

Исследование эффекта Нернста–Эттингсгаузена в тонких слоях Co/Pt при комнатных температурах

© Ю.М. Кузнецов^{1,2}, Д.А. Здоровейщев^{1,2}, М.В. Дорохин^{1,2}, А.В. Здоровейщев²

¹ Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского, Нижний Новгород, Россия

² Научно-исследовательский физико-технический институт Нижегородского государственного университета им. Н.И. Лобачевского, Нижний Новгород, Россия

E-mail: y.m.kuznetsov@unn.ru

Поступила в Редакцию 6 марта 2025 г.

В окончательной редакции 6 марта 2025 г.

Принята к публикации 5 мая 2025 г.

Представлены результаты измерений аномального эффекта Нернста–Эттингсгаузена в тонких металлических пленках Co/Pt, сформированных на различных подложках. Продемонстрировано подобие магнитолевых зависимостей эффектов Холла и Нернста–Эттингсгаузена. Предполагается, что подобные металлические структуры перспективны для практического приложения в роли термомагнитных преобразователей энергии, а также могут быть полезны для исследований в области тепловой спинтроники.

Ключевые слова: Co/Pt, тонкие металлические пленки, эффект Нернста–Эттингсгаузена, эффект Холла, эффект Зеебека.

DOI: 10.61011/FTT.2025.06.60965.7NN-25

1. Введение

Термоэлектрический эффект Зеебека — явление возникновения разности потенциалов между гранями материала, под воздействием градиента температур. Эффект Зеебека лежит в основе принципа работы термоэлектрических генераторов, преобразующих тепловую энергию в электрическую, и востребованных в агрессивных эксплуатационных условиях, в которых получение электрической энергии „классическими“ путями затруднено, либо принципиально невозможно [1]. Коэффициент пропорциональности между возникающим электрическим напряжением и созданным градиентом температур называют коэффициентом Зеебека. Эффективность термоэлектрического преобразования описывается коэффициентом $ZT = \alpha^2 T / \rho \lambda$ (коэффициент термоэлектрической эффективности, где α — коэффициент Зеебека (электрическое напряжение, возникающее при разности температур в 1 К), ρ — удельное сопротивление, λ — коэффициент теплопроводности). Считается, что материал является перспективным для термоэлектрических приложений при условии: $ZT \geq 1$. Основными материалами в термоэлектрических генераторах являются сильнолегированные полупроводники, обладающие эффективностью на уровне единицы в различных температурных диапазонах: в низкотемпературной области 300–500 К — Bi_2Te_3 [2], среднетемпературной области 500–700 К — GeTe [3] и высокотемпературной области 600–900 К — твердые растворы $\text{Ge}_x\text{Si}_{1-x}$ [4].

Металлы обладают низким коэффициентом α , поэтому, несмотря на ряд явных преимуществ металлов перед

полупроводниками, основными из которых являются высокая электропроводность и радиационная стойкость, эти материалы не используются в термоэлектрических генераторах, а применяются лишь в качестве контактных температурных датчиков — термопар. Одним из способов повышения термоэлектрической эффективности металлов является использование термомагнитных эффектов, возникающих в ферромагнитных материалах [5]. Особый интерес вызывает аномальный эффект Нернста–Эттингсгаузена, проявляющийся в тонкопленочных системах с сильной магнитной анизотропией — возникновение продольной или поперечной по отношению к направлению градиента температур разности потенциалов при нахождении образца во внешнем магнитном поле (продольный и поперечный эффекты, соответственно).

Целями работы являлись исследование эффекта Нернста–Эттингсгаузена в тонких ферромагнитных пленках Co/Pt в интересном для практики диапазоне температур вблизи комнатной, а также анализ взаимосвязь указанного явления с магнетизмом структуры. Для достижения указанной цели решались следующие задачи: создание измерительной геометрии, обеспечивающей одновременную регистрацию эффектов Холла и Нернста–Эттингсгаузена; измерение термомагнитного и гальваномангнитного эффектов в близких условиях, сопоставление результатов исследования магнитолевых зависимостей напряжения Холла и Нернста–Эттингсгаузена.

В настоящей статье приводятся результаты исследования поперечного термомагнитного эффекта Нернста–Эттингсгаузена на примере тонких многослойных пле-

нок Co/Pt. Ранее в работе [5] авторами статьи был исследован термомагнитный эффект Нернста–Эттингсгаузена в пленке, состоящей из 10-слоев состава $[\text{Co}(3 \text{ \AA})/\text{Pt}(5 \text{ \AA})]_{10}$. Было показано наличие аномального эффекта в широком диапазоне температур 10–300 К. Магнитополевая зависимость напряжения Нернста–Эттингсгаузена представляла собой вид петли гистерезиса. С повышением температуры ширина петли уменьшалась, однако амплитуда напряжения Нернста–Эттингсгаузена увеличивалась, что вызывает интерес к исследованию термомагнитного эффекта в данной пленке при повышенных относительно комнатной температурах. Отметим, что наибольший практический интерес представляет исследование эффекта именно выше комнатной температуры, так как для этой области реализовано большинство приборных применений термоэлектрических материалов.

2. Краткое описание гальваномагнитных и термомагнитных явлений

Известно, что при пропускании через образец электрического тока I во внешнем магнитном поле B возникнет поперечная разность потенциалов — напряжение Холла U_H , определяемое выражением [6]:

$$R = U_H/I = R_H B + R_{AH} M(B), \quad (1)$$

где R — коэффициент Холла, R_H, R_{AH} — обыкновенная и аномальная постоянные Холла соответственно, $M(B)$ — полевая зависимость намагниченности образца. Появление аномальной составляющей обусловлено наличием спинзависимого рассеяния свободных носителей заряда в образце и приводит к искажению линейной магнитополевой зависимости $R(B)$. Для ряда материалов, в особенности для сложных ферромагнитных сплавов, выполняется неравенство $R_H \ll R_{AH}$, в этом случае вид кривой $R(B)$ определяется видом магнитополевой зависимости намагниченности пленки $M(B)$. Подобное неравенство может быть справедливым и для простых ферромагнетиков, например, для Ni [7].

Для наблюдения эффекта Нернста–Эттингсгаузена на противоположных гранях материала необходимо создать градиент температур ΔT , который в свою очередь вызовет поток свободных носителей заряда от „горячей“ грани к „холодной“ и наоборот. Под воздействием внешнего магнитного поля, по аналогии с эффектом Холла, возникнет поперечное напряжение Нернста–Эттингсгаузена U_{NE} , определяемое выражением [8]:

$$Q = \frac{U_{NE}}{\Delta T} = Q_{NE} B + Q_{ANE} M(B), \quad (2)$$

где Q — коэффициент Нернста–Эттингсгаузена, Q_{NE} и Q_{ANE} — обыкновенная и аномальная постоянные Нернста–Эттингсгаузена соответственно. Из формулы (2) следует, что по аналогии с аномальным эффектом

Холла (1) вид магнитополевой зависимости напряжения Нернста–Эттингсгаузена определяется видом функции $M(B)$ из чего следует, что зависимости $R(B)$ и $Q(B)$ подобны.

Также по аналогии с аномальным эффектом Холла величина аномальной составляющей эффекта Нернста–Эттингсгаузена в сложных ферромагнитных сплавах может существенно превышать обыкновенный термомагнитный эффект. Например, в литературе имеются сообщения о наблюдении большого аномального термомагнитного эффекта в тонких пленках Fe_3GeTe_2 [9], CoFe [10], MnSb [11], $\text{Li}_{0.9}\text{Mo}_6\text{O}_{17}$ [12], $\text{L}_{10}\text{–FePt}$ [13], Fe_3O_4 [14]. Описание возникновения аномальной составляющей термомагнитного эффекта Нернста–Эттингсгаузена авторами данной статьи ранее изложено в работе [5].

3. Формирование тонкопленочных структур для исследования термомагнитных эффектов

В настоящей работе в качестве объекта исследования выступала пленка CoPt , сформированная на различных подложках поверх предварительно осажденного тонкого ($\sim 1 \text{ nm}$) слоя Al_2O_3 путем поочередного напыления слоев Pt (5 Å) и Co (3 Å) методом электронно-лучевого осаждения в вакууме. Общее количество слоев $[\text{Co/Pt}]$ равно 10, таким образом общая толщина пленки CoPt составила $\sim 8 \text{ nm}$. Толщины слоев контролировались в процессе напыления с помощью кварцевого датчика толщины. Предварительно сформированный тонкий слой оксида алюминия необходим для предотвращения диффузии атомов кобальта в подложку [15]. Состав пленки соответствовал образцу, который исследовался в работе [5] в диапазоне температур 10–300 К авторами данной статьи.

В рамках настоящей работы было подготовлено два образца одинакового состава, сформированных на подложках полупроводникового арсенида галлия ориентации $\langle 100 \rangle$ и кремния ориентации $\langle 100 \rangle$, удельное сопротивление которого было более $3000 \text{ Ohm} \cdot \text{cm}$. Сопротивление подложек существенно превышает сопротивление сформированных на них пленок, это позволяет считать, что возникающие в результате внешнего воздействия кинетические явления протекают исключительно в металлической пленке. Выбор подложек обусловлен их доступностью, удовлетворительными параметрами шероховатости и удельного сопротивления, а также разбросом значений их коэффициентов теплопроводности λ . Так теплопроводность кремниевой пластины в три раза превышает теплопроводность арсенида галлия при комнатной температуре: $\lambda_{\text{GaAs}} = 55 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ [16], $\lambda_{\text{Si}} = 155 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ [17]. Так как толщина пленки существенно меньше толщины подложки, а значение коэффициента теплопроводности подложки относительно

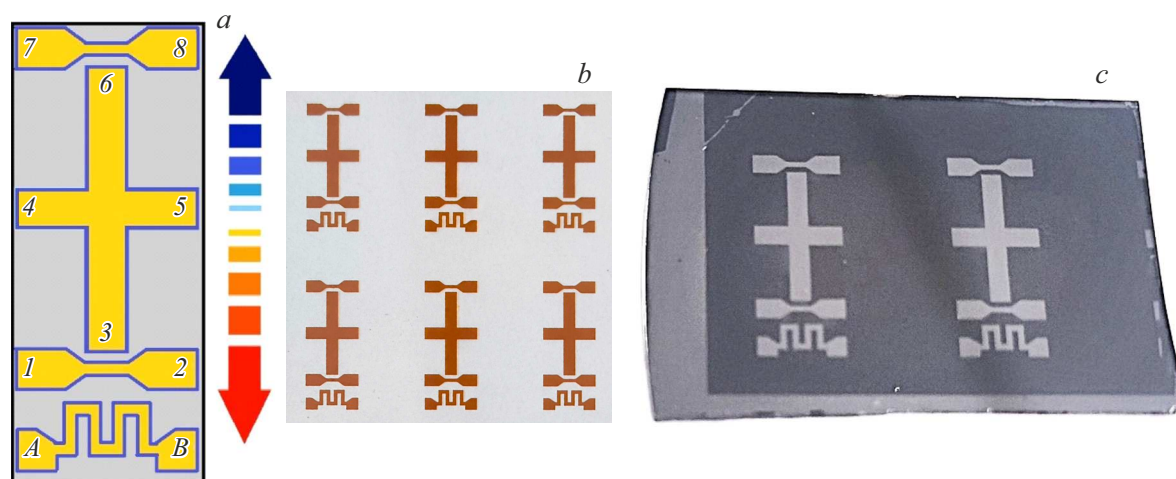


Рис. 1. *a* — топология пленки для измерений гальваномагнитных, термоэлектрических и термомагнитных эффектов: 1–2, 7–8 — терморезисторы, 3–4–5–6 — контакты для измерений эффектов Холла и Нернста–Эттингсгаузена, А–В — резистор-нагреватель; *b* — фотошаблон; *c* — фотография образца с литографическим рисунком.

велико, процессы теплопереноса определяются именно подложкой.

Коллективом авторов данной статьи ранее в работе [18] были проведены фазовые и структурные исследования образцов подобного состава методом рентгеновской дифракции при помощи дифрактометра Bruker D8 Discover. Согласно исследованиям в пленках вида $[\text{Co}(3)/\text{Pt}(5)]_{10}$ отдельные слои Co и Pt сильно перемешаны между собой и представляют собой твердый раствор $\text{Co}_x\text{Pt}_{1-x}$ с периодически изменяющимся переменным составом $x \sim 0.45$.

4. Методика эксперимента

С целью исследования гальваномагнитных и термомагнитных эффектов в сформированных образцах методом фотолитографии создавалась специальная топология контактов, схема которой показана на рис. 1, *a*.

Литографический рисунок формировался реактивным ионным травлением (Ar^+), в результате которого на одной подложке на базе одной пленки создавалось четыре структуры различного функционального назначения: структуры 1–2, 7–8 — выполняли функцию терморезисторов (длина — 1 mm, ширина — $250 \mu\text{m}$), система контактов 3–6 — исследуемый образец (расстояние 3–6 — 7 mm, расстояние 4–5 — 4.5 mm, ширина полосок — 1 mm), структура А–В — резистор-нагреватель формы меандра. Изображение фотошаблона показано на рис. 1, *b*, а пленки, сформированной на подложке $i\text{-GaAs}$ — на рис. 1, *c*. Для оценки влияния процесса травления на электрофизические свойства пленки были проведены измерения удельного сопротивления пленки до и после травления на отдельной пластине стандартной четырехконтактной схемой в геометрии Ван-Дер-Пау. Удельное сопротивление до травления

составило величину $(5.650 \pm 0.003) \cdot 10^{-5} \text{ Ohm} \cdot \text{cm}$, после травления — $(5.652 \pm 0.003) \cdot 10^{-5} \text{ Ohm} \cdot \text{cm}$, что совпадает в пределах погрешности. Интегральное сопротивление терморезисторов $\sim 350 \text{ Ohm}$, резистора-нагревателя $\sim 1.5 \text{ kOhm}$.

Отметим, что описанная выше форма образца 3–6 обладает симметричным расположением контактов 4 и 5 по линии, строго перпендикулярной создаваемому градиенту температур, что создает нулевую разность температур между этими контактами. В этом случае на величину регистрируемого напряжения Нернста–Эттингсгаузена не влияют „паразитные“ составляющие, такие как контактная термоэдс между подводящими проводами и образцом, а также объемная термоэдс образца.

Измерения проводились в электромагните, подключенном к автоматизированному источнику напряжения АКИП-1105. Развертка магнитного поля осуществлялась в диапазоне $\pm 150 \text{ mT}$. Величина индукции магнитного поля регистрировалась датчиком магнитного поля на основе арсенида индия с помощью автоматизированной системы сбора данных L-CARD E14-140MD.

Для измерения термомагнитного эффекта Нернста–Эттингсгаузена в направлении линии контактов 3–6 создавался градиент температур путем пропускания электрического тока через резистор-нагреватель. Разогрев резистора осуществлялся с помощью источника-измерителя тока Keithley 6221. Величина градиента температур регистрировалась путем измерения изменения сопротивлений терморезисторов и сопоставлению этого изменения с калибровочной характеристикой на основе температурного коэффициента сопротивления. Направление температурного градиента схематично показано цветной стрелкой на рис. 1, *a*. Температурный коэффициент сопротивления (ТКС) нагревателя А–В и терморезистора 7–8 одинаков, так как оба элемента

сформированы из одной и той же пленки CoPt. Значение ТКС вычислялось из дополнительного эксперимента путем анализа температурной зависимости сопротивления и составило величину $(4.341 \pm 0.013) \cdot 10^{-3} \text{ K}^{-1}$. Экспериментально была оценена величина магнетосопротивления терморезисторов и получена величина не более 0.01%, что позволяет считать, что магнитные свойства CoPt слабо влияют на точность измерения изменения сопротивления под воздействием разогрева. Точность определения температуры составила $\sim 0.1 \text{ K}$. Для увеличения градиента противоположная грань подложки со сформированной системой контактов прижималась к массивному медному радиатору. Характерные значения температурного градиента $\sim (0.5\text{--}5.0)^\circ\text{C}$ и определяется коэффициентом теплопроводности подложки, на которой сформирована исследуемая пленка. Возникающее в образце электрическое напряжение регистрировалось автоматизированным источником/измерителем тока/напряжения Keithley 2401. Измерения проводились на открытом воздухе при температуре окружающей среды 300 K.

При измерении магнитолевой зависимости эффекта Холла резистор-нагреватель оставался включенным, между контактами 3 и 6 пропусклся электрический ток, а между контактами 4–5 регистрировалось напряжение Холла. Такая схема позволила проводить регистрацию напряжений Холла и Нернста–Эттингсгаузена при одинаковой средней температуре образца. Это позволяет корректно сопоставлять экспериментальные магнитолевые зависимости обоих эффектов.

5. Результаты

На рис. 2 показаны экспериментально полученные магнитолевые зависимости сопротивления Холла исследуемых образцов при температуре 300 K. В легенде графике указаны подложки, на которых сформированы образцы: *i*-GaAs — полуизолирующий арсенид галлия, Si — кремний.

Полученные магнитолевые зависимости сопротивления Холла имеют вид петли гистерезиса, что свидетельствует о наличии ферромагнитных свойств в исследуемых пленках. Кривые хорошо сопоставляются между собой. Отметим, что кривые хорошо согласуются с результатами, полученными ранее в работе [5], что свидетельствует о высокой технологической повторяемости состава и, как следствие, магнитных свойств пленок.

На рис. 3, *a* и *b* показаны сопоставление магнитолевых зависимостей сопротивлений Холла (HALL) и напряжений Нернста–Эттингсгаузена (NE) пленок на подложке арсенида галлия и кремния соответственно. Градиент температур создавался путем пропускания через резистор-нагреватель тока 20 mA. Средняя температура образцов при измерении магнитолевой зависимости напряжения Нернста–Эттингсгаузена составляла 345 K. Разность температур между противоположными

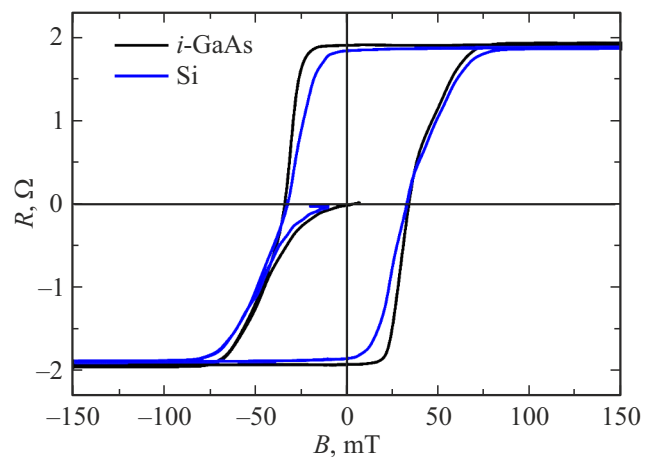


Рис. 2. Экспериментально полученные магнитолевые зависимости сопротивления Холла при 300 K пленок, сформированных на подложках полуизолирующего арсенида галлия (*i*-GaAs, черная кривая) и кремния (Si, синяя кривая).

концами пленки на арсениде галлия составила величину $(1.35 \pm 0.10) \text{ K}$, на кремнии — $(0.55 \pm 0.10) \text{ K}$.

Магнитолевые зависимости сопротивления Холла и напряжения Нернста–Эттингсгаузена в случае обеих рассмотренных структур подобны, что коррелирует с описанной выше теорией пропорциональности аномальной составляющей обоих эффектов величине намагниченности. Величина $U_{NE}(B)$ пленки, сформированной на Si (рис. 3, *b*, черная кривая), более, чем в 2 раза ниже, чем для пленки, сформированной на *i*-GaAs (рис. 3, *a*, черная кривая). Так как теплопроводность кремния и арсенида галлия различна, как и предполагалось, при одинаковой мощности разогрева резистора-нагревателя, величина градиента температур на кремниевой подложке меньше, чем на подложке арсенида галлия. Для сравнения термомангнитного эффекта в двух пленках на рис. 4, *a* показаны магнитолевые зависимости пересчитанного по формуле (2) коэффициента Нернста–Эттингсгаузена, на рис. 4, *b* — магнитолевые зависимости сопротивления Холла.

Из рис. 4, *a* видно, что магнитолевые зависимости коэффициента Нернста–Эттингсгаузена двух образцов, по аналогии с магнитолевыми зависимостями сопротивления Холла (рис. 4, *b*) близки друг к другу, следовательно подложка, на которой сформирована пленка слабо влияет на величину термомангнитного эффекта. Основным фактором влияния подложки на измерения, по видимому, это величина теплопроводности, определяющая величину создаваемого температурного градиента при прочих равных условиях подвода и отвода теплового потока. С практической точки зрения целесообразно использовать тонкие подложки, обладающие низким коэффициентом теплопроводности. Такой подход позволит как увеличить градиент температур, тем самым повысить величину возникающего термомангнитного напряжения, так и предотвратить электрическую прово-

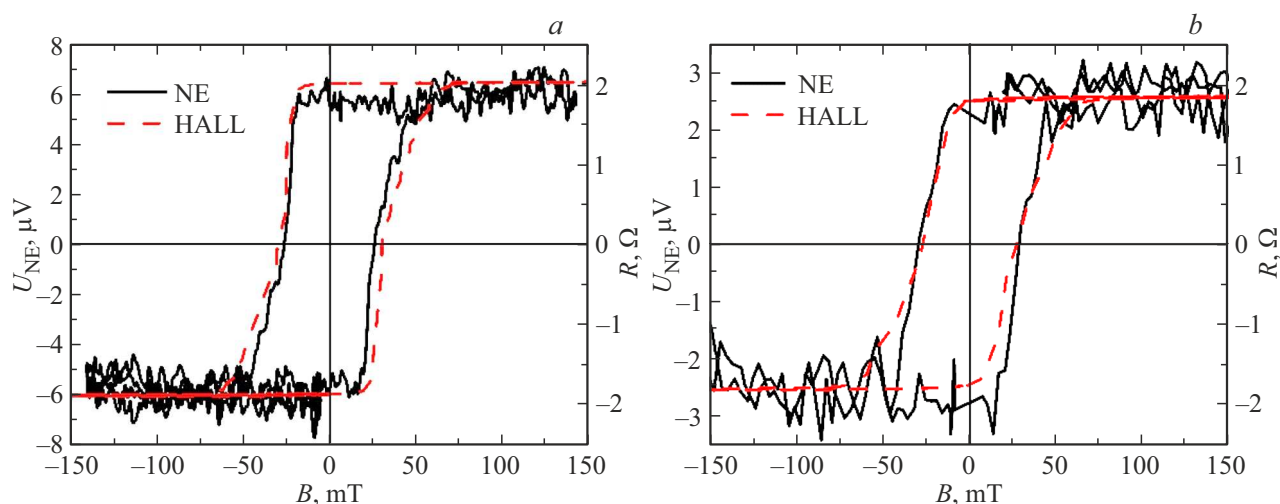


Рис. 3. Сопоставление экспериментально полученных магнито-транспортных зависимостей сопротивления Холла и напряжения Нернста–Эттингсгаузена пленки, сформированной на подложках *i*-GaAs (а) и Si (b).

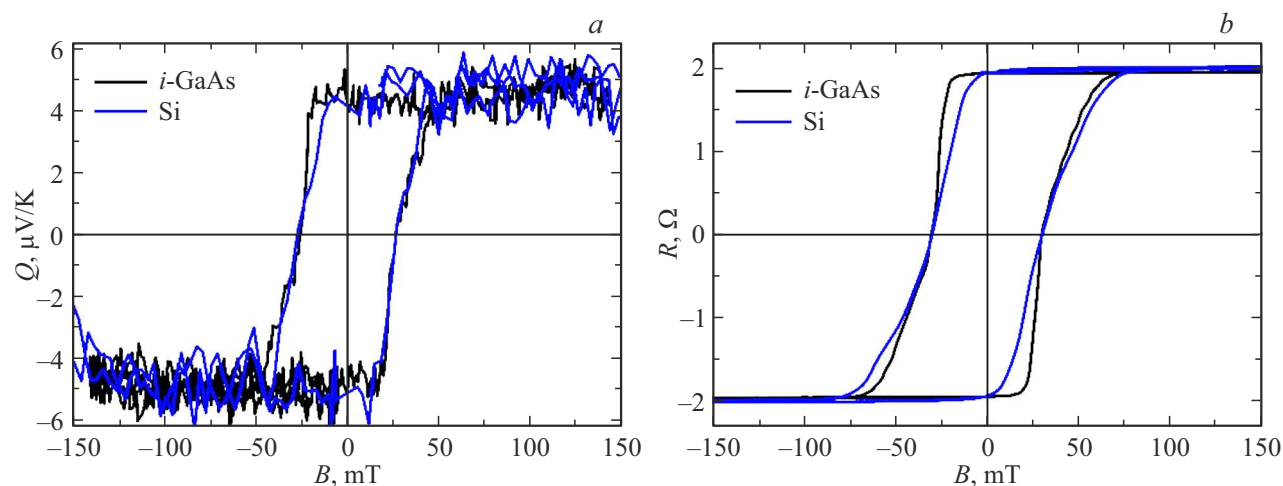


Рис. 4. Сопоставление экспериментально полученных магнито-транспортных зависимостей коэффициентов Нернста–Эттингсгаузена (а) и сопротивлений Холла (b) исследуемых образцов при средней температуре 345 К.

димость подложки, которая неизбежно возникнет при дальнейшем разогреве всей структуры. Использование ультратонких подложек целесообразно и с практической точки зрения, так как за счет большего градиента температур это позволяет получать более высокие значения термомагнитного напряжения.

Из сопоставления магнито-транспортных зависимостей сопротивления Холла образцов, полученных при комнатной температуре (рис. 2) и 345 К (рис. 4, b) видно, что при увеличении температуры происходит уменьшение величины коэрцитивного поля, но также наблюдается рост амплитуды эффекта.

Примечательно, что исходя из вида магнито-транспортных зависимостей коэффициента Нернста–Эттингсгаузена можно сделать вывод, что исследуемую пленку можно рассматривать как „тепловую ячейку памяти“. Структура „помнит“ свое состояние при отсутствии внешнего

магнитного поля, при этом внешним источником питания является не какой-либо источник напряжения, а температурный градиент. Этот опыт является прекрасной демонстрацией тепловой спинтроники — направления, которое в зарубежной литературе активно обсуждается с 2008 года [19].

6. Заключение

В работе приведены результаты исследований гальваномагнитных и термомагнитных свойств тонких многослойных пленок Co/Pt, сформированных на подложках полупроводникового арсенида галлия и кремния. Продемонстрирована высокая технологическая повторяемость свойств пленок вне зависимости от выбора подложки. Установлено, что при повышении температуры относительно комнатной магнито-транспортные зависимости рас-

смаатриваемых эффеаков соахраняют вид петли гистерезиса, но с уменьшенным значением величины коэрцитивной силы. Обнаружено сильное влияние теплопроводности подложки на формируемый во всей структуре градиент температуры. Дальнейшее развитие работы предполагается в исследовании термомагнитного эффекта при более высокой температуре в тонких пленках Co/Pt нанесенных на подложки, обладающие экстремально низким значением коэффициента теплопроводности.

Финансирование работы

Работа поддержана грантом РНФ (проект № 24-79-00065).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] Z. Miao, X. Meng, X. Li, B. Liang, H. Watanabe. Appl. Therm. Eng. **258**, 124745 (2025).
- [2] D. Liu, S. Bai, Y. Wen, J. Peng, S. Liu, H. Shi, Y. Li, T. Hong, H. Liang, Y. Qin, L. Su, X. Qian, D. Wang, X. Gao, Z. Ding, Q. Cao, Q. Tan, B. Qin, L-D. Zhao. Natl. Sci. Rev. **12**, 2, 448 (2025).
- [3] H. Li, C. Chen, J. Cheng, Y. Xia, S. Lyu, K. Liu, W. Xue, D. Shen, W. Wang, Q. Zhang, Y. Chen. Nano Energy **136**, 110690 (2025).
- [4] M.V. Dorokhin, Yu.M. Kuznetsov, P.B. Demina, I.V. Erofeeva, A.Yu. Zavrazhnov, M.S. Boldin, E.A. Lantsev, A.A. Popov, A.V. Boryakov, A.V. Zdoroveyshchev, M.V. Ved, D.A. Zdoroveyshchev, M.G. Korotkova. Nanoscale Microscale Thermophys. Eng. **27**, 2, 125 (2023).
- [5] Ю.М. Кузнецов, М.В. Дорохин, А.В. Здорвейщев, А.В. Кудрин, П.Б. Демина, Д.А. Здорвейщев. УФН **193**, 3, 331 (2023).
- [6] N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A.H. MacDonald, N.P. Ong. Rev. Mod. Phys. **82**, 1539 (2010).
- [7] A.W. Smith. Phys. Rev. (Series I) **30**, 1 (1910).
- [8] А.Д. Арсеньева, Р.П. Васильева, А.В. Ведаев, А.Б. Грановский, Г.М. Мялигулыев, А.В. Печеников, А.Ф. Прокошин, С.И. Стадник. ФТТ **33**, 5, 1443 (1991).
- [9] J. Xu, W.A. Phelan, C-L. Chien. Nano Lett. **19**, 11, 8250 (2019).
- [10] M. Mizuguchi, S. Nakatsuji. Sci. Technol. Adv. Mater. **20**, 1, 262 (2019).
- [11] M. Ikhlās, T. Tomita, T. Koretsune, M-T. Suzuki, D. Nishio-Hamane, R. Arita, Y. Otani, S. Nakatsuji. Nat. Phys. **13**, 1085 (2017).
- [12] J.L. Cohn, B.D. White, C.A.M. dos Santos, J.J. Neumeier. Phys. Rev. Lett. **108**, 056604 (2012).
- [13] M. Mizuguchi, S. Ohata, Ken. Uchida, E. Saitoh, K. Takanashi. Appl. Phys. Express **5**, 9, 093002 (2012).
- [14] R. Ramos, M. H. Aguirre, A. Anadón, J. Blasco, I. Lucas, K. Uchida, P.A. Algarabel, L. Morellón, E. Saitoh. Phys. Rev. B **90**, 054422 (2014).
- [15] А.В. Здорвейщев, М.В. Дорохин, О.В. Вихрова, П.Б. Демина, А.В. Кудрин, А.Г. Темиряев, М.П. Темиряева. ФТТ **11**, 58, 2186 (2016).
- [16] R.O. Carlson, G.A. Slack, S.J. Silverman. J. Appl. Phys. **36**, 2, 505 (1965).
- [17] C.J. Glassbrenner, G.A. Slack. Phys. Rev. **134**, 4A, A1058 (1964).
- [18] M.V. Dorokhin, A.V. Zdoroveyshchev, P.B. Demina, Yu.M. Kuznetsov, D.A. Zdoroveyshchev, A.V. Kudrin, M.P. Temiryazeva, A.G. Temiryazev, I.L. Kalentyeva, M.V. Ved', R.N. Kryukov, S.V. Zubkov, D.A. Tatarskiy. Coatings **15**, 2, 186 (2025).
- [19] K. Uchida, S. Takahashi, K. Harii, J. Ieda, W. Koshibae, K. Ando, S. Maekawa, E. Saitoh. Nature **455**, 778 (2008).

Редактор А.Н. Смирнов