}} \right) S B_S \left(\frac{\hbar\omega_B - \mu_{PI}}{k_B T_{PI}} \right) \times [n_B(\hbar\omega_B - \mu_{PI}, T_{PI}) - n_B(\hbar\omega_B - \mu_{NM}, T_{NM})],$$

ここで、 j_s^0 は規格化のための定数、 S は常磁性絶縁体中の磁性イオンが持つ局在スピンのスピンの数、 B_S はブリルアン関数、 n_B はボーズ分布関数、 \hbar は換算プランク定数、 ω_B はラーモア周波数、 k_B はボルツマン定数、 μ_{NM} と μ_{PI} は常磁性金属 (NM) と常磁性絶縁体 (PI) 中での化学ポテンシャル、 T_{NM} と T_{PI} は常磁性金属と常磁性絶縁体のスピンの有効温度をそれぞれ示している。

この式からわかる重要な点は、界面のスピントラッキングは、(i)常磁性絶縁体の局在スピンの大きさに比例する、(ii) 局在スピンの温度・磁場依存性にスケール (常磁性スピンのブリルアン関数に比例) する、(iii) 金属側の伝導電子のスピンの非平衡分布関数と常磁性絶縁体側の局在スピンの非平衡分布関数の差で記述できる、ことである。特に (iii) はこの後、具体的に計算を行うスピントラッキング効果に関してのみならず、この定式化の結果が常磁性金属/常磁性絶縁体界面でのスピントラッキング一般の現象を説明し得ることを示しており、実際にこれまで先行研究で得られてきたスピントラッキング注入・検出実験 [1] やスピントラッキング抵抗効果 [2] の振る舞いを定量的に説明できることから常磁性スピントロニクスにおいてエッセンシャルな式であると言える。

続いて、分布関数の非平衡を誘起するために界面に温度差を印加した場合、つまりスピントラッキング効果によって生じる界面のスピントラッキングを式 (1) を用いて計算し、実験によって得られた結果と比較した。モデル物質として、常磁性スピントラッキング効果のプロトタイプとして知られる白金 (Pt) と常磁性絶縁体 $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG) の接合系を用いた。図 2 に常磁性スピントラッキング効果によって生じる外部磁場・温度に対する応答を示す。本モデルの計算によって各温度における常磁性スピントラッキング効果の磁場依存性がよく再現されていることがわかる。一方、起電力の最大値の温度依存性については実験パラメータに強く依存するため定性的な一致にとどまった。本モデルが実験で得られた磁場依存性をよく再現することから、低温・高磁場で観測された信号の抑制の起源が磁場印加によって生じるゼーマン効果と熱揺らぎの競合で生じることがわかった。以上の結果より常磁性絶縁体において生じるスピントラッキング効果の原理が明らかとなったことで今後の物質選択の指針を得ることができた。

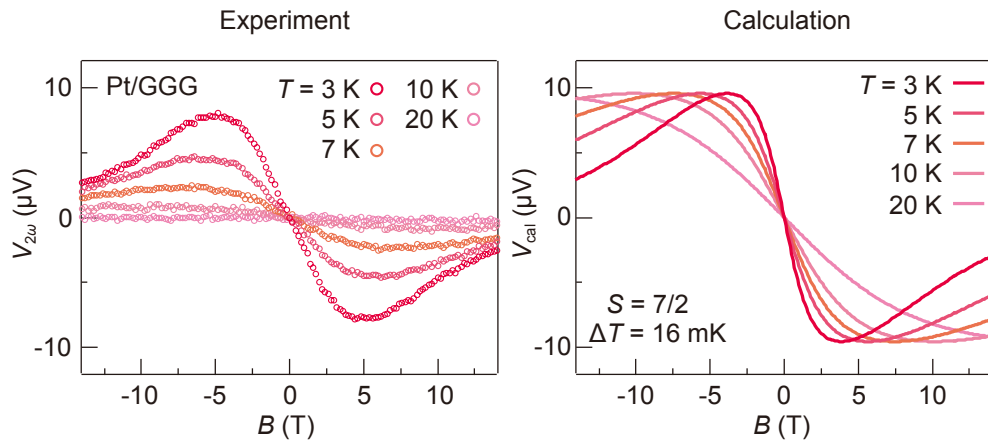


図 2: Pt/GGG における常磁性スピントラッキング効果の磁場依存性。

左図に実験、右図にモデル計算の結果をそれぞれ示す。

(2) 磁性ナノ粒子の合成と薄膜化条件の検討

磁性ナノ粒子を用いたスピントロニクス研究を行うために、立方体状の酸化鉄ナノ粒子の作製と自己組織化を利用してそれらの薄膜化を試みた。

酸化鉄ナノ粒子は、所属研究室で確立している鉄前駆体であるオレイン酸鉄を表面活性剤の存在下で熱分解する方法により作製した。図 3(a)に作製した酸化鉄ナノ粒子の透過型電子顕微鏡像を示す。一片がおよそ 15nm 程度の立方体状の酸化鉄ナノ粒子が一様に得られていることがわかる。

続いて、自己組織化を利用して得られた立方体状の酸化鉄ナノ粒子を用いた薄膜試料を作製した。自己組織化は、酸化鉄ナノ粒子を溶かした有機溶媒にシリコン基板を浸し、表面張力によって基板上に生じた気相-液相界面での粒子整列によって行う。本研究では 1. シリコン基板の角度、2. 粒子濃度、3. 有機溶媒の極性に着目し、自己組織化条件の最適化を行なった。その結果、図 3(b)に示すような、酸化鉄ナノ粒子が一様に基板上に配列する条件を確立することに成功した。条件出しを行なった結果、最も重要な要因は有機溶媒の極性であり、極性の小さいヘキサンを溶媒として用いた試料がもっとも一様に自己組織化を示した。これは熱分解時に使用した表面活性剤であるオレイン酸が酸化鉄ナノ粒子の表面に付着することで酸化鉄ナノ粒子表面の極性が小さくなり、極性の小さなヘキサン中での分散性が向上したためだと解釈できる。今後は、より大面積に一様な自己組織化膜を Pt 薄膜上に成長させるための条件最適化を行い、Pt と酸化鉄ナノ粒子の界面におけるスピンの交換などが生じないかを実験的に検証し、超常磁性状態を利用したスピントロニクス現象の観測を目指す。

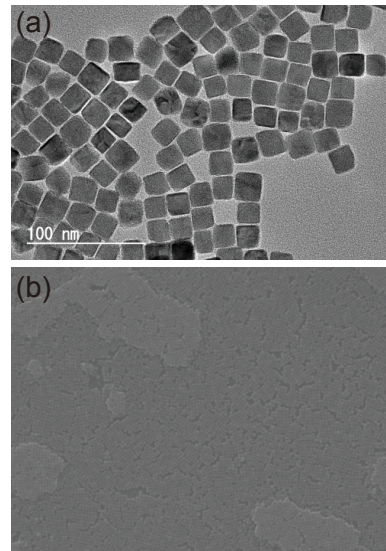


図 3: (a) 酸化鉄ナノ粒子の TEM 像, (b) 自己組織化後の SEM 像

<引用文献>

- [1] K. Oyanagi, S. Takahashi, L. J. Cornelissen, J. Shan, S. Daimon, T. Kikkawa, G. E. W. Bauer, B. J. van Wees, and E. Saitoh, Nat. Commun. **10**, 4740 (2019).
- [2] K. Oyanagi, J. M. Gomez-Perez, X.-P. Zhang, T. Kikkawa, Y. Chen, E. Sagasta, A. Chuvilin, L. E. Hueso, V. N. Golovach, F. S. Bergeret, F. Casanoba, and E. Saitoh, Phys. Rev. B **104**, 134428 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Nagasawa Ren, Oyanagi Koichi, Hirai Takamasa, Modak Rajkumar, Kobayashi Satoru, Uchida Ken-ichi	4. 巻 121
2. 論文標題 Anomalous Ettingshausen effect in iron-carbon alloys	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 062401 ~ 062401
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0103248	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 Kikkawa Takashi, Oyanagi Koichi, Hioki Tomosato, Ishida Masahiko, Qiu Zhiyong, Ramos Rafael, Hashimoto Yusuke, Saitoh Eiji	4. 巻 6
2. 論文標題 Composition-tunable magnon-polaron anomalies in spin Seebeck effects in epitaxial BixY3-xFe5012 films	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 104402~104402
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevMaterials.6.104402	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 該当する
1. 著者名 Oyanagi Koichi, Takahashi Saburo, Kikkawa Takashi, Saitoh Eiji	4. 巻 107
2. 論文標題 Mechanism of paramagnetic spin Seebeck effect	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 014423~014423
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.107.014423	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 Daimon Shunsuke, Tsunekawa Kakeru, Kawakami Shinji, Kikkawa Takashi, Ramos Rafael, Oyanagi Koichi, Ohtsuki Tomi, Saitoh Eiji	4. 巻 13
2. 論文標題 Deciphering quantum fingerprints in electric conductance	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-022-30767-w	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 Koichi Oyanagi, Juan M. Gomez-Perez, Xian-Peng Zhang, Takashi Kikkawa, Yao Chen, Edurne Sagasta, Andrey Chuvilin, Luis E. Hueso, Vitaly N. Golovach, F. Sebastian Bergeret, Felix Casanova, and Eiji Saitoh	4. 巻 104
2. 論文標題 Paramagnetic spin Hall magnetoresistance	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134428 1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.134428	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 該当する

1. 著者名 Modak Rajkumar, Hirai Takamasa, Sakuraba Yuya, Mitani Seiji, Oyanagi Koichi, Yamazaki Takumi, Seki Takeshi, Uchida Ken ichi	4. 巻 -
2. 論文標題 High Throughput Optimization of Magnetoresistance Materials Based on Lock In Thermography	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Advanced Physics Research	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/apxr.202400021	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 -

〔学会発表〕 計1件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 Kenta Takamori, Oyoichi Oyanagi, Takumi Imamura, Ren Nagasawa, Krishnan Mahalingam, Takamasa Hirai, Satoru Kobayashi, Ken-ichi Uchida
2. 発表標題 Transverse magneto-thermoelectric conversion in sintered Co ₂ MnGa slab
3. 学会等名 The 70th JSAP Spring Meeting 2023
4. 発表年 2023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
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------