

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 21日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2011

課題番号：22656002

研究課題名（和文） 室温で巨大な異常ネルンスト効果を示す材料の探索

研究課題名（英文） Search for materials with giant anomalous Nernst effect at room temperature

研究代表者

高梨 弘毅 (TAKANASHI KOKI)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：00187981

研究成果の概要（和文）：

本研究では、異常ネルンスト効果は温度勾配によって発生したスピンの逆スピンホール効果であるという仮説に基づいて、室温で巨大な異常ネルンスト効果を示す材料の探索を行った。具体的には、高い磁気異方性を示す FePt に代表される L1₀型規則合金と高いスピン分極率を有するハーフメタルホイスラー合金に着目した。これらの材料の異常ネルンスト効果およびスピントロニクス効果を測定してその結果を系統的に整理することにより、2つの効果の関係を明らかにし、室温で巨大な異常ネルンスト効果を示す材料創製の指針を得た。

研究成果の概要（英文）：

This study aimed to search for materials with giant anomalous Nernst effect at room temperature with the hypothesis that the effect was brought by the inverse spin-Hall effect of spin current generated by the temperature difference. We focused on half-metallic Heusler alloys with high spin polarization and the L1₀-type ordered alloys such as FePt with high magnetic anisotropy. The anomalous Nernst effect and the spin-Seebeck effect of these materials were systematically measured, and the relation between the two effects was investigated, which leads to the development of materials with giant anomalous Nernst effect at room temperature.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,300,000	0	2,300,000
2011年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	270,000	3,470,000

研究分野：磁性材料、スピントロニクス

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物性・結晶工学

キーワード：磁性、スピントロニクス、超格子、ナノ材料、スピン流

1. 研究開始当初の背景

ネルンスト効果とは、物質に温度勾配を付けて熱流を流し、熱流と垂直方向に磁場を印

加した場合に、磁場と熱流の双方に垂直な方向に電圧が生じる現象である。物質が強磁性体のように自発磁化を有する場合には、磁場

が無くても、磁化と熱流の双方に垂直な方向に電圧が生じる。これを特に異常ネルンスト効果と呼んでいる。ネルンスト効果はゼーベック効果と並んで代表的な熱電効果の1つであるが、ゼーベック効果と比較して、磁場あるいは磁化という自由度を含んでいるので、より高効率で多機能な熱電変換素子に応用される可能性がある。

研究代表者のグループは、垂直磁化した $L1_0$ -FePt 薄膜と Au のホールクロスを組み合わせた面内構造素子において、スピンホール効果の観測の過程で、室温で大きな異常ネルンスト効果の信号が出現することを見出した (T. Seki et al., *Nature Materials*, **7** (2008) 125.)。また、研究分担者のグループは、強磁性体に温度勾配を付けて熱流を流すと、通常のゼーベック効果による起電力が発生するだけでなく、同時にスピン流も発生することを見出し、これをスピンゼーベック効果と名付けた (K. Uchida et al., *Nature*, **455** (2008) 455.)。以上の成果を踏まえ、我々は、異常ネルンスト効果の起源は、スピンゼーベック効果によって生じたスピン流が、強磁性体内の逆スピンホール効果によってスピン流と横方向に電流を生じさせることであるという仮説を立てた。この仮説に従えば、スピンゼーベック効果が大きな強磁性体が、大きな異常ネルンスト効果を示すことになる。このような観点から、高い磁気異方性を示す $L1_0$ 型規則合金と高いスピン分極率を有するハーフメタルホイスラー合金に着目し、系統的に物質依存性を調べることによって、室温で巨大な異常ネルンスト効果を示す材料を創製することを着想した。

2. 研究の目的

異常ネルンスト効果は温度勾配によって発生したスピン流の逆スピンホール効果であるという仮説に基づいて、室温で巨大な異常ネルンスト効果を示す材料の探索を行った。具体的には、高い磁気異方性を示す FePt に代表される $L1_0$ 型規則合金と高いスピン分極率を有するハーフメタルホイスラー合金に着目し、物質依存性を系統的に研究する。 $L1_0$ 型規則合金として、FePt を作製した。また、ハーフメタルホイスラー合金として、 $L2_1$ 型あるいは B2 型の Co_2MnSi を作製した。そして、異常ネルンスト効果、およびスピンゼーベック効果を測定し、その結果を系統的に整理することにより 2 つの効果の関係を明らかにして、室温で巨大な異常ネルンスト効果を示す材料創製の指針を得た。

3. 研究の方法

始めに、異常ネルンスト効果を定量的に評

価する装置の整備を進めた。垂直磁化を有する薄膜面直方向に磁化を印加することができる電磁石を準備し、マイクロプローブを複数設置し、薄膜表面にタングステン短針を接触させる装置を作製した。同時に、薄膜の両端間に熱勾配を発生することにより、熱流を生じさせる装置も作製した。これは、一端にヒータを備え付けることにより実現した。並行して、 $L1_0$ 型規則合金である FePt について、スパッタ法を用いて垂直磁化を示す (001) 配向膜を作製した。マルチターゲットのスパッタ装置を用いて、MgO 基板の上に $L1_0$ 型 FePt 規則合金薄膜を作製した。作製した薄膜試料は、X線回折装置 (XRD) を用いて配向性や規則度の確認を行い、超伝導量子干渉素子

(SQUID) 磁束計を用いて基本的な磁気特性を評価した。

続いて、垂直磁化膜を用いて異常ネルンスト効果を測定した。試料を短冊状に切り出し、薄膜面直方向に垂直磁化が飽和する程度の静磁場を印加した。薄膜の一端に接続したヒータからもう一端に熱流を生じさせ、その温度差を熱電対を用いて測定した。この状態で、対面する電極間に生じる電位差を測定し、異常ネルンスト効果の大きさを見積もった。垂直磁化膜の膜厚・磁気異方性の大きさに依存して、異常ネルンスト効果の大きさがどのように変化するのかを調べた。

また、面内磁化膜を用いてスピンゼーベック効果の測定も行った。スパッタリング法により、ホイスラー合金である Co_2MnSi 薄膜を作製し、面内方向に外部磁場を印加した状態でスピンゼーベック効果の測定を行った。パーマロイ薄膜も作製し、同様にスピンゼーベック効果の測定を行った。得られたデータを整理し、異常ネルンスト効果とスピンゼーベック効果の関係を明らかにした。

4. 研究成果

(1) FePt 薄膜の異常ネルンスト効果

膜厚 7、10、20、30、40nm の FePt 薄膜を作製した。図 1 に、異なる膜厚の FePt 薄膜の極カー効果測定結果を示す。膜厚の増加に従い、保磁力は減少することが分かった。また、角形比も減少することが分かった。これらの FePt 薄膜について、異常ネルンスト効果を測定した。図 2 に観測された異常ネルンスト電圧の膜厚依存性を示す。全ての膜厚について、明確なヒステリシスを確認した。ネルンスト電圧がゼロとなる外部磁場の大きさは、それぞれの膜厚における保磁力とほぼ一致しており、観測された電圧が異常ネルンスト効果に起因するものであることが確認された。また、異常ネルンスト電圧の大きさは、膜厚に依存せず、ほぼ一定値となることが分かった。

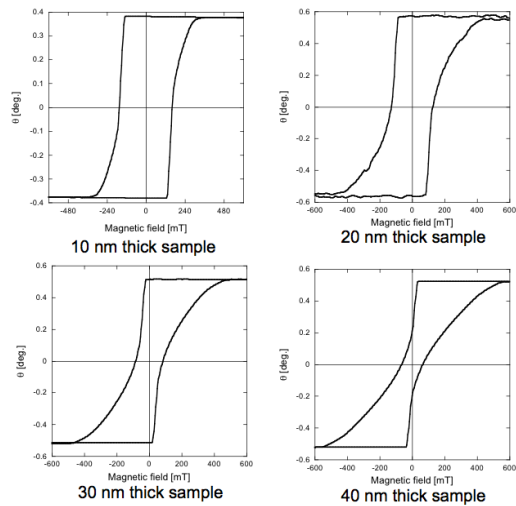


図1 L10 FePt 薄膜における極カー効果スペクトルの膜厚依存性。

続いて、異常ネルンスト効果の垂直磁気異方性エネルギー依存性についても調べた。FePt 薄膜の成膜時の基板温度を変化させることにより、異なる磁気異方性を有する FePt 薄膜を作製した。SQUID の測定結果から、基板温度を 300、350、400、450、475、500℃としたときに、それぞれ 3.4、7.3、9.8、14.4、19.8、26.5 $\times 10^6$ erg/cc の磁気異方性が得られることが分かった。それぞれの薄膜について、異常ネルンスト効果を測定した。図3に、異常ネルンスト係数の磁気異方性エネルギー依存性を示す。磁気異方性の大きさが増加するに伴い、異常ネルンスト係数の大きさは減少することが分かった。磁気異方性は薄膜内のスピン波のエネルギーと強い相関があるため、この実験結果は異常ネルンスト効

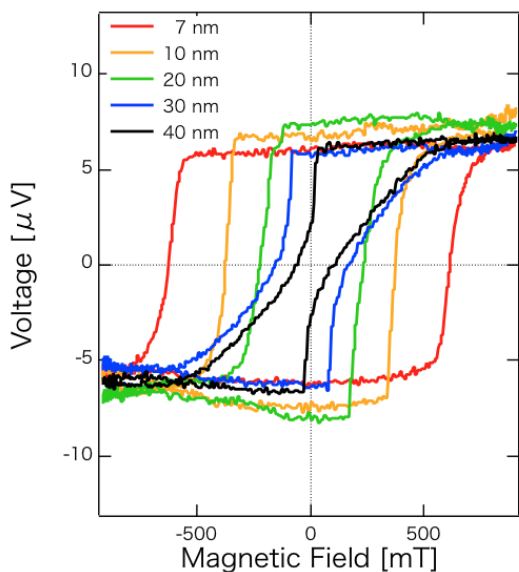


図2 L10 FePt 薄膜における異常ネルンスト効果の膜厚依存性。

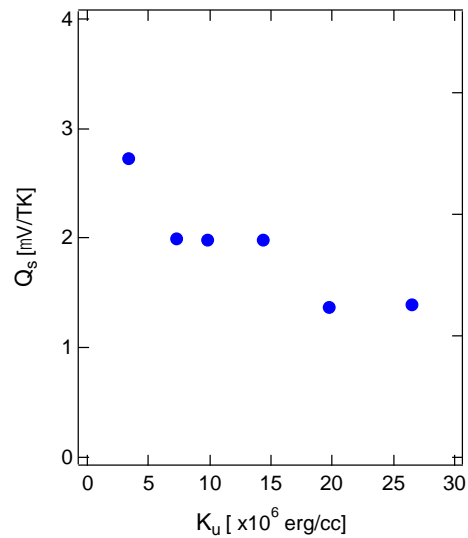


図3 L10 FePt 薄膜における異常ネルンスト効果の垂直磁気異方性エネルギー依存性。

果にスピン波が寄与していることを示唆している。

(2) Co₂MnSi 薄膜のスピンゼーベック効果

面内磁化膜である Co₂MnSi 薄膜およびパーマロイ薄膜のスピンゼーベック効果を測定した。それぞれの薄膜の片端に Pt バーを取り付け、面内に温度勾配と磁場を印加した状態でバーの両端間に生ずる電圧を測定した。図4に、図ピンゼーベック効果に起因する起電力の温度差依存性を示す。Co₂MnSi、パーマロイのいずれの薄膜についても温度差に比例して、起電力が増加することが分かった。また、起電力の極性は温度差の方向に依存して反転した。起電力の大きさには、温度差の方向に対して明確な非対称性が確認された。様々な解析を行った結果、この非対称性は、薄膜の垂直方向に生じる温度差と面内の印加磁場がもたらす異常ネルンスト効果に起因する起電力であることが明らかになった。

以上、本研究で得られた知見によって室温

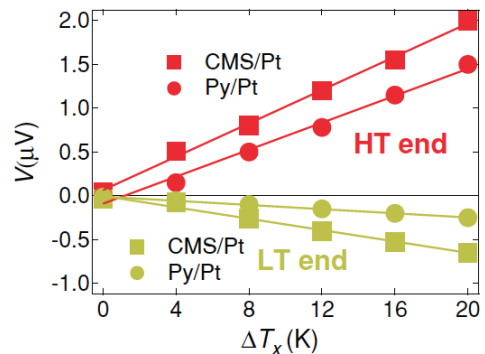


図4 Co₂MnSi 薄膜およびパーマロイ薄膜におけるスピンゼーベック効果の温度差依存性。

で巨大な異常ネルンスト効果を示す材料の探索に向けた指針を示すことができた。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

① S. Bosu, Y. Sakuraba, K. Uchida, K. Saito, W. Kobayashi, E. Saitoh, and K. Takanashi, “Thermal artifact on the spin Seebeck effect in metallic thin films deposited on MgO substrates” Journal of Applied Physics, 査読有, **111** (2012) 07B106-1.

② S. Bosu, Y. Sakuraba, K. Uchida, K. Saito, T. Ota, E. Saitoh, and K. Takanashi, “Spin Seebeck effect in thin films of the Heusler compound Co_2MnSi ” Physical Review B, 査読有, **83** (2011) 224401.

[学会発表] (計 7 件)

① 水口将輝、長谷川浩太、内田健一、齊藤英治、高梨弘毅、強磁性金属薄膜における異常ネルンスト効果の微視的解析、日本物理学会 第 67 回年次大会、2012 年 3 月 24 日、西宮市

② M. Mizuguchi, K. Hasegawa, S. Ohata, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, Thermomagnetic effects in perpendicularly magnetized $\text{L1}_0\text{-FePt}$ thin films (invited), 2012 ICC-IMR Workshop on “Dissipation in Spintronics”, 2012 年 3 月 7 日、Yamagata, Japan

③ 水口将輝、高梨弘毅、垂直磁化 L1_0 型 FePt 薄膜における熱流磁気効果 (招待講演)、応用物理学会スピントロニクス研究会・日本磁気学会スピンエレクトロニクス専門研究会共同主催研究会「スピン流と熱効果の新現象」、2011 年 11 月 14 日、Sendai, Japan

④ M. Mizuguchi, S. Ohata, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, Anomalous Nernst effect in perpendicularly magnetized FePt thin films and relation with anomalous Hall effect, Spin Caloritronics III, 2011 年 5 月 9 日、Leiden, Netherland

⑤ M. Mizuguchi, S. Ohata, K. Uchida, E. Saitoh and K. Takanashi, Microscopic origin of anomalous Nernst effect in perpendicularly magnetized FePt thin films, 55th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2010 年 11 月 15 日、

Atlanta, USA

⑥ 大畑量子、水口将輝、内田健一、齊藤英治、高梨弘毅、 L1_0 型 FePt 垂直磁化膜における異常ネルンスト効果と異常ホール効果の相関、日本物理学会 2010 年秋季大会、2010 年 9 月 25 日、大阪市

⑦ S. Ohata, M. Mizuguchi, K. Uchida, E. Saitoh and K. Takanashi, Anomalous Nernst effect in FePt thin films, The 2nd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications, 2010 年 7 月 15 日、Sendai, Japan

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高梨 弘毅 (TAKANASHI KOKI)
東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号：00187981

(2) 研究分担者

齊藤 英治 (SAITOH EIJI)
東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号：80338251

(3) 連携研究者

桜庭 裕弥 (SAKURABA YUYA)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号：10451618

水口 将輝 (MIZUGUCHI MASAKI)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号：50397759