

令和 3 年 5 月 25 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2017～2020

課題番号：17H04811

研究課題名（和文）スピン熱伝導性薄膜による能動的熱流制御

研究課題名（英文）Dynamic control of heat flow using spin thermal conductivity film

研究代表者

寺門 信明 (TERAKADO, Nobuaki)

東北大学・工学研究科・助教

研究者番号：90466441

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 19,300,000円

研究成果の概要（和文）：半導体素子の超微細化に伴い排熱の集積やその変動がパフォーマンスや精度に甚大な悪影響を及ぼすことが問題となっている。この解決のために我々は熱流を電氣的に制御できる材料の開発を目指した。本研究ではマグノンと呼ばれる特殊な粒が熱を輸送するスピン梯子系物質（La₅Ca₉Cu₂₄O₄₁）に着目した。熱制御素子のプロトタイプを提案・作製し、イオン液体を用いた電圧印加によってマグノンとその熱伝導を動的に制御できることを実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

熱伝導の量やその方法を電場や磁場などの外場によって自由自在に制御するという研究はこれまでも報告されてきたが、マグノン熱伝導物質に着目してその動的制御性を実証したものは本研究が初めてである。マグノン熱伝導物質は他の熱制御物質と比べて熱伝導率が高くその制御幅も広いという利点がある。よってスマートな排・集熱や温度管理が必要とされる未来の高度熱マネジメント社会における基盤材料としての応用展開が期待される。

研究成果の概要（英文）：Owing to miniaturization and high integration in semiconductor devices, the integrated heat and its fluctuation causes degradation of performance and precision. To solve it, we aim to develop a new material that can electrically control heat flow. In this work, we focused on spin ladder materials (La₅Ca₉Cu₂₄O₄₁) whose heat carrier is a unique particle, magnon. We proposed and fabricated a prototype for the dynamic control and demonstrated that magnons and their thermal conduction can be electrically controlled by an application of voltage via an ionic liquid.

研究分野：機能材料

キーワード：熱伝導 マグノン サーモフレクタンス イオン液体 ラマン散乱

1. 研究開始当初の背景

現代のエレクトロニクスは電流のスイッチング、整流、蓄積などの高速制御によって支えられ、電子機器は制御素子の超集積化とともに今も小型・高性能化を続けている。しかしそれはジュール熱の集積化を意味し、行き場を失い蓄積した熱は素子温度の上昇とそれに伴う故障や誤作動、パフォーマンス低下の原因となる。よって、熱を素早く逃がすための熱回路設計は電子回路設計に匹敵する重要性を担っており、その問題解決のためにはなんらかのブレークスルーが必要と考えられる。

一方視点を変えると、熱は貴重なクリーンエネルギーのひとつでもある。世界の全廃熱量のうち電子機器などに由来する低温排熱がその大部分を占めると言われており、熱電変換や蓄熱などを利用したリサイクルが次世代の熱マネジメントのキーテクノロジーになることが予想されている。

2. 研究の目的

厄介者だった排熱を人類の味方につけるためには、熱を素早く逃がすことに加え電子回路における電流と同様に熱の量や方向を時空間的に制御する必要がある。例えば、時々刻々と変化する発熱分布に応じて排熱路を最適化し、ある時は熱のリサイクルに特化した集熱路に変化するなど、変幻自在な熱制御によって精密な熱流・温度制御を行い、熱の集積化とリサイクル問題を解決する。

本研究では、マグノン熱伝導を利用した熱の電氣的制御の実現を目的とした。この物質には他の熱制御物質にはない3つの特徴がある。1つ目は室温で最大 $100 \text{ W}/(\text{m K})$ にも達する高熱伝導率、2つ目はその大きな異方性、そして3つ目は、マグノンの平均自由行程（緩和時間）の正孔濃度に対する敏感性である。

3. 研究の方法

上記の正孔濃度を電氣的に制御してマグノン熱伝導の動的制御 (Fig. 1) を目指すことが本研究のオリジナリティである。電氣的制御の実証のために、作製が比較的容易な多結晶薄膜を用いた。薄膜はプレス焼結した LCCO をターゲットに用い高周波マグネトロンスパッタ法とポストアニーリングによって作製した。LCCO を用いた理由はそれが室温において最大のマグノン熱伝導率を示すためである。原子間力顕微鏡観察、X線回折などの結果から、作製した薄膜は $\sim 100 \text{ nm}$ の結晶ドメインがランダム配向した多結晶 LCCO であることを確認した。

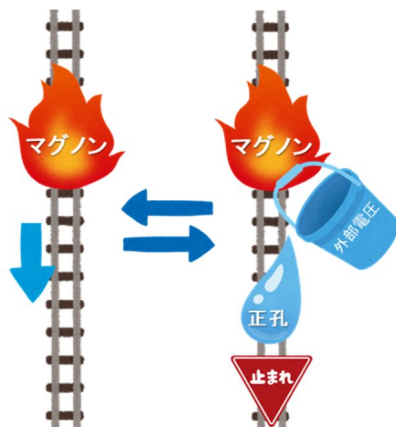


Fig. 1. マグノン熱伝導の電氣的制御の模式図

4. 研究成果

Fig. 2a に示した試料を用いて熱伝導の電氣的制御を試みた。下部電極を兼ねた低抵抗シリコン基板上に多結晶 LCCO (Fig. 2b) を成膜しイオン液体 (DEME-TFSI) を塗布した。その上に上部電極である Au 薄膜を成膜したカバーガラスを配置した。電極間に LCCO 側が正となるように電圧を印加することによってイオン液体と LCCO 間に電氣二重層を形成し、LCCO にドーブされた正孔がマグノン熱伝導を減少させることを期待した。

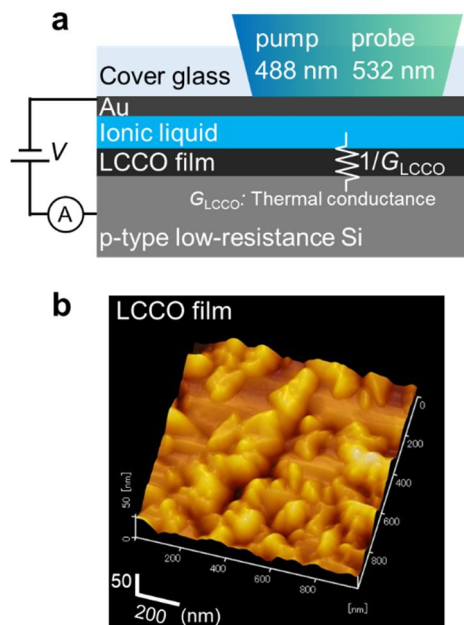


Fig. 2 a) 熱伝導の電圧制御用試料の模式図と b) LCCO 薄膜表面の原子間力顕微鏡像¹⁾

周波数領域サーモリフレクタンス法によって熱伝導を評価した。pump 光に対する probe 光の位相遅れ $-\phi$ の変調周波数 (f) 依存性を Fig. 3a に示す。LCCO 側への正電圧印加によって $-\phi$ が低周波 ($f=10^4\text{--}10^5$ Hz) において増大することがわかった。温度拡散方程式に基づいたフィッティング解析によって LCCO の熱コンダクタンス G_{LCCO} を見積もったところその値は 2 V の電圧印加によって可逆的に減少し、その制御幅は $1\text{--}4$ MW/(m²·K) 程度であり (A-C)、その後の回復は不完全 (D-E) になることがわかった (Fig. 3b)。

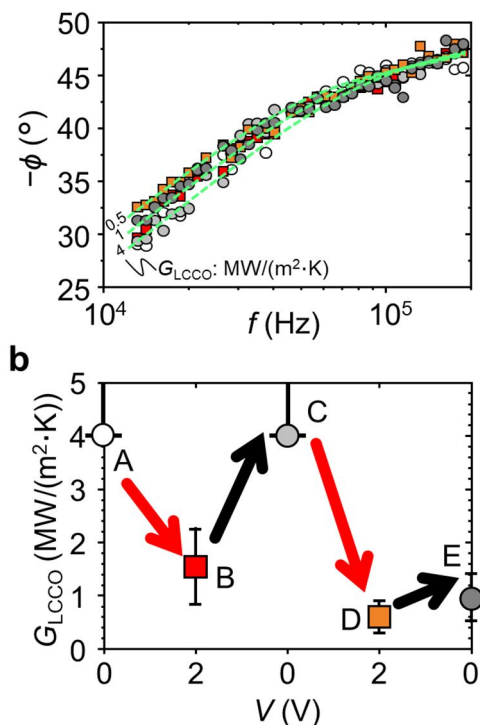


Fig. 3 a) 位相遅れ $-\phi$ の f 依存性と b) LCCO 薄膜の熱コンダクタンス G_{LCCO} の印加電圧応答¹⁾

Fig. 4a の試料を用いて顕微 Raman 分光測定をおこなった。Fig. 4b に LCCO 及びイオン液体に焦点を合わせたときのスペクトル(それぞれ IL/LCCO と IL)とそれらの差スペクトル(IL/LCCO-IL)を示す。差スペクトルは、LCCO 多結晶粉末のスペクトルに一致し、 ~ 3000 cm⁻¹ を中心とするブロードなピークが観測される。このピークは two-magnon ピークとよばれ、マグノン熱伝導物質のような反強磁性的に結合したスピンをもつ物質に特有のものであり、互いに逆方向に進行する 2 つのマグノン (つまり波数の合計は 0) による非弾性光散乱に相当する。Fig. 5 に、差スペクトルの電圧による変化を示す。電圧印加によって差スペクトルは ~ 2000 cm⁻¹ を中心にブロードに減少し、短絡によって回復することがわかった。

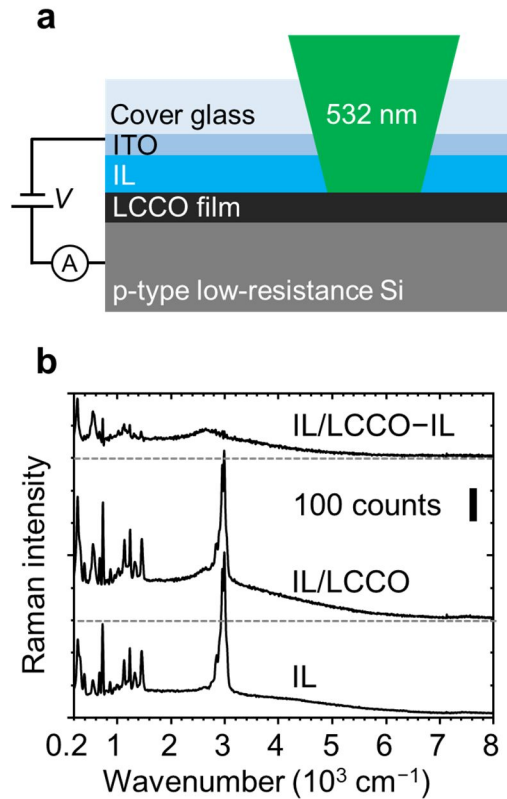


Fig. 4 a) 電圧印加下のその場顕微ラマン分光用試料の模式図¹⁾ b) LCCO 及びイオン液体に焦点を合わせたときのスペクトル (それぞれ IL/LCCO と IL) とそれらの差スペクトル (IL/LCCO-IL)。

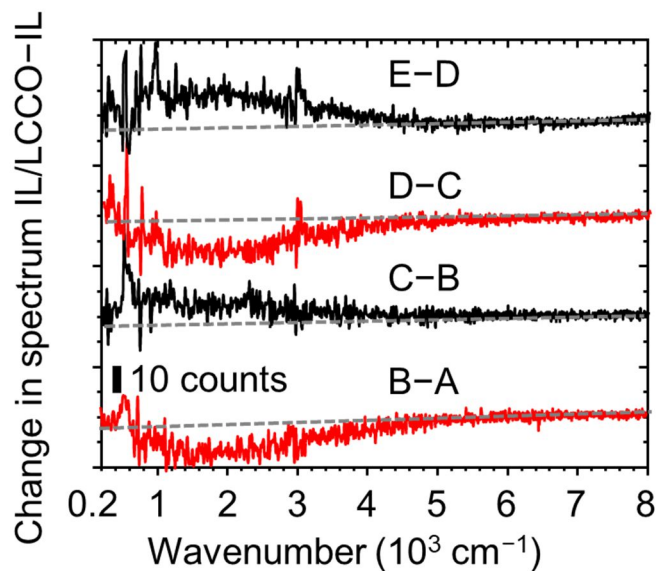


Fig. 5. 差スペクトル (IL/LCCO-IL) の電圧印加及び短絡による変化¹⁾ 記号 A-E は Fig. 3b のそれに対応する。

以上の結果を説明するために、以下の現象を想定した。1 つ目は、イオン液体の浸透である。Fig. 2b からわかるように本薄膜はポストアニーリング処理によるドメイン形成のため薄膜全域にわたって微小クラックが存在することが予想され、それを伝ってイオン液体が浸透しやすい状態にある。試料作製時に浸透したイオン液体は、電圧印加下の薄膜全域でマグノンとその熱伝導を動的に変化させると期待される (Fig. 6)。加えて LCCO 内における自己正孔ドーピングを提案した。実は LCCO にも正孔が存在するのだが、普段はマグノン熱伝導には関与しない層に潜んでいる。これらの正孔が、電圧印加時の浸透イオン液体が作る静電ポテンシャルによってマグノン熱伝導層へ移動し、マグノンの進行を阻害するというモデルである。この確認のためには、磁気、電気特性や分光スペクトルなどの調査が必要であると考えている。

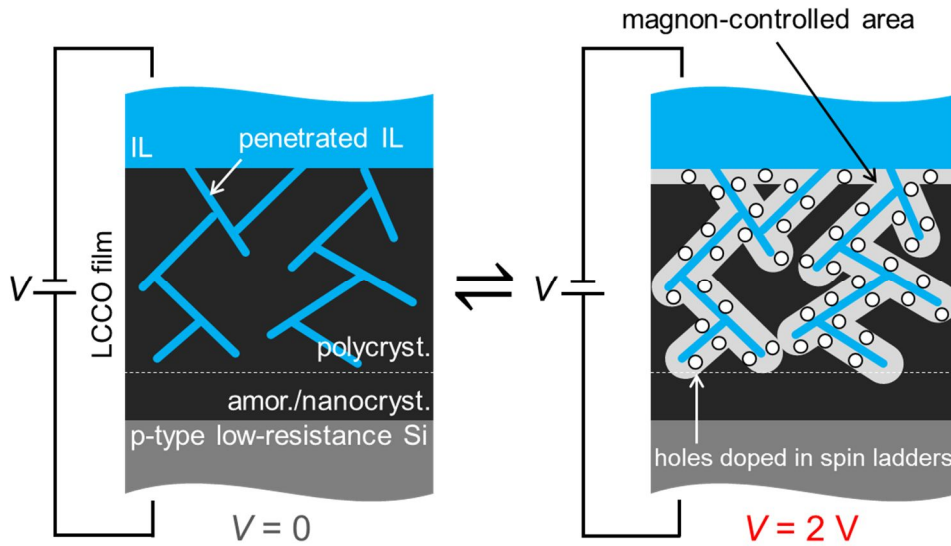


Fig. 6. 短絡及び電圧印加下における本試料の断面模式モデル¹⁾

熱伝導を動的に制御する研究は近年盛んに行われているが、室温における最高熱伝導率を見ると $10 \text{ W}/(\text{m K})$ に満たないケースがほとんどであり、既存の放熱用材料のそれより一桁小さい。本研究は、高いマグノン熱伝導とその広い制御幅が期待される LCCO を用いて熱伝導の電気制御を実証した世界初の研究であり、熱制御やマグノン熱伝導分野において大きなインパクトを持つ。今後は、高度熱マネジメント社会における基盤材料への応用展開を見据えながら、熱制御幅や繰り返し特性の向上を目指す。また、薄膜内部へのイオン液体の浸透は当初予期していなかったことであり、熱制御における重要な役割を担うことが予想される新知見の一つである。

参考文献 1) N. Terakado, Y. Nara, Y. Machida, Y. Takahashi, T. Fujiwara, Sci. Rep. **10**, 14468 (2020).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 N. Terakado, Y. Nara, Y. Machida, Y. Takahashi, T. Fujiwara	4. 巻 10
2. 論文標題 Dynamic control of heat flow using a spin-chain ladder cuprate film and an ionic liquid	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 14468
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-020-70835-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 寺門信明, 高橋儀宏, 藤原巧	4. 巻 30
2. 論文標題 マグノン熱伝導を利用した熱流の電氣的制御	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 クリーンエネルギー	6. 最初と最後の頁 8-14
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計27件（うち招待講演 3件/うち国際学会 10件）

1. 発表者名 Y. Nara, N. Terakado, Y. Takahashi, T. Fujiwara
2. 発表標題 Impact of electric field and grain size on thermal conductivity of spin thermal conductivity film
3. 学会等名 2nd Global Forum on Advanced Materials and Technologies for Sustainable Development（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Terakado, Y. Machida, Y. Nara, S. Watanabe, Y. Takahashi, T. Fujiwara
2. 発表標題 Preparation of thin film in low-dimensional spin system toward electric control of thermal conductivity
3. 学会等名 2nd Global Forum on Advanced Materials and Technologies for Sustainable Development（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Terakado, Y. Machida, Y. Nara, Y. Takahashi, T. Fujiwara
2. 発表標題 Electric field-induced change of structure and thermal conductivity in spin thermal conductivity film
3. 学会等名 25TH INTERNATIONAL CONGRESS ON GLASS (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Watanabe, N. Terakado, Y. Takahashi, T. Fujiwara
2. 発表標題 Orientation of spin thermal conductive film of Sr-Cu-O system for active heat control
3. 学会等名 25TH INTERNATIONAL CONGRESS ON GLASS (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 渡辺 祥太, 奈良 由紀, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 b軸配向したスピン梯子系Sr ₁₄ Cu ₂₄ O ₄₁ スパッタ膜の形成機構とその熱伝導率
3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 奈良 由紀, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 熱流の電気制御を指向したスピン梯子系薄膜の作製と熱物性
3. 学会等名 令和元年度公益社団法人日本セラミックス協会 東北北海道支部研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 木下 大也, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 熱流の電界制御に向けたLa-Ca-Cu-O系スピン熱伝導性ナノシートの創製
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 奈良 由紀, 寺門 信明, 渡辺 祥太, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 マグノン熱伝導性La-Ca-Cu-O薄膜における熱キャリアの電界制御
3. 学会等名 第67回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 N. Terakado
2. 発表標題 Electric control of heat flow by using spin thermal conductivity material
3. 学会等名 The Future of Topological Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Terakado, Y. Machida, Y. Nara, Y. Takahashi, T. Fujiwara
2. 発表標題 Electric-field Control of Spin Ordering and Heat Flow In Spin ThermalConductivity Material Oral Contribution
3. 学会等名 Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Y. Machida, N. Terakado, Y. Takahashi, T. Fujiwara
2. 発表標題 Fabrication of La-Ca-Cu-O spin thermal conductivity thin film having sandwich electrodes for application to electric-field control of heat flow
3. 学会等名 Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 奈良 由紀, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 Evaluation of thermal properties oin spin thermal conductivity La-Ca-Cu-O film by frequency-domain thermoreflectance
3. 学会等名 第50回日本セラミックス協会ガラス部会夏期若手セミナー
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 奈良 由紀, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 La-Ca-Cu-O系スピン熱伝導性薄膜の熱伝導率評価と電界効果
3. 学会等名 公益社団法人日本セラミックス協会 第31回秋季シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 奈良 由紀, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 La-Ca-Cu-O系スピン熱伝導性薄膜の電界印加下における熱伝導率評価
3. 学会等名 光ファイバ応用技術研究会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 町田 雄気, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 熱流の電気制御に向けたLa-Ca-Cu-O系スピン熱伝導性薄膜の作製と非弾性光散乱
3. 学会等名 応用物理学会東北支部第73回学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 奈良 由紀, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 熱の電界制御に向けたLa-Ca-Cu-O系スピン熱伝導性物質の作製と周波数領域サーモリフレクタンス法による熱伝導性評価
3. 学会等名 第57回セラミックス基礎科学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 奈良 由紀, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 La-Ca-Cu-O系スピン熱伝導性薄膜における粒径と物性値の関係
3. 学会等名 第66回 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 渡辺 祥太, 寺門 信明, 高橋 儀宏, 藤原 巧
2. 発表標題 熱のアクティブ制御に向けたスピン熱伝導性薄膜の配向制御
3. 学会等名 第66回 応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 寺門 信明
2. 発表標題 熱を能動的に制御できる材料の開発
3. 学会等名 第49回日本セラミックス協会ガラス部会夏期若手セミナー（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 寺門 信明
2. 発表標題 スピン熱伝導材料による熱流の時空間制御
3. 学会等名 平成29年度第三回ガラス科学技術研究会（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 N. Terakado, R. Takahashi, Y. Yamazaki, Y. Takahashi, T. Fujiwara
2. 発表標題 Heat flow control by spin thermal conductivity materials having ordered/disordered structures
3. 学会等名 The 12th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology including Glass & Optical Materials Division Annual Meeting (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Y. Machida, N. Terakado, R. Takahashi, Y. Takahashi, T. Fujiwara
2. 発表標題 Synthesis of spin thermal conductivity La-Ca-Cu-O thin films for micro-thermal management
3. 学会等名 RIEC International Symposium on Photonics and Optical Communications (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Y. Machida, N. Terakado, R. Takahashi, Y. Takahashi, T. Fujiwara
2. 発表標題 Preparation and control of spin ordering in spin thermal conductivity La-Ca-Cu-O films for active thermal management
3. 学会等名 Photocatalysis 2 & SIEMME'23 Joint Symposium (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 町田 雄気、寺門 信明、高橋 良輔、高橋 儀宏、藤原 巧
2. 発表標題 La-Ca-Cu-O系スピン熱伝導性薄膜の構造調査と磁気秩序の制御
3. 学会等名 第49回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 町田 雄気、寺門 信明、高橋 儀宏、藤原 巧
2. 発表標題 ITO/SiO ₂ /La-Ca-Cu-O/ITO多層膜の作製と能動的熱流制御に向けた磁気秩序の電界制御
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 奈良 由紀、寺門 信明、高橋 儀宏、藤原 巧
2. 発表標題 Si基板上へのLa-Ca-Cu-O系スピン熱伝導率の作製と薄膜熱伝導性評価
3. 学会等名 第65回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 町田 雄気、寺門 信明、高橋 儀宏、藤原 巧
2. 発表標題 Investigation of structure and spin ordering in spin thermal conductivity La-Ca-Cu-O thin films for active thermal management
3. 学会等名 第49回日本セラミックス協会ガラス部会夏期若手セミナー
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	藤原 巧 (FUJIWARA Takumi)		
研究協力者	高橋 儀宏 (TAKAHASHI Yoshihiro)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------