

平成 30 年 5 月 24 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05147

研究課題名(和文) マグノン超流動の観測に向けた微小試料熱伝導およびマグノン流測定デバイスの開発

研究課題名(英文) Development of Thermal Conductivity and Magnon-flow Measurement Device for Measuring Magnon Superfluid

研究代表者

小野 俊雄 (Ono, Toshio)

大阪府立大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：40332639

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、微細加工技術を利用した熱伝導率測定プローブの開発を中心に、大型の単結晶育成が困難な物質に向けた微小結晶用の熱伝導率測定系の開発を行った。プローブは、Si基板上にSiO<sub>2</sub>/Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>多層膜を成膜した後、温度センサや信号線などをパターニングし、センサ周辺部の基板を深掘りエッチングにより取り除くことによって作成した。このようにセンサ周辺の基板を取り除くことで、試料に印加した熱の流出を防ぐことができる。研究期間中には、このようなプローブ自体の開発の他に、プローブへの結晶の接着手法や、外部微小電流源を使用したヒーター制御方法の開発など、システム構築に必須な要素を実現することができた。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have performed developed thermal conductivity measurement system for submillimeter crystals focusing around the development of the thermal conductivity measuring probe utilizing microfabrication technology. Measurement probes were produced by removing the substrate around the temperature sensors which was sputtered on a SiO<sub>2</sub>/Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> multilayer film on a Si substrate. By thus removing the substrate surrounding the sensors, the outflow of the heat applied to the sample is able to be suppressed. During the present research period, in addition to the development of above probe itself, we have realized the essential elements for system construction including the adhesive techniques which is important when the crystals were put on the probe and the heater control method using an external micro-current source.

研究分野：磁性物理

キーワード：微細加工技術 熱伝導率

### 1. 研究開始当初の背景

スピンゼーベック効果の発見[1]を端緒として、近年、熱とスピントロニクスの融合領域であるスピнкаロリトロニクスの研究が世界的に活発に行われている。スピンゼーベック効果は、温度勾配によってスピン流を効率よく生成するとともに、生成したスピン流から逆スピンホール効果によって電気的エネルギーを取り出すことができる。スピン流と熱流の関係について理解を進めることで両者の制御が可能になれば、エネルギーロスのない信号伝達や、排・放熱をエネルギーとして再利用するエネルギーハーベスティングによる超省エネルギー社会を下支えする技術となる。現在、スピнкаロリトロニクスの実験研究は、イットリウム鉄ガーネットを代表とする酸化物磁性体を主な対象物質として行われているが、対象物質を広げることができれば、より豊かなスピン状態において、スピнкаロリトロニクスの研究を行うことが可能になる。絶縁的なスピン系においては、スピン流はスピンの波、およびこの波を準粒子とみなしたマグノンに対応する。基礎研究の面からは、マグノンによる熱伝導率には、輸送方向の磁気的な相互作用の大きさを反映したスピン波の群速度の情報が含まれている。また、スピン系における励起状態間のエネルギーギャップの大きさに応じて、フォノンとマグノン間の散乱が増減することにより熱伝導率が変化するなど、実験室系でマグノンの素励起にアクセスすることができる。

現在広く採用されている定常熱流法による熱伝導率測定では、図1のように試料の端を熱浴と接触させた状態で試料の反対側の端をヒーターで熱量  $Q$  を加えた際に試料の長さ  $L$  の区間に生じる温度差  $\Delta T$  から温度勾配  $\Delta T/L$  を求めることにより、熱伝導率  $\kappa$  を、

$$\kappa = \frac{QL}{\Delta T \cdot S}$$

のように得ることができる。そのため、試料にヒーター・熱浴および温度センサ2つに対応する4端子を接着して、ヒーターやセンサをボルトで締め付けて固定する必要がある。このような理由から測定試料には、cm オー

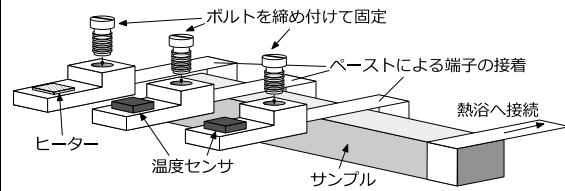


図1 現在標準的に採用されている定常熱流法の試料のセットアップ

ダーのサイズと、ネジ締めの際のトルクに負けない機械的強度が必要である。

我々の研究グループでは現在有機ラジカルや水熱合成法によって結晶化した酸化物の磁性体の作成を行っているが、これらの結晶の多くはサブ mm サイズで機械的強度も小さいため、上述したような方法では熱伝導率の測定を行うことができない。また、同様の事情は新物質の開拓を主な研究手段とするすべてのグループが抱えている。

### 2. 研究の目的

本研究では、微細加工技術を利用して、サブミリメートルサイズの結晶に機械的なストレスをかけることなく熱伝導率の測定を可能にするプローブを開発し、上述の熱伝導率測定における制限を解消することが、大きな目標である。このようなプローブが実現することで、大型の単結晶育成が困難な多数の物質についても簡便に熱伝導率の測定を行うことが可能になる。そのため、このプローブは前述の熱流制御を含む物質の持つ熱輸送特性の応用研究や、磁性体におけるマグノンの振る舞いを実験室系で観測するような基礎研究において、強力なツールとなりうる。

### 3. 研究の方法

上述の目的を達成するために、本研究で行った研究内容は、大きく分けて下記の3つである。

微細加工技術を用いた熱伝導率測定プローブの開発

上記プローブと各種測定器具を組み合わせた測定系の構築

本測定計を運用して行った性能評価

以下ではそれぞれについて行った手法について説明する。

図2は本研究で開発している熱伝導率測定プローブの概略図である。このプローブでは

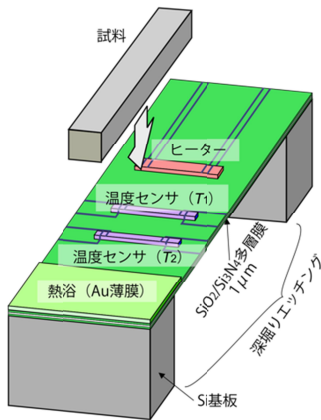


図2 熱伝導測定プローブの概略図

サブ mm サイズの結晶に合わせてあらかじめヒーター・温度センサ・熱浴をパターンニングしておき、その上に結晶を接着するため、結晶にかかるストレスを大幅に低減できる。熱伝導率の測定では、試料に接触するヒーターと温度センサを熱的に孤立させる必要があるため、基板の裏面よりシリコンの深掘りエッチングを行なって、温度センサとヒーター周辺の基板を取り除いた。

製作したプローブは、カンタムデザイン社製の物理特性計測システム (PPMS) の抵抗測定プローブに取り付け、2つの温度センサの抵抗値を読み取ることで試料内の温度勾配を計測することにした。一方、ヒーターの制御は詳細な電流分解能が必要となるため、別途微小直流電源を用意してPPMS外部より入力を行なった。また、PPMSとこの微小直流電源を同期制御し、データ収集を行うためのソフトウェアを作成した。

こうして作成した測定系を用いて、過去に測定報告のある物質の熱伝導率を試験測定し、プローブの性能評価を行った。

#### 4. 研究成果

図3は試作した測定プローブのヒーター及び温度センサ周辺の拡大写真である。はじめにSi基板にダイアフラムとなる $\text{SiO}_2/\text{Si}_3\text{N}_4/\text{SiO}_2$ の絶縁薄膜を成膜し、その上からヒーター及び温度センサとして使用する窒化ニオブ( $\text{NbN}_x$ )をスパッタ成膜した。 $\text{NbN}_x$ 薄膜は、スパッタの際の窒素圧力を変えることでより組成比 $x$ が変化し、分解能の異なる温度センサを作製出来る。本研究で使用したスパッタ装置(日本シード M09-0014)では、窒素圧力が0.3Paから2.0Paの領域において、圧力を上げるほど抵抗値の温度依存性が大きくな

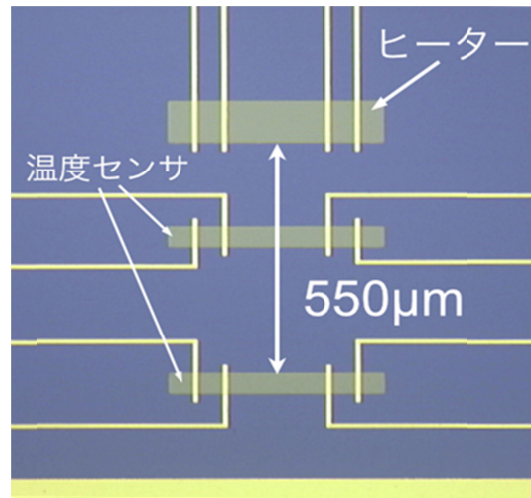


図3 製作したプローブの温度センサ周辺の拡大写真

り、分解能の高い温度センサとなることがわかった。また抵抗値の磁場変化を調べたところ、7Tまでの磁場範囲では、抵抗値の変動はゼロ磁場の値の2%程度と磁気抵抗効果が小さいため、磁場中の測定にも適していることがわかった。

製作した測定プローブを評価するために、磁性体をプローブに接着して熱流印加時の試料温度の変化を調べた。ヒーターと温度センサは厚み1 $\mu\text{m}$ のダイアフラムだけで支えられているため、接着方法によっては試料との熱膨張係数のミスマッチからプローブが破損してしまうことがわかったため、本研究では様々な接着方法を試した。その結果シリコングリスにアルミナ粒子を混合した放熱グリスが本プローブに適していることがわかった。評価には、特定の方向に強い磁気的な相互作用を持つ $(\text{CH}_3)_4\text{N}\text{MnCl}_3$ という磁性体[2]を接着して、評価を行なった。

図4は、熱浴の温度が12Kであるときに、印加する熱流量を変えたときの、試料中の温度の時間変化を示したものである。このような低温領域でも4秒弱で試料中の温度分布が定常的になることから、試料とプローブの熱接触が十分に取れていることがわかった。また、図4の内挿図は、試料と接した2つの温度センサ間に生じる温度差の時間変化を示したものである。印加する熱流量にほぼ比例した温度差が観測されたことから、試料の熱伝導率を反映した温度勾配を観測できていることがわかった。

ただ、現段階のプローブで得られる熱伝導率

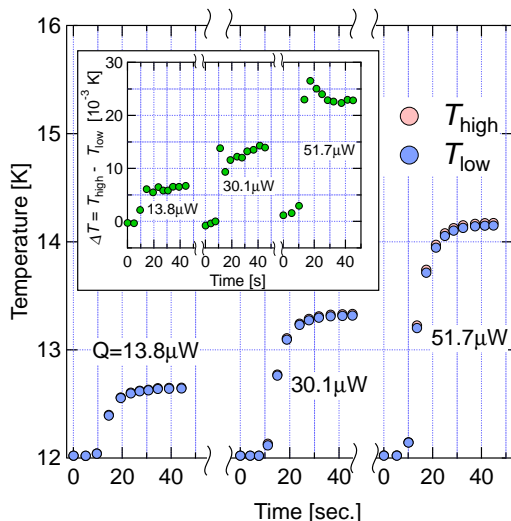


図4 12Kにおける印加熱流量と試料温度および試料中の温度差(内挿図)の関係

の測定値は、 $2\text{W/m/K}$ 程度以下では過去の文献と再現性の良い結果が得られる一方、 $4\text{W/m/K}$ 程度以上になると文献値よりも小さくなり、熱伝導率が大きくなるほど文献値との乖離が拡大する傾向があることがわかった。この原因は測定プローブ微細化に伴って、熱伝導率の増加とともにセンサ間の温度差が分解能以下に落ちてしまうためであると考えられる。実際に $(\text{CH}_3)_4\text{NMnCl}_3$ よりも一桁熱伝導率が小さいホウ珪酸ガラスを用いた測定を行ったところ、室温からヘリウム温度領域まで、文献値を良好に再現する結果が得られた。

#### <引用文献>

- [1] Uchida *et al.*; Nature **455** (2008) 778.  
 [2] Miike *et al.*; J. Phys. Soc. Jpn. **39** (1975) 1133.

#### 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6件)

1. N. Amaya, T. Ono, Y. Oku, H. Yamaguchi, A. Matsuo, K. Kindo, H. Nojiri, F. Palacio, J. Campo and Y. Hosokoshi; Spin-1/2 Quantum Antiferromagnet on a Three-Dimensional Honeycomb Lattice Formed by a New Organic Biradical  $\text{F}_4\text{BIPBN}$ : J. Phys. Soc. Jpn. **86** (2017) 074076-1 074076-7. [10.7566/JPSJ.86.074076](https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.074076) 査読あり

2. K. Nomura, Y. H. Matsuda, Y. Narumi, K. Kindo, S. Takeyama, Y. Hosokoshi, T. Ono, N. Hasegawa, H. Suwa and S. Todo; Magnetization Process of the  $S=1/2$  Two-Leg Organic Spin-Ladder Compound BIP-BNO: J. Phys. Soc. Jpn. **86** (2017) 104713-1 104713-3. [10.7566/JPSJ.86.104713](https://doi.org/10.7566/JPSJ.86.104713) 査読あり

3. H. Yamaguchi, Y. Shimpuku, Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, M. Hagiwara, T. Kawakami, K. Iwase, T. Ono and Y. Hosokoshi; Phys. Rev. B **93** (2016) 115145-1 115145-7. [10.1103/PhysRevB.93.115145](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.115145) 査読あり

4. Shinichiro Asai, Minoru Soda, Kazhiro Kasatani, Toshio Ono, Maxim Avdeev and Takatsugu Masuda; Phys. Rev. B **93** (2016) 024412-1 024412-7. [10.1103/PhysRevB.93.024412](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.024412) 査読あり

#### 〔学会発表〕(計13件)

1. 柴田尚樹, 堀口元成, 高橋直貴, 小野俊雄, 山口博則, 細越裕子, 村上修一, 佐藤和郎, 四谷任; 微小試料用の熱伝導率測定装置の開発と性能評価, 日本物理学会第73回年次大会, 2018年
2. 小野俊雄, 飯田一樹, 古府麻衣子, 河村聖子, 中島健次, 長谷川舜介, 益田隆嗣, 山口博則, 細越裕子; ボンドランダムネスをもつ  $S=1/2$  二次元フラストレート磁性体混晶系  $\text{Cs}_2\text{CuCl}_4-x\text{Br}_x$ ,  $x=3.4$  の動的構造因子, 日本物理学会第73回年次大会, 2018年
3. 太田善彦, 山口博則, 小野俊雄, 細越裕子, 木田孝則, 萩原政幸; 三次元八二カラム格子磁性体の低温物性, 日本物理学会2017年秋季大会, 2017年
4. 柴田尚樹, 堀口元成, 高橋直貴, 小野俊雄, 山口博則, 細越裕子, 村上修一, 佐

- 藤和郎，四谷任；微小試料用の熱伝導率測定装置の開発，第 16 回低温工学・超伝導学会若手合同講演会，2017 年
5. 堀口元成，関口晃生，小野俊雄，山口博則，細越裕子，村上修一，四谷任，佐藤和郎；微小試料用の低温熱伝導率測定装置の開発と性能評価；日本物理学会第 72 回年次大会，2017 年
  6. 遠藤耀司，小野俊雄，松尾晶，金道浩一，野尻浩之，山口博則，細越裕子；擬一次元  $S=1/2$  ボンド交替鎖  $Tl_4CuTeO_6$  の磁性の解析；日本物理学会第 72 回年次大会 2017 年
  7. 堀口元成，関口晃生，小野俊雄，山口博則，細越裕子，村上修一；微小試料用の低温熱伝導率測定装置の開発と性能評価，第 15 回低温工学・超伝導学会若手合同講演会，2016 年
  8. 小野俊雄，笠谷和宏，浅井晋一郎，左右田稔，益田隆嗣，松尾晶，金道浩一，奥谷顕，赤木暢，萩原政幸，山口博則，細越裕子；フラストレートした八ニカム格子反強磁性体  $Ba_2NiTeO_6$  の強磁場物性，日本物理学会 2016 年秋期大会，2016 年
  9. 遠藤耀司，小野俊雄，松尾晶，金道浩一，山口博則，細越裕子；擬 1 次元  $S=1/2$  ボンド交替鎖  $Tl_4CuTeO_6$  の磁気相図，日本物理学会 第 71 回年次大会，2016 年
  10. 笠谷和宏，小野俊雄，浅井晋一郎，左右田稔，益田隆嗣，松尾晶，金道浩一，山口博則，細越裕子； $S=1$  フラストレート八ニカム格子反強磁性体  $Ba_2NiTeO_6$  の磁気特性，日本物理学会 第 71 回年次大会，2016 年
  11. 野村和哉，松田康弘，嶽山正二郎，天谷直樹，小野俊雄，細越裕子； $S=1$  スピンラダー系物質 BIP- TENO の超強磁場磁化測定，日本物理学会 2015 年秋季大会，2015 年
  12. 関口晃生，小野俊雄，細越裕子，村上修一，四谷任；微小試料スピン熱輸送特性測定系にむけた素子開発，日本物理学会 2015 年秋季大会，2015 年
  13. 小野俊雄，野口悟，飯田賢斗，石田武和，山口博則，細越裕子； $^3He$  温度パルス強磁場磁化測定装置を用いた ランダム三角格子反強磁性体の研究，日本物理学会 2015 年秋季大会，2015 年
- 〔図書〕(計 0 件)
- 〔産業財産権〕
- 出願状況(計 0 件)
- 取得状況(計 0 件)
- 〔その他〕  
ホームページ等
6. 研究組織  
(1)研究代表者  
小野 俊雄 (Ono Toshio)  
大阪府立大学・理学系研究科・准教授  
研究者番号：40332639