

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：13903

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26600100

研究課題名(和文)トンネルスピナーベック効果を用いた熱誘起ME効果材料の創製

研究課題名(英文)Preparation of thermal induced ME effect using tunneling spin Seebeck effect

## 研究代表者

横田 壮司 (Yokota, Takeshi)

名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：10402645

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)：電界(磁界)によって磁界(電界)を誘起することが出来る電気磁気効果を薄膜結晶成長技術によって増幅させた $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Cr}_{203\pm x}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}_{203\pm x}/\text{Cr}_2\text{O}_3$ 積層膜(CR-LN)をゼーベックスピントネル(SST)効果を用いてそのME特性を制御することを本研究の目的として、以下の項目を明らかにした。1) CR-LN膜において熱を用いた発電現象の確認 2) 印加磁場に対して熱誘起電力の減少の確認 3) トンネル材料の変更により発電量の減少の確認、以上の3つの結果から、CR-LNにおける熱による電圧の発生は、トンネル効果、スピン、強誘電体の分極により生じていると結論付けた。

研究成果の概要(英文)：We investigated and demonstrated a thermal field response of an Artificial magneto-electric material  $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{Cr}_{203\pm x}/\text{LiNbO}_3/\text{Cr}_{203\pm x}/\text{Cr}_2\text{O}_3$ (CR-LN) multilayer using Spin Seebeck tunneling effect. We got three results as follows; 1) A voltage was generated by the application of the thermal field in CR-LN system. 2) The voltage was decreased by the application of magnetic fields. 3) The polarization of tunneling layer play an important role for the thermal generated voltage. These three results we can conclude the thermal generated voltage in CR-LN system was closely related the tunneling effect, spin wave spin current, and ferroelectric polarization.

研究分野：固体物理学

キーワード：電気磁気効果 スピナーベック効果 トンネル効果 薄膜結晶成長

1. 研究開始当初の背景

現在、マルチフェロイクスと呼ばれる強磁性・強誘電性を共存した物質が注目されている。これらは、電場や磁場などによりその磁性(導電性)や誘電性(絶縁性)が交差制御可能(ME 効果)であることから新規デバイス応用を目指して盛んに研究されている。これまで我々は、ME 効果物質として従来から知られている  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  に強誘電体  $\text{LiNbO}_3$  をトンネル層として挿入することによりその ME 効果を増大かつ変調できることを明らかにしてきた。一方で、スピンの新しい変換自由度としてスピンゼーベック効果が内田らによって報告された。(K. Uchida, et. al., Nature 455(2008)778 – 781) これは、熱により電荷流を伴わないスピン流を発生させることができるものである。加えてトンネル効果とスピンゼーベック効果を複合したゼーベックスピントンネル(SST)効果が Breton らによって報告された。(Breton et.al. Nature 475(2011)82-85) これは、先のスピンゼーベック効果をトンネル層を介して生じさせるものである。このような背景をもとに本研究の目的を次に示す。

2. 研究の目的

本研究の目的は、我々が発見した上述のトンネル効果によって生じる電場 磁場の変換システムに SST 効果により新しい自由度を加え、熱 スピン - 電場の変換可能な素子とその物性を明らかにすることである。以上を踏まえて具体的に本研究では、 $\text{Cr}_2\text{O}_3 / \text{Cr}_2\text{O}_{3\pm x} / \text{LiNbO}_3 / \text{Cr}_2\text{O}_{3\pm x} / \text{Cr}_2\text{O}_3$  積層膜(CR-LN)を SST 効果を用いてその ME 特性を制御することとし、以下の項目を明らかにすることを目的とした。

- (1)  $\text{LiNbO}_3$  膜厚と SST 挙動の関係
- (2)  $\text{Cr}_2\text{O}_{3\pm x}$  膜厚と  $\text{LiNbO}_3$  分極特性の関係

3. 研究の方法

目的で挙げた3項目に対して以下の実験を行った。その方法を示す。

(1)  $\text{LiNbO}_3$  膜厚と SST 挙動の関係

SST 評価の為に  $\text{Cr}_2\text{O}_3 / \text{Cr}_2\text{O}_{3\pm x} / \text{LiNbO}_3 / \text{Cr}_2\text{O}_{3\pm x} / \text{Cr}_2\text{O}_3$  試料において  $\text{LiNbO}_3$  膜厚を変化させた試料を作製する。In-situ 反射高速電子線回折(RHEED)により膜厚を原子レベルで制御する。得られた試料の SST 特性を評価するために、温度制御可能な真空プローブシステムを設計・作製する。

得られた試料の  $\text{LiNbO}_3$  の膜厚と SST 特性との相関を探索する。

(2)  $\text{Cr}_2\text{O}_{3\pm x}$  膜厚と  $\text{LiNbO}_3$  分極特性の関係

$\text{LiNbO}_3$  の分極が SST 特性に及ぼす影響を探索するために、常誘電体でかつ  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  と格子整合性の高い  $\text{Al}_2\text{O}_3$  をトンネル層とする試料の作製を行った。また、同時にスピン注入源である  $\text{Cr}_2\text{O}_{3\pm x}$  膜厚を変化させた試料の作製を行った。

4. 研究成果

上記の各目的・方法に従って得た結果を項目ごとに示す。

(1)  $\text{LiNbO}_3$  膜厚のみを 5, 7.5, 10, 12.5, 15 nm と変化させた試料を作製した。Fig.1 にそれぞれの試料の上下に温度差を印加際に生じる電圧をプロットしたものを示す。膜厚の増加に伴い生じる電圧が増加することを確認した。その電圧は、膜厚 12.5 nm で最大となり以降減少することを確認した。これは、トンネル効果が生じにくくなるためであると考えている。

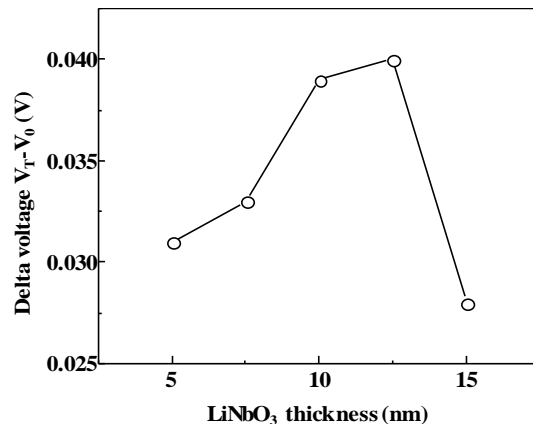


Fig.1  $\text{LiNbO}_3$  thickness dependence of thermal generated voltage

(2) 発生した電圧が SST によるスピン波スピン流であるかを確認するためにハンル効果による実験を行った。ハンル効果とは、発生したスピン波スピン流に磁場を印加した際に、スピンの緩和する現象のことである。

Fig.2 にもっとも電位差が生じた試料のハン

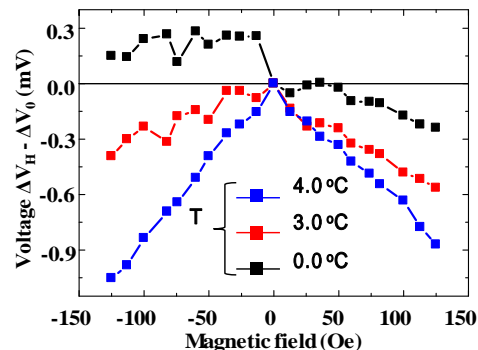


Fig. 2 Thermal generated voltage in a magnetic field (Hanle geometry)

ル効果の結果をしめす。磁場の印加に伴い発生した電圧が減少することが確認できた。このことから電位差はスピン差から発生していることが示唆されて。

(3) LiNbO<sub>3</sub> 層を Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に変えた試料の作製を行った。また、同時に Cr<sub>2</sub>O<sub>3±x</sub> 層厚を変化させた試料の作製を行った。Cr<sub>2</sub>O<sub>3±x</sub> 層厚の変化は、熱による起電力の絶対値に影響を及ぼさなかった。これは、界面のスピン量と安定性が重要で、発生源となるスピン量は重要ではないことが示唆される。Fig. 3 に Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> に変えた試料の熱起電力の結果を示す。試料に印加した温度差が大きくなるにつれて発生電圧が大きくなることがわかった。一方で、LiNbO<sub>3</sub> を持ちいた場合と比較して、発生電圧が 1/10 程度に減少していることが明らかになった。このことから、誘電体の分極量が界面のスピン状態を保持するのに重要な役割を担っていることが示唆された。

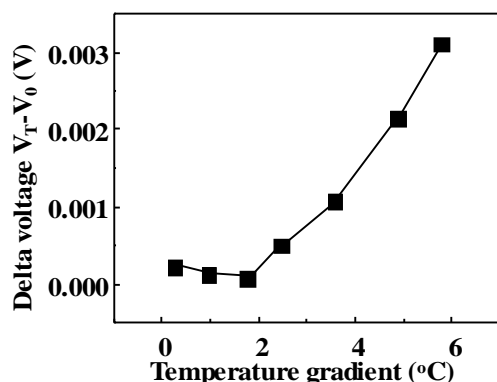


Fig.3 Thermal generated voltage of the Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> /Cr<sub>2</sub>O<sub>3±x</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cr<sub>2</sub>O<sub>3±x</sub>/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

以上の結果から、CR-LN における熱による電圧の発生は、トンネル効果、スピン、強誘電体の分極により生じていると結論付けた。このことから、効果は極めて小さいものの、SST によりその ME 効果を制御することが可能であることを示した。

#### 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. K. Ichikawa, T. Yokota, and M. Gomi  
"Electric and Magneto-electric properties of Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films", e-journal of Surface Science and Nanotechnology Vol. 12 (2014) 373-376 (査読有)
2. T. Yokota, I. Tsuboi, and M. Gomi  
"Epitaxial Growth of the Electric /Magnetic Properties of Magneto-electric Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Thin films", Journal of the Korean Physical Society Vol. 68 (2015) 143-146 (査読有)

[学会発表](計 15 件)

1. 坪井泉名・横田壮司・五味學  
“エピタキシャル Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜における応力誘起電気磁気特性”第 46 回 東海若手セラミスト懇話会 2014 夏期セミナー、滋賀、2014/6/26-6/27
2. Takehi Yokota, Koji Ichikawa, and Manabu Gomi “LiNbO<sub>3</sub> Thickness dependence of Magneto Transport Properties of Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/LiNbO<sub>3</sub>/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Epitaxial Multi-layer”, The 15th IUMRS-ICA, Fukuoka, 2014/8/24-8/30
3. 横田壮司・坪井泉名・五味學  
“SrTiO<sub>3</sub>:Nb(111)基板上への電気磁気積層膜 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/LiNbO<sub>3</sub>/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> のエピタキシャル成長”日本セラミックス協会 第 27 回秋季シンポジウム、鹿児島、2014/9/9-9/11
4. Takeshi Yokota (Invited)  
“Thermoelectric Properties of Bi-based Magnetic Oxide”  
6<sup>th</sup> International work shop on advanced ceramics, Germany, 2014/9/29-9/30
5. Takeshi Yokota, Izuna Tsuboi, Manabu Gomi “Compressive stress induced ferromagnetism and magneto-electric effect in magneto-electric Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> epitaxial film”59<sup>th</sup> Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, USA, 2014/11/03-11/07
6. Takeshi Yokota, Izuna, tsuboi, Manabu Gomi, “Epitaxial growth and the electric/magnetic properties of mabneto-electric Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film”, The 31th International Korea-Japan Seminar on Ceramics, Korea, 2014/11/26-11/29
7. 坪井泉名・横田壮司・五味學  
“非対称応力誘起磁性を有する Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/LiNbO<sub>3</sub>/Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層膜における磁気・電気特性”平成 26 年度 日本セラミックス協会東海支部学術研究会発表、愛知、2014/12/6
8. 坪井泉名・横田壮司・五味學  
“エピタキシャル Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/LiNbO<sub>3</sub> 多層膜における磁気輸送特性”日本セラミックス協会 2015 年 年会、岡山、2014/3/18-3/20
9. Izuna Tsuboi, Takeshi Yokota, Manabu Gomi  
“Magneto-transport properties of artificial magneto-electric materials: Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/LiNbO<sub>3</sub> epitaxial multilayers” 6<sup>th</sup> U3 Materials Design Forum, Osaka, 2015/3/30
10. 横田壮司・坪井泉名・平松和樹・五味學  
“電気磁気エピタキシャル Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/LiNbO<sub>3</sub> 多層膜における磁気輸送特性”第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、愛知、2015/9/13-9/16
11. 横田壮司(依頼講演)  
“原子層制御スパッタリング法による交差相関機能性材料の作製”日本セラミックス協会 第 28 回秋季シンポジウム、富山、2015/9/16-9/18

12. 横田壮司・坪井泉名・五味學  
“強誘電体トンネル層挿入  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  膜における非対称バンド構造の制御”日本セラミックス協会 第 28 回秋季シンポジウム、富山、2015/9/16-9/18
13. Takeshi Yokota(Invited)  
“Magneto-Transport Properties of Magnetoelectric Multi-layer:  $\text{Cr}_2\text{O}_3/\text{LiNbO}_3$ ”, JK-Ceramics 32, Nigata, 2015/11/18-11/20
14. 横田壮司・坪井泉名・平松和樹・五味學  
“強誘電体トンネル層を用いたスピントラニオントンネル効果”第 5 4 回セラミックス基礎討論会、佐賀、2015/1/7-1/8
15. Takeshi Yokota(Invited)  
“Magnetic, Electric and Thermal Field Response of Artificial Magneto-electric Epitaxial Multilayer”, EMN-Meeting on Ceramics, Hong Kong, 2016/1/26-1/29

〔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〕  
ホームページ等

[http://nitzy.mse.nitech.ac.jp/~gomi lab/  
Spin\\_Team/index2.html](http://nitzy.mse.nitech.ac.jp/~gomi lab/Spin_Team/index2.html)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

横田 壮司 (YOKOTA, Takeshi)  
名古屋工業大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：10402645