

エネルギーハーベスト実現に向けたスピナーベック効果による 面内発電熱電子素子の開発

野末竜弘^{*1}・森田正^{*1}・村上裕彦^{*1}

Research of in-plane thermoelectric elements using the spin Seebeck effect

Tatsuhiko NOZUE^{*1}, Tadashi MORITA^{*1} and Hirohiko MURAKAMI^{*1}

^{*1} Future Technology Research Laboratory, ULVAC, Inc., 5-9-6 Tohkohdai, Tsukuba, Ibaraki 300-2635 Japan

We have investigated the thermoelectric elements using the spin Seebeck effect (SSE), in order to develop the novel thermoelectric device. The multilayered SSE elements of $Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG) and Pt, [YIG/Pt]_n, were fabricated by sputtering. The sample of n=2 had the SSE coefficient 2 times as large as that of n=1. However, the SSE of n=3 sample was almost equal to that of n=2. This enhancement of SSE is considered to be contributed by the spin current enhanced in the multilayer [YIG/Pt]_n.

1. はじめに

1.1 背景

近年、PCからスマートフォンへと情報端末は小型化し、スマートウォッチのように小型のデバイスへと進化している。しかし、小型化は電池容量を制限するので、デバイスに発電機能、いわゆるエネルギーハーベスティングを備えることが期待されている。人体の熱を利用した発電が最も実装しやすいので、熱電素子を薄くフレキシブルにする研究開発が有機材料を中心に進展している。ここで、磁性を利用した新しい熱電原理のひとつとして、スピナーベック効果の基礎原理と熱電効率向上の研究を行ったのでその成果を紹介する^{1, 2)}。

近年、スピン軌道相互作用 (SOI) がもたらすスピンホール効果 (SHE)、逆スピンホール効果 (ISHE) が注目されている。それは、電荷の移動を伴わないスピン流という新たな流れの存在が引き起こす物理現象である。磁場中にある金属、半導体に電流を流した時に、ローレンツ力により、磁場と電流に垂直な方向に電場が生じるのが通常のホール効果である。SHEにおいては、SOIによりアップスピンとダウンスピンで逆向きに力が働くため、磁場中にある金属に電流を流すと、磁場と電流に垂直な方向にスピンの偏り (スピン蓄積) が生じる。ISHEはその逆現象で、磁場中にある金属にスピン流を流すと、磁場とスピン流に垂直な方向に電荷が偏り電場が生じる現象である。スピン流はミクロな拡散長しかもたないが、微小な領域の磁性の研究が進展したため SHE、ISHE によってスピン流の存在が証明され、ISHE はスピン流を探知する手法として確立した。

スピナーベック効果 (SSE) は、一方向に磁化した強磁性体と常磁性金属の積層構造の積層方向に温度差があるとき、常磁性金属内の磁化と温度差の方向の両方に

垂直な方向に温度差に比例した電流が生じる現象である。強磁性体内の温度勾配によるスピン波励起 (マグノン) の濃度分布が生成するスピン流が強磁性体と常磁性金属界面でスピンの偏りを作り、常磁性金属内にもスピン流が生じる。常磁性金属内のスピン流から ISHE に従い電流が生じる。これらの複合的な現象として、SSE が理解される。強磁性絶縁体では電子による熱、スピンの伝搬がないので、マグノンによる純粋なスピン流が生成されていると考えられる。

通常のゼーベック効果と異なり、SSE では温度差と電流の向きは垂直である。市販のゼーベック素子では p 型、n 型を互い違いに接合した Π 型構造で形成されるため、素子面積は大きくなり、その製造コストがかかるが、SSE では強磁性体膜と常磁性金属薄膜を重ねるだけで同等量を発電するので簡素な構造で作製でき低コスト化が可能となる。実際に、塗布やスプレーなどで強磁性体を作製した SSE 素子が報告されている¹⁾。また、熱の担体 (マグノン) と電荷の担体 (電子) が異なるため、通常のゼーベック効果で問題となる Wiedemann-Franz 則の制限がない。理論的には通常のゼーベック効果を超える効率が得られると期待されている。しかし、実際の素子では Bi-Te などの熱電素子の 1/10000 ほどの発電効率しか出ていない。スピン流の運ぶ熱の割合、強磁性体から常磁性金属へのスピン流の注入効率、スピン流から電流への変換効率など、発電効率を下げる要因は多々あり、現実的な熱電素子とするには超えるべき課題が多い。

2010 年に Pt/YIG 接合における SSE が観測されて以来、この試料構造は絶縁体を用いた熱スピン流生成素子のプロトタイプとして多くの研究に用いられてきた。5d 電子系は原子核の電荷が大きいため、SOI が大きい傾向がある。特に Pt はバンド構造によって SHE が大きいのでスピン流の研究では不可欠の材料となっている。

^{*1} (株) アルバック 未来技術研究所 (〒300-2635 茨城県つくば市東光台 5-9-6)

1.2 目的

SSE の出力を改善するためには、単純に考えると常磁性金属層を増すことで電流を大きくし、素子の出力を増大させることができる。しかし、Pt は大きな ISHE もつため、スピン流は 5 nm 以下の距離しか伝搬しない。その伝搬距離（スピン流拡散長）よりも膜厚が厚くても SSE は大きくならないので、[強磁性層 / 常磁性金属層] の多層化が課題解決の鍵となる。

マグネタイト (Fe_3O_4) と Pt の組み合わせの SSE 素子を多層化した $\text{MgO}/[\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Pt}]_n$ において $n=6$ までの多層構造で、 $n=1$ に対して最大 5.5 倍の SSE 電圧の増加が報告された³⁾。この背後にあるのは、 $[\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Pt}]_n$ 多層構造内部の大きなスピン流が SSE へ寄与と考えられている。文献 3 において計算された、1 層と 4 層の多層膜の膜厚方向のスピン流の分布を Figure 1 に示す。スピン流拡散長程度まではスピン流は増大するので、拡散長よりも Fe_3O_4 層の膜厚が薄い場合、層数が増えるとスピン流の最大値は大きくなる。一方、スピン流は $[\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Pt}]_n$ の両端で 0 であるので、最表面の Pt ではスピン流が小さくなり SSE 電圧も小さい。 $[\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Pt}]_4$ のように多層では、両端から離れた箇所に Pt があるため、図の矢印で示すような大きなスピン流が Pt へ注入される。実質的な膜厚の増大と、端面から遠い Pt へのスピン流の注入により、数倍のスピン流が逆スピンホール効果を通して電流へ変換される。この多層膜では Pt

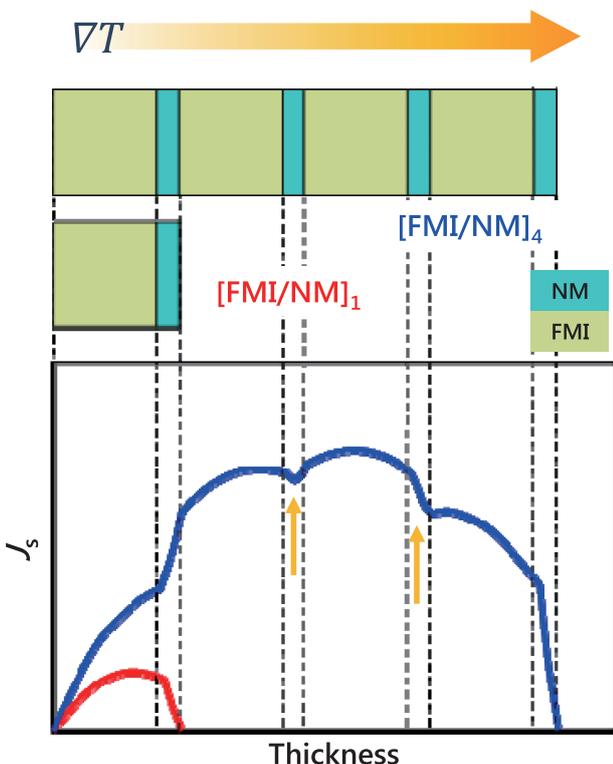


Figure 1 A example of the spin current profile calculated for $[\text{FMI}/\text{NM}]_1$ and $[\text{FMI}/\text{NM}]_4$ (FMI: ferromagnetic insulator, NM: nonmagnetic metal) (Ref. 3).

層の層数分だけ Pt 層の伝導度が上がるので、出力では 100 倍以上の増加となる。30 nm 程度の拡散長である Fe_3O_4 よりも拡散長が長い YIG を用いて $[\text{YIG}/\text{Pt}]_n$ の多層膜を作製できれば、さらに大きな SSE 電圧の増強が期待できる。

本研究では、多層膜の効果の検証のために、スパッタにて高品質の YIG 膜を作製し、① YIG/Pt の SSE 膜厚依存性、②多層 $[\text{YIG}/\text{Pt}]_n$ $n=1\sim 3$ の SSE 層数依存性、③サンドイッチ構造 Pt/YIG/Pt の SSE を調べた。

2. 実験方法

2.1 成膜方法

$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG) はガーネット構造をもつ酸化物であり、 $T_c=286^\circ\text{C}$ のフェリ磁性絶縁体である。格子定数は 1.2376 nm と報告されており、常磁性絶縁体の $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (GGG) の格子定数 1.2383 nm と極めて近い。格子のミスマッチは 0.06% なので、GGG 基板に成膜することで高品質な YIG 膜を得ることができる。ガーネット構造をもつ酸化物は一般に $\text{C}_3\text{A}_2\text{D}_3\text{O}_{12}$ と書くことができる。8 単位を含む大きな立方晶のユニットセルであり、YIG では $\text{C}\rightarrow\text{Y}^{3+}$, $\text{A}\rightarrow\text{Fe}^{3+}$, $\text{D}\rightarrow\text{Fe}^{3+}$ となる。 Fe^{3+} は 2 つの異なるサイトを占め、どちらも O^{2-} の作る多面体内に配置している。A サイトは八面体、D サイトは四面体であり、O を介して交互に結合している。A サイト、D サイトの局在スピンはお互い逆向きとなり、YIG は正味で $\text{Fe}^{3+} 1$ 個分の局在スピン ($5 \mu_B$) をもつ。バルク YIG の室温の磁化は 140 emu cm^{-3} と報告されている。

本実験は東北大学金属材料研究所の斎藤研究室の設備を使用して行われた。YIG、Pt の成膜はアルバック九州製の QAM-4-STs を用いた。4 元×2 室 + 搬送室 + ロードロックの構成であり、成膜室のバックグラウンド圧力は 10^{-6} Pa 台である。搬送、加熱、成膜はレシピに従い自動で行われる。成膜基板には (110) 面配向単結晶 GGG 板、 $10\times 10\times 0.5$ mm 厚サイズ、片面研磨のものを用いた。成膜条件は、

Pt : Ar 15 sccm, DC20 W, 260 s,

YIG : Ar 15 sccm, O_2 0.3 sccm, RF150 W, 11325 s である。

順構造 GGG/ $[\text{YIG}/\text{Pt}]_n$ 、逆構造 GGG/Pt/YIG、GGG/Pt/YIG/Pt の成膜手順は以下の通りである。

1. GGG 基板 2 枚の研磨面同士を重ねたフェイストゥフェイス配置 (F2F) で赤外線ランプ炉 (MILA5000) に設置し、大気中 900°C 、30 min の熱処理を行う。
2. QAM-4 を用いて室温で YIG を 40 nm 成膜する。
3. 大気中で赤外線ランプ炉にて 850°C 、200 s の急速昇温加熱 (RTA) を行う。
4. QAM-4 を用いて室温で Pt を 5 nm 成膜する。

5. Ptとの電気伝導を確保するために、電極部分をマスクしYIGを40 nm成膜する。

3~5を繰り返し多層[YIG/Pt]_n構造とした。GGG/Pt/YIGサンプルはPtとYIGの成膜の順番が異なるだけである。

2.2 測定方法

膜厚はX-ray Reflectometer(XRR)で、結晶性をXRDで確認した。膜表面についてはAFMで精密な表面形状を測定した。

膜の磁性を評価するために、磁化および強磁性共鳴(FMR)を用いて測定した。FMRは磁場中に置かれた強磁性体にマイクロ波を照射しスピン波を励起することで、スピン波励起によるマイクロ波の吸収を測定する。共鳴周波数は、 $2\pi f = \gamma H$ (γ は磁気回転比)と表され、マイクロ波周波数が共鳴周波数と等しい条件で強い吸収を示す。磁場をスイープすることで得られる吸収スペクトルの幅は、スピン波の減衰の大きさと相関があり、スピン波の減衰が小さいほど線幅が狭い。YIGなどよく調べられている材料ではサンプルの品質を評価する手法として使われる。SSEにおいても、温度差によるマグノン拡散で生じるスピン流が発電原理となっているので、FMRスペクトルの線幅が重要な指標となっている。

スピンゼーベック効果の測定は、Figure 2に示すAlN製のサンプルステージを用いて行った。測定のために8 mm×2 mmの大きさにカットした。YIGは5~6 mmの長さである。熱浴として働く無酸素銅製の台とAlNのステージでペルチェ素子をはさみ、ペルチェ素子に流す電流の大きさ、向きでサンプルを加熱、冷却が可能である。AlNのサンプル押さえは熱伝導度の高いMo製ネジでCu台と接続され、熱が速やかに熱浴に逃げるようになっている。ステージを電磁石の磁心間に配置し、膜

に垂直に温度差をつけ、サンプルの長手方向に垂直に磁場を印加することで、長手方向に生じるSSE電圧を測定する。SSEで生じる電場 E は温度勾配 ∇T 、磁化 M を使って

$$E = S \left(\frac{M}{|M|} \times \nabla T \right)$$

と書くことができる。 S がスピンゼーベック係数(SSE係数)である。サンプルの長さ L_{sample} 、厚さ D_{sample} を使い、SSE電圧 V_{SSE} 、温度差 ΔT 、から S は

$$S = \frac{V_{\text{SSE}}/L_{\text{sample}}}{\Delta T/D_{\text{sample}}}$$

と見積もることができる。

3. 実験結果と考察

3.1 多層膜の構造

Figure 3(a)に900℃熱処理後のGGG(110)基板のAFM像を示す。熱処理することでGGG表面にはステップ&テラス(S&T)構造が現れていた。GGG基板の自乗平方根粗さ(RMS)は0.13 nmであった。

RTA後のGGG/YIG、GGG/Pt/YIGの表面のAFM像をFigure 3(b), (c)に示す。GGG/YIGではGGG基板表面に見られたものと同じ周期、方位のS&Tが観察された。さらに、RMSは0.10 nmとGGG基板と同程度であり、YIGの高い結晶性が示唆される。一方、GGG/Pt/YIGではS&Tは見られず、大きなクラックが生じていた。そのため、自乗平方根粗さ(RMS)は0.52 nmとGGG基板の4倍の大きさとなっていた。また、平坦な部分には一方向の層状の構造が見られ、GGG基板と方位の異なる結晶となっていると考えられる。

YIG成膜後及びRTA後のGGG/YIG/Pt、GGG/Pt/YIGのXRR測定からPt、YIGの膜厚はそれぞれ

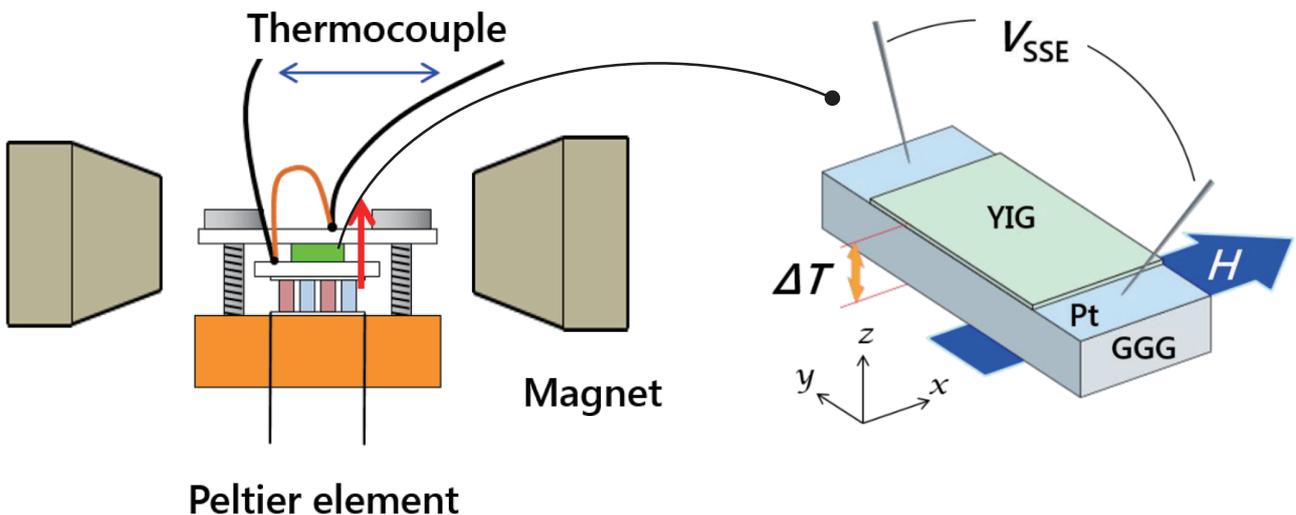


Figure 2 Schematic pictures of the equipment for the measurement of spin Seebeck effect (SSE) and the directions of the external field, the temperature gradient and the SSE voltage.

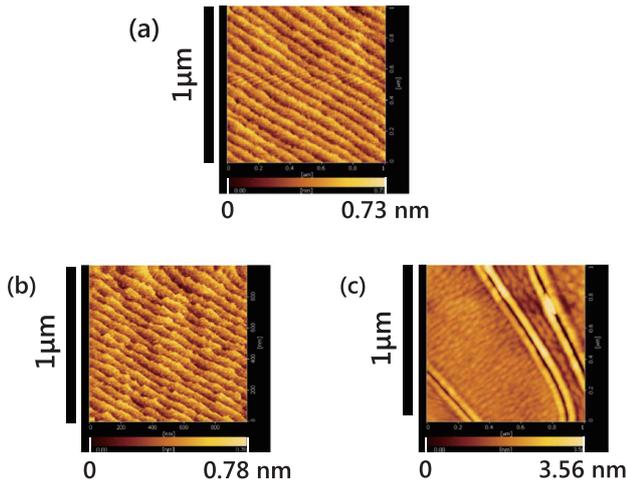


Figure 3 AFM images of (a) GGG (110) substrate after annealing at 900°C, (b) YIG film deposited on GGG substrate after RTA at 825°C and (c) YIG film deposited on GGG/Pt(5 nm) after RTA at 825°C.

5.2 nm, 48 nm, ラフネスは 0.2 nm 程度であった。

88~91°のGGG(880)周りのGGG/YIGのXRD測定結果ではGGG(880)の鋭いピークの低角側に、弱いYIGの(880)ピークが観測され、YIGが結晶化していることを示していた。面垂直方向の格子定数は1.248 nmであり、報告されているYIGの格子定数1.2376 nmよりも大きい。これは先行文献と同様であり、薄膜化による影響と考えられる⁴⁻¹⁰⁾。

GGG/Pt/YIGについては31~91°の広い範囲のXRD測定を行ったが、YIGに属するピークは一切観測されなかった。AFMの結果からGGG/Pt/YIGでは、YIGが多結晶となっていると考えられるが、YIGの膜厚が薄くXRDで回折が観測できるほどの強度が得られなかったためである。

GGG(440), (880)の低角側にはPt(111), (222)のブロードなピークも観測された。ラウエ振動もはっきりと観測されておりPtは非常に平坦であることが分かった。またPt(200)に属するピークは現れず、Pt層はRTAにより、膜に平行に(111)面を作るように結晶化している。

多層GGG/[YIG/Pt]₃の断面TEM像をFigure 4(a)に示す。Figure 4(b)はGGG基板とYIG1層目の界面の拡大像であり、YIGがGGGに対して連続的につながっており、欠陥なくエピタキシャル成長していることが分かる。一方、Figure 4(c)のPt層を挟んだYIG1層目とYIG2層目の拡大像においては、YIG2層目は1層目と結晶の方位が異なっている。Figure 4(a)からPt上で結晶化した2, 3層目YIGは多結晶となっていることが見て取れる。YIGの多結晶化はGGG/Pt/YIGの断面TEM像でも確認され、AFMで見られたクラックは多結晶グレインの境界であることが分かった。クラックで囲

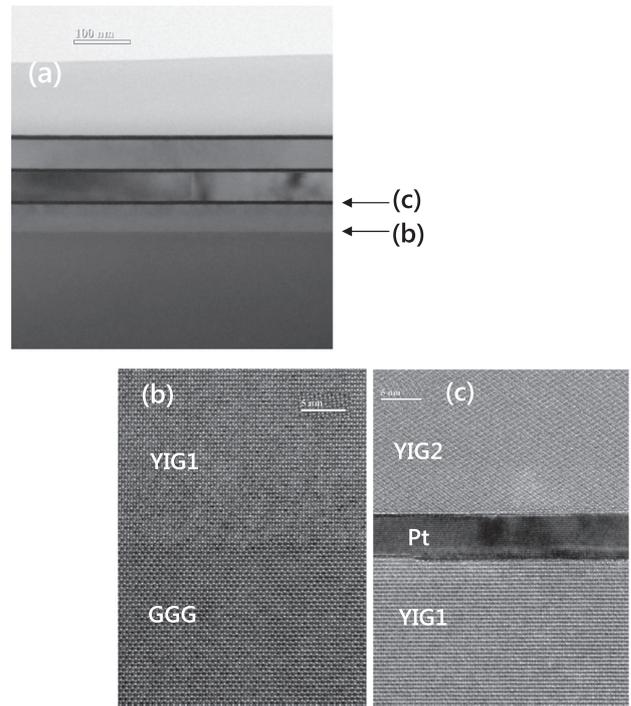


Figure 4 TEM images of GGG/[YIG(48 nm)/Pt(5.2 nm)]₃. (a) A low magnification image of the substrate and all layers, (b), (c) high magnification images of the interfaces indicated at arrows in (a).

まれたグレイン内は微小な単結晶であるが、全体では多結晶膜となっている。ほとんどの場合膜厚方向には一つの微結晶となっている。

作製したYIG膜の磁性評価のためにFMRを測定した。RTA前ではFMRの共鳴吸収ピークは観測されなかった。YIGはas-depoではアモルファス状態で、磁性を示さないためである。GGG/YIG/PtとGGG/Pt/YIGのFMRスペクトルをFigure 5に示す。FMR吸収線の微分値となっており、極大値、極小値をとる磁場の差をFMR線幅としている。GGG/YIG/PtのFMRスペクトルでは、2330 Oeに鋭い吸収が現れ、線幅は4.1 Oeであった。これまでに報告されているパルスレーザー成膜法、スパッタ法によるエピタキシャル成長YIG膜で報告されているFMR線幅と同程度である⁴⁻¹⁰⁾。

一方、GGG/Pt/YIGのFMRスペクトルは2500~3000 Oeの範囲にブロードな吸収ピークが現れた。線幅は70 Oeであった。異方性を持つ磁性体ではFMR吸収は磁場を印加する方位によって共鳴吸収磁場が異なる。YIGも磁気異方性をもつため、多結晶のGGG/Pt/YIGではバラバラな方位のYIG微結晶の吸収が広く分布すること、結晶粒界でのスピン波の散乱によりスピン波が減衰することが原因となってブロードになっていると考えられる。

以上の結果から、as-depoのアモルファスのYIGは、RTA処理によりGGGを種結晶として固相エピタキシャル成長により結晶化すると理解できる。しかしGGG/

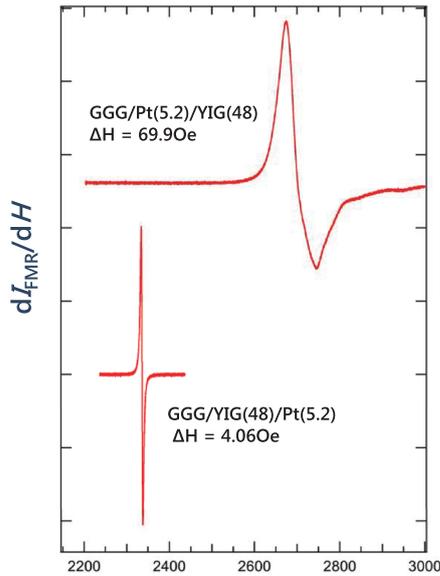


Figure 5 FMR spectra of GGG/Pt (5.2 nm)/YIG (48 nm) and GGG/YIG (48 nm)/Pt (5.2 nm).

Pt/YIG では Pt 層があるため GGG を種とすることができず、ランダムに発生した YIG の結晶核がばらばらに成長し、境界をもつ多結晶膜となった。

3.2 SSE の YIG 膜厚依存性

YIG 内でのスピン流の拡散について調べるために、SSE の YIG 膜厚依存性を確認した。1 章で Fe_3O_4 について説明したように、磁性体内のスピン流は膜厚がスピン流拡散長と同程度となるまで増大するので、SSE も膜厚とともに増大する。

YIG の膜厚に対する SSE 電圧の変化については、過去に調べられており、液相エピタキシー法 (LPE) で作製した YIG 膜では 10~100 μm の厚さまで膜厚とともに SSE 電圧が増加する¹¹⁾。YIG と Pt の界面からマグノンの拡散長の距離の範囲内のスピン流が SSE に寄与するため、この SSE が飽和する膜厚が YIG のマグノン拡散長と同程度である。LPE の膜では 1 μm 以上のマグノン拡散長であるが、スパッタによる YIG 膜ではその長さは明らかではなかった。

膜厚 $d=24, 48, 96$ nm の YIG での GGG/YIG(d)/Pt (4.2) の磁化、FMR スペクトル線幅を Table 1 にまとめた。磁化の大きさは一定であり、磁気特性に違いはな

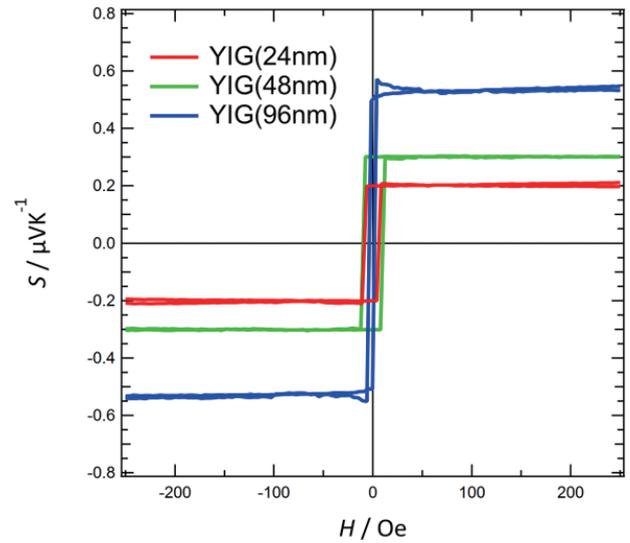


Figure 6 Field dependence of SSE coefficients of GGG/YIG (d)/Pt (4.2 nm), $d = 24, 48$ and 96 nm, measured under the temperature difference condition of $\Delta T = 6$ K.

い。マグノン拡散長はスピン波の減衰の大きさに反比例する。3つの膜厚のサンプルの FMR 線幅はほぼ一定であり、これらのサンプルは SSE からマグノン拡散長を見積もるのに適している。

温度差 $\Delta T = 6$ K で測定した SSE 係数 S の磁場依存性を Figure 6 に示す。200 Oe での S の飽和値は、24 nm 膜厚では $0.2 \mu\text{VK}^{-1}$ であったものが、96 nm 膜厚では、 $0.54 \mu\text{VK}^{-1}$ へと、膜厚とともに増加した。スパッタによる YIG 膜のスピン流の拡散長は 100 nm 以上であることを示している。

3.3 多層 GGG/[YIG/Pt] $_n$ の SSE

Pt の抵抗率を Table 2 に示す。層数が増えても Pt の抵抗率は一定である。Figure 7 に GGG/[YIG(48)/Pt (5.2)] $_n$ ($n=1\sim 3$) の温度差 $\Delta T = 6$ K で測定した SSE 係数 S の磁場依存性を示す。200 Oe での S の飽和値を求めた。

$n=1$ において $S = 0.1 \mu\text{VK}^{-1}$ であり、 $n=2$ では $0.23 \mu\text{VK}^{-1}$ と約 2 倍に増大した。さらに層を増やした $n=3$ では $0.24 \mu\text{VK}^{-1}$ と 2 層から 3 層では SSE はほとんど変化しなかった。

Table 1 Resistivities of Pt layers, the magnetizations and the FMR line widths of GGG/YIG (d)/Pt(4.2 nm), $d = 24, 48$ and 96 nm.

	Resistivity $\mu\Omega\text{cm}$	Magnetization emu cm^{-3}	FMR line width Oe
YIG 24 nm	20.13	106	5.5
YIG 48 nm	20.83	101	4.3
YIG 96 nm	19.61	102	6.3

Table 2 Resistivities of Pt layers of GGG/[YIG (48 nm)/Pt (5.2 nm)]_n (n = 1, 2 and 3), GGG/Pt (5.2 nm)/YIG (48 nm) and GGG/Pt (5.2 nm)/YIG (48 nm)/Pt (5.2 nm).

GGG/[YIG (48)/Pt (5.2)] _n	Resistivity μΩcm
n=1	17.5
n=2	18.3
n=3	18.5
GGG/Pt (5.2)/YIG (48)	17.5
GGG/Pt (5.2)/YIG (48)/Pt (5.2)	18.6

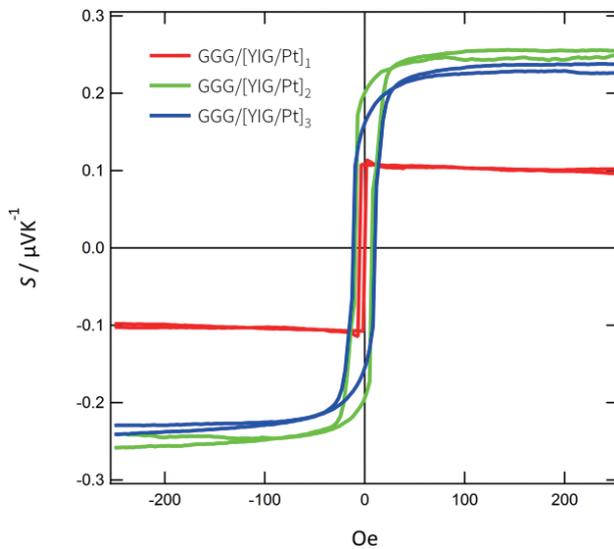


Figure 7 Field dependence of SSE coefficients of GGG/[YIG (48 nm)/Pt (5.2 nm)]_n, n = 1~3, measured under the temperature difference condition of ΔT = 6 K.

SSE 係数 S とシート抵抗 R_s から、素子面積当たりの出力 (SSE 出力特性) を S^2/R_s と見積もることができる。SSE 係数は $n=1$ から $n=3$ で 2 倍の増加であるが、Pt の抵抗率が一定なので層数が増すとシート抵抗が低下し、SSE 出力特性は 16 倍に増加した。

1.2 章で紹介した $[\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Pt}]_n$ では $n=6$ まで S の増大が見られ、 $[\text{YIG}/\text{Pt}]_n$ の結果と異なっている。単純に考えて $n=2, 3$ では YIG/Pt/YIG のように上下から YIG に挟まれた Pt 層があり、上下の 2 つの Pt-YIG 界面からのスピン流への寄与があるため、SSE は 2 倍となる。これにより多層 GGG/[YIG/Pt]_n の SSE 電圧は層数 n に対し $(2n-1)/n$ 倍に大きくなり、徐々に 2 倍に近づく。今回の結果では、 $n=2$ において約 2 倍の SSE となっており、この単純な解釈では説明できない。YIG/Pt 界面の数が増えることによる SSE への影響を調べた。

3.4 GGG/Pt/YIG, GGG/Pt/YIG/Pt の SSE

次に、GGG/Pt/YIG、さらに Pt を成膜した素子の

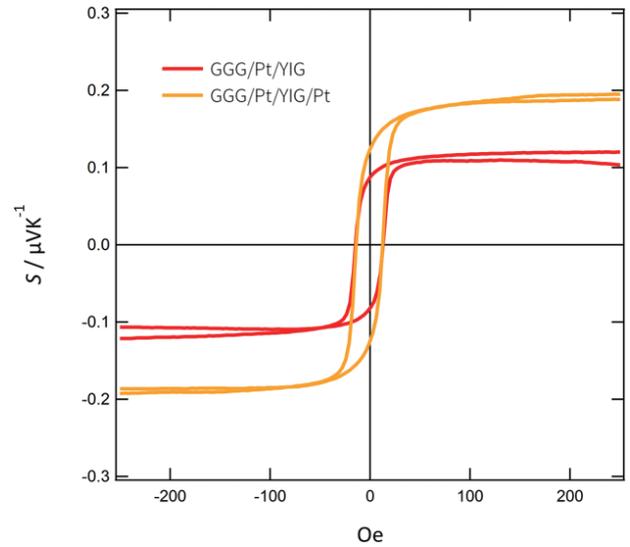


Figure 8 Field dependence of SSE coefficients of GGG/Pt (5.2 nm)/YIG (48 nm)/Pt (5.2 nm) and GGG/Pt (5.2 nm)/YIG (48 nm), measured under the temperature difference condition of ΔT = 6 K.

SSE を測定した。Figure 8 に GGG/Pt/YIG、GGG/Pt/YIG/Pt の SSE 係数 S の磁場依存性を示す。200 Oe での S の飽和値は GGG/Pt/YIG の $S=0.11 \mu\text{VK}^{-1}$ であった。GGG/YIG/Pt とほぼ等しい値である。3.1 章で論じたように GGG/YIG と GGG/Pt/YIG の FMR 線幅は 4.1 Oe と 70 Oe と 10 倍以上の差がある。Pt 上の YIG は多結晶でありスピン波の減衰が大きいためであるが、スピン波の減衰と SSE 電圧の大きさには相関があり、減衰率が大きいほど SSE 電圧が小さくなるという報告がなされている¹²⁾。我々の結果は一見これと矛盾するが、文献 12 では単結晶 YIG 膜サンプル間での比較であった。単結晶膜と多結晶膜のスピン波の減衰と SSE 電圧の関係は明らかではない。3.1 章で示したように GGG/Pt/YIG の YIG 膜は多結晶膜であっても膜厚方向には一つのグレインをなしており、膜厚方向のスピン流の拡散を阻害しないため、SSE 電圧への影響が小さいとも考えられる。

GGG/Pt/YIG/Pt の S は $0.19 \mu\text{VK}^{-1}$ と GGG/Pt/YIG に対し 173% の増強が生じていた。この構造では前章で説明した YIG/Pt/YIG の解釈は全く当てはまらない。そのため、この増大の背後には、序論で述べた $[\text{Fe}_3\text{O}_4/\text{Pt}]_n$ 多層膜での SSE 増大と同じメカニズムがあると考えている。Pt を重ねることで熱抵抗が大きくなり温度差が大きくなったという解釈もありうるが、わずか 5 nm の良導体の Pt が熱抵抗となることは考えにくい。文献 3 で Ramos らは常磁性金属 NM と強磁性絶縁体 FMI の積層構造におけるスピン流の膜厚方向の強度分布を計算している (Figure 9)。FMI/NM/FMI から FMI/NM/FMI/NM と、NM が上部に 1 層加わることで、Figure 9 の矢印で示す NM/FMI の界面でのスピン

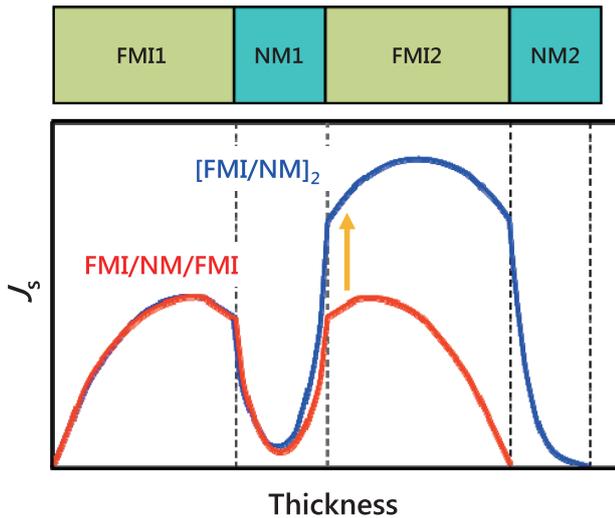


Figure 9 Comparison of the spin current profile for the SSE models, $[FMI/NM]_2$ and FMI/NM/FMI (FMI: ferromagnetic insulator, NM: nonmagnetic metal) (Ref. 3). At the interface between NM1 and FMI2, the spin current is enhanced for $[FMI/NM]_2$.

流が増大すると報告されている。我々の今回の GGG/Pt/YIG/Pt での SSE の増強はこの効果で説明が可能と考えている。しかし、文献 3 では多層 $[Fe_3O_4/Pt]_n$ で $n=6$ まで SSE 電圧が増大しており、彼らの理論をそのまま、我々の $[YIG/Pt]_n$ の結果に当てはめることはできず、さらに検討が必要である。

4. まとめ

本研究では、GGG 上にエピタキシャルな YIG 結晶膜、さらに Pt を間に挟んだ GGG/Pt/YIG を作製した。Pt 上の YIG は多結晶であるが、SSE 係数の強度は YIG

が単結晶である GGG/YIG/Pt と同じ値を得た。多層 $GGG/[YIG/Pt]_n$ では $n=1$ に対して 2 倍程度の SSE の増強であったが、Pt の抵抗率は一定であり出力特性は層数が増すと 16 倍に向上した。一方、Pt/YIG/Pt のサンドイッチ構造においても SSE の増大を確認し、文献 12 で述べられている多層構造によるスピン流増大の効果が部分的に発現していると考えられる。未だに SSE 係数は μVK^{-1} オーダーと非常に小さいが、SSE 係数の増大と出力特性の向上が見られる品質の高い多層構造を、スパッタ成膜と RTA により作製することができた。

本研究は東北大学 AIMR 斎藤研究室との共同研究で行われた。実験を指導していただいた吉川助教、齊藤教授に感謝申し上げます。

文 献

- 1) A. Kirihaara, et al., Sci. Rep. 6 (2016), 23114.
- 2) K. Uchida, et al., Proceedings of the IEEE 104 (2016), 1499.
- 3) R. Ramos, et al., Phys. Rev. B 92 (2015), 220407.
- 4) C. Tang, et al., Appl. Phys. Lett. 108 (2016), 102403.
- 5) C. Hauser, et al., Sci. Rep. 6 (2016), 20827.
- 6) Y. Sun, et al., Appl. Phys. Lett. 101 (2012), 152405.
- 7) T. Liu, et al., J. Appl. Phys. 115 (2014), 17A501.
- 8) M. C. Onbasli, et al., APL Materials 2 (2014), 106102.
- 9) O. d'Allivy Kelly, et al., Appl. Phys. Lett. 103 (2013), 082408.
- 10) J. Lustikova, et al., J. Appl. Phys. 116 (2014), 153902.
- 11) E. J. Gao, et al., Phys. Rev. X 6 (2016), 031012.
- 12) H. Chang, et al., Sci. Adv. 3 (2017) e1601614.