スピン揺動絶縁体におけるスピンゼーベック効果と熱電変換

東北大学 金属材料研究所 量子表面界面科学研究部門 准教授 内田 健一

1. 概要

本研究の目的は、物理原理・材料・素子作製プロセスを総合的に開発することで熱流によるスピン流生成効率を向上させ、我々が発見した新しいスピン流生成現象「スピンゼーベック効果」を環境負荷の小さな熱スピン・熱電変換デバイス技術へと結実させることである。本研究では磁性絶縁体におけるスピンゼーベック効果について詳細に研究し、以下の成果を得た。

- (1) 磁性絶縁体/金属接合を用いて、スピンゼーベック効果と従来の熱電効果(異常ネルンスト効果)を分離するための実験手法を確立し、スピンゼーベック効果による熱電能を定量した。
- (2) ガーネット型磁性絶縁体におけるスピンゼーベック効果の物質依存性測定を行い、スピン流による熱起電力は、磁性ガーネット中の Fe 元素濃度、キュリー温度、飽和磁化に対して正の相関を持つことを明らかにした。
- (3) 酸素雰囲気下でアニール処理を施すことにより高品質な Pt/YIG 界面を作製し、理論 的予測に匹敵する高いスピン流生成効率を得た。
- (4) 高温領域におけるスピンゼーベック効果の温度依存性を定量的に検証し、Pt/YIG 接合における熱起電力が臨界指数 =3 の温度依存性に従うことを明らかにした。

本研究で得られた成果は、より大きなスピンゼーベック効果を示す磁性体材料の探索・作製やより高品質な絶縁体/金属界面を作製するための指針となるものである。

2. 前書き

熱エネルギーを利用した新しいエネルギー変換原理の創出は、持続可能な社会に向けた環境・エネルギー問題への取り組みが活性化している現代科学技術における最重要課題の一つである。近年、クリーンで信頼性の高いエネルギー源の候補として熱電効果(ゼーベック効果)を用いた発電技術が期待されており、世界中で応用に向けた研究開発が展開されている。

一方で、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」が注目を集めている(1)。従来の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、スピントロニクス技術の発展にはスピン流(2)(スピン角運動量の流れ)とスピン圧(非平衡スピン流の駆動力)の生成・検出・制御技術の拡充が必須であり、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。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圧が生じる「スピン版のゼーベック効果」を発見した(図 1)(3)~(10)。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(5)(7)。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取り付けるだけで電圧に変換できるため、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変換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、熱電変換素子の設計自由度や設置可能場所の拡大、及び環境に配慮した省エネ・創エネデバイス技術開発への貢献が期待できる。

本研究は、スピンゼーベック効果を利用することで高効率なスピン流生成を実現し、従来とは全く異なる原理によって駆動されるスピンデバイス・熱電変換素子の基盤技術の創出を目指すものである。この目的を達成するために、本研究では磁性絶縁体/金属接合系におけるスピンゼーベック効果の物理原理・材料・素子作製プロセスを開拓した。以下では、まずスピンゼーベック効果の発現機構について概説し、本研究で得られた主要な成果について紹介する。

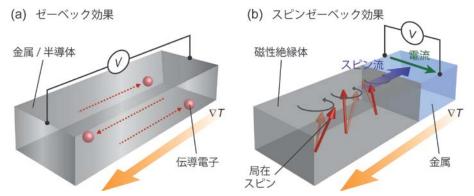


図 1 ゼーベック効果(a)とスピンゼーベック効果(b)の模式図. ゼーベック効果 (熱流による電圧生成) は温度勾配 ∇T で駆動された伝導電子の運動によって生じるのに対し、スピンゼーベック効果は局在スピンの集団運動:マグノンの熱的ダイナミクスによって生じる.

3. 本論

3.1.スピンゼーベック型熱電変換素子の試料構造と熱起電力生成メカニズム

以下に、現在我々が得ているスピンゼーベック効果の基本的メカニズムの概略を示す 4(8)。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、絶縁体層に生じたスピン圧によって金属薄膜層にスピン流が誘起される。このスピン流の起源は、磁性絶縁体中の局在スピン(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。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界面交換相互作用を介して結合しているため(11)、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。金属薄膜に注入されたスピン流は、逆スピンホール効果(12)(13)と呼ばれる量子相対論効果によって起電力に変換される。

ここで登場した逆スピンホール効果という現象は、その名の通りスピンホール効果の逆効果である。スピンホール効果とは、物質に電流を流した際に電子スピンの偏極方向と電流の両方に直交する方向にスピン流が生成されるという現象であり、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る。すなわち、Pt等のように強いスピン軌道相互作用を有する金属において電流は効率良くスピン流に変換される。この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電流に変換される現象が逆スピンホール効果である(図 2(a))。スピン軌道相互作用の性質により、電子スピンの偏極方向を σ 、スピン流が流れる方向を σ 、スピン流が流れる方向を σ 、スピン流が流れる方向を σ 、

ホール効果によって起電力 EISHE が

$$\mathbf{E}_{\mathrm{ISHE}} \propto \mathbf{J}_{\mathrm{s}} \times \mathbf{\sigma}$$
 (1)
を満たす方向に生成される。

このような特徴を有する逆スピンホール効果を用いることで、シンプルな磁性絶縁体/金属二層構造から成るスピンゼーベック型熱電変換素子を構成できる(図 2(b))。この素子に接合界面の法線方向に温度勾配 ∇T を付けると、スピン流 \mathbf{J}_s が温度勾配に沿った方向に生成される。(1)式中の $\mathbf{\sigma}$ は磁性絶縁体の磁化 \mathbf{M} と平行であるため、逆スピンホール効果によって絶縁体層の磁化と温度勾配の両方に直交した方向に起電力が生成される。

(a) 逆スピンホール効果

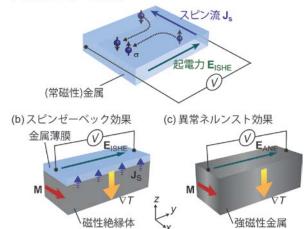


図 2 (a) 逆スピンホール効果の模式図. (b) スピンゼーベック効果の測定セットアップの模式図 (面内磁化配置). (c) 異常ネルンスト効果の模式図.

3. 2. スピンゼーベック効果と異常ネルンスト効果の分離手法の確立 [1][14]

まず、スピンゼーベック効果による熱電変換の実証実験の一例として、Pt/イットリウム鉄ガーネット($Y_3Fe_5O_{12}$: YIG)接合における熱起電力の測定結果を示す。YIG はガーネット構造を有するフェリ磁性絶縁体であり、磁気損失や結晶磁気異方性が非常に小さい等の特徴を有する。試料には長さ 6 mm、幅 2 mm、厚さ 1 mm の単結晶 YIG (111)基板を用い、鏡面研磨した 6×2 mm²面に厚さ 10 nm の Pt 薄膜をスパッタリング法により成膜した。

スピンゼーベック効果によって生成された熱起電力を定量するためには、スピン流に由来する信号と従来の熱電効果に由来する信号とを明確に分離することが非常に重要である。ここで検討すべきは異常ネルンスト効果と呼ばれる現象であり、強磁性体において温度勾配 ∇T と磁化 \mathbf{M} が直交している場合に、この効果によって

$$\mathbf{E}_{\text{ANF}} \propto \mathbf{M} \times \nabla T \tag{2}$$

を満たす方向に起電力 \mathbf{E}_{ANE} が発生する(図 $2(\mathbf{c})$)。図 2 に示したように、異常ネルンスト効果の対称性はスピンゼーベック効果による熱起電力と類似しているが、スピンゼーベック効果の観測に用いる強磁性体(YIG)は絶縁体であるため、YIG 層における異常ネルンスト効果は全く存在しない。では、常磁性金属層において異常ネルンスト効果による熱起電力は生じ得るだろうか。常磁性金属層として用いる \mathbf{Pt} は、大きな逆スピンホール効果を示すためスピンゼーベック効果の観測に適した物質である一方、強磁性体に近い電子構造を有しているため、 \mathbf{Pt} /YIG 界面における磁気的近接効果により、 \mathbf{Pt} 層の界面近傍に弱い強磁性が誘起される可能性がある $\mathbf{C}^{(14)}$ 。もし、磁気的近接効果によって生じた磁化が \mathbf{Pt} 層に異常ネルンスト効果を誘起すれば、 \mathbf{Pt} 層の逆スピンホール電圧に異常ネルンスト電圧が重畳してしまう。そのため、スピンゼーベック効果と異常ネルンスト効果を明確に分離する手法の確立が必要不可欠であり、これは基礎物理的な観点のみならず、スピン流による熱電変換効率を定量するためにも重要な課題である。

そこで我々は、強磁性体の磁化 \mathbf{M} 、常磁性体の伝導電子スピン方向 $\mathbf{\sigma}$ 、温度勾配 ∇T の対称性から、スピンゼーベック効果と異常ネルンスト効果を分離可能であることを見出した [1]。具体的には以下で述べる「面内磁化配置」と「垂直磁化配置」の二つの配置において、 \mathbf{Pt} 層の両端に生じた熱起電力信号の比較を行った。図 $\mathbf{3}(\mathbf{a})$ に示した面内磁化配置($\mathbf{M} \parallel x$ 、 $\nabla T \parallel z$)においては、式(1)、(2)より逆スピンホール電圧と異常ネルンスト電圧の両方がy方

向に生じ得るが、図 3(b)に示した垂直磁化配置($\mathbf{M} \parallel z$ 、 $\nabla T \parallel x$)においては、 $\mathbf{J}_s \parallel \boldsymbol{\sigma}$ となり逆るため異常である。記聞性である。配置的に比較するのを記したがこれらことを引きることを対するので、異常を引きるのでは対するので、異常を対している。これができる。

面内磁化配置の Pt/YIG 試料における起電力(V)の 磁場(H)依存性及び温度差 (ΔT)依存性を図 3(c)、3(e) に示した^[1]。Pt層に発生した起電力信号は試料に付いた起電力信号は試料に付いた起度差に比例し、YIGの 磁化反転によがわかる。 にでいることがわかる。 いの回転に伴い起電力信号は 正弦関数的に変化し、 近の別定方向と外部磁場印

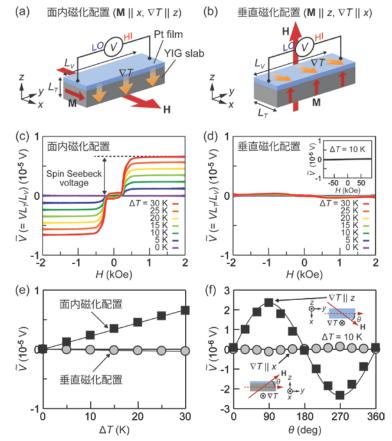


図 3 (a),(b) 面内磁化配置と垂直磁化配置の模式図. (c),(d) 面内磁化配置及び垂直磁化配置の Pt/YIG 接合試料における起電力の磁場依存性. (e) 起電力の温度差依存性. (f) 起電力の磁場印加角度依存性. (c)-(f)の縦軸は, 試料サイズで規格化した起電力である.

加方向が平行となる $\theta=0$ 、 180° では信号が消失した(図 3(f))。これらの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が示す対称性((1)式)と完全に整合している。一方で、異常ネルンスト効果のみが生じる垂直磁化配置においては有意な起電力信号は生じなかった(図 3(d)-3(f))。これらの実験結果から Pt/YIG 接合におけるスピンゼーベック効果と異常ネルンスト効果による寄与を定量した結果、スピンゼーベック効果による熱起電力は磁気的近接効果に起因する Pt 層の異常ネルンスト効果よりも 3 桁以上大きいことが確かめられた [14]。ゆえに、面内磁化配置において観測された信号は純粋にスピンゼーベック効果に由来するものであると結論することができる。

以上の実験で確立した手法は様々な絶縁体/金属接合に適用可能であり、本研究では Pt/YIG 接合に加えて Pt/GGG、Au/YIG、Au/GGG、 $Ni_{81}Fe_{19}/YIG$ 、 $Ni_{81}Fe_{19}/GGG$ 接合においても、スピンゼーベック効果と異常ネルンスト効果の定量を行った[14]。この定量手法を用いることで、今後スピン流による熱電変換の更なる微視的起源の解明を進める予定である。

3. 3. スピンゼーベック効果の物質依存性 [3][5][6]

これまでスピンゼーベック効果の実験は主に Pt/YIG 接合を用いて行われてきたが、本研究では YIG の Y サイト、Fe サイトを様々な元素で置換した 22 種のガーネット型フェリ磁性絶縁体 $Y_{3-x}R_x$ Fe_{5-y} M_y O₁₂ (R= Gd, Ca; M= Al, Mn, V, In, Zr)を用いて、スピンゼーベック効果の物質依存性を検証した [6]。各 $Y_{3-x}R_x$ Fe_{5-y} M_y O₁₂ 試料の組成は誘導結合プラズマ発光分析

法を用いて分析した。試料サイズは前節の実験と統一し、すべての $Y_{3-x}R_x$ Fe $_{5-y}M_y$ O $_{12}$ 試料の 6×2 mm 2 面を鏡面研磨した後に、Pt 薄膜を同時に成膜した。前節の実験と同様にPt/ $Y_{3-x}R_x$ Fe $_{5-y}M_y$ O $_{12}$ 界面の法線方向に温度勾配を与えながら、Pt層に生じた熱起電力の測定を行った。

図 4 は各 $Pt/Y_{3-x}R_xFe_{5-y}M_yO_{12}$ 接合において観測された熱起電力の磁場依存性である。すべての試料において明瞭な逆スピンホール電圧が観測されており、スピンゼーベック効果は限られた特殊な材料でのみ発現する現象ではなく、様々な磁性体中に存在することが確かめられた。

図 5 は観測されたスピンゼーベック信号の大きさを $\mathbf{Y}_{3-x}\mathbf{R}_x\mathbf{Fe}_{5-y}\mathbf{M}_y\mathbf{O}_{12}$ 中の \mathbf{Fe} 元素濃度に対してプロットした結果である

[6]。出力スピン流強度は Fe 元素濃度に対して正の相関を有しており、Fe 含有量が多い材料ほど大きなスピンゼーベック効果を示すことが明らかになった。一方で、他の構成元素の濃度とスピンゼーベック信号の間には有意な相関は観測されなかった。

スピンゼーベック効果の出力は(1)金属層におけるスピン流-電流変換効率、(2) マグノン-電子間の有効温度差、(3) 絶縁体/金属界面におけるスピン結合係数(スピンミキシングコンダクタンス)という3つのパラメータによって決定されるが、本実験で用いた試料における金属薄膜はすべて Pt であり、パラメータ(1)

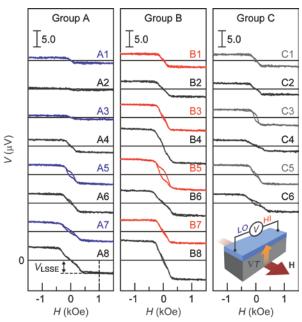


図 4 $Pt/Y_{3-x}R_xFe_{5-y}M_yO_{12}$ (R = Gd, Ca; M = Al, Mn, V, In, Zr)接合における起電力の磁場依存性.

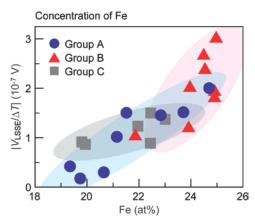


図 5 $Pt/Y_{3-x}R_xFe_{5-y}M_yO_{12}$ 接合における起電力の Fe 元素濃度依存性.

は観測されたスピンゼーベック効果と Fe 元素濃度の相関とは無関係である。パラメータ (2)は現在の解釈では金属層の電子-フォノン相互作用と磁性絶縁体層の非平衡フォノン 伝搬によって決定されると理解されており、Fe 濃度との直接の関係は無い。一方で、パラメータ (3)に関しては、磁性体/金属界面における磁気モーメント密度の増加に対してスピンミキシングコンダクタンスが単調増加するという第一原理計算が報告されており (15)、図 5 で観測された実験的振る舞いは $Pt/Y_{3-x}R_xFe_{5-y}M_yO_{12}$ 界面におけるスピンミキシングコンダクタンスの変調効果に由来するものであると考えられる。この結果は、絶縁体/金属界面における磁気モーメント密度を向上させればスピン流生成効率が向上するという指針を与えるものであり、今後の実験により、別の物質群におけるスピンゼーベック効果の観測や、絶縁体/金属界面への磁性中間層の導入等により、スピンゼーベック効果の更なる高効率化を実現できると期待される。

以上に示した実験に加えて、スピネル構造の磁性絶縁体である $NiFe_2O_4$ 薄膜 $^{[3]}$ や Fe_3O_4 薄膜 $^{[5]}$ 、及び磁気補償温度を有する $Y_{1.9}Gd_{1.1}Fe_{4.8}Al_{0.2}O_{12}$ や $BiTb_2Fe_5O_{12}$ おいてもスピンゼ

ーベック効果の測定を行った。スピネル型の磁性絶縁体におけるスピンゼーベック効果の 系統的な物質依存性測定や、磁気補償温度を有する磁性絶縁体におけるスピンゼーベック 効果の定量評価は今後の課題である。

3. 4. 界面熱処理による高品質 Pt/YIG 界面の作製と高効率スピン流生成 [11]

スピンゼーベック効果による高効率スピン流生成を実現するためには、外部入力によってマグノン-電子間の有効温度差を誘起させた上で、絶縁体/金属界面におけるスピンミキシングコンダクタンスを最適化する必要がある。従来の熱スピントロニクスの研究においてこのパラメータの向上を意図した研究は行われておらず、例えば Pt/YIG 接合において実験的に得られていたスピンミキシングコンダクタンスは、第一原理計算の結果から期待される量の1割以下に過ぎない値であった(15)。ゆえに、系統的な材料探索による最適な物質の組み合わせの決定、及び試料の作製プロセスや熱処理、表面・界面処理条件の最適化により、熱流-スピン流変換効率の劇的な向上が期待できる。

本実験では、酸素雰囲気下でアニール処理を施すことにより高品質な Pt/YIG 界面を作製し、アニール後の Pt/YIG 界面においてスピンミキシングコンダクタンスが大きく向上することを見出した [11]。 試料には液相エピタキシー法により成膜した厚さ $4.5~\mu m$ の YIG (111) 単結晶薄膜を用い、圧力 5×10^{-5} Torr の酸素雰囲気下でアニールすることにより、YIG 薄膜表面の結晶性を向上させた(図 6)。その後、高真空を保ったまま厚さ 10~nm の Pt 薄膜をパルスレーザーデポジション法により成膜した。透過型電子顕微鏡による断面観察を行った結果、図 6 に示したように界面まで YIG 薄膜の結晶性が保たれた Pt/YIG 接合を作製できていることがわかった。一方で、YIG 薄膜の表面に Ar イオンエッチング処理を施した試料においては、YIG の表面に非常に薄いアモルファス層が存在しており、これがスピン

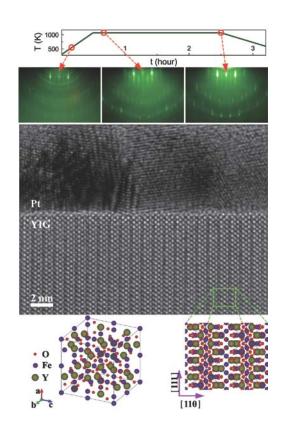


図 6 酸素雰囲気下でアニール処理することにより作製した高品質 Pt/YIG 界面.

注入効率を阻害していることが明らかになった(図 7)。結晶性を向上させた Pt/YIG 界面におけるスピンミキシングコンダクタンスをマイクロ波分光法とスピンポンピング法を用いて見積もった結果、第一原理計算の予測に匹敵する 1.3×10^{18} m⁻² という値が得られ、出力スピン流強度も大きく増大した。

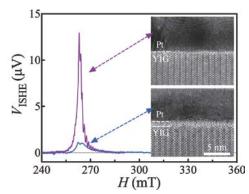


図 7 Pt/YIG 接合におけるスピン流信号の界面 状態依存性. 界面にアモルファス層が存在する Pt/YIG 接合(下図)と比べて, アニール処理後 の Pt/YIG 接合(上図)では大きくスピン流強度 が増大している.

3. 5. 高温領域におけるスピンゼーベック効果 [18]

従来は室温以下でのみ観測されていた Pt/YIG 接合におけるスピンゼーベック効果を、室温からキュリー温度以上の高温領域において測定し、熱起電力の定量評価を行った。その結果、Pt/YIG 接合におけるスピンゼーベック電圧の大きさは温度上昇に伴い単調に減少し、キュリー温度($T_c=553~K$)に到達する前に消失することが明らかになった(図 8(c))。この温度依存性は YIG の磁化の温度依存性とは全く異なり、飽和磁化($4\pi M_s$)は標準的な平均場モデル($4\pi M_s \propto (T_c-T)^{0.5}$)に従うにもかかわらず(図 8(a)、8(b))、スピンゼーベック電圧の温度依存性は($T_c-T)^3$ にスケールすることが明らかになった(図 8(d))。すなわち、Pt/YIG 接合におけるスピンゼーベック電圧の臨界指数は 3 と見積もられた。この結果は、磁気的近接効果など静的な磁気特性だけではスピンゼーベック効果の振る舞いを記述できないことを示しており、この現象の微視的起源の解明に対して重要な情報を与えるものである。応用面では、熱電変換素子は通常高温領域において用いられるため、キュリー温度が高い材料がスピン流熱電変換に適しているという指針が得られた。

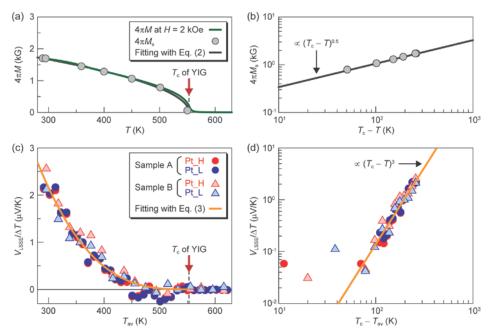


図 8 (a) YIG の磁化の温度依存性. (b) YIG の飽和磁化の T_{c} -T 依存性. (c) Pt/YIG 接合におけるスピンゼーベック電圧の温度依存性. (d) Pt/YIG 接合におけるスピンゼーベック電圧の T_{c} -T 依存性.

4. 結び

本稿で紹介した研究成果により、スピンゼーベック効果の定量手法やスピン注入効率を向上させるための絶縁体/金属界面の作製法が確立され、高効率な熱スピン・熱電変換を実現するための指針が得られた。スピンゼーベック素子は、絶縁体中の熱からスピン圧・電圧を生成可能であり、熱伝導部と電圧生成部をそれぞれ絶縁体層と金属薄膜層に分離することができる。これは、従来の導電体を用いた熱電変換素子にはない特性であり(5)(7)(10)、材料の組み合わせにより熱電性能指数を設計することができる。また、全薄膜構造と液相プロセス(塗布技術等)を応用すれば、大面積な素子の作製や、様々な界面・表面への熱電変換素子の直接実装が可能になる。全薄膜構造化することでデバイス体積が劇的に減少するため、材料コスト面でも優位性がある。

スピン流を用いた熱電変換技術に関する研究開発は始まったばかりであり、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、今後の研究により、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薄膜の探索・作製、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。これらを実現し、スピンゼーベック素子が有する高い設計自由度を最大限に利用することで、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の応用を目指したい。

参考文献

- (1) S. Maekawa ed., Concepts in Spin Electronics (Oxford University, 2006).
- (2) S. Maekawa, E. Saitoh, S. O. Valenzuela, and T. Kimura eds., Spin Current (Oxford University Press, 2012).
- (3) K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, Observation of the spin Seebeck effect, Nature, Vol.455, No.7214 (2008) p.778-781.
- (4) J. Xiao, G. E. W. Bauer, K. Uchida, E. Saitoh, and S. Maekawa, Theory of magnon-driven spin Seebeck effect, Physical Review B, Vol.81, No.21 (2010) p.214418.
- (5) 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, Vol.9, No.11 (2010) p.894-897.
- (6) C. M. Jaworski, J. Yang, S. Mack, D. D. Awschalom, J. P. Heremans, and R. C. Myers, Observation of the spin-Seebeck effect in a ferromagnetic semiconductor, Nature Materials, Vol.9, No.11 (2010) p.898-903.
- (7) K. Uchida, H. Adachi, T. Ota, H. Nakayama, S. Maekawa, and E. Saitoh, Observation of longitudinal spin-Seebeck effect in magnetic insulators, Applied Physics Letters, Vol.97, No.17 (2010) p.172505.
- (8) H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, and S. Maekawa, Linear-response theory of spin Seebeck effect in ferromagnetic insulators, Physical Review B, Vol.83, No.9 (2011) p.094410.
- (9) K. Uchida, H. Adachi, T. An, T. Ota, M. Toda, B. Hillebrands, S. Maekawa, E. Saitoh, Long-range spin Seebeck effect and acoustic spin pumping, Nature Materials, Vol.10, No.10 (2011) p.737-741.
- (10) 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, No.8 (2012) p.686-689.
- (11) Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, and E. Saitoh, Transmission of electrical signals by spin-wave interconversion in a magnetic insulator, Nature, Vol.464, No.7286 (2010) p.262-266.
- (12) E. Saitoh, M. Ueda, H. Miyajima, and G. Tatara, Conversion of spin current into charge current at room temperature: Inverse spin-Hall effect, Applied Physics Letters, Vol.88, No.18 (2006) p.182509.
- (13) S. O. Valenzuela and M. Tinkham, Direct electronic measurement of the spin Hall effect, Nature, Vol.442, No.7099 (2006) p.176-179.

- (14) S. Y. Huang, X. Fan, D. Qu, Y. P. Chen, W. G. Wang, J. Wu, T. Y. Chen, J. Q. Xiao, and C. L. Chien, Transport magnetic proximity effects in platinum, Physical Review Letters, Vol.109, No.10 (2012) p.107204.
- (15) X. Jia, K. Liu, K. Xia, and G. E. W. Bauer, Spin transfer torque on magnetic insulators, Europhysics Letters, Vol.96, No.1 (2011) p.17005.

発表論文(2012年9月~2014年8月) 【原著論文】

- [1] T. Kikkawa, <u>K. Uchida</u>, Y. Shiomi, Z. Qiu, D. Hou, D. Tian, H. Nakayama, X.-F. Jin, and E. Saitoh, Longitudinal spin Seebeck effect free from the proximity Nernst effect, Physical Review Letters, Vol.110, No.6 (2013/2) p.067207.
- [2] M. B. Jungfleisch, T. An, K. Ando, Y. Kajiwara, <u>K. Uchida</u>, V. I. Vasyuchka, A. V. Chumak, A. A. Serga, E. Saitoh, and B. Hillebrands, Heat-induced damping modification in yttrium iron garnet/platinum hetero-structures, Applied Physics Letters, Vol.102, No.6 (2013/2) p.062417.
- [3] D. Meier, T. Kuschel, L. Shen, A. Gupta, T. Kikkawa, <u>K. Uchida</u>, E. Saitoh, J.-M. Schmalhorst, and G. Reiss, Thermally driven spin and charge currents in thin NiFe₂O₄/Pt films, Physical Review B, Vol.87, No.5 (2013/2) p.054421.
- [4] H. Adachi, <u>K. Uchida</u>, E. Saitoh, and S. Maekawa, Theory of the spin Seebeck effect, Reports on Progress in Physics, Vol.76, No.3 (2013/2) p.036501.
- [5] R. Ramos, T. Kikkawa, <u>K. Uchida</u>, H. Adachi, I. Lucas, M. H. Aguirre, P. Algarabel, L. Morellon, S. Maekawa, E. Saitoh, and M. R. Ibarra, Observation of the spin Seebeck effect in epitaxial Fe₃O₄ thin films, Applied Physics Letters, Vol.102, No.7 (2013/2) p.072413.
- [6] <u>K. Uchida</u>, T. Nonaka, T. Kikkawa, Y. Kajiwara, and E. Saitoh, Longitudinal spin Seebeck effect in various garnet ferrites, Physical Review B, Vol.87, No.10 (2013/3) p.104412.
- [7] T. An, V. I. Vasyuchka, <u>K. Uchida</u>, A. V. Chumak, K. Yamaguchi, K. Harii, J. Ohe, M. B. Jungfleisch, Y. Kajiwara, H. Adachi, B. Hillebrands, S. Maekawa, and E. Saitoh, Unidirectional spin-wave heat conveyer, Nature Materials, Vol.12, No.6 (2013/4) p.549-553.
- [8] H. Nakayama, M. Althammer, Y.-T. Chen, <u>K. Uchida</u>, Y. Kajiwara, D. Kikuchi, T. Ohtani, S. Geprägs, M. Opel, S. Takahashi, R. Gross, G. E. W. Bauer, S. T. B. Goennenwein, and E. Saitoh, Spin Hall magnetoresistance induced by a non-equilibrium proximity effect, Physical Review Letters, Vol.110, No.20 (2013/5) p.206601.

 ※金属物性論研究部門(バウアー研究室)との共同研究
- [9] Y. Kajiwara, <u>K. Uchida</u>, D. Kikuchi, T. An, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, Spin-relaxation modulation and spin-pumping control by transverse spin-wave spin current in Y₃Fe₅O₁₂, Applied Physics Letters, Vol.103, No.5 (2013/7) p.052404.
- [10] T. An, K. Yamaguchi, <u>K. Uchida</u>, and E. Saitoh, Thermal imaging of standing spin waves, Applied Physics Letters, Vol.103, No.5 (2013) p.052410.
- [11] Z. Qiu, K. Ando, <u>K. Uchida</u>, Y. Kajiwara, R. Takahashi, H. Nakayama, T. An, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, Spin mixing conductance at a well-controlled platinum/yttrium iron garnet interface, Applied Physics Letters, Vol.103, No.9 (2013/8) p.092404.
- [12] S. Maekawa, H. Adachi, K. Uchida, J. Ieda, and E. Saitoh, Spin current: Experimental and

- theoretical aspects, Journal of the Physical Society of Japan, Vol.82, No.10 (2013/9) p.102002.
- [13] Z. Qiu, T. An, <u>K. Uchida</u>, D. Hou, Y. Shiomi, Y. Fujikawa, and E. Saitoh, Experimental investigation of spin Hall effect in indium tin oxide thin film, Applied Physics Letters, Vol.103, No.18 (2013/10) p.182404.
- [14] T. Kikkawa, <u>K. Uchida</u>, S. Daimon, Y. Shiomi, H. Adachi, Z. Qiu, D. Hou, X.-F. Jin, S. Maekawa, and E. Saitoh, Separation of longitudinal spin Seebeck effect from anomalous Nernst effect: Determination of the origin of transverse thermoelectric voltage in metal/insulator junction, Physical Review B, Vol.88, No.21 (2013/12) p.214403.
- [15] Y. Shiomi, T. Ohtani, S. Iguchi, T. Sasaki, Z. Qiu, H. Nakayama, <u>K. Uchida</u>, and E. Saitoh, Interface-dependent magnetotransport properties for thin Pt films on ferrimagnetic Y₃Fe₅O₁₂, Applied Physics Letters, Vol.104, No.24 (2014/6) p.242406.
- [16] <u>K. Uchida</u>, M. Ishida, T. Kikkawa, A. Kirihara, T. Murakami, and E. Saitoh, Longitudinal spin Seebeck effect: from fundamentals to applications (Topical Review), Journal of Physics: Condensed Matter, Vol.26, No.34 (2014/8) p.343202.
- [17] R. Ramos, M. H. Aguirre, A. Anadon, J. Blasco, I. Lucas, <u>K. Uchida</u>, P. A. Algarabel, L. Morellon, E. Saitoh, and M. R. Ibarra, Anomalous Nernst effect of Fe₃O₄ single crystal, Physical Review B (accepted).
- [18] <u>K. Uchida</u>, T. Kikkawa, A. Miura, J. Shiomi, and E. Saitoh, arXiv:1408.2972 (2014). (論文審査中)

【解説記事・著書】

- [19] E. Saitoh and <u>K. Uchida</u>, Spin Seebeck effect, Chapter 18 of "Spin Current" edited by S. Maekawa, E. Saitoh, S. O. Valenzuela, and T. Kimura (Oxford University Press, 2012).
- [20] <u>内田健一</u>, 齊藤英治, 熱・音波を用いたスピン流生成技術,まぐね, Vol.8, No.1 (2013/2) p.18-23.
- [21] <u>内田健一</u>, 齊藤英治, スピンゼーベック効果による新規熱電変換素子, エヌ・ティー・エス出版 「サーマルマネジメント ~余熱・排熱の制御と有効利用~」第 2 編, 第 4 章, 第 1 節 2 (2013/4).
- [22] <u>内田健一</u>, 齊藤英治, 絶縁体におけるスピンゼーベック効果と熱電変換, 工業材料 特集 「広範な実用化が期待されるスピントロニクス技術」, Vol.61, No.8 (2013/8) p.42-46.
- [23] <u>内田健一</u>, 齊藤英治, スピンゼーベック効果と熱電変換への応用, 応用物理, Vol.82, No.11 (2013/11) p.928-931.
- [24] 吉川貴史, <u>内田健一</u>, 齊藤英治, スピンゼーベック効果熱電変換, 電子情報通信学会 誌 Vol.97, No.3 (2014/3) p.209-214.

Spin Seebeck effect and thermoelectric conversion in spin-fluctuating magnetic insulators

Surface and Interface Research, Materials Property Division, Institute for Materials Research, Tohoku University

Ken-ichi Uchida

[Abstract]

In recent years, more and more approaches to environmental and energy issues have been taken, and it is required to develop clean and reliable energy sources and power-saving electronic devices. Spintronics, the new electronic technology which actively exploits electron spins, is expected to develop novel principles to drive electric and magnetic devices and to save their energy consumption. Therefore, a lot of research on spintronics has been conducted all over the world. However, although most of the spintronics functions are driven by spin currents, flows of electron spin-angular momentum, the methods for generating spin currents have been very limited. In 2008, we discovered a new phenomenon called a "spin Seebeck effect", which refers to the conversion of a heat current into a spin voltage in a ferromagnet/paramagnet junction. Since the spin Seebeck effect appears not only in metals and semiconductors but also in magnetic insulators, it enables the construction of "insulator-based thermoelectric generators" in combination with the inverse spin Hall effect, which was impossible if only conventional thermoelectric technology was used. The purpose of this research project is to realize the efficient thermo-spin and thermoelectric conversion by using the spin Seebeck effect. Here, we report

- (1) Clear separation of the spin Seebeck effect from anomalous Nernst effect,
- (2) Observation of the spin Seebeck effect in various magnetic insulators,
- (3) Efficient spin-current generation using well-controlled Pt/YIG interfaces,
- (4) Quantitative temperature dependence of the spin Seebeck effect at high temperatures.

These achievements will contribute to the development of innovative energy-harvesting systems and spin-based energy-saving technologies with very low environmental burdens.