

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 24 日現在

基幹番号：17102

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2010～2012

課題番号：22246003

研究課題名（和文） 純スピン流注入による高効率な磁気冷凍技術の開発

研究課題名（英文） Development of efficient magnetic refrigeration technique using pure spin current

研究代表者

木村 崇（KIMURA TAKASHI）

九州大学・稲盛フロンティア研究センター・教授

研究者番号：80360535

研究成果の概要（和文）：

研究代表者がこれまでに確立した純スピン流制御技術を用いて、磁気熱量材料中のスピンエントロピーを制御する技術を開発し、集積回路等に適用可能な極微細磁気冷凍素子を実現することを目標として、以下のような成果を得た。高品質な微細 Gd 細線の作製、微細 Gd 細線の磁化曲線の検出、Gd 細線のスピン吸収効率の評価、横スピン流を用いたスピン吸収効率の向上、直流純スピン流注入による熱起電力の減少。の成果は、Gd 細線への純スピン流注入により素子温度が冷却されたことを示唆しており、極微細磁気冷凍技術の開発に向けた原理実証が実現できたと考えられる。

研究成果の概要（英文）：

By using efficient manipulation techniques of the pure spin current developed by the project leader, we develop a novel spin cooling device with manipulating the spin entropy of the magnetocaloric materials. The major activities are as follows. 1. Fabrication of high quality Gd nano wire, 2. Detection of M-H curve of submicron Gd wire, 3. Evaluation of spin absorption efficiency of Gd, 4. Efficient spin absorption using transverse spin current, 5. Reduction of thermoelectric voltage due to pure spin current injection. The final result implies the realization of the spin cooling using pure spin current.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	24,600 千円	7,380 千円	31,980 千円
2011 年度	5,200 千円	1,560 千円	6,760 千円
2012 年度	2,100 千円	630 千円	2,730 千円
年度			
年度			
総計	31,900 千円	9,570 千円	41,470 千円

研究分野：応用物性・結晶工学

科研費の分科・細目：5603

キーワード：スピン注入、磁気冷凍、スピントロニクス、磁気熱量効果、ナノエレクトロニクス

1. 研究開始当初の背景

ユビキタス情報社会の実現に向け、高速情報処理が可能な小型電子機器が希求されている。現在まで、素子の微細化・高集積化に

より高性能な電子機器が実現されてきた。しかし、単位体積当りの発熱量が大幅に増大した結果、発熱による素子性能の低下や素子破壊、及び消費電力の増大など新たな問題が露

呈しつつある．この問題を解決する為に，コンパクトで冷却効果の高い冷却技術の確立が必須となってきている．

本研究では磁気エントロピーの変化を冷却に利用する“磁気冷凍技術”に着目した．本技術では強磁性体（磁気熱量材料）の磁化の向きが揃った状態からランダム状態に移る際のエントロピー増大分の熱を吸収することが可能である．冷却効率は理論的にはカルノー効率であり，高い冷却性能を有する．実用化にも至っているが，従来技術では磁化の向きを揃えるのに永久磁石を利用しており，微細化が困難である．そこで申請者は純スピン流を用いて磁化の向きを揃える「純スピン流制御型の磁気冷凍素子」を考案した．

2. 研究の目的

本研究では，従来の磁気冷凍技術における「磁界印加」をスピントロニクスにおける代表的な技術の一つである「スピン注入」に置き換えて，新奇な冷凍技術を開発することを目的とする．即ち，冷凍技術とスピントロニクスを融合するという極めて画期的な着想である．スピン注入型磁気冷凍素子の構想図を図1に示す．スピンの流れ（スピン流）は言わば磁石の流れであり，強磁性体に注入することで磁界印加と同様の効果を得ることが可能である．従って，スピン流を用いて磁気エントロピーを制御し，磁気冷凍を実現することもまた可能であると考えられる．しかし，GMR に用いられるような電荷の流れを伴うスピン流では，ジュール熱が発生し測定が困難であることが予測されるため，本研究では当研究室のシーズ技術である純スピン流生成技術を用いて，電荷の流れを排除したスピン角運動量の流れのみを注入する．この技術により，ジュール発熱を排除して冷却効果を高めるだけでなく，より省エネルギーな冷却システムの実現も可能である．エネルギー効率の高い磁気冷凍に対して，電子スピンを用いることでナノレベルの微細化が可能となり，既存の電子デバイスなどに有効である．また，コンプレッサー等の駆動部がなく，電流により冷凍サイクルが動作するため，静穏性の向上も期待される．加えて，有害物を排出せず環境への負荷が極小であるため，ス

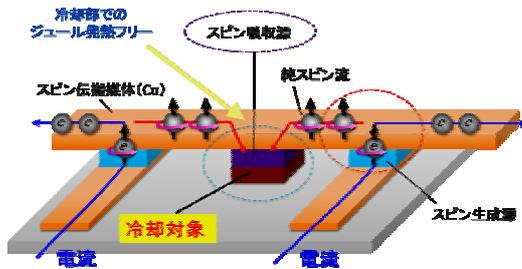


図1. スピン流冷却素子の概念図

ピン注入型磁気冷凍は革新的なユニバーサルクーリングシステムになることが期待できる．

3. 研究の方法

図1に示す純スピン流制御型の磁気冷凍素子の動作原理について説明する．青色矢印方向に電子を流し，スピン注入源（強磁性体）から非磁性細線中にスピンを注入する．注入されたスピンは細線中をスピン流として伝播し，磁気熱量材料中に注入される．本研究ではスピン注入源としてNiFe（パーマロイ：Py），非磁性細線としてCu，磁気熱量材料としてGdを用いる．磁気冷凍素子で十分な冷却効果を実現する為には，非磁性体中の高効率スピン流生成および高効率スピン流伝播，磁気熱量材料への高効率スピン注入が必須となる．本研究ではこれらの要素技術の確立を目指し，素子作製方法の最適化を行う．更に，磁気冷凍素子の試作し、原理実証実験を行う．

4. 研究成果

(a) 高品質 Gd 細線の作製

電子線描画，及び，リフトオフ法を用いて，Gd 細線を作製し，その磁気輸送特性を評価した．作製した Gd 細線は，細線幅 $1\mu\text{m}$ ，長さ $25\mu\text{m}$ であり，測定は四端子法を用いた．Gd 細線における磁気輸送特性の測定結果を図2に示す．比較のため，Gd 薄膜の結果を併せて示す．図2の結果から，Gd 膜を細線形状に微細加工しても，薄膜と同等の伝導特性を有することがわかる．つまりこれは，Gd を微細加工しても，磁気冷凍の冷媒として機能することを示唆し，高品質な Gd 細線の作製技術を確立したと言える．

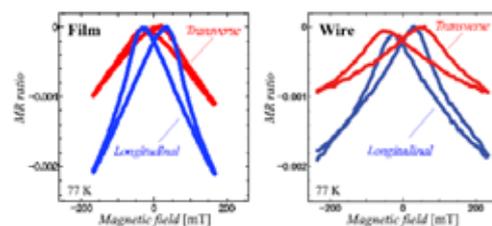


図2. Gd 薄膜，細線の磁気輸送特性

(b) ホールバーによる極微細 Gd の磁化特性

微細化された Gd の磁化測定を，二次元電子ガスとホールバーを用いて評価した．まず，GaAs 基板に電極パターンを描画し，アニールにより合金化を行った．次に，ホールバー，及び，電流・電圧端子を形成するためのパターンを描画し，ミリングすることで絶縁した．その後，Gd を電子線描画，及びリフトオフ法により作製した．なお，Gd は電子ビーム蒸着により堆積させた．図3に測定した素子

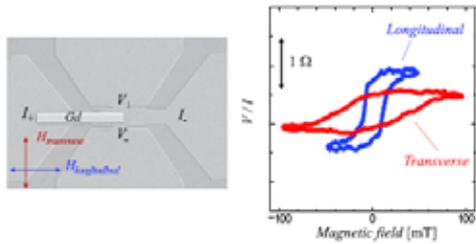


図 3. 2DEG ホール素子を用いた Gd 細線の磁化測定

の SEM 像、及び端子配置、並びに、測定結果を示す。ここで二次元電子ガスの平均自由行程を十分大きくするため、測定は 5K の低温で行った。Gd の磁力線は電流に直交する方向に働くため、ホール効果により電子が曲げられる。図にみられるように、磁界印加方向を Longitudinal から Transverse に変化させたところ、異なる保磁力の信号変化を検出し、形状による磁気異方性が付加されているのが確認できた。

(c) Gd 膜のスピンプンピング効果

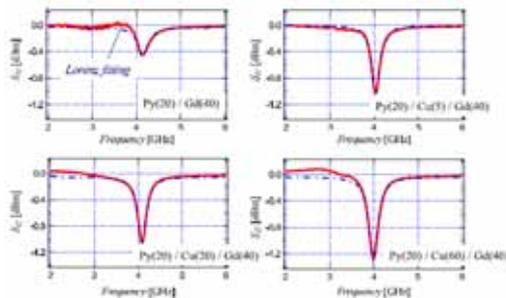


図 4. Gd を含んだ各種多層膜における強磁性共鳴スペクトル

スピン注入型磁気冷凍を実現するためには、まずはじめに磁気熱量材料である Gd がスピンを吸収するか否かを検証する必要がある。そのため、Py/Cu/Gd 積層構造において強磁性共鳴を測定することにより Gd のスピン吸収効果を評価した。

強磁性体/非磁性体において磁化の強磁性共鳴を励起した場合、強磁性体のダンピング定数は非磁性体に大きく依存することが知られている。これは、磁化を運動することで非磁性体のスピン蓄積を誘起し、スピン流を生成するスピンプンピング効果に起因する。スピンプンピングは磁気緩和を促進するため、強磁性共鳴のエネルギー吸収線幅の増加という形で現れる。従って、強磁性共鳴スペクトルの線幅から、スピン吸収強度を算出することができる。

ここで、Py 薄膜に、スピン吸収体として Gd を直接接合させた場合、及び、Py/Gd の

スペーサー層として、Cu を挿入し、スペーサー層の膜厚を変化させた場合の強磁性共鳴の測定を行った。Gd がスピン吸収体であるならば、Py のスピン緩和が促進され、エネルギー吸収線幅の増大、及び、ダンピング定数の増大が期待される。本実験に用いた試料は EB 蒸着装置を用いて、in-situ で成膜を行った。但し、Gd が酸化しやすいため、Gd, Cu, Py の順で成膜を行い、試料表面を Py とした。Py/Cu/Gd 積層構造における強磁性共鳴の結果を図 6 に示し、それらの結果から、ダンピング定数を求めたものを表 1 に示す。これらの結果から、スペーサー層のない Py/Gd 構造において、最もダンピング定数が大きくなり、Cu 層を設けることで、ダンピングが小さくなっていることがわかる。これはスピン吸収体である Gd のスピン緩和がスピン注入面からの距離に依存して変化していることを示唆している。また、スペーサー層を挿入したものについて比較すると、Cu 膜厚 5nm から 20nm にかけてわずかではあるが、ダンピング定数が減少している。これは、スピン注入面からスピン吸収体までの距離が増大したことで、スピン吸収効果が小さくなったことを示唆している。しかし、Cu 膜厚 20nm から 60nm にかけては、再びダンピング定数が大きくなるという結果を得た。これは、Cu が厚くなるにつれ Cu 表面のラフネスが大きくなり、Py と Cu 界面でのスピン散乱が増大したためであると考えられる。以上の結果から、Gd はスピン緩和の強い物質であり、スピン吸収体として機能することが期待される

(d) Gd 細線へのスピン吸収効果

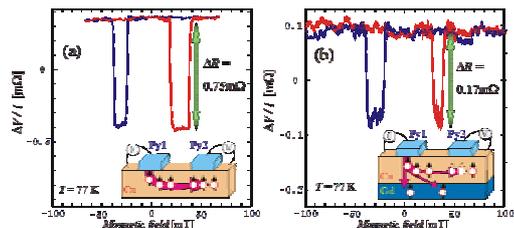


図 5. Gd 吸収層の有無によるスピン信号強度の変化。

上述したように磁気冷凍効果は、磁気熱量材料 Gd がスピンを吸収することによって実現される。スピン吸収効果自体は既に観測されているが 1)、磁気熱量材料のスピン吸収効果は十分に調べられていなかった。そこで、Gd の有無による、スピン蓄積信号の変化を測定した。ここでスピン蓄積信号は、測定した点におけるスピンの蓄積量と見ることができ、この信号が大きいほど、そこにスピンが存在すると考えてよい。図 5(左)に Gd の無い状態での素子におけるスピン蓄積信

号, 図 5 (右) に Gd 膜を堆積させた状態におけるスピンの蓄積信号を示す。結果, Gd を堆積させることで, スピン蓄積信号が 0.72 m から 0.14 m へと激減した。これは, Gd のスピン吸収効果を実証したものと見える。また, この信号の減少が, すべて Gd の吸収によるもので, 磁場による磁気エントロピーの変化と, 温度による磁気エントロピーの変化を同等のものとして仮定すると, 1mA の電流に対し, 0.5 K の冷却効果があるものと導出される。

(e) 横スピン流吸収によるスピン吸収効果の向上

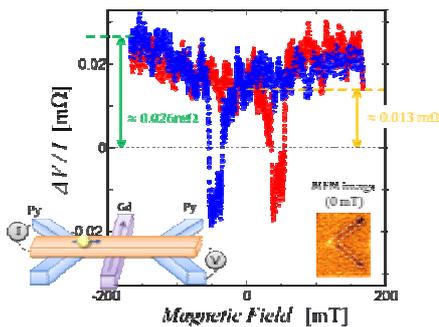


図 6. 横スピン流によるスピン吸収効果の増大

さらに性能を向上させるためには, 効率的なスピン吸収が不可欠である。一般に, スピンの吸収の度合いは注入するスピンの方向と吸収する磁性体の磁化の相対角度に依存し, 相対角度が 90° である横スピンのスピン緩和長の方が短いと言われている。そのため, スピン吸収では横スピン吸収の方が縦スピン吸収よりも大きくなることが予測される。そこで, 横スピン流を生成するために V 字型素子構造を用いた。

V 字型構造を用いることでゼロ磁界において, 横スピン吸収が実現する。Fig.5 に中間細線として Gd 細線を挿入した, V 字型スピンバルブ素子のスピン蓄積信号の実験結果を示す。図 8 より, 磁界が印加されているときのスピン信号が $0.026\text{m}\cdot$ であるのに対して, 磁界が 0 のときのスピン信号は $0.013\text{m}\cdot$ とスピン信号が減少していることが分かる。また, 図 8 の挿入図は MFM 像であり, ゼロ磁界での注入部の磁化は横方向を向いていることを示す。つまりこれらは, 磁界が印加されているときには縦スピン吸収, ゼロ磁界のときには横スピン吸収が生じており, 横スピンの方がスピン吸収の度合いが大きいため信号が小さくなったことを示す実験結果である。

(f) 純スピン流吸収による冷却効果の検証

非局所スピン信号のベース信号から温度変化を測定することが可能である。そこで,

通常のスピンバルブ素子と, スピン吸収体として Gd, Py 中間細線を挿入したスピンバルブ素子において, 非局所測定によるベース信号の比較を行った。

まず交流電流のみによる測定を行ったところ, 中間細線を挿入することでベース信号が減少するという現象を観測した。このことは, 中間細線による熱伝導によって, Cu 中の熱量が減少したためであると考えられることができるが, Py, Gd 中間細線を挿入した結果を比較すると, Py 中間細線を挿入した場合のベース信号の方が大きく減少することがわかった。これは, Py と Gd の熱伝導率を比較した場合, Py は Gd の約 9 倍であることに起因すると考えられる。

次に, 50 μ A, 100 μ A の直流電流を用いて, 測定したところ, 図 10 のように, 電流の増大と共にベース信号が減少していく傾向があった。そこで, ベース信号の電流バイアス依存性を調べた結果, Gd 中間細線を有するスピンバルブ素子においてベース信号が著しく減少するという結果を得た。この結果は, スピン流が Gd に注入されたことによる磁気熱量効果を示唆するものであり, スピン注入磁気冷凍の検証に成功した可能性が高い。

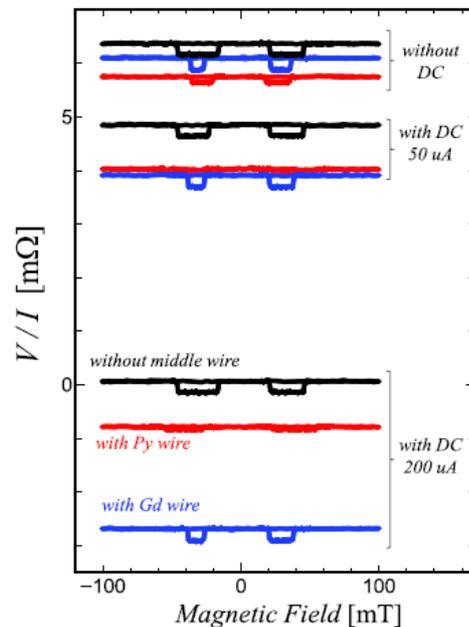


図 7. Gd 中間細線素子における非局所ベース信号の直流バイアス依存性

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7件)

1. S. Nonoguchi, Y. Ando, Y. Togawa, T. Kimura, Spin transport properties in polycrystalline Gd film and strip, TENCON IEEE Region 10 Conference Proceedings 2010, 126-128 (2010)
2. S. Nonoguchi, Y. Ando, S. Yakata, and T. Kimura "Transport properties of pure spin currents in a polycrystalline Gd wire" IEEE Trans. Magn., 47, 2750 - 2752 (2011)
3. S. Nonoguchi, Y. Ando, S. Yakata, and T. Kimura, "Electrical manipulation of spin polarization and generation of giant spin current using multi terminal spin injectors" Journal of Applied Physics 111 2012 07C505 (2012)
4. S. Nonoguchi, T. Nomura, and T. Kimura, Nonlocal spin transports in nanopillar-based lateral spin valve, Applied Physics Letters 100 132401 (2012)
5. S. Nonoguchi, T. Nomura, and T. Kimura, Longitudinal and transverse spin current absorptions in a lateral spin valve structure, Physical Review B 88, 104417 (2012)
6. T. Nomura, S. Nonoguchi, T. Kimura, Efficient inducement of bistable spin Hall effect using in-plane-magnetized V-shaped ferromagnetic wire, Applied Physics Letters 101 2012 82403 (2012)
7. S. Hu and T. Kimura, Anomalous Nernst-Ettingshausen effect in nonlocal spin valve measurement under high-bias current injection, Physical Review B 87 14424 (2013)

[学会発表](計18件)

1. 野々口誠二, 安藤裕一郎, 戸川欣彦, 木村崇 Spin transport properties in polycrystalline Gd film and strip, IEEE TENCON2010 2010.11.22 福岡
2. 野々口誠二, 安藤裕一郎, 家形諭, 木村崇, 純スピン流注入により誘導されるループ電流とその検出, 日本物理学会年次会 2011.03.24 新潟
3. 野々口誠二, 安藤裕一郎, 宮田真彦, 家形諭, 木村崇, V字型強磁性細線によるスピン注入と蓄積スピン方向の制御, 日本磁気学会学術講演会 2010.09.04 つくば

4. 野々口誠二, 安藤裕一郎, 木村崇, Gd 細線への純スピン流注入と微細磁気冷凍素子への応用, 日本真空学会 2010.06.12 福岡
5. 木村崇, 金属接合における高効率スピン注入とスピン吸収, スピン流と熱効果の新現象(招待講演) 2011.11.14-15 仙台
6. 木村崇, The 2nd ASRC International Workshop on Magnetic Materials and Nanostructures (招待講演) 2012.01.10-13 東海村
7. 野々口誠二, 野村竜也, 安藤裕一郎, 木村崇 Generation of giant spin current using multi-terminal nonlocal spin injections, 56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2011.10.30-11.03 Arizona
8. 野村竜也, 野々口誠二, 安藤裕一郎, 木村崇, Detection of a loop current created by a pure spin current, 56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials 2011.10.30-11.03 Arizona
9. 野々口誠二, 野村竜也, 安藤裕一郎, 木村崇, 厚膜Py ナノドットにおける側面スピン吸収効果, 日本磁気学会 2011.09.27~30 新潟
10. 野々口誠二, 安藤裕一郎, 家形諭, 木村崇, Pure spin current injection into polycrystalline Gd" SPINTECH6 2011.08.01-05 松江
11. 野々口誠二, 安藤裕一郎, 家形諭, 木村崇, Efficient manipulations of pure spin currents using V-shape ferromagnetic wires, SPINTECH6 2011.08.01-05 松江
12. 野々口誠二, 家形諭, 安藤裕一郎, 木村崇, Transport properties of pure spin currents in a polycrystalline Gd wire INTERMAG 2011 2011.04.25-29 台北
13. 野村竜也, 木村崇, 非局所スピンバルブ測定におけるベース信号の抑制, 日本物理学会 201n3.03.26 ~ 2013.03.29 広島大学
14. C. Mu, S. Hu and T. Kimura, Seebeck voltage in lateral FM/NM hybrid nanostructure, 日本物理学会 2013.03.26 ~ 2013.03.29 広島大学
15. S. Nonoguchi, T. Nomura, M. Hara and T. Kimura, Magnetic and transport properties of submicron Gd strip, International Conference on Magnetism 2012.07.08. ~ 2012.07.13,

Busan, Korea

16. S. Nonoguchi, T. Nomura and T. Kimura, Pure spin current injection into a Gd wire, Internatinal Conference on Magnetism, 2012.07.08 ~ 2012.07.13, Busan, Korea
17. S. Hu and T. Kimura, Improvement of generation efficiency of pure spin current using multi-terminal spin injection, Internatinal Conference on Magnetism, 2012.07.08 ~ 2012.07.13, Busan, Korea
18. S. Nonoguchi, T. Nomura and T. Kimura, Generation of pure spin current using nano-pillar-based lateral spin valve, IEEE International Magnetism Conference, 2012.05.07-2012.05.11, Vancouver, Canada

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

6 . 研究組織

(1)研究代表者

木村 崇 (Takashi Kimura)
九州大学・稲盛フロンティア研究センター・
教授
研究者番号 : 80360535

(2)研究分担者

戸川 欣彦 (Yoshihiko Togawa)
大阪府立大学・21 世紀科学研究機構・准教授
研究者番号 : 00415241

(3)連携研究者

無し