

# アモルファス TbFeCo 磁性薄膜における熱電テンソルの組成依存性

小峰啓史, 安藤亮\* (茨城大, \*茨城高専)

Composition dependence of thermoelectric tensor in amorphous TbFeCo magnetic thin films  
Takashi Komine, Ryo Ando\* (Ibaraki Univ., \*NIT, Ibaraki College.)

## 1 はじめに

近年、磁性材料における熱とスピンの相互作用が着目され、異常ネルンスト効果が活発に議論されている<sup>1)</sup>。我々は、これまでに希土類-遷移金属アモルファス合金である TbFeCo 垂直磁気異方性薄膜の輸送特性について研究を行い、異常ネルンスト効果と異常ホール効果が補償組成を挟んで同様に符号反転することを明らかにした<sup>2)</sup>。しかし、異常ネルンスト効果の大きさを決定する熱電テンソルの組成依存性は十分に調べられていない。本研究では、Tb 量を変えて作製した TbFeCo 垂直磁気異方性薄膜の熱電特性に寄与する各輸送特性から熱電テンソル  $\underline{\alpha}$  を算出し、熱電テンソルの組成依存性を報告する。

## 2 実験方法

RF マグネトロンスパッタリング装置を用いて、ガラス基板上に AlN(25nm)/Tb-Fe-Co(50nm)/AlN(5nm) を積層することで試料を作製した。輸送特性に対する膜組成の影響を正しく評価するために、電極を磁性膜に対して点接触するように配置した<sup>3)</sup>。膜面垂直方向に磁場を印加しながら、素子両端に 0 から 10K の温度差を付与し、温度差方向に生じるゼーベック電圧、および、磁場印加方向と温度差方向に直交する方向に生じる異常ネルンスト電圧を測定することで、温度差に対する傾きから、ゼーベック係数  $S_{xx}$  と異常ネルンスト効果に相当する Off-diagonal thermopower(ODT)  $S_{yx}$  を算出した。また、同じ素子において電気抵抗率  $\rho_{xx}$ 、異常ホール抵抗率  $\rho_{yx}$  を評価した。

## 3 結果と考察

ゼーベック係数  $S_{xx}$ 、及び、ODT  $S_{yx}$  の Tb 量依存性を Fig.1 に示す。ゼーベック係数  $S_{xx}$  は、TM-rich に向かうにつれて単調に増加する。一方、ODT  $S_{yx}$  は補償組成を挟んで符号反転し、この符号が異常ホール係数と一致することは以前の報告<sup>2)</sup>と同様である。

熱電現象を含む一般化されたオーム則より、ゼーベック係数  $S_{xx}$ 、ODT  $S_{yx}$  は、抵抗率テンソル  $\underline{\rho}$ 、熱電テンソル  $\underline{\alpha}$  を用いて以下のように表すことができる。

$$S_{xx} = \rho_{xx}\alpha_{xx} + \rho_{xy}\alpha_{yx},$$

$$S_{yx} = \rho_{yx}\alpha_{xx} + \rho_{xx}\alpha_{yx}$$

熱電現象を記述する輸送係数としては、熱電テンソル  $\underline{\alpha}$  が本質的であると考え、測定した物性値を用いることで、熱電テンソル  $\underline{\alpha}$  を算出した。測定値を元に算出した熱電テンソルの対角成分  $|\alpha_{xx}|$ 、非対角成分  $|\alpha_{yx}|$  の Tb 量依存性を調べた結果を Fig.2 に示す。Tb 量の減少に伴い、 $|\alpha_{xx}|$ 、 $|\alpha_{yx}|$  が単調に増加することがわかる。伝導度のべき乗則  $\sigma_{yx} = \lambda\sigma_{xx}^{2-n}$  を仮定して、Mott 公式と比較すると、Tb 量減少に伴い、指数  $n$  が  $n = 1$  から  $n = 0$  に推移することが明らかとなった。

謝辞 本研究の一部は、科学研究費補助金 (No. 20H02196, 22H01805, 18KK0132) の支援により行われました。ここに深謝します。

## References

- 1) M. Mizuguchi and S. Nakatsuji, *Sci. Tech. Adv. Mater.*, **20**, 262, (2019).
- 2) R. Ando, T. Komine, and Y. Hasegawa, *J. Elec. Mater.* **8**, 3570-3575 (2016).
- 3) R. Ando, T. Komine, *AIP Adv.* **8**, 056326 (2018).

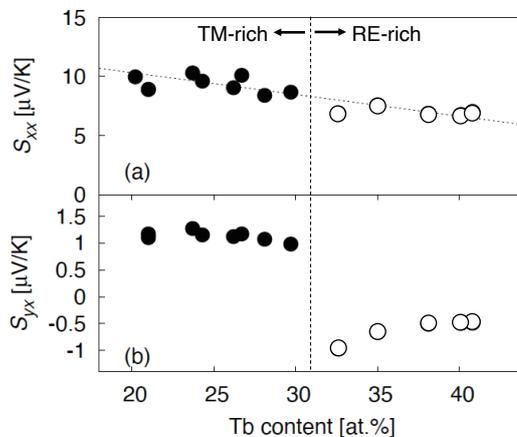


Fig. 1 Composition dependence of (a) Seebeck coefficient, and (b) off-diagonal thermopower (ODT) in Tb-Fe-Co thin films.

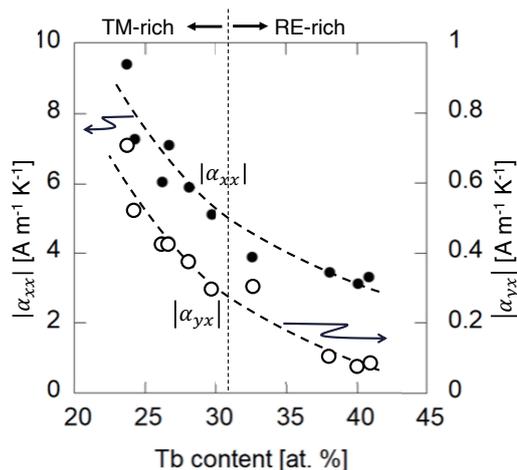


Fig. 2 Composition dependence of thermoelectric tensor in Tb-Fe-Co thin films.

# GdFeCo フェリ磁性多層薄膜における異常ネルンスト電圧

小林祐希<sup>1</sup>, 北澤楓太<sup>1</sup>, 笠谷雄一<sup>2</sup>, 吉川大貴<sup>2</sup>, 塚本新<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> 日本大学大学院理工学研究科, <sup>2</sup> 日本大学理工学部)

Anomalous Nernst voltage in GdFeCo ferrimagnetic multilayer thin film

Yuki Kobayashi<sup>1</sup>, Fuuta Kitazawa<sup>1</sup>, Yuichi Kasatani<sup>2</sup>, Hiroki Yoshikawa<sup>2</sup>, Arata Tsukamoto<sup>2</sup>

(<sup>1</sup> Graduate school of Science and Technology, Nihon Univ.,

<sup>2</sup> College of Science and Technology, Nihon Univ.)

## はじめに

温度勾配と磁化に共に直交する方向に電界が生じる異常ネルンスト効果を示す金属強磁性体(FM)を用いた[FM/FM]<sub>n</sub>積層構造では、隣接磁性金属層間の磁気交換結合の有無による異常ネルンスト電圧の変調など単層膜とは異なる電気輸送現象の発現が期待される。金属層の電氣的導通による異常ネルンスト効果に起因する短絡電流の生成も考えられる。我々はこれまでに、GdFe フェリ磁性薄膜における異常ネルンスト係数  $S_{ANE}$  の符号反転を含む組成依存性や電気輸送現象に関する物理定数との相関につき報告してきた<sup>1)</sup>。本報告では、磁性金属の積層構造において生じる異常ネルンスト電圧の検出を目的として、GdFeCo を積層し横電圧検出端子部で上下層を短絡したフェリ磁性多層薄膜における検討を行った。

## 実験方法

GdFeCo フェリ磁性単層薄膜と GdFeCo フェリ磁性多層薄膜における異常ネルンスト電圧につき比較検討を行う。多層膜は磁性層(A層とB層)の保磁力が異なり、かつ垂直磁化膜となるように設計した。また磁気交換結合の分断を目的に5 nm厚のSiN中間層を挿入した。単層膜は多層膜の磁性層(A層)の合金組成と等しく、かつ総磁性層膜厚が等しくなるように設計した。このような単層膜: SiN(60 nm) / Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68</sub>Co<sub>10</sub>(20 nm) / SiN(5 nm) / Si sub., および二層膜: SiN(60 nm) / A層: Gd<sub>22</sub>Fe<sub>68</sub>Co<sub>10</sub>(10 nm) / SiN(5 nm) / B層: Gd<sub>27</sub>Fe<sub>64</sub>Co<sub>9</sub>(10 nm) / SiN(5 nm) / Si sub. をマグネトロンスパッタ法で作成した。これらの試料に対して膜面垂直(z)方向に外部磁界  $H$  を印加し、膜面内(x)方向に温度勾配  $\nabla_x T$  を与え、電圧検出端子部で上下層を短絡し膜面内(y)方向の電圧  $V_{yx}$  を測定した。

## 実験結果と考察

温度勾配が無いとき、および-20 K/cmのときの  $V_{yx}$  の外部磁界依存性を Fig. 1 に示す。単層膜・二層膜ともに  $\nabla_x T = -20$  K/cm で  $V_{yx}$  の外部磁界に対するヒステリシス曲線が測定された。単層膜は2種の値に、二層膜は4種の値( $V_a, V_b, V_c, V_d$ )に  $V_{yx}$  が離散化した。温度勾配が無いとき  $V_{yx}$  は外部磁界に依らず一定であることから、 $V_{yx}$  は確かに温度勾配に起因する電圧であることを確認した。本試料系と同様の磁性層と SiN 中間層を有する GdFeCo フェリ磁性多層薄膜の磁気光学応答の外部磁界依存性も4値に離散化することが報告されている<sup>2)</sup>。二層膜試料を構成する各層はそれぞれ垂直磁化膜であり、保磁力の異なる上下層の組み合わせから4状態が存在し外部磁界の掃引により状態遷移するが、各磁化状態に対応し  $V_{yx}$  が4値を取ることが明らかとなった。

**謝辞** 本研究の一部は、JSPS 科研費(21K04184)の支援を受けたものである。

## 参考文献

- 1) Y. Kobayashi *et al.*, *T. Magn. Soc. Jpn. (Special Issues)*, **7**, 34-39 (2023).
- 2) S. Terashita *et al.*, 第39回 日本磁気学会学術講演会概要集, 10pD-11 (2015).

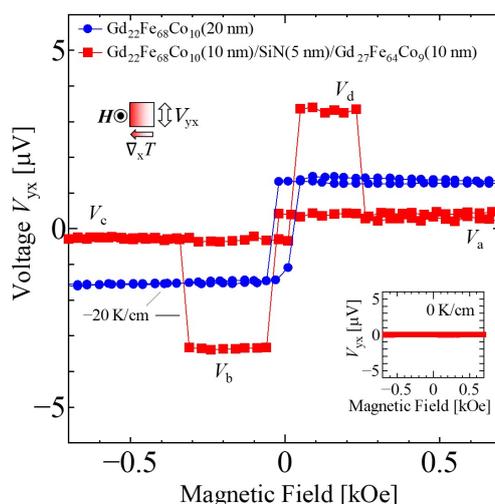


Fig.1 External magnetic field dependence of voltage  $V_{yx}$  of GdFeCo single/multi layer thin films.

## 巨大異常ネルンスト効果を示す Fe<sub>3</sub>Ga 薄膜のスピンド分極バンド構造の観測

大和田清貴、中西楓恋、黒田健太、宮本幸治、奥田太一、  
周偉男\*、磯上慎二\*、増田啓介\*、桜庭裕弥\*、木村昭夫  
(広島大、\*物材機構)

Unraveling spin-polarized band dispersions of Fe<sub>3</sub>Ga thin films exhibiting a giant anomalous Nernst effect

K. Ohwada, K. Nakanishi, K. Kuroda, K. Miyamoto, T. Okuda,  
W. Zhou\*, S. Isogami\*, K. Masuda\*, Y. Sakuraba\* and A. Kimura  
(Hiroshima Univ., \*NIMS)

### はじめに

熱電変換材料は、排熱エネルギーから直接電気エネルギーへ変換が可能であることから、環境問題を解決するキーマテリアルの一つである。なかでも磁性体で発現する異常ネルンスト効果(ANE)は、熱勾配に対し垂直に起電力を発生するため、柔軟なデバイス応用が可能であるとして大きな注目を浴びている[1]。一方で、ANEで発生できる起電力は1Kあたり0.1μVオーダーであったが、最近Fe<sub>0.68</sub>Ga<sub>0.32</sub>薄膜において起電力が純Feに比べ2桁大きな2.4μV/Kに達することが報告された[2]。更に規則化したD0<sub>3</sub>相Fe<sub>3</sub>Gaでは起電力が4μV/Kに達し、これはバンド構造内に発生する仮想磁場(ベリー曲率)に起因する内因性効果が原因であると示唆されている[3]。この巨大ANEが内因性効果によって引き起こされているかどうかを確かめるためには、まずFe<sub>3</sub>Gaのバンド構造にアプローチする必要があるが、これまでは第一原理計算を主体とした議論が行われてきた。一方、ベリー曲率をもとにした横熱電伝導度 $\alpha_{xy}$ はフェルミ準位( $E_F$ )の位置に敏感に変化し、数十meV程度のエネルギーシフトで符号まで変わってしまうことがある。このことから、内因性機構の有無を判定するには、バンド構造を実験的に可視化し実際の $E_F$ の位置を把握した上で、 $\alpha_{xy}$ との対応関係を明らかにする必要がある。角度分解光電子分光(ARPES)は物質のバンド構造を直接可視化できる実験手法としてよく知られるが、その高い表面感性から、へき開が可能な二次元系に適用が限定されていた。一方、Fe<sub>3</sub>Gaはその高い3次元性のためへき開が困難で、これまでARPESを用いた実験は皆無であった。さらに、バルク試料の場合残留磁化が残らない場合が多く、スピンド分解ARPES(Spin-ARPES)実験には適さない。

### 実験手法と結果

そこで本研究では、物質・材料研究機構にて超高真空マグネトロンスパッタリング法を用いてD0<sub>3</sub>相Fe<sub>3</sub>Ga薄膜を成膜し、超高真空スーツケースを用いて広島大学HiSORに移送することにより、試料を大気にさらすことなく(Spin-)ARPES実験を行った。入射光のエネルギー( $h\nu$ )を60-100eVの範囲で変化させARPES測定を行うことにより、面直波数と $h\nu$ との関係を見出した。Fig.1は $h\nu=60$ eV( $p$ 偏光)でのARPESイメージである。 $E_F$ を横切る特徴的なバンド $\alpha$ と、 $E_F$ から測って約1.2eV下から $E_F$ に向かって分散する構造 $\beta$ などいくつかのバンド分散が観測された。いくつかの面内波数( $k_{\parallel}$ )についてスピンド分解エネルギー分布曲線を観測したところ、 $\alpha$ と $\beta$ は少数スピンドバンドと帰属された。さらに第一原理計算との比較から、実際の $E_F$ は計算値に比べ+30meVのずれがあることもわかった。計算で得られたベリー曲率をもとに久保公式から得られた $\alpha_{xy}$ が、ちょうど実験で得られた $E_F$ で増大することがわかった。その $\alpha_{xy}$ の増大はブリルアンゾーンのL点を囲む領域に現れる大きなベリー曲率に起因することが明らかとなった。

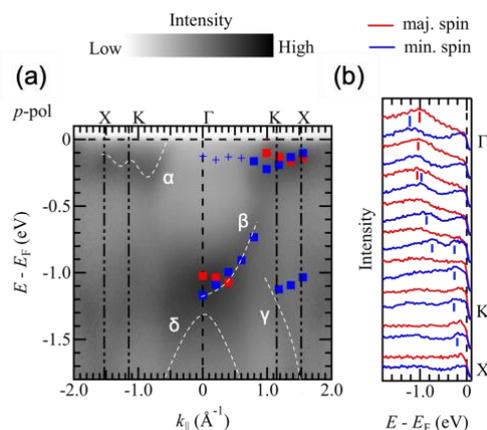


Fig.1: (a) ARPES image and (b) spin-resolved energy distribution curves at  $h\nu=60$  eV along  $\Gamma$ KX line measured with  $p$ -polarized light.

### 参考文献

- 1) K. Uchida, W. Zhou, and Y. Sakuraba, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 140504 (2021).
- 2) H. Nakayama *et al.*, *Phys. Rev. Mater.* **3**, 114412 (2019).
- 3) A. Sakai *et al.*, *Nature* **581**, 53 (2020).

## Ge をドーブした Co 薄膜における異常ネルンスト効果

辻本卓哉<sup>1</sup>, 藤田武志<sup>2</sup>, 宮町俊生<sup>1</sup>, 上田茂典<sup>3</sup>, 水口将輝<sup>1</sup>

(名古屋大学<sup>1</sup>, 高知工科大学<sup>2</sup>, 物質・材料研究機構<sup>3</sup>)

### Anomalous Nernst effect in Ge-doped Co thin films

Tsujimoto Takuya<sup>1</sup>, Takeshi Fujita<sup>2</sup>, Toshio Miyamachi<sup>1</sup>, Shigenori Ueda<sup>3</sup>,

Masaki Mizuguchi<sup>1</sup>

(Nagoya Univ.<sup>1</sup>, Kochi Univ. Tech<sup>2</sup>, NIMS<sup>3</sup>)

**はじめに** 新規熱電変換デバイスへの応用として異常ネルンスト効果 (anomalous Nernst effect: ANE) に注目が集まっている<sup>[1]</sup>。一般的に ANE は温度勾配と磁化の外積方向に電圧が生じるため、従来のゼーベック効果よりも自由度の高いデバイス設計が可能となる。一方で、ANE はその変換効率の低さが問題となっており、一般的な強磁性体である Fe や Co でのネルンスト係数 ( $S_{xy}$ ) は  $0.3 \mu\text{V/K}$  程度である。熱電変換などのデバイス化に向けてはおよそ  $20 \mu\text{V/K}$  以上の変換効率が必要とされており、近年では  $S_{xy}$  の大きな材料の探索や、ナノ構造の導入による ANE の増大などの研究が盛んに行われている。これまでに Co に MgO をドーブした薄膜において、ANE の増大を報告した<sup>[2]</sup>。そこで本研究では、ドーブする材料を絶縁体から半導体に変えた薄膜における熱磁気特性の調査を目的とし、Co に Ge をドーブした薄膜を作製してその ANE を調べた。

**実験方法** MgO(001) 基板上にマグネトロンスパッタにより組成の異なる  $\text{Co}_{1-x}\text{Ge}_x$  薄膜を室温で 5 種類作製した ( $x = 0, 0.13, 0.17, 0.24, 0.35$ )。ANE を含む磁気輸送特性を物理特性測定システム (PPMS) を用いて測定した。また、試料の電子状態を SPring-8 に設置された硬 X 線光電子分光測定装置により測定した。

**実験結果** 図 1 に示すように、Ge の添加量の増加に伴い ANE は増大し、Ge 濃度  $x = 0.24$  で最大値を示した。続いて、成膜後のアニール効果も調べた。 $x = 0.24$  の試料を  $200^\circ\text{C}$  および  $400^\circ\text{C}$  でアニールしたところ、ANE は増大し、 $400^\circ\text{C}$  でアニールした試料において  $1.1 \mu\text{V/K}$  のネルンスト係数を確認した。硬 X 線光電子分光測定の結果より、試料のアニールにより、フェルミレベル近傍の電子状態が変調されたことがわかった。この電子状態の変化がネルンスト係数の増大に寄与している可能性が示唆された。

#### 参考文献

- [1] H. Sharma, M. Mizuguchi *et al.*, *Sci. Rep.*, **13**, 4425 (2023).  
 [2] P. Sheng, M. Mizuguchi *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **116**, 142403 (2020).

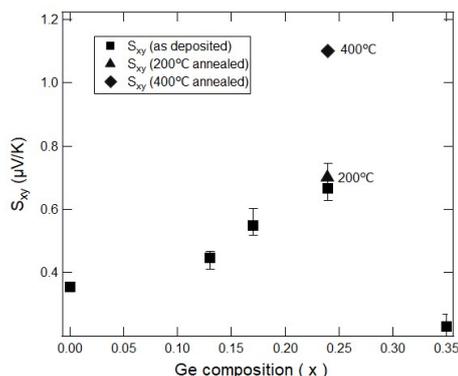


Fig.1. Ge composition and annealing temperature dependence of  $S_{xy}$  for Ge-doped Co thin films.