

ウェアラブルデバイスを駆動する体温発電素子の開発

Development of human body thermoelectric generators toward wearable devices

2171028



研究代表者

九州大学

教授

湯 浅 裕 美

[研究の目的]

世界の先陣を切って高齢化が進む日本では、さりげない見守りや健康維持のためのウェアラブルデバイスの需要が高まっている。ところが、寿命の十分長い電池は大きくて装着感が悪く、小型な充電式とすると充電の手間が煩わしい、など電源に対する満足度は高くない。体温を利用した温度差発電ができれば、ケアレスな電源により駆動するウェアラブルデバイスを実現することが出来る。デバイスの低消費電力化が進む中、地産地消型のエネルギーハーベストの実現が待たれる。

スピンゼーベック効果を利用した温度差発電は一様膜で発電できるため、ウェアラブルで重要なフレキシブル化がしやすいだけでなく、面積に対するスケールアップが成り立つ。図1に、スピンゼーベック効果に基づく熱起電力発生メカニズムを示す。まず、磁性酸化物に温度勾配を印可すると温度差に応じてマグノンが発生する。これがスピンゼーベック効果である。こ

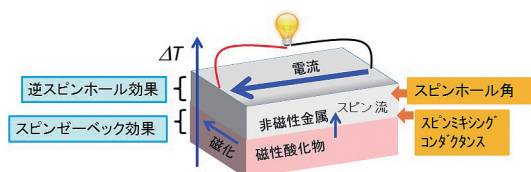


図1 スピンゼーベック効果と逆スピンホール効果における熱起電力の発生機構。

れによって非磁性金属との界面にはアップスピンとダウンスピンの数が異なる状態、スピン蓄積が生じ、非磁性金属へスピン流として流入する。金属内部では逆スピンホール効果によってスピン流が電流へと変換され、熱起電力が得られる。このように、温度差に垂直方向に起電力が得られるため、一様膜で発電できるメリットを持つ。さらに、2つの物理現象の組み合わせから起電力が得られるため、従来ゼーベック効果でトリレンマとされた熱伝導率・電気抵抗率・ゼーベック係数の両立に関し、2つの材料に分担させて開発することが出来るというメリットがある。しかしながら、図2に示すように、実情としてはスピンゼーベック効果に基づく熱起電力は従来型ゼーベック効果に対して小さく、大幅な起電力増加が必要とされる。

上述のメカニズムにおいて重要となるのが、非磁性金属におけるスピン流から電流への変換効率であるスピンホール角、および磁性酸化物

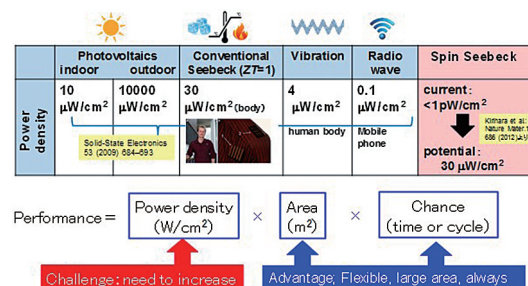


図2 エネルギーハーベスティングにおける代表技術とのベンチマーク。

から非磁性金属へのスピンの注入効率に相当するスピンミキシングコンダクタンスである。本研究では、起電力向上のキーパラメータであるスピンホール角とスピンミキシングコンダクタンスに着目し、材料探索から提案を行う。

〔研究の内容、成果〕

(1) スピンホール角

スピン流は逆スピンホール効果によって電流に変換されるが、このときの変換効率をスピンホール角という。これが大きいほど得られる電流も大きくなる。そこで、スピンホール角の多い非磁性金属を探索する。一般的に用いられる材料はPtである。これは、スピンホール角はスピン軌道相互作用との相関があり、Ptはこの大きい材料として知られているためである。その後、高スピンホール材料の探索が始まり、TaやWがPtよりも大きいスピンホール角を持つことが報告された。しかしながら、TaやWを磁性酸化物であるYIGと組み合わせたスピントラニクス効果においては、その起電力がPtよりも小さい。我々はこの理由として、TaやWが酸化されやすい金属であることに着目し、酸化物YIGとの界面でTaやWが酸化されていまい、スピン流の注入が非効率となっていると考え、界面酸化を回避する方法として、Ta50W50合金の利用を試みた。これは、TaW合金が単体のTaやWより酸化されにくいというバルクに関する報告を拠り所とした。図3は、試料の構成と測定系である。試料は厚さ1mm（ミリメートル）の直方体YIG基板に各種非磁性金属Pt, Ta, W, Ta50W50をスパッタ法により5nm（ナノメートル）成膜した。

直方体上下に温度勾配をペルチェ素子で挟み込むことで印加し、短辺方向に磁場を挿引し、長辺方向に起電力を検出した。

図4(a)に、非磁性金属をPt, Ta, W, Ta50W50と変化したときの熱起電力の磁場依存性を示す。

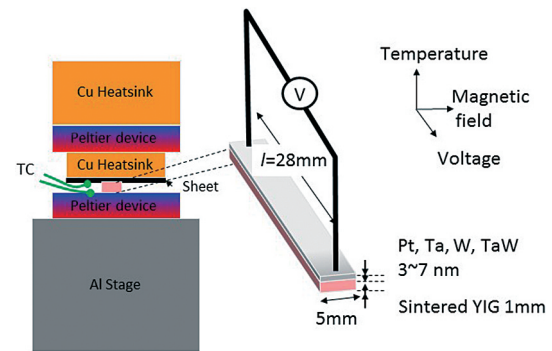


図3 試料の構造と測定系

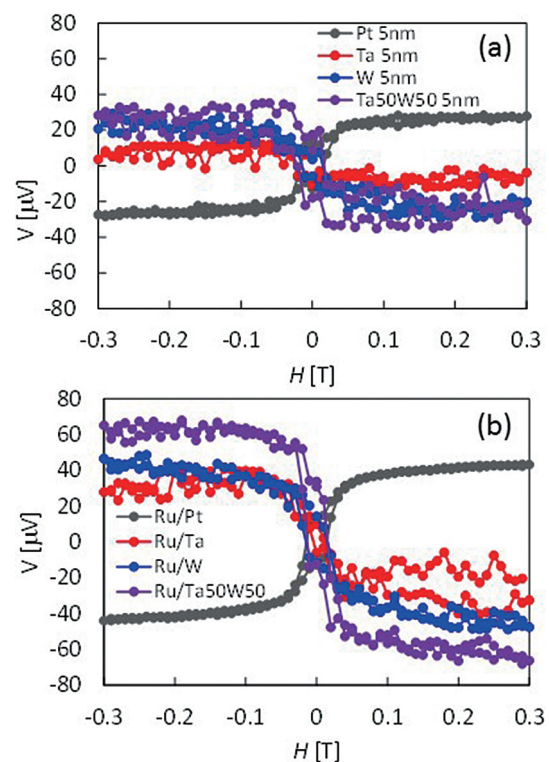


図4 YIG/各種非磁性金属における熱起電力の磁場依存性。(a) YIG/M 5 nm, (b) YIG/Ru 0.5 nm/M 4.5 nm (M=Pt, T, W, Ta50W50)。

スピントラニクス係数を示す。Pt以外はスピンホール角の符号を反映して磁場に対する起電力の符号が反転する。注目の起電力は、TaW合金としてもWと同程度で、大きく向上することはなかった。

そこで次の施策として、YIGと各種非磁性金属の界面へRuを0.5nmを挿入した。RuはTa等に比べて酸化されにくい金属で、さらにスピンホール角が小さいので邪魔にならない。

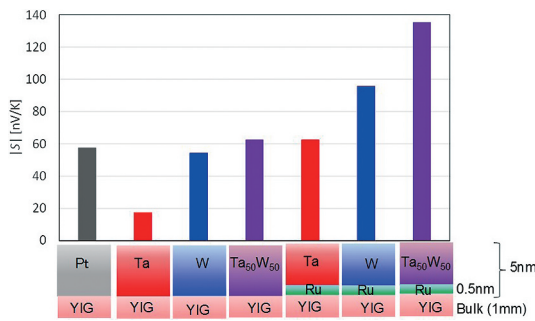


図5 YIG/各種非磁性金属におけるスピントラップ係数

この結果を図4(b)に示す。明確に YIG/Ru/TaW 合金の起電力が大きくなった。

図5に、起電力の大きさを示すスピントラップ係数をまとめる。参照試料の YIG/Pt に対し、Ru 挿入をした W と TaW 合金でスピントラップ係数が増加した。さらに、Ru なしでは差のなかった W と TaW 合金であるが、Ru 挿入をすると TaW 合金のスピントラップ係数が明らかに大きくなった。両者の界面は YIG/Ru であり共通であることから、スピントラップ係数の差はバルク部分のスピンホール角に依るものと考えられる。すなわち、これまでスピンホール角が最大級と考えられてきた W を、TaW 合金が超えたことを意味する。

このように、スピンホール角の大きな材料として TaW 合金を見出した。

(2) スピンミキシングコンダクタンス

次に、磁性酸化物から非磁性金属へのピン流注入効率に相当するスピンミキシングコンダクタンスを向上するため、YIG/Pt 界面に様々な磁性金属を挿入した。これは、界面における磁気モーメント密度が高いほど、スピンミキシングコンダクタンスが大きいという理論予測があったためである。YIG は酸化物フェリ磁性体であるため、磁気モーメントを持たない酸素原子が多く、フェリ磁性は反対向きの磁気モーメント配列であるため、磁気モーメント密度は大きくない。

そこで、金属の強磁性体を挿入した。金属強磁性体は全原子が平行な磁気モーメントを持つ

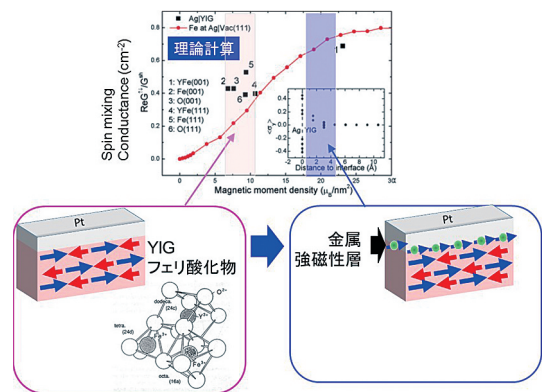


図6 YIG/非磁性金属界面におけるスピンミキシングコンダクタンス向上の概念図

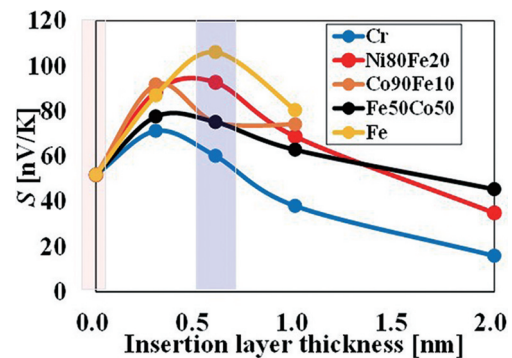


図7 YIG/M/Pt (M= Cr, Ni80Fe20, Co90Fe10, Fe50Co50, Fe) におけるスピントラップ係数の挿入層膜厚依存性

ため、磁気モーメント密度の高いことが期待されるためである。この概念図を図6に示す。ピンク色のハッチングが YIG の磁気モーメント密度、紫色のハッチングが一般的な金属強磁性体の磁気モーメント密度である。

挿入する強磁性金属には、Cr, Ni80Fe20, Co90Fe10, Fe50Co50, Fe という典型的な遷移金属磁性体を用いた。いずれもよく使われる組成であり、磁気モーメントの大きさなど素性がよく知られている。図7に、YIG (1 mm)/M (t nm)/Pt (5 nm) のスピントラップ係数を M 膜厚 t 依存性として示す。ピンク色と紫色のハッチングはそれぞれ、図6の磁気モーメント密度に対応する。強磁性層挿入により磁気モーメント密度が増加し、これに対応して期待通りにスピントラップ係数が増加することが分かった。挿入膜厚 0.6 nm 以上でスピントラ

ベック係数が減少に転じるのは、金属層全体の膜厚が大きくなることで電気抵抗が下がり、これによって電圧が下がるためである。逆に言うと、0.6 nm までの膜厚領域では、電気抵抗減少による電圧低下の影響を、スピンミキシングコンダクタンス向上の影響が上回っていることを意味する。

[今後の研究の方向, 課題]

本研究により、スピンホール角とスピンミキシングコンダクタンスがスピンゼーベック起電力向上のキーパラメータであることが導かれた。今回は電圧である起電力の増加を調べたが、実際の発電素子としては電気抵抗を含めた電力が重要な性能となる。たとえば今回見出した高スピンホール角の TaW 合金は電気抵抗率が高く、この点で従来の Pt に対して不利となる。今後は、総合的な性能を広く俯瞰しつつ、キーパラメータの向上を進める必要がある。

[成果の発表, 論文等]

- (1) H. Yuasa, F. Nakata, R. Nakamura and Y. Kurokawa: Spin Seebeck coefficient enhancement by using Ta50W50 alloy and YIG/Ru interface, J. Phys. D: Appl. Phys. **51** 134002 (2018).
- (2) 招待講演 H. Yuasa, "Enhancement of Spin Mixing Conductance in Spin Seebeck Effect" 3rd Japan-Korea Spintronics Workshop 2017/12/18-20 (KIST, Korea).
- (3) 招待講演 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).
- (4) 招待講演 H. Yuasa, "Spintronic phenomena and devices ~past, current and future~, Joint workshop btw SKKU and Kyushu University "Emerging materials and devices", 2018/1/15 (Kyushu Univ. Fukuoka).
- (5) 招待講演 湯浅裕美, "スピンゼーベック効果における界面・材料の役割" 平成 30 年電気学会全国大会 シンポジウム 新規スピndeデバイスに向けた光・熱・磁気間相互作用の基礎と応用, 2018/3/14-16 (九州大学, 福岡)