

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 30 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656002

研究課題名(和文) 垂直磁化薄膜における異常ネルンスト効果の微視的な機構解明

研究課題名(英文) Microscopic origin of anomalous Nernst effect in perpendicularly magnetized thin films

研究代表者

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、異常ネルンスト効果の物理的機構解明と異常ネルンスト効果に基づく熱電効果の実証を行った。その結果、磁気異方性と異常ネルンスト電圧の関係や、異常ネルンスト電圧の温度依存性などの基本的な物理パラメータの検証に成功した。また、異常ネルンスト効果を用いた熱電変換デバイスへの応用に向けたFePt細線の連結素子を試作し、同効果を用いた高効率熱電変換素子の実現が期待される結果が得られた。

研究成果の概要(英文)：This research aimed to clarify the physical mechanism of anomalous Nernst effect and to demonstrate an application of the effect to thermoelectric conversion devices. Magnetic anisotropy dependence and temperature dependence of anomalous Nernst effect were precisely investigated. The thermopile device including FePt wires enhanced the anomalous Nernst voltage effectively, which paves the way for realizing novel thermoelectric applications employing the anomalous Nernst effect.

研究分野：工学

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 熱流磁気効果

1. 研究開始当初の背景

古くから知られる熱流磁気効果の一つに、ネルンスト効果がある。この効果は、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、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一つであるが、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あるいは発電システムに応用される可能性があると言われている。しかしながら、ネルンスト効果の発生に係る微視的な起源の解明はほとんどなされていない。我々は、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垂直方向に電流を生じさせ、これが異常ネルンスト効果の起源であるという仮説を立てた。一方、異常ネルンスト効果における熱流を電流に置き換えた場合、異常ホール効果が観測される。両効果の起源に、スピン軌道相互作用が関与していることは明らかである。しかしながら、異常ホール効果の熱キャリアは伝導電子（ホール）であるのに対し、異常ネルンスト効果の熱キャリアが伝導電荷・フォノン・マグノンのいずれであるのかは分かっていない。このような観点から、本研究では、高い垂直磁気異方性を示す $L1_0$ 型 FePt 規則合金薄膜の異常ネルンスト効果を詳細に調べることにより、同効果の微視的な機構の解明を行うことを目的とした。同時に、異常ネルンスト効果と異常ホール効果の相関を探究することが、起源の解明に大きく資すると考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、垂直磁化薄膜を用いて、異常ネルンスト効果のミクロスコピックな機構の解明を行うことである。近年、電子のスピンと熱との相関が注目されている。スピンの自由度を取り入れることによって、高効率で多機能性を有する新しいタイプの熱電変換素子開発の可能性がある。一方、熱磁気効果の一つであるネルンスト効果は古くから知られた効果であるが、いまだその起源にはよく分からない点が多い。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流の逆スピンホール効果であるという仮説に基づいて、高い異方性を示す $L1_0$ 型 FePt 規則合金薄膜の異常ネルンスト効果を詳細に調べる。特に、異常ホール効果との対比を行うことにより、熱流のキャリアと誘導起電力の関係を明らかにする。本研究を通し、熱磁気効果の総合的な理解を目指す

ことで、現行の熱電変換素子を凌駕する新たな素子の開発につなげる。

3. 研究の方法

異常ネルンスト効果を定量的に評価する装置の整備を行った。また、 $L1_0$ 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。垂直磁化膜を用いた異常ネルンスト効果の測定は、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。微細素子の作製は、電子線リソグラフィを用いた微細加工により行った。

4. 研究成果

(1) 異常ネルンスト効果の物理的機構解明

典型的な垂直磁気異方性材料である、 $L1_0$ 型 FePt エピタキシャル薄膜を用いて、異常ネルンスト効果(図1)の評価を行った。磁気異方性と異常ネルンスト電圧の関係や、異常ネルンスト電圧の温度依存性などの基本的な物理パラメータの検証を行った。まず、異常ネルンスト効果を測定するシステムを構築した(図2)。この装置を用

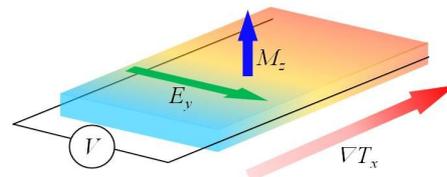


図1：異常ネルンスト測定概念図。

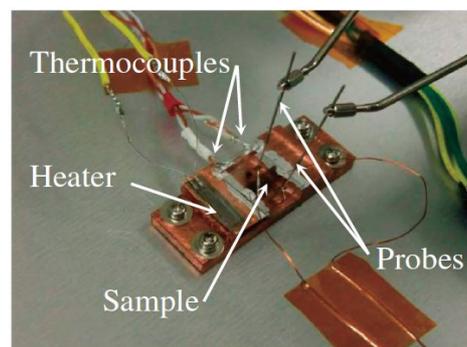


図2：異常ネルンスト効果の測定装置の写真。

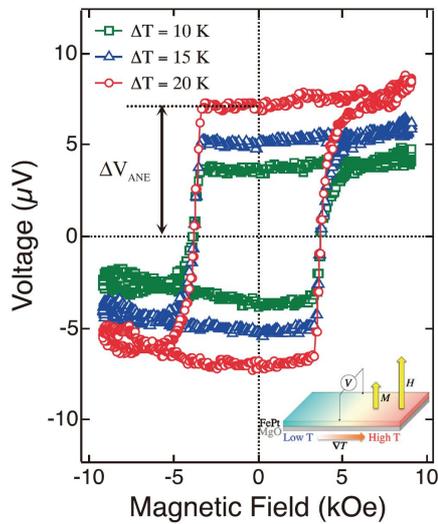


図 3: FePt 薄膜の異常ネルンスト測定結果。

いて、エピタキシャル L1₀ 型 FePt 薄膜の異常ネルンスト効果の測定を行った (雑誌論文)。図 3 に示すように、磁場の掃引に対して、電圧にヒステリシスが観測され、その大きさは温度差に比例して増加することが分かった。

次に、L1₀ 型 FePt 薄膜における異常ネルンスト効果の磁気異方性エネルギー依存性を調べた。磁気異方性定数の異なる FePt 薄膜について、異常ネルンスト効果の大きさを比較したところ、全ての温度領域において、磁気異方性が小さい試料の方が異常ネルンスト効果の大きさは大きいことが明らかになった。これらの結果は、FePt 薄膜内にスピン波が励起され、スピン波スピ流が異常ネルンスト効果に寄与している状況を示唆する結果である。続いて、温度依存性を調べたところ、温度の減少にともない、異常ネルンスト係数も著しく減少することが分かった。室温から 100 K 付近までは磁気異方性エネルギーが大きいほど異常ネルンスト係数が小さく、100 K 以下ではほぼゼロに漸近することが分かった。また、50 K 以上の温度領域では理論予測値より大きな異常ネルンスト電圧が観測されることが分かった (図 4)。さらに、異常ネルン

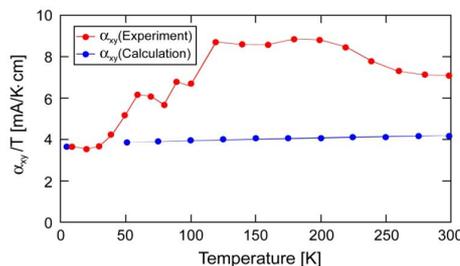


図 4: FePt における異常ネルンスト効果の温度依存性測定結果と理論計算結果の比較図。

スト効果と異常ホール効果を比較し、モットの関係式による評価を行ったところ、低温においてはモットの関係式によりよく説明できることがわかった。一方、高温においては、ネルンスト効果には電荷スピ流以外のキャリアの寄与が示唆された。また、FePt 薄膜の膜厚依存性を調べた結果、7 ~ 40 nm の範囲では膜厚に依存せず、その大きさはほぼ一定であるのに対し、膜厚 7 nm 以下では異常ネルンスト効果の大きさが増加することがわかった。さらに、異常ネルンスト効果の材料依存性を調べたところ、材料のスピン軌道相互作用の大きさと異常ネルンスト効果の大きさに相関が見られた。

(2) 異常ネルンスト効果に基づく熱電効果の実証

ナノサイズの幅を持つ FePt ワイヤを折り返して非磁性の Cr ワイヤと交互に直列に接続したサーモパイル素子を作製し、熱勾配によりどの程度の異常ネルンスト電圧が生じるのかを確かめた (雑誌論文)。その結果、図 5 に示すように、FePt ワイヤの折り返し数に比例して、発生する異常ネルンスト電圧は増加することが分かった。この結果は、同効果を用いた高い効率をもつ熱電変換素子の実現を示唆するものである。また、非磁性 Cr を FePt と逆符号のネルンスト係数をもつ MnGa 合金薄膜に替えて素子を作製し、測定を行ったところ、さらに異常ネルンスト電圧は増加することが分かり、集積性の高い熱電素子の作製が可能であることを示すことができた。さらに、保磁力の異なる 2 種類の FePt ワイヤを交互に直列接続することにより、発生電圧をより高めることにも成功した。

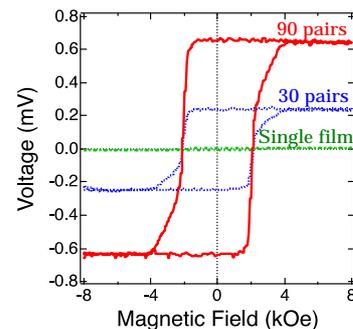


図 5: FePt-Cr サーモパイル素子における異常ネルンスト効果の測定結果。

以上、本研究では、異常ネルンスト効果の物理的機構解明と異常ネルンスト効果に基づく熱電効果の実証を行った。その結果、磁気異方性と異常ネルンスト電圧の関係や、異常ネルンスト電圧の温度依存性などの基本的な物理パラメータの検証に成功した。また、異常ネルンスト効果を用いた熱電変

換デバイスへの応用に向けた素子の試作を行い、同効果を用いた高効率熱電変換素子の実現が期待される結果が得られた。当初の研究目的である、異常ネルンスト効果のミクロスコピックな機構の十分な解明にまで至らなかったが、得られた知見は将来的に、本研究を発展させて熱磁気効果の総合的な理解を目指す研究に大いに資するものである。

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)

“Anomalous Nernst Effect in L_{10} -FePt/MnGa Thermopiles for New Thermoelectric Applications”, Y. Sakuraba, K. Hasegawa, M. Mizuguchi, T. Kubota, S. Mizukami, T. Miyazaki, and K. Takanashi, Applied Physics Express, 査読有, 6 (2013) 033003-1-4, 10.7567/APEX.6.033003.

“Anomalous Nernst Effect in an L_{10} -Ordered Epitaxial FePt Thin Film”, M. Mizuguchi, S. Ohata, K. Hasegawa, E. Saitoh, and K. Takanashi, Applied Physics Express, 査読有, 5 (2012) 093002-1-3, 10.1143/APEX.5.093002.

[学会発表](計10件)

M. Mizuguchi, Y. Sakuraba, and K. Takanashi, “Thermomagnetic effects in ferromagnetic metallic thin films and their application”, Energy, Materials and Nanotechnology (EMN) Spring Meeting 2014 (invited), 2014年03月02日, Las Vegas (USA).

水口将輝、長谷川浩太、桜庭裕弥、内田健一、齋藤英治、窪田崇秀、水上成美、宮崎照宣、高梨弘毅, “強磁性金属薄膜における熱磁気効果”, 日本磁気学会 第193回研究会/第47回スピンエレクトロニクス専門研究会(招待講演), 2013年12月17日, 東京(日本).

水口将輝、長谷川浩太、桜庭裕弥、内田健一、齋藤英治、高梨弘毅, “垂直磁化金属薄膜における異常ネルンスト効果の温度依存性”, 日本物理学会 2013年秋季大会, 2013年09月26日, 徳島(日本).

水口将輝、長谷川浩太、桜庭裕弥、高梨弘毅, “強磁性規則合金における異常ネルンスト効果と熱電応用”, 日本熱電学会第17回研究会(招待講演), 2013年08月27日, 東

京(日本).

M. Mizuguchi, K. Hasegawa, Y. Sakuraba, T. Kamada, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, “Anomalous Nernst and Hall effects in ferromagnetic metallic thin films with perpendicular magnetization”, The 8th International Symposium on Metallic Multilayers (MML2013), 2013年05月23日, Kyoto (Japan).

K. Hasegawa, Y. Sakuraba, M. Mizuguchi, T. Kubota, S. Mizukami, T. Kojima, T. Kamada, T. Miyazaki, and K. Takanashi, “Anomalous Nernst effect for thermoelectric applications”, International Conference of the Asian Union of Magnetism Societies (ICAUMS 2012), 2012年10月4日, Nara (Japan).

K. Hasegawa, M. Mizuguchi, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, “Systematic investigation of anomalous Nernst and Hall effects in L_{10} -FePt films”, International Union of Materials Research Societies-International Conference on Electronic Materials 2012 (IUMRS-ICEM 2012), 2012年09月24日, Yokohama (Japan).

K. Hasegawa, M. Mizuguchi, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, “Thermomagnetic effects in perpendicularly magnetized epitaxial FePt thin films”, The 19th International Conference on Magnetism (ICM 2012), 2012年07月12日, Busan (Korea).

M. Mizuguchi, K. Hasegawa, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, “ L_{10} -ordered alloy as a material for spintronics”, 4th International Workshop on Spin Caloritronics (invited), 2012年06月04日, Sendai (Japan).

M. Mizuguchi, K. Hasegawa, K. Uchida, E. Saitoh, and K. Takanashi, “Anomalous Nernst and Hall effects in perpendicularly magnetized epitaxial FePt thin films”, IEEE International Magnetism Conference (INTERMAG 2012), 2012年05月08日, Vancouver (Canada).

[産業財産権]

出願状況(計1件)

名称: 熱電発電デバイス
発明者: 桜庭裕弥、長谷川浩太、水口将輝、

高梨弘毅

権利者：東北大学

種類：特許

番号：特許願 2012-215334 号

出願年月日：2012 年 09 月 28 日

国内外の別：国内

6 . 研究組織

(1)研究代表者

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