

Structure Regulation and Thermal Spin Transport Properties of Co₂MnSn Films

Xiaogang He, Dongchao Yang, Xiufeng Huang, Yunli Xu, Lizhi Yi*

Huber Engineering Research Center of Weak Magnetic-Field Detection, College of Science, Three Gorges University, Yichang Huber
Email: *lzhyi@ctgu.edu.cn

Received: Jul. 6th, 2020; accepted: Jul. 21st, 2020; published: Jul. 28th, 2020

Abstract

In this paper, Co₂MnSn thin films prepared by magnetron sputtering were taken as the research object, and the effect of films deposition temperature on the characteristics of the anomalous Nernst effect and spin Seebeck effect and its physical mechanism were investigated. The research results show that Co₂MnSn thin films with B2 structure can be obtained by adjusting the deposition temperature. As the deposition temperature increases, the magnetic and metallic properties of the thin film were enhanced. Taking the B2 phase Co₂MnSn thin films as the object, this paper focuses on the anomalous Nernst effect and the spin Seebeck effect under the temperature gradient. The experiment results show that the anomalous Nernst coefficient of Co₂MnSn thin film deposited at 500°C is 0.7 μV/K, which is 20 times larger than that of 3 d metals, such as Fe, Co, and Ni. The research in this paper further shows that by controlling the preparation temperature of Co₂MnSn thin films, the anomalous Nernst effect and spin Seebeck effect can be adjusted to a certain extent, which will be beneficial to the research and development of thermoelectric materials and thermoelectric effect related equipment.

Keywords

Heusler Alloy, Films, Anomalous Nernst Effect, Spin Seebeck Effect, Thermoelectric Material

Co₂MnSn薄膜结构调控与自旋热输运性质研究

何晓刚, 杨栋超, 黄秀峰, 许云丽, 易立志*

三峡大学, 理学院, 湖北省弱磁探测工程技术研究中心, 湖北 宜昌
Email: *lzhyi@ctgu.edu.cn

收稿日期: 2020年7月6日; 录用日期: 2020年7月21日; 发布日期: 2020年7月28日

*通讯作者。

摘要

本文以磁控溅射制备的 Co_2MnSn 薄膜为研究对象，研究了薄膜沉积温度对其反常能斯特效应和自旋塞贝克效应相关特性的影响及其物理机制。研究表明，通过调节沉积温度可以得到B2结构的 Co_2MnSn 薄膜；随着沉积温度的升高，薄膜的磁性和金属性也将得到增强。本文以B2相的 Co_2MnSn 薄膜为对象，重点研究了其在温度梯度下的反常能斯特效应和自旋塞贝克效应。实验发现，常温下，500°C沉积的 Co_2MnSn 薄膜的反常能斯特系数为0.7 $\mu\text{V}/\text{K}$ ，比常温下Fe, Co, Ni等传统金属(约0.03 $\mu\text{V}/\text{K}$)大20倍。本文研究还进一步表明，通过调节 Co_2MnSn 薄膜的制备温度，可以在一定程度上调控其反常能斯特效应和自旋塞贝克效应，这将有益于热电材料以及热电效应相关设备的研发。

关键词

哈斯勒合金，薄膜，反常能斯特效应，自旋塞贝克效应，热电材料

Copyright © 2020 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

只有自旋流动，而没有电荷流动的输运现象，称为纯自旋流[1]。基于纯自旋流的电子器件，可以实现信息的传递而不产生焦耳热，从而可大大降低能源的耗散，并从根本上解决大规模集成电路的散热问题。由于这些显著的优势和潜在应用，近年来对自旋流相关效应的研究一直是科研工作者关注的重点领域[1]，例如自旋霍尔效应、自旋轨道转矩和隧穿磁电阻效应等[2] [3]。特别是其中对自旋流、热流和电流之间的相互作用的研究，更是催生了一个全新的研究领域——热自旋电子学[4]。目前，对自旋塞贝克效应和反常能斯特效应的研究[5] [6]，是热自旋电子学理论和实验研究的重要内容。自旋塞贝克效应于2008年，由E.Saitoh及其合作者首次在 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Pt}$ 双层结构中发现并报道[7]。自旋塞贝克效应是指当温度梯度施加于磁性材料时，在磁性材料中会产生自旋流[8]。而反常能斯特效应是指当温度梯度施加到具有自发磁化的导电材料时，在温度梯度和磁场方向的叉乘方向会产生电场[9]。这两者都是由处于温度梯度场中的磁性材料引起的输运现象。不同之处在于自旋塞贝克效应在磁性材料中产生自旋流，而反常能斯特效应在磁性材料中产生电荷流。

根据所施加温度梯度的不同，自旋塞贝克效应和反常能斯特效应均有两种不同构型，其中温度梯度垂直于薄膜平面的为纵向构型，温度梯度平行于薄膜平面的为横向构型。对于反常能斯特效应，其由于温度梯度所导致的电信号是可以直接测量的，以本文所研究的 Co_2MnSn 薄膜为例，一种典型的反常能斯特效应信号测量结构如图1(a)所示。当向 Co_2MnSn 施加一个纵向的温度梯度 ∇T ，并沿垂直 ∇T 的方向施加外磁场 M 时，会在与 ∇T 和 M 正交的方向产生一个电场 E ，根据反常能斯特效应相关理论，其产生的电场可以描述为[8]：

$$E = -\alpha \sigma \times \nabla T \quad (1)$$

式中， E ， α ， σ ，和 ∇T 分别为反常能斯特效应产生的电场、反常能斯特系数、自旋极化矢量和温度梯度。对于自旋塞贝克效应，由于自旋流无法通过电学手段直接测量，一般通过构建特殊的测量结构，利

用逆自旋霍尔效应测量自旋流所导致的逆自旋霍尔电压来表征自旋流[3] [10]。其测量结构如下图 1(b) 所示, 对自旋塞贝克效应产生的自旋流的探测, 可转化为探测磁性材料紧邻的金属层 NM (通常为重金属) 中的逆自旋霍尔效应引起的电信号, 逆自旋霍尔电压可以描述为:

$$E_{ISHE} \propto \theta_s J_s \times \sigma \quad (2)$$

式中, E_{ISHE} , θ_s , J_s 和 σ 分别表示逆自旋霍尔电压, 重金属层的自旋霍尔角, 自旋流和自旋极化矢量。

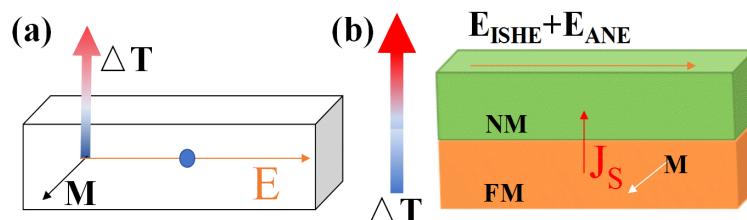


Figure 1. Schematic image of longitudinal anomalous Nernst effect (a) and longitudinal spin Seebeck effect (b) (FM means the ferromagnetic layer and NM the normal metal)

图 1. (a) 反常能斯特效应示意图。(b) 纵向自旋塞贝克效应测量示意图
(FM 表示铁磁层; NM 表示金属层)

尽管自旋塞贝克效应和反常能斯特效应的物理机制不同, 其相关信号的测试结构也不同, 但通过对测试结构的特殊设计, 二者都可以将热流转化为电流。因此在废热管理, 能量收集以及热电生成等方面有着极大的潜在应用[11] [12], 但由于大部分的材料基于以上效应的热电转换效率较低, 一定程度上制约了其在热电领域的有效应用。基于此, 如何产生大的自旋塞贝克信号和反常能斯特信号, 提高热电转换效率, 是科研界广泛关注的重点和热点问题[13] [14] [15]。

在大多数铁磁材料中, 反常能斯特信号低于 $1 \mu\text{V/K}$ [5], 但最近, Akito Sakai 等人[16]从 Co_2MnGa 的反常能斯特实验中观察到了巨大的反常能斯特信号, 在室温下约为 $6 \mu\text{V/K}$ 。当温度升高到 400 K 时, 反常能斯特信号达到了 $8 \mu\text{V/K}$ 。Y. Sakuraba 等人[17]在对 $\text{Co}_2\text{MnAl}_x\text{Si}_{1-x}$ 的研究中, 发现 $\text{Co}_2\text{MnAl}_{0.63}\text{Si}_{0.37}$ 的化学组分产生了大的反常能斯特信号, 其室温下为 $6.2 \mu\text{V/K}$ 。这一现象被归因于这些 Co 基哈斯勒合金材料的动量空间存在多个 Weyl 点, 位于费米能级附近的 Weyl 点, 在其附近的强布瑞曲率可以增强本征反常能斯特效应[16] [17]。以上这些研究都表明 Co 基哈斯勒合金是一种潜在的能够产生大的反常能斯特信号的铁磁金属材料。 Co_2MnSn 作为一种重要的 Co 基哈斯勒合金, 除了具有通常 Co 基哈斯勒合金所具有的高居里温度(829 K), 超低的磁阻尼系数以及理论预测的常温下的半金属行为之外[18] [19] [20], 最近的第一性原理计算结果还表明 Co_2MnSn 是一种潜在的 Weyl 半金属材料[21] [22]。除此之外, Co_2MnSn 还具有大的塞贝克系数, 300 K 时约为 $-33 \mu\text{V/K}$ [23], 使得 Co_2MnSn 材料可能产生大的反常能斯特信号和自旋塞贝克信号。

综上我们认为, Co_2MnSn 在热自旋输运领域有着巨大的潜力, 有望成为一种理想的热电材料, 但目前鲜有关于 Co_2MnSn 在自旋热输运领域的研究。基于此, 为了进一步深入了解 Co_2MnSn 的热自旋输运性能, 本文以磁控溅射制备的 Co_2MnSn 薄膜为研究对象, 重点研究薄膜制备温度对其纵向反常能斯特效应和纵向自旋塞贝克效应相关特性的影响及其物理机制。

2. 样品的制备与测试装置

Co_2MnSn 是多元合金体系, 在薄膜制备过程中, 受制备工艺参数的影响, Co_2MnSn 薄膜可能存在 Co、Mn 和 Sn 三种原子占位完全有序的 L2₁ 结构、Co 原子占位有序, 而 Mn 和 Sn 原子占位无序的 B2

结构以及 Co、Mn 和 Sn 占位均无序的 A2 结构[18]。因此，制备结晶良好，结构纯净的单相 Co_2MnSn 薄膜是异常困难的。本文采用配比为 $\text{Co}:\text{Mn}:\text{Sn} = 2:1:1$ 的合金靶材，利用磁控溅射方法制备 Co_2MnSn 薄膜。为了提高成膜质量，在尽力提高溅射腔真空度的基础上，通过沉积温度的调控，探索半金属 Co 基哈斯勒合金薄膜的最佳生长工艺条件，制备出了满足反常能斯特效应和自旋塞贝克效应研究要求的 Co_2MnSn 薄膜的样品。

薄膜制备方法如下：用于反常能斯特效应研究的样品，通过直流磁控溅射方法在 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 0.5 \text{ mm}$ 的 $\text{MgO}(100)$ 基片上沉积了厚度为 50 nm 的 Co_2MnSn 薄膜，横向尺寸 $6.0 \text{ mm} \times 2.5 \text{ mm}$ 。沉积温度分别为室温， 300°C ， 400°C 和 500°C ，溅射腔真空度 $2 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ 。用于自旋塞贝克效应研究的样品，考虑到 A.Sola [24] 等人提到的电信号的稳定性问题，采用直流磁控溅射的方式，在 MgO 的基片上制备了 $\text{Co}_2\text{MnSn}(50\text{nm})/\text{Pt}(4\text{nm})/\text{Au}(5\text{nm})$ 的薄膜，集成了测量单元的薄膜样品结构如图 2(a) 所示。样品整体为铁磁金属/重金属异质结结构，横向尺寸 $6.0 \text{ mm} \times 2.5 \text{ mm}$ ， Au 电极的横向尺寸均为 $1 \text{ mm} \times 2.5 \text{ mm}$ 。当向样品施加一个纵向的温度梯度 ∇T ，并沿垂直 ∇T 的方向施加外磁场 M 时，会在重金属层产生一个与 ∇T 和 M 正交的电场 E 。样品的晶体结构和磁性通过 X 射线衍射仪和振动样品磁强计进行表征。

图 2(b) 给出反常能斯特效应和自旋塞贝克效应测量系统示意图。样品被放置在铜板和氮化铝(AlN)板之间。放置在 AlN 薄板顶部的室温电阻为 1000Ω 的电阻加热器作为加热端，铜板作为散热端，在加热功率稳定时，加热端和散热端之间可形成稳定的温度梯度。冷热端的温度差通过两个分别固定在铜板和 AlN 板上的热电偶实时测量。为了提供均匀的热接触，将导热硅脂均匀的涂在样品的两个表面。电信号测量所需的引线，通过铝线压焊方法从薄膜样品表面引出。热流通过 Keithley 2400 恒流源对电阻加热器施加直流电流获得。测量过程中样品始终处于 Versalab VSM 的腔室内，Versalab VSM 可以提供测试过程中所需的磁场和真空环境。测试信号的采集则通过专门设计的基于 labview 虚拟仪器的数据采集系统进行实时高速读取。

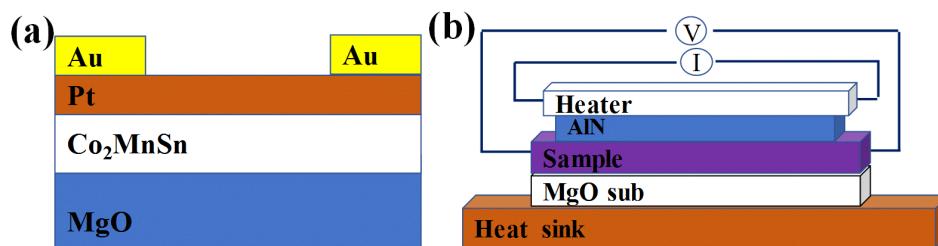


Figure 2. (a) Schematic image of spin Seebeck effect. (b) Experimental setup of thermal spin transport

图 2. (a) 自旋塞贝克样品示意图。(b) 热自旋输运测量系统示意图

3. 实验结果与讨论

3.1. Co_2MnSn 薄膜的制备与表征

图 3(a) 给出不同沉积温度的 Co_2MnSn 薄膜的 XRD 衍射谱图，各谱线中 $2\theta = 44^\circ$ 附近的主峰为 MgO 衬底的衍射峰。从图中可以看出，沉积温度为室温的样品(黑色曲线)，其衍射图谱中只观察到 MgO 衬底的衍射峰，而其余三个样品，除了 MgO 的衍射峰，还出现了两个新的衍射峰，位置分别出现在 $2\theta = 30^\circ$ 和 $2\theta = 62.5^\circ$ 附近，对应 Co_2MnSn 薄膜的(200)衍射峰和(400)衍射峰，这与文献中报道的相吻合[25]，表明从沉积温度 300°C 开始， Co_2MnSn 薄膜具有了 B2 结构。图中可以看出，随着沉积温度的升高， Co_2MnSn 薄膜的(200)和(400)衍射峰均向高角度方向偏移，表明随着沉积温度的增加， Co_2MnSn 薄膜的晶格常数逐

渐变小(如图 3(a)的插图所示)。这可能是由于随着沉积温度的增加, 薄膜制备过程中的内应力状态发生变化, 当样品降温到室温后, Co_2MnSn 薄膜出现压缩应变, 从而导致 Co_2MnSn 薄膜的晶格常数从 300℃的 0.598 nm 降低到 500℃的 0.586 nm。

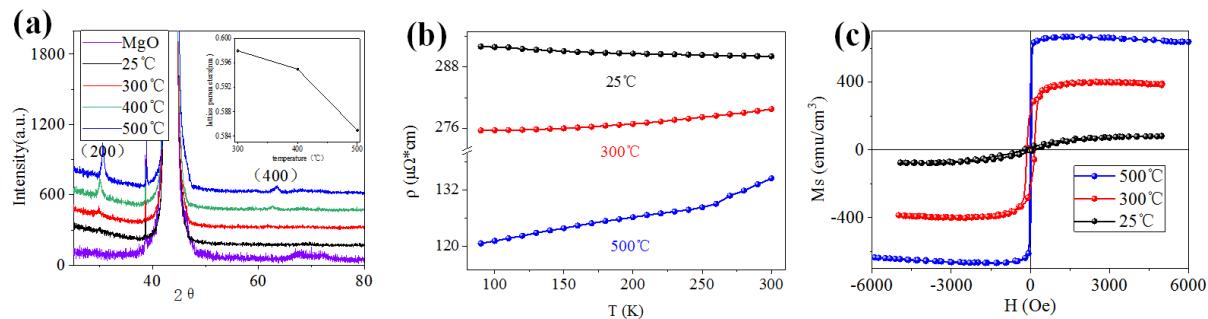


Figure 3. (a) XRD diffraction spectra of Co_2MnSn films with different deposition temperatures. The inset shows the lattice parameters of Co_2MnSn thin films as a function of temperature. (b) The resistivity of Co_2MnSn thin films at different temperature

图 3.(a) 沉积温度不同的 Co_2MnSn 薄膜的 XRD 衍射谱图, 插图显示了 Co_2MnSn 薄膜晶格参数与温度的函数。(b) 温度相关的 Co_2MnSn 薄膜的电阻率。(c) 在室温下测量的 Co_2MnSn 薄膜的面内磁滞回线

图 3(b)给出温度相关的 Co_2MnSn 薄膜的电阻率。可以看到, 室温沉积的 Co_2MnSn 薄膜的电阻率随测试温度的升高而逐渐降低, 表现出半导体特性。但 300℃和 500℃沉积的 Co_2MnSn 薄膜的电阻率则随测试温度的升高而升高, 表现出典型的金属特性。图 3(c)为室温下测量的 Co_2MnSn 薄膜的面内磁滞回线。研究表明, Co_2MnSn 薄膜的饱和磁化强度随着沉积温度的升高而增强, 矫顽场随温度的升高而减小, 500℃沉积的 Co_2MnSn 薄膜具有最大的饱和磁化强度, 室温下约为 670 emu/cm³。可见通过调节 Co_2MnSn 薄膜的制备温度, 可以使 Co_2MnSn 薄膜的磁性能得到提升。表明通过调节沉积温度可以调控 Co_2MnSn 薄膜的金属性和磁性。

3.2. Co_2MnSn 薄膜的反常能斯特效应

如前所述, 对于大多数铁磁材料, 其反常能斯特系数与铁磁材料本身的磁化强度密切相关, 为了深入研究这种相关性, 本文以不同饱和磁化强度的 B2 结构的 Co_2MnSn 薄膜为对象, 重点研究了其自旋热输运性质。所选用的 Co_2MnSn 薄膜样品沉积厚度为 50 nm, 沉积温度分别为 300℃和 500℃, 对应的饱和磁化强度分别为 329 emu/cm³ 和 670 emu/cm³。

图 4(a)给出不同溅射功率制备的 Co_2MnSn 薄膜(300℃沉积)的热电压随磁场的变化曲线, 可以看出, 随着外磁场(H)的变化测量得到的热电压表现出了明显的磁滞行为。根据方程(1), 反常能斯特效应的电信号与样品的饱和磁化强度密切相关, 图 4(a)所示的热电压所表现的与磁滞类似的滞回行为正是反常能斯特效应所要求的, 表明测量的热电压, 确实是反常能斯特效应引起的热电信号。根据反常能斯特效应相关理论, 其反常能斯特系数(α)可定义为:

$$\alpha = (V_{ANE}/L_Y)/(\Delta T/L_Z) \quad (3)$$

式中 ΔT 、 L_Z 和 L_Y 分别表示温差、薄膜沿着 Z 方向的长度和薄膜沿着 Y 方向的两个电接触点的距离。

在考虑稳态极限的情况下, 傅里叶导热定律可以描述为:

$$\mathcal{Q} = KS\Delta T/L_Z \quad (4)$$

式中 \mathcal{Q} , K 和 S 分别表示热流量, 导热系数和薄膜的传热面积。因此方程(4)可以转换为:

$$\Delta T = \emptyset L_z / KS \quad (5)$$

将方程(5)代入方程(3)中可以得到:

$$\alpha = (V_{ANE} / L_y) / (\emptyset / KS) \quad (6)$$

这里热流量 \emptyset 是通过电阻加热器的焦耳热产生的, 加热器的功率为 P 。当单位时间内电能都转化为内能时, 有 $P = \emptyset$ 。

因此方程(6)可以被转化为:

$$\alpha = V_{ANE} KS / L_y P \quad (7)$$

由方程(7)可以发现反常能斯特信号 V_{ANE} 与施加的功率 P 是线性相关的, 图 4(b)所展示的室温下 Co_2MnSn 薄膜(300°C沉积)的 V_{ANE} 随功率的变化曲线, 表现出较好的线性特征, 与方程(7)相吻合。

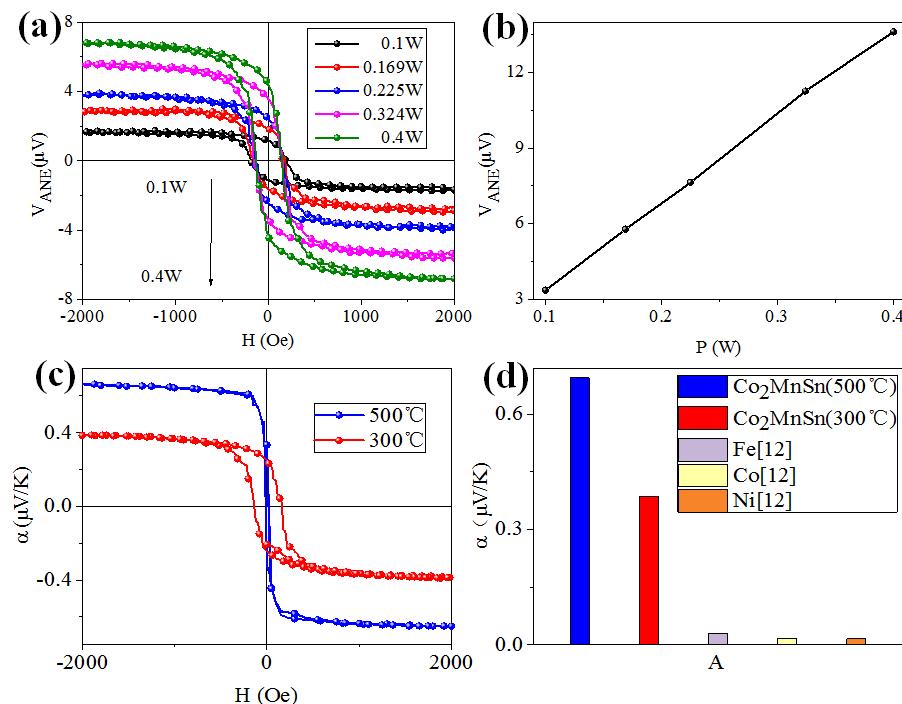


Figure 4. (a) The thermal voltage of anomalous Nernst effect of the power dependent Co_2MnSn thin film (deposited at 300°C) changes with magnetic field. (b) V_{ANE} of Co_2MnSn thin film (deposited at 300°C) changes with power at room temperature. (c) At room temperature, anomalous Nernst coefficient of Co_2MnSn thin film is a function of magnetic field. (d) At room temperature, anomalous Nernst coefficient of Co_2MnSn thin film is compared with anomalous Nernst coefficient of ferromagnetic metals Fe, Co, and Ni

图 4. (a) 功率相关的 Co_2MnSn 薄膜(300°C沉积)的反常能斯特效应的热电压随磁场的变化。(b) 室温下 Co_2MnSn 薄膜(300°C沉积)的 V_{ANE} 随功率的变化。(c) 室温下, Co_2MnSn 薄膜的反常能斯特系数与磁场的函数。(d) 室温下, 各 Co_2MnSn 薄膜的反常能斯特系数与铁磁金属 Fe, Co, Ni 的反常能斯特系数的对比

为研究薄膜沉积温度对反常能斯特效应的影响, 本文分别对 300°C 和 500°C 沉积的 Co_2MnSn 薄膜(50 nm)的 V_{ANE} 进行了对比研究。为了更直观的体现两者的差别, 我们利用方程(7)和魏德曼 - 弗兰兹定律对测量结果进行处理。其中魏德曼 - 弗兰兹定律可以描述为:

$$K\rho = LT \quad (8)$$

式中 K , ρ , L 和 T 分别表示导热系数, 电阻率, 洛伦兹常数以及温度。

利用图 3(b)所示的 Co_2MnSn 薄膜的电阻率数据, 结合方程(7)和方程(8), 即可将图 4(a)所示的热电压对磁场变化曲线换算成反常能斯特系数对磁场的变化曲线, 相关计算结果如图 4(c)所示。可以看出饱和磁化强度大的 Co_2MnSn 样品, 其反常能斯特系数也更大。这表明与大多数铁磁体相同, Co_2MnSn 薄膜的反常能斯特系数与薄膜自身的磁化强度密切相关。室温下 500°C 沉积的 Co_2MnSn 薄膜(50 nm)的反常能斯特系数为 0.7 $\mu\text{V/K}$, 这一结果比 50 nm 的 Fe (约 0.03 $\mu\text{V/K}$), Co (约 0.015 $\mu\text{V/K}$) 和 Ni (约 0.015 $\mu\text{V/K}$) 等传统金属的反常能斯特系数大 20 倍以上[9], 如图 4(d)。

3.3. Co_2MnSn 薄膜的自旋塞贝克效应

由方程(1)和(2)可知, 在铁磁金属中, 用于探测纵向自旋塞贝克效应的逆自旋霍尔电压与纵向反常能斯特效应的电压具有相同方向, 导致纵向自旋塞贝克效应的信号受到反常能斯特信号的干扰, 难以分离。探测的逆自旋霍尔电信号中包含有纵向自旋塞贝克效应与反常能斯特效应的共同贡献, 由于这些电压信号是在不同有效电阻上获得的, 为了直观的比较各电压, 我们对这些电压进行了归一化处理:

$$V_T/R_T = V_{FM}/R_{FM} + V_{SSE}/R_{NM} \quad (9)$$

式中 V_T , V_{FM} , V_{SSE} , R_T , R_{FM} 和 R_{NM} 分别表示总的热电压、反常能斯特电压、自旋塞贝克电压, 样品总电阻, 铁磁层电阻和普通金属电阻。其中 V_T/R_T , V_{FM}/R_{FM} 和 V_{SSE}/R_{NM} 分别表示归一化总热电信号, 单纯铁磁层的热电信号, 纵向自旋塞贝克效应引起的热电信号。

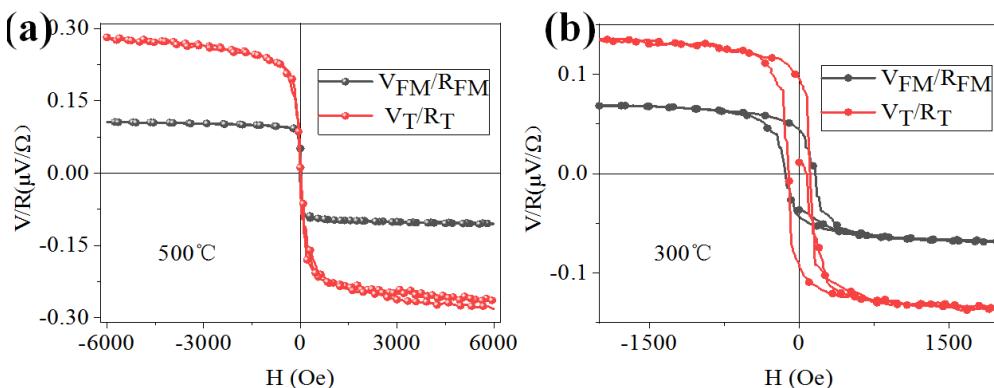


Figure 5. (a) After normalization, total thermoelectric signal of sample NO. 1 and thermoelectric signal of simple ferromagnetic layer change with magnetic field. (b) After normalization, total thermoelectric signal of sample NO. 2 and thermoelectric signal of simple ferromagnetic layer change with magnetic field

图 5. (a) 归一化后 1 号样品总热电信号和单纯铁磁层的热电信号随磁场的变化。(b) 归一化后 2 号样品的总热电信号与反常能斯特效应的电信号随磁场的变化

采用如图 2(a)所示的样品结构, 我们制备了不同参数的两个样品, 其中 Co_2MnSn (500°C 沉积, 50nm)/Pt(4nm)/Au(5nm) 的样品记为 1 号样品, Co_2MnSn (300°C 沉积, 50nm)/Pt(4nm)/Au(5nm) 的样品记为 2 号样品。在室温下, 归一化后样品的总热电信号与单纯铁磁层的热电信号随磁场的变化如图 5 所示, (a) 和(b) 分别对应 500°C 和 300°C 沉积的 Co_2MnSn 薄膜。实验发现对于所用样品, 获得的总热电信号均大于单纯铁磁层的热电信号, 且随着磁场的变化均表现出了明显的磁滞行为。结合方程(2)关于逆自旋霍尔电信号的定义可知, 总热电信号中包含有纵向自旋塞贝克效应诱发的热电信号的贡献其可描述为:

$$V_{SSE} = [(V_T/R_T) - (V_{FM}/R_{FM})]R_{NM} \quad (10)$$

经计算得 1 号样品的自旋塞贝克电压为 $14.95 \mu\text{V}$, 2 号样品的自旋塞贝克电压为 $4.02 \mu\text{V}$ 。其自旋塞贝克系数定义为:

$$\beta = \frac{V_{\text{SSE}}/L_y}{\Delta T/L_z} \quad (11)$$

由方程(4)以及方程(6), 方程(11)可以改写为:

$$\beta = V_{\text{SSE}} K S / L_y P \quad (12)$$

根据表达式(12), 采用实验测量得到的自旋塞贝克电压, 计算得到 1 号样品的自旋塞贝克系数为 $0.259 \mu\text{V/K}$, 2 号样品为 $0.156 \mu\text{V/K}$, 二者具有相同的数量级, 表明 Co_2MnSn 薄膜的制备温度对其自旋塞贝克效应有着较明显的影响。

4. 结论

本文主要研究了溅射温度对半金属 Co 基哈斯勒合金 Co_2MnSn 薄膜的晶体结构及其反常能斯特效应与自旋塞贝克效应的影响。研究结果显示, 通过调节薄膜的沉积温度可以得到 B2 结构的 Co_2MnSn 薄膜, 并且通过调控沉积温度可以实现对 Co_2MnSn 薄膜磁性能和电性能的调节。通过对 B2 相的 Co_2MnSn 薄膜反常能斯特效应与自旋塞贝克效应的研究, 发现 Co_2MnSn 薄膜的制备温度对于其反常能斯特效应和自旋塞贝克效应都有着不可忽视的影响。其中 500°C 沉积的 Co_2MnSn 薄膜的反常能斯特系数为 $0.7 \mu\text{V/K}$, 这比 Fe, Co, Ni 等传统金属(约 $0.03 \mu\text{V/K}$)大 20 倍。综上所述, 对于基于反常能斯特效应的热电设备, Co_2MnSn 是一种良好的热电材料, 通过调节 Co_2MnSn 薄膜的制备温度, 可以在一定程度上对其反常能斯特效应和自旋塞贝克效应进行调控。

基金项目

感谢国家自然科学基金(批准号: 51371105)的支持。

参考文献

- [1] Zutic, I., Fabian, J. and DasSarma, S. (2004) Spintronics: Fundamentals and Applications. *Review of Modern Physics*, **76**, 323-410. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.76.323>
- [2] Jungwirth, T., Wunderlich, J.R. and Oleinik, K. (2012) Spin Hall Effect Devices. *Nature Materials*, **11**, 382-390. <https://doi.org/10.1038/nmat3279>
- [3] Ando, K., Takahashi, S. and Ieda, J. (2011) Inverse Spin-Hall Effect Induced by Spin Pumping in Metallic System. *Journal of Applied Physics*, **109**, Article ID: 103913. <https://doi.org/10.1063/1.3587173>
- [4] Bauer, G., Saitoh, E. and Wees, B. (2012) Spin Caloritronics. *Nature Materials*, **11**, 391-399. <https://doi.org/10.1038/nmat3301>
- [5] Ikhlas, M., Tomita, T. and Koretsune, T. (2017) Large Anomalous Nernst Effect at Room Temperature in a Chiral Antiferromagnet. *Nature Physics*, **13**, 1085-1090. <https://doi.org/10.1038/nphys4181>
- [6] Kannan, H., Fan, X. and Celik, H. (2017) Thickness Dependence of Anomalous Nernst Coefficient and Longitudinal Spin Seebeck Effect in Ferromagnetic $\text{Ni}_x\text{Fe}_{100-x}$ Films. *Scientific Reports*, **7**, Article No. 6175. <https://doi.org/10.1038/s41598-017-05946-1>
- [7] Uchida, K., Takahashi, S. and Harii, K. (2008) Observation of the Spin Seebeck Effect. *Nature*, **455**, 778-781. <https://doi.org/10.1038/nature07321>
- [8] Holanda, J., Alves, S.O. and Cunha, R.O. (2017) Longitudinal Spin Seebeck Effect in Permalloy Separated from the Anomalous Nernst Effect: Theory and Experiment. *Physical Review B*, **95**, Article ID: 214421. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.214421>
- [9] Chuang, T.C., Su, P.L. and Po-Hsun, W. (2017) Enhancement of the Anomalous Nernst Effect in Ferromagnetic Thin Films. *Physical Review B*, **96**, Article ID: 174406. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.174406>

- [10] Ando, Y. (2015) Spintronics Technology and Device Development. *Japanese Journal of Applied Physics*, **54**, Article ID: 10101. <https://doi.org/10.7567/JJAP.54.070101>
- [11] Mizuguchi, M. and Nakatsuji, S. (2019) Energy-Harvesting Materials Based on the Anomalous Nernst Effect. *Science and Technology of Advanced Materials*, **20**, 262-275. <https://doi.org/10.1080/14686996.2019.1585143>
- [12] Uchida, K.I., Adachi, H. and Kikkawa, T. (2016) Thermoelectric Generation Based on Spin Seebeck Effects. *Proceedings of the IEEE*, **104**, 1946-1973. <https://doi.org/10.1109/JPROC.2016.2535167>
- [13] Sakuraba, Y. (2016) Potential of Thermoelectric Power Generation Using Anomalous Nernst Effect in Magnetic Materials. *Scripta Materialia*, **111**, 29-32. <https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2015.04.034>
- [14] Rezende, S.M., Rodríguez-Suárez, R.L. and Cunha, R.O. (2016) Bulk Magnon Spin Current Theory for the Longitudinal Spin Seebeck Effect. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **400**, 171-177. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2015.07.102>
- [15] Reichlova, H., Schlitz, R. and Beckert, S. (2018) Large Anomalous Nernst Effect in Thin Films of the Weyl Semimetal Co₂MnGa. *Applied Physics Letters*, **113**, 212405.1-212405.5. <https://doi.org/10.1063/1.5048690>
- [16] Sakai, A., Mizuta, Y.P. and Nugroho, A.A. (2018) Giant Anomalous Nernst Effect and Quantum-Critical Scaling in a Ferromagnetic Semimetal. *Nature Physics*, **14**, 1119-1124. <https://doi.org/10.1038/s41567-018-0225-6>
- [17] Sakuraba, Y., Hyodo, K. and Sakuma, A. (2018) Strategic Enhancement of Anomalous Nernst Effect in Co₂MnAl_{1-x}Si_x Heusler Compounds. <https://arxiv.org/abs/1807.02209>
- [18] Graf, T., Claudia, F. and Stuart, S.P.P. (2011) Simple Rules for the Understanding of Heusler Compounds. *Progress in Solid State Chemistry*, **39**, 1-50. <https://doi.org/10.1016/j.progsolidstchem.2011.02.001>
- [19] Geiersbach, U., Bergmann, A. and Westerholz, K. (2002) Structural, Magnetic and Magnetotransport Properties of Thin Films of the Heusler Alloys Cu₂MnAl, Co₂MnSi, Co₂MnGe and Co₂MnSn. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **240**, 546-549. [https://doi.org/10.1016/S0304-8853\(01\)00866-6](https://doi.org/10.1016/S0304-8853(01)00866-6)
- [20] Rai, D. and Thapa, R. (2013) Electronic Structure and Magnetic Properties of X₂YZ (X = Co, Y = Mn, Z = Ge, Sn) Type Heusler Compounds: A First Principle Study. *Phase Transitions*, **85**, 1-11. <https://doi.org/10.1080/01411594.2012.661860>
- [21] Wang, Z., Vergniory, M.G. and Kushwaha, S. (2016) Time-Reversal-Breaking Weyl Fermions in Magnetic Heusler Alloys. *Physical Review Letters*, **117**, Article ID: 236401. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.117.236401>
- [22] Manna, K., Sun, Y. and Muechler, L. (2018) Heusler, Weyl and Berry. *Nature Reviews Materials*, **3**, 244-256. <https://doi.org/10.1038/s41578-018-0036-5>
- [23] Balke, B., Ouardi, S. and Graf, T. (2010) Seebeck Coefficients of Half-Metallic Ferromagnets. *Solid State Communications*, **150**, 529-532. <https://doi.org/10.1016/j.ssc.2009.10.044>
- [24] Sola, A., Basso, V. and Kuepferling, M. (2019) Spincaloritronic Measurements: A Round Robin Comparison of the Longitudinal Spin Seebeck Effect. *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, **68**, 1765-1773. <https://doi.org/10.1109/TIM.2018.2882930>
- [25] Zhang, W., Jiko, N. and Okuno, T. (2007) Structural and Magnetic Properties of Co₂MnSn Films and Co₂MnSn/Cr Multilayers. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **309**, 132-138. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2006.06.023>