

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「ナノスケール・サーマルマネジメント
基盤技術の創出」
研究課題
「スピントロニック・サーマルマネジメント」

研究終了報告書

研究期間 2017年11月～2023年3月

研究代表者:内田 健一
(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)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

本研究の目的は、スピンの有する対称性・制御性・非相反性を媒介とした熱エネルギー制御原理とその応用に向けた基盤技術を構築することである。この目標達成に向けて、以下の3つの熱制御機能を開拓した。

- (A) 局所的・異方的・選択的に温度変調する機能「非遍在性 熱エネルギー制御」
- (B) 熱エネルギー輸送方向を自在に設定する機能「非相反性 熱エネルギー制御」
- (C) 外場印加によって熱制御する機能「非接触性 熱エネルギー制御」

特に注力したのは項目(A)であり、磁性材料やスピントロニクス素子に特有の熱電効果(磁気熱電効果)と、熱流とスピン流の変換現象(熱スピン効果)に関する原理解明と物質探索を世界に先駆けて推進した。物質・材料研究機構(NIMS)の内田グループが有する動的熱イメージング計測技術を駆使して、磁化と電流の相対角に依存してペルチェ係数が変化する「異方性磁気ペルチェ効果」や磁化と電流の外積方向に熱流が発生する「異常エッチングスハウゼン効果」の直接観測に成功するなど、顕著な成果が得られた。NIMSの三浦グループの第一原理計算や、内田グループ・名古屋大学の長野グループが共同で開発した熱計測システムにより、熱流を出力とする磁気熱電効果や熱スピン効果に関する詳細な振る舞いや起源が明らかになった。2021年には熱電/磁性複合材料において発現する新機構の横型熱電変換「ゼーベック駆動横型熱電効果」を考案・実証し、スピントロニクス現象としては前人未踏の $100 \mu\text{V/K}$ に迫る横熱電能を達成するなど、応用に向けた重要な進展も得られた。北陸先端科学技術大学院大学(JAIST)の安グループは項目(B)に注力し、基礎的なデータを取得した。項目(A)で得られた知見を活かしつつ項目(C)の研究も進め、磁性金属多層膜における巨大磁気熱抵抗効果の観測などを報告した。研究期間の最終年度時点で、世界で本チームでしか観測・定量評価できない磁気熱電効果・熱スピン効果が複数存在している状況であり、高い競争力をもって研究を遂行した。

本研究の遂行により、磁性材料やスピントロニクスを使わなければ実現できない熱制御機能が次々と実証され、各種熱制御現象を高性能化するための原理解明・物質探索も大きく進展した。NIMSをハブ拠点として各グループが密な連携を取り、ほぼすべての研究項目において当初の計画通り、もしくは想定を超えた進捗が得られた。よって、本研究により「スピントロニック・サーマルマネジメント」の基本概念が確立されたと判断される(図1)。

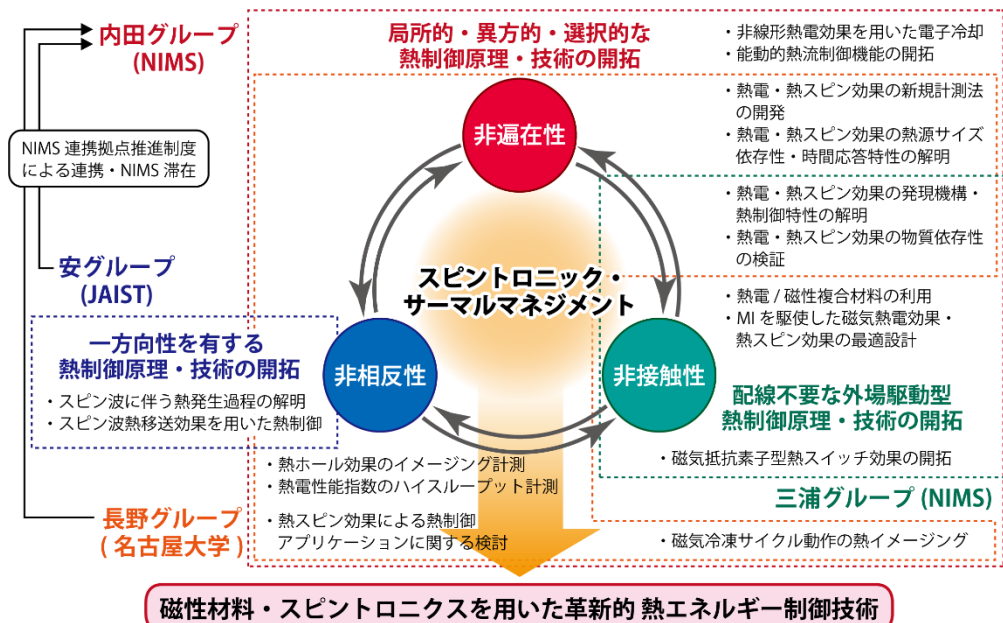


図1 本研究の概念図と役割分担

(2) 顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. 異方性磁気ペルチェ効果の世界初の観測

概要:磁性体中で電流を曲げるだけで加熱や冷却ができる熱電変換現象「異方性磁気ペルチェ効果」を観測することに世界で初めて成功した。熱電効果で加熱・冷却するためには、これまで二つの異なる物質を接合した構造が用いられてきたが、本研究により、接合のない単一の物質において、その磁気的な性質のみによって熱制御できる新しい機能が実証された。磁性体における基本的な熱電効果の一つであるにもかかわらず未観測であった異方性磁気ペルチェ効果が初めて観測されたことで、スピントロニクス分野に新たな方向性が見出された。

2. 光照射による熱流分布の自在制御に成功

概要:磁性体に光を照射することにより、電流に付随して生じる熱流の方向や分布を自在に制御できることを実証した。この熱制御機能は、磁化と電流の外積方向に熱流が発生する「異常エッチングスハウゼン効果」と光磁気記録の原理を融合することによって実現された。本成果により、熱エネルギーの能動的な制御を可能にする磁性材料の新しいポテンシャルが明らかになった。

3. 磁性多層膜における巨大磁気熱抵抗効果の観測

概要:スピントロニクスのコアである磁性金属多層膜において、磁化配置に依存した熱伝導率変化比150%・変化量25 W/mKに達する巨大熱スイッチ効果(磁気熱抵抗効果)を観測した。本現象は幅広い温度領域で動作し、わずかな磁場印加で急激な熱伝導率変化が誘起される。本研究で観測された熱伝導率変化比は、機械的動作や相転移を用いず、室温以上で動作する方式としては本研究終了時点で世界最高性能である。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1. 異方性磁気ペルチェ効果のためのサーモパイル構造の提案と実証

概要:異方性磁気ペルチェ効果がもたらす熱制御機能を活かすためのサーモパイル構造を考案した。サーモパイル構造の基本形の一つとなる十字型素子を実際に作製し、従来の単一ワイヤーからなる素子よりも二桁大きな温度変化を誘起できることを示した。本成果に基づき、2018年度末より企業との共同研究を開始した。

2. 永久磁石における巨大異常エッチングスハウゼン効果の観測

概要:磁気熱電効果の出力を向上させるための物質探索の一環として、実用永久磁石の一つであるSmCo₅系磁石が大きな異常エッチングスハウゼン効果(およびその相反現象である異常ネルンスト効果)を示すことを発見した。SmCo₅系磁石において観測された横熱電能の起源である“横熱電伝導率”は既報物質の中で最高値であることを見出し、内因性機構に基づく第一原理計算により実験結果が定量的に再現されることを示した。無磁場下で動作し、すでに量産化プロセスが確立している永久磁石材料がスピン駆動型熱電変換材料の有力候補になることを示した意義は大きい。

3. ゼーベック効果を駆動力とした新機構の“横型”熱電変換の提案と実証

概要:ゼーベック効果によって駆動される新機構の横型熱電変換「ゼーベック駆動横型熱電効果」を提案・実証した。この効果は熱電半導体と磁性金属の複合材料において発現する熱電変換であり、実際に作製したn型Si/Co₂MnGa複合材料を用いて、異常ネルンスト効果に対して報告されていたこれまでの世界記録よりも一桁大きな横熱電能を室温で観測した。本成果はスピントロニクスに基づく横型熱電変換の応用展開に向けた起爆剤となり得る成果である。

< 代表的な論文 >

1. K. Uchida, S. Daimon, R. Iguchi, and E. Saitoh, “Observation of anisotropic magneto-Peltier effect in nickel”, *Nature*, Vol. 558, No. 7708, pp. 95-99, 2018

概要: < 優れた基礎研究としての成果1 > に記載

2. J. Wang, Y. K. Takahashi, and K. Uchida, “Magneto-optical painting of heat current”, *Nature Communications*, Vol. 11, No. 2, pp. 1-7, 2020

概要: < 優れた基礎研究としての成果2 > に記載

3. W. Zhou, K. Yamamoto, A. Miura, R. Iguchi, Y. Miura, K. Uchida, and Y. Sakuraba, “Seebeck-driven transverse thermoelectric generation”, *Nature Materials*, Vol. 20, pp. 463-467, 2021

概要: < 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果3 > に記載

§ 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

①「非遍在性・非接触性熱制御機能の原理実証と材料開発」グループ

研究代表者：内田 健一（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）

研究項目

- ・局所温度変調の動作実証と設計指針の確立
- ・双極子型局所温度変調の汎用性向上
- ・非相反スピン波熱移送効果の制御・増幅原理の開拓
- ・準粒子輸送を用いた熱整流・熱制御機能の実現
- ・磁気冷凍材料の超系統的評価と物性制御
- ・磁気抵抗素子を用いた熱伝導率スイッチの実現
- ・動的熱画像計測とコンビナトリアル成膜の融合による材料探索
- ・熱スピン効果の計算手法確立とマテリアルズ・インフォマティクスへの展開
- ・熱制御機能の応用検討
- ・実用素子を用いた動作確認

②「熱スピン・熱電効果の理論設計とマテリアルズ・インフォマティクスへの展開」グループ

主たる共同研究者：三浦 良雄（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）

研究項目

- ・磁気抵抗素子を用いた熱伝導率スイッチの実現
- ・熱スピン効果の計算手法確立とマテリアルズ・インフォマティクスへの展開

③「非相反性熱制御機能の原理実証と材料開発」グループ

主たる共同研究者：安 東秀（北陸先端科学技術大学院大学先端科学技術研究科 准教授）

研究項目

- ・非相反スピン波熱移送効果の制御・増幅原理の開拓
- ・準粒子輸送を用いた熱整流・熱制御機能の実現

④「熱スピン効果・磁気熱量効果の熱制御工学的応用開拓」グループ

主たる共同研究者：長野 方星（名古屋大学大学院工学研究科 教授）

研究項目

- ・局所温度変調の動作実証と設計指針の確立
- ・準粒子輸送を用いた熱整流・熱制御機能の実現
- ・磁気冷凍材料の超系統的評価と物性制御
- ・熱制御機能の応用検討
- ・実用素子を用いた動作確認

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

本研究では、国内の多くの研究者と共同研究を実施した。薄膜の熱伝導率計測に関しては、東京大学大学院 工学系研究科 機械工学専攻 塩見研究室および産業技術総合研究所 物質計測標準研究部門 材料構造・物性研究グループの八木貴志研究グループ長にご協力いただいた。塩見研究室には、機械学習の手法を用いたスピントロニクス素子の最適設計に関してもサポートいただいた。異常エッチングスハウゼン効果やスピンペルチェ効果の研究の一部に関しては、東北大学 金属材料研究所 磁性材料学研究部門(旧 高梨研究室)、大阪大学 産業

科学研究所 千葉研究室と共同研究を行い、各研究室が有する独自の物質合成技術や物性制御手法を活かして、新たな熱制御機能を実証した。永久磁石材料における電子構造の第一原理計算に関しては、東北大学大学院 工学研究科 応用物理学専攻の土浦宏紀准教授と共同研究を行った。磁気トムソン効果をはじめとした非線形熱電効果に関する成果は、産業技術総合研究所 省エネルギー研究部門 材料物性グループの村田正行主任研究員との共同研究により得られたものである。

本プロジェクトで得られた研究成果は国際的にも広く認知されており、特にロックインサーモグラフィ法を利用した熱イメージング計測に多くの研究者の興味が集まっている。世界各国の研究グループから磁気熱電効果や熱スピン効果の計測依頼があり、研究対象とする現象や物質の幅を広げた。具体的には、スピン波熱移送効果の熱イメージング計測に関してカイザースラウテルン工科大学のBurkard Hillebrands教授の研究グループと共同研究を行い、共著論文を発表した。オハイオ州立大学のJoseph P. Heremans教授とは強誘電体を用いた熱制御原理の開拓を進めると共に、横型熱電変換に関するレビュー論文を共同執筆した。南フロリダ大学のManh-Huong Phan教授とは、スピнкаロリトロニクス概念を2次元物質系や光物理分野に広げるためのレビュー論文を共同執筆した。

以上の共同研究で構築した研究ネットワークを活用することにより、JST戦略的創造研究推進事業ERATO「内田磁性熱動体プロジェクト」(研究総括:内田健一、研究期間:2022.10~2028.3)の発足や、2023年5月に開催予定の第12回スピнкаロリトロニクス国際ワークショップのつくば誘致に繋がっている。ERATOプロジェクトには、名古屋大学の長野方星教授(本CREST研究の主たる共同研究者)と産業技術総合研究所の八木貴志研究グループ長が参画している。

スピントロニック・サーマルマネジメント研究は黎明期にあるため現時点での取り組みは基礎研究に限られているが、産学連携も推進している。浜松ホトニクス社や、CRESTにおいて内田グループに参画したアルプスアルパイン社には、各社が所有する計測装置の使用を許可いただき、得られた成果に関して共同で論文を発表した(浜松ホトニクス社との共同成果は2019年にSci. Rep.誌、アルプスアルパイン社との共同成果は2020年にAppl. Phys. Express誌に論文掲載)。加えて、磁気熱電効果の物質開拓について民間企業1社(守秘義務有)、磁気熱電変換デバイスの試作・機能実証に関して別の民間企業1社(守秘義務有)と共同研究を行っている。今後も積極的に民間企業に研究成果を紹介し、スピントロニック・サーマルマネジメントの応用可能性を検討していきたい。