

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 17 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600067

研究課題名(和文) 磁性超格子におけるスピナーベック効果と異方性熱電変換

研究課題名(英文) Spin Seebeck effect and anisotropic thermoelectric conversion in magnetic superlattice structures

研究代表者

内田 健一 (UCHIDA, Ken-ichi)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：50633541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、スピン流による熱電変換効率を飛躍的に向上させることを目的として、磁性多層膜構造におけるスピナーベック効果の熱電特性を評価した。その結果、フェリ磁性絶縁体/常磁性金属多層膜において、スピナーベック効果によって誘起される熱起電力が積層数の増加に伴って単調かつ大幅に増大することを見出した。系統的な実験結果と現象論的解析に基づき、熱電変換能を更に増大させるための指針も得た。さらに本研究では、強磁性金属/常磁性金属多層膜において、異常ネルンスト効果が界面密度の増加に伴って単調に増大することも明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In this research project, to dramatically improve the efficiency of thermoelectric conversion driven by a spin current, we investigated thermoelectric properties of the spin Seebeck effect in magnetic multilayer structures. We found that, in multilayer films comprising a ferrimagnetic insulator and a paramagnetic metal, the thermoelectric voltage induced by the spin Seebeck effect monotonically and substantially increases with increasing the number of the stacked layers. Based on systematic experimental results and phenomenological analyses, we developed strategies to further enhance the thermopower. In addition, by using multilayer films comprising ferromagnetic and paramagnetic metals, we also demonstrated that the thermoelectric voltage induced by the anomalous Nernst effect monotonically increases with increasing the interface density.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス スピン流 スピナーベック効果 逆スピナーホール効果 異常ネルンスト効果 薄膜 磁性体

1. 研究開始当初の背景

様々な形態で環境中に存在している熱エネルギーを利用するための新しいデバイス駆動原理・技術の創出は、持続可能な社会の実現に向けた取り組みが活性化している現代科学技術における重要課題の一つである。近年、熱電効果(ゼーベック効果)を用いた発電技術が盛んに研究されているが、その応用範囲は制限されているのが現状である。

新しい熱エネルギー利用技術の創出に向けて、著者らはスピン角運動量の流れ「スピン流」を利用した熱電変換技術の研究開発を進めている。スピン流を用いた熱電変換は、熱流によるスピン流生成現象「スピンゼーベック効果」により実現され、これによって従来はエネルギー源になり得なかった絶縁体からもスピン流や電流を取り出すことが可能になった。スピンゼーベック素子は磁性体/金属接合を基本構造としており(図1(a))、熱流と電流はそれぞれ磁性体層と金属層に別々に存在しているため、素子の熱抵抗と電気抵抗とを独立に最適化できる。このため、従来の熱電変換素子における性能限界を突破し、カルノー効率を上限とする高い変換効率を実現できる可能性がある。しかし、スピンゼーベック素子の出力熱起電力は半導体のゼーベック素子よりも遥かに劣っているのが現状であり、スピンゼーベック効果のポテンシャルを最大限に発揮させるための原理・材料・素子構造が希求されている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、磁性絶縁体/金属接合をベースとした多層膜構造を導入することでスピン流による熱電変換効率を劇的に向上させ、スピンゼーベック効果を環境負荷の小さな熱エネルギーデバイス技術へと結実させることである。さらに本研究では、強磁性金属/常磁性金属接合をベースとした多層膜構造を用いることで、強磁性体において発現する熱電効果の一つである異常ネルンスト効果を増大させることも目指した。従来のスピンゼーベック素子における金属層には主に常磁性体を用いられてきたが、代わりに強磁性体を用いることで、スピンゼーベック効果と異常ネルンスト効果のハイブリット熱電変換が実現される。スピンゼーベック効果と異常ネルンスト効果の増大原理の確立は、共に横型熱電変換素子の出力向上に直結するため、これらの研究目標を設定した。

3. 研究の方法

(1) フェリ磁性絶縁体/常磁性金属多層膜におけるスピンゼーベック効果に関する実験

本実験では、フェリ磁性体(Fe_3O_4)と常磁性金属(Pt)を交互に積層させたエピタキシャル多層膜を作製し(図1(b))、Pt/ Fe_3O_4 接合の積層数 n に対するスピンゼーベック効果の依存性を調べた。 Fe_3O_4 は室温下で導電性を有するが、その電気伝導率はPtよりも2桁低く、

実質的に絶縁体として扱うことができる。試料作製は共同研究をしているスペイン・サラゴサ大学のIbarraグループにて行われ、 Fe_3O_4 層はパルスレーザー堆積法、Pt層はスパッタリング法により単結晶MgO基板上に成膜された。各層の膜厚は固定し、積層数は $n = 1 \sim 12$ とした。

[Pt/ Fe_3O_4] $\times n$ 多層膜に対して、界面の法線方向に温度勾配を与えると、スピンゼーベック効果によって温度勾配に沿った方向にスピン流が生成される。このスピン流は、 Fe_3O_4 層の磁化が薄膜面内方向に配向している場合、Pt層の逆スピンホール効果によってスピン流の空間成分と磁化の両方に直交する方向の起電力に変換される。[Pt/ Fe_3O_4] $\times n$ 多層膜におけるスピンゼーベック効果を観測するために、薄膜面内方向に磁場を掃引しながら、Pt層に生じた熱起電力を測定した。

得られた実験結果の理論解析は、日本原子力研究開発機構の前川グループとの共同研究により行われた。

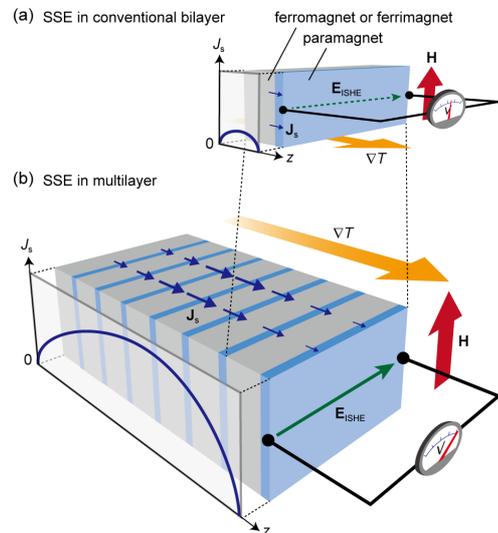


図1 強磁性体/常磁性体二層膜(a)と強磁性体/常磁性体交互積層多層膜(b)におけるスピンゼーベック効果の模式図。[doi:10.1103/PhysRevB.92.220407 より抜粋]

(2) 強磁性金属/常磁性金属多層膜における異常ネルンスト効果に関する実験

本実験では、強磁性金属(Fe)と常磁性金属(Pt, Au, Cu)を交互に積層させた多層膜を作製し、界面数 N に対する異常ネルンスト効果の依存性を調べた。試料作製は共同研究をしている東北大学金属材料研究所の高梨グループにて行われ、各層はスパッタリング法により単結晶GGG基板上に成膜された。多層膜の合計膜厚はすべての試料において10 nmに固定し、界面数は $N = 1 \sim 9$ とした(各層の膜厚は N に依存する)。

Pt/Fe, Au/Fe, Cu/Fe 多層膜に対して、Fe層の磁化と直交する方向に温度勾配を与え

ると、異常ネルンスト効果によって磁化と温度勾配の両方に直交する方向に熱起電力が生成される。異常ネルンスト効果の測定は、薄膜面内方向に磁化させるセットアップ(面内磁化配置: 図 2 (a))と、薄膜面の法線方向に磁化させるセットアップ(垂直磁化配置: 図 2 (b))の 2 通りにおいて行った。

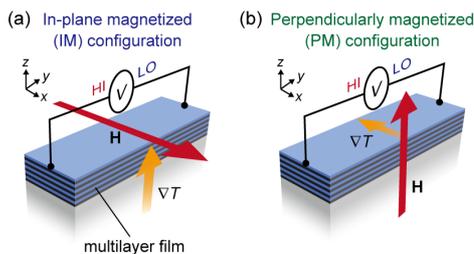


図 2 面内磁化配置(a)と垂直磁化配置(b)の模式図。
[doi:10.1103/PhysRevB.92.094414 より抜粋]

4. 研究成果

(1) フェリ磁性絶縁体/常磁性金属多層膜におけるスピントラッキング効果に関する実験

[Pt/Fe₃O₄] × n 多層膜におけるスピントラッキング効果が、積層数 n の増加に対して単調かつ大幅に増大する現象を発見した。図 3 (b)に示したように、すべての多層膜試料において明瞭なスピントラッキング熱起電力が観測されており、[Pt/Fe₃O₄] × 6 試料においては [Pt/Fe₃O₄] × 1 試料よりも 4 倍程度大きな熱起電力が観測された。本実験で用いた試料系においては熱起電力の増大と内部抵抗の減少とが共存しているため、n = 1 ~ 6 の多層化でパワーファクターは 2 桁向上していることが明らかになった。

本研究では、[Pt/Fe₃O₄] × n 多層膜におけるスピントラッキング効果の磁場・温度勾配・膜厚・積層数・素子構造依存性を詳細に調べ、スピントラッキング熱起電力の増大効果が多層膜界面の境界条件によるスピン流分布の変調に由来することを見出した。これにより、更なる高効率化に向けた指針も得られた。以上の成果などにより、スピントラッキング効果による熱電特性は近年飛躍的に改善している(図 4)。

本成果は、Physical Review B 誌に Rapid Communications として掲載された[発表論文]。この論文は開回路条件において熱起電力を評価した結果をまとめたものであるが、本研究期間終了後の 2016 年 5 月に、同様の [Pt/Fe₃O₄] × n 多層膜における電流-電圧-電力特性を評価した結果が APL Materials 誌に掲載受理された。

(2) 強磁性金属/常磁性金属多層膜における異常ネルンスト効果に関する実験

Pt/Fe 交互積層多層膜における異常ネルンスト効果が、面内磁化配置・垂直磁化配置の

双方において、界面数 N の増加に対して単調に増大することを見出した(図 5)。驚くべきことに、界面密度に依存した異常ネルンスト効果の増大は、Pt/Fe 多層膜のみならず、Au/Fe、Cu/Fe 多層膜においても同様に生じることが明らかになった。これは、多層膜における異常ネルンスト効果の増大は Pt 層の磁気的近接効果とは無関係であり、常磁性金属層の電子構造によらず普遍的に発現することを意味する。その詳細なメカニズムは未だ明らかになっていないが、物質種に寄らないことから、Fe 層のラフネスによって誘起される界面スピン軌道相互作用に由来している可能性を検討している。

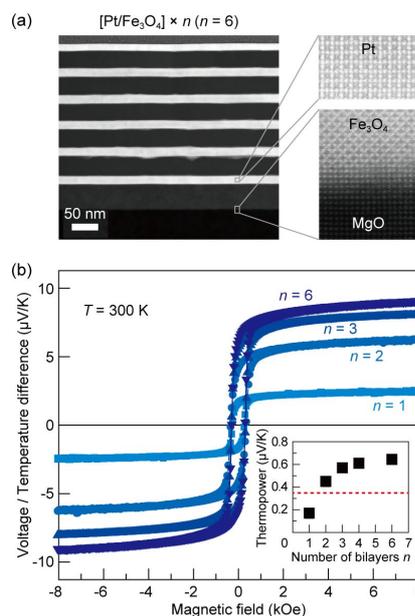


図 3 (a) [Pt/Fe₃O₄] × 6 試料の断面 TEM 像。(b) [Pt/Fe₃O₄] × n 試料におけるスピントラッキング熱起電力の磁場依存性と積層数 n 依存性。
[doi:10.1109/JPROC.2016.2535167 より抜粋]

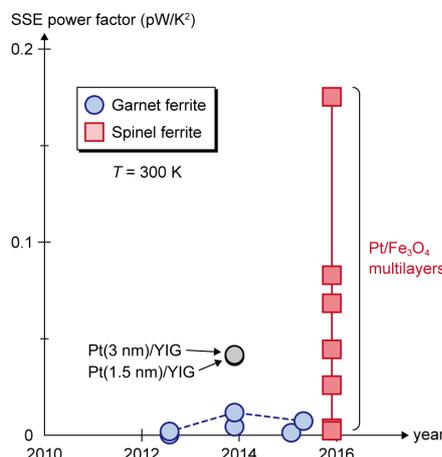


図 4 スピントラッキング素子におけるパワーファクターの年次推移。
[doi:10.1109/JPROC.2016.2535167 より抜粋]

異常ネルンスト効果はスピナーベック効果と組み合わせることで両効果によるハイブリッド熱電変換を実現できるため、強磁性体を含む多層膜電極材料はスピナーベック素子における Pt 代替材料としても期待される。引き続きスピナーベック効果と異常ネルンスト効果の双方について研究を進めることで、両現象の相乗効果を狙いたい。本成果は、Physical Review B 誌に掲載された[発表論文]。

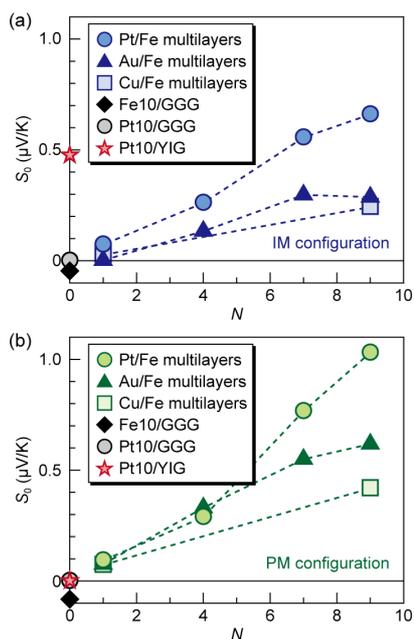


図5 面内磁化配置(a)及び垂直磁化配置(b)における異常ネルンスト熱起電力の界面数 N 依存性。
[doi:10.1103/PhysRevB.92.094414 より抜粋]

(3) まとめと展望

磁性多層膜において、スピナーベック効果と異常ネルンスト効果が増大する現象が見出された。特に、多層化によるスピナーベック効果の出力向上は顕著であり、前述のように熱起電力の増大と内部抵抗の減少の相乗効果によって、パワーファクターの2桁向上が実現された。さらに、このような多層構造を応用すれば、フォノンの散乱を制御して熱伝導率を低減させることも原理的に可能であるため、磁性多層膜は熱電性能指数の構成パラメータをすべて同時に改善できる可能性を秘めている。

以上の成果によってスピナーベック効果の出力は飛躍的に増大したが、熱電応用のためには更なる効率向上が必須である。これまでスピナーベック効果を用いた熱電変換に関しては定性的な議論のみがなされてきたが、最近になって岡山大学の安直らがスピナーベック素子における熱電変換効率を定式化しており、定量的な評価・議論が可能になった。この定式化に基づき、熱電変換

効率におけるボトルネックを特定・解消し、戦略的に材料探索や素子構造の最適化を進めていくことが必要であろう。

5. 主な発表論文等

(雑誌論文)(計17件)

A. Kirihaara, K. Kondo, M. Ishida, K. Ihara, Y. Iwasaki, H. Someya, A. Matsuba, K. Uchida, E. Saitoh, N. Yamamoto, S. Kohmoto, T. Murakami, Flexible heat-flow sensing sheets based on the longitudinal spin Seebeck effect using one-dimensional spin-current conducting films, Scientific Reports, 査読有, 6, 2016, 23114, doi:10.1038/srep23114

R. Ramos, T. Kikkawa, M. H. Aguirre, I. Lucas, A. Anadón, T. Oyake, K. Uchida, H. Adachi, J. Shiomi, P. A. Algarabel, L. Morellón, S. Maekawa, E. Saitoh, M. R. Ibarra, Unconventional scaling and significant enhancement of the spin Seebeck effect in multilayers, Physical Review B: Rapid Communications, 査読有, 92, 2015, 220407(R), doi:10.1103/PhysRevB.92.220407

K. Uchida, T. Kikkawa, T. Seki, T. Oyake, J. Shiomi, Z. Qiu, K. Takahashi, E. Saitoh, Enhancement of anomalous Nernst effects in metallic multilayers free from proximity-induced magnetism, Physical Review B, 査読有, 92, 2015, 094414, doi:10.1103/PhysRevB.92.094414

T. Seki, K. Uchida, T. Kikkawa, Z. Qiu, E. Saitoh, K. Takahashi, Observation of inverse spin Hall effect in ferromagnetic FePt alloys using spin Seebeck effect, Applied Physics Letters, 査読有, 107, 2015, 092401, doi:10.1063/1.4929691

T. Kikkawa, K. Uchida, S. Daimon, Z. Qiu, Y. Shiomi, E. Saitoh, Critical suppression of spin Seebeck effect by magnetic fields, Physical Review B, 査読有, 92, 2015, 064413, doi:10.1103/PhysRevB.92.064413

K. Uchida, J. Ohe, T. Kikkawa, S. Daimon, D. Hou, Z. Qiu, E. Saitoh, Intrinsic surface magnetic anisotropy in $Y_3Fe_5O_{12}$ as the origin of low-magnetic-field behavior of the spin Seebeck effect, Physical Review B, 査読有, 92, 2015, 014415, doi:10.1103/PhysRevB.92.014415

K. Uchida, T. Kikkawa, A. Miura, J. Shiomi, E. Saitoh, Quantitative temperature dependence of longitudinal spin Seebeck effect at high temperatures, Physical Review X, 査読

有, 4, 2014, 041023,
doi:10.1103/PhysRevX.4.041023
K. Uchida, M. Ishida, T. Kikkawa, A.
Kiriwara, T. Murakami, E. Saitoh,
Longitudinal spin Seebeck effect: from
fundamentals to applications, Journal
of Physics: Condensed Matter, 査読有,
26, 2014, 343202,
doi:10.1088/0953-8984/26/34/343202

〔学会発表〕(計 11 件)

K. Uchida, Thermo-spin effects in
magnetic insulators (招待講演), 603.
Wilhelm und Else Heraeus Seminar
“Magnonics - Spin Waves Connecting
Charges, Spins and Photons”,
2016/1/7, Bad Honnef (Germany)

K. Uchida, Spin Seebeck effect: from
fundamentals to applications (招待講
演), Workshop on Non-linear spin-heat
interactions, 2015/9/16, Columbus
(USA)

K. Uchida, Spin-current phenomena at
high magnetic fields and high
temperatures (招待講演), APS March
Meeting 2015, 2015/3/5, San Antonio
(USA)

内田健一, 熱流・光によって駆動される
スピンドYNAMIXとスピンドIN生成
(招待講演), 日本物理学会 2014 年秋季
大会, 2014/9/9, 中部大学 (愛知県春日
井市).

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

内田 健一 (UCHIDA, Ken-ichi)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号: 50633541

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし