

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 9 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2009～2011

課題番号：21244058

研究課題名（和文） スピンゼーベック効果と熱流-スピン相互利用の系統的研究

研究課題名（英文） Systematic study on spin-Seebeck effect and interaction between heat currents and spins

研究代表者

齊藤 英治 (SAITOH EIJI)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：80338251

研究成果の概要（和文）：実験・理論の両面から熱スピントロニクスに関する系統的研究を行い、温度勾配によるスピン圧生成現象「スピンゼーベック効果」の微視的起源がスピンの非相反性と揺動によって駆動される熱的スピンプンプ効果であることを明らかにした。この新しいスピン流駆動原理を用いることで、絶縁体におけるスピンゼーベック効果や音波注入によるスピン流生成現象の観測に成功した。

研究成果の概要（英文）：Our systematic experimental and theoretical studies on thermo spintronics reveal that the microscopic origin of the spin-Seebeck effect is a “thermal spin pumping” driven by non-reciprocity and fluctuations of spins. By using this novel mechanism to generate spin currents, we successfully observed the spin-Seebeck effect in insulators and sound-wave-driven spin currents.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	18,600,000	5,580,000	24,180,000
2010年度	16,100,000	4,830,000	20,930,000
2011年度	2,100,000	630,000	2,730,000
年度			
年度			
総計	36,800,000	11,040,000	47,840,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：スピンゼーベック効果、スピントロニクス、スピン流、熱電効果

1. 研究開始当初の背景

エレクトロニクスは、電流と電圧の制御を目的として体系化された。一方、次世代のエレクトロニクスの候補であるスピントロニクスにおいては、「スピン流」（電子スピンの流れ）と「スピン圧」（非平衡スピン流の駆動力）の制御が必須であり、これには全く新しい物理概念・現象の開拓と理解が必要となった。

電圧を生成させる方法は、電磁気的方法

（電磁誘導）、熱的方法（ゼーベック効果）、光学的方法（光起電力）の3つがある。一方で、スピン圧の発生方法は、電磁気的方法（スピン注入・スピンプンプ）及び光学的方法（円偏光励起）の2つが発見されていたものの、熱的な方法は全く知られていなかった。このような状況の中、世界中でスピン圧の熱的生成効果の探索が盛んに行われた。我々は、逆スピンホール効果を高効率スピン検出器として利用することで、温度勾配によるスピン

圧生成—スピンゼーベック効果—の観測に世界で初めて成功した(Nature (2008))。この発見により、熱効果を取り込んだスピントロニクス：熱スピントロニクスへの扉が開いた。

2. 研究の目的

本研究は、スピンゼーベック効果を体系化することで、新しい熱-スピン相互作用の物理を開拓するものである。スピンゼーベック効果について、電子構造の系統性を念頭においた広範囲な物質系・環境での系統的实验を行うことで、熱効果を取り込んだスピントロニクスの物理の体系的理解を得ることを目的としている。

3. 研究の方法

(1) スピンゼーベック効果の物質依存性データの収集

スピンゼーベック効果の正確な議論のためには、温度勾配によって生成されたスピン圧の定量手段を洗練化する必要がある。本研究では、スピンゼーベック電圧の検出方法として、逆スピンホール効果に基づくスピン検出手法を利用した(図1)。検出されるスピンゼーベック電圧は、検出器との界面の情報を含んでおり、これを除くことでスピン圧の生成効率を異なる物質間で定量的に比較することができる。この手法を用いて、遷移金属合金を足がかりに、電子相関効果の効いたスピンゼーベック効果が期待できる磁性酸化物に対象物質を広げた。

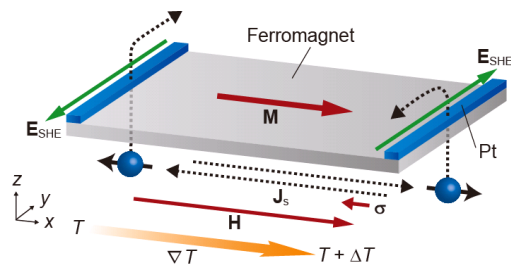


図1 逆スピンホール効果を用いたスピンゼーベック効果の検出原理。

(2) スピンゼーベック効果の温度・磁場・形状依存性の解明

逆スピンホール効果を用いてスピンゼーベック効果が生成するスピン圧の磁場依存性、温度依存性を測定した。本測定は、低温マイクロプローピングシステムを用いて行った。これらの測定と同時に、電気抵抗、電荷ゼーベック効果、熱伝導度の測定を行い、スピンゼーベック効果の現象論中のパラメ

ータを決定した。

また、スピンゼーベック効果の試料形状依存性を検証することで、温度勾配によって生成されたスピン圧の空間分布を特徴付ける長さスケールの定量を行った。

(3) 電子構造論に基づいたスピンゼーベック効果の定量的体系化

上記の実験によってスピンゼーベック効果を体系的に整理することで、スピンゼーベック効果の電子論的考察が可能になる。本研究では、散乱理論と線形応答理論を用いてスピンゼーベック効果の定式化を行った。

(4) スピンペルチェ効果の探索

高温分解能・空間分解能を有するサーモグラフィを用いて、スピン流伝送によって誘起される温度差生成現象の観測を行った。

4. 研究成果

本研究の主要な成果は、以下の5点に集約される。

(1) 絶縁体におけるスピンゼーベック効果の発見

本研究では、Pt薄膜中の逆スピンホール効果を用いた測定により、ガーネット型フェリ磁性絶縁体 $\text{La}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ($x=0, 1$) 中のスピンゼーベック効果の観測に初めて成功し、この現象が強磁性金属のみならず磁性絶縁体においても発現することを実証した (K. Uchida, E. Saitoh *et al.*, Nature Materials (2010))。また、一様な温度勾配によって誘起されたスピン圧が高温側、低温側ではそれぞれ逆符号となること(図2)、及び数ミリメートルにも及ぶ特性長に支配されていることを実験的に示した。この特性長は従来のスピン流物理を支配していたスピン拡散長(数ナノ~数マイクロメートル)とは明らかに異なるものである。本研究では、様々な温度領域において絶縁体スピンゼーベック効果の空間分布測定を行うことで、この新しい長さスケールの定量を行った。また、温度依存性測定により、絶縁体スピンゼーベック効果による電圧信号が低温領域において劇的に増大することを発見した。この起電力増大の起源は、以下で述べる“フォノン媒介効果”に由来するものであることを明らかにした。

(2) スピンゼーベック効果の定式化と微視的起源の解明

散乱理論と線形応答理論を用いてスピンゼーベック効果を定式化し、この現象の微視的起源が“磁性体中のマグノン有効温度と金属中の電子有効温度の差”によって駆動され

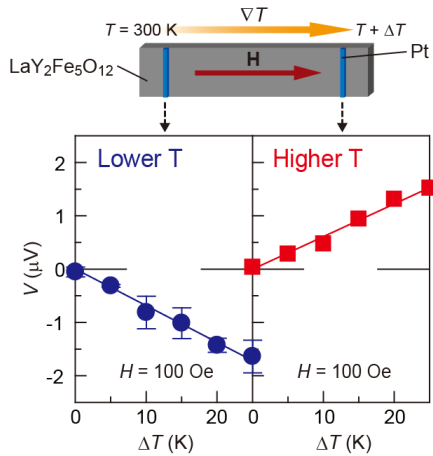


図2 磁性絶縁体 $\text{LaY}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ におけるスピントロニクス現象や熱電効果とは全く異なるスピンの駆動原理である。

る熱的スピンプンプ効果であることを明らかにした。磁性絶縁体 $\text{La}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 系におけるスピン有効温度差はマグノンの非平衡長距離伝播によって生成されることを見出し、上記理論を用いることで実験結果は定量的に再現された。スピン有効温度差による熱的スピンプンプ効果はスピンの非相反性と揺動散逸定理による制約によって発現するものであり、従来の伝導電子伝送に基づくスピントロニクス現象や熱電効果とは全く異なるスピンの駆動原理である。

(3) 音響スピンプンプ効果の発見

スピントロニクス現象の新しい発見メカニズム“フォノン媒介効果”を実験・理論の両面から実証した (K. Uchida, E. Saitoh *et al.*, Nature Materials (2011))。

本実験では、図 3(b)に模式的に示したような $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Pt}$ 二層膜ワイヤーを絶縁体基板上に成膜し、基板に様な温度勾配を付けた。従来の試料系 (図 3(a)) とは異なり、本試料では温度勾配に沿った方向のキャリアはフォノンに限定されている。ゆえに、この系においてスピントロニクス効果が発現すれば、フォノンを介したスピン圧生成プロセスが存在することの決定的な証拠になる。本実験では、逆スピントロニクス効果を用いてスピントロニクス効果を電気的に検出するために、図 3(b)の試料において Pt 層の両端に発生した起電力を測定した。図 3(b)の試料において $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{Pt}$ ワイヤーは電気的・磁氣的に完全に孤立しているにもかかわらず、Pt 層に発生した起電力はワイヤーの接合位置に依存して変化し、ワイヤーを基板の高温側に接合した場合、低温側に接合した場合でそれぞれ起電力信号の符号が反転した。この結果は、金属ワイヤー中の電子が“絶縁体基板上の位置を認識している”ということを示している。

本研究では、起電力の温度勾配依存性に加

えて、磁場依存性、ワイヤー接合位置依存性、ワイヤーの物質依存性、基板材質依存性を系統的に検証し、上記のような起電力の異常な振る舞いが、これまでに観測されていたスピントロニクス効果の振る舞いと完全に整合するものであることを明らかにした。また、線形応答理論を用いた理論計算もを行い、このような起電力の起源が絶縁体基板中を伝播するフォノン (によって誘起されたスピン圧) であることを見出した。低周波フォノンは非常に長い伝播距離を有するため、これと磁性体 ($\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$) 中のマグノン-フォノン相互作用が結合することによってスピン圧の長距離性、すなわちスピントロニクス効果が発現する。従来の試料系において観測されたスピントロニクス効果の信号は、 $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ 膜中のフォノン媒介プロセスによって説明できる。

さらに、上述の実験で実証されたマグノン-フォノン相互作用によるスピン流生成プロセスを応用することで、磁性体への音波の直接注入によるスピン流生成「音響スピンプンプ効果」を世界で初めて実証した (K. Uchida, E. Saitoh *et al.*, Nature Materials (2011))。

(4) 焼結体絶縁体磁石におけるスピントロニクス効果の観測

上記の絶縁体におけるスピントロニクス効果の観測実験においては、絶縁体層にはすべて単結晶試料を用いていたが、焼結体の多結晶絶縁体においてもスピントロニクス効果が発現することを明らかにした (K. Uchida, E. Saitoh *et al.*, Appl. Phys. Lett. (2010))。

本実験では、身の回りの様々な製品に利用されている絶縁体磁石である焼結体の多結晶フェライト ($\text{Mn,ZnFe}_2\text{O}_4$) における温度勾配誘起逆スピントロニクス効果の温度差依存性、磁場依存性を測定した。 ($\text{Mn,ZnFe}_2\text{O}_4$) のような安価でありふれた材料においてもスピ

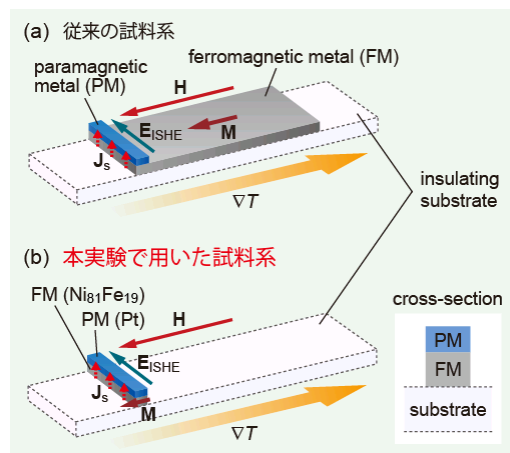


図3 フォノン媒介効果の実証実験に用いた試料系の模式図。

ンゼーバック効果による熱起電力生成を実証できたことは、スピンゼーバック効果が特殊な材料でのみ生じる現象なのではなく、様々な磁性体中に一般的に存在している現象であることを示唆する重要な結果である。

(5) スピン波熱輸送効果の発見

スピンの非相反性を利用することで、表面スピン波スピン流伝送による温度差生成現象（スピンゼーバック効果の逆効果）の観測に成功した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 59 件) すべて査読有

- ① K. Uchida, H. Adachi, T. An, T. Ota, M. Toda, B. Hillebrands, S. Maekawa, and E. Saitoh,
“Long-range spin Seebeck effect and acoustic pumping”
Nature Materials 10 (2011) 737-741
- ② K. Ando, S. Takahashi, J. Ieda, H. Kurebayashi, T. Trypiniotis, C.H.W. Barnes, S. Maekawa, E. Saitoh,
“Electrically tunable spin injector free from the impedance mismatch problem”
Nature Materials 10 (2011) 655 -659
- ③ K. Uchida, J. Xiao, H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, J. Ieda, T. Ota, Y. Kajiwara, H. Umezawa, H. Kawai, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, and E. Saitoh,
“Spin Seebeck insulator”
Nature Materials 9 (2010) 894 - 897

[学会発表] (計 54 件)

- ① E. Saitoh, 2010 年 9 月 19 日 ”(Plenary Talk) Spin current coupled with charge and heat currents” The IEEE 7th International Symposium on Metallic Multilayers (MML2010, Berkeley).
- ② E. Saitoh, 2011 年 12 月 7 日 ”(Plenary Talk) Spin current physics and application” The 7th International Conference on Advanced Materials and Devices (ICAMD2011, Jeju)
- ③ E. Saitoh, 2012 年 3 月 1 日 “Spin pumping and spin Seebeck effect” American Physical Society March Meeting 2012 (Boston).

[図書] (計 1 件)

齊藤英治、内田健一、シーエムシー出版、
「スピンゼーバック効果と絶縁体を用いた熱電発電」 in 熱電変換技術の基礎と応用—クリーンなエネルギー社会をめざして—、
2011、pp. 13-23.

[産業財産権]

○出願状況 (計 8 件)

- ① 名称：熱電変換素子及び熱電変換装置
発明者：内田健一、齊藤英治
権利者：学校法人慶應義塾
種類：特願
番号：2010-195508
出願年月日：2010 年 9 月 1 日
国内外の別：国内
- ② 名称：音波・スピン流変換素子
発明者：齊藤英治、内田健一
権利者：学校法人慶應義塾
種類：特願
番号：2011-052393
出願年月日：2011 年 3 月 10 日
国内外の別：国内
- ③ 名称：位置検出装置
発明者：桐原明宏、石田真彦、中村泰信、
内田健一、齊藤英治
権利者：東北大学・日本電気株式会社
種類：特願
番号：2011-173785
出願年月日：2011 年 8 月 9 日
国内外の別：国内

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://saitoh.imr.tohoku.ac.jp/>

6. 研究組織

- (1) 研究代表者
齊藤英治 (SAITOH EIJI)
東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号：80338251
- (2) 研究分担者
藤川安仁 (FUJIKAWA YASUNORI)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号：70312642

(3)研究分担者

家田 淳一 (IEDA JUNICHI)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・

先端基礎研究センター・研究員

研究者番号：20463797