解 説

# ロックイン熱計測が拓く スピンカロリトロニクスの物理・材料研究

内田 健一, 井口 亮

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

(受取日: 2021年4月21日, 受理日: 2021年5月7日)

# Physics and Materials Science Studies on Spin Caloritronics Revealed by Lock-in Thermal Measurements

Ken-ichi Uchida and Ryo Iguchi

Research Center for Magnetic and Spintronic Materials, National Institute for Materials Science (NIMS)

(Received Apr. 21, 2021; Accepted May 7, 2021)

Spin caloritronics is the fusion research field based on the combination of spintronics, thermoelectrics, and thermal energy engineering, where the interplay between spin, charge, and heat currents has been extensively investigated. Recently, we have clarified detailed behaviors of various magneto-thermoelectric and thermo-spin effects and demonstrated novel thermal control functionalities realized by spin caloritronics by means of the active heat detection techniques called the lock-in thermography and lock-in thermoreflectance methods. In this article, we explain the measurement principles and features of these lock-in heat detection techniques, and review recent developments in spin caloritronics. These techniques are useful not only for elucidating physics of spin caloritronics but also for finding good magneto-thermoelectric and thermo-spin conversion materials.

Keywords: Spin caloritronics, Magneto-thermoelectric effect, Thermo-spin effect, Lock-in thermography, Lock-in thermoreflectance.

# 1. はじめに

エレクトロニクスデバイスの高集積化・高性能化に伴っ て、発熱密度の増大による故障率の増加や信頼性の低下が 問題となり、サーマルマネジメント技術の重要性が一層 高まっている。特に、文部科学省が平成 29 年度戦略目標 「ナノスケール熱動態の理解と制御技術による革新的材 料・デバイス技術の開発」<sup>1)</sup>を定めて以降,ナノスケール における熱物性や熱制御原理・技術の開拓が加速している。 このような潮流の中、著者らは磁気の源であるスピンの自 由度を利用した新しい熱制御技術「スピントロニック・ サーマルマネジメント」を提唱し、スピンが本質的に有す る対称性や非相反性を媒介とした熱エネルギー制御原理の 探索とその応用に向けた基礎研究を推進している。スピン トロニクスと熱電変換・熱工学の融合領域は「スピンカロ リトロニクス|24)と呼ばれ、2008年以降目まぐるしい発展 を遂げてきた。スピンカロリトロニクスは誕生してわずか 十数年の新しい分野であるが、現在では世界規模の学際領 域へと成長している。

新たなサーマルマネジメント原理の開拓において,熱計 測技術が果たす役割は大きい。著者らは,非接触温度計測 とロックイン検出を組み合わせた動的熱計測技術により, スピンと熱の相互作用がもたらす新しい物理現象や熱制御 機能を実証してきた。具体的には,測定対象への熱的励起 を周期的に行いながら赤外線カメラにより熱画像を取得 する「ロックインサーモグラフィ法<sup>5-15</sup>」,同様の励起下で サーモリフレクタンスにより温度変化を取得する「ロック インサーモリフレクタンス法<sup>16-18</sup>」,の2つの熱計測手法 を主に利用している。これらの手法においては,周期的な 励起に追従する温度変化成分のみをフーリエ解析で選択的 に取り出すことにより,サブ mK オーダーの高感度温度計 測を比較的容易に実現できる。さらに,Fig.1に例を示した ように,励起源には電流,スピン流(磁気の流れ),熱流, 磁場,光等,様々な選択肢があり,入力に応答する多彩な 物理現象を精密に測定することができる。本稿では,ロッ クインサーモグラフィ法およびロックインサーモリフレク タンス法について,その測定原理や特徴をまとめ,これら の手法によって得られた成果の例として最近のスピンカロ リトロニクスの進展を紹介する。

# 2. ロックイン熱計測の基本原理

#### 2.1 ロックインサーモグラフィ法

本手法はサーモグラフィ法にロックイン検出を組み合わ せ、特定の励起による熱応答を精度良く抽出する手法であ る。例えば、周期的な電流印加に伴うジュール熱分布を ロックインサーモグラフィ法で計測すれば電流の経路を可 視化できるため、この手法の主用途は半導体デバイスの非

#### Input: external periodic perturbation (lock-in sources)



Output: temperature modulation

Fig.1 Applications of the lock-in thermography and lock-in thermoreflectance methods.

破壊での故障解析であった。加えて近年では、スピンカロ リトロニクスの基礎研究<sup>7,8,10-12,14)</sup>や異方的な熱伝導を示 す材料の熱物性評価<sup>13)</sup>等にも用いられている。

サーモグラフィ法では、物体が輻射する赤外線量に基づ き非接触で測温する。ステファン=ボルツマンの法則とし て知られているように、放射エネルギーの総量は温度の4 乗に比例する。室温では低エネルギーの赤外線放射が支配 的であり、その強度分布は InSb 等の半導体センサや MEMS 構造のマイクロボロメータが組み込まれた赤外線カメラに より撮像される。赤外線量と温度の校正曲線に照らせば、 温度の空間分布像が得られる。非接触で温度分布を測定で きることから、プローブの接触等による熱損失に影響され ず、信頼性・再現性が高い。

ロックイン検出では、特定周波数の交流入力を測定対象 に与え、同じ周波数を有する温度変化信号を抽出する。赤 外線カメラの画像取得タイミングと交流入力の変化タイ ミングを同期させ、取得した一連の熱画像に対してフーリ エ解析を行い、入力の基本周波数で振動する成分を抽出す る。これにより、他の周波数で振動する熱応答や環境温度 揺らぎを所望の温度変化信号から分離することができる。

Fig.2 に、電流を入力とした場合のセットアップ・計測プ ロセスを模式的に示した。試料の赤外線放射率は物質種や 波長帯に依存するため、温度変化を定量評価するためには 試料表面に放射率の高い黒体塗料を塗布する必要がある。 一方,半導体デバイスの故障解析のように発熱箇所を特定 しさえすれば十分な用途においては、必ずしも黒体を塗布 する必要はない。電流源により周期電流を試料に印加し, 試料表面の熱画像を連続的に取得する。画像データはPCに 転送され、フーリエ解析を経て、入力信号と同期した温度 変化の基本振動成分の強度分布を表す振幅像、位相分布を 表す位相像が出力される。位相像は、温度変化の符号と熱 拡散に伴う時間遅れ情報を含む。例えば、熱拡散による影 響が無視できる場合は,入力と出力が同位相であれば発熱, 逆位相であれば吸熱となる。中間の位相値は入力に対する 熱応答の時間遅れ度合いを表し、熱拡散に関する情報等を 得ることができる。本稿では、直感的な理解が容易である ことから、位相像における位相値の増加が熱拡散に伴う時 間遅れと対応する定義を採用している。入力が電流以外の 場合でも、同様のプロセスによりロックインサーモグラ フィ計測を行うことができる。

ロックインサーモグラフィの実装方法としては,カメラ のトリガーにより入力信号の立ち上がりを同期させ,撮像 周波数を入力の周波数の整数倍にしてリアルタイムに温度 変化のロックイン解析を行う方法や、長時間の連続的な撮 像データをフーリエ変換して温度変化の周波数スペクトル を得る方法がある。前者の方がシステム実装の難易度は高 いが、測定結果をその場で観察できるため、長時間積算に よるノイズ低減を確認しながら実験可能である。後者の実 装は比較的容易であるが、長時間測定を行うとデータ量が 膨大となるため、保存や計算においてシステムの能力が要 求される。ロックインサーモグラフィ計測のためのソフト ウェアを備えた赤外線カメラは多数販売されているが、実 装方法はメーカーにより異なるため、用途に応じて選定す る必要がある。

ロックインサーモグラフィ法の有用性の一つとして,入 力信号の周波数を変えることにより温度変化の過渡応答特 性を検証できる点が挙げられる。周期的に変化する単一の 熱源が生成された時、温度変化は熱源から熱拡散長  $(= (D/\pi/f)^{0.5})$ 程度離れた範囲まで現れる。ここで、Dは 熱拡散率, fは熱源の周波数である。周波数を上げれば熱拡 散長が短くなるため,高ロックイン周波数での測定を行う ことで熱源の位置を特定することができる。また、外乱の 影響も受けにくくなる。この特徴は、故障解析や物理現象 の起源解明において極めて有用である。一方で、低ロック イン周波数での測定も重要である。熱電素子等は実環境で は直流動作させるため, 直流印加時の定常状態における出 力を定量する必要がある。ロックイン周波数を下げるほど 定常状態における温度分布に近付くため、十分低いロック イン周波数での測定や、ロックイン周波数依存性と熱拡散 モデルの比較により、直流出力を精度良く予測できる。14) このように、ロックインサーモグラフィ計測において周波 数依存性測定がもたらす利点は大きい。

ロックインサーモグラフィ法を定量性が求められる物性 研究や材料開発に用いる際,入力信号が矩形波である場合 には注意が必要である。の半導体デバイスの解析に用いら れてきた歴史的な経緯から,入力として矩形波が用いられ ることが多い。一方で,検出する温度変化の振幅は正弦波 成分であるため,入力と出力の単純な振幅比較では物性値 を正しく評価することができない。入力も正弦波であるこ とが望ましいが,半導体デバイスのように電流-電圧特性 の非線形性が強い場合には,正弦波の電圧/電流を入力し ても,温度変化として正弦波状の信号を期待できない。ま た,電圧が閾値を超えなければ温度変化も小さいため,設 定や制御が容易な矩形波が好まれている。金属のように電 解 説



**Fig.2** Experimental setup and measurement principle of the lock-in thermography method. *f* and *f*<sub>camera</sub> denote the lock-in frequency and the frame rate of an infrared camera, respectively.



Fig.3 Experimental setup and measurement principle of the lock-in thermoreflectance method.

流-電圧特性が線形な場合は、矩形波と正弦波の振幅を変 換する因子を考慮して補正すれば良い。具体的には、矩形 波中の基本周波数成分の正弦波振幅は矩形波振幅の 4/π倍 であるから、出力を入力で規格化する際にπ/4 を乗ずる。 矩形波入力においてはエイリアシングの問題が生じ得るの で、測定周波数とカメラの撮像周波数の選定も、測定結果 の定量性を担保する上で重要である。ロックインサーモグ ラフィ法においては、カメラの撮像周波数がサンプリング 周波数に該当し、撮像周波数の半分を起点に折り返しが発 生する。矩形波入力の場合は高調波成分が多いため、高 ロックイン周波数においては温度変化の高調波成分が基本 波成分の計算時に混入してしまう。例えば、撮像周波数が 100 Hz でロックイン周波数が 25 Hz の場合, 75 Hz の温度 変化がエイリアシングにより 25 Hz 成分としても検出され ることになる。一方、撮像周波数に比べて十分に低いロッ クイン周波数においてはこの問題は発生しない。既知の熱 応答を示す試料を用いた校正や確認が重要である。

#### 2.2 ロックインサーモリフレクタンス法

本手法は、ロックインサーモグラフィ法における温度検 出原理をサーモリフレクタンス法に置き換えたものである。 ロックインサーモグラフィ法では難しかった温度領域や周 波数領域での測定が可能である。

サーモリフレクタンス法では物体の反射率の温度依存性 を利用して測温する。金属においては伝導率が温度依存す ることから,抵抗を測れば温度がわかる。これが測温抵抗 体の原理である。いわば交流の伝導率とも言える誘電率も 温度依存することから,反射光の変化を測ることで物体の 温度を計測することができる。伝熱分野では近年,薄膜・ ナノ材料における熱伝導率や界面熱抵抗を直接計測するた めの手段として,時間領域サーモリフレクタンス(timedomain thermoreflectance: TDTR)法<sup>19-29</sup> いる。この手法は、サーモリフレクタンスと光学的ポンプ・ プローブ法を組み合わせた測温法であり、サブピコ〜ナノ 秒スケールにおける物体表面温度の過渡応答を計測・解析 することで、ナノスケールにおける熱物性の推定を可能に している。また、特定周波数で周期加熱を行って温度変化 の周波数応答を調べる周波数領域サーモリフレクタンス

(frequency-domain thermoreflectance: FDTR) 法 22,27,30,31) も ある。本稿で述べるロックインサーモリフレクタンス法は FDTR 法の一種である。ロックインサーモグラフィ法と同 様に、特定周波数で熱励起を行い、これに追従する温度変 化のみをロックイン検出する。サーモリフレクタンス法で 温度を精度良く定量するためには, 試料最表面のサーモリ フレクタンス係数(∝反射率変化/温度変化)が大きく,既 知である必要がある。そのため、光源の波長に応じて適切 なトランスデューサ層を選定し、 試料表面に成膜する必要 がある。反射光をフォトディテクタ等で一点計測18)するか、 カメラ等でイメージング計測 17) するかに応じて実装方法 は異なるが,いずれも共通する原理はフーリエ解析である。 ロックインサーモリフレクタンス法における温度分解能は, 光センサとしてフォトダイオードを用いるか, CCD 等の イメージセンサを用いるかによって大きく異なる。特にイ メージング計測の場合、フィトダイオードを用いる際は走 査観察が必要であり,一点計測と比べて精度が落ちる可能 性がある。イメージセンサを用いる際も、ロックイン周波 数を上げるためには照射光のチョッピングを組み合わせた ヘテロダイン検出が必要である。

以下では例として、フォトディテクタを用いたロック インサーモリフレクタンス計測について紹介する。Fig.3 に 示すように、試料の金属層にファンクションジェネレータ を接続し、交流電流を印加する。金属層がトランスデュー サ層と導通していると電流が分流してしまい温度変化の定 量測定が難しくなるため、金属層とトランスデューサ層の

102

間に絶縁層を挿入すると良い。本セットアップでは、ビー ムスプリッタを通して光源からの光を試料に入射し、反射 光をフォトディテクタで検出している。試料に印加した交 流電流により熱応答が生じると、反射光強度が周期的に変 化する。その強度と位相をロックインアンプで検出し、 サーモリフレクタンス係数を用いて温度変化に変換する。 反射光強度の変化は通常極めて小さく、バランスフォト ディテクタにより検出感度を高めることが望ましい。

本手法の強みは高速応答,すなわち高ロックイン周波数 での測定が可能なことである。著者らの研究では,試料表 面一点の温度変化を測る場合,MHz帯までの高速熱応答を 計測できている。<sup>18)</sup>これはロックインサーモグラフィで 達成可能なロックイン周波数が高々100 Hz 程度<sup>12)</sup>である ことを鑑みれば,大きな違いである。幅広い周波数領域で 測定することで,熱応答の時定数や特性長,熱源サイズ 等を調べることができる。ロックインサーモグラフィ法 とロックインサーモリフレクタンス法の特徴の違いを Table 1 にまとめた。

 Table 1
 Comparison between the lock-in thermography and lock-in thermoreflectance methods.

	Lock- in thermography	Lock- in thermoreflectance
Spatial resolution (imaging)	~10 µm	<1 µm
Temp. resolution (typical values for 1h measurement)	0.1 mK (imaging)	0.1 mK (spot) 1 mK (imaging)
Lock-in frequency	Min: no limit Max: ~100 Hz	Min: no limit Max: >1 MHz
Measurement temperature range	Min: ~270 K Max: >1000 K	Min: ~30 K Max: >1000 K

# 3. ロックイン熱計測法用いた スピンカロリトロニクス研究の例

#### 3.1 熱電・熱スピン効果のロックイン熱計測

2節で概説したロックインサーモグラフィ法やロック インサーモリフレクタンス法を用いれば、熱流を出力とす る熱電効果や熱スピン効果の計測や機能性実証が可能にな る。熱電効果は熱流と電流の変換現象、熱スピン効果は熱 流とスピン流の変換現象である。スピン流はスピン軌道相 互作用(スピンホール効果)32)を介して電流から生成でき るため、熱電・熱スピン効果いずれの場合も電流に線形応 答する温度変化を測ることになる (Fig.1)。これらの現象の ロックイン熱計測に際しては、入力電流波形の選び方が肝 要である。入力としてオフセット(直流成分)がゼロの交 流電流を試料に印加した場合、熱電効果によって生成され る熱流は電流方向の反転により反転するため、試料に生じ る発熱と吸熱が入力電流と同周波数で変化する(Figs.2,3)。 熱スピン効果の計測においては、電流方向の反転によって スピン流のスピン偏極方向が変化することから,同様に発 熱と吸熱が入力電流と同周波数で変化する。熱電・熱ス ピン効果による温度変化が基本周波数で振動する一方, ジュール熱は入力電流が矩形波の場合は時間的に一定

(Fig.2),正弦波の場合は倍周波数(Fig.3)となるため, ロックイン熱計測を行うことによりジュール熱成分を分離 し,熱電・熱スピン効果に由来する温度変化のみをイメー ジング計測することができる。<sup>8,18)</sup>

さらに、測定対象となる物理現象の対称性や磁場・磁化

に対する依存性の違いから、ペルチェ効果等の磁場・磁化 に依存しない熱電効果と磁性体特有の熱電・熱スピン効果 を分離することができる。11) ロックイン温度変化信号には 磁場や磁化に依存しない熱電効果の信号も重畳し得るが、 例えば、磁場・磁化反転に伴って出力が反転する現象(磁 場・磁化に対して奇の依存性を示す現象)に対しては、正 磁場・負磁場を印加しながらそれぞれロックイン熱計測を 行い、それらの差分を取り振幅を 1/2 倍することで所望の 信号を抽出することができる。差分計算においては位相を 考慮する必要があるため, 複素演算が有用である。一方で, 磁場・磁化に対して偶の依存性を示す現象は、磁場の有無 での実験結果の比較や、正磁場・負磁場下でのデータを加 算して振幅を 1/2 倍する(奇の依存性を示す成分を分離す る)ことにより測定可能である。複数の現象に由来する信 号を分離したり、新現象を実証したりする際には、イメー ジング計測が非常に強力な手段となる。熱画像の視野内で 電流の経路を曲げたり試料形状を工夫したりすることによ り、熱流-電流-スピン流変換の磁場・磁化角度依存性や対 称性を一挙に検証できるからである。

上述のように、ロックイン熱計測には熱電・熱スピン効 果による熱応答特性を調べるための多くの利点が備わって いる。以降では、磁性体特有の熱電効果として異常エッ チングスハウゼン効果、熱スピン効果としてスピンペル チェ効果を例に挙げ、ロックイン熱計測法を活用して行っ た著者らの研究を紹介したい。以下に示す実験は、いずれ も室温・大気圧下で行ったものである。

# 3.2 ロックインサーモグラフィ法による異常エッチング スハウゼン・スピンペルチェ効果のイメージング計測

異常エッチングスハウゼン効果は、磁性体に電流  $J_e$ を印 加した際に、 $J_e$ と磁化 Mの両方に直交する方向に熱流  $J_q^{AEE}$ が生成される熱電変換現象である。すなわち、 $J_q^{AEE}$ は以下の対称性を満たす:

$$\mathbf{J}_{q}^{\text{AEE}} \propto \mathbf{J}_{c} \times \mathbf{M} \tag{1}$$

強磁性金属中のエッチングスハウゼン効果に関する最初の 実験報告は、1920年代にまで遡る。1924年にBridgmanは Fe, Co, Ni のバルク試料におけるエッチングスハウゼン効 果を測定している。<sup>33)</sup> 1925年には、Hall がエッチングスハ ウゼン効果による微小な温度変化を測定するための試みを 報告している。<sup>34)</sup>しかし、これら初期の研究においては、 外部磁場に由来する成分(正常エッチングスハウゼン効果) と磁化に由来する成分(異常エッチングスハウゼン効果) の分離や、試料中の温度分布の測定等は行われていなかっ た。初期の研究以降、異常エッチングスハウゼン効果に関 する研究報告は、100年近くにわたって皆無と言っても良 い状況であった。このような状況の中、2018年にロック インサーモグラフィ法により、薄膜における異常エッチン グスハウゼン効果が初めて直接観測された。<sup>10)</sup>

ー方でスピンペルチェ効果は、磁性体/伝導体界面にス ピン流が流れた際に熱流が生成される現象であり、磁性体 が絶縁性であっても発現する点が従来の熱電効果と決定的 に異なる。<sup>24)</sup>スピンペルチェ効果は、2014年にオランダの Flipse らによって初めて実験的に観測された。<sup>35)</sup>彼らは、 フェリ磁性絶縁体であるイットリウム鉄ガーネット

(yttrium iron garnet: YIG) と Pt 薄膜の接合構造において生 じたスピン注入に伴う温度変化を,サーモパイル型薄膜熱 電対を用いて電気的に検出した。その後,2016年にロック インサーモグラフィ法を用いたスピンペルチェ効果のイ メージング計測が報告され,スピン流に伴う特異な温度分 布が明らかになった。<sup>8)</sup>スピンペルチェ効果は,磁性絶縁 体上にスピン軌道相互作用の大きな金属薄膜が成膜された 解

説

試料構造において発現する。金属薄膜に電流J。を印加する とスピン軌道相互作用によって膜厚方向に伝導電子スピン 流J。が生成され,接合界面近傍に以下の関係を満たす方向 に偏極したスピン蓄積(アップスピン電子とダウンスピン 電子の非平衡な濃度差)が生成される:

$$\mathbf{J}_{\mathrm{s}} \propto \mathbf{\sigma} \times \mathbf{J}_{\mathrm{c}} \tag{2}$$

ここで、**G**はスピン偏極ベクトルを表す。生成されたスピン 蓄積は、界面交換相互作用を介して磁性絶縁体中の磁化ダ イナミクス(マグノン)が運ぶスピン流に変換される。こ のスピン流に沿って熱流が生成される現象がスピンペル チェ効果である。スピンペルチェ効果によって生成される 熱流 J<sub>q</sub>SPE の方向は、**G**が磁性絶縁体の磁化 M と平行か反平 行かによって反転し、**G**と M が直交している場合には生じ ない。<sup>8)</sup>よって、スピンペルチェ効果の対称性は

$$\mathbf{J}_{q}^{\text{SPE}} \propto (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{M}) \,\mathbf{n} \tag{3}$$

と表される(n:磁性絶縁体/金属界面の法線ベクトル)。ス ピン流を発現原理としているものの、スピンペルチェ効果 もスピン軌道相互作用を介することで電流から熱流への変 換現象に帰着する。よって、式(2)の電流-スピン流変換特性 により、磁性絶縁体の磁化が界面に沿った方向に向いてい る場合、式(3)は

$$\mathbf{J}_{\mathbf{q}}^{\mathrm{SPE}} \propto \mathbf{J}_{\mathbf{c}} \times \mathbf{M} \tag{4}$$

となり、スピンペルチェ効果は異常エッチングスハウゼン 効果と同様に磁化と電流の外積方向に熱流を生成する。こ れらの現象の対称性の違いが表れるのは磁化が界面の法線 方向に向いている場合であり、この場合にはスピンペル チェ効果による熱流は生じないのに対して、異常エッチン グスハウゼン効果による熱流は式(1)に従って生成される。

以下では、ロックインサーモグラフィ法を用いて異常 エッチングスハウゼン効果とスピンペルチェ効果によって 生成された温度変化を可視化することで、上記の対称性の 違いを明瞭に示した実験結果を紹介する。10)異常エッチン グスハウゼン効果を示す典型的な系として、本研究では膜 厚 10 nm の強磁性 FePt 薄膜を非磁性 SrTiO3 (100)基板上に エピタキシャル成長させた試料を用いた。ここで、薄膜成 長温度により FePt 薄膜の L10 規則化を制御し, 垂直および 面内の両方向に対して、比較的低磁場で磁化を飽和可能と した。スピンペルチェ効果を示す典型的な系として、膜厚 10 nm の Pt 薄膜を YIG (111)基板上に室温成長させた試料 を用いた。以上の試料において、FePt 層および Pt 層をコの 字型に加工し (Fig.4(a),(b)),入力としてオフセットゼロの 矩形波電流を印加した。SrTiO3および YIG は絶縁体である ため、電流は金属薄膜層にのみ流れる。異常エッチングス ハウゼン効果やスピンペルチェ効果が発現すれば、電流に 応答した温度変化が振幅(A)像・位相(φ)像中に観測さ れる。コの字形状を熱画像内に配置することで、温度変化 の電流方向依存性を一挙に測定できるため、熱電変換の対 称性や磁場・磁化方向依存性を明瞭に示すことができる。

Fig.4(c)に、外部磁場により FePt 層の磁化を x 方向に揃 えた面内磁化配置における A 像・Ø像の測定結果の一例を 示した。磁化と電流が平行であるコの字の先端領域では温 度変化信号が現れていないことがわかる。一方で、磁化と 電流が直交している領域においては明瞭な温度変化が観測 されており、電流方向の反転に伴い信号の位相が 180°変化 している。これは、右側の領域と左側の領域でそれぞれ逆 符号の温度変化が生じていることを示している。また、磁 化方向を反転させることにより、各領域における温度変化 の符号が反転することも確かめられている。<sup>10)</sup>これらの 振る舞いは式(1)に示した対称性と整合しており、異常エッ



**Fig.4** (a),(b) Schematics of the FePt/SrTiO<sub>3</sub> and Pt/YIG samples used for the lock-in thermography measurements of the anomalous Ettingshausen effect (AEE) and spin Peltier effect (SPE), respectively. (c)-(f) Schematics of the symmetry of AEE and SPE and the lock-in thermal images for the FePt/SrTiO<sub>3</sub> and Pt/YIG samples in the in-plane magnetized (IM) and perpendicularly magnetized (PM) configurations.<sup>10)</sup> **J**<sub>c</sub>, **J**<sub>s</sub>,  $\nabla T$ , and **M** denote the charge current, spatial direction of the spin current, temperature gradient, and magnetization vector, respectively. During the lock-in thermography measurements, a square-wave-modulated AC charge current with the amplitude  $J_c = 10$  mA and frequency f = 25 Hz was applied to the FePt and Pt layers.



**Fig.5** *f* dependence of the lock-in amplitude showing the odd dependence on a magnetic field  $A_{odd}$  for the Pt/YIG sample and Ni thin film, measured by the lock-in thermoreflectance method.<sup>18)</sup>

チングスハウゼン効果によって z 方向に熱流が駆動された 結果として温度変化が生じたと結論付けることができる。 Fig.4(d)は YIG の磁化を x 方向に揃えた面内磁化配置にお ける Pt/YIG 接合に対する測定結果であり, FePt 薄膜の場合 と同様の対称性を有する温度変化信号が観測されている。 Pt は異常エッチングスハウゼン効果を示さないため、ここ で観測された信号は YIG へのスピン流注入によってス ピンペルチェ効果が駆動されたことにより生じた温度変化 である。以上の実験結果は、面内磁化配置において異常 エッチングスハウゼン効果とスピンペルチェ効果が同様の 対称性を示すという式(1)、(4)と整合するものである。

Fig.4(e),(f)には、外部磁場により FePt および YIG の磁化 を膜面垂直方向に揃えた垂直磁化配置において、同様の比 較を行った結果を示した。面内磁化配置における結果とは 異なり、FePt ではコの字形状の全域において端部に温度変 調が観測され、コの字の内側と外側の端部で位相値が 180° 変化していることから、薄膜面に沿った方向に熱流が生成 されていることがわかる。一方で、Pt/YIG 接合には有意な 温度変化は観測されておらず、G⊥M となる垂直磁化配置 においては式(3)に従ってスピンペルチェ効果による信号 が消失することが確かめられた。このように、ロックイン サーモグラフィ法による熱電・熱スピン効果のイメージン グ計測は、複数の物理現象の分離や、それらの対称性実証 において非常に強力な実験手段となる。

# 3.3 ロックインサーモリフレクタンス法による異常エッ チングスハウゼン・スピンペルチェ効果の過渡応答計測

面内磁化配置において異常エッチングスハウゼン効果と スピンペルチェ効果は類似の振る舞いを示すが、両者の物 理的起源は全く異なり、上述の磁化角度依存性のみならず 温度変化の時間応答特性も異なる。ロックインサーモグラ フィ法では赤外線カメラの撮像周波数によりロックイン周 波数が 100 Hz 程度に制限されてしまうため、これらの現象 によって生じた温度変化の過渡応答を測定することは難し い。一方、ロックインサーモリフレクタンス法を用いれば 比較的容易に MHz 帯までロックイン周波数を上げること ができるため、異常エッチングスハウゼン効果とスピンペ ルチェ効果による温度変化の過渡応答の違いを計測するこ とができる (Table 1)。

Fig.5 に, ロックインサーモリフレクタンス法により測定 した, Pt/YIG 接合および強磁性 Ni 薄膜(膜厚 13.3 nm)に おける電流誘起温度変化のロックイン周波数(f)依存性 を示した。<sup>18)</sup>異常エッチングスハウゼン効果とスピンペ ルチェ効果による寄与のみを評価するため,磁化方向に対 して奇の依存性を示す温度変化成分のみをプロットしてい る。Pt/YIG 接合におけるスピンペルチェ効果の信号は、低 周波数領域(f < 1 kHz)ではほぼ一定値を示す一方、高周 波数領域(f > 1 kHz)ではfの増加に伴い単調に減少する ことが明らかになった。それに対して Ni 薄膜における温度 変化は 1 MHz までの全周波数領域において一定値を示し ており、異常エッチングスハウゼン効果によって Ni 薄膜中 に生成された温度変化は 1  $\mu$ s 未満の時間スケールで定常状 態に達していることがわかる。

異常エッチングスハウゼン効果とスピンペルチェ効果の f依存性の違いは、これらの現象によって誘起される熱流の 長さスケールの差に由来する。異常エッチングスハウゼン 効果の過渡応答は Ni 層の厚さによって決定される一方、ス ピンペルチェ効果の過渡応答は YIG 層を伝播するスピン 流誘起熱流の特性長によって決定される。文献 18)では、 ロックインサーモリフレクタンス法によって得られたf依 存性の測定結果を一次元熱伝導計算と比較することにより、 スピンペルチェ効果によって誘起された熱流の特性長が 0.94 μm と推定された。高周波数領域までf 依存性を測る ことで各種現象の長さスケールや過渡応答特性を測定でき るというロックインサーモリフレクタンス法の特徴は、ス ピンカロリトロニクスの基礎物理開拓において今後重要な 役割を担っていくものと期待される。

#### 4. 材料探索への活用

前節で紹介した異常エッチングスハウゼン効果やスピン ペルチェ効果以外にも、スピンカロリトロニクス分野にお いてはスピン流-熱流-電流相互作用がもたらす様々な物 理現象が発見されている。<sup>24)</sup>特に,熱を出力とするスピン カロリトロニクス現象については、熱計測技術の発展に伴 い、近年になってようやく自在に観測できるようになった ところである。そのため、ごく限られた物質でしか測定さ れたことが無い現象も多い。本節では、スピンカロリトロ ニクス現象の特性・起源の解明のみならず、材料探索にお いてもロックインサーモグラフィ法が強力な実験手段とな ることを示す。高いスピン流-熱流-電流変換能を有する材 料を見つけることは、スピンカロリトロニクスを熱工学応 用に結び付ける上で重要である。

ロックインサーモグラフィ法の最大の強みは,熱画像の 視野内における熱電・熱スピン変換特性の空間分布を一括



**Fig.6** (a) Schematic of the composition (*x*)-spread Co<sub>2</sub>MnAl<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub> film. (b) *x* dependence of the Co, Mn, Al, and Si concentrations in the Co<sub>2</sub>MnAl<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub> film. (c),(d) Lock-in amplitude  $A_{AEE}$  ( $A_{Joule}$ ) and phase  $\phi_{AEE}$  ( $\phi_{Joule}$ ) images of the temperature modulation induced by AEE (Joule heating) for the Co<sub>2</sub>MnAl<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub> film. (e) *x* dependence of  $A_{AEE}/j_c$  and the anomalous Nernst coefficient  $S_{ANE}$ . (f) *x* dependence of  $A_{Joule}/j_c^2$  and the electrical resistivity  $\rho$ . The experimental results shown in this figure were reported in Ref. 38).

して測定できることである。著者らは、ロックインサーモ グラフィ法とコンビナトリアル薄膜作製技術を組み合わせ ることで、熱電・熱スピン効果を示す材料のハイスルー プット探索を実現した。<sup>36-38)</sup> コンビナトリアル薄膜作製技 術を用いれば、1 枚の基板上に組成を連続的に傾斜させた 薄膜を作製できる。組成傾斜膜における温度変化をロック インサーモグラフィ法で計測すれば、熱電・熱スピン変換 能の組成依存性を一挙に取得することができる。

Fig.6 に組成傾斜させた磁性ホイスラー合金 Co2MnAli-xSix (x: 組成)に対して本手法を適用した結果を示した。コン ビナトリアルスパッタリング装置を用いて Fig.6(a),(b)に 示した組成傾斜を有する薄膜を作製し、ロックインサーモ グラフィ法により異常エッチングスハウゼン効果および ジュール熱によって誘起された温度変化の空間分布を評価 した。Fig.6(c),(e)に示したように,異常エッチングスハウ ゼン効果の組成依存性を1つの熱画像から連続情報として 取得することができる。また、ジュール熱による温度変化 の空間分布から、電気抵抗率の相対的な組成依存性も見積 もることができる(Fig.6(d),(f))。ここでは異常エッチング スハウゼン効果の測定結果を例として示したが、スピン ペルチェ効果の組成依存性を測ればスピンホール効果(電 流-スピン流変換能)の組成依存性をイメージング計測す ることも可能である。本手法を利用すれば、組成が異なる 試料を複数作製して個別に特性評価していく従来手法より も、圧倒的に高いスループットでデータを蓄積することが できる。この手法により網羅的に熱電・熱スピン変換特性 のスクリーニングを行い、有望な組成に対して詳細な物性 評価を行うことで、各種スピンカロリトロニクス現象に対 する材料開発を効率的に進めることができる。蓄積した データに基づき、スピンカロリトロニクスにマテリアルズ インフォマティクスの手法を取り入れていくことも重要で ある。39)継続的な材料探索・開発により、今後さらにス ピン流-熱流-電流変換能が向上していくことを期待した い。

# 5. まとめと展望

本稿では、高感度な非接触温度計測を可能にするロック インサーモグラフィ法およびロックインサーモリフレク タンス法の原理と特徴を概説した。そして、これらの動的 熱計測技術により近年急速な発展を遂げてきたスピンカロ リトロニクス研究の一部を紹介した。本稿では誌面の制限 のため、ロックインサーモグラフィ法とロックインサーモ リフレクタンス法の適用例として異常エッチングスハウ ゼン効果とスピンペルチェ効果の2つに絞って代表的な実 験結果を紹介したが、スピンカロリトロニクス分野にはこ れら以外にも動的熱計測技術によって初めて実験的に直接 観測された熱電・熱スピン変換現象が複数存在する。<sup>11,40)</sup> ロックインサーモグラフィ法による熱イメージングは、ス ピンを利用することによって得られる新しい熱制御機能の 実証においても大きく貢献している。<sup>41.44)</sup>

Fig.1 に示したように、ロックインサーモグラフィ法や ロックインサーモリフレクタンス法の適用範囲は、入力を 電流とした現象に留まらない。例えば、交流磁場と同期さ せて磁気熱量効果を測定した実験や、<sup>9,15)</sup>マイクロ波と同 期させてスピンダイナミクスに伴う熱応答を精密に評価し た実験も報告されている。<sup>7,45)</sup>マイクロ波と同期させた実 験においては、マイクロ波周波数(GHz帯)とロックイン 周波数の間には大きな隔たりがあるが、マイクロ波パワー の ON/OFF 変調によって発熱応答が検出されている。この ように、動的熱計測技術の適用範囲は半導体デバイスの非 破壊故障解析に留まらず、物性物理の新原理・新機能開拓 にまで広がっている。今後,本稿で紹介した熱計測技術が スピンカロリトロニクスに加えて様々な分野における基 礎・応用研究に貢献することを期待し,本稿の結びとした い。

#### 謝 辞

本稿で紹介した研究は、主に科学技術振興機構 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 ルマネージメント基盤技術の創出, 課題番号: JPMJCR17I1) の支援を受けて実施されました。共同研究者である物質・ 材料研究機構の桜庭裕弥グループリーダー, Rajkumar Modak 博士,東北大学の高梨弘毅教授, 関剛斎准教授,名 古屋大学の長野方星教授,山崎匠博士(現東北大学)に感 謝を申し上げます。

# 文 献

- 1) 国立国会図書館インターネット資料収集保存事業: https://warp.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/11293659/www.mext.g o.jp/b menu/houdou/29/03/attach/1383120.htm
- G. E. W. Bauer, E. Saitoh, and B. J. van Wees, *Nat. Mater.* 11, 391-399 (2012).
- S. R. Boona, R. C. Myers, and J. P. Heremans, *Energy Environ. Sci.* 7, 885-910 (2014).
- 4) K. Uchida, Proc. Jpn. Acad. Ser. B 97, 69-88 (2021).
- 5) H. Straube, J.-M. Wagner, and O. Breitenstein, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 052107 (2009).
- O. Breitenstein, W. Warta, and M. Langenkamp, Lock-in Thermography: Basics and Use for Evaluating Electronic Devices and Materials, Springer Science & Business Media (2010).
- O. Wid, J. Bauer, A. Müller, O. Breitenstein, S. S. P. Parkin, and G. Schmidt, *Sci. Rep.* 6, 28233 (2016).
- S. Daimon, R. Iguchi, T. Hioki, E. Saitoh, and K. Uchida, Nat. Commun. 7, 13754 (2016).
- Y. Hirayama, R. Iguchi, X.-F. Miao, K. Hono, and K. Uchida, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 163901 (2017).
- 10) T. Seki, R. Iguchi, K. Takanashi, and K. Uchida, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 152403 (2018).
- K. Uchida, S. Daimon, R. Iguchi, and E. Saitoh, *Nature* 558, 95-99 (2018).
- 12) R. Iguchi and K. Uchida, Jpn. J. Appl. Phys. 57, 0902B6 (2018).
- 13) T. Ishizaki and H. Nagano, *Infrared Phys. Technol.* 99, 248-256 (2019).
- 14) A. Miura, H. Sepehri-Amin, K. Masuda, H. Tsuchiura, Y. Miura, R. Iguchi, Y. Sakuraba, J. Shiomi, K. Hono, and K. Uchida, *Appl. Phys. Lett.* **115**, 222403 (2019).
- 15) R. Modak, R. Iguchi, H. Sepehri-Amin, A. Miura, and K. Uchida, *AIP Adv.* **10**, 065005 (2020).
- 16) C. A. Paddock and G. L. Eesley, J. Appl. Phys. 60, 285-290 (1986).
- 17) T. Favaloro, J. Suh, B. Vermeersch, K. Liu, Y. Gu, L.-Q. Chen, K. X. Wang, J. Wu, and A. Shakouri, *Nano Lett.* 14, 2394-2400 (2014).
- 18) T. Yamazaki, R. Iguchi, T. Ohkubo, H. Nagano, and K. Uchida, *Phys. Rev. B* 101, 020415(R) (2020).
- 19) D. G Cahill, W. K. Ford, K. E. Goodson, G. D. Mahan, A. Majumdar, H. J. Maris, R. Merlin, and S. R. Phillpot, *J. Appl. Phys.* **93**, 793-818 (2003).
- 20) D. G. Cahill, Rev. Sci. Instrum. 75, 5119-5122 (2004).
- 21) T. Yagi, K. Ohta, K. Kobayashi, N. Taketoshi, K. Hirose, and T. Baba, *Meas. Sci. Technol.* **22**, 024011 (2010).
- 22) B. Vermeersch, J. Christofferson, K. Maize, A. Shakouri, and G. De Mey, 26th IEEE SEMI-THERM Symposium, 228-234 (2010).

- 23) T. Oyake, M. Sakata, and J. Shiomi, *Appl. Phys. Lett.* 106, 073102 (2015).
- 24) D. G. Cahill, P. V. Braun, G. Chen, D. R. Clarke, S. Fan, K. E. Goodson, P. Keblinski, W. P. King, G. D. Mahan, A. Majumdar, H. J. Maris, S. R. Phillpot, E. Pop, and L. Shi, *Appl. Phys. Rev.* 1, 011305 (2014).
- 25) R. Anufriev, A. Ramiere, J. Maire, and M. Nomura, *Nat. Commun.* 8, 15505 (2017).
- 26) J. Maire, R. Anufriev, A. Ramiere, R. Yanagisawa, S. Volz, and M. Nomura, *Sci. Adv.* **3**, e1700027 (2017).
- 27) C. M. Rost, J. Braun, K. Ferri, L. Backman, A. Giri, E. J. Opila, J.-P. Maria, and P. E. Hopkins, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 151902 (2017).
- 28) T. Oyake, L. Feng, T. Shiga, M. Isogawa, Y. Nakamura, and J. Shiomi, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 045901 (2018).
- 29) H. Nakayama, B. Xu, S. Iwamoto, K. Yamamoto, R. Iguchi, A. Miura, T. Hirai, Y. Miura, Y. Sakuraba, J. Shiomi, and K. Uchida, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 042409 (2021).
- 30) A. J. Schmidt, R. Cheaito, and M. Chiesa, *Rev. Sci. Instrum.* 80, 094901 (2009).
- 31) K. T. Regner, S. Majumdar, and J. A. Malen, *Rev. Sci. Instrum.* 84, 064901 (2013).
- 32) J. Sinova, S. O. Valenzuela, J. Wunderlich, C. H. Back, and T. Jungwirth, *Rev. Mod. Phys.* 87, 1213-1259 (2015).
- 33) P. W. Bridgman, Phys. Rev. 24, 644-651 (1924).
- 34) E. H. Hall, Phys. Rev. 26, 820-840 (1925).
- 35) J. Flipse, F. K. Dejene, D. Wagenaar, G. E. W. Bauer, J. B. Youssef, and B. J. van Wees, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 027601 (2014).
- 36) K. Uchida, M. Sasaki, Y. Sakuraba, R. Iguchi, S. Daimon, E. Saitoh, and M. Goto, *Sci. Rep.* 8, 16067 (2018).
- 37) H. Masuda, R. Modak, T. Seki, K. Uchida, Y.-C. Lau, Y. Sakuraba, R. Iguchi, and K. Takanashi, *Commun. Mater.* 1, 75 (2020).
- 38) R. Modak, K. Goto, S. Ueda, Y. Miura, K. Uchida, and Y. Sakuraba, *APL Mater.* 9, 031105 (2021).
- 39) Y. Iwasaki, I. Takeuchi, V. Stanev, A. G. Kusne, M. Ishida, A. Kirihara, K. Ihara, R. Sawada, K. Terashima, H. Someya, K. Uchida, E. Saitoh, and S. Yorozu, *Sci. Rep.* 9, 2751 (2019).
- 40) K. Uchida, M. Murata, A. Miura, and R. Iguchi, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 106601 (2020).
- 41) S. Ota, K. Uchida, R. Iguchi, P. V. Thach, H. Awano, and D. Chiba, *Sci. Rep.* 9, 13197 (2019).
- 42) H. Nakayama, T. Hirai, J. Uzuhashi, R. Iguchi, T. Ohkubo, T. Koyama, D. Chiba, and K. Uchida, *Appl. Phys. Express* 12, 123003 (2019).
- 43) J. Wang, Y. K. Takahashi, and K. Uchida, *Nat. Commun.* 11, 2 (2020).
- 44) T. Hirai, H. Sepehri-Amin, K. Hasegawa, T. Koyama, R. Iguchi, T. Ohkubo, D. Chiba, and K. Uchida, *Appl. Phys. Lett.* 118, 022403 (2021).
- 45) Y. Kainuma, R. Iguchi, D. Prananto, V. I. Vasyuchka, B. Hillebrands, T. An, and K. Uchida, *Appl. Phys. Lett.* 118, 022404 (2021).



内田 健一 Ken-ichi Uchida E-mail: UCHIDA.Kenichi@nims.go.jp



井口 亮 Ryo Iguchi E-mail: IGUCHI.Ryo@nims.go.jp