

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：82108

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2022～2023

課題番号：22K20495

研究課題名（和文）スピнкаロリトロニクスにおけるナノスケール熱伝導の解明と制御

研究課題名（英文）Elucidation and control of nanoscale thermal transport in spin caloritronics

研究代表者

平井 孝昌（HIRAI, Takamasa）

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センター・研究員

研究者番号：30949863

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、スピнкаロリトロニクスと固体中の熱輸現象：熱伝導の接点を強化し新たな熱制御機能を創出することを目標として、外場・測定温度が可変な唯一無二の熱伝導率計測系の構築を行った。磁性超薄膜の界面制御に着目した物質設計の下で系統的な熱伝導計測を行うことで、以下の成果を得た。(1) スピン流を媒介としたナノスケール熱伝導の室温下制御の実証、(2) 横型磁気熱電変換物質のハイスループット探索手法の確立と無磁場熱電変換の実証、(3) Fe/Pt多層膜の金属人工格子化による熱伝導率の低減の観測と横型熱電変換の無次元性能指数の定量評価。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、スピントロニクス材料の熱伝導率の汎用性の高い計測・評価法を確立し、スピнкаロリトロニクスでは未開拓であった磁性/スピンを利用した熱輸送制御機能の創出に先鞭をつけることに成功した。本研究成果を基盤として、電子・フォノン・スピンなど複数の熱キャリアによって媒介される熱伝導の物理描像の総合的な理解の進展や更なる新たな熱伝導制御機能の開拓、それらに最適な物質探索の活性化などに結び付く可能性があり、学術的・社会的意義は極めて大きい。

研究成果の概要（英文）：In this study, we have constructed a unique thermal conductivity measurement system that allows to change the measurement temperature and apply an external field, aiming to create a new functionality to control thermal energy by interfusing spin caloritronics and thermal transport in solids: heat conduction. The following results were obtained through the thermal conductivity measurements mainly by focusing on the interface control of magnetic ultrathin films. (1) Demonstration of spin current-mediated control of nanoscale thermal transport at room temperature, (2) Establishment of a high-throughput material exploration for transverse magneto-thermoelectric conversion and demonstration of its zero-field-operation, (3) Observation of reducing the thermal conductivity in Fe/Pt metallic superlattices and quantitative evaluation of dimensionless figure of merit for transverse thermoelectric conversion.

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 熱伝導 時間領域サーモフレクタンス スピン流 熱電変換 金属人工格子 磁性薄膜

1. 研究開始当初の背景

固体中における熱流⇒スピン流変換現象であるスピントロニクス効果[1]の発見は、電子の電荷・スピンの双方を利用するスピントロニクス分野のみならず、電流⇄熱流変換を対象とする従来の熱電工学に大きな影響を与えたことは記憶に新しい。この発見によって、スピントロニクスと熱工学を結びつける融合研究領域：「スピントロニクス」が誕生し、ここ数十年ほどで様々な電流/スピン流⇄熱流の相互変換現象・機能が発見・開拓され、スピントロニクスは世界中で研究される学術領域の1つへと成長を遂げている。しかしその一方で、現行のスピントロニクス研究は熱電・熱スピン変換物性の理解や巨大な熱変換能(=熱電係数)を有する物質の探索などの“熱変換”に特化しており、様々な熱エネルギー利用法を探索する熱工学との融合は極わずかともいえる。

固体中で熱エネルギーが温度勾配に従って輸送される現象“熱伝導”を制御することは熱工学の重要な課題の1つである。熱変換と同様にスピンを利用して熱伝導が制御できれば、磁場印加で熱伝導のON-OFFを切り替えられる熱スイッチなど新たな熱エネルギー利用素子への応用展開が期待できる。また、熱電工学においても、熱伝導率の低減が物質の熱変換性能の上昇に直結する点が重要視されているなど、熱伝導の精密計測・制御が熱工学にとって重要な事項であることは疑いない。そのため本研究では、スピントロニクスの研究舞台である磁性超薄膜や多層構造を対象としたナノスケール熱伝導の計測環境を独自に構築し、現状極わずかのスピントロニクス/スピントロニクスと熱伝導の接点を強化することで、熱エネルギー輸送におけるスピンの役割を解明し、エレクトロニクス発展に必要な不可欠な熱マネジメント技術発展に資する新たな熱制御現象・原理・機能を創出することを目標とした。

2. 研究の目的

本研究の目的は、温度可変・外部磁場印加環境における熱伝導率計測系を世界に先駆けて構築し、スピントロニクス領域において全く体系化されていない、ナノスケール領域・界面におけるスピンを媒介した熱伝導の物理を解明することで、スピントロニクスで一般的に用いられる磁性薄膜積層構造で熱伝導率を自在に制御できる原理を創出することにある。

3. 研究の方法

ナノメートルオーダーの厚さの金属薄膜における代表的な熱拡散時間はピコ～ナノ秒に当たるため、時間分解能を有した計測系が必要となる。そこで、本研究では熱伝導計測手段としてサブピコ秒の超短パルスレーザーを用いた時間領域サーモリフレクタンス(time-domain thermoreflectance: TDTR)を選定した。TDTRは光学的なポンププローブ法によって固体中の熱伝導を評価する手法であるが、本研究では磁場印加による外部機器のノイズ・不作動の可能性を考慮し、一般的な光学遅延型ではなく、2基のレーザーの位相を電気的に制御する電気遅延型のTDTR計測系を構築することを目指した。計測系構築後の物質には、まずは一般的な磁性体であるFe, Co, Ni薄膜及びそれらを含む合金薄膜から選定を行った。

4. 研究成果

本研究で得られた代表的な成果を以下に纏める。

(1) 有限磁場下における電気遅延型時間領域サーモリフレクタンス計測系の構築

電気遅延型TDTRを電磁石(最大印加磁場: 2 T)及び超伝導マグネット内蔵クライオスタット(最大印加磁場: 7 T)と組み合わせて実施できる計測系の構築を進めた。室温・電磁石TDTR計測系の構築は研究初期段階に完了した。研究期間中にサンプルステージに2軸ステージを導入することで、化学組成や膜厚依存性をハイスループットに評価できる計測系へとアップデートを行い、以下の成果含む様々な有望な結果創出に貢献した。低温・強磁場環境におけるTDTR計測系の立上げは概ね完了し、強磁場印加のテスト段階に到達している。本報告書執筆時点までに、低温・強磁場下計測を行うまでは至らなかったが、レーザー光源を2つの計測系で併用していること、及び室温計測で多くの実験結果が得られたことを鑑みると十分な進捗であった。今後は、本計測系の構築を完了させて温度依存性・磁場依存性の計測を通して、より詳細な熱伝導物理の理解を目指していく。

(2) スピン流媒介熱伝導の観測

スピン流輸送の境界条件に立脚した現象論モデルを立案し、磁性金属/非磁性 or 磁性絶縁体のシンプルな2層構造を作製して、(1)で構築した測定系を用いて薄膜面直方向の熱伝導率を計

測した結果、スピン流の界面透過量に依存して磁性金属の熱伝導率および金属/絶縁体界面熱抵抗が大きく変化する結果を得た。本報告書の執筆時点で論文査読中であるため、詳細は割愛するが、組成を系統的に変化させた組成傾斜膜や非磁性金属層を挿入した系での対照実験を通して、得られた熱伝導率変調が伝導電子スピン流ではなくマグノンスピン流の輸送によるものであることを明らかにした[2]。本結果はマグノンが室温・磁性金属中においても熱伝導に効果的に寄与することを実証したものであり、新たな熱伝導制御応用展開が期待できる。

(3) 横型磁気熱電変換物質のハイスループット探索手法の確立とアモルファス磁性薄膜作製に基づいた無磁場横型熱電変換の実証

熱電効果の代表例として挙げられるのがゼーベック効果である。ゼーベック効果は熱流と平行方向に電流を生成するため“縦型”の熱電効果とも呼ばれる。一方で、熱流と電流を互いが直交する方向に変換する“横型”の熱電効果も存在する。磁性体においては、熱流と磁性体中の磁化に直交する方向に電流を生成する横型熱電効果：異常ネルンスト効果が生じる。異常ネルンスト効果は、複雑な3次元構造化を要さず、長さ・体積をスケールアップするのみで電圧・電力を向上可能、磁化制御を通して熱電応答をアクティブに制御可能、などゼーベック効果にはない機能を複数示すため、基礎・応用両面で近年注目を集めている。異常ネルンスト効果による横型熱電変換における最大の課題としては、異常ネルンスト効果による熱電能がゼーベック効果による熱電能に遥かに劣る点が挙げられ、現在は高効率な熱電能・熱電変換性能指数を有する物質の探索が活発的に行われている。

本研究では、一つの基板上に化学組成が傾斜した薄膜を作製できるコンビナトリアルスパッタリングとロックインサーモグラフィを用いた異常エッチングスハウゼン効果（異常ネルンスト効果の相反効果）と TDTR を用いた薄膜面直方向の熱伝導率の計測の3つを併用することで、異常ネルンスト効果の熱電能である異常ネルンスト係数をハイスループットに評価する方法を開発した（図1）。本手法を元に、アモルファス構造・残留磁化を有する Sm-Co 薄膜の化学組成を異常ネルンスト係数が最大になるように最適化し、熱流センサの無磁場駆動デモンストレーションも行った[3]。

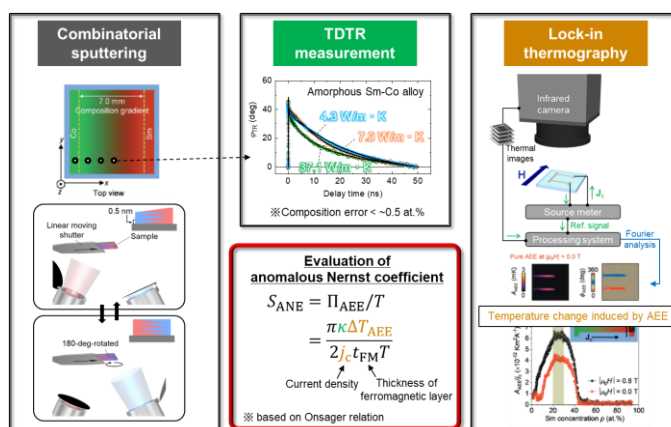


図1. 異常ネルンスト効果による横型熱電変換に対するハイスループット物質探索。

(4) 金属人工格子におけるナノスケール熱伝導計測と横型熱電変換特性評価

異常ネルンスト効果による横型熱電変換の物質探索では単一物質だけでなく人工構造への注目も高い。これまでのスピンカロリトロニクス研究では、磁性体と非磁性体をナノメートルオーダーで多層化した金属人工格子において、熱変換能が界面密度（＝一定厚さにおける界面数）に比例して増加することが報告されていた[4]。本研究ではこのような界面密度を変化させた金属人工格子を作製し、薄膜面直方向の熱伝導率計測を行うことで、異常ネルンスト効果の熱電特性指標である無次元性能指数 zT の定量評価を行った[5]。図2は界面数 50, 100, 200 の総膜厚約 200 nm の Fe/Pt 多層膜、および 200 nm の FePt 合金薄膜における、TDTR 信号を示している。熱拡散方程式に基づく TDTR 信号の解析の結果、界面密度が増加するにしたがって熱伝導率が減少し、特に界面数 200 の試料において FePt 合金よりも熱伝導率が下回る結果が得られた。 zT は FePt 合金薄膜が最大の値をとる結果となったが、合金薄膜以下の熱伝導率が得られた実験結果と、横型熱電変換の対称性ゆえに異常ネルンスト効果による熱電変換では熱伝導率と電気伝導率が独立に制御可能である点は、人工格子化が横型磁気熱電変換の性能上昇に充分余地があることを示している。(3) 及び本成果で実証した物性評価法と物質探索法は様々な物質に適用できる汎用的なものであり、単一物質や多層構造に基づいた物質探索・設計がさらに進展することが期待できる。

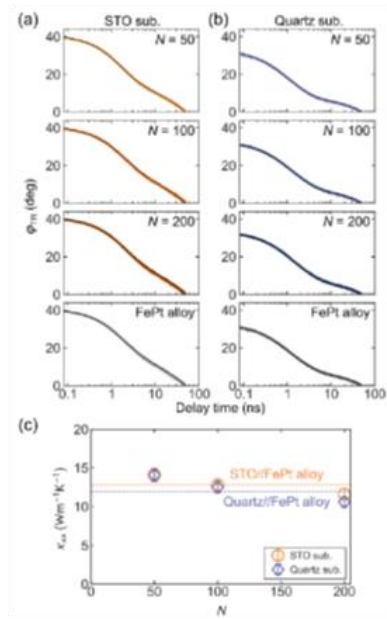
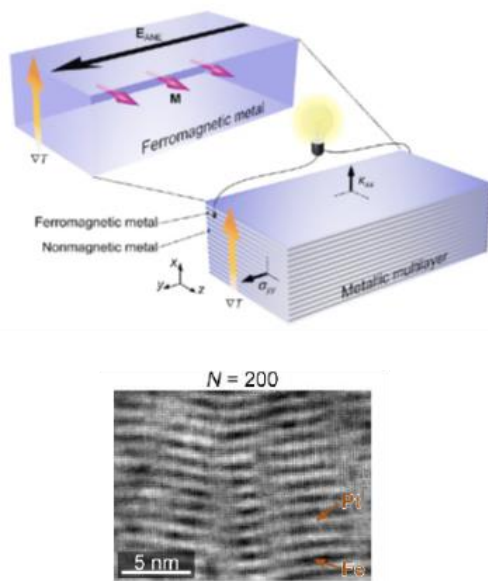


図2. Fe/Pt 人工格子における膜面直方向の熱伝導率の計測.

<参考文献>

- [1] K. Uchida *et al.*, *Nature* **455**, 778 (2008).
- [2] T. Hirai *et al.*, arXiv:2403.04166.
- [3] K. Uchida *et al.*, *Phys. Rev. B* **92**, 094414 (2015).
- [4] R. Modak, Y. Sakuraba, T. Hirai *et al.*, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **23**, 767 (2022).
- [5] T. Yamazaki*, T. Hirai* *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **21**, 024039 (2024). (* equal contribution)
[Editors' Suggestion]

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Zhou Weinan, Miura Asuka, Hirai Takamasa, Sakuraba Yuya, Uchida Ken-ichi	4. 巻 122
2. 論文標題 Seebeck-driven transverse thermoelectric generation in magnetic hybrid bulk materials	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 062402(1) ~ (6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0126870	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 Hirai Takamasa, Uto Koichiro, Ebara Mitsuhiro, Uchida Ken-ichi	4. 巻 5
2. 論文標題 Elastocaloric effect of shape memory polymers in elastic response regime	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Energy	6. 最初と最後の頁 034011(1) ~ (9)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2515-7655/ace7f3	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 Modak Rajkumar, Hirai Takamasa, Mitani Seiji, Uchida Ken-ichi	4. 巻 131
2. 論文標題 Observation of the Anisotropic Magneto-Thomson Effect	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 206701(1) ~ (5)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.131.206701	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 Noguchi Shun, Fujiwara Kohei, Yanagi Yuki, Suzuki Michi-To, Hirai Takamasa, Seki Takeshi, Uchida Ken-ichi, Tsukazaki Atsushi	4. 巻 20
2. 論文標題 Bipolarity of large anomalous Nernst effect in Weyl magnet-based alloy films	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nature Physics	6. 最初と最後の頁 254 ~ 260
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41567-023-02293-z	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 Yamazaki Takumi, Hirai Takamasa, Yagi Takashi, Yamashita Yuichiro, Uchida Ken-ichi, Seki Takeshi, Takanashi Koki	4. 巻 21
2. 論文標題 Quantitative measurement of figure of merit for transverse thermoelectric conversion in Fe/Pt metallic multilayers	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 024039(1) ~ (11)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.21.024039	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 Gautam Ravi, Hirai Takamasa, Alasli Abdulkareem, Nagano Hosei, Ohkubo Tadakatsu, Uchida Ken-ichi, Sepehri-Amin Hossein	4. 巻 15
2. 論文標題 Creation of flexible spin-caloritronic material with giant transverse thermoelectric conversion by nanostructure engineering	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 2184(1) ~ (9)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-024-46475-6	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 Hirai Takamasa, Sakuraba Yuya, Uchida Ken-ichi	4. 巻 121
2. 論文標題 Observation of the giant magneto-Seebeck effect in a metastable Co50Fe50/Cu multilayer	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 162404 ~ 162404
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0118382	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, Sakuraba Yuya, Hirai Takamasa, Yagi Takashi, Sepehri-Amin Hossein, Zhou Weinan, Masuda Hiroto, Seki Takeshi, Takanashi Koki, Ohkubo Tadakatsu, Uchida Ken-ichi	4. 巻 23
2. 論文標題 Sm-Co-based amorphous alloy films for zero-field operation of transverse thermoelectric generation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 767-782
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/14686996.2022.2138538	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 Zhou Weinan, Miura Asuka, Hirai Takamasa, Sakuraba Yuya, Uchida Ken-ichi	4. 巻 122
2. 論文標題 Seebeck-driven transverse thermoelectric generation in magnetic hybrid bulk materials	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 062402 - 062402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0126870	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5件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 平井孝昌
2. 発表標題 スピントロニクス材料におけるナノスケール熱伝導計測
3. 学会等名 第1回 光・熱・電気と磁気の相互作用の活用技術調査専門委員会 研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 平井孝昌
2. 発表標題 スピントロニクス材料におけるナノスケール熱伝導計測と制御
3. 学会等名 ナノスケールソフト磁性体の創製とデバイス応用調査専門委員会 第3回ナノ磁性研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Hirai, T. Morita, S., Biswas, J. Uzuhashi, T. Yagi, Y. Yamashita, K. Varun, R. Modak, Y. Sakuraba, T. Ohkubo, R. Guo, B. Xu, J. Shiomi, D. Chiba, and K. Uchida
2. 発表標題 Spin-current-induced non-equilibrium change in thermal conductivity and interfacial thermal resistance at room temperature
3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takamasa Hirai
2. 発表標題 Active and selective temperature control using mechanical strain
3. 学会等名 第47回日本磁気学会学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Hirai, R. Iguchi, A. Miura, K. Uto, M. Ebara, and K. Uchida
2. 発表標題 Flexible Elastocaloric Kirigami Temperature Modulator
3. 学会等名 MRM2023/IUMRS-ICA2023（国際学会）
4. 発表年 2023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

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