

研究報告書

「スピンゼーベック発電増大に向けた新材料と新構造の探索研究」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2015 年 12 月～2019 年 3 月

研究者: 湯浅 裕美

1. 研究のねらい

来る IoT センサーネットワーク時代に向けたエネルギーハーベストを実現するため、スピントロニクス技術を用いた温度差発電であるスピンゼーベック効果による発電量を増大する。

スピンゼーベック効果は、スピン流が顕在化される現象であるため、世界中で精力的に物理学的究明が進められている。一方で、本現象を実用へと導くための応用研究はそれほど盛んではない。その理由の一つは、現状での発電量が非常に小さく、大きな技術革新なくしては容易には実用に至らないためである。しかしながら、発見後の精力的な研究によって物理的な理解の進んできた今こそ、デバイスへの展開を見据えた応用研究を始める好機である。そこで、新しい物理現象であるスピンゼーベック効果をエネルギーハーベストに応用するために、従来進められて来た現象追求型研究の枠を超え、目標に向けたアイデア実証型の研究に着手した。本研究における新材料・新構造の提案と実証は、その後のデバイス展開のみならず、現象深耕の手がかりを示し、新しい研究分野の開拓へと発展するものである。

スピンホール角 θ_H の大きな非磁性金属によって逆スピンホール効果を増大し、スピン流を電流に変換する効率を上げることである。スピンホール角 θ_H の大きな非磁性金属は、実際には酸化物である磁性絶縁体との界面で酸化して性能を発揮できない等の問題があった。これに対し、酸化生成エネルギーの高い組成を探索し、酸化防止層を挿入するといったアイデアを投入して、材料デザインの可能性を広げる。これに加え、磁性絶縁体から非磁性金属へのスピン流注入効率であるスピンミキシングコンダクタンス g_r を上げるため、界面にごく薄い金属磁性体を挿入する。界面における磁気モーメント密度を増加することで、スピンミキシングコンダクタンス g_r が上がることを検証する。

これらのアプローチを研究の軸とし、それぞれを実証することでスピンゼーベック効果による発電をエネルギーハーベストへ結び付けるための糸口をつかむ。

2. 研究成果

(1) 概要

スピンゼーベック起電力を増大するための材料開発を行った。社会実装を目指した最終目標は 5 桁のパワー向上である。本研究では、これを実現し得る開発の糸口を見出し、実現の可能性を示すことであった。研究成果を要約すると、以下 3 つとなる。

- ・非磁性金属の合金化によるスピンホール角の増大(論文 3)
- ・磁性／非磁性界面の酸化抑制によるスピンミキシングコンダクタンスの向上(論文 1, 2)
- ・磁性／非磁性界面でのスピン揺らぎ活用活用(論文 4, 5)

いずれもスピンゼーベック起電力を従来の標準構成から 2～4 倍に増大する効果を持つ。こ

のように、スピンゼーベック起電力向上の糸口を掴むことには成功した。しかしながら、これらを更に追求するだけでは、最終目標となるパワー5桁向上を達成できる見込みが低いことも分かった。今後環境発電を狙うためには、別に切り口からのアプローチが必要である。

(2) 詳細

(1) 高スピンホール角 TaW 合金

等原子組成 Ta₅₀W₅₀ ターゲットを用いて YIG/Ta₅₀W₅₀ のスピンゼーベック起電力を測定したところ、従来から報告されている YIG/Pt や YIG/W と同程度の起電力であった(図1)。合金化で界面酸化抑制することが出来ないことを示す。そこで、YIG からの酸化を抑制するための別のアプローチとして、酸化耐性の高い金属 Ru を挿入する実験を行った。Ru 挿入で起電力が向上した場合は、YIG からの酸化を抑制できたという解釈が成立する。結果は図1に示

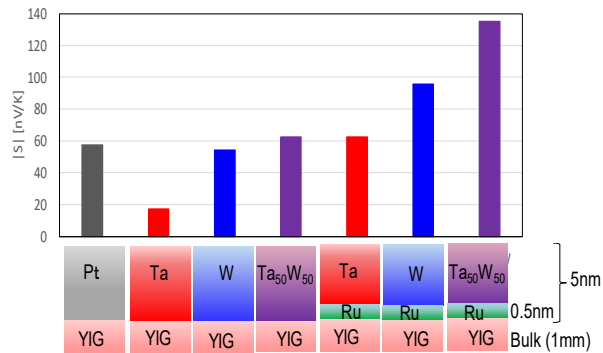


図1 スピンゼーベック起電力の非磁性金属材料依存性

す通り、Ru 挿入により Ta 系、W 系、Ta₅₀W₅₀ 系においてスピンゼーベック起電力が増加した。特に YIG/Ru/Ta₅₀W₅₀ で従来 YIG/Pt の 2.4 倍という大きなスピンゼーベック起電力が得られた。YIG との界面はいずれの試料も Ru であることから、スピンミキシングコンダクタンスに変化はない筈である。これは、Ta₅₀W₅₀ 合金のスピンホール角が W よりも大きいという事を意味する。これまでに報告されている最大のスピンホール角金属は W であったが、合金化することによってそれを凌駕した。

(2) スピンミキシングコンダクタンスを向上するための磁性/非磁性界面制御ー1

磁性/非磁性界面の磁気モーメント密度向上によってスピンミキシングコンダクタンスを上げるため、YIG と Pt の界面に磁性金属薄膜を挿入し、図2のように起電力を向上した。磁気モーメント密度を変化すべく、挿入する磁性材料を電子数の少ない順に 5 種類、Cr、Ni₈₀Fe₂₀、Co₉₀Fe₁₀、Fe₅₀Co₅₀、Fe と変化した。Slater-Pauling 曲線によれば、飽和磁化の大きい順に Fe₅₀Co₅₀、Fe、Co₉₀Fe₁₀、Ni₈₀Fe₂₀、Cr であることから、スピンミキシングコンダクタンス、ひいてはスピンゼーベック起電力もこの順となる筈である。しかしながら、スピンゼーベック起電力の大きさはこれに従わなかった。

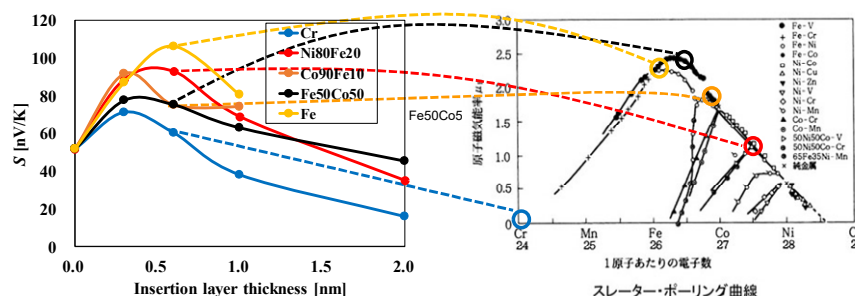


図2 スピンゼーベック起電力の挿入磁性材料依存性

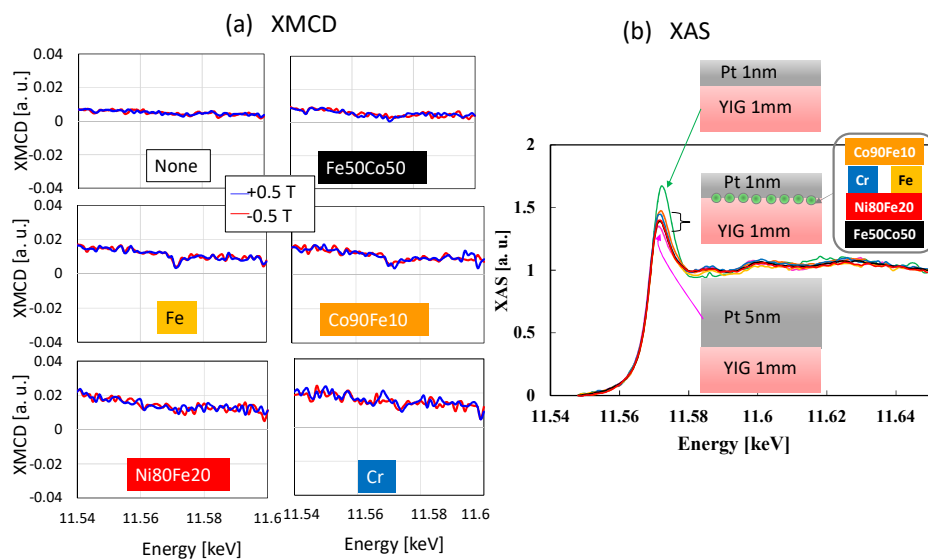


図3 YIG/各種磁性元素 0.3nm/Pt1nm の XMCD と XAS プロファイル

原因を探るため、SP-ring8 の XMCD および XAS により Pt の電子状態を調べた。その結果、Pt には磁気モーメントが誘起されていないことを確認した。さらに予期せぬ結果として、YIG 上では Pt が酸化し、磁性層を挿入することでその酸化が抑制されていることが判明した。元来酸化耐性の高い Pt であっても YIG 界面で極微量に酸化しており、これにより起電力が減少していることが分かった。これは、起電力向上に向けて重要な知見である。

(3) スピンミキシングコンダクタンスを向上するための磁性/非磁性界面制御ー2

項目(2)では、磁性元素の挿入効果は得られたもののメカニズムを説明することが出来なかった。磁性元素の本来もつ飽和磁化に依存せず、Pt の誘起磁気モーメントでも説明ができない。考え得るのは、マクロには観測できないスピンの揺らぎである。これを確かめるため、磁気モーメント密度がゼロではあるが、スピンは存在するという反強磁性層を挿入する実験を行った。試料は YIG/金属反強磁性層/非磁性金属層である。反強磁性層 AFM と非磁性金属 TaW から成る金属総計膜厚を一定とし、その内訳を連続的に変化してスピンゼーベック起電力の AFM 膜厚依存性を調べた。図 4 に結果を示す。この結果、IrMn 挿入の場合は 1nm で、Mn 挿入の場合は 2nm でスピンゼーベック係数が最大値を取り、その後は急速に減少する膜厚依存性となった。

なお、図中に同時プロットした非磁性金属の Ru を挿入した場合に比べて、IrMn や Mn を挿入したときの方が起電力の増加量は大きく、さらに項目(2)の強磁性体挿入の結果よりも大きい。このことから、反強磁性体が界面に存在することが重要であることが分かる。ところが数 nm 以下の反強磁性層は、磁気秩序が乱れた常磁性状態にあることが知られており、我々もマクロな測定により常磁性であることを確かめた。反強磁性の秩序が乱れて生じた常磁性では、スピン揺らぎが大きい。磁性体の挿入により起電力が向上すること、さらに強磁性体よりも反強磁性体を挿入すると増加量が大きいこと、から、スピン揺らぎがスピンゼーベック起電力増加に有効である可能性がある。

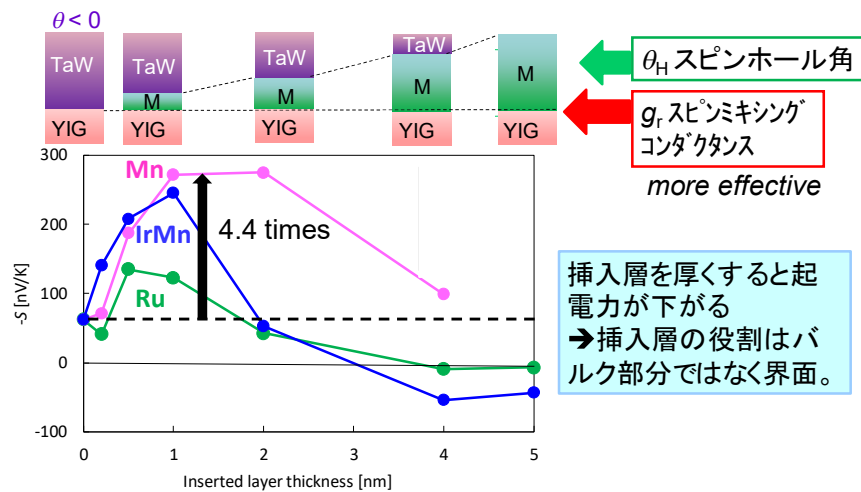


図 4 スピンゼーベック起電力の界面挿入材料依存性

3. 今後の展開

合金化によるスピンホール角の増大、および界面での酸化抑制効果とスピン揺らぎ活用活用という糸口を見出したことは、起電力増大への一助となる。しかし、その増加量は数倍に留まり、5 桁向上という環境発電応用への目標値には到底及ばない。そして、見出した起電力向上のアプローチを更に追求するだけでは、達成される見込みは低いことが、残された課題である。

これに対し今後は、本研究で着眼していた非磁性金属と磁性体というスピンゼーベック発電の肝を担うパーツだけでなく、脇役である基板などに着目し、熱流を最大限活かすためのデバイス構造の検討を行い、起電力を増加するアイデアを投入していく。

一方、スピン揺らぎによって非磁性体へ注入されるスピン流が増大するという知見は、これまで着眼されたことがなく、本研究によって初めて明らかになったものである。現段階では一つの可能性に過ぎないことから、今後も確証するための研究を継続する。スピン流の応用は、熱電効果だけではなく磁化の反転を低消費電力で実現する技術として着目されている。スピン揺らぎがスピン流に与える影響を定量的に見積もり制御できれば、スピン流デバイスへの広い応用が見込める。スピン揺らぎとの相関について、今後も注力して行くこととする。

4. 自己評価

合金化によるスピンホール角の増大、および界面での酸化抑制効果とスピン揺らぎ活用活用という糸口を見出したことは、起電力増大への一助となる。しかし、その増加量は数倍に留まり、5 桁向上という環境発電応用への目標値には到底及ばない。そして、見出した起電力向上のアプローチを更に追求するだけでは、達成される見込みは低いことが、残された課題であ

る。社会実装を通した世の中への還元は、本プロジェクト期間内では未達成となった。今後はこれまでの知見を次へ繋げるべく、磁性／非磁性のパーツのみならず、それらを支持する基板等の構造・材料最適化を検討する必要がある。

一方、巨大スピンホール角、および磁性／非磁性界面制御でスピン流が増大するという知見は、本プロジェクトで始めて見出された知見である。スピン流の応用は、熱電効果だけではなく磁化の反転を低消費電力で実現する技術として着目されている。新たな知見がスピン流増大に与える効果をエンハンスすることで、スピン流デバイスへの広い応用が見込める。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. 中村瞭平, 玉江航稀, 湯浅裕美, YIG/Pt 界面への強磁性層挿入によるスピンミキシングコンダクタンス制御, 信学技報(IEICE Technical Report) vol. 116 No. 258 pp.31-34 (2016).
2. Hiromi Yuasa, Kouki Tamae, and Norimasa Onizuka, Spin mixing conductance enhancement by increasing magnetic density, AIP ADVANCES 7 55928-1~5 (2017).
3. Hiromi Yuasa, Fumiya Nakata, Ryohei Nakamura and Yuichiro Kurokawa, Spin Seebeck coefficient enhancement by using Ta50W50 alloy and YIG/Ru interface, J. Phys. D: Appl. Phys. 51 134002-1~5 (2018).
4. Fumiya Nakata, Takumi Niimura, Yuichiro Kurokawa and Hiromi Yuasa, Spin Seebeck voltage enhancement by Mn system metals insertion at the interface between YIG and nonmagnetic layer, accepted in Jpn. J. Appl. Phys.
5. Hiromi Yuasa, Fumiya Nakata, Takumi Niimura, Li Houlin, Yuichiro Kurokawa, Kohei Onishi, Takashi Kimura, Spin Seebeck Voltage Enhancement by Inserting Thin Mn or IrMn Layer into Interface between Magnetic and Normal Layers, accepted in J. Magn. Magn. Mater.

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

学会発表

- 1) H. Yuasa, K. Tamae and N. Onizuka, Spin Mixing Conductance Enhancement by NiFe Insertion at YIG/Pt Interface, 61st Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM2016) 2016/10/31-11/4 (New Orleans, US).
- 2) Fumiya Nakata, Ryohei Nakamura, Sho Inami, Hiromi Yuasa, Spin Seebeck voltage enhancement by Ta50W50 with large spin Hall angle, SpinTECH IX, 2017/6/7 (福岡国際会議場).
- 3) H. Yuasa, R. Nakamura, M. Suzuki, F. Nakata, G. Nagashima, Y. Hirayama, S. Inami and Y. Kurokawa, "Spin Seebeck voltage improvement of Y3Fe5O12/ ultra-thin magnetic layer/Pt and XMCD and XAS investigation for Pt" 61st Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM2017), 2017/11/6-10 (Pittsburgh, US).

- 4) Hiromi Yuasa, Fumiya Nakata, Takumi Niimura, Li Houlin, Yuichiro Kurokawa, Spin Seebeck Voltage Enhancement by Inserting Mn System Metals into Interface between Magnetic and Nonmagnetic Layers, International Conference on Magnetism 2018 (ICM2018), 2018/7/16-20 (San Francisco).
- 5) Fumiya Nakata, Takumi Niimura, Yuichiro Kurokawa and Hiromi Yuasa, Spin Seebeck voltage enhancement by IrMn and Mn insertion at the interface between YIG and nonmagnetic layer, 2018 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM) 2018/9/9-13 (Tokyo).

招待講演

- 1) H. Yuasa, “Spin Seebeck power generation toward energy harvesting”, EMN Las Vegas meeting on spintronics 2016/10/10-14 (Las Vegas, US).
- 2) H. Yuasa, Enhancement of spin mixing conductance and utilizing large spin Hall angle in spin Seebeck effect, York-Tohoku-Kaiserslautern Research Symposium on “New-Concept Spintronics Devices”, 2017/6/21-23 (Univ. York, UK).
- 3) H. Yuasa, “Enhancement of Spin Mixing Conductance in Spin Seebeck Effect” 3rd Japan-Korea Spintronics Workshop 2017/12/18-20 (KIST, Korea).
- 4) H. Yuasa, “Inserted layer effect on Spin Mixing Conductance in Spin Seebeck Effect” Reimei/GP-Spin/ICC-IMR International Workshop “New Excitations in Spintronics” 2018/1/10-12 (Tohoku Univ. Sendai).
- 5) Hiromi Yuasa, Ryohei Nakamura, Fumiya Nakata and Yuichiro Kurokawa, Inserted layer effect on Spin Mixing Conductance in Spin Seebeck Effect, The 5th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies (IcAUMS 2018), 2018/6/3-7 (Jeju, Korea).

受賞、著作、PR:なし