

不規則構造 Fe-Ga 合金薄膜の単結晶及び多結晶構造における異常ホール効果の起源解析

中川 碧¹, 遠山 諒², Simalaotao Kodchakorn^{3,2}, 増田 啓介²,
三浦 良雄^{4,2}, 首藤 浩文², 桜庭 裕弥^{2,3}, 神田 哲典¹
(大島商船高専¹, NIMS², 筑波大³, 京工繊大⁴)

Analysis of Origin of Anomalous Hall Effect in

Single Crystal and Polycrystalline of Fe-Ga Disordered Alloys Thin Films

A.Nakagawa¹, R.Toyama², K.Simalaotao^{3,2}, K.Masuda², Y.Miura^{4,2}, H.Suto², Y.Sakuraba^{2,3}, T.Koda¹
(NIT, Oshima Col.¹, NIMS², Tsukuba Univ.³, Kyoto Inst. of Tech.⁴)

はじめに

近年, Society 5.0 の実現が進む中, 環境やインフラ等の様々な情報を高速・高感度かつ低消費電力で取得する革新的なセンサ実現の需要が高まっている. 省エネルギー社会の実現に期待される熱流センサは, 熱エネルギーの流れを直接的に検知することが可能だが, 汎用的な熱流センサは未だに実現されていない. 磁性体で発生する異常ネルンスト効果 (ANE) は熱流と磁化に垂直な方向に電場が生じる熱電効果である. ANE モジュールはシンプルな面内接続構造を実現できるため, 耐久性, フレキシビリティに優れる¹⁾. しかし, 材料単体で得られる熱起電力は低く, 高い熱起電力を示す磁性材料の探索が進められている. 不規則構造 Fe-Ga 合金薄膜の ANE は高い熱起電力を示すことが報告されているが, その起源はまだ明確には解明されていない²⁾. 本研究は, 系統的に組成を変化させた Fe_{100-x}Ga_x 合金薄膜の単結晶及び多結晶薄膜を作製し, ANE と大きな相関がある異常ホール効果 (AHE) について検討した.

実験方法

Fe_{100-x}Ga_x の単結晶及び多結晶薄膜は MgO(100)単結晶基板, 熱酸化膜付き Si 基板上にコスパッタ法でそれぞれ作製された. 組成分析, 結晶構造解析, 磁化特性はそれぞれ蛍光 X 線分析装置, X 線回折装置, 振動試料型磁力計で評価された. 更に物理特性測定装置により, 電気抵抗率 ρ_{xx} 及びホール抵抗率 ρ_{yx} を 15 K から 300 K の間で測定し, AHE の輸送特性についてスケーリング解析 ($\rho_{yx}^A = a\rho_{xx0} + b\rho_{xx}^2$) を行った³⁾. ここで ρ_{xx0} は残留抵抗率を表している. ρ_{yx}^A は正常ホール効果を分離するために, 飽和磁場より高磁場側における ρ_{yx} の磁場依存性を線形近似することで得た切片値を採用している.

実験結果

Fig. 1(a), (b)に単結晶及び多結晶薄膜における ρ_{yx}^A と ρ_{xx}^2 の関係をそれぞれ示す. この関係をスケーリング解析式に基づいて線形近似を実行すると, 外因性のパラメータ a と内因性のパラメータ b が得られる.

Fig. 1(c), (d)に単結晶及び多結晶薄膜における内因性, 外因性寄与の Ga 組成依存性をそれぞれ示す. 単結晶及び多結晶薄膜ともに Ga 濃度が増加するにつれ, 外因性項 $a\rho_{xx0}$ が増加する. 特に, 多結晶薄膜における AHE の輸送特性は, 外因性が支配的であることがわかる. スケーリング解析式の $a\rho_{xx0}$ はスキュー散乱を意味するが, その他に結晶粒界起源の散乱も AHE に寄与することが示唆される.

本研究は, NIMS インターンシップ制度及び NIMS 連携拠点推進制度の支援により遂行されました.

1) Yuya Sakuraba et al., Appl. Phys. Express **6**, 033003 (2013)

2) Hiroyasu Nakayama, Keisuke Masuda, and Yuya Sakuraba et al., Phys. Rev. Mat.**3**, 114412 (2019)

3) Yuan Tian, Li Ye, and Xiaofeng Jin, Phys. Rev. Lett. **103**, 087206 (2009)

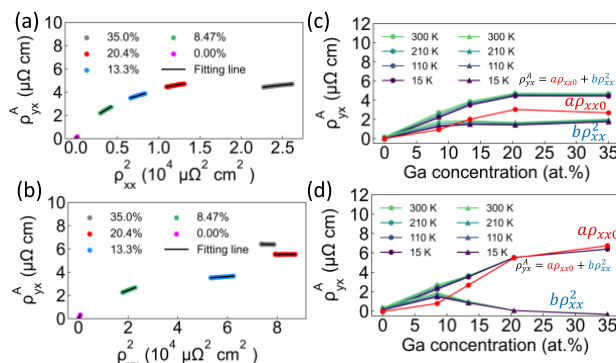


Fig. 1. The scaling analysis of the anomalous Hall effect in (a) single crystal and (b) polycrystalline. The composition dependence of the extrinsic contribution and the intrinsic contribution in (c) single crystal and (d) polycrystalline.

Ir 添加による Fe₃Co 単結晶薄膜における 異常ホール効果・異常ネルンスト効果に対する外因性の寄与

遠山 諒, 周 偉男, 桜庭 裕弥
(物質・材料研究機構)

Extrinsic contribution to the anomalous Hall effect and Nernst effect in
Fe₃Co single-crystal thin films by Ir doping
R. Toyama, W. Zhou, and Y. Sakuraba
(National Institute for Materials Science)

はじめに

磁性体における熱電輸送特性として、異常ネルンスト効果 (ANE) が挙げられる。ANE とは、磁性体に温度勾配 (∇T) を印加したとき、 ∇T と磁化の単位ベクトル ($\mathbf{m}$) に垂直な方向に異常ネルンスト電界 ($\mathbf{E}_{\text{ANE}}$) が生じる現象である [1]。 $\mathbf{E}_{\text{ANE}}$ は、異常ネルンスト係数 (S_{ANE}) を用いて $\mathbf{E}_{\text{ANE}} = S_{\text{ANE}} (\nabla T \times \mathbf{m})$ と表される。一方、 ∇T を電流に変えた場合は、印加電流と磁化に垂直な方向に異常ホール電圧が生じる異常ホール効果 (AHE) が観測される。 S_{ANE} は、異常ネルンスト伝導度 (α_{xy}) を介した ∇T の横方向電流への直接変換による内因性の寄与と、AHE とゼーバック効果の掛け合わせの寄与の和で表される。内因性起因の ANE については、モットの関係式より、 α_{xy} は内因性異常ホール伝導度 (σ_{xy}) のエネルギー微分として表されるため、内因性 AHE と密接に関わっている。ベリー曲率の積分として σ_{xy} を計算することにより、内因性 α_{xy} を理論的に計算することが可能である。実験的にも、ワイル半金属 Co₂MnGa に代表されるように、特異な電子構造に由来して、大きな内因性 α_{xy} が得られることが報告されている [2]。一方、ANE に対する外因性の寄与については、AHE にはスキュー散乱やサイドジャンプといった外因性の寄与が知られていることから、ANE に対しても外因性 AHE の寄与が関係することが考えられる。しかしながら、理論計算の適用の難しさから、あまり深く研究されてきていない。実験的に AHE の支配的起源を変化させた例として、強いスピン軌道相互作用を持つ重元素を試料に添加する方法が報告されている [3]。そこで本研究では、単純な 3d 遷移金属である Fe₃Co に重元素である Ir を添加した組成傾斜薄膜を作製し、AHE に対する外因性の寄与の割合を系統的に変化させることで、ANE に対する外因性の寄与について、輸送特性測定から実験的に考察することを試みる。

実験方法

コンビナトリアルスパッタ装置を用いて、(Fe₃Co)_{100-x}Ir_x ($x \leq 12\%$) 組成傾斜膜を MgO(100)基板上に成膜した。組成傾斜膜の結晶構造を X 線回折 (XRD) により評価した。その後、フォトリソグラフィと Ar イオンミリングにより、組成傾斜膜をホールバー素子に加工した。PPMS 等を用いて、加工したデバイスの AHE、ANE、縦抵抗率、ゼーバック効果の Ir 組成依存性を評価した。

実験結果

XRD 測定結果より、(Fe₃Co)_{100-x}Ir_x 組成傾斜膜は MgO(100)基板上にエピタキシャル成長しており、 $x = 7.3\%$ から B2 規則構造 [4] を有することが確認された。AHE 測定結果より、Ir 添加により、300 K において $x = 12\%$ で ~ 9.2 倍という異常ホール抵抗率の増大が観測された。AHE のスケーリング解析を行った結果、Ir 低濃度領域では Ir 添加直後に外因性寄与が急激に増加し、高濃度領域では内因性寄与が支配的になることがわかった。一方、ANE は、AHE とは異なり、顕著な組成依存性を示さなかった。これらの輸送特性結果より、 S_{ANE} に対しては、AHE とゼーバック効果に関係した寄与が支配的であることがわかった。また、 α_{xy} は、Ir 添加直後に正から負の値へと急激に変化し、 $x \approx 1\%$ で負の最大値を示し、 $x = 12\%$ ではほぼゼロまで減少することがわかった。以上の実験結果から、Ir 添加直後に急激に値・符号が変化する α_{xy} と、Ir 添加直後に増加する AHE の外因性寄与の関連性を実験的に示唆した [5]。

参考文献

- 1) K. Uchida *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 140504 (2021).
- 2) K. Sumida *et al.*, *Commun. Mater.* **1**, 89 (2020).
- 3) S. Jamaluddin *et al.*, *Phys. Rev. B* **106**, 184424 (2022).
- 4) R. Toyama *et al.*, *Phys. Rev. Mater.* **7**, 084401 (2023).
- 5) R. Toyama, W. Zhou, and Y. Sakuraba, *Phys. Rev. B* **109**, 054415 (2024).

スキルミオン強磁性体 $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$ 薄膜におけるネルンスト効果

山本 完地¹、強 博文¹、浅野 秀文²、宮町 俊生¹、水口 将輝¹
(¹名古屋大学、²名古屋産業科学研究所)

Nernst effect in ferromagnetic $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$ thin films with skyrmions

K. Yamamoto¹, B.W. Qiang¹, H. Asano², T. Miyamachi¹, M. Mizuguchi¹
(¹Nagoya Univ, ²Nagoya Industrial Science Institute)

【はじめに】

スキルミオンは、ナノスケールの渦状の磁気構造であり、次世代の高密度不揮発性メモリやロジックデバイスへの応用が期待されている^[1]。そのため、室温で安定的に駆動可能なスキルミオンの生成が必要不可欠となる。ネルンスト効果は、スピン軌道相互作用に起因する電気伝導と熱伝導のクロスオーバー現象であり、スキルミオンの生成・制御に深く関与していると考えられる。しかしながら、およそ 30 nV/K^2 のネルンストシグナルが観測されている Gd_2PdSi_3 においても、そのキュリー温度は室温には及ばない^[2]。本研究では、室温でスキルミオンが形成されることが確認されている $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$ (FPMN) 薄膜におけるネルンスト効果を調べた^[3]。

【実験方法】

マグネトロンスパッタにより FPMN 薄膜材料をサファイア(001)基板上に作製した。6.4 Pa の窒素雰囲気下、基板温度 580°C で成膜を行い、スパッタ時間 90 min で約 50 nm の薄膜試料を作製した。EDX により試料の組成分析を行った。また、PPMS により室温で 1.5 K 程度の温度差を付与してネルンスト効果の測定を行った。

【結果】

EDX による組成分析の結果、Pd の組成 (x) が $x=0.1$ 、0.3、0.7 の三つの組成の試料が作製されたことが分かった。試料のネルンスト効果の測定を行った結果、Pd の組成に依存してネルンスト効果の大きさが変化し、 $x=0.3$ の試料においておよそ 30 nV/K^2 の大きさのネルンストシグナルが観測され、本試料は従来の強磁性体と比較して最大レベルの大きさのネルンスト効果を室温で発現することがわかった。また、スキルミオンを生成しない Pd 組成 ($x=0.1$) では、異常ネルンスト効果のみが観測され、トポロジカルネルンスト効果が発現しないことも分かった。講演では、理論的考察と実験的検証を交えながら、スキルミオン磁性体におけるネルンスト効果の重要性について議論する。

参考文献

- [1] 望月維人, 日本磁気学会報「まぐね」, **10**, 192 (2015).
- [2] M. Hirschberger *et al.*, Phys. Rev. Lett., **125**, 076602 (2020).
- [3] B. W. Qiang *et al.*, Appl. Phys. Lett., **117**, 142401 (2020).

CoPt 組成傾斜薄膜における $L1_0$ 規則化 CoPt の大きな異常ネルンスト伝導度

遠山 諒¹, 増田 啓介¹, Kodchakorn Simalaotao^{1,2}, 周 偉男¹, Varun K. Kushwaha¹,
Nattamon Suwannaharn¹, 佐々木 泰祐¹, 桜庭 裕弥^{1,2}
(¹ 物質・材料研究機構, ² 筑波大学)

Large anomalous Nernst conductivity of $L1_0$ -ordered CoPt in CoPt composition-spread thin films
R. Toyama¹, K. Masuda¹, K. Simalaotao^{1,2}, W. Zhou¹, V. K. Kushwaha¹,
N. Suwannaharn¹, T. T. Sasaki¹, and Y. Sakuraba^{1,2}
(¹ National Institute for Materials Science, ² Univ. of Tsukuba)

はじめに

異常ネルンスト効果 (ANE) は、磁性体において温度勾配 (∇T) と磁化の単位ベクトルの外積方向に電界が発生する現象である [1]。ANE は、 ∇T に対して電界が横方向に発生する横型熱電変換であるため、デバイス構造を単純化できることから、次世代の熱電デバイスや熱流センサへの応用が期待されている [2]。異常ネルンスト係数 (S_{ANE}) は、二つの異なる起源の和で表される。一つは、異常ネルンスト伝導度 (α_{xy}) を介して ∇T を横方向電流に直接変換するものであり、もう一つは異常ホール効果 (AHE) によるゼーベック効果誘起電流の変換である [1]。特に、前者は α_{xy} が関わる内因性の起源であり、大きな α_{xy} を示す材料が探索されている。大きな α_{xy} を示す強磁性材料の候補として、Fe-Ga [3] や Co_2MnGa [4] 合金などが報告されている。しかし、これらは結晶磁気異方性 (K_u) の小さなソフトな材料であり、保磁力 (H_c) も小さいことから、デバイスへの実応用にはあまり適していない。FePt や FePd などの $L1_0$ 規則合金は、高い K_u と大きな H_c を持ちつつ、大きな α_{xy} を示すことから、有力な候補として考えられている [5, 6]。CoPt も $L1_0$ 規則相を示すため、FePt 等と同様に大きな α_{xy} が期待されるが、 $L1_0$ -CoPt の ANE に関する実験はこれまでなされていない。そこで本研究では、CoPt 組成傾斜薄膜を作製し、広い Pt 組成領域における $L1_0$ -CoPt の α_{xy} を系統的に評価することを目的とする。

実験方法

コンビナトリアルスパッタ装置を用いて、 $\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x$ 組成傾斜薄膜を基板温度 500 °C で MgO(100) 基板上に成膜した。また、参照膜として、 $\text{Co}_{48}\text{Pt}_{52}$ 均一膜を室温成膜し、600 °C でポストアニールした試料も作製した。作製した薄膜の結晶構造と微細組織を X 線回折 (XRD) と透過型電子顕微鏡 (TEM) により評価した。フォトリソグラフィと Ar イオンミリングにより、作製した薄膜をホールバー素子に加工した。PPMS 等を用いて、加工したデバイスの ANE、AHE、縦抵抗率、ゼーベック効果を測定した。また、第一原理計算により、エネルギー依存 α_{xy} と、 $L1_0$ -CoPt の状態密度の Pt 組成依存性を得た。

実験結果

XRD 測定結果より、組成傾斜膜の Pt 濃度が増加するにしたがって、結晶構造が fcc Co, A1 不規則相 CoPt, $L1_0$ -CoPt, A1-CoPt, fcc Pt へと変化することが確認された。 $L1_0$ 規則化した領域のうち、Pt-rich 組成の $\text{Co}_{30}\text{Pt}_{70}$ において、 α_{xy} は $2.52 \text{ A m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ の最大値を示した。この値は、 $L1_0$ - $\text{Co}_{48}\text{Pt}_{52}$ 参照膜の $1.72 \text{ A m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ よりも大きかった。また、これらの値は、過去に報告されている $L1_0$ -FePt ($0.783 \text{ A m}^{-1} \text{ K}^{-1}$) と $L1_0$ -FePd ($0.321 \text{ A m}^{-1} \text{ K}^{-1}$) の α_{xy} の値よりも大きかった [6]。以上の測定結果より、CoPt 組成傾斜膜において、 $L1_0$ -CoPt の大きな α_{xy} を実験的に観測した [7]。当日は、第一原理計算により得られたエネルギー依存 α_{xy} と、 $L1_0$ -CoPt の状態密度の Pt 組成依存性をもとに、Pt-rich 領域で α_{xy} の最大値が得られた理由について、その可能性を議論する。

参考文献

- 1) K. Uchida *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 140504 (2021).
- 2) W. Zhou and Y. Sakuraba, *Appl. Phys. Express* **13**, 043001 (2020).
- 3) H. Nakayama *et al.*, *Phys. Rev. Mater.* **3**, 114412 (2019).
- 4) K. Sumida *et al.*, *Commun. Mater.* **1**, 89 (2020).
- 5) K. Hasegawa *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **106**, 252405 (2015).
- 6) Z. Shi *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **13**, 054044 (2020).
- 7) R. Toyama, K. Masuda, K. Simalaotao, W. Zhou, V. K. Kushwaha, N. Suwannaharn, T. T. Sasaki, and Y. Sakuraba, *accepted in J. Phys. D: Appl. Phys.*

重金属元素置換 Fe₄N 薄膜における異常ネルンスト効果

伊藤啓太¹、関剛斎^{1,2}

(東北大金研¹、東北大先端スピ研究²)

Anomalous Nernst effect in Fe₄N films substituted by heavy metal elements

Keita Ito¹, Takeshi Seki^{1,2}

(IMR, Tohoku Univ.¹, CSIS, Tohoku Univ.²)

【背景】

新たなエネルギーハーベスト技術として、強磁性体における異常ネルンスト効果(ANE)を利用した横型熱電変換が注目されている。しかし、半導体におけるゼーベック効果(SE)を利用した熱電変換素子にエネルギー変換効率が大幅に及ばない点が課題となっており、大きな異常ネルンスト係数(S_{ANE})を示す新たな強磁性材料の開発が求められている。Fe₄Nは資源が豊富な元素から構成されるユビキタス強磁性材料であり、比較的大きな S_{ANE} (1.4 ~ 2.2 $\mu\text{V/K}$)を示す^{1,2)}。加えて、Fe₄NのFe原子を他の金属で置換することで、電子構造や磁気特性を大幅に変調することが可能であり³⁾、元素の組み合わせによっては S_{ANE} が増大する可能性について第一原理計算から予測されている^{4,5)}。本研究では、大きなスピン軌道相互作用を有する重金属元素によってFe原子を置換する効果を調べるために、過去に合成された報告例がある Fe_{4-x}Ru_xN⁶⁾および Fe_{4-y}Pt_yN⁷⁾の薄膜を作製し、 S_{ANE} を評価した。

【実験方法】

分子線エピタキシー法により MgO(001)基板上に膜厚が 21 nm 程度の Fe₄N、Fe_{4-x}Ru_xN ($x = 0.02, 0.10$)、Fe_{4-y}Pt_yN ($y = 0.04, 0.13$)薄膜を 450 °C で作製した。電子線蒸着銃により Fe、Ru、Pt、高周波ラジカル源により N を同時供給することで窒化物薄膜を成膜した。試料の構造は X 線回折(XRD)法により評価した。作製した薄膜をホールバー素子に加工し、300 K において ANE、SE、異常ホール効果を測定した。熱電効果の測定では熱勾配(∇T)を窒化物膜面内の[100]方向に印加し、外部磁場を膜面垂直方向に印加した。 ∇T の測定には、素子上に形成した Pt オンチップ温度計を使用した²⁾。

【結果】

XRD 測定の結果から、すべての試料について MgO(001)基板上へのエピタキシャル成長を確認した。 S_{ANE} の値は Fe₄N、Fe_{3.98}Ru_{0.02}N、Fe_{3.90}Ru_{0.10}N、Fe_{3.96}Pt_{0.04}N、および Fe_{3.87}Pt_{0.13}N 薄膜で、それぞれ 1.33、1.28、1.09、1.36、および 1.54 $\mu\text{V/K}$ となった。 S_{ANE} は Ru 置換により減少した一方で、Pt 置換量の増大に伴いわずかに増加したことから、Pt 置換が Fe₄N の S_{ANE} の増大に有効であることが示唆された。 S_{ANE} は ρ_{xx} を縦抵抗率、 α_{xy} を横熱電係数、 S_{SE} をゼーベック係数、 θ_{AHE} を異常ホール角とすると、 $S_{ANE} = \rho_{xx}\alpha_{xy} - S_{SE}\tan\theta_{AHE}$ で表される。実験で得られた S_{ANE} 、 ρ_{xx} 、 S_{SE} 、 $\tan\theta_{AHE}$ の値を用いて、 α_{xy} を見積もった。 α_{xy} の値は Fe₄N、Fe_{3.98}Ru_{0.02}N、Fe_{3.90}Ru_{0.10}N、Fe_{3.96}Pt_{0.04}N、および Fe_{3.87}Pt_{0.13}N 薄膜で、それぞれ 1.02、0.99、1.02、1.12、および 1.31 A/K・m となった。この結果より、Fe_{4-y}Pt_yN 薄膜における S_{ANE} の増大は主に α_{xy} の増大に起因することが明らかになった。講演では Fe_{4-z}Pd_zN 薄膜における S_{ANE} についても述べる。

参考文献

1) S. Isogami *et al.*, Appl. Phys. Express **10**, 073005 (2017). 2) K. Ito *et al.*, J. Appl. Phys. **132**, 133904 (2022). 3) K. Ito *et al.*, Nanotechnology **33**, 062001 (2022). 4) Y. Tsubowa *et al.*, JSAP Spring Meeting 23a-E205-5 (2022). 5) H. K. Singh *et al.*, Phys. Rev. Materials **6**, 045402 (2022). 5) D. Andriamandroso *et al.*, IEEE Trans. Magn. **29**, 2 (1993). 6) W. George *et al.*, J. Metals **7**, 360 (1955).

謝辞

本研究は JSPS 科研費(JP21K04859)、東北大学金属材料研究所先端エネルギー材料理工共創研究センター、東北大学電気通信研究所共同プロジェクトの支援を受けた。

Co ポーラス薄膜における異常ネルンスト効果の変調

辻本卓哉, 宮町俊生, 水口将輝

(名古屋大学)

Anomalous Nernst effect in Co porous thin films

Tsujimoto Takuya, Toshio Miyamachi, Masaki Mizuguchi

(Nagoya Univ.)

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^[1]。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低次元化や熱伝導率の低下を実現し、ANE の実用化を目指す研究が盛んに行われている。我々はこれまでに Co に MgO をドーブしたグラニューラー薄膜^[2]や Co に Ge をドーブしたコラムナー薄膜^[3]において、ANE の増大を報告した。そこで本研究では、新たにポーラス構造に注目し、ポーラス構造における ANE の変調を明らかにした。

実験方法 気相脱合金法を用いてポーラス薄膜を作製した。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 $\text{Co}_{1-x}\text{Zn}_x$ 薄膜を作製し、得られた薄膜を赤外線真空炉により適切な条件で瞬間加熱することにより薄膜中の Zn を選択的に脱合金化させ、Co ポーラス薄膜を得た。その後、走査型電子顕微鏡によりポーラス構造を観察し、物理特性測定システム (PPMS) を用いて ANE を含む磁気輸送特性を測定した。

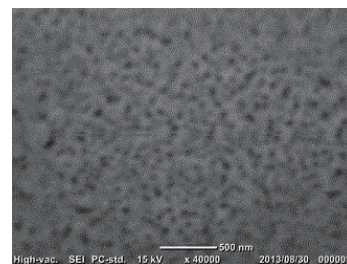


Fig.1. SEM image of Co porous thin film.

実験結果 ポーラス化による構造変化の傾向として、加熱温度や加熱時間の増加に伴いポーラス孔が大きくなることが分かった。 650°C 、10 秒間加熱して作製した試料のポーラス孔は、図 1 に示すように約 50 nm であったが、 650°C 、2 分間加熱して作製した試料では 80 nm 以上となった。これらの試料について ANE の測定を行ったところ、ポーラス化により ANE は増大し、その変換効率は $0.7 \mu\text{V/K}$ 程度まで増大した (図 2)。特にポーラス孔が小さい系で大きな ANE が生じた。今後、さらにポーラス孔の小さい試料を設計することでより大きな ANE の増大が期待できる。

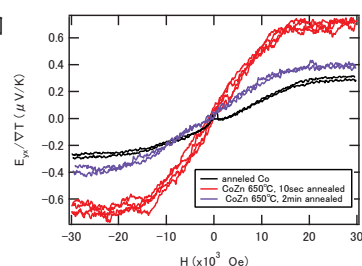


Fig.2. ANE of Co porous thin films with different annealing conditions.

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).
- [3] T. Tsujimoto, M. Mizuguchi, 11th International Symposium on Metallic Multilayers, (2023).

Fe を添加した SnSe 薄膜における異常ネルンスト効果

和田和己¹、藤田武志²、宮町俊生¹、水口将輝¹
(¹名古屋大、²高知工科大)

Anomalous Nernst effect of Fe-doped SnSe thin films
Kazuki Wada¹, Takeshi Fujita², Toshio Miyamachi¹, Masaki Mizuguchi¹
(¹Nagoya Univ., ²Kochi Univ. Tech.)

はじめに

異常ネルンスト効果 (ANE) は熱磁気効果の一つであり、起電力発生方向が熱流方向に垂直であるという特徴をもつ。そのため、素子設計を工夫することにより、高性能な熱電発電素子への応用が期待されている^[1]。しかしながら、実用的な応用に結実した研究例はほとんど報告されていないため、新たなネルンスト材料の開発が求められている。そこで本研究では、半導体である SnSe に磁性元素である Fe を添加した薄膜を作製し、その ANE を調べた。SnSe の大きなゼーベック効果による電荷流が Fe によるスピン軌道相互作用や不純物散乱などによって横方向に散乱されることにより、大きな ANE 電圧が生じることをねらいとした。

実験方法

スパッタリング法により、酸化被膜付き Si 基板上に Fe 元素を添加した SnSe 薄膜を成膜した。Fe は DC マグネトロン方式で、SnSe は RF マグネトロン方式で共スパッタを行い、成膜後にアニール処理を施した。また、それぞれのカソード電力を調整することにより、Fe の含有比率が 0 ~ 31.2at.% と異なる SnSe 薄膜を作製した。X 線回折 (XRD) により各試料の結晶構造を、振動試料型磁力計 (VSM) により磁気特性を測定した。物理特性測定システム (PPMS) により各試料のホール効果、ゼーベック効果、ネルンスト効果の測定を室温で行った。

実験結果

150°C で 1 時間アニール処理を施した試料においてネルンスト効果の測定を行ったところ、Fe の含有比率が 19 ~ 23.5% の条件で作製した試料において ANE の増大が見られた。そこで、Fe の含有比率 23.5% の試料の断面の TEM・EDX マッピングを行ったところ、Fe が薄膜内で層状に局在していることがわかった。続いて Fe の含有比率が 23.5% の条件で異なるアニール時間の試料を作製した。XRD 測定の結果を図 1 に示す。アニール処理時間に依存して SnSe ピークの明確なシフトが見られた。これらの結果より、SnSe 結晶に侵入していた Fe 原子がアニール処理によって拡散移動し、層状構造を形成したことが示唆された。また、作製した薄膜の電子状態がアニール条件によって大きく異なり、ANE にも強く影響を与えることが考えられる。講演では、アニール条件と ANE の関係についても詳しく議論する。

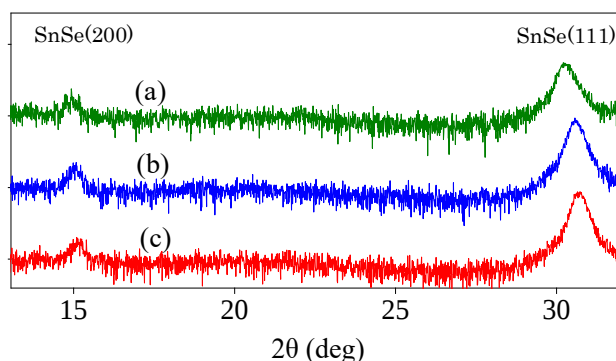


Fig.1 XRD patterns of $\text{Fe}_{23.5}(\text{SnSe})_{74.5}$ films with: (a) non-annealing, (b) 150°C, 1 hour annealing and (c) 150°C, 5 hour annealing.

参考文献

- 1) M. Mizuguchi and S. Nakatsuji, Sci. Technol. Adv. Mater., **20**, 262 (2019).