「プロセスインテグレーションによる機能発現ナノシステムの創製」 平成22年度採択研究代表者

H24 年度 実績報告

## 齊藤 英治

# 東北大学原子分子材料科学高等研究機構·教授 (東北大学金属材料研究所·教授)

スピン流による熱・電気・動力ナノインテグレーションの創出

## §1. 研究実施体制

- (1)「齊藤」グループ(研究機関別)
  - ①研究代表者:齊藤 英治 (東北大学金属材料研究所、教授)
  - ②研究項目
    - ・スピントロニクスとマイクロ機械流体工学の融合
    - ・スピンゼーベック効果及びスピンペルチェ効果による熱電変換素子の開拓
- (2)「高梨」グループ
  - ① 主たる共同研究者:高梨 弘毅 (東北大学金属材料研究所、教授)
  - ②研究項目
    - ・高スピン分極ホイスラー薄膜を用いた高スピン分極用電極作製プロセスの確立
    - ・数十 nm サイズの垂直磁化ナノドットにおける磁気特性評価手法の確立

(3)「前川」グループ

- ①主たる共同研究者:前川 禎通 (日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター、セン ター長)
- ②研究項目
  - ・スピンー回転結合の繰り込み現象をバンド間遷移効果に基づき導出
  - ・表面弾性波の回転モードによるスピン流生成を理論的に予言
  - ・実験グループと共同で力学的に生成される重力磁場の検出方法を検討

(4)「大江」グループ

①主たる共同研究者:大江 純一郎 (東邦大学、講師)
 ②研究項目

・表面スピン波と発熱に関する理論構成

•スピン波端状態に関する数値解析と実験系の設計

### §2. 研究実施内容

1. 流体スピントロニクス効果の開拓と系統的研究

スピントロニクスとマイクロ機械工学の融合により、力学運動と電子スピンの量子力学 的相互作用による発電技術の開拓に向けた研究を行った。

(a) 流体スピントロニクス現象論基礎方程式の導出

昨年度発見した、流体の運動からスピン流・電流が生成される現象の体系化を行った。 まず、流体運動・スピン結合現象を解析するための基本的なマクロモデルを構築した。従 来、流体の運動はナヴィエ・ストークス(NV)方程式、伝導電子のスピン拡散はスピン拡 散方程式(フェール・バレー(FV)方程式)に基づいた理解がされていた。しかし、昨年 度導出・実験検証した量子相対論効果によるスピン流発散-粒子回転の相互作用があれば、 この2つの基礎方程式は角運動量を保存する形で混成するはずである。対称性の考察によ り、この作用はNV方程式に反対称緩和(ニュートン近似を超える緩和)を導入し、FV方程 式に角運動量ソース項を追加することで実現されることがわかった。この指導原理の下、 従来の基礎方程式であったナヴィエ・ストークス方程式を拡張し、スピン拡散方程式を修 正することで流体スピントロニクスの基礎方程式群を得た。

(b) 対称性の良い系でのスケーリング則の導出

上記基礎方程式を、対称性の良い円筒内を流れる流体系について解析解を求めた。その 結果、対数法則の成り立つ乱流領域において、流体の並進運動によってつくられる流体ダ イナミクスがポンプするスピン流の量について流体速度と管の形状パラメータを用いたス ケーリング則が成り立つことを示した。

(c) 円筒内の流体運動によるスピンポンプ効果の定量的測定

本効果の発現には流体 系の高速運動を用いるの が最も適している。流体運 動と電子スピンの対称性 から、この起電力は流体の 運動方向に生じることが 見出せるが、運動する流体 において、粘性によるエネ ルギー散逸・流体による熱



輸送の観点から温度勾配は流れの方向に生じるため、それによる熱起電力も同様に流体の 運動方向に生じてしまう。従って、力学運動によるスピン流を用いた発電手法の開拓には、 熱起電力との分離が必要不可欠である。そこで、以下のような手順で、運動する液体金属 系において発現する起電力を熱起 電力から実験的に分離した。

はじめに、流路内に、流れを阻 害しないように熱電対を等間隔で 挿し込むことで温度の空間分布を 測定した(図1)。測定では中心 の熱電対を他より浅く挿し込むこ とで僅かに流路を変調させた。実 験の結果、温度の空間分布は流路



図2 単調でない温度分布における温度差・起電力同時 測定の結果。

入口から出口に向かっての単調増加型ではなく、出口付近で温度差が反転する領域が存在 することが確かめられた。流れの向きを反転しても同様の空間分布が得られ、熱電対の特 性によるものではないことも確認された。この結果は、流路を変調する事により同じ流れ の中で温度差の反転領域ができることを示している。

得られた知見を基に、流路方向に対し単調でない温度分布を作り出した運動流体に対し、 温度勾配・起電力の同時測定を行った(図2)。本測定では、中心の熱電対を両端の熱電対 より深く挿入し、流路の中心で温度が上昇するよう設計した。実験の結果、設計通り流路 の前後で温度勾配が反転することが確認された。同時に起電力を測定した結果、温度勾配 反転領域であっても起電力信号の符号は変わらず、流れの方向にだけ依存している事が確 認された。更に、流れを反転させても同じ傾向が確認され、本結果が熱電対や起電力測定 端子の特性によるものではないことも確認した。また、別に見積もっておいたゼーベック 係数と本測定で得られた温度差から熱起電力の最大値を見積もると、符号は出力電圧と同 じであるが、絶対値は出力電圧の1/10 倍程度であることが明らかとなった。

以上の結果は、本研究で測定された起電力が温度勾配に依存した起電力(熱起電力)で ないことを示している。これをもとに解析を行ったところ、上記理論のスケーリング則と 非常に良く整合し、観測された電圧が流体運動によってポンプされたスピン流による逆ス ピンホール効果であると結論づけることができる。これにより流体スピンポンプ効果がは じめて確立され、基礎方程式群と基礎パラメータのセットを得ることができた。今後は、 この高効率化へ向けた物質依存性、流体パラメータ依存性を調べてゆく。

2. 回転による磁場生成の直接検出

上記現象の基礎となる回転 - スピン流変換は、回転運動が量子相対論効果により生み出 すスピン回転結合相互作用であり、これはスピンに対する有効磁場(重力磁場)が生成さ れているとみなせる。この磁場のナノスケールでの勾配が、スピン流の一般化力になって いる。しかし、重力磁場そのものの大きさは小さすぎて測定されたことはなかった。本研 究では、核磁気共鳴を用いてこの重力磁場の測定に初めて成功した。 前年度構築した理論によ ると、重力磁場は核子上で は何桁も増強されることが 予想される。原子核位置で の磁場は核磁気共鳴で精密 測定可能であるが、この効 果は非慣性系現象であるの で、試料と磁場測定系は同 じ座標系になければならな い。これは、試料と核磁気



図3 作製した直交コイル回転法 NMR プローブと測定された
 回転誘起<sup>115</sup>InNRM 磁場シフト。

共鳴測定系を正確に同じ速さで回転させる必要があり、従来その方法が知られていなかった。本研究では、直交回転コイル法を拡張することでこれを実現し、50kHzで試料を高速回転させながら核磁気共鳴測定を行うことができた。その結果、回転数に比例した核磁気共鳴磁場シフトが観測され(図3)、このシフトの方向はg因子の符号に依存していることを見出した。この振る舞いは重力磁場の特徴と整合している。電気的に中性な物体の回転によって生成される重力磁場の直接観測にはじめて成功したといえる。

3. スピンゼーベック効果の効率化

スピンゼーベック効果効率向上のために、磁性体・金属多層構造の開発を行った。溶液 中堆積法により磁性体層を作製することによりフェライト多層構造を試作し、出力電流の 増加を観測した。

#### §3. 成果発表等

(3-1) 原著論文発表

- 論文詳細情報
- 1. G. E.W. Bauer, E. Saitoh, and B. J. van Wees, "Spin Caloritronics," Nature materials, vol. 11, 391-399, 2012 (DOI: 10.1038/nmat3301)
- K. Uchida, T. Ota, H. Adachi, J. Xiao, T. Nonaka, Y. Kajiwara, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, and E. Saitoh, "Thermal spin pumping and magnon-phonon-mediated spin-Seebeck effect," Journal of Applied Physics, vol. 111, 103903\_1-103903\_12, 2012 (DOI: 10.1063/1.4716012)
- K. Ando and E. Saitoh, "Spin Pumping Driven by Bistable Exchange Spin Waves," Physics Review Letters, vol. 109, 026602\_1-026602\_5, 2012 (DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.026602)

- D. Hou, Z. Qiu, K. Harii, Y. Kajiwara, K. Uchida, Y. Fujikawa, H. Nakayama, T. Yoshino, T. An, K. Ando, X. Jin1, and E. Saitoh, "Interface induced inverse Spin Hall effect in bismuth/permalloy bilayer," Applied Physics Letters, vol. 101, 042403\_1-042403\_4, 2012 (DOI: 10.1063/1.4738786)
- A. Kirihara, K. Uchida, Y. Kajiwara, M. Ishida, Y. Nakamura, T. Manako, E. Saitoh, and S. Yorozu, "Spin-current-driven thermoelectric coating," Nature materials, vol. 11, 686-689, 2012 (DOI: 10.1038/nmat3360)
- M. Mizuguchi, S. Ohata, K. Uchida, E. Saitoh, K. Takanashi, "Anomalous Nernst effect in an L10-ordered epitaxial FePt thin film," Applied Physics Express, vol. 5, 093002\_1-093002\_3, 2012 (DOI: 10.1143/APEX.5.093002)
- K. Uchida, T. Nonaka, T. Yoshino, T. Kikkawa, D. Kikuchi, and E. Saitoh, "Enhancement of spin-Seebeck voltage by spin-Hall thermopile," Applied Physics Express, vol. 5, 093001\_1-093001\_3, 2012 (DOI: 10.1143/APEX.5.093001)
- R. Iguchi, K. Ando, R. Takahashi, T. An, E. Saitoh, and T. Sato, "Spin Pumping without Three-Magnon Splitting in Polycrystalline Bi1Y2Fe5O12 (Bi:YIG)/Pt Bilayer Structure, "Japanese Journal of Applied Physics, vol. 51, 103004\_1-103004\_5, 2012 (DOI: 10.1143/JJAP.51.103004)
- T. Satoh, Y. Terui, R. Moriya, B. s A. Ivanov, K. Ando, E. Saitoh, T. Shimura, and K. Kuroda, "Directional control of spin wave emission by spatially shaped light," Nature photonics, vol. 6, 662-666, 2012 (DOI: 10.1038/nphoton.2012.218)
- R. Iguchi, K. Ando, T. An, E. Saitoh, and T. Sato, "Evaluation of Nonlinear Effect in High Power Spin Pumping in Polycrystalline Bi-Substituted Yttrium Iron Garnet (Bi:YIG)/Pt Bilayer Structure," IEEE Transaction on Magnetics, vol. 48, 3051-3053, 2012 (DOI: 10.1109/TMAG.2012.2202382)
- R. Iguchi, K. Ando, Z. Qiu, T. An, E. Saitoh, and T. Sato, "Spin pumping by nonreciprocal spin waves under local excitation," Applies Physics Letters, vol. 102, 022406\_1-022406\_3, 2013 (DOI: 10.1063/1.4775685)
- T. Kikkawa, K. Uchida, Y. Shiomi, Z. Qiu, D. Hou, D. Tian, H. Nakayama, X.-F. Jin, and E. Saitoh, "Longitudinal Spin-Seebeck Effect free from Proximity Nernst Effect," Physical Review Letters, vol. 110, 067207\_1-067207\_5, 2013 (DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.067207)
- Y. Ohnuma, H. Adachi, E. Saitoh, and S. Maekawa, "Spin Seebeck effect in antiferromagnets and compensated ferrimagnets," Physics Review B, vol. 87, 014423\_1-014423\_7, 2013 (DOI: 10.1103/PhysRevB.87.014423)
- 14. H. Adachi, K. Uchida, E. Saitoh, and S. Maekawa, "Theory of the spin Seebeck effect", Reports on Progress in Physics, vol. 76, 036501\_1-036501\_20, 2013 (DOI:

10.1088/0034-4885/76/3/036501)

- 15. M. Matsuo, J. Ieda, and S. Maekawa, "Renormalization of spin-rotation coupling", Physical Review B, vol. 87, 115301\_1-115301\_7, 2013 (DOI: 10.1103/PhysRevB.87.115301)
- R. Ramos, T. Kikkawa, K. Uchida, H. Adachi, I. Lucas, M. H. Aguirre, P. Algarabel, L. Morellón, S. Maekawa, E. Saitoh, and M. R. Ibarra, "Observation of the spin Seebeck effect in epitaxial Fe3O4 thin films", Applied Physics Letters, vol. 102, 072413\_1-072413\_5, 2013 (DOI: 10.1063/1.4793486)
- (3-2) 知財出願
- ① 平成 24 年度特許出願件数(国内 2件)
- ② CREST 研究期間累積件数(国内 9件)