

令和 4 年 6 月 4 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02585

研究課題名(和文) スピнкаロリトロニクスにおけるトムソン効果

研究課題名(英文) Thomson effect in spin caloritronics

研究代表者

内田 健一 (UCHIDA, Ken-ichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・グループリーダー

研究者番号：50633541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：トムソン効果は、ゼーベック効果やペルチェ効果と並び、金属や半導体における基本的な熱電変換現象の一つである。本研究では、磁場・磁性(スピン)とトムソン効果の相互作用に基づく熱電変換現象・機能を開拓し、熱電分野とスピントロニクスの融合領域「スピнкаロリトロニクス」に新展開をもたらす以下の成果を得た。(1) 磁気トムソン効果の世界初の直接観測、(2) 強磁性/反強磁性転移に伴う巨大トムソン効果の直接観測と電子冷却の実証、(3) 高温領域における磁気熱電効果・熱スピン効果の温度依存性評価、(4) トムソン素子の成績係数の定式化。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究ではトムソン効果の汎用性の高い計測・評価法を確立し、磁気トムソン効果など未開拓であった熱電変換現象の観測に成功すると共に、その機能性を世界に先駆けて明らかにした。本研究成果を基盤として、更なる新現象の発見・解明や熱電物質開拓の活発化、そしてトムソン効果を利用した新規熱マネジメント技術の創出に繋がる可能性があるため、その学術的意義は極めて大きい。

研究成果の概要(英文)：The Thomson effect is one of the fundamental thermoelectric conversion phenomena in metals and semiconductors, along with the Seebeck and Peltier effects. In this study, we investigated thermoelectric conversion phenomena and functionalities based on the interaction between magnetic fields/magnetism (or spins) and the Thomson effect, and obtained the following results that bring a new development in "spin caloritronics," a fusion area of thermoelectrics and spintronics: (1) first direct observation of the magneto-Thomson effect, (2) direct observation of the giant Thomson effect induced by ferromagnetic/antiferromagnetic phase transition and demonstration of Thomson-effect-induced cooling, (3) evaluation of the temperature dependence of the magneto-thermoelectric and thermo-spin effects in the high temperature region, and (4) formulation of the coefficient of performance for the Thomson device.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピнкаロリトロニクス トムソン効果 磁気熱電効果 ロックインサーモグラフィ 熱制御 磁性材料 スピン流

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

### 1. 研究開始当初の背景

金属や半導体における電流と熱流の相互作用は熱電効果と呼ばれる。温度差から電圧を生成するゼーベック効果、電流で加熱・冷却するペルチェ効果と並んで代表的な熱電効果の一つとして挙げられる現象に、トムソン効果がある。トムソン効果は、温度差を付けた導体に電流を流した際に、電流と温度差の双方に比例した吸熱・発熱が生じる現象である。ゼーベック効果とペルチェ効果の間にはオンサーガーの相反定理、ゼーベック/ペルチェ効果とトムソン効果の間にはトムソンの関係式（ケルビンの関係式とも呼ばれる）が成り立ち、これら熱電変換現象は体系化されている（図1）。

一方スピントロニクス分野では、スピン流を用いた熱エネルギー変換が提案され、近年急速な進展を遂げてきた。その端緒となったのは、研究代表者らによる熱的スピン流生成現象「スピンゼーベック効果」の発見であり[1]、この現象によってスピントロニクスと熱効果を結び付けることが可能になった。その後、熱とスピントロニクスの融合研究分野「スピнкаロリトロニクス」は世界中で研究される学際領域へと瞬間に成長し、この十数年の研究によってスピンゼーベック効果の物理の本質が明らかになった。

初期のスピнкаロリトロニクス研究は、熱電発電技術への将来展開を念頭に置いて、スピンゼーベック効果を中心とした熱流からスピン流・電流を生成する現象に焦点が当てられてきた。この状況に転機をもたらしたのが、スピンゼーベック効果の逆効果である「スピンペルチェ効果」（スピン流による熱流生成現象）のイメージング計測の実現である[2]。研究代表者らがロックインサーモグラフィ技術に基づく熱計測・解析法を発展させたことで、スピン流や電流を入力とした熱応答現象を自在に観測可能になった。これにより、スピンペルチェ効果のみならず、異常エッチングスハウゼン効果による三次元的熱流生成の可視化[3]や異方性磁気ペルチェ効果の世界初の観測[4]などの成果に繋がった。

スピнкаロリトロニクスはこれまで、磁性材料が有する対称性やスピン輸送機能を熱電効果に取り入れたり、熱電現象の“スピン流版”を探索したりすることによって成功を収めてきた。しかし本研究開始時点において、スピнкаロリトロニクス研究の舞台に、基本的な熱電現象の一つであるはずのトムソン効果は現れていなかった。本研究では、この未開拓現象の物理やそれに基づく熱制御機能を明らかにし、スピнкаロリトロニクスに新たな潮流をもたらすことを目標とした。

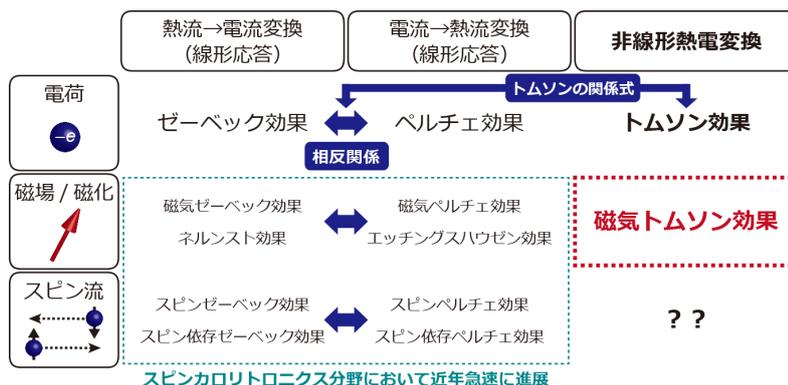


図1 熱電効果と熱スピン効果

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、スピン自由度とトムソン効果の相互作用がもたらす新しいスピнкаロリトロニクスの物理と熱制御機能を開拓することである。最先端の熱電・熱スピン効果計測技術とスピントロニクス技術を駆使し、非線形効果も含んだスピнкаロリトロニクス物理の体系的理解を得ることを目指した。

### 3. 研究の方法

トムソン効果はゼーベック/ペルチェ効果と比べて圧倒的に研究報告例が少なく、金属や半導体における通常のトムソン効果に対してさえ、一般的に確立した計測・定量法が無い状況であった。そこで本研究の第一段階として、汎用性の高いトムソン効果の評価法を確立した。具体的には、スピンゼーベック効果に関する研究で培った温度勾配制御技術と、スピンペルチェ効果や異方性磁気ペルチェ効果に関する研究で培った磁場環境下での動的熱イメージング計測技術を組み合わせ、温度勾配下の熱電応答を定量評価できるシステムを構築した。金属におけるトムソン係数は小さく、その観測は難しいとされるが、ロックインサーモグラフィ法を用いることによりトムソン効果に由来する温度変化信号を 0.1 mK オーダーの分解能でイメージング計測することに成功した。「4. 研究成果」の成果(1), (2)はこのシステムを活用することにより得られた成果である。新原理・新現象の開拓においてイメージング計測がもたらす恩恵は大きく、本技術によ

- 熱源発生の位置や対称性から、トムソン効果に由来する成分と他現象を分離可能
- 試料の温度分布を工夫することで、トムソン効果の温度勾配依存性を一度に検証可能
- 複数試料に対する測定を一度に実行可能

などのメリットが生まれた。未観測現象の実証が主な研究ターゲットであるため、各現象のメカニズムに関する考察に基づき既知の物質の中から適する試料を選定し、その合成プロセスはすでに確立している手法に絞った。

#### 4. 研究成果

本研究で得られた代表的な成果を以下の(1)-(4)にまとめた。

##### (1) 磁気トムソン効果の世界初の直接観測

ゼーベック効果やペルチェ効果に対する磁場・磁性の影響は長年の研究により明らかにされてきたが、トムソン効果が磁場や磁性にどのように依存するかは、測定・評価の難しさもあり、これまで全く研究が進んでいなかった(図1)。本研究では、上述のロックインサーモグラフィ法に基づく動的熱イメージング計測技術により、トムソン効果が外部磁場に依存して変化する現象「磁気トムソン効果」を直接観測することに世界で初めて成功した[5]。本実験ではBiSb合金におけるトムソン効果由来の温度変化信号の磁場依存性を精密に測定し、トムソン効果による熱電能(トムソン係数)が0.9 Tの磁場印加により90%以上も増大することを明らかにした(図2)。本研究は、これまで実験・理論共に未開拓であった「非線形スピカロリトロニクス」への道を拓く成果であり、米国物理学会のPhysics Magazineで特集された。

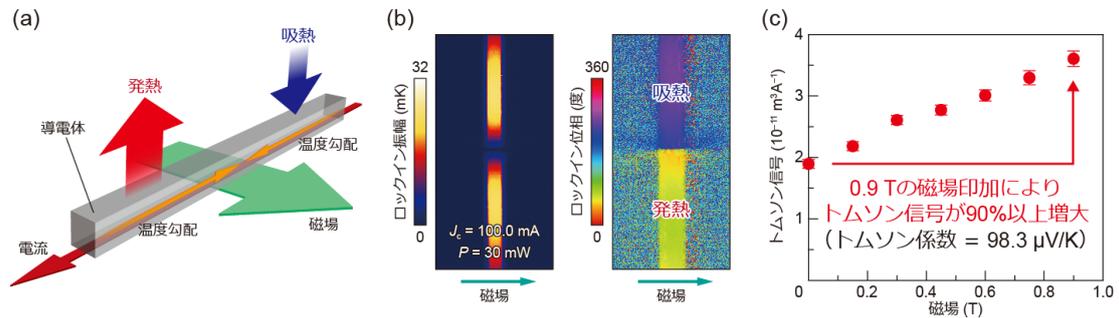


図2 ロックインサーモグラフィ法による磁気トムソン効果の直接観測

##### (2) 強磁性/反強磁性転移に伴う巨大トムソン効果の直接観測と電子冷却の実証

反強磁性-強磁性相転移に伴う巨大トムソン効果を、(1)と同様の手法により直接観測した[6]。本研究では、室温近傍で反強磁性-強磁性相転移を示すことが知られていたNiドープFeRh合金を試料に用い、そのトムソン係数が磁気相転移温度において $-1000 \mu\text{V/K}$ に迫る値に達していることを示した(図3)。さらに、この巨大トムソン効果を用いて、定常状態においてジュール熱を超える電子冷却を実証した。巨大トムソン効果の発現は磁気相転移温度近傍に限られるものの、Niドープ量を変えたり外部磁場を印加したりすることにより相転移点をチューニング可能である。本成果は、非線形熱電効果に基づく新たな電子冷却技術の可能性を提示するものである。

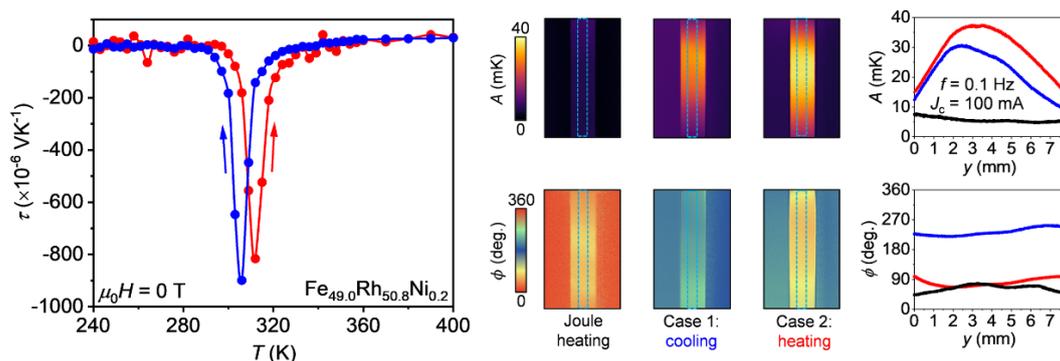


図3 磁気相転移を利用した巨大トムソン効果

##### (3) 高温領域における磁気熱電効果・熱スピン効果の温度依存性評価

強磁性体においては、スピン偏極電子輸送にスピン軌道相互作用が働くことにより、多彩な非線形磁気熱電効果の発現が期待される。例えば、自発磁化と電流/熱流の相対角に依存してトムソン係数が変化する「異方性磁気トムソン効果」や、熱電輸送行列の非対角成分の非線形性に由来する「横トムソン効果」などが挙げられるが、いずれも未観測現象である。本研究では、これらの現象の観測に適した物質や温度領域を特定すべく、縦型磁気熱電効果である異方性磁気ゼーベック/ペルチェ効果及び横型磁気熱電効果である異常ネルンスト/エッチングスハウゼン効果の物質依存性や高温領域における温度依存性を系統的に調べた[7-9]。

さらに、トムソン効果の“スピン流版”の現象であるスピントムソン効果の観測に向けて、Pt/Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 複合構造におけるスピネルペルチェ効果の温度依存性を、室温から Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> のキュリ

一温度までの温度範囲においてロックインサーモグラフィ法により系統的に評価した[10]。スピネルペルチェ効果によって生じた温度変化信号は、昇温に伴いほぼ線形に減少していくことが明らかになり(図4)、これは高温領域におけるスピネーバック効果の温度依存性[11]とは明らかに異なる振る舞いであった。この結果は、スピネーバック/ペルチェ効果に対するオンサーガーの相反定理や、これらの現象とスピントムソン効果の間の関係式(スピニ流版のトムソンの関係式)においては、熱スピニ変換のマグノン周波数依存性を考慮した微視的な検討が必要であることを示唆している。さらに本研究では、膜厚が線形に傾斜した  $Y_3Fe_5O_{12}$  膜を利用することにより、 $Y_3Fe_5O_{12}$  におけるスピネルペルチェ効果の特性長の温度依存性も詳細に調べた。スピネルペルチェ信号の  $Y_3Fe_5O_{12}$  厚さ依存性を指数関数的減衰モデルで解析した結果、特性長は室温付近で  $0.9 \mu m$  と見積もられ、キュリー温度近傍までほぼ温度依存性しないことが見出された。以上の結果により、室温以上キュリー温度以下のどの温度領域でも原理的にはスピントムソン効果を測定可能であること、及びその実現にはサブミクロンスケールでの温度勾配制御と高感度熱計測が必要であること、の2点が明らかになった。

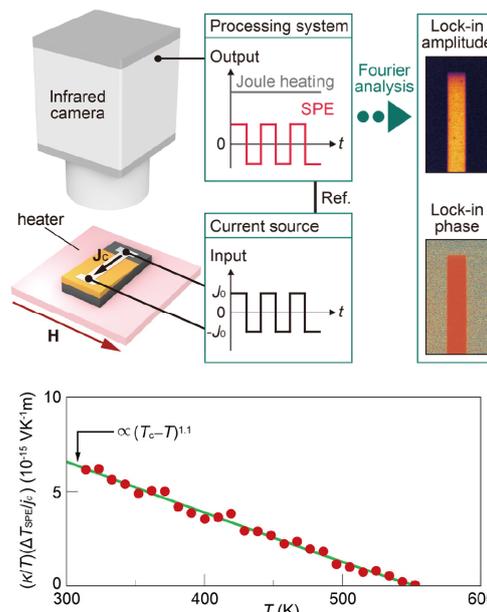


図4 Pt 薄膜/ $Y_3Fe_5O_{12}$  傾斜膜複合構造におけるスピネルペルチェ効果の温度依存性

#### (4) トムソン素子の成績係数の定式化

本研究の遂行により、トムソン効果や磁気トムソン効果によって誘起される温度変化を自在に測定可能になった。しかし理論的には、ヘテロ接合構造から構成されるゼーベック/ペルチェ素子に対するトムソン効果の影響は議論されていたものの、単一材料に外部温度差を付けることでトムソン効果自体によって駆動される温度変調素子(トムソン素子)の性能はこれまで定式化されていなかった。本研究では、トムソン素子の成績係数(COP)を定式化し、トムソン効果による電子冷却性能の評価基盤を構築した[12]。トムソン素子のCOPはトムソン係数だけでなくゼーベック係数によっても特徴付けられることを見出し、ゼーベック係数が小さくてもトムソン素子は冷却動作において大きなCOPを示し得ることを見出した。

本研究では、トムソン効果の汎用性の高い計測法を確立し、磁気トムソン効果の世界初の直接観測や、磁気相転移に基づく巨大トムソン効果による電子冷却の実証などを報告した。さらに、本報告書の執筆時点で系統的な測定が進行中であるため詳細は割愛するが、異方性磁気トムソン効果に由来する温度変化信号の観測にも成功している。研究提案時に挑戦課題として設定したスピントムソン効果の観測には至らなかったが、トムソン効果を取り込んだ非線形スピニカロリトロニクス of 端緒となる成果を世界に先駆けて創出した意義は大きい。

#### <引用文献>

- [1] K. Uchida *et al.*, *Nature* **455**, 778 (2008).
- [2] S. Daimon, R. Iguchi, T. Hioki, E. Saitoh, and K. Uchida, *Nature Commun.* **7**, 13754 (2016).
- [3] T. Seki, R. Iguchi, K. Takanashi, and K. Uchida, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 152403 (2018).
- [4] K. Uchida, S. Daimon, R. Iguchi, and E. Saitoh, *Nature* **558**, 95 (2018).
- [5] K. Uchida, M. Murata, A. Miura, and R. Iguchi, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 106601 (2020).  
[Editors' Suggestion & Featured in Physics]
- [6] R. Modak *et al.*, *Appl. Phys. Rev.* **9**, 011414 (2022). [Featured Article & AIP Scilight]
- [7] A. Miura, R. Iguchi, T. Seki, K. Takanashi, and K. Uchida, *Phys. Rev. Mater.* **4**, 034409 (2020).
- [8] A. Miura *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **117**, 082408 (2020).
- [9] T. Hirai *et al.*, *Appl. Phys. Express* **14**, 073001 (2021).
- [10] A. Takahagi, T. Hirai, R. Iguchi, K. Nakagawara, H. Nagano, and K. Uchida, *Appl. Phys. Express* **15**, 063002 (2022).
- [11] K. Uchida, T. Kikkawa, A. Miura, J. Shiomi, and E. Saitoh, *Phys. Rev. X* **4**, 041023 (2014).
- [12] T. Chiba, R. Iguchi, T. Komine, Y. Hasegawa, and K. Uchida, arXiv:2203.07631 (論文審査中)

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Takahagi Atsushi, Hirai Takamasa, Iguchi Ryo, Nakagawara Keita, Nagano Hosei, Uchida Ken-ichi	4. 巻 15
2. 論文標題 Spin Peltier effect and its length scale in Pt/YIG system at high temperatures	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 063002/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ac6fae	査読の有無 有
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 -
1. 著者名 Modak Rajkumar, Murata Masayuki, Hou Dazhi, Miura Asuka, Iguchi Ryo, Xu Bin, Guo Rulei, Shiomi Junichiro, Sakuraba Yuya, Uchida Ken-ichi	4. 巻 9
2. 論文標題 Phase-transition-induced giant Thomson effect for thermoelectric cooling	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Reviews	6. 最初と最後の頁 011414/1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0077497	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 該当する
1. 著者名 Hirai Takamasa, Modak Rajkumar, Miura Asuka, Seki Takeshi, Takanashi Koki, Uchida Ken-ichi	4. 巻 14
2. 論文標題 Temperature dependence of anisotropic magneto-Seebeck effect in NiPt alloys	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 073001/1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ac057c	査読の有無 有
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 -
1. 著者名 Miura Asuka, Masuda Keisuke, Hirai Takamasa, Iguchi Ryo, Seki Takeshi, Miura Yoshio, Tsuchiura Hiroki, Takanashi Koki, Uchida Ken-ichi	4. 巻 117
2. 論文標題 High-temperature dependence of anomalous Etingshausen effect in SmCo5-type permanent magnets	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 082408/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0023111	査読の有無 有
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 -

1. 著者名 Uchida Ken-ichi, Murata Masayuki, Miura Asuka, Iguchi Ryo	4. 巻 125
2. 論文標題 Observation of the Magneto-Thomson Effect	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 106601/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.125.106601	査読の有無 有
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 -

1. 著者名 Miura Asuka, Iguchi Ryo, Seki Takeshi, Takanashi Koki, Uchida Ken-ichi	4. 巻 4
2. 論文標題 Spin-mediated charge-to-heat current conversion phenomena in ferromagnetic binary alloys	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 034409/1-13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.4.034409	査読の有無 有
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9件 (うち招待講演 9件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 K. Uchida
2. 発表標題 Future directions in spin caloritronics
3. 学会等名 Indo-Japan Workshop on Interface Phenomena for Spintronics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 内田健一
2. 発表標題 磁性・スピントロニクス材料における熱エネルギー変換・輸送
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 内田健一
2. 発表標題 スピカロリトロニクスに基づく熱エネルギー変換・輸送
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ken-ichi Uchida
2. 発表標題 Thermal management principles based on spin caloritronics
3. 学会等名 The 21st International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (EDISON21) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 内田健一
2. 発表標題 スピカロリトロニクス：スピンを用いた新しい熱エネルギー制御原理
3. 学会等名 日本学術会議 第5回 理論応用力学シンポジウム ~力学と新学術の融合II~ (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Ken-ichi Uchida
2. 発表標題 Active thermal management principles based on spin caloritronics
3. 学会等名 The 3rd Workshop on Functional Materials Science (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

NIMS・産総研共同プレスリリース：「磁気トムソン効果」の直接観測に世界で初めて成功 ～熱・電気・磁気変換現象に関する新たな物性・機能開拓へ道～  
(2020年9月2日)  
<https://www.nims.go.jp/news/press/2020/09/202009010.html>

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
研究分担者	関 剛斎  (SEKI Takeshi)  (40579611)	東北大学・金属材料研究所・准教授    (11301)	
研究分担者	井口 亮  (IGUCHI Ryo)  (40707717)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究拠点・主任研究員    (82108)	

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			
中国	中国科学技術大学			