

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 7 月 13 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K14116

研究課題名(和文)時空間分解によるスピネルチェ効果の解明

研究課題名(英文)Time-and-space-resolved investigation of the spin Peltier effect

研究代表者

井口 亮 (IGUCHI, Ryo)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・主任研究員

研究者番号：40707717

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、スピンの流れを用いた電子冷却を実現するスピネルチェ効果について、その発現の原理を調べる取り組みを行った。スピネルチェ効果は伝導体/磁性体接合で現れ、接合界面に沿って局在した温度変化を起こせるなど興味深い特徴を有するが、その詳細な温度分布と原理はわかっておらず、物理的な理解においても熱電素子として使うにも課題があった。本研究では、サーモフレクタンス法を用いた時空間データの取得を試み、高速応答の計測からスピネルチェ効果を作る温度分布の時定数と空間情報を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピネルチェ効果では、伝導体/磁性体接合に沿って伝搬する熱流の長さスケールが主要な役割を果たしていることがわかった。スピネルチェ効果を強く発現させる物質の探索に向けては、長いスケールでスピン流を運べる物質が適切であり、今後本手法をベースとして長さスケールと運ぶ量を区別して開拓していくことで、大きなスピネルチェ効果を示す材料の開発ができること期待される。また、本研究課題による一連の研究により、スピネルチェ効果の熱的な特性とその発現機構の解明が行なわれただけでなく、時間分解や空間分解を用いたスピン駆動熱電変換のサブマイクロスケールにおける新しい研究の基盤を築くことができた。

研究成果の概要(英文)：We studied the mechanism of the spin Peltier effect (SPE), which induces a heat current in response to a spin current in conductor/magnetic materials junctions.

While the SPE shows interesting features such as the localized temperature modulation along the junction interface, its exact temperature distribution remains to be explored and thus the physical understanding and the knowledge for using SPE-based thermoelectric devices are lacking. In this study, we performed high-speed thermoreflectance measurements of the SPE and revealed its response time and length scale of the induced temperature modulation.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピネルチェ効果 スピン流 サーモフレクタンス スピнкаロリトロニクス 熱電効果

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

効率的なエネルギーの利用のために、近年、電流と熱流を相互に変換する熱電現象を工学応用するための研究が盛んに行われている。例えば、ゼーベック効果は幅広い環境で未利用熱からの発電を可能にし、その相反効果であるペルチェ効果は機械部品と冷媒ガスが不要な省スペース・低環境負荷の冷却を可能にする。デバイス構造・熱源特性を活かし、従来以上にきめ細かく熱を使うことで、エネルギー利用のさらなる高効率化が目指されている。

そのような背景のもと、新しい熱電・センシング技術として、スピンを介した温度差からの発電(スピンゼーベック効果[引用文献])にも注目が集まった。その大きな特徴はスピンを介したことによってデバイス構造の簡素化が可能なことであり、例えば塗布工程により簡便に作製できる磁性絶縁体が使えことや、単純な大面積かにより出力向上が可能であるなど、新たな特性の熱電変換素子を実現されている[引用文献]。その魅力ある特性から、世界的な規模で、物理原理から作製方法までの研究が進められてきた。

スピンゼーベック効果には、スピンペルチェ効果と呼ばれる相反効果があり、スピンを利用した冷却が実現できる。これは、スピンの流れ(スピン流)を伝導体/磁性体接合に注入することで、スピン流密度とその偏極に応じて温度変化が生じる現象である。研究代表者らは、その温度変化が接合部に強く局在していることを動的サーモグラフィ計測により明らかにしている[図1及び引用文献]。温度変化は観察限界であるマイクロメートルスケール以下まで局在しており、新しい用途-例えば、異なる動作温度を必要とする超小型デバイスでの温度変調などに貢献する可能性がある。

課題は出力が小さいことであるが、スピンペルチェ効果を強く発現するための指導原理は明らかになっておらず、物質開拓に向けてはその発現機構の解明が必要となっていた。2016年の研究代表者らの報告も2014年のオランダでの初観測[引用文献]以降初めての再現実験であり、局在した独特な温度変化の分布のために測定が困難であり、スピンゼーベック効果と比べると圧倒的に研究が進展してこなかった。温度変化が界面に沿って局在していることは、接合面の垂直方向に単純な熱源が作られているわけではなく、正負等量の熱源が分布している可能性を示唆している。分布の長さスケールは数マイクロメートル程度であると予想されるが、これまで使われてきた手法では実験的なアプローチが困難であった。

サーモグラフィを用いたスピンペルチェ効果の検出

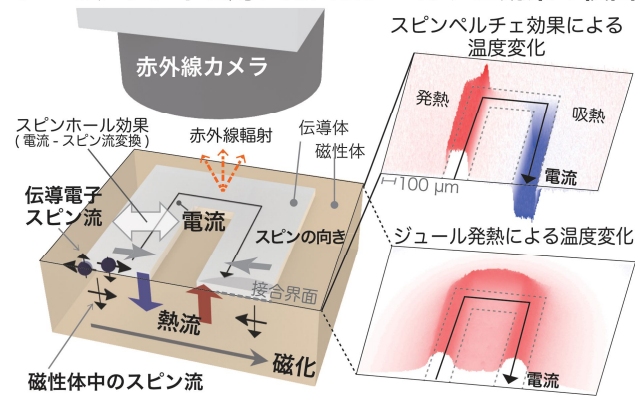


図1: スピンペルチェ効果の模式図。左図は電流-スピン流変換を介した熱流生成の詳細。右図はスピンペルチェ効果とジュール発熱による温度分布の違いを示してある。

2. 研究の目的

本研究では、スピンペルチェ効果の開拓に向けて、これまで使われてきたサーモグラフィ法や熱電対法を超える高時間・高空間分解能の熱測定技術を導入し、その独特な温度分布の起源や出力向上に必要な物質パラメータを明らかにすることを目指した。

3. 研究の方法

熱計測にはサーモリフレクタンス法と呼ばれる、反射率の温度依存性を利用した温度測定技術に注目した。プローブ光を試料へ照射し、その反射光の強度変化から温度変化を調べる手法である。サーモグラフィと同様に非接触で温度計測をする手法であることから、安定に測定ができる。さらに、サーモグラフィで観測する赤外光より波長が短い可視光をプローブ光として利用できることから、従来より高速な応答の計測や高空間分解の測定が視野に入る。本研究ではサーモリフレクタンス法を用いてスピンペルチェ効果による温度変化を評価するべく、周波数空間での高速応答測定(ロックインサーモリフレクタンス)とカメラを用いたイメージングによる実空間観察の両者に取り組んだ。特に、ロックインサーモリフレクタンス法による進展が著しかったことから、こちらへ注力し、研究期間中に下記に記載する成果を得た。

また、さらに波長が短い紫外光を用いたスピン熱電変換の高い実空間分解計測や、スピン熱電変換による熱出力の予測に向けて有限要素法による評価にも取り組んだ。

4. 研究成果

(1) スピンペルチェ効果における長さスケールの解明

スピンペルチェ効果による温度変化は、界面により生じる吸発熱とバルクによる吸発熱のシナリオが考えられており、その違いは、スピン流がどこまで熱を運んでいるか、ということにある。相反関係にあるスピントラッキング効果からの類推によれば、その長さスケールは数~10 μm 程度であるが、スピンペルチェ効果においてはこれまで明らかになったことはなかった。このシチュエーションは、非保存流のスピン流に特徴的なものである。例えば、保存流である電流では異物質の接合においてのみ吸熱/発熱反応が現れることから、その長さスケールについて考える必要はない(図 2)。さらに付け加えれば、非保存流であるスピン流の熱流との交差相関現象に対して、単純な相反性が適用できるかも不確かである。

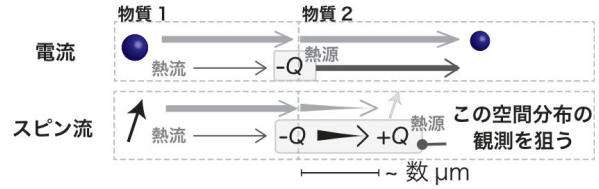


図 2: 電流とスピン流が運ぶ熱流の違い。熱流の不連続点において熱源が現れる。

実験的には、このスピン流が生成する熱流の長さスケールは高速応答の測定から明らかにすることが可能である。これは、スピン流が生成する熱流の長さスケールに応じて、系の温度変化が定常状態に達するまでの応答時間(時定数)が変化するためである。そこで本研究ではサーモリフレクタンス法に基づく高速応答測定によって、スピンペルチェ効果の時定数を求め、熱源分布のモデリングとシミュレーションから長さスケールを明らかにしようと考えた。

実験では、図 3C に示す伝導体/強磁性体接合を含むサンプルを作製し、その温度変化の測定を行った。伝導体層にはプラチナを、強磁性層としてはフェリ磁性を示すイットリウム鉄ガーネット(YIG)を用い、これらの接合における熱流生成をトランスデューサー層を通して測定した。トランスデューサー層としてはサーモリフレクタンス係数(反射率変化/温度変化)が使用した緑色光において大きな値を示す金薄膜を用いた。また、プラチナ層と金属の間には電気的な絶縁を取るためにアルミナとシリカからなる薄い絶縁層を形成してある。

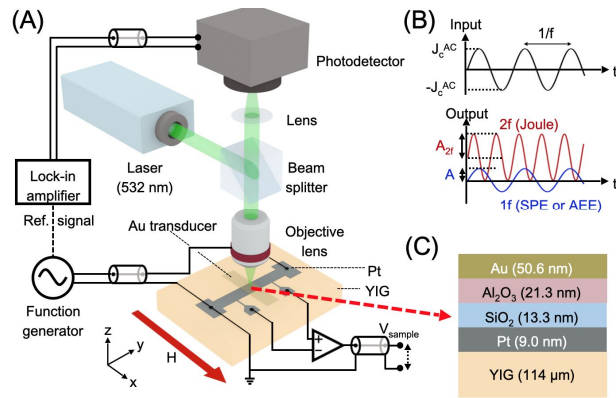


図 3: (A) ロックインサーモリフレクタンス測定系。(B) 熱電効果とジュール熱の交流応答の違い。(C) 試料の膜構成。

本構造において、プラチナ層に電流を印加すると、スピンホール効果によって電流がスピン流へ変換される。生成されたスピン流はプラチナ/イットリウム鉄ガーネット界面を通り、界面とイットリウム鉄ガーネット中で熱流へと変換される。この熱流による温度変化を高感度に計測するため、本研究ではロックインサーモリフレクタンス法を用いた周波数ドメインでの測定を行った。電流として交流電流を用いると、注入されるスピン流の向き(および強度)が交流で変調されるため、スピンペルチェ効果による温度変化も正負に変化する交流応答を示す。この交流応答のみをロックイン方式にて検出を行うことで外乱の影響を受けにくい測定が実現される。この測定方法においては、励起用の交流電流の周波数を変化させることで時定数の測定が可能である。具体的には、周波数依存性において温度変化が $1/2$ となる周波数 f と応答時間 τ の間には $f = 1/(2\tau)$ の関係がある。本研究では、数 Hz から 1 MHz 超までのスピンペルチェ効果の周波数依存性を測ることに成功し、温度変化の明確な減衰を確認できた。

図 4 にスピンペルチェ効果による温度変化の周波数依存性を示した。スピンペルチェ効果による温度変化は 10 kHz から減衰していく様子が見られた。これは従来のサーモグラフィ法での観測限界(~ 100 Hz)を遥かに超える数字である。また、検証実験としてニッケル薄膜における異常エッチングスハウゼン効果の周波数依存性も図 4 に示してある。スピンペルチェ効果と異なり、周波数依存性は平坦である。この両者の周波数依存性

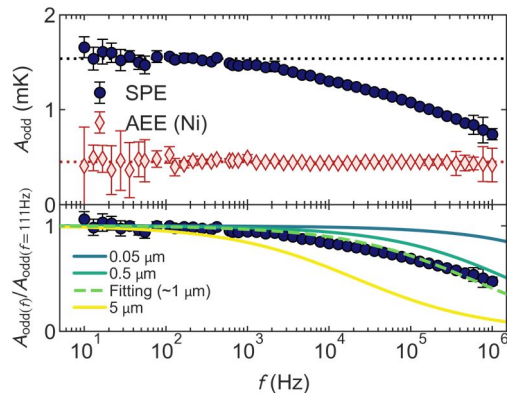


図 4: スピンペルチェ効果と異常エッチングスハウゼン効果の温度変化の励起周波数依存性。下段には指数関数型熱源の長さスケールを変化させたモデリングによる解析結果を示してある。

は、生成される熱流の長さスケールを考慮したシミュレーションによりよく再現することができている(図4下段)。

本研究で得られた知見から、下記のことが結論付けられる。プラチナ/イットリウム鉄ガーネット系におけるスピネルチェ効果では、

スピネル流に伴う温度変化は、時定数として $2.5 \mu\text{s}$ 程度で定常状態に達する。

上記の時定数は、およそ $1 \mu\text{m}$ にわたるスピネル流による熱流生成により説明できる。すなわち、スピネル流-温度変化の変換効率の定量評価に向けては、バルク中の熱伝搬を考慮したモデリングが必要である。

スピネルチェ効果の長さスケールは、相反効果であるスピネルゼーベック効果(温度差によるスピネル流生成)と比較すると短い傾向がある。これは、スピネル流が熱を運ぶスケールと、熱励起されたスピネル流がスピネルを運ぶスケールの違いであると考えられ、相反性を検証する上では考慮する必要がある。

これらの結論から、スピネルチェ効果を強く発現させる上では、長いスケールでスピネル流を運べる物質が適切であると期待される。一方で、単位スピネル流あたりどの程度のエネルギーが運ばれるか(すなわち電流におけるペルチェ係数に相当する量)は物質によって異なるはずである。本手法をベースとして長さスケールと運ぶ量を区別した物質評価を行うことで、大きくスピネルチェ効果を示す材料の開拓ができる。

(2) 関連した研究

上記でリファレンスとして用いた異常エッチングスハウゼン効果を含むスピネル駆動熱電変換については、その熱出力が基板や強磁性層の膜厚にどう影響されるかを、動的サーモグラフィ法による空間分布計測と有限要素法を用いたシミュレーションを組み合わせることで明らかにした。これにより、薄膜素子におけるスピネル駆動熱電変換の一般的な熱応答特性が予測可能になった。

また、実空間でのスピネル駆動熱電変換の高空間分解観察の試行として、紫外光の集光加熱を用いて金属/強磁性体接合を含む多層膜におけるスピネル駆動熱電変換による熱起電力イメージングも行った。500 nm 程度の分解能で熱起電力を可視化できており、スピネル駆動熱電変換がサブマイクロスケールにおいても観察可能であることを示した。

これらの一連の研究により、スピネルチェ効果の熱的な特性とその発現機構の解明が行なわれ、さらに時間分解や空間分解を用いたスピネル駆動熱電変換のサブマイクロスケールにおける新しい研究の基盤を築くことができた。

< 引用文献 >

K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Nature* 455, 778 (2008).

A. Kirihara, K. Uchida, Y. Kajiwara, M. Ishida, Y. Nakamura, T. Manako, E. Saitoh, and S. Yorozu, *Nat. Mater.* 11, 686 (2012).

S. Daimon, R. Iguchi, T. Hioki, E. Saitoh, and K. Uchida, *Nat. Commun.* 7, ncomms13754 (2016).

J. Flipse, F. K. Dejene, D. Wagenaar, G. E. W. Bauer, J. B. Youssef, and B. J. van Wees, *Phys. Rev. Lett.* 113, 027601 (2014).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Iguchi Ryo, Kasai Shinya, Koshikawa Kazushige, Chinone Norimichi, Suzuki Shinsuke, Uchida Ken-ichi	4. 巻 9
2. 論文標題 Thermoelectric microscopy of magnetic skyrmions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 18443-1~9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-019-54833-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Yamazaki Takumi, Iguchi Ryo, Ohkubo Tadakatsu, Nagano Hosei, Uchida Ken-ichi	4. 巻 101
2. 論文標題 Transient response of the spin Peltier effect revealed by lock-in thermoreflectance measurements	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 020415(R)-1~6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.020415	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Miura Asuka, Iguchi Ryo, Seki Takeshi, Takanashi Koki, Uchida Ken-ichi	4. 巻 4
2. 論文標題 Spin-mediated charge-to-heat current conversion phenomena in ferromagnetic binary alloys	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 034409-1~13
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevMaterials.4.034409	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Yamazaki Takumi, Iguchi Ryo, Nagano Hosei, Uchida Ken-ichi	4. 巻 59
2. 論文標題 Enhancement of charge-to-spin current conversion in a Ni/Pt bilayer film detected by spin Peltier effect	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 050901-1~4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ab8025	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Das Raja, Iguchi Ryo, and Uchida Ken-ichi	4. 巻 11
2. 論文標題 Systematic investigation of anisotropic magneto-Peltier effect and anomalous Ettingshausen effect in Ni thin films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 034022-1 ~ 13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevapplied.11.034022	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 井口 亮、山崎 匠、長野 方星、内田 健一
2. 発表標題 強磁性金属中のスピホール効果を用いたスピネルチェ効果
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yamazaki Takumi, Iguchi Ryo, Ohkubo Tadakatsu, Nagano Hosei, Uchida Ken-ichi
2. 発表標題 Thermoreflectance Measurement of the Spin Peltier Effect
3. 学会等名 The 2019 Magnetism and Magnetic Materials Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山崎 匠、井口 亮、長野 方星、内田 健一
2. 発表標題 Lock-in thermoreflectance as a tool for investigating spin caloritronics
3. 学会等名 応用物理学会 2019年 春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yamazaki Takumi、Iguchi Ryo、Ohkubo Tadakatsu、Nagano Hosei、Uchida Ken-ichi
2. 発表標題 Measurement of the spin Peltier effect using thermoreflectance
3. 学会等名 Spin Caloritronics X (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----