

論文の内容の要旨

論文題目 微細素子化したワイル磁性体における熱電効果
(Thermoelectric effect in a device made of Weyl magnet)

氏名 成田 秀樹

本研究は、単結晶バルク試料を集束イオンビーム(FIB)を用いて微細素子化したワイル磁性体において、磁気輸送特性、熱電効果の測定を行い、トポロジカルな電子状態に起因する輸送現象を評価することにより、FIBの加工手法をマイクロスケールの物性探索へ応用することを目指したものである。

近年、FIBは加工面の品質とその加工精度の高さから、材料科学の分野において透過型電子顕微鏡用の試料作製だけでなく、物理的なスパッタリングを利用したものでもあるため、加工対象の物質の制限も少なく材料の物性を原子レベルで探索する手法としても用いられ始めている。これまではナノ及びマイクロスケールの物性探索には、主に薄膜を用いて作製したデバイスが用いられてきたが、FIBを利用することで薄膜に限らず薄片化したバルクを用いて探索することが可能である。

代表的な熱電効果であるゼーベック効果は、これまでバルク材料を中心に研究されてきており、ゼーベック係数が電気伝導率に反比例するとともに、熱伝導率が高い材料では温度差が得られにくいため、半金属や半導体が研究対象の中心であった。しかしながら近年、スピンゼーベック効果の発見により磁性体を利用した熱電発電や熱流センサーへの応用の期待が高まり、磁性を持つ金属材料も盛んに研究されている。

非共線的なスピン構造を有する電子系においては、巨大な異常ホール効果が観測されており、温度勾配の下での輸送現象においてもスピンに起因する異常な応答が観測されている。磁性体において熱流を磁場に対して垂直に印加した場合には、横方向に電位差が生じる異常ネルンスト効果が期待される。大きな異常ネルンスト係数を持つ材料を探索する方法としては、異常ホール効果や磁気抵抗効果が大きい材料に注目することが有効であり、これは熱電効果の輸送係数の磁場効果も大きい可能性があるためである。また、異常ネルンスト係数はゼーベック係数と同様にフェルミ準位近傍の状態密度の傾きに比例するため、フェルミ準位の制御も重要である。異常ネルンスト効果は温度勾配に対して垂直方向に電場が得られ、電場の方向が磁化方向で制御できるという利点がある

ため、従来のゼーベック効果を利用した複雑な素子構造を用いない発電モジュールへの応用が期待されている。

カイラルな磁気構造を持つ反強磁性体 Mn_3Sn では、自発磁化が非常に小さいにも関わらず室温で強磁性体と同程度の異常ホール効果や異常ネルンスト効果が観測されている。最近の理論、実験の研究によると、この異常な応答は運動量空間に特異的に存在する縮退点(ワイル点)に起因する仮想磁場の効果であることが指摘されている。このワイル点を持つ磁性体はワイル磁性体と呼ばれており、仮想磁場はディラックコーンが2つの異なる磁気モノポールを持って分離したワイル点により生じると考えられている。また、 Mn_3Sn では磁気ドメインが存在し、それらが磁気輸送特性に影響することが指摘されている。

特異な電子状態に起因する輸送現象に関する研究は、非磁性体であるワイル半金属 TaAs が発見されて以降、ホイスラー合金などの強磁性体や磁化を持たない反強磁性体においても盛んに研究されており、巨大な仮想磁場を時間的、空間的に制御することでデバイスへの応用が期待されている。ホイスラー合金はその結晶構造から大きく2種類に分けられ、 X_2YZ で表記されるフルホイスラー合金とハーフホイスラー合金 XYZ に分類されており、ホイスラー合金の1種である反強磁性体 Mn_3Sn や強磁性体フルホイスラー合金 Co_2MnGa はワイル磁性体であることが指摘されている。

まず、本研究では Mn_3Sn バルク単結晶の異常ネルンスト効果を測定するために、熱起電力測定プローバの立ち上げ及びサンプルホルダの作製を行った。試料の温度は白金抵抗計を取り付けた上下のヒーターで制御することができ、 Mn_3Sn バルク単結晶のANEを測定した結果から、ANEを評価する指標である異常ネルンスト係数を計算すると、室温において先行研究の値 $0.3 \mu\text{V/K}$ と同等の $0.29 \mu\text{V/K}$ の値が得られた。

次に、バルク単結晶 Mn_3Sn 試料をFIBを用いて薄片化し、電子線リソグラフィーを用いた繰り返しリフトオフ法や、FIBを用いたW蒸着により電極を作製し、微細素子における磁場中の電気抵抗及び熱電測定を行った。微細素子($\text{Ta}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Mn}_3\text{Sn}$)では、FIBにより微細化した単結晶 Mn_3Sn の上に絶縁層 Al_2O_3 を成膜し、その上にさらにジュール熱を発生させるヒーターとしてTaを成膜した。

Mn_3Sn のカゴメ面内方向に磁場を印加した場合には、微小磁化に起因する電圧のヒステリシスが観測され、ヒーターに流す電流の向きに依存せず、電圧が電流の2乗に比例して増加することから、観測した電圧は異常ネルンスト効果によるものだと考えられる。また、実験により得られた異常ネルンスト電圧と、Taの抵抗率を用いた温度分布シミュレーションから求めた Mn_3Sn の温度勾配の大きさ(1.5 mA で $\Delta T = 0.7 \text{ K}$)から異常ネルンスト係数 S_{ANE} を評価したところ、微細素子で $S_{\text{ANE}} = 0.27 \mu\text{V/K}$ であり、室温において Mn_3Sn バルク単結晶 ($S_{\text{ANE}} = 0.3 \mu\text{V/K}$) と同等の異常ネルンスト効果が観測可能であることを明らかにした。これらの結果は、FIBによる試料へのダメージが非常に小さいということも示している。

また Mn_3Sn では、理論計算や磁気カー効果の実験結果から磁気ドメインが存在することが報告されており、それらが輸送特性に影響することが指摘されている。バルク単結晶においては、試料サイズに依存して異常ホール効果のヒステリシスが変化することも報告されており、電気伝導物性のサイズ効果も観測され始めている。

本研究では、FIB で加工した Mn_3Sn 単結晶の薄片の横に Ta のヒーターを成膜した微細素子を作製し、電気抵抗、異常ホール効果、異常ネルンスト効果の測定を行った。磁気抵抗の測定では非対称な磁気抵抗が観測され、また電圧端子位置に依存して磁気抵抗の符号が変化することから、Co/Pt 多層膜で報告されているように磁気ドメイン存在下における異常ホール効果由来の非対称成分が電気抵抗に現れていると考えられる。一方で異常ホール効果や異常ネルンスト効果のヒステリシスにはステップ状の構造が現れており、異常ネルンスト効果の測定では、Ta ヒーターに DC 電流を流すと電圧にヒステリシスが観測され、この電圧は Ta ヒーターの電流の 2 乗に比例して、電流の方向に依存しないことからジュール熱によって生じた異常ネルンスト効果に由来する電圧だと考えられる。また、異常ネルンスト効果のステップ状の構造は温度勾配に依存して変化し、ステップ状の構造が現れ始める磁場は温度勾配に比例していることから、温度勾配によって磁気ドメインが変化していることが示唆される。

強磁性体フルホイスラー合金 Co_2MnGa に関しても単結晶試料を FIB で薄片化し、 Co_2MnGa 薄片の横に Ta のヒーターを成膜した微細素子を作製し、電気抵抗、異常ホール効果、異常ネルンスト効果の測定を行った。電気抵抗測定を行ったところ、FIB-Pt を電極として使用した際にはバルク単結晶で報告されている金属的な電気抵抗の挙動を示したが、FIB-W を電極とした場合と 5 K 以下ではバルク単結晶とは異なる振る舞いが観測された。デバイスに用いた電極は FIB で作製した W であるが、この W には炭素やガリウム原子が含まれるため、通常の W よりも高い超伝導転移温度($T_c \sim 5$ K)で超伝導転移することが報告されている。そのため Co_2MnGa の電気抵抗率の温度依存性では、FIB-W を電極とした場合に 5 K 付近で電気抵抗率が急激に減少しており、超伝導転移しない FIB-Pt を電極として用いた場合にはそのような変化は現れていないと考えられる。

一方で、異常ネルンスト効果の測定では Ta ヒーターから発生したジュール熱によって、異常ネルンスト効果に由来する電圧を観測した。異常ネルンスト効果に関しても、5 K 以下ではバルク単結晶の異常ネルンスト効果とは異なる振る舞いをしており、FIB-W を用いた素子作製の際には 5 K 以下の低温では電極の性質も磁気輸送特性に寄与することが分かった。

本研究では、FIB の加工手法を用いてバルク単結晶の薄片を用いた素子を作製することで、薄膜と同様の磁気輸送特性の測定が可能であることを明らかにした。この結果は、これまで単結晶の合成はされているが、薄膜化が困難な物質においても単結晶薄片の微細素子を作製することで、単結晶におけるマイクロスケールの物性探索に有用であることを示している。