

同時発表：
筑波研究学園都市記者会（資料配布）
文部科学記者会（資料配布）
科学記者会（資料配布）
名古屋教育記者会（資料配布）



ありふれた軟磁性合金が3分の熱処理で次世代熱電変換材料に変身

～磁性体を用いた横型熱電変換のための材料開発に新指針～

配布日時：2024年3月28日14時

NIMS（国立研究開発法人物質・材料研究機構）

国立大学法人東海国立大学機構 名古屋大学

国立研究開発法人科学技術振興機構（JST）

概要

1. NIMS と名古屋大学からなる研究チームは、トランスやモーター用の軟磁性材料として広く利用されている鉄基アモルファス合金が、短時間の熱処理だけで、電流と熱流をそれぞれ直交する方向に変換できる“横型”熱電変換材料になることを実証しました。本成果は、横型熱電変換材料の開発において微細組織のエンジニアリングが重要であることを示した初めての例であり、磁性体を用いた環境発電・熱マネジメント技術の実現に向けた新たな材料設計指針を提供するものです。

2. 磁性材料における横型熱電効果を用いれば、電流と熱流がそれぞれ平行な方向に変換される縦型熱電効果と比較して、熱電変換素子の構造が簡略化されるため、素子の汎用性・耐久性の向上や低コスト化に繋がると期待されています。横型熱電変換のための磁性材料開発においては、電子構造に着目した新物質探索が主流であり、材料中の微細組織に着目した研究は行われていませんでした。

3. 今回、研究チームは、鉄基アモルファス合金を3分間熱処理するだけで、材料の平均組成を変えることなく、横型熱電効果の一つである異常ネルンスト効果の性能（異常ネルンスト係数）が大幅に向上することを実証しました。最適温度で熱処理した際に得られた異常ネルンスト係数は、これまで知られていた磁性アモルファス合金の中で最高値を示し、この性能向上には合金中に生じたナノサイズの銅析出物が重要な役割を担っていることを明らかにしました（下図）。この結果は、異常ネルンスト係数の向上において、材料の電子構造や組成だけでなく、微細組織の設計・制御も重要であることを示すものです。

4. 今回開発した磁性材料は容易に量産化・大面積化が可能で、自在に曲げることもできます。今後、微細組織制御によりさらに異常ネルンスト係数が大きい磁性材料を開発することで、電子デバイスの省エネルギー化に資する発電技術や熱センシング技術への応用展開を目指していきます。

5. 本研究は、NIMS 磁性・スピントロニクス材料研究センターの Ravi Gautam ポスドク研究員、平井孝昌研究員、大久保忠勝副センター長、内田健一上席グループリーダー、世伯理那仁グループリーダー、名古屋大学の Abdulkareem Alasli 特任助教、長野方星教授によって、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、課題番号：JPMJER2201）の一環として行われました。

6. 本研究成果は、日本時間2024年3月27日19時に、Nature Communications 誌にオンライン掲載されました。

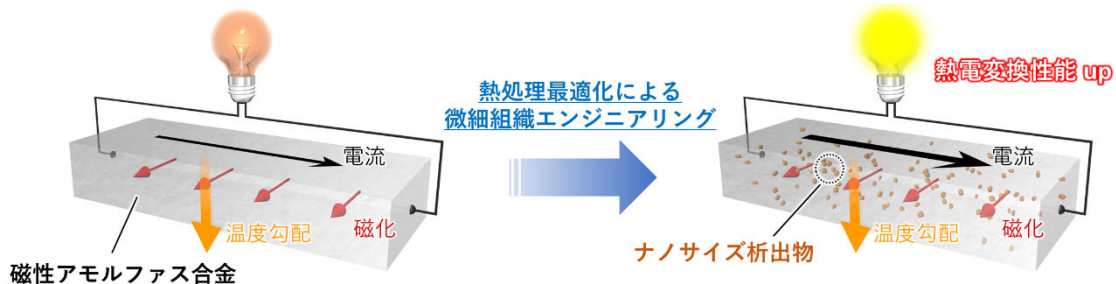


図 微細組織のエンジニアリングによる異常ネルンスト効果の向上

* 物質・材料研究機構は、その略称を NIMS（National Institute for Materials Science）に統一しております。

研究の背景

鉄基アモルファス⁽¹⁾合金は優れた磁気特性を示し、トランスやモーターの電力損失の低減などに貢献している材料です。この合金は安価な元素のみから構成され、量産化・大面積化可能であり、自在に曲げ加工できるほどの高いフレキシビリティを有することから広く実用化されています。商品化されている鉄基アモルファス合金は均質な材料ではなく、アモルファス母相中にナノスケールで分散した析出物によって優れた磁気特性が得られることが知られています。実用材料開発においてナノスケールの微細組織エンジニアリングが重要であることを示す重要な例であると言えます。

近年、磁性材料は熱電変換のための候補材料としても注目を集めています。特に、磁性材料において磁化と垂直な方向に温度差を付けた際に、磁化と温度勾配の両方に直交した方向に電流が発生する「異常ネルンスト効果」に関する研究が活発化しており、その微視的メカニズムの解明を目指した物性物理研究のみならず、熱流センサーなどへの応用を目指した材料・デバイス研究も進展しています。異常ネルンスト効果は横型熱電変換⁽²⁾を可能にし、そのデバイスはシンプルな構造と高い汎用性を有します。しかしながら、異常ネルンスト効果による熱電変換性能（異常ネルンスト係数⁽³⁾）が非常に小さいため、実用化には大きな壁が存在しています。異常ネルンスト係数向上のための磁性材料開発においては、電子構造に着目した新物質設計や組成依存性の検証などが主流であり、材料中の微細組織に着目した研究は進められていませんでした。また、異常ネルンスト効果に関する研究は、トランスやモーター用の軟磁性材料の開発とは全く独立に進められてきました。

研究内容と成果

今回、NIMS と名古屋大学からなる研究チームは、85%程度が安価な鉄から構成される磁性アモルファス合金（平均組成 $\text{Fe}_{84.7}\text{Si}_{2.8}\text{B}_{3.8}\text{P}_{7.8}\text{Cu}_{0.7}\text{C}_{0.2}$ ）を液体急冷法⁽⁴⁾により作製し、これを3分間熱処理するだけで、材料の平均組成を変えることなく、異常ネルンスト係数が大幅に向上することを実証しました。図1aは異常ネルンスト係数の熱処理温度依存性を示しています。380°Cで合金を加熱することにより、異常ネルンスト係数が大幅に増大したことがわかります。この振る舞いの起源を探るために、三次元アトムプローブ法⁽⁵⁾により様々な温度で熱処理した合金中の原子位置と元素種を同定しました。その結果、熱処理前は均質なアモルファス合金であったにもかかわらず（図1b“熱処理前”参照）、380°Cで加熱した場合にはナノスケールの銅析出物が生じており（図1b“380°C”参照）、これが異常ネルンスト効果の増大に寄与したと考えられます。

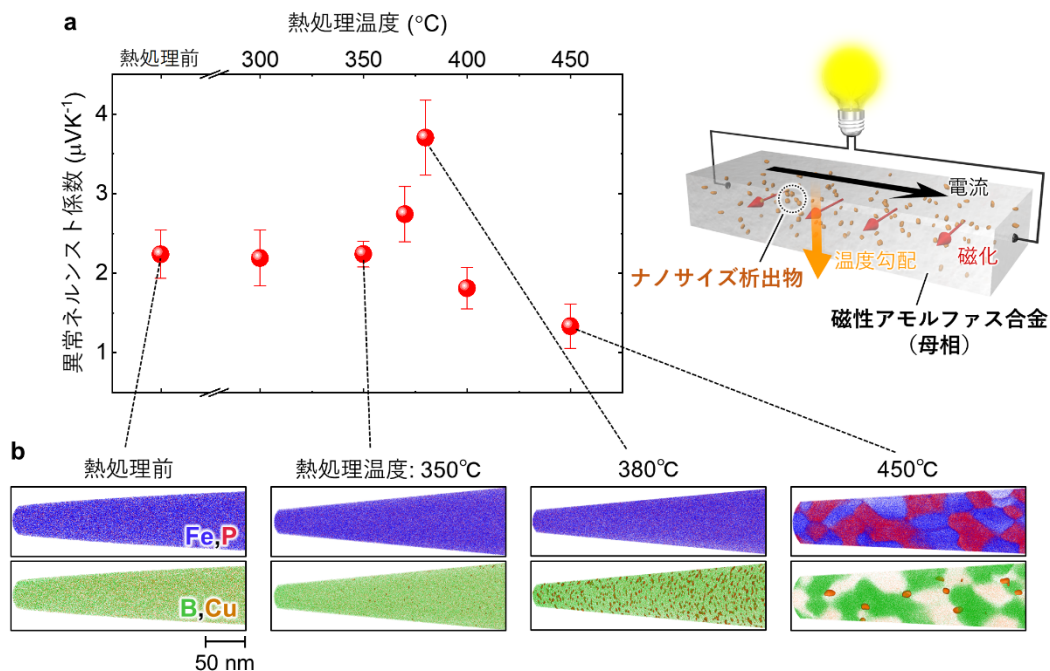


図1 鉄基アモルファス合金における異常ネルンスト係数の熱処理温度依存性 (a) と三次元アトムプローブ法による元素分布の観察結果 (b) (青：鉄、赤：リン、緑：ホウ素、オレンジ：銅)

今回作製した鉄基アモルファス合金は市販されている軟磁性合金と同様に非常に高いフレキシビリティを有しており、自在に曲げることができます(図2)。最大の異常ネルンスト係数を示した試料も、銅析出物が生じていても母相がアモルファスのままであるため、自在に曲げ加工することができます。一方でさらに熱処理温度を上げると、結晶化した鉄化合物が生じ、フレキシビリティが失われると共に異常ネルンスト係数も減少することが明らかになりました(図1aおよび図1b“450°C”参照)。

異常ネルンスト効果は様々な磁性アモルファス合金において評価されてきました。図3は、今回用いた鉄基アモルファス合金と、これまでに報告されてきた磁性アモルファス合金について、異常ネルンスト係数および異常ネルンスト効果によるパワーファクター⁽⁶⁾を比較した結果です。最適温度(380°C)で熱処理した試料における異常ネルンスト係数・パワーファクターは、磁性アモルファス合金の中で最高値であることがわかります。これまで大きな異常ネルンスト効果は、高価な貴金属を含む磁性体やトポロジカル物質⁽⁷⁾と呼ばれる特殊な電子構造を有する磁性体においてのみ生じると考えられていました。しかし今回の成果により、安価な元素のみで構成されているアモルファス合金も微細組織の設計・最適化により優れた異常ネルンスト材料になり得ることが示されました。

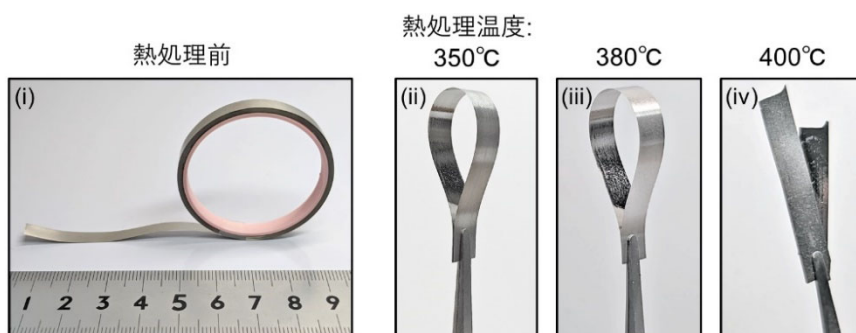


図2 今回作製した鉄基アモルファス合金のフレキシビリティ

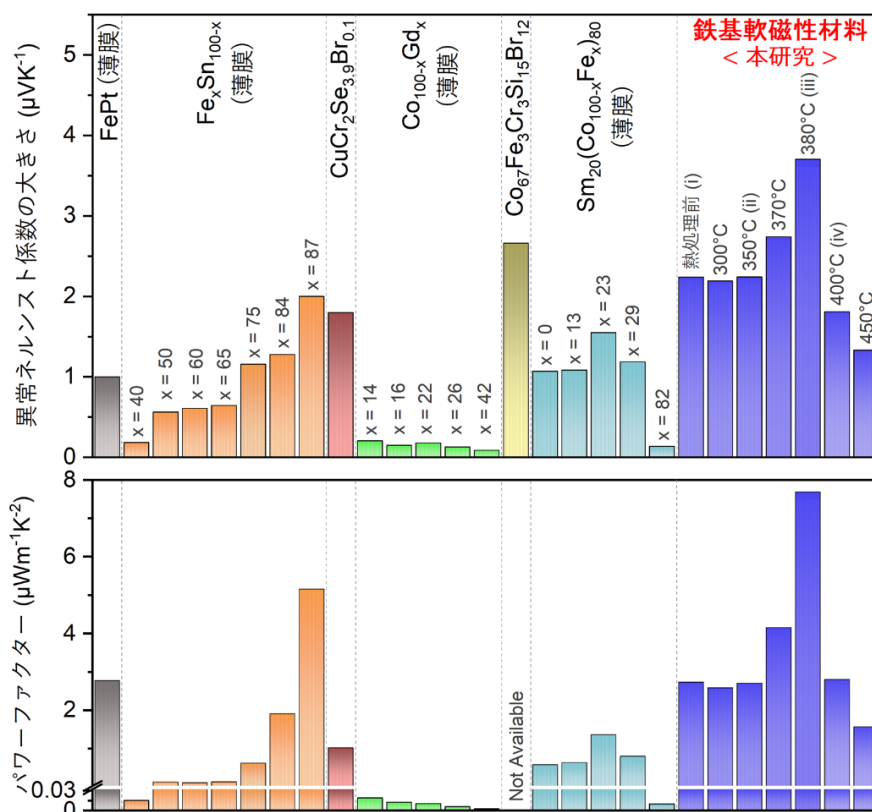


図3 様々な磁性アモルファス合金における異常ネルンスト係数とパワーファクターの比較
(i)-(iv)は図2の各写真に対応)

今後の展開

今回の成果は、従来の電子構造に着目した横型熱電変換材料の探索・開発とは一線を画しており、微細組織エンジニアリングに立脚した新たな材料設計指針を提供するものです。広く実用化されている軟磁性合金を、短時間の熱処理だけで大きな異常ネルンスト係数を示す横型熱電変換材料に変身させることに成功した意義は大きく、これまで異なる用途で用いられてきた様々な磁性材料が微細組織エンジニアリングにより横型熱電変換に利用できる可能性が生まれました。磁性アモルファス合金は量産化・大面積化が容易であり、フレキシブルで容易に曲げ加工可能であるため、様々な熱源に対して適用可能です。今回確立した材料設計指針に基づきさらに異常ネルンスト係数を向上させることができれば、汎用性の高いエネルギーハーベスティング素子、熱センサー素子としての活用が期待できます。

掲載論文

題目： Creation of flexible spin-caloritronic material with giant transverse thermoelectric conversion by nanostructure engineering

著者： Ravi Gautam, Takamasa Hirai, Abdulkareem Alasli, Hosei Nagano, Tadakatsu Ohkubo, Ken-ichi Uchida, Hossein Sepehri-Amin

雑誌： Nature Communications (DOI : 10.1038/s41467-024-46475-6)

掲載日時： 2024年3月27日

用語解説

- (1) アモルファス： 原子が規則正しく並んだ結晶とは異なり、原子が不規則に配列した物質(=非晶質)。アモルファス材料の代表例としてはガラスが挙げられますが、特定の合金も溶融した状態から急冷することによってアモルファスにすることができます。
- (2) 横型熱電変換： 電流と熱流が直交した方向に変換される熱電変換現象・技術の総称。熱電発電技術の駆動原理として広く研究されているゼーベック効果は熱流に沿った方向に電流が生成される縦型熱電効果ですが、横型熱電効果の一つである異常ネルンスト効果の場合は熱流と磁化の両方に直交した方向に電流が生成されます。同じ温度差から取り出すことができる電力量はゼーベック効果の方がはるかに大きいのですが、 p 型導体と n 型導体のペアを多数直列接続した複雑な素子構造が必要となります。異常ネルンスト効果を用いればシンプルな板状・シート状の材料そのものが熱電変換素子として機能するため、素子の汎用性・耐久性の向上や低コスト化に繋がると期待されています。異常ネルンスト効果によって生成できる電力量は現状では小さいため、性能向上に向けた物理・材料研究が精力的に進められています。異常ネルンスト効果以外にも様々な横型熱電変換原理が知られています。
- (3) 異常ネルンスト係数： 異常ネルンスト効果による熱電能。磁性体に与えた温度勾配と、それと直交する方向に生成された電場の比例係数であり、大きな異常ネルンスト係数を有する材料ほど同じ温度差から大きな電流・電圧を生成することができます。
- (4) 液体急冷法： 加熱して液体状態にした材料を急速に冷却固化させる方法。今回の実験では、溶解した合金を高速回転する円盤状の銅ロールに吹き付けることで急冷固化させる単ロール液体急冷法により、リボン状のアモルファス合金を作製しました。
- (5) 三次元アトムプローブ法： 針状試料の先端からイオン化される原子の質量と位置を同時計測することにより、原子分布を三次元的に可視化する手法。材料中のナノスケールの析出物や元素の不均一な分布を精度良く解析することができます。
- (6) パワーファクター： 熱電効果によって得られる出力電力の大きさを示すパラメータ。異常ネルンスト効果のパワーファクターは、異常ネルンスト係数の2乗に電気伝導率を乗算することによって得られます。
- (7) トポロジカル物質： トポロジーによって分類される非自明な電子のバンド構造を有する物質の総称。トポロジカル物質の一種である Co_2MnGa 合金などが大きな異常ネルンスト効果を示すことが知られています。