

# 熱流に付随したスピントロニクス現象と

# スピンゼーベック効果

内田健一<sup>\*</sup> 太田 岳<sup>\*</sup> 齊藤英治<sup>\*</sup>

# 1. はじめに

Albert Fert, Peter Grünberg 両氏による巨大磁気抵抗(giant magnetoresistance: GMR)効果の発見を契機に誕生した 「スピントロニクス」が近年目覚ましい進展を遂げてい る<sup>(1)-(4)</sup>.スピントロニクス分野では,電子の電荷の自由度 に加えてスピン角運動量の自由度も積極的に利用すること で,電荷のみを用いていた従来のエレクトロニクスでは現れ なかった新しい機能や特性を創出することを目的としてい る.従来のエレクトロニクスが電子の電荷の流れである電流 によって機能していたのに対し,スピントロニクス機能の多 くは電子スピン角運動量の流れである「スピン流」<sup>(5)-(8)</sup>によ って駆動される.

エレクトロニクスが電流と電圧の制御に基づいて体系化されたように、スピントロニクスにおいてはスピン流とスピン E(非平衡スピン流の駆動力:化学ポテンシャルのスピンサ ブバンド間の差( $\mu_1 - \mu_1$ ))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であることが近 年の諸研究によって明らかになった、図1に、非平衡な電流 とスピン流の概念図を示した.電流はランダムなスピンを持 った電子の流れであり、正味としてはスピン偏極していな い、単純に電荷のみが流れている状態である(図1(a)).一 方、同量のアップスピン電子とダウンスピン電子が互いに逆 向きに運動している場合、正味の電荷の流れはゼロとなるが スピン角運動量は流れている状態となる(図1(b)).このよ うな、電流を伴わない純粋なスピン角運動量の流れは特に



図1 (a)電流の概念図.(b)純スピン流の概念図.ス ピンの量子化軸を固定した場合、アップ(ダウン)スピン電子流を $J_{\uparrow}(J_{\downarrow})$ とすると電流 $J_{c}$ 、スピン流 $J_{s}$ はそれぞれ $J_{c}=J_{\uparrow}+J_{\downarrow}, J_{s}=J_{\uparrow}-J_{\downarrow}$ と表される.

「純スピン流」と呼ばれる.純スピン流が有する特徴として は、時間反転対称性が偶であること、物質の磁化の直接制御 が可能であること、量子情報を伝送できることなどが挙げら れる.時間反転対称性が偶であることは、本質的にエネルギ 一散逸の少ない純スピン流伝送の可能性を示唆する.スピン 流およびスピン 圧は、磁気 ランダムアクセスメモリ (MRAM)などの一部のデバイスにおいてはすでに用いられ ているが、従来のデバイスにおけるスピン流は常に電流を伴 っており、上に挙げた純スピン流の特性を活かしきれていな い.よって、新しい純スピン流生成法の開拓は、学術的のみ ならず工学的応用面においても非常に重要な研究課題である

\* 東北大学金属材料研究所(〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1)

1) 東北大学大学院後期博士課程1年;理学研究科物理学専攻 2) 東北大学大学院修士課程2年;理学研究科物理学専攻

3) 教授;理学研究科物理学専攻

\*\* 科学技術振興機構さきがけ Heat-current-induced Spintronic Phenomena and Spin Seebeck Effects; Ken-ichi Uchida\*, Takeru Ota\*, and Eiji Saitoh\*,\*\*(\*Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai. \*\*PRESTO, Japan Science and Technology Agency, Tokyo) Keywords: *spintronics, spin caloritronics, spin current, thermo-spin effect, spin-Seebeck effect, spin-Hall effect* 2010年1月20日受理 といえる.

これまでのスピン流研究は主に電流や磁気ダイナミクス, 光(偏光情報)との相互作用効果に焦点を当てて行われてきた が,最近になって熱とスピントロニクス現象の相互作用にも 注目が集まってきた.本稿では,熱流とスピン流の結合が織 りなす物理現象の基本概念,および著者らが2008年に報告 した熱流によるスピン圧生成現象「スピンゼーベック効 果」<sup>(8)-(11)</sup>の検出実験について概説する.

# 2. スピントロニクスにおける熱効果

スピンと熱の相互作用現象として古くから知られ、現在も 盛んに研究されているもののひとつに磁気熱量効果<sup>(12)</sup>があ る.これは、磁性体に磁場を印加してスピンを揃えてゆくと 磁性体が発熱し、磁場を取り去りスピンの向きをバラバラに すると吸熱するという可逆的な現象であり(図2(a), (b)), 磁性体に磁場を印加した状態と取り除いた状態におけるスピ ン系の自由度の相違に起因したエントロピー変化によって生 じる.スピン系のエントロピーは有限温度におけるスピンの 向きの乱雑さの尺度であり,温度に対して単調増加関数とな る(図2(c)).磁性体に磁場を印加するとスピンは磁場方向 に揃おうとするためエントロピーは減少するが(図2(c)中の プロセス P1),磁場中の低エントロピー状態は無磁場中での 低温状態に相当するため、断熱状態下で磁場を取り除くとス ピンがバラバラになることで結晶格子から熱を奪い、磁性体 の温度が低下する(プロセス $P_2$ ). このような磁気熱量効果 を利用した冷却プロセスは、極低温領域での冷却法のひとつ として知られる断熱消磁法などに用いられている.近年では 室温下でも動作する磁気熱量効果型の冷凍技術も発達してお り,能動的蓄冷器(active magnetic regenerator: AMR)方式 を用いた回転型磁気冷凍機がすでに製品化段階に達している (図2(d)-(g)). このように、スピンと熱の相互作用現象は 身近なところにも存在しており、応用面でも非常に重要な役 割を担っているのである.

一方,本稿で焦点を当てるのは輸送現象,すなわちスピン "流"と熱"流"の相互作用効果である.これを議論するた めに,まずは導体中の電子が運ぶ電流,熱流およびその駆動 力について考えてみよう.電流 $J_c$ と熱流 $J_q$ は,電気化学ポ テンシャルの勾配 $\nabla \mu$ と温度勾配 $\nabla T$ によって駆動され,線 形応答の範囲で現象論的に

$$\begin{pmatrix} \boldsymbol{J}_{c} \\ \boldsymbol{J}_{q} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} L_{11} & L_{12} \\ L_{21} & L_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\nabla \mu/e \\ -\nabla T \end{pmatrix}$$
(1)

と表すことができる(e:電子電荷(<0))<sup>(13)</sup>. 一般に非対角 成分 $L_{12}, L_{21}$ の間にはオンサーガーの相反定理と呼ばれる関 係式が成立する(駆動力が非平衡熱力学で定義される"一般 化力"になるように式(1)右辺を線形変換すると、2つの非 対角成分は等しくなる). オンサーガーの相反定理は、"ある 現象が存在すればその逆効果も存在する"ことを保証してお り、式(1)における非対角成分はそれぞれ温度勾配による 電流生成現象,電気化学ポテンシャル勾配による熱流生成現 象に対応する. すなわち、これらの非対角成分によってゼー



図2 (a),(b)磁気熱量効果の概念図.(c)磁性体にお けるエントロピーの温度依存性の模式図. *AS*, *AT*はそれぞれ等温磁気エントロピー変化,断熱 温度変化と呼ばれる.(d)-(g) AMR 方式を用い た磁気冷凍の模式図.(d)磁気冷凍材料の粒子を 詰めたユニットに永久磁石を用いて外部磁場を 印加(ユニットが発熱),(e)熱交換媒体により片 側に温熱を輸送,(f)磁場を除去(ユニットが吸 熱),(g)熱交換媒体によりもう一端に冷熱を輸 送,という4つのプロセスを繰り返すことによ ってユニットの両端に温度差を生成することが できる.永久磁石かユニットのどちらか一方を 回転させて磁場の変化を繰り返し与える回転型 磁気冷凍機が現在の主流となっている.

ベック効果やペルチェ効果などの熱電効果が生じるのである.

これに対し、スピン流  $J_s$ によって機能するスピントロニ クスの舞台では、アップスピン電子とダウンスピン電子を別  $\diamond o$ キャリアとして記述する<sup>(6)</sup>.この場合の駆動力はスピン 依存電気化学ポテンシャル( $\mu_{\uparrow}, \mu_{\downarrow}$ )の勾配と温度勾配であ り、輸送方程式は

$$\begin{pmatrix} \mathbf{J}_{c} \\ \mathbf{J}_{s} \\ \mathbf{J}_{q} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} & M_{13} \\ M_{21} & M_{22} & M_{23} \\ M_{31} & M_{32} & M_{33} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\nabla (\mu_{\uparrow} + \mu_{\downarrow})/e \\ -\nabla (\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow})/e \\ -\nabla T \end{pmatrix}$$
(2)

と拡張される.  $-\nabla(\mu_{\uparrow} + \mu_{\downarrow})/e$ は式(1)の $-\nabla\mu/e$ に対応 し,  $-\nabla(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow})/e$ はスピントロニクスにおいて初めて登 場したスピン圧 $\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}$ の勾配による駆動力である. 式(2) の非対角成分が有限であればスピン流と熱流は直接結合し, 例えば $M_{23}$ 成分によって温度勾配によるスピン流生成現象 "スピン版のゼーベック効果"が発現し得る. 式(2)におい てもオンサーガーの相反定理が成立するはずであり,各非対 角成分に対応した様々な新しい熱スピン効果が存在すると期

解

待できるが、その物理はほとんど明らかになっていない.

また、スピン流が電流と決定的に異なる点は、電流はベク トル量であるのに対し,スピン流は空間成分(x, y, z)とスピ ン成分(↑,↓)の2つの自由度を有する2階のテンソル量 であるということである. 式(2)ではスピンの量子化軸を 固定し、スピン流をベクトル量として扱ってきたが、例えば 図3のように磁化が異なる方向を向いた2つの強磁性金属 が常磁性金属を隔てて接合された系においては、スピン流が 上記2つの自由度を有することが本質的に重要となり、電 流の場合には発現し得なかった特異な現象が誘起される.こ こで、図3の強磁性金属A,Bの間に温度差を付け、スピン 流がAからBに流れたとしよう.このスピン流のスピン偏 極方向はBの磁化とノンコリニアであるため、スピン流か ら磁化へのスピン角運動量移行(スピントルク<sup>(5)</sup>)によりB 中で磁化の運動が誘起され得る(逆に, BからAに流れるス ピン流によってAの磁化も運動し得る).そして,このスピ ントルクが十分に大きければ、熱流によって磁性体の磁化反 転を誘起できるであろう. Hatami らはこのような磁化のダ イナミクスと熱流の交差効果を、有限要素理論を用いて実際 にモデル化した<sup>(14)</sup>.また、この計算を皮切りに熱流による 磁壁の駆動現象およびその逆効果(磁壁運動による温度差生 成)に関する理論モデルも構築された<sup>(15)</sup>.

この他にも、2005年以降理論・実験の両面から多くの熱 スピン効果に関する研究成果が報告されている。例えば、福 島らは微小金属接合からなる CPP (current perpendicular plane)-GMR 素子を電流磁化反転させた際の *I-R* 曲線の非 対称シフトがペルチェ冷却効果に由来するとした<sup>(16)</sup>. CPP 微小金属接合において実験的に見積もられたペルチェ係数は バルクから予想される値よりも数倍大きくなることが報告さ れている。その起源については現在も議論が交わされている が、この現象を応用すれば熱アシスト磁気記録における効率 的な加熱や再生時の冷却などが可能になると期待されてい る。また、Gravier らは多層構造のナノワイヤーで観測され た熱起電力とペルチェ効果をスピン依存の伝導現象として現



図3 強磁性/常磁性/強磁性金属接合における熱流誘 起スピントルク効果の概念図.温度勾配∇Tによ ってスピン流J。が生成され、このスピン流が誘 起するスピン角運動量移行(スピントルク)によ り、強磁性体の磁化が運動する.

象論的にモデル化しており<sup>(17)</sup>, Tsyplyatyev らは磁性クラ スターを埋め込んだ金属中の熱磁気効果<sup>(18)</sup>をスピン流の観 点から論じている<sup>(19)</sup>. 最近では,スピンネルンスト効果― 熱流と垂直な方向にスピン流が生じる現象―の存在も理論的 に予言されている<sup>(20)</sup>.

# 3. スピンゼーベック効果 一温度勾配によるスピン圧生成一

### (1) ゼーベック効果とスピンゼーベック効果

以上のようにスピン流と熱流の交差効果に注目が集まる 中, 前節で触れたスピン版のゼーベック効果(以下, スピン ゼーベック効果<sup>(8)-(11)</sup>)が実験的に観測された.従来のゼー ベック効果は、温度差を付けた金属や半導体中に温度勾配に 沿った方向の電圧が生成されるという現象であるが (図4(a))<sup>(13)</sup>,これに対しスピンゼーベック効果は、温度差 を付けた強磁性金属中にスピン圧が誘起されるという現象で ある.スピンゼーベック効果の振る舞いを予測するために, まずは温度測定に広く用いられている熱電対と(一様に磁化 した)強磁性金属とのアナロジーから考えてみよう.熱電対 はゼーベック係数が異なる2種の金属で構成される素子で あり,両端の温度差に比例した電圧が出力端子に発生する (図4(b)). ゼーベック係数の値は状態密度などの電子構造 によって決定される.一方, 強磁性金属中には状態密度や散 乱確率が異なる2つのスピン伝導チャンネル(アップスピ ン/ダウンスピン)が内在しており、これらのスピンサブバン ドはそれぞれ異なるゼーベック係数を有する<sup>(21)</sup>. つまり,



図4 (a) ゼーベック効果の模式図. (b) 熱電対の模式 図. (a), (b) では,開回路状態で電流は定常的に ゼロになる. (c) スピンゼーベック効果の模式図. V は電圧,  $\nabla T$  は温度勾配,  $\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}$ はスピン圧 (スピン依存電気化学ポテンシャル $\mu_{\sigma}$  ( $\sigma = \uparrow$ ,  $\downarrow$ )の差)を表す.

強磁性金属は一種のスピン版の熱電対になっていると考える ことができ,ゼーベック係数のスピン依存性によって温度勾 配に沿った方向に有限のスピン流が誘起される可能性がある (図4(c)).温度勾配下の強磁性金属は開回路であるため熱 電流は定常的にゼロになるが,これら2つのスピン伝導チ ャンネルはスピン軌道相互作用によって相互に結合している ためスピン流に対しては開回路にならない.すなわち,温度 勾配下の強磁性金属中に誘起されたスピン流は純スピン流で あり,これは定常的に有限値で流れ続けると考えられる<sup>(10)</sup>.

通常のゼーベック効果において温度勾配によって駆動された熱電流が試料端に電荷蓄積を誘起し、その結果電圧が生じるように、スピンゼーベック効果によって生じた純スピン流は試料中にスピン圧を誘起するであろう。純スピン流が流れるということは、逆向きのスピンを持った電子流がそれぞれ逆向きに流れる状態を意味するので(図1(b)、図4(c))、温度勾配下の強磁性金属の低温側と高温側にはそれぞれ逆符号のスピン圧が生じるはずである。このスピン圧の符号反転が、スピンゼーベック効果の特徴である<sup>(8)-(11)</sup>.

## (2) 逆スピンホール効果を用いたスピンゼーベック効果の 検出原理と実験系

では、温度勾配によって生成されたスピン圧はどうすれば 検出できるのであろうか. 著者らは, 貴金属中の逆スピンホ ール効果と呼ばれる現象を用いてこのスピン圧を電気的に検 出することに成功した(9).スピンホール効果とは、試料に電 流が流れると電子スピンの偏極方向と電流の両方に直交する 方向に純スピン流が誘起されるという現象である (図5(a))<sup>(22)-(35)</sup>.スピンホール効果はスピン軌道相互作用 によりアップスピン電子とダウンスピン電子がそれぞれ逆向 きに曲げられることによって生じ、誘起された純スピン流に よって試料の両端付近にはそれぞれ逆向きのスピンが蓄積 し、スピン圧が生成される. 電流からスピン流への変換効率 はスピンホール角と呼ばれるパラメータによって表される が、これは Pt や Au などスピン軌道相互作用が強い貴金属 中において非常に大きな値をとることが実験的に確かめられ ている<sup>(6)(29)-(31)(33)</sup>.一方, 逆スピンホール効果はスピンホ ール効果の逆過程、すなわち物質中のスピン流が起電力に変 換される現象であり、2006年に複数の研究グループによっ て実験的に初めて観測された(図5(b))<sup>(28)(29)</sup>.スピンホー ル効果と逆スピンホール効果の間には相反性が成立してお り、スピン流から電流への変換効率もスピンホール角 α<sub>SH</sub> で 表される $^{(6)(30)}$ . すなわち,電子スピンの偏極方向を $\sigma$ ,注 入されたスピン流の空間方向を J。とすると、逆スピンホー ル効果によって電場 EISHE が

$$E_{ISHE} = (\alpha_{SH} / \sigma_c) J_s \times \sigma$$
 (3)  
方向に生成される( $\sigma_c$ :電気伝導率).

ここで、スピン圧が生じている強磁性金属に常磁性金属を 接合した系を考えよう.常磁性層を接合することによってス ピン圧は強磁性層から常磁性層に浸入するが、スピン圧の大 きさは常磁性層中のスピン緩和によって指数関数的に減衰 し、スピン拡散長<sup>(36)</sup>と呼ばれる数~数百ナノメートル程度 (a) スピンホール効果



(b) 逆スピンホール効果



図5 (a)スピンホール効果の模式図.(b)逆スピンホ ール効果の模式図.(c)強磁性/常磁性金属接合 の界面近傍におけるスピン圧分布の概念図.常 磁性層がない場合は $\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow} = \delta\mu_{F}^{0}$ の一様分布と なる. $d_{F(N)}$ は強磁性(常磁性)層の厚さ、 $\lambda_{F(N)}$ は スピン拡散長を表す.

の距離で消失する<sup>(6)(37)</sup>. その結果,界面付近にはスピン圧 の勾配が生じ,スピン流が生成される(図5(c)). このスピ ン流は常磁性層の逆スピンホール効果によって起電力に変換 される.すなわち,常磁性層にスピン軌道相互作用が強い物 質を用い,逆スピンホール効果によって発生した起電力を測 定することによって,強磁性金属中のスピン圧を電気的に検 出することができるのである.

図6(a), (b)にスピンゼーベック効果を観測するための試料系の模式図を示した.幅4mm,長さ6mm,厚さ20nmの強磁性金属Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>薄膜の端に,幅0.1mm,長さ4mm,厚さ10nmのワイヤー状のPt薄膜を接合した複合構造となっている.Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>基板上にNi<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>層を高真空電子ビーム蒸着法を用いて成膜した後,Pt層をスパッタリング法により成膜した.Pt層の成膜直前にNi<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>層の表面酸化膜をArイオンエッチングにより削ることで,界面での酸化の影響を除いた.このような試料に外部磁場を図6(a)のx方向に印加し,磁場と平行な方向に一様に温度勾配を付けた.温度勾配でNi<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>層中に生成されたスピン圧によってPt層にスピン流が注入されれば,そのスピン流は逆スピ



 図 6 (a), (b) スピンセーベック効果を観測するための 試料系の模式図((a): Pt 層が低温側の場合, (b): Pt 層が高温側の場合). (c) スピンゼーベッ ク効果の測定原理.

ンホール効果によって Pt 層に沿った方向(y 方向)の起電力 に変換される(図6(c)). ここで、Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>層の低温側,高 温側に生じるスピン圧がそれぞれ逆符号であれば,式(3) の対称性により、Pt層をNi<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>層の低温側に接合した場 合と高温側に接合した場合とで、生じる起電力もそれぞれ逆 符号になると期待される.このような起電力の振る舞いは, スピンゼーベック効果によって誘起された逆スピンホール効 果に特有のものである. なお,図6(c)にはPt層が2本描い てあるが、実際の試料において Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 層上に成膜された Ptは1本のみである. これは Pt 層を2本同時に接合させた 場合に Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 層を通してそれぞれが導通してしまうこと を避けるためであり、実際は図 6(a),(b)に示したように、 試料のPt層が接合されている側を低温側にした場合,高温 側にした場合において, それぞれ Pt の両端に発生した起電 力を測定した.また、以下に示す結果はすべて室温下におい て測定したものである.

### (3) Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 膜におけるスピンゼーベック効果の観測

図7にPt層の両端に生じた起電力の測定結果を示した. Pt層を低温側に接合した場合(図7(a)),高温側に接合した 場合(図7(b))のどちらの測定においても、外部磁場強度を 8 kA/m(>Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>の保磁力)に固定した際の起電力の大き さは試料両端の温度差 $\Delta T$ に比例して増大しており、 $\Delta T$ = 21 Kのときに約5 $\mu$ Vの信号が得られた.起電力の符号は Pt層が低温側,高温側の場合でそれぞれ逆になっているこ とがわかる.また,起電力の磁場依存性を図8(a),(b)に示 したが,起電力信号は磁場方向の反転に対応して符号反転 し、ヒステリシスを描いていることがわかる.これは,観測



図7 (a), (b) Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Pt 系における起電力(V)の温 度差(*ΔT*)依存性((a): Pt 層が低温側の場合, (b): Pt 層が高温側の場合).



図8 (a), (b) Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Pt 系における起電力の磁場 (H) 依存性. (c)-(e) Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Pt 系, Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/ Cu 系, Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 単層膜における起電力の磁場依 存性. Cu 層は高真空電子ビーム蒸着法で成膜 し,形状や膜厚は Pt と同じとした. Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 単 層膜では,温度勾配と直交する方向に生じた起 電力を高温側の端において測定した.

された起電力が磁化(スピン)の向きに依存していることを示 している.以上の起電力の異常な振る舞いは,図6(c)や式 (3)に示されたスピンゼーベック効果に由来する逆スピン ホール効果の対称性と完全に一致するものである.

図 8(d)には、Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>層に接合する常磁性金属層を Pt か ら Cu に置き換えた試料を用いて起電力の磁場依存性を測定 した結果を示した. Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Pt 系の場合(図 8(c))と異なり, Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Cu系では起電力信号は全く観測されなかった.こ れは、スピン軌道相互作用が弱い Cuのスピンホール角は Pt のそれよりもはるかに小さいために、Cu層に注入された スピン流が起電力に変換される効率が低下したためである. また,図8(e)にはPtを接合していないNi<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>単層膜にお ける起電力測定の結果を示したが、磁場依存性を有する起電 力信号はこの場合にも観測されなかった. すなわち, 磁場印 加方向と温度勾配が平行であるので、図6(a),(b)のセット アップではNi<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>層の異常ネルンスト-エッチングスハ ウゼン効果(38)に由来する起電力成分は十分に抑制できてい ることが確かめられたといえる.以上より,Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Pt系 で観測された特徴的な振舞いを示す起電力信号は、純粋にス ピンゼーベック効果によって誘起された逆スピンホール効果 の出力信号であるといえる.

#### (4) 温度勾配誘起スピン圧の空間分布測定

以上の実験結果により、スピンゼーベック効果によって生 じたスピン圧は強磁性金属の両端で逆符号になることが確認 されたが、試料端から離れた領域においてはどのようなスピ ン圧分布になっているのであろうか? スピン圧の空間分布 を調べるために、Pt 層を Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 層の異なる位置に接合し た複数の試料を用いて起電力測定を行った.これらの試料は すべて同時に成膜しており、温度勾配と磁場は Pt 層と直交 する方向に印加した.測定結果を図9に示したが、起電力は 試料端以外でも観測されており、上述の結果と同様に低温 側、高温側では符号が反転した.また、Pt 層を Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 層 の中心に接合した場合には起電力は生じなかった.

Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>層に生じたスピン圧とPt層に誘起された逆スピンホール効果による起電力は比例するため<sup>(11)</sup>,この結果は 温度勾配によって生成されたスピン圧がミリメートルスケールの試料においておよそ図9のような分布になっていることを示している.このようなスピン圧の長距離分布はスピン ゼーベック効果の特徴であるが、これは実は単純な予想とは 異なる結果である.スピン圧の分布は一般にスピン拡散方程 式

$$\nabla^2(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow}) = \frac{1}{\lambda^2} \left( \mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow} \right) \tag{4}$$

に従うと考えられてきたが,式(4)はスピン圧がスピン拡散 長 λ 程度の距離で減衰する指数分布であることを表してい るため,ミリメートルスケールの試料においてほぼ線形に分 布しているスピン圧は式(4)では表現できないのである. それでは,なぜこのような空間分布のスピン圧が生じるので あろうか.ここでは,簡単な熱力学的な考察を行ってみよ う<sup>(10)</sup>.

スピン拡散方程式を導出する際にはスピン依存電気化学ポ テンシャル $\mu_{\sigma}$ に対する関係式 $\nabla \mu_{\sigma} = \nabla (\mu_{\sigma}^{c} + e\phi) = (1/N_{\sigma})$  $\nabla n_{\sigma} + e\nabla \phi$ を用いている( $\mu^{c}$ :化学ポテンシャル, $\phi$ :静電ポ テンシャル, $N_{\sigma}$ :状態密度,電子数密度 $n_{\sigma}$ ,添え字の $\sigma$ は



図 9 Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Pt 系における起電力の Pt 層接合位置依存性.

スピン方向を表す)<sup>(6)</sup>.しかし、この関係式は温度勾配のある系においては以下のように拡張される.化学ポテンシャル $\mu_{\sigma}$ は $n_{\sigma}$ だけでなく温度*T*にも依存するため、線形展開が使える範囲では温度勾配系における $\mu_{\sigma}$ の勾配は

$$\nabla \mu_{\sigma} = \left(\frac{\partial \mu_{\sigma}^{c}}{\partial T}\right)_{n_{\sigma}} \nabla T + \left(\frac{\partial \mu_{\sigma}^{c}}{\partial n_{\sigma}}\right)_{T} \nabla n_{\sigma} + e \nabla \phi \qquad (5)$$

となり、新たに第1項による寄与が生じる.この第1項、 第2項はそれぞれ電子のエントロピー, 蓄積に由来する 項,第3項は電場(-∇φ)による項である.蓄積項のスピン サブバンド間の差は従来のスピン拡散方程式(式(4))に従 うスピン蓄積であるが、この項による寄与は試料端からスピ ン拡散長程度の距離で速やかに減衰するため、温度勾配方向 の試料長さがスピン拡散長よりもはるかに長い場合にはバル ク領域では第1項の寄与のみが残ると考えられる(第3項は スピン依存性がないのでスピン圧には寄与しない). すなわ ち,現象論的には式(5)のエントロピー項が実験的に観測 された温度勾配誘起スピン圧の起源であると考えられる.し かし、この寄与の微視的な理解は未だなされていない. そし て、試料長さをさらに長くした場合にもこのような空間分布 は保たれるのかどうか、すなわち(拡散領域のスピン流に対 するスピン拡散長に相当するような)この現象を支配する長 さスケールが存在するのかどうか、また伝導電子だけでなく 局在スピンによる影響も考慮すべきかどうかなど,理論的側 面については現在も盛んに議論が交わされている.

#### 4. まとめと今後の展望

本稿では,熱流に付随するスピントロニクス現象の基礎概 念をごく簡単に紹介し,強磁性金属における温度勾配誘起ス ピン圧生成現象「スピンゼーベック効果」の検出実験および 研究の現状について述べた.スピンゼーベック効果は最近に なってその存在が認識されたものであり,微視的機構など未

解

解明な部分も多い. 今後の更なる研究により, スピンゼーベ ック効果のより広範な物質群における系統的な測定や微視的 メカニズムの解明を行うことが、物理的・応用的観点から非 常に重要であるといえる.

2009年には強磁性ワイヤーに接合された量子ドットにお いて温度勾配によるスピン圧生成効率が飛躍的に上昇するこ とが理論的に報告されるなど<sup>(39)</sup>,熱流とスピン流の相互作 用効果に対する注目は、日増しに高まっている. 最近では 「スピンカロリトロニクス(Spin Caloritronics)」(14)(40)と呼ば れる熱とスピンの新しい融合研究領域も創出されつつある. 熱を利用したスピン流・スピン圧生成技術が確立されれば, 局所的な加熱によって書き換え・読み出し可能な磁壁駆動型 メモリや廃熱を利用した発スピン・発電技術の実現など、今 後のスピントロニクスデバイスやエネルギーデバイスの開発 に大きな飛躍がもたらされるであろう.

本稿で紹介したスピンゼーベック効果に関する実験は、日 本原子力研究開発機構先端基礎研究センターの前川禎通セン ター長,家田淳一博士,東北大学金属材料研究所の高橋三郎 助教,針井一哉氏,安藤和也助教,理化学研究所の小椎八重 航博士との共同で行われました.また,デルフト工科大学の Gerrit E. W. Bauer 教授, 復旦大学の Jiang Xiao 准教授, 日 本原子力研究開発機構先端基礎研究センターの大江純一郎博 士、安立裕人博士、首都大学東京の多々良源准教授、東京工 業大学の村上修一准教授には多くのご指導、ご助言を頂きま した.この場をお借りして厚く感謝申し上げます.

#### 文 献

- (1) S. A. Wolf, D. D. Awschalom, R. A. Buhrman, J. M. Daughton, S. von Molnar, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova and D. M. Treger: Science, 294 (2001), 1488-1495.
- (2) I. Žutić, J. Fabian and S. D. Sarma: Rev. Mod. Phys., 76 (2004), 323-410.
- (3) S. Maekawa: Concepts in Spin Electronics, Oxford Univ. Press, (2006).
- (4) A. Fert: Rev. Mod. Phys., 80(2008), 1517–1530.
- (5) J. C. Slonczewski: J. Magn. Magn. Mater., 159(1996), L1-L7. (6) S. Takahashi and S. Maekawa: J. Phys. Soc. Jpn., 77(2008), 031009.
- (7) 高梨弘毅:応用物理, 77(2008), 255-263.
- (8) 内田健一, 齊藤英治: 固体物理, 44(2009), 281-291.
- (9) K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa and E. Saitoh: Nature, 455(2008), 778-781.
- (10) K. Uchida, S. Takahashi, J. Ieda, K. Harii, K. Ikeda, W. Koshibae, S. Maekawa and E. Saitoh: J. Appl. Phys., 105 (2009), 07C908.
- (11) K. Uchida, T. Ota, K. Harii, S. Takahashi, S. Maekawa, Y. Fujikawa and E. Saitoh: Solid State Commun., 150(2010), 524-528.
- (12) 和田裕文: 熱測定, 33(2006), 98-103.
- (13) S. Maekawa, T. Tohyama, S. E. Barnes, S. Ishihara, W. Koshibae and G. Khaliullin: Physics of Transition Metal Oxides, Springer, (2004), 323-331.
- (14) M. Hatami, G. E. W. Bauer, Q. F. Zhang and P. J. Kelly: Phys. Rev. Lett., 99(2007), 066603.
- (15) A. A. Kovalev and Y. Tserkovnyak: Phys. Rev. B, 80(2009), 100408(R).

- (16) A. Fukushima, H. Kubota, A. Yamamoto, Y. Suzuki and S. Yuasa: IEEE Trans. Magn., 41 (2005), 2571-2573.
- (17) L. Gravier, S. Serrano-Guisan, F. Reuse and J. P. Ansermet: Phys. Rev. B, 73 (2006), 024419.
- (18) S. Serrano-Guisan, G. di Domenicantonio, M. Abid, J. P. Abid, M. Hillenkamp, L. Gravier and J. P. Ansermet: Nature Mater., 5(2006), 730-734.
- (19) O. Tsyplyatyev, O. Kashuba and V. I. Fal'ko: Phys. Rev. B, 74 (2006), 132403.
- (20) S. G. Cheng, Y. Xing, Q. F. Sun and X. C. Xie: Phys. Rev. B, 78 (2008), 045302.
- (21) M. C. Cadeville and J. Roussel: J. Phys. F, 1(1971), 686-710.
- (22) M. I. Dyakonov and V. I. Perel: Phys. Lett. A, 35(1971), 459-460.
- (23) J. E. Hirsch: Phys. Rev. Lett., 83(1999), 1834-1837.
- (24) S. Murakami, N. Nagaosa and S. C. Zhang: Science, 301 (2003), 1348-1351.
- (25) J. Sinova, D. Culcer, Q. Niu, N. A. Sinitsyn, T. Jungwirth and A. H. MacDonald: Phys. Rev. Lett., **92**(2004), 126603.
- (26) Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard and D. D. Awschalom: Science, 306(2004), 1910-1913.
- (27) J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova and T. Jungwirth: Phys. Rev. Lett., 94(2005), 047204.
- (28) E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima and G. Tatara: Appl. Phys. Lett., 88(2006), 182509.
- (29) S. O. Valenzuela and M. Tinkham: Nature, 442(2006), 176-179.
- (30) T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi and S. Maekawa: Phys. Rev. Lett., 98(2007), 156601.
- (31) T. Seki, Y. Hasegawa, S. Mitani, S. Takahashi, H. Imamura, S. Maekawa, J. Nitta and K. Takanashi: Nature Mater., 7 (2008), 125-129.
- (32) K. Ando, Y. Kajiwara, S. Takahashi, S. Maekawa, K. Takemoto, M. Takatsu and E. Saitoh: Phys. Rev. B, 78 (2008), 014413.
- (33) K. Ando, S. Takahashi, K. Harii, K. Sasage, J. Ieda, S. Maekawa and E. Saitoh: Phys. Rev. Lett., 101 (2008), 036601.
- (34) A. Takeuchi and G. Tatara: J. Phys. Soc. Jpn., 77(2008), 074701.
- (35) G.-Y. Guo, S. Maekawa and N. Nagaosa: Phys. Rev. Lett., 102 (2009), 036401.
- (36) J. Bass and W. P. Pratt, Jr.: J. Phys.: Condens. Matter, 19 (2007). 183201.
- (37) T. Valet and A. Fert: Phys. Rev. B, 48(1993), 7099-7113.
- (38) L. Berger: Phys. Rev. B, 5 (1972), 1862-1870.
- (39) Y. Dubi and M. Di Ventra: Phys. Rev. B, 79(2009), 081302 (R).
- (40) G. E. W. Bauer, A. H. MacDonald and S. Maekawa: Spin Caloritronics, Special Issue of Solid State Communications, Elsevier. (2010).

#### \*\*\*\*\* 内田健-

2009年9月 慶應義塾大学大学院理工学研究科修士課程修了

2009年10月 東北大学大学院理学研究科後期博士課程入学,現在に至る 専門分野:スピントロニクス

◎スピン流と熱流の交差物性現象(主にスピンゼーベック効果)に関する研究 に従事

\*\*\*\*\*



内田健一

齊藤英治