

# スピン流・熱流相互変換とスピントロニクスの展望

物質・材料研究機構 内田 健一

## 1 概要

電子が有する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新しい電子技術「スピントロニクス」が、基礎物理・工学応用の両面から盛んに研究されている。電子は電荷  $-e$  とスピン  $\hbar/2$  を持つ素粒子であるが、現在のエレクトロニクスは電子のこの二つの自由度のうち電荷のみを利用しており、スピン角運動量の自由度は殆ど利用されてこなかった。その最大の理由は、スピン情報は固体中ではスピン拡散長と呼ばれるマイクロメートル以下のスケールで消失してしまうことにある。しかし、現代のナノテクノロジーの進展により、スピンの自由度が顕在化するサブミクロンスケールの人工構造を自在に設計・作製することが可能になり、スピントロニクスの要素技術の開拓が急速に進展した。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「スピン流」の生成・検出・制御技術の拡充が必須であり、世界的規模で新しいスピン流物性の開拓が行われている。

近年、強磁性体と常磁性体の接合系において、スピン流に付随する様々な物理現象が発見・開拓されている。その例として、熱流によるスピン流生成現象「スピンゼーベック効果」が挙げられる。通常の熱電効果は導電体でのみ生じる現象であるが、2010年にはスピンゼーベック効果が磁性絶縁体においても発現することが明らかになった。我々はこれまで、スピンゼーベック効果の原理解明や、将来の熱電変換応用を目指した研究を進めてきた。本テキストでは、まずスピン流の概念や関連するスピントロニクス現象について概説する。その後、スピンゼーベック効果の測定メカニズムについて紹介し、現在の実験研究の状況まで展望する。最後に、スピンゼーベック効果の相反現象であるスピネルチェ効果についても触れる。

## 2 スピン流とスピントロニクス現象

### 2.1 スピン流の定義

本節では、スピン流の定義やその基本的な性質、生成・検出方法について紹介する [1]。

電流  $\mathbf{j}_c$  が電荷保存則を表す電荷密度  $\rho$  の連続方程式

$$\frac{d\rho}{dt} = -\nabla \cdot \mathbf{j}_c \quad (1)$$

によって定義されるように、スピン流  $\mathbf{j}_s$  は角運動量保存則を表す磁化  $\mathbf{M}$  の連続方程式

$$\frac{1}{\gamma} \frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\nabla \cdot \mathbf{j}_s + \mathbf{T} \quad (2)$$

によって定義される ( $t$ : 時間、 $\gamma$ : 磁気回転比)。すなわち、電流が電荷を輸送するのに対し、スピン流は磁気モーメント (スピン角運動量) を輸送するのである。保存流である電流とは異なり、スピン角運動量は格子系等に緩和してしまうため、スピン流はある時間、ある距離で消失する非保存流となる。よって、(2) 式の右辺にはスピン緩和項  $\mathbf{T}$  が付加されている。スピン緩和が十分無視できるほど短い長さスケールにおいては、スピン流を近似的に保存流として扱うことができる。電流はベクトル量であるのに対し、スピン流は空間成分 (スピン流が流れる方向) とスピン偏極成分の二つの自由度があるため 2 階のテンソル量であるが、スピンの量子化軸

を固定するとベクトル量として扱うことができる\*1。スピン流のキャリアはスピン角運動量を持った素粒子や準粒子 (素励起) であり、主に伝導電子やマグノン (スピン波) を経由したスピン流現象が研究されている。以下では、伝導電子及びマグノンによって輸送されるスピン流をそれぞれ、伝導電子スピン流、マグノンスピン流と呼ぶ。

### 伝導電子スピン流

金属や半導体に電場等の外力が印加されるとフェルミ面上の伝導電子によって非平衡電流が駆動されるように、外力によって駆動された伝導電子を介してスピン角運動量を輸送することができる。これが伝導電子スピン流であり、金属や半導体中にもみ存在する。伝導電子スピン流の特徴は、非局所手法 [2-4] や後述のスピンホール効果を用いることで磁気秩序を持たない常磁性体にも注入できるという点であり、これは強磁性体やフェリ磁性体・反強磁性体中にしか存在しないマグノンスピン流との決定的な相違点である。ここで、スピンの量子化軸を  $z$  方向に固定し、アップスピン、ダウンスピンをそれぞれ  $\sigma = \uparrow, \downarrow$  とする。運動量  $\mathbf{k}$ 、スピン  $\sigma$  を有する電子の生成及び消滅演算子をそれぞれ  $c_{\mathbf{k},\sigma}^\dagger, c_{\mathbf{k},\sigma}$  とすると、 $z$  方向のスピンは  $\frac{\hbar}{2}(c_{\mathbf{k},\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\uparrow} - c_{\mathbf{k},\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\downarrow})$  で与えられる。この統計平均を取り、全ての  $\mathbf{k}$  について足し合わせれば、伝導電子スピン流  $\mathbf{j}_s$  を以下のように表すことができる [5]。

$$\mathbf{j}_s = \frac{\hbar}{2} \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} (\langle c_{\mathbf{k},\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\uparrow} \rangle - \langle c_{\mathbf{k},\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\downarrow} \rangle) = \frac{\hbar}{2} (\mathbf{j}_\uparrow - \mathbf{j}_\downarrow) \tag{3}$$

ここで、 $\mathbf{v}_{\mathbf{k}}$  は伝導電子の速度を表す。(3) 式より、アップスピン電子流  $\mathbf{j}_\uparrow = \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k},\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\uparrow} \rangle$  とダウンスピン電子流  $\mathbf{j}_\downarrow = \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k},\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\downarrow} \rangle$  の量に差がある時に、正味の伝導電子スピン流が流れることがわかる。一方で、電流  $\mathbf{j}_c$  は以下のように表される。

$$\mathbf{j}_c = -e \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} (\langle c_{\mathbf{k},\uparrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\uparrow} \rangle + \langle c_{\mathbf{k},\downarrow}^\dagger c_{\mathbf{k},\downarrow} \rangle) = -e(\mathbf{j}_\uparrow + \mathbf{j}_\downarrow) \tag{4}$$

特に、図 1(b) のようにアップスピン電子とダウンスピン電子が互いに同量かつ逆向きに流れている条件 ( $\mathbf{j}_c = \mathbf{0}$  かつ  $\mathbf{j}_s \neq \mathbf{0}$ ) を満たす場合は、伝導電子スピン流は電流を伴わない純スピン流となる。

金属や半導体に注入された伝導電子スピン流とそれに付随する非平衡スピン蓄積の空間分布は、スピン拡散方程式によって求められる。古典拡散領域における電流と伝導電子スピン流は、スピン依存電気化学ポテン

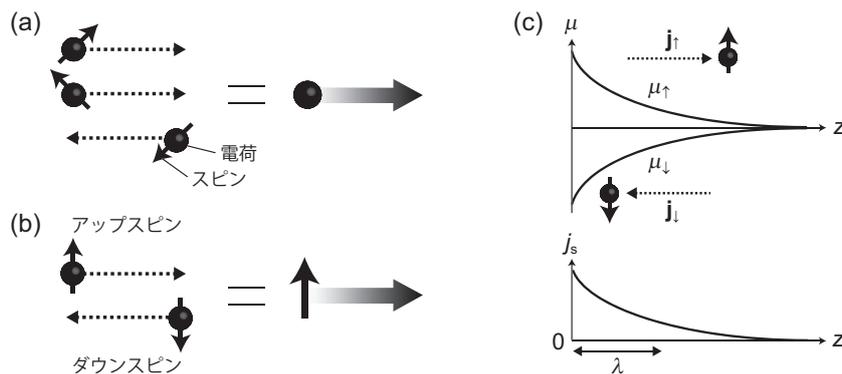


図 1 (a) 電流の模式図。電流は正味の電荷の流れであり、通常伝導電子のスピン方向はランダムであるため全体ではスピンは偏極していない。(b) 伝導電子純スピン流の模式図。アップスピン電子とダウンスピン電子が互いに同量、逆向きに運動していれば、電流を伴わずにスピン角運動量だけが流れている状態となる。(c) スピン依存電気化学ポテンシャル及び拡散スピン流の空間分布の模式図。

\*1 (2) 式の  $\nabla$  演算子はスピン流の空間成分に作用する。

シャル  $\mu_\sigma$  を導入することにより、

$$\mathbf{j}_c = \frac{1}{e} \nabla (\sigma_\uparrow \mu_\uparrow + \sigma_\downarrow \mu_\downarrow) \quad (5)$$

$$\mathbf{j}_s = -\frac{\hbar}{2e^2} \nabla (\sigma_\uparrow \mu_\uparrow - \sigma_\downarrow \mu_\downarrow) \quad (6)$$

と表される\*2。(6)式より、スピン依存電気化学ポテンシャル  $\mu_\uparrow, \mu_\downarrow$  の勾配に差が存在する領域にのみ伝導電子スピン流が生成されることがわかる(図1(c))。定常状態では、電流と伝導電子スピン流はそれぞれ電荷連続方程式

$$\nabla \cdot (\mathbf{j}_\uparrow + \mathbf{j}_\downarrow) = -\frac{1}{e} \nabla \cdot \mathbf{j}_c = 0 \quad (7)$$

とスピン連続方程式

$$\nabla \cdot (\mathbf{j}_\uparrow - \mathbf{j}_\downarrow) = \left(\frac{2}{\hbar}\right) \nabla \cdot \mathbf{j}_s = \frac{\delta n_\uparrow}{\tau_{\uparrow\downarrow}} - \frac{\delta n_\downarrow}{\tau_{\downarrow\uparrow}} \quad (8)$$

を満たす。 $\delta n_{\uparrow(\downarrow)}$  はアップスピン(ダウンスピン)電子数密度の平衡状態における値からの変化分、 $\tau_{\uparrow\downarrow}$  ( $\tau_{\downarrow\uparrow}$ ) はアップスピン(ダウンスピン)の電子がダウンスピン(アップスピン)に反転するまでの緩和時間を表し、(8)式の右辺は伝導電子スピンの緩和を緩和時間近似により現象論的に表現したものである。ここでスピン緩和に対して詳細釣り合いを要請することにより、スピン蓄積  $\mu_\uparrow - \mu_\downarrow$  の分布を記述するスピン拡散方程式 (Valet-Fert 方程式 [6])

$$\nabla^2 (\mu_\uparrow - \mu_\downarrow) = \frac{1}{\lambda^2} (\mu_\uparrow - \mu_\downarrow) \quad (9)$$

が得られる。 $\lambda$  はスピン拡散長であり、拡散定数  $D$  とスピン緩和時間  $\tau_{sf}$  ( $= 2/(1/\tau_{\uparrow\downarrow} + 1/\tau_{\downarrow\uparrow})$ ) によって、 $\lambda = \sqrt{D\tau_{sf}}$  と定義される。古典拡散領域で記述可能な系におけるスピン流及びスピン蓄積の分布は、その系の初期条件、境界条件の下でスピン拡散方程式を解くことによって求められる。スピン拡散方程式は一般解  $\mu_\uparrow - \mu_\downarrow \propto \sinh(z/\lambda)$  ( $z$  方向にスピンが拡散する場合) を有するため、ある場所で生じたスピン蓄積及びそれに付随するスピン流は減衰長  $\lambda$  で指数関数的に減衰することがわかる(図1(c))。

### マグノンスピン流

磁性体中の局在磁気モーメントの集団励起であるマグノンによって運ばれる正味のスピン角運動量の流れがマグノンスピン流である(図2)。マグノンスピン流は伝導電子の自由度が凍結している磁性絶縁体においても存在し、マグノンは電荷を持たないため常に純スピン流となる。運動量  $\mathbf{k}$  を有するマグノンの生成及び消滅演算子をそれぞれ  $b_{\mathbf{k}}^\dagger, b_{\mathbf{k}}$  とすると  $z$  方向のスピンは  $S_0 - b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}}$  で与えられる ( $S_0$ : 絶対零度におけるスピンの大きさ)。伝導電子スピン流の場合と同様に統計平均を取った後、全ての  $\mathbf{k}$  について足し合わせれば、マグノンスピン流  $\mathbf{j}_s^{\text{mag}}$  を以下のように表すことができる [5]。

$$\mathbf{j}_s^{\text{mag}} = \hbar \sum_{\mathbf{k}} \mathbf{v}_{\mathbf{k}} (\langle b_{\mathbf{k}}^\dagger b_{\mathbf{k}} \rangle - \langle b_{-\mathbf{k}}^\dagger b_{-\mathbf{k}} \rangle) \quad (10)$$

つまり、互いに逆方向に流れるマグノン数に非対称性がある時に、正味のマグノンスピン流が生じる。



図2 マグノンスピン流の模式図。局在磁気モーメント  $\mathbf{m}$  の集団運動が運ぶ正味のスピン角運動量がマグノンスピン流である。

\*2 ここでは温度勾配による影響は考えない。温度勾配  $\nabla T$  がある場合はこれらの項に  $\sigma_\sigma S_\sigma (-\nabla T)$  ( $S_\sigma$ : スピン依存ゼーベック係数) が加わる。

マグノンスピン流は局在磁気モーメントの集団運動であるため、その振る舞いは磁気モーメントの運動方程式であるランダウ・リフシッツ・ギルバート (Landau-Lifshitz-Gilbert: LLG) 方程式を解くことによって求められる [1]:

$$\frac{d\mathbf{m}}{dt} = -\gamma\mathbf{m} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha}{M_s}\mathbf{m} \times \frac{d\mathbf{m}}{dt} \quad (11)$$

ここで、 $\mathbf{H}_{\text{eff}}$  は有効磁場であり、外部磁場、交換相互作用、反磁場、及び磁気異方性の和で与えられる。 $\mathbf{m}$  は磁気モーメント方向の単位ベクトル、 $M_s$  は飽和磁化を表す。LLG 方程式の第一項はハイゼンベルグの運動方程式から導出できる。第二項はエネルギーが最低になるように磁化を有効磁場の方向に向かせるために現象論的に導入された緩和項であり、 $\alpha$  はギルバート緩和定数と呼ばれる。LLG 方程式は、磁気モーメントが有効磁場方向を軸に歳差運動しながら (右辺第一項)、有効磁場方向に緩和していく振舞い (右辺第二項) を記述している。ギルバート緩和のため、マグノンスピン流も伝導電子スピン流と同じく非保存流である。しかし、マグノンスピン流の伝播距離は  $\alpha$  が小さいイットリウム鉄ガーネット  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  (YIG) 等の材料においては mm オーダーに達することもあり [7]、伝導電子スピン流に比べて桁違いに長い。マグノンスピン流は、マイクロ波照射によって駆動した磁化ダイナミクス (後述のスピンポンピング) や、温度勾配 (後述のスピンゼーベック効果) によって生成することができる。ボルツマン輸送方程式を用いた温度勾配駆動マグノンスピン流の定式化等も報告されている [8]。重要な点は、後述のスピンミキシングコンダクタンスを介することでマグノンスピン流と伝導電子スピン流は相互に変換可能であることであり、伝導電子スピン流を磁性体に注入することでマグノンスピン流を生成したり、マイクロ波や温度勾配で駆動されたマグノンスピン流を伝導電子スピン流に変換して検出したりすることができる。

## 2.2 スピンホール効果と逆スピンホール効果

電流と伝導電子スピン流は、物質中のスピン軌道相互作用を介することで相互に変換可能である。まずは、常磁性体に電流を流した状況を考えよう。常磁性体中では電子はスピン偏極していないため正味の電荷蓄積 (異常ホール起電力) は生じないが、スピン軌道相互作用によってアップスピン電子とダウンスピン電子はそれぞれ逆向きに曲げられる。その結果として、図 3(a) に示したように電子スピンの偏極方向  $\sigma$  と電流の両方に直交する方向に伝導電子スピン流

$$\mathbf{j}_s \propto \mathbf{j}_c \times \sigma \quad (12)$$

が誘起され、試料の両端にはそれぞれ逆向きのスピン蓄積が生じる。この現象はスピンホール効果と呼ばれ、その概念は 1971 年に Dyakonov らによって提唱された [9]。実験的には、2004 年と 2005 年に Kato ら [10] や Wunderlich ら [11] によって、スピンホール効果によって生じた半導体中のスピン蓄積が磁気光学測定によって確認された。2006 年には非局所手法による金属中のスピンホール効果の電氣的検出実験も報告された [3]。スピン流は時間反転対称性を有するため、スピンホール効果は通常のホール効果とは異なり、試料に磁場を印加しなくても (時間反転対称性を破らなくても) 発現する。スピンホール効果を用いれば強磁性体を使わずに電流を流すだけでスピン流を生成できるため、この現象はスピン流物理において非常に重要な役割を担っている。スピンホール効果で生成したスピン流によって磁性体薄膜の磁化を反転できることも実証されており [12]、基礎物理的な観点のみならず、次世代磁気デバイスの駆動原理の候補としても盛んに研究が進められている。

一方、スピンホール効果の逆過程、すなわち常磁性体中のスピン流が電流 (起電力) に変換される現象は逆スピンホール効果と呼ばれる (図 3(b))。スピン軌道相互作用の特性により、逆スピンホール効果によって生成された電流は

$$\mathbf{j}_c \propto \mathbf{j}_s \times \sigma \quad (13)$$

の対称性を満たす。逆スピンホール効果は 2006 年のほぼ同時期に複数のグループによって、スピンポンピング法 [13] や非局所手法 [3] を用いることで実験的に初めて観測された。スピンホール効果と逆スピンホール効果によるスピン流-電流変換効率はスピンホール角  $\theta_{\text{SH}}$  と呼ばれるパラメータによって表される。逆スピン

ホール効果によって生成された電流の大きさは  $\theta_{\text{SH}}$  を用いると  $j_c = -(2e/\hbar)\theta_{\text{SH}}j_s$  と記述でき、スピンホール角が大きい (スピン軌道相互作用が強い) 物質中の逆スピンホール効果を用いることで、スピン流の高感度な電氣的検出及び定量が可能になる。

### 2.3 スピンポンピング

磁化ダイナミクスを介したスピン流生成現象がスピンポンピングである。LLG 方程式 ((11) 式) によれば、磁気モーメントは歳差運動しながら有効磁場方向に緩和する。LLG 方程式の緩和項はスピンに対する摩擦、すなわち角運動量の散逸に対応している。一方、強磁性体に磁気モーメントの歳差運動の角周波数と等しい角周波数を有するマイクロ波を照射すると、磁気モーメントはマイクロ波のエネルギーと角運動量を吸収する。この現象は強磁性共鳴 (FerroMagnetic Resonance: FMR) と呼ばれ、FMR 状態において磁気モーメントは定常的に大きな歳差運動をする。磁気モーメントが受け取った角運動量は歳差運動の緩和によって散逸するため、FMR 状態では角運動量の強い吸収と散逸が同時に生じていることになる。図 4(a) のような強磁性体/常磁性体接合において強磁性層が FMR 条件を満たしている場合、歳差運動の緩和が伝導電子スピン流として常磁性層に流れ出すことによって生じる。つまり、スピン流が常磁性層に流れ出すことで強磁性層の角運動量の散逸が増大し、ギルバート緩和定数が見かけ上大きくなる (図 4(b))。この現象が (マイクロ波によって誘起された) スピンポンピングであり、2002 年に Tserkovnyak ら [14, 15] によって理論的に提唱されると共に、水上ら [16] によって実験的に観測された。水上らは強磁性層の磁化歳差運動の緩和によるスピン角運動量散逸の一部が伝導電子を介して常磁性層に受け渡され、接合界面にスピン流が流れることで強磁性層からのスピン角運動量散逸が増大すると考えた。一方、Tserkovnyak らは FMR 状態における強磁性体/常磁性体接合界面での電子の散乱問題を解くことでこの現象を理論的に説明した。強磁性体/常磁性体接合系の界面で散乱される電子は、平衡状態では電流やスピン流に寄与しないが、FMR 状態では磁気モーメントが振動磁場 (マイクロ波) から角運動量を受け取ることで平衡状態からずれ、その角運動量が界面交換相互作用を介して通じて常磁性体へ流れ込む。この過程により常磁性層に伝導電子スピン流

$$J_s^{\text{SP}} = \frac{\hbar}{4\pi} \left( g_r^{\uparrow\downarrow} \mathbf{m} \times \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} + g_i^{\uparrow\downarrow} \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial t} \right) \quad (14)$$

が生じる。ここで、 $g_i^{\uparrow\downarrow}$  ( $g_r^{\uparrow\downarrow}$ ) はスピンミキシングコンダクタンス [14, 15] の実部 (虚部) である。(14) 式の右辺第一項は、スピンポンピングによるスピン流生成が磁気モーメントの歳差運動の緩和の反作用であることを反映している (通常は  $g_r^{\uparrow\downarrow} \gg g_i^{\uparrow\downarrow}$  であり、第一項の寄与のみを考える)。スピンミキシングコンダクタンスは強磁性体中の局在磁気モーメントと常磁性体中の電子スピンの界面交換相互作用の強さを表すパラメータであり、スピンポンピングによるスピン流生成効率を定める。スピンポンピングによって常磁性体に注入されたスピン流は、常磁性体のスピン軌道相互作用が強い場合、逆スピンホール効果によって起電力に変換される (図 4(c))。2006 年の逆スピンホール効果の観測実験の一つは、スピンポンピングによって生成されたスピン流を起電力として検出することにより行われた [13]。また、2010 年にはフェリ磁性絶縁体/常磁性金属接合においてスピンポンピングによって生成された逆スピンホール起電力が観測され、スピンミキシングコンダクタンスは絶縁体/金属界面においても有限値を取り得ることが実証された [17]。

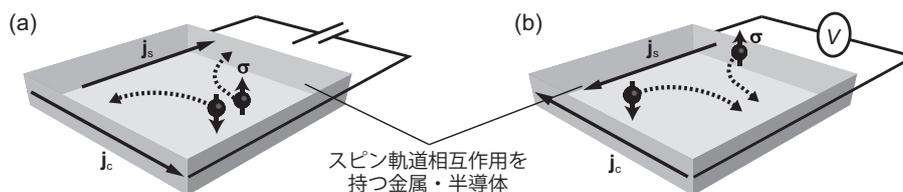


図 3 (a) スピンホール効果 (電流→スピン流変換) の模式図。(b) 逆スピンホール効果 (スピン流→電流変換) の模式図。

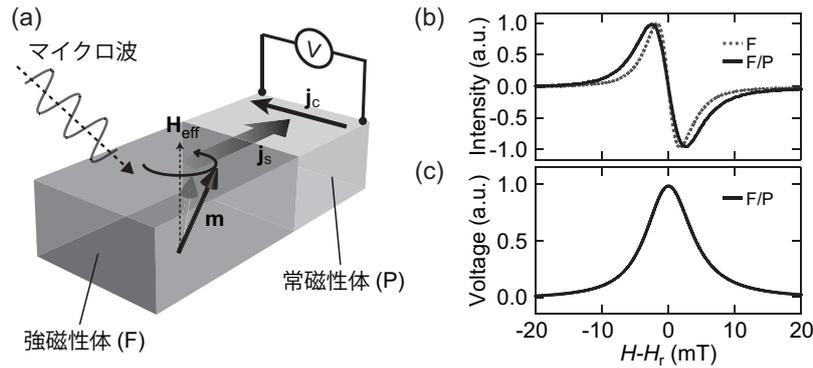


図4 (a) 強磁性体 (F)/常磁性体 (P) 接合におけるマイクロ波誘起スピンプングの模式図。FMR 条件下で生成されたスピンプングが逆スピンプング効果によって電流に変換される。通常は開回路条件で電圧信号として測定する。(b) F 単層薄膜及び F/P 二層薄膜におけるマイクロ波吸収スペクトルの例。(c) F/P 二層薄膜における起電力の磁場依存性。F 層が FMR 条件を満たした際に大きな起電力信号が観測される。 $H$  は外部磁場強度、 $H_r$  は共鳴磁場である。

## 2.4 熱電効果と熱流に付随したスピントロニクス現象

近年、熱(流)の自由度をスピントロニクスに取り入れようとする試みが積極的に行われている。まずは、温度勾配下の金属や半導体における電子輸送について考える。電流  $j_c$  及び熱流  $j_q$  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

$$\begin{pmatrix} j_c \\ j_q \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} L_{11} & L_{12} \\ L_{21} & L_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nabla\mu/e \\ -\nabla T \end{pmatrix} \quad (15)$$

と表すことができる [18,19]。一般に輸送係数行列の非対角成分  $L_{12}$ 、 $L_{21}$  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。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、(15) 式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、電流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が有限であることによりゼーベック効果やペルチェ効果等の熱電効果が生じるのである。(15) 式の輸送係数の各成分は電気伝導率  $\sigma_c$ 、熱伝導率  $\kappa$ 、熱電変換能を表すゼーベック係数  $S$  を用いて  $L_{11} = \sigma_c$ 、 $L_{12} = (1/T)L_{21} = \sigma_c S$ 、 $L_{22} = \kappa$  と表される。

遍歴電子系における熱流と電流の結合を伝導電子スピンプングにまで拡張すると、どのような物理現象が発現するだろうか。強磁性金属中のアップスピン電子とダウンスピン電子はフェルミ面においてそれぞれ異なった状態密度を有するため、電気伝導率や(電子)熱伝導率のみならず、ゼーベック係数もスピン依存性を有する [20]。この場合の駆動力は温度勾配  $\nabla T$  とスピン依存電気化学ポテンシャル  $\nabla\mu_{\uparrow(\downarrow)}$  の勾配であり、輸送方程式は

$$\begin{pmatrix} j_c \\ j_s \\ j_q \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} & M_{13} \\ M_{21} & M_{22} & M_{23} \\ M_{31} & M_{32} & M_{33} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \nabla(\mu_{\uparrow} + \mu_{\downarrow})/e \\ \nabla(\mu_{\uparrow} - \mu_{\downarrow})/e \\ -\nabla T \end{pmatrix} \quad (16)$$

と拡張される。 $\nabla(\mu_{\uparrow} + \mu_{\downarrow})/e$  は (15) 式の  $\nabla\mu/e$  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プングの勾配による駆動力である。(16) 式の非対角成分が有限であれば熱流と伝導電子スピンプングが直接結合し、例えば  $M_{23}$  成分が有限であれば温度勾配による伝導電子スピンプング生成現象が発現する。この現象は、ゼーベック係数のスピン依存性に起因することから、スピン依存ゼーベック効果と呼ばれている [21]\*3。(16) 式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

\*3 スピン依存ゼーベック効果と後述のスピンゼーベック効果は全く別の現象である。スピントロニクス分野では、熱流によって駆動された伝導電子に由来するスピンプング生成現象はスピン依存ゼーベック効果、熱流によって駆動されたマグノンに由来するスピンプング生成現象はスピンゼーベック効果と呼ばれており、明確に区別されている。

新しい熱スピン効果の発現が期待でき、その多くが近年になって実験的に観測された。

熱スピン効果に関する研究の発端は、1987年に報告された Johnson、Silsbee の理論研究にまで遡る [22]。彼らは金属系磁気ヘテロ構造におけるスピン・電荷・熱相互作用に関する非平衡熱力学を構築し、熱流とスピン流の相関効果を研究するための土台を築いた。そして 2005 年以降、スピン流への注目が高まるに連れて、理論・実験の両面から多くの熱スピン効果に関する研究が報告された。例えば、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象論的に定式化しており [23]、Tsypliyat'yev らは磁性クラスターを埋め込んだ金属中の熱磁気効果をスピン流の観点から論じた [24, 25]。Hatami らは強磁性/常磁性/強磁性金属接合における磁化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モデル化した [26]。この計算を皮切りに熱流による磁壁の駆動現象及びその逆効果 (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。2008 年以降、我々のグループによるスピンゼーベック効果の発見を契機に、熱流によるスピン流生成に関する研究が飛躍的に進展した。2010 年に Slachter らは面内スピンバルブ構造における非局所手法を用いて、強磁性金属/常磁性金属界面の温度差によって誘起されたスピン蓄積 (スピン依存ゼーベック効果) を観測することに成功した [21]。また、2011 年には Le Breton らが強磁性金属/酸化物/Si 接合系を用いて、トンネル接合を介した Si への温度勾配誘起スピン注入を実現した [27]。2012 年には Flipse らのナノピラー型スピンバルブ素子を用いた実験によって、スピン依存ゼーベック効果の相反現象であるスピン依存ペルチェ効果も観測された [28]。同グループは類似の素子を用いて、スピン伝導チャンネル間の温度差 (スピン熱蓄積) の観測も報告している [29]。最近では、スピンネルンスト効果 (熱流と直交する方向にスピン流が生じる現象) の観測実験も複数報告されている [30]。しかし、(16) 式で記述される熱流-スピン流変換現象はいずれも履歴電子系でのみ生じる現象であり、次節で述べるスピンゼーベック効果とは起源が異なる。

### 3 スピンゼーベック効果

新しいスピン流物性の開拓が盛んに行われている中、2008 年に我々は磁性体に温度差を付けることによってスピン流が生じる「スピンゼーベック効果」を発見した [31]。伝導電子によって駆動される従来のゼーベック効果は導電体でのみ生じる現象であるため、同様にスピンゼーベック効果も金属や半導体でのみ生じる現象であると信じられていたが、2010 年に我々はスピンゼーベック効果が磁性絶縁体においても発現することを明らかにした [32, 33]。この結果は、スピンゼーベック効果が磁性絶縁体中にも存在するスピン流キャリアであるマグノンによって駆動されていることを示す結果である。

以下に、2010 年に Xiao らによって提案されたスピンゼーベック効果の基本的メカニズムの概略を述べる [34]。磁性絶縁体/金属薄膜接合において絶縁体層に温度勾配を付けた状況を考える。スピンゼーベック効果が発現すれば、磁性絶縁体/金属界面の法線方向にスピン流が生成される (図 5(a))。このスピン流の起源は、磁性絶縁体中のマグノン系と金属薄膜中の伝導電子系との間に誘起される熱的非平衡性である。磁性絶縁体層に温度勾配が付いていない場合は、絶縁体中のマグノン系と金属薄膜中の伝導電子系は熱平衡にあり、等しい有効温度を有している。一方、絶縁体層に温度勾配を付けると、マグノン有効温度と電子有効温度との間に差が生じる。磁性絶縁体中の局在スピンと金属薄膜中の伝導電子スピンはスピンミキシングコンダクタンスを介して結合しているため、それぞれの有効温度に差が生じると絶縁体/金属界面近傍にスピン流が誘起されるのである。界面におけるスピン角運動量の交換プロセスはスピンポンピングの場合と同様であり、スピンゼーベック効果は熱的に駆動されたスピンポンピングと考えることもできる。また最近では、以上のような界面効果だけでなく、磁性絶縁体中のマグノン伝搬の重要性を示す理論モデルも提案されており [8]、実験的にもそれを裏付ける結果が複数報告されている [35-38]。金属薄膜に注入されたスピン流は、逆スピンホール効果によって起電力に変換される。スピン流が流れる方向は磁性絶縁体/金属薄膜界面の法線方向であり、そのスピン偏極方向は磁性絶縁体の磁化方向と平行である。よって、(13) 式に示した逆スピンホール効果の対称性により、絶縁体層の磁化と温度勾配の両方に直交した方向に、金属薄膜中に起電力が生成される (図 5(a))。

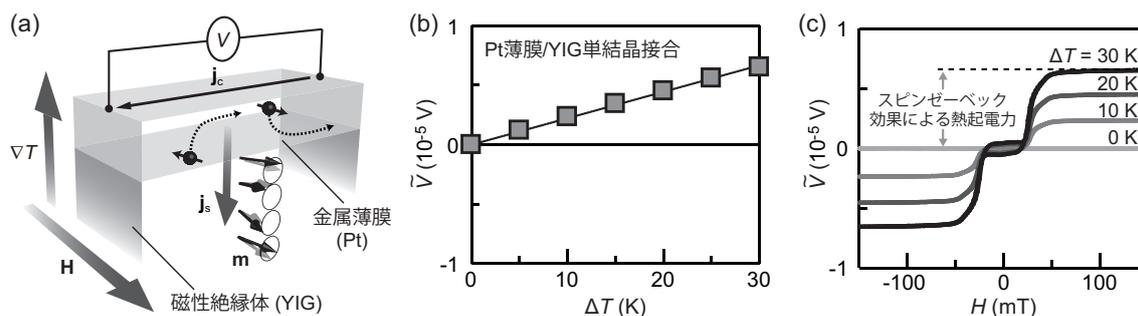


図5 (a) スピンゼーベック効果の模式図。温度勾配  $\nabla T$  と平行にスピン流が生成されるセットアップであるため、縦型配置と呼ばれている。(b) Pt 薄膜/YIG 単結晶接合における起電力の温度差  $\Delta T$  依存性。(c) 起電力の磁場  $H$  依存性。YIG 層の磁化を反転させるとスピンゼーベック効果によって Pt 層に注入されるスピン流の偏極方向が反転するため、熱起電力の符号が反転する。

絶縁体におけるスピンゼーベック効果は、YIG 単結晶と Pt 薄膜の接合系において初めて観測された [32,33]。図 5(b),(c) に実験結果の一例を示しており、YIG 層に付けた温度差に比例して Pt 層にスピン方向に依存した熱起電力が発生していることがわかる。これまでに我々は様々な対照実験を報告しており、ここで観測された熱起電力が純粋にスピンゼーベック効果に由来していることを確かめている (例えば、[39])。その後、世界中で様々な物質を用いたスピンゼーベック効果の実験研究が進められた。最近では、強磁性体やフェリ磁性体だけでなく、常磁性体、反強磁性体、マルチフェロイック物質においてもスピンゼーベック効果が生じることが確認されており、スピンゼーベック効果はあらゆる磁性体中に存在する普遍的な現象であることが明らかになっている [40]。

## 4 スピンペルチェ効果

スピン流-熱流変換の相反性から、スピンゼーベック効果の逆効果、すなわちスピン流から熱流が生成される現象も存在する。これは「スピンペルチェ効果」と呼ばれ、Flipse らによって 2014 年に実験的に観測された [41]。スピンペルチェ効果も図 5(a) に示したような磁性絶縁体/金属接合系において生じ、その発現過程はスピンゼーベック効果の逆プロセスとなる。すなわち、スピンペルチェ効果の発源機構においてもマグノンが重要な役割を担っている。金属層に電流を流すとスピンホール効果によって磁性絶縁体/金属界面を介してスピン流が磁性絶縁体層に注入される。注入されたスピン流のスピン偏極方向が磁性絶縁体の磁化と平行もしくは反平行の場合には、スピントルクによって磁性絶縁体層のマグノン数が増減する (歳差運動の振幅が増大または抑制される)。マグノン数の増加 (減少) はマグノン系の温度が高い (低い) 状態に対応するため、このようなスピン流注入によって誘起された非平衡状態に伴い、磁性絶縁体/金属接合界面近傍の温度が変調される。これがスピンペルチェ効果である。しかし、その検出の難しさから、Flipse らによる初めての観測以降 2 年以上にわたってスピンペルチェ効果に関する実験研究は報告されず、微視的なメカニズムも十分に明らかになっていない。最近我々は、動的サーモグラフィ技術をスピントロニクスに応用することで、スピンペルチェ効果によって誘起された温度変化を熱画像として可視化することに成功し、その特異な空間分布を明らかにした [42]。この手法を用いれば、微細加工プロセスを必要としないシンプルで汎用性の高い試料構造において、スピンペルチェ効果を高感度に計測することが可能になる。このように、スピンペルチェ効果の測定技術はごく最近になって発展してきたところであり、今後の系統的な実験研究によって、スピンペルチェ効果の物理も徐々に明らかになっていくと期待される。

## 5 まとめと今後の展望

本テキストでは、スピン流の基礎概念やスピン流によって誘起される物理現象について紹介した。ここで紹介したものはほんの一部の例に過ぎず、スピントロニクス分野では今でも毎年のように新しい原理・現象が発見されている。これは端的には、これまで(15)式のように熱流と電流のみの $2 \times 2$ の行列で記述されていた電子輸送現象が、スピン流の自由度が加わることで $3 \times 3$ の行列に拡張されて大幅に自由度が増したことで、そして絶縁体中のマグノンという別のキャリアを用いることができるようになったことに起因する。新しい現象そのものが頻りに発見される研究分野は極めて稀有であり、未だ明らかになっていない物理も多く残されていることから、実験・理論両面からの更なる発展が望まれる。

様々なスピン流生成現象の中で、特に我々はスピンゼーベック効果に着目して研究を行ってきた。本テキストでは誌面の都合上、概要しか述べることができなかつたが、最近の系統的な温度・磁場・物質依存性測定等により、スピンゼーベック効果の物理は実験研究からかなり詳細なところまで明らかになってきている(例えば、[37])。しかし理論研究に関しては、様々なモデルが提案されているものの[5, 8, 43–45]、実験結果を定量的に表現するには至っておらず、現在も精力的に研究が進められている。

以上紹介してきたスピン流と熱流の相互作用効果を応用展開することは可能だろうか？スピンゼーベック効果によって生成されたスピン流は、磁性体に金属薄膜を接合するだけで電流に変換できるため、この効果を利用することによって従来は不可能だった「絶縁体を用いた熱電発電」を実現できる[35]。スピンゼーベック効果はゼーベック効果や既存のスピントロニクス現象とは全く異なる物理原理によって駆動されるものであり、従来の熱電変換素子にはない様々な特性を示すことから、将来の熱電変換応用を目指した研究がここ数年進められている。熱電応用を目指すにあたり、スピンゼーベック効果が極低温からキュリー温度までの幅広い温度帯域で発現する現象であること、及び非常にシンプルで汎用性の高いデバイス構造において動作することは、特筆に値する。スピンゼーベック素子の熱電変換能は従来素子よりもはるかに劣っているのが現状であるが、大きなスピンゼーベック効果を示す絶縁体材料及び強いスピン軌道相互作用を有する金属材料の探索、絶縁体/金属界面におけるスピン流交換の高効率化、素子の大面積化・積層化等を行うことで、熱電変換能を大幅に改善できる可能性があるため、今後の進展次第ではありふれた熱エネルギーによって駆動される小型電源やセンサー等として幅広い用途への応用が可能になるかもしれない。スピンゼーベック効果を用いた熱電変換研究の現状については、例えば文献[40]を参照されたい。

## 謝辞

本テキストは、筆者が東北大学金属材料研究所に在籍していた時の研究の概要をまとめたものである。ご指導いただいた東北大学金属材料研究所の齊藤英治先生、本テキストの執筆にご協力いただいた井口亮博士(物質・材料研究機構)、吉川貴史氏(東北大学)、大門俊介氏(東北大学)に深く感謝を申し上げます。

## 参考文献

- [1] 齊藤英治, 村上修一, スピン流とトポロジカル絶縁体 ―量子物性とスピントロニクスの発展―, (共立出版, 2014).
- [2] F. J. Jedema, A. T. Filip, and B. J. van Wees, *Nature* **410**, 345 (2001).
- [3] S. O. Valenzuela and M. Tinkham, *Nature* **442**, 176 (2006).
- [4] T. Kimura, Y. Otani, T. Sato, S. Takahashi, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 156601 (2007).
- [5] H. Adachi, K. Uchida, E. Saitoh, and S. Maekawa, *Rep. Prog. Phys.* **76**, 036501 (2013).
- [6] T. Valet and A. Fert, *Phys. Rev. B* **48**, 7099 (1993).

- [7] T. Schneider *et al.*, Appl. Phys. Lett. **92**, 022505 (2008).
- [8] S. M. Rezende *et al.*, Phys. Rev. B **89**, 014416 (2014).
- [9] M. I. Dyakonov and V. I. Perel, Phys. Lett. A **35**, 459 (1971).
- [10] Y. K. Kato, R. C. Myers, A. C. Gossard, and D. D. Awschalom, Science **306**, 1910 (2004).
- [11] J. Wunderlich, B. Kaestner, J. Sinova, and T. Jungwirth, Phys. Rev. Lett. **94**, 047204 (2005).
- [12] L. Liu, C.-F. Pai, Y. Li, H. W. Tseng, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman, Science **336**, 555 (2012).
- [13] E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara, Appl. Phys. Lett. **88**, 182509 (2006).
- [14] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, and G. E. W. Bauer, Phys. Rev. Lett. **88**, 117601 (2002).
- [15] Y. Tserkovnyak, A. Brataas, G. E. W. Bauer, and B. I. Halperin, Rev. Mod. Phys. **77**, 1375 (2005).
- [16] S. Mizukami, Y. Ando, and T. Miyazaki, Phys. Rev. B **66**, 104413 (2002).
- [17] Y. Kajiwara *et al.*, Nature **464**, 262 (2010).
- [18] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Saunders College, 1976).
- [19] D. Kondepudi and I. Prigogine, *Modern Thermodynamics: From Heat Engines to Dissipative Structures* (John Wiley & Sons, 1998).
- [20] S. R. Boona, R. C. Myers, and J. P. Heremans, Energy Environ. Sci. **7**, 885 (2014).
- [21] A. Slachter, F. L. Bakker, J.-P. Adam, and B. J. van Wees, Nature Phys. **6**, 879 (2010).
- [22] M. Johnson and R. H. Silsbee, Phys. Rev. B **35**, 4959 (1987).
- [23] L. Gravier, S. Serrano-Guisan, F. Reuse, and J. P. Ansermet, Phys. Rev. B **73**, 024419 (2006).
- [24] S. Serrano-Guisan *et al.*, Nature Mater. **5**, 730 (2006).
- [25] O. Tsyplatyev, O. Kashuba, and V. I. Fal'ko, Phys. Rev. B **74**, 132403 (2006).
- [26] M. Hatami, G. E. W. Bauer, Q. -F. Zhang, and P. J. Kelly, Phys. Rev. Lett. **99**, 066603 (2007).
- [27] J.-C. Le Breton, S. Sharma, H. Saito, S. Yuasa, and R. Jansen, Nature **475**, 82 (2011).
- [28] J. Flipse *et al.*, Nature Nanotechnol. **7**, 166 (2012).
- [29] F. K. Dejene, J. Flipse, G. E. W. Bauer, and B. J. van Wees, Nature Phys. **9**, 636 (2013).
- [30] arXiv:1607.02277, arXiv:1607.06594, arXiv:1704.06788 等、未出版の実験結果が複数公開されている。
- [31] K. Uchida *et al.*, Nature **455**, 778 (2008).
- [32] K. Uchida *et al.*, Nature Mater. **9**, 894 (2010).
- [33] K. Uchida *et al.*, Appl. Phys. Lett. **97**, 172505 (2010).
- [34] J. Xiao, G. E. W. Bauer, K. Uchida, E. Saitoh, and S. Maekawa, Phys. Rev. B **81**, 214418 (2010).
- [35] A. Kirihara *et al.*, Nature Mater. **11**, 686 (2012).
- [36] A. Kehlberger *et al.*, Phys. Rev. Lett. **115**, 096602 (2015).
- [37] T. Kikkawa *et al.*, Phys. Rev. B **92**, 064413 (2015).
- [38] H. Jin, S. R. Boona, Z. Yang, R. C. Myers, and J. P. Heremans, Phys. Rev. B **92**, 054436 (2015).
- [39] T. Kikkawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 067207 (2013).
- [40] K. Uchida *et al.*, Proc. IEEE **104**, 1946 (2016).
- [41] J. Flipse *et al.*, Phys. Rev. Lett. **113**, 027601 (2014).
- [42] S. Daimon, R. Iguchi, T. Hioki, E. Saitoh, and K. Uchida, Nature Commun. **7**, 13754 (2016).
- [43] H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, and S. Maekawa, Phys. Rev. B **83**, 094410 (2011).
- [44] S. S.-L. Zhang and S. Zhang, Phys. Rev. B **86**, 214424 (2012).
- [45] S. Hoffman, K. Sato, and Y. Tserkovnyak, Phys. Rev. B **88**, 064408 (2013).