

Experimental Characterization of Spin-Thermoelectricity and its Energy Conversion

Inseon Oh, Hyeonjung Jeong, and Jung-Woo Yoo*

Department of Materials Science and Engineering, Ulsan National Institute of Science and Technology, Ulsan 44919, Korea

(Received 13 October 2020, Received in final form 19 October 2020, Accepted 19 October 2020)

In this work, we showed the experimental methodology for the precise characterization of the spin thermoelectric device of longitudinal spin Seebeck geometry, including heater design, temperature calibration, and the estimation of the spin-thermoelectric energy conversion. In particular, the developed on-chip heater design allows nominal heat dissipation due to direct contact between the device and heat source, and its simultaneous use for temperature sensor based-on temperature dependent resistance provides precise calibration for the thermal gradient applied on thin magnetic layer.

Keywords : spin Seebeck effect, spin thermoelectricity, magnon, temperature gradient calibration

스핀열전의 실험적 측정과 에너지 변환 효율에 대한 고찰

오인선 · 정현정 · 유정우*

울산과학기술원 신소재공학과, 울산시 울주군 유니스트길 50, 44919

(2020년 10월 13일 받음, 2020년 10월 19일 최종수정본 받음, 2020년 10월 19일 게재확정)

본 논문에서는 박막 형태의 평판형 구조에 적합한 스핀열전 소자의 정확한 에너지 변환 효율 측정을 위한 히터 설계법과 자성 부도체에서의 온도구배 및 스핀열전효율 계산에 관한 리뷰를 담고 있다. 특히, 금속 전극을 이용한 on-chip 구조 히터는 샘플과 열원 사이의 간격이 없기 때문에 접촉면에서의 열손실을 최소화 할 수 있고, 동시에 온도변화에 따른 저항으로부터 온도센서로 활용 가능하기에 얇은 자성 박막에 인가되는 온도구배의 정확한 측정법을 제시한다.

주제어 : 스핀제백효과, 스핀열전, 매그논, 온도구배측정

I. 서 론

1. 스핀열전

스핀열전(spine thermoelectrics)은 온도구배로 생성되는 스핀류(spine flow)를 매개로 열에너지를 전기에너지로 변환시키는 새로운 형태의 열전(thermoelectrics) 에너지 변환이다[1-5]. 일반적으로 열전소자의 에너지 변환 성능지수(figure of merit)는 $Z_{TE}T = S^2\sigma/\kappa T$ (S 는 제백상수(Seebeck coefficient), σ 는 전기전도도, κ 는 열전도도)로 나타내어진다. 주로 반도체 소재를 사용하는 열전 소자는 제백상수와 전기전도도의 trade-off 관계로 인하여 power factor($P = S^2\sigma$)를 향상시키는데 한계가 있다. 또한 Wiedemann-Franz law($\kappa_e/\sigma = L_e T$; L_e 은 로렌츠 상수)에 따른 자유전자의 열전도도(κ_e)와 전기전도도의

비례 관계로 인해 $Z_{TE}T$ 값의 향상에 어려운 점이 있다. 스핀열전 변환은 각기 다른 열전달 매개체와 전류전달 매개체를 이용하므로 열전 효율 향상에 있어서 이러한 근본적인 제약으로부터 자유롭기에 기존 열전 소자의 한계를 넘어설 수 있는 새로운 에너지 변환으로 기대되어 왔다.

스핀열전 소자의 기본적인 구동원리는 자성체에 온도구배가 가해지면 스핀전압이 생성되는 스핀제백 현상(spine Seebeck effect)과 이로 인해 발생된 스핀류가 인접한 도체에 주입되어 스핀-전하 변환으로부터 전기에너지를 생성하는 것이다[2]. 주로 자성절연체(ferromagnetic insulator; FMI)/중금속(heavy metal; HM) 이중층에서 효과적으로 일어나는데, FMI에 가해진 온도구배로 부터 발생된 매그논(magnon)의 흐름이 인접한 HM 층으로 스핀운동량을 전달하는 열적 스핀 펌핑(thermal spine pumping)이 일어나고, Pt, W, Ta 등의 스핀 홀 효과(spine Hall effect; SHE)가 큰 HM 층에서 역스핀홀(inverse spine Hall effect; ISHE) 효과에 의해 전하전류로 변환되게 된다[6]. 결

과적으로, 스핀열전 소자는 FMI의 열전도도와 HM의 전기전도도를 증감시키는 일이 자유롭기 때문에 각각의 factor들 간의 독립적 설계가 가능하다. 스핀열전 효율을 증대시키기 위해서는 자성층으로서 열전도가 작고 매그논이 효과적으로 발생 및 수송되는 FMI가 적합하며, HM의 경우엔 스핀-전하 변환을(spin Hall angle, θ_{SH})이 큰 물질일수록 유리하다. 또한, 소자적인 측면을 살펴보면 온도구배와 수평 방향으로 전압이 발생하는 Bulk P-N junction으로 구성된 기존의 열전소자와는 달리, 스핀열전 소자는 가해진 온도구배 방향과 HM에서 ISHE에 의해 발생된 전력의 방향이 서로 수직 관계($\vec{E}_{ISHE} \sim \vec{J}_s \times \vec{\sigma}$; \vec{J}_s 는 스핀전류, $\vec{\sigma}$ 는 스핀편향도)로 작용하는 덕분에 얇은 평판형 구조의 소자 제작에 유리하다. 이로 인하여 스핀열전 소자의 대면적화 및 투명화를 가능하게 하여 전자기기 및 다양한 분야에 응용이 기대되고 있다[7]. 또한, 스핀트로닉스 소자 연구에 있어서, 강자성 공명(Ferromagnetic resonance) 실험과 함께 간단한 방법으로 스핀주입 및 스핀홀 각을 관측 및 분석 연구에 널리 활용되어지고 있다.

FMI/HM로 이루어진 스핀열전 소자의 에너지 변환 효율을 측정할 때는 Longitudinal spin Seebeck effect(LSSE) 구조를 주로 이용한다. Fig. 1a에 나타난 것처럼 온도구배가 소자 전체의 수직방향으로 일어나기 때문에 LSSE 구조에서의 스핀제백 상수(S_{LSSE})는 다음과 같이 표현된다.

$$S_{LSSE} = \frac{E_{LSSE}}{\nabla T_{FM}} = \frac{\Delta V_{LSSE}/L_y}{\Delta T_{FM}/L_z} \quad (1)$$

여기서 L_y 와 L_z 는 각각 HM의 길이와 FM의 두께이다. 스핀제백 상수는 자성층의 온도구배인 ΔT_{FM} 의 값에 따라 크게 달라질 수 있는데, 특히 수 nm~수 μm 수준의 얇은 자기부도체의 온도구배를 정밀하게 측정해야 스핀열전 상수의 정확

한 비교분석이 가능하다. 이를 위해서 실험실 단위에서 스핀열전소자에 열을 가하고, 자성체의 온도구배를 측정하는 방법으로 전류의 흐름 방향에 따라 가열 및 냉각이 가능한 펠티어(peltier) 소자를 부착하여 온도구배를 가하고 열전대(thermocouple)를 이용한 온도측정 방법이 이용되어 왔다[8]. 그 외, 레이저와 같은 광원으로부터 온도구배를 가하고 시물레이션으로 온도를 계산해보는 방법[9,10] 등이 이용되어 왔다. 하지만 이러한 측정 방법의 경우 소자와 열원 사이에 열손실(heat loss)이 많아 온도측정에 오차범위가 클 것으로 예상된다. 본 논문에서는 온칩(on-chip) 구조의 히터(heater)를 이용하여 소자와 히터간의 열손실을 최소화 하며, 온도구배를 가하는 동시에 온칩 히터를 온도 센서(sensor)로 활용하여 정밀한 온도측정을 가능하게 하는 실험적 방법에 대해 소개하고 제작된 스핀열전 소자의 에너지 변환효율에 대해 논의하였다.

II. 실험 방법

FMI 층으로 Yttrium-Iron-Garnet($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, YIG)를 용액공정으로 합성하기 위해 Yttrium nitrate($\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 99.99%)와 Iron nitrate($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, 99.99%) 파우더를 3:5의 비율로 citric acid에 혼합하고, 증류수를 더하여 1M의 혼합용액을 27 °C에서 18시간, 그리고 80 °C에서 24시간 이상을 교반하여 균일한 용액을 준비 한다[11]. 기판은 표면 산화된 실리콘 기판을 사용하였고, 기판의 표면을 친수성으로 만들기 위한 -OH 기 형성단계로 공기 중에서 600 °C 열처리를 2시간 이상 처리했다. 표면이 충분히 친수성화 된 기판에 준비된 1M의 혼합용액을 도포한 후, 4000 rpm 40초로 스핀코팅하고 150 °C에서 열처리를 하였다. 스핀코팅과 열처리를 5회 반복해 준 후, 공기 중에 노출된 퍼니스(furnace)에서 800 °C까지 5 °C/

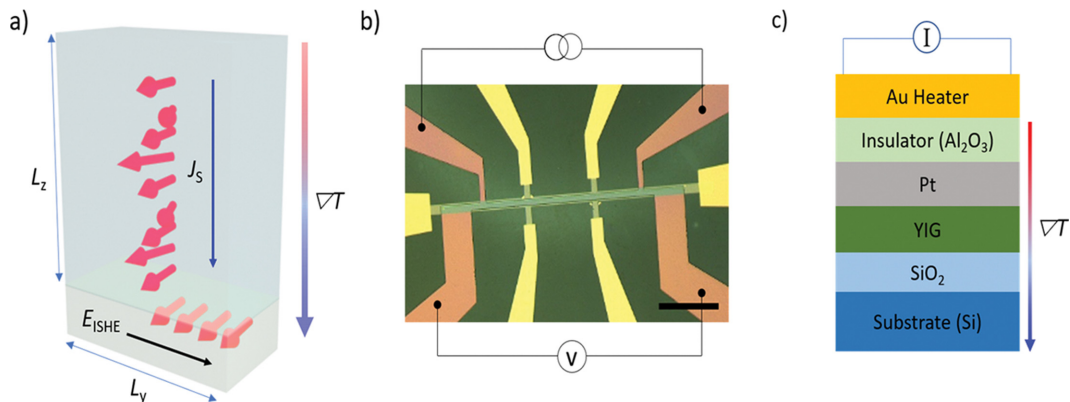


Fig. 1. (Color online) (a) Schematic illustration of spin thermoelectric energy generation associated with spin Seebeck effect and inverse spin Hall effect in FMI/HM. (b) Optical image of spin thermoelectric device with on-chip heater. Scale bar is 100 μm . (c) Schematic illustration of the fabricated device structure for the characterization of spin-thermoelectricity.

min 속도로 온도를 증가시켜 결정화 공정을 진행했다. 완성된 YIG 박막은 두께가 20 nm이며 그위에 Pt 10 nm를 전자빔 증착기(e-beam evaporator)를 이용하여 증착하였다. 완성된 YIG/Pt 이중층 위에 온칩 히터를 적층하기 위해 포토리소(Photo-litho) 공정을 이용하여 Pt 박막과 같은 너비가 되게 패턴을 만들었다. 그 다음 절연체 역할을 할 Al₂O₃ 100 nm와 줄히팅(Joule heating) 역할을 할 Au 30 nm를 증착한 후, lift off 공정을 진행하여 소자를 완성하였다. 완성된 소자의 구조는 Fig. 1b의 광학 이미지에서 보는 바와 같다.

스핀열전 측정을 위해서 줄히팅 전류소스(current source)로 Keithley 2636A를 사용하였고, 발생된 전압 측정은 Keithley 2182 nano-voltmeter를 사용하였다. 정확한 열전특성 측정을 위해 압력, 온도, 자기장 컨트롤이 가능한 PPMS (physical properties measurement system, Quantum Design) 안에서 300 K, 10⁻² Torr 하에서 모든 스핀열전소자의 측정을 진행하였다. Fig. 1a에 나타낸 것처럼 스핀 방향에 따른 전압 변화를 측정하여 스핀열전상수 값을 구하기 위해, FMI의 포화 자

기장 만큼의 크기를 +B에서 -B 방향으로 변화시켜가며 전압차를 측정하였다. 그리고 정확한 스핀열전 상수를 구하기 위해서 히팅 온도 증가에 따른 전위차의 선형적 변화를 확인해야 하므로, 줄히팅 도선인 Au에 가해지는 전류를 점차 증가시켜서 온칩 히터의 온도 증감에 따른 스핀열전 전위차를 측정하였다.

III. 결과 및 토의

Fig. 1c는 YIG/Pt 스핀열전 소자의 성능 평가를 위해 온칩 히터를 적층한 소자의 모식도를 보여준다. 맨 위층의 Au에 전류를 흘려주면 줄히팅으로 인해 샘플에 수직 방향으로 온도구배가 가해진다. 이에 따라 YIG에 전해진 온도구배로 인해 스핀류가 형성되고, Pt에서 스핀-전하변환이 일어나기 때문에 스핀열전 전압을 측정할 수 있게 된다. 이때, Au에 가해진 전류가 Pt로 누설되지 않도록 절연층으로 Al₂O₃ 층을 삽입하였다. 이와 같이 온칩 히터를 활용하여 온도 구배를 가

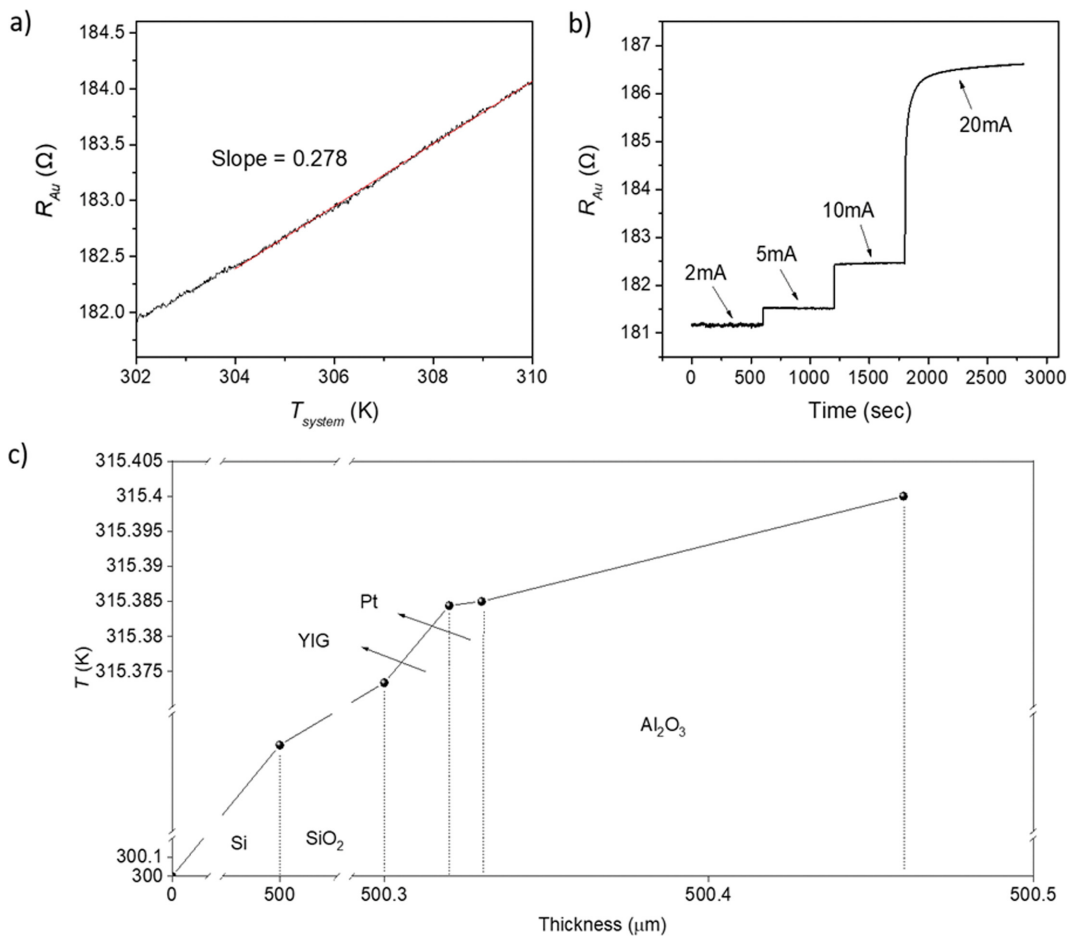


Fig. 2. (Color online) (a) Temperature dependent resistance of Au heater. (b) Joule heating behavior by increasing current in Au heater. (c) Temperature gradient applied on each layer for heating current of $I = 20$ mA. The calculated temperature difference applied to YIG layer is 0.011 K.

하는 경우 각 층간의 열적 손실이 최소화 된다. 동시에 Au 히터를 온도 센서로 활용하기 위해 온도에 따른 Au 히터선의 저항 변화가 선형적으로 나타나는 것을 확인 하였다. Fig. 2a에 나타낸 것처럼 System 온도에 따른 저항 변화의 기울기를 측정하여 줄히팅 시 Au 도선의 저항 측정을 바탕으로 정밀한 온도를 계산 할 수 있게 된다. Fig. 2b는 Au에 가해진 전류를 증가시킴에 따른 저항변화를 나타낸 것인데, 이는 줄히팅 파워가 I^2 에 비례하기 때문에 ($P = I^2R$), Au 도선의 저항 및 온도 변화도 I^2 에 비례한 것을 관측 할 수 있다. 따라서 Fig. 2a의 온도변화에 따른 저항변화를 참조하여 히팅 전류에 따라 온칩 Au 히터 부분의 온도를 정확하게 측정 할 수 있게 된다. 다음으로는 푸리에 법칙(Fourier's Law) ($q_x = -\kappa \frac{dT}{dx}$)를 이용하여, 열전도도(κ)와 각 층의 두께에 따라 걸린 온도 구배를 비례식으로 계산할 수 있게 된다. Fig. 2c에는 히팅 전류가 20 mA 일 때, 각 층에 구배된 온도를 계산한 값들을 두께에 따라 나타내었다. Fig. 3a에서는 YIG(20 nm)/Pt(10 nm)

Au 소자에서 히터에 가해진 전류에 따른 히터의 저항 변화와 그에 따른 온도 변화 그리고 측정된 ΔV_{LSSE} 값이 모두 I^2 에 비례하는 것을 확인할 수 있다. 그러므로 Fig. 3b에서와 같이 측정된 ΔV_{LSSE} 와 ΔT_{FM} 의 값이 선형적인 관계를 보여준다. 그리고, 소자의 크기에 따라 재 규격화된 스핀제백 상수는 $S_{LSSE} = 80.4 \text{ nV/K}$ 으로 계산되었다.

스핀열전 소자가 실제 응용되기 위해서는 소자구조의 특성을 살려 대면적화 공정개발과 함께 효율 증가를 위한 소재개발이 필요하다. 일반적으로 FMI 내부에서 열적으로 여기(excitation)된 매그논이 진행되는 거리 이하범위 내에서는 FMI의 두께가 증가할수록 스핀열전 전압은 점차 증가한다 [3,12]. 그리고 HM의 두께가 감소할수록 스핀홀각과 저항이 증가하여 발생하는 전압량이 지수(exponential) 함수를 따라 증가한다. 그렇다면, 스핀열전 소자의 현주소를 파악해보자. 가장 많이 연구되어있는 YIG/Pt 이중접합구조에서 YIG의 매그논 확산거리(diffusion length) ($\sim 1 \mu\text{m}$) 보다 훨씬 작은 두께인 20 nm로 고정하고, Pt의 두께(l_z)를 0.8 nm, 1.5 nm, 10 nm로 증착하여 YIG/Pt의 스핀열전 효율의 범위를 측정해보았다. 스핀열전 성능지수($Z_{SSE}T$)는 다음과 같이 표현되며,

$$Z_{SSE}T = \frac{(S_{LSSE})^2}{\kappa_F \rho_p} T \quad (2)$$

여기서 κ_F 는 자성박막의 열전도도, ρ_p 는 HM의 전기전도도이다. Pt 박막의 두께가 0.8 nm인 경우 측정된 $\rho_p = 1.6 \mu\Omega\text{m}$, $S_{LSSE} = 5710 \text{ nV/K}$ 값을 대입하여 $Z_{SSE}T$ 를 계산하면 300 K에서 약 8.73×10^{-4} 값을 얻었다. 1.5 nm의 Pt 경우, 측정된 $S_{LSSE} = 2412 \text{ nV/K}$ 이며 300 K에서 약 1.56×10^{-4} 의 $Z_{SSE}T$ 값을 얻었다. 10 nm의 경우, 측정된 $S_{LSSE} = 80.4 \text{ nV/K}$ 이며 약 1.73×10^{-7} 의 $Z_{SSE}T$ 값이 얻어진다. 스핀열전의 효율은 다음과 같이 나타내어지며,

$$\eta_{SSE} = \eta_C \left(\frac{l_z}{L_z} \right)^2 \frac{1}{\xi} \left(\frac{1-r^*}{1+r^*} \right) \quad (3)$$

여기서 η_C 는 Carnot efficiency를 나타내는데, $\Delta T/T_h$ 와 같다 [1]. $r^* = \sqrt{1 - \xi Z_{SSE}T_h}$ 이며, 여기서 ξ 는 스핀변환 상수(spin converting parameter)인데 일반적으로 $\xi \approx \frac{\sigma_p}{\sigma_m}$ 와 같이 중금속 층의 전기전도도(σ_p)와 자성박막의 스핀전도도(σ_m)의 비와 거의 같다[1]. 보고된 YIG 박막의 스핀전도도는 $\sigma_m \approx 4 \times 10^5 \text{ S/m}$ 인데 이는 σ_p 의 값과 비슷한 수준이다[13]. $\xi = 1$ 로 놓고 스핀열전의 효율을 계산해보면 0.8 nm, 1.5 nm, 10 nm Pt 박막의 경우 각각 $\eta_{SSE}/\eta_C = 1.09 \times 10^{-2}\%$, $1.95 \times 10^{-3}\%$, $2.16 \times 10^{-6}\%$ 값을 얻게 된다. 여기서 얇은 자성박막에 높은 온도

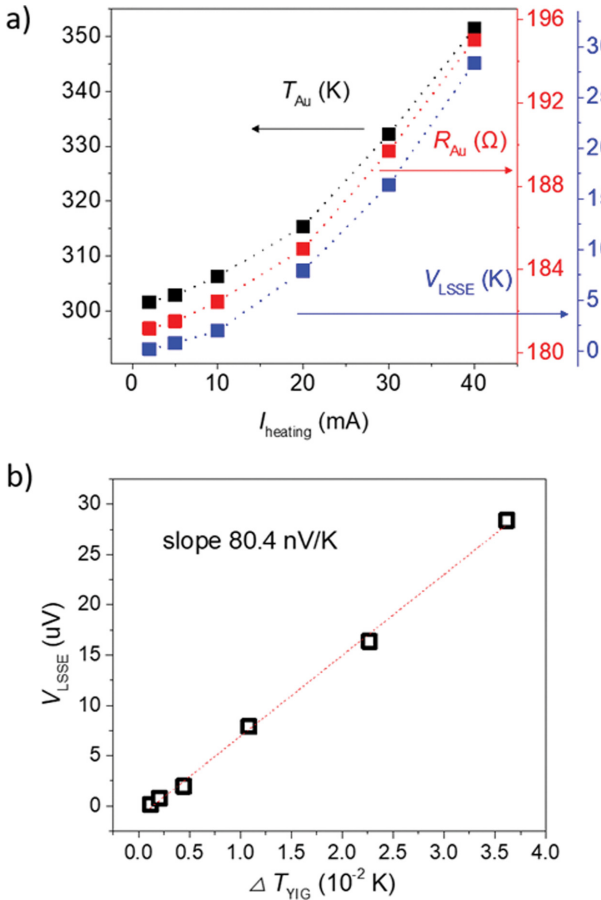


Fig. 3. (Color online) (a) Temperature of the Au layer, Resistance of the Au layer, and generated spin Seebeck voltage as increasing heating current. (b) Spin Seebeck voltage vs the temperature difference applied on YIG.

구배를 유지하기 힘들기에 $\eta_C = \Delta T/T_h$ 는 매우 작은 값을 갖게 되며 실질적인 효율은 매우 낮게 나타날 수밖에 없게 된다. 결국 스핀열전 효율의 최대한 증가시키기 위해서는 r^* 값이 0에 가까워야 되며 이를 위해서는 높은 $Z_{SSE}T$ 값을 얻는 문제로 귀결된다.

IV. 결 론

본 연구에서는 스핀열전 소자의 성능 평가를 위해 온칩 히터와 동시에 온칩 온도센서를 활용하여 얇은 자성박막에 인가되는 온도 구배를 비교적 간단하면서도 정밀하게 측정할 수 있는 실험 방법론을 보여주었다. 스핀열전 소자는 구조적인 장점으로 대면적화에 용이한 커다란 장점을 갖고 있지만, 아직까지는 에너지 변환 성능지수가 기존의 열전소재에 비해서 매우 낮다. 스핀열전 소자의 에너지 변환 효율의 혁신적인 발전을 위해서는 우선 열전도도가 낮은 FMI 소재 개발이 필요하며 무엇보다도 스핀열전 변환이 획기적으로 향상되기 위해서는 스핀전하전류 변환이 크게 나타나는 전도층 도입이 필요하다. 또한, 계면에서 스핀펌핑이 효율적으로 일어나기 위한 적절한 계면 제어와 소재 조합에 대한 연구가 요구된다.

감사의 글

이 논문은 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 연구임(No. 2017M3A7B4049172).

References

- [1] K. Uchida, H. Adachi, T. Kikkawa, A. Kirihara, M. Ishida, S. Yorozu, S. Maekawa, and E. Saitoh, Proc. IEEE **104**, 1946 (2016).
- [2] K. Uchida, J. Xiao, H. Adachi, J. Ohe, S. Takahashi, J. Leda, T. Ota, Y. Kajiwara, H. Umezawa, H. Kawai, G. E. W. Bauer, S. Maekawa, and E. Saitoh, Nat. Mater. **9**, 894 (2010).
- [3] A. Kirihara, K. Uchida, Y. Kajiwara, M. Ishida, Y. Nakamura, T. Manako, E. Saitoh, and S. Yorozu, Nat. Mater. **11**, 686 (2012).
- [4] G. E. W. Bauer, E. Saitoh, and B. J. van Wees, Nat. Mater. **11**, 291 (2012).
- [5] U. Kenichi, N. Tatsumi, Y. Tatsuuro, K. Takashi, K. Daisuke, and E. Saitoh, Appl. Phys. Express **5**, 9 (2012).
- [6] S. O. Valenzuela and M. Tinkham, Nature **442**, 176 (2006).
- [7] I. Oh, J. Park, J. Jo, M. Jin, M. Jang, K. Lee, and J. Yoo, ACS Appl. Mater. Interfaces **10**, 28608 (2018).
- [8] A. Sola, M. Kuepferling, V. Basso, M. Pasquale, T. Kikkawa, K. Uchida, and E. Saitoh, J. Appl. Phys. **117**, 17C510 (2015).
- [9] S. Wang, L. Zou, X. Zhang, J. Cai, S. Wang, B. Shen, and J. Sun, Nanoscale **7**, 17812 (2015).
- [10] S. Wang, G. Li, J. Wang, H. Yan, and K. Jin, J. Magn. Mang. Mater. **468**, 50 (2018).
- [11] M. Jang, I. Roh, J. Park, C. Kang, W. J. Choi, S. Baek, S. S. Park, J. Yoo, and K. Lee, J. Alloys Compd. **711**, 693 (2017).
- [12] E. Guo, J. Cramer, A. Kehlberger, C. A. Ferguson, D. A. Maclaren, G. Jakob, and M. Klaui, Phys. Rev. X **6**, 031012 (2016).
- [13] L. J. Cornelissen, J. Liu, R. A. Duine, J. Ben Youssef, and B. J. van Wees, Nat. Phys. **11**, 1022 (2015).