

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 12 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2014

課題番号：25707029

研究課題名(和文) スピン・格子複合ダイナミクスに基づくスピン流物性の開拓

研究課題名(英文) Development of spin-current physics based on spin-lattice hybrid dynamics

研究代表者

内田 健一 (Ken-ichi, Uchida)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：50633541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、音波によるスピン流生成現象「音響スピンポンプ効果」に関する系統的な研究を行うことで、スピン・格子ダイナミクス相互作用の物理を開拓した。音響スピンポンプ効果とスピンゼーベック効果を定量的に分離できる新しい測定手法を提案・実証し、音波誘起スピン流の純粋測定及び定量評価に成功した。音響スピンポンプ効果の測定に用いた素子において、スピンゼーベック効果の温度・磁場依存性も詳細に検証し、熱流や音波によるスピン流生成機構を包括的に理解するための重要な指針を得た。

研究成果の概要(英文)：The acoustic spin pumping refers to the generation of spin currents by sound waves. In this research, we investigated the physics of the interaction between spin and lattice dynamics by measuring the acoustic spin pumping systematically. Here, we proposed and demonstrated novel methods for the pure detection and quantitative evaluation of the sound-wave-driven spin currents, which enable the separation of the acoustic spin pumping from the spin Seebeck effect. We also explored the temperature and magnetic field dependences of the spin Seebeck effect in the devices used for measuring the acoustic spin pumping in detail, and found important clues to a comprehensive understanding of the mechanisms for generating spin currents by heat currents and sound waves.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピン流 音波 フォノン 逆スピンホール効果 スピンゼーベック効果 磁性体

### 1. 研究開始当初の背景

固体中の電子が有するスピン角運動量の自由度を積極的に利用する「スピントロニクス」が次世代電子技術の有力候補として注目を集めている。従来のエレクトロニクスが電流の制御に基づいて体系化されたように、スピントロニクスの発展にはスピン角運動量の流れである「スピン流」の生成・検出・制御技術の拡充が必須である。スピン流は量子情報輸送やエネルギー変換技術としての利用の可能性が指摘されており、新しいスピン流生成技術の開発が世界的規模で行われている。

電流は、電磁波、熱、光、振動等、様々な入力によって生成することができ、これらを駆逐することにより近代のエレクトロニクス技術は支えられてきた。同様に、スピントロニクスの発展には、電流のように様々な入力によるスピン流生成法の開拓・確立が必須である。しかし、スピン流は電流やマイクロ波を利用した特殊な環境下でしか生成できないのが現状であった。

このような状況の中、2008年に著者らは熱流によるスピン流生成「スピンゼーベック効果」の観測に世界で初めて成功した。著者らは、スピンゼーベック効果に関する一連の研究により強磁性体/常磁性体接合におけるスピン流生成の一般則を見出しており、2011年にはこの一般則を応用することで音波からスピン流を生成する現象「音響スピンポンプ効果」を発見した。この発見により、固体中の音波物性や格子ダイナミクス効果を取り込んだ新しいスピントロニクスへの扉が開いた。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、スピントロニクスと音波物性とを融合することで、スピン-格子ダイナミクス相互作用に基づくスピン流物性の学理体系を構築することである。音響スピンポンプ効果の系統的な測定や物理の解明を行うためには、音波によるスピン流生成効率を定量評価するための実験技術の確立が必要であり、これを本研究の第一目標に定めた。さらに挑戦目標として、ナノ構造や音響不安定性効果を用いた音波-スピン流変換の実現を設定した。

音響スピンポンプ効果とスピンゼーベック効果は、それぞれ音波・熱流という異なる入力によって誘起される現象であるが、それらの発現機構は密接に関連している。実際、現在報告されている音響スピンポンプ効果の線形応答理論は、スピンゼーベック効果と全く同じ枠組みで展開されている。そこで本研究では、音響スピンポンプ効果のみならずスピンゼーベック効果に関する系統的な実験研究も行い、強磁性体/常磁性体接合において発現する各種スピン流生成現象の体系的な理解を目指した。

### 3. 研究の方法

図1(a)、(b)に音響スピンポンプ効果、スピンゼーベック効果の模式図をそれぞれ示した。音響スピンポンプ効果の測定には、鏡面研磨したイットリウム鉄ガーネット(YIG)単結晶基板上にPt薄膜をRFスパッタリング法により成膜したものを試料として用いた。YIGはガーネット構造を有するフェリ磁性のモット絶縁体であり、磁気損失や結晶磁気異方性が非常に小さいという特徴を有する。この試料を圧電体であるチタン酸ジルコン酸鉛(PZT)の焼結体上に固定した。PZTの上下電極にAC電圧を印加することで素子が厚み振動し、YIG基板に縦波音波を与えることができる。YIG中の音波によって、Pt/YIG界面においてマグノン-電子間の非平衡性が誘起されれば、Pt層にスピン流が誘起される。このスピン流は、YIG基板の磁化がy方向に向いていれば、Pt層の逆スピンホール効果によってx方向のDC起電力に変換される(図1(a))。この起電力を測定することで、音響スピンポンプ効果の観測が可能になる。

一方で、同様の試料系において、強磁性体/常磁性体接合界面の法線方向に温度勾配を付けると、(縦型)スピンゼーベック効果が発現する(図1(b))。スピンゼーベック効果の測定にも、主にPt/YIG接合を用いた。

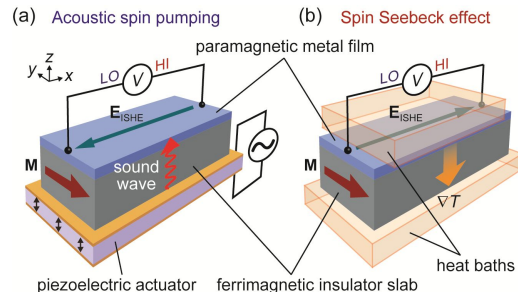


図1 音響スピンポンプ効果(a)とスピンゼーベック効果(b)の模式図。

### 4. 研究成果

#### (1) 音響スピンポンプ効果の純粋測定技術の確立

従来の音響スピンポンプ効果の測定手法では、音波生成源として用いている圧電素子の共振時の発熱により、スピンゼーベック効果に由来する信号が音波誘起スピン流に由来する信号に重畳してしまっていた。本研究では、試料の温度勾配分布を制御しながら音波誘起スピン流を観測する新しい測定法を提案し、Pt/YIG/PZT接合を用いてそれを実証した。

図2(a)の挿入図に本実験セットアップを模式的に示した。Pt/YIG/PZT試料を2つの熱浴で挟み、上部と下部の熱浴温度をそれぞれヘリウム循環型冷凍機とペルチェ素子で制御できる構造になっている。ペルチェ素子に電流を印加することで、Pt/YIG接合の上下面の温度差  $T$  を制御することができる。図

2 (a)はPt 層に発生した逆スピンホール起電力の  $T$  依存性である。スピンゼーベック効果により、 $T$  に比例した起電力成分が観測されている。ここで重要なことは、圧電素子の共振周波数である 3.6 MHz の AC 電圧を PZT に印加した場合、スピンゼーベック効果が消失する  $T = 0$  の状況においても、有限の起電力信号が観測されたことである。本実験では、圧電振動強度依存性(図 2 (b,c))や磁場依存性(図 2 (d))を測定することにより、この信号が音響スピンポンプ効果に由来するものであることを確かめた。本結果により、Pt/YIG/PZT 系を用いた従来の実験では音波誘起スピン流の大部分はスピンゼーベック効果によって相殺されており、実際はこれまで考えられていた値よりも 1 桁近く大きい  $\sim 3 \times 10^{-12}$  J/m<sup>2</sup> のスピン流が音波によって生成されていることが明らかになった。

今回確立した実験手法により、熱効果による寄与を排除した音響スピンポンプ効果の純粋測定を定常状態において実現し、音波誘起スピン流の定量評価が可能になった。本成果は、Solid State Communications 誌の“ Spin Mechanics ” 特集号に掲載された。

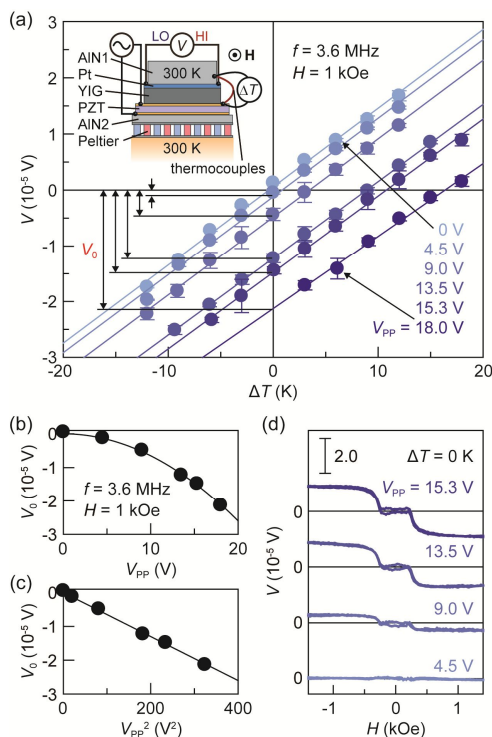


図 2 温度勾配分布制御による音響スピンポンプ効果の純粋測定。

## (2) 音響スピンポンプ効果の時間分解測定

音波誘起スピン流と温度勾配誘起スピン流が異なる時間スケールで発現することを見出した。圧電素子の発熱によって生成されるスピン流は実験系の熱容量により決定される秒スケールの時定数で定常状態に達するが、音響スピンポンプ効果によって生成されるスピン流は遥かに早い時間スケールで

生じていることを示した。以上の結果により、過渡状態・定常状態の双方において、音響スピンポンプ効果とスピンゼーベック効果の寄与を定量分離・評価する実験手法が確立された。本研究で構築したマイクロ・ナノ秒スケールにおける音響スピンポンプ効果の測定系を用いて、今後スピン流の高速応答物性を系統的に測定することで、この現象の微視的メカニズムの解明に繋がると考えている。

## (3) Pt/YIG 接合におけるスピン流生成現象の統合的理解に向けた研究

Pt/YIG 接合を用いてスピンゼーベック効果とマイクロ波誘起スピンポンプを同時測定することで、Pt 層を加熱した場合のスピンゼーベック効果とマイクロ波誘起スピンポンプは逆符号のスピン流を生成していることを明らかにした(J. Phys. D: Appl. Phys. 誌に論文掲載)。

本実験結果をベースに、外部入力によって誘起されたマグノン-電子間の有効温度差とスピン流の符号の関係性に関して詳細な検討を行った。スピンゼーベック効果と音響スピンポンプ効果の発現機構は密接に関連しており、図 1 のセットアップにおいては互いに逆符号のスピン流を誘起することが実験的に確かめられている。Pt/YIG 系で発現する熱・音波・マイクロ波・光による各種スピン流生成現象を統合的に理解するためには、外部入力によって励起されるマグノン-電子間の有効温度差の符号を決定する必要があり、以上の成果はこの課題達成に向けた重要な指針を提供するものである。

## (4) 低温領域におけるスピンゼーベック効果の強磁場応答測定

音響スピンポンプ効果の発見の契機となったのは、2010 年から 2011 年にかけて報告されたスピンゼーベック効果の温度依存性測定である。この実験により、スピンゼーベック効果が低温領域においてピーク構造を伴い大幅に増大することが見出された。安立らは、温度勾配に沿って伝搬する非平衡フォノンによるマグノン励起プロセスの存在を予言し、スピンゼーベック効果の温度依存性の振る舞いを定性的に議論した。しかし、未だ温度依存性の定量的な評価には至っておらず、マグノンやフォノンによる熱的スピン流生成機構の微視的な理解は得られていないのが現状であった。

本研究では、マグノンの自由度を凍結させた強磁場領域でスピンゼーベック効果が抑制される振る舞いを Pt/YIG 系において観測した。強磁場によるスピンゼーベック効果の抑制率の温度依存性・膜厚依存性を系統的に測定することで、熱的スピン流生成に強く寄与するマグノンの周波数帯や長さスケールを特定した (T. Kikkawa, K. Uchida *et al.*, arXiv:1503.05764, 論文審査中)。スピンゼーベック効果の温度依存性は先行研究と同



様に低温領域でピークを示したが、出力スピ  
ン流が最大値を取る温度がYIG層の膜厚に依  
存してシフトするという結果が得られた(図  
3)。このような振る舞いは既存の理論の枠  
組みを超えたものであり、本成果はスピンゼ  
ーベック効果の発現機構や温度依存性の解  
明に大きく貢献するものである。温度勾配に  
伴うマグノン・フォノン伝播及びそれらの相  
互作用の周波数・温度依存性を定量評価す  
るために、今後更なる系統的な実験研究が必須  
であると考えている。

本研究では、界面熱抵抗等の実験誤差を排  
除してスピンゼーベック効果を定量評価す  
る手法も複数確立している(Phys. Rev. X誌、  
J. Appl. Phys.誌に論文掲載)。これらの手  
法は、この現象の温度依存性をさらに検証す  
るための強力なツールになるであろう。

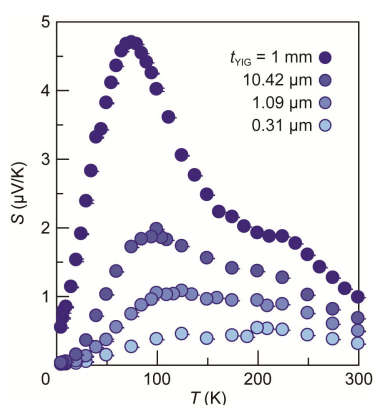


図3 異なる YIG 膜厚を有する Pt/YIG  
接合におけるスピンゼーベック効果の  
温度依存性。

#### (5) スピンゼーベック効果に対する結晶構 造・格子歪みの影響

スピン流生成効率の界面状態依存性を検  
証するために、Pt/YIG 界面の結晶構造を系統  
的に変化させながらスピンゼーベック効果  
の評価を行った(J. Phys. D: Appl. Phys.誌  
に論文掲載)。

磁性絶縁体薄膜に格子歪みを与えること  
で高保磁力・高磁気異方性を付加し、外部磁  
場フリーでのスピンゼーベック熱電変換を  
実現した(AIP Advances 誌に論文掲載)。

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計14件)

Z. Qiu, D. Hou, K. Uchida, E. Saitoh,  
Influence of interface condition on  
spin-Seebeck effects, Journal of  
Physics D: Applied Physics, 査読有,  
48, 2015, 164013,  
doi:10.1088/0022-3727/48/16/164013

A. Sola, M. Kuepferling, V. Basso, M.  
Pasquale, T. Kikkawa, K. Uchida, E.  
Saitoh, Evaluation of thermal  
gradients in longitudinal spin  
Seebeck effect measurements, Journal

of Applied Physics, 査読有, 117, 2015,  
17C510, doi: 10.1063/1.4916762

T. Niizeki, T. Kikkawa, K. Uchida, M.  
Oka, K. Z. Suzuki, H. Yanagihara, E.  
Kita, E. Saitoh, Observation of  
longitudinal spin-Seebeck effect in  
cobalt-ferrite epitaxial thin films,  
AIP Advances, 査読有, 5, 2015, 053603,  
doi: 10.1063/1.4916978

K. Uchida, H. Adachi, D. Kikuchi, S.  
Ito, Z. Qiu, S. Maekawa, E. Saitoh,  
Generation of spin currents by surface  
plasmon resonance, Nature  
Communications, 査読有, 6, 2015, 5910,  
doi:10.1038/ncomms6910

M. Schreier, G. E. W. Bauer, V.  
Vasyuchka, J. Flipse, K. Uchida, 他  
11名, Sign of inverse spin Hall  
voltages generated by ferromagnetic  
resonance and temperature gradients  
in yttrium iron garnet platinum  
bilayers, Journal of Physics D:  
Applied Physics, 査読有, 48, 2015,  
025001,  
doi:10.1088/0022-3727/48/2/025001

K. Uchida, T. Kikkawa, A. Miura, J.  
Shiomi, E. Saitoh, Quantitative  
temperature dependence of  
longitudinal spin Seebeck effect at  
high temperatures, Physical Review X,  
査読有, 4, 2014, 041023,  
doi:10.1103/PhysRevX.4.041023

K. Uchida, Z. Qiu, T. Kikkawa, E.  
Saitoh, Pure detection of the acoustic  
spin pumping in Pt/YIG/PZT structures,  
Solid State Communications (Special  
Issue: Spin Mechanics), 査読有, 198,  
2014, 26-29,  
doi:10.1016/j.ssc.2013.10.012

K. Uchida, M. Ishida, T. Kikkawa, A.  
Kirihara, T. Murakami, E. Saitoh,  
Longitudinal spin Seebeck effect:  
from fundamentals to applications,  
Journal of Physics: Condensed Matter,  
査読有, 26, 2014, 343202,  
doi:10.1088/0953-8984/26/34/343202

[学会発表](計8件)

K. Uchida, Spin-current phenomena at  
high magnetic fields and high  
temperatures (招待講演), APS March  
Meeting 2015, 2015/3/5, San Antonio  
(USA)

内田健一, 熱流・光によって駆動される  
スピンダイナミクスとスピン流生成  
(招待講演), 日本物理学会 2014 年秋季  
大会, 2014/9/9, 中部大学 (愛知県春日  
井市)。

内田健一, スピンゼーベック効果のデ  
バイス応用への展望 熱電変換・セン

サー応用に向けて (招待講演), 日本磁気学会 第 197 回研究会「高感度磁気センサの研究と製品」, 2014/7/11, 中央大学 (東京都千代田区).

K. Uchida, Experimental progress on spin Seebeck effect (招待講演), 2nd International Workshop on Spin Mechanics, 2014/6/24, 東北大学 (宮城県仙台市青葉区).

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

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 (Ken-ichi Uchida)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号: 50633541

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし