

# 鉄系材料で室温・ゼロ磁場で世界最高の磁気熱電効果を実現

量子物質グループ 中辻研 講師 酒井 明人、教授 中辻 知

## (1) 研究背景

ディラック半金属やワイル半金属を始め、トポロジカルな電子構造を持つ物質への関心が近年高まっている。これらの物質はディラックコーンと呼ばれる線形バンド分散を持っており、ディラック(またはワイル)方程式に従う相対論的フェルミオンが存在すると見なすことができる。さらにディラックコーンの交点であるディラック点(ワイル点)はベリー曲率の湧き出しまたは吸い込みの特異点であり、波数空間の仮想磁場を生む。このベリー位相効果により、ホール効果やネルンスト効果が増強される等特異な現象を示す。

これまで中辻研究室では、カイラル反強磁性体  $Mn_3Sn$  が微小なネット磁化にもかかわらず強磁性体に匹敵する異常ホール効果や異常ネルンスト効果を示すワイル磁性体であることを発見し[1-3]、さらにホイスラー型強磁性体  $Co_2MnGa$  が巨大異常ネルンスト効果を室温で示すことを発見した[4]。これらの発見は物理として興味深いのに加え、応用上も大変重要である。実際、 $Mn_3Sn$  はこれまで応用に向かないとされてきた反強磁性体において、電子やスピンによる物性制御を可能にし、トポロジカル反強磁性体スピントロニクスとして発展している[5-7]。また  $Co_2MnGa$  は異常ネルンスト効果を熱電応用に利用する可能性を開き、現在 NEDO 先導研究プログラムで行っている熱電モジュール及び熱流センサーの開発へと繋がっている。

環境の微小温度差から発電する熱電変換技術は IoT 機器の自立電源として最適であり、熱電材料の開発には半世紀以上の研究が費やされてきた。しかし、既存の非磁性半導体を用いる熱電変換素子は発電方向が温度差の方向と同じであるため(ゼーベック効果)、立体的で複雑な構造になり、大型化や高集積化に伴う製造コストに問題を抱えている。一方、磁性体の異常ネルンスト効果は温度差の方向に垂直に発電するため、立体構造は不要で、テープ化などにより熱源に沿った大面積の発電が容易である。

## (2) 研究結果[8]

材料探索には多くの苦勞が付きものであるが、近年の計

算機及び計算技術の発展により候補を予め絞ることが可能になってきている。本研究では、東北大学是常准教授を中心に第一原理計算を高速かつ自動で行い(ハイスループット計算)、1400 の物質の電子状態および強磁性状態でのホール伝導率や横熱電係数の計算を行った。その中から鉄(クラーク数 4 位; 地球上に豊富に存在)を含む二元系に着目した。そのようにして見つかった化合物が  $Fe_3X$  ( $X = Ga, Al$ ) である(図 1a)。結晶構造は立方晶  $DO_3$  型であり、 $X$  を  $Fe$  に置き換えると  $\alpha-Fe$  (bcc 構造) に一致する。

図 1b は異常ネルンスト係数の温度依存性である。 $Fe_3Ga$  は室温で約  $6 \mu V/K$ 、 $Fe_3Al$  は室温で約  $4 \mu V/K$  であり、過去最大値に匹敵する大きさである。また室温付近で高い性能を維持する。さらに薄膜化にも成功し、ゼロ磁場でバルクと同等の異常ネルンスト効果を示すことを確認した。

異常ネルンスト係数  $S_{yx}$  は横磁気熱電係数  $\alpha_{yx}$ 、ホール伝導率  $\sigma_{yx}$ 、電気抵抗率  $\rho_{yy}$ 、ゼーベック係数  $S_{xx}$  を用いて  $S_{yx} = \alpha_{yx}\rho_{yy} - \sigma_{yx}\rho_{yy}S_{xx}$  と書き表せる。右辺第 1 項は  $\alpha_{yx}$  によりキャリアの移動が曲げられる成分、第 2 項は  $\sigma_{yx}$  により曲げられる成分と解釈できる。実験的に各成分を求めると、 $Fe_3X$  では右辺第 1 項が 8 割程度の寄与をしめており、 $\alpha_{yx}$  が非常に大きな値( $Fe_3Ga$  では過去最高値  $5.2 A/Km$ ) になっていることがわかった。

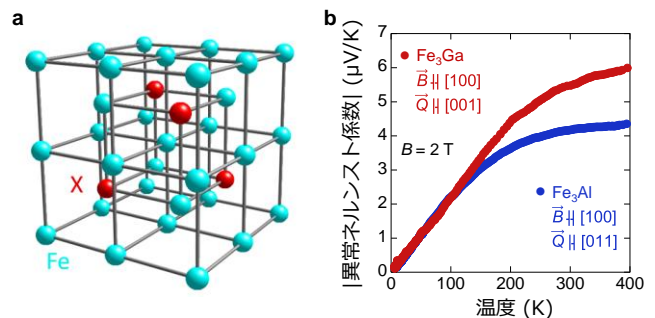


図 1  $Fe_3X$  ( $X = Ga, Al$ ) の (a) 結晶構造、(b) 異常ネルンスト係数の温度依存性。

$\alpha_{yx}$  はモットの関係式より、ベリー曲率  $\Omega$  と  $\alpha_{yx} =$

$\frac{\pi^2 k_B^2 T e^2}{3 |e| \hbar} \sum_{n,k} \Omega_{n,z}(\mathbf{k}) \delta(E_F - \epsilon_{n,k})$  の関係があるため、ベリー曲率と状態密度を同時に大きくする必要がある。こ

の起源調べるため、金沢大学を中心に電子構造の詳細な解析を行った。図 2a はスピン軌道相互作用を含めない場合の、 $L$  点まわりのバンド構造である。赤のバンドと青のバンドは黄色で示したノーダルライン上で接している。スピン軌道相互作用を入れると、有限のバンドギャップが開くが、ギャップが小さいためベリー曲率

$$\Omega_{n,\mu\nu} = i \sum_{n' \neq n} \frac{\langle n | v_\mu | n' \rangle \langle n' | v_\nu | n \rangle}{(\epsilon_n - \epsilon_{n'})^2}$$

は大きくなる(図 2b)。このような蜘蛛の巣上のノーダルラインのためベリー曲率と状態密度が同時に大きくなり、 $\alpha_{yx}$ の増大に繋がっている。

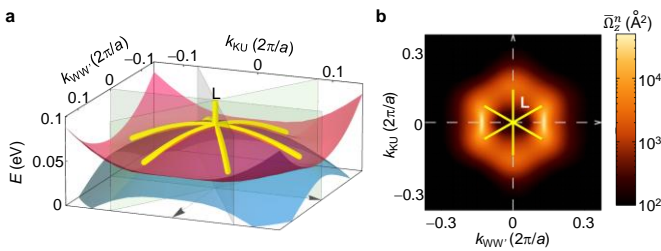


図 2 (a)  $\text{Fe}_3\text{X}$  ( $X = \text{Ga}, \text{Al}$ ) の  $L$  点まわりのバンド構造(ノーダルウェブ)。(b) バンド  $n$ (図 2a の青いバンド)のベリー曲率。

### (3) 今後の展望

$\text{Fe}_3\text{Al}$ 、 $\text{Fe}_3\text{Ga}$  は結晶の乱れに強く、汎用材料を用いた廉価で応用性の高い材料であり、フレキシブルな IoT センサーや熱流センサーなどに活用されることが期待される。

- [1] S. Nakatsuji, N. Kiyohara, T. Higo, *Nature* **527**, 212-215 (2015).
- [2] K. Kuroda, T. Tomita et al., *Nature materials* **16**, 1090-1095 (2017).
- [3] M. Ikhlas, T. Tomita, T. Koretsune, M.-T. Suzuki, D. Nishio-Hamane, R. Arita, Y. Otani and S. Nakatsuji, *Nature Physics* **13**, 1085-1090 (2017).
- [4] A. Sakai, Y. P. Mizuta, A. A. Nugroho, R. Sihombing, T. Koretsune, M.-T. Suzuki, N. Takemori, R. Ishii, D. N.-Hamane, R. Arita, P. Goswami and S. Nakatsuji, *Nature Physics*, **14**, 1119-1124 (2018).
- [5] L. Šmejkal, Y. Mokrousov, B. Yan and A. H. MacDonald, *Nat Phys.* **14**, 242-251(2018).
- [6] M. Kimata et al., *Nature* **565**, 627-630 (2019).
- [7] Hanshen Tsai, Tomoya Higo *et al.*, *Nature* **580**, 608-613 (2020).

- [8] A. Sakai, S. Minami, T. Koretsune, T. Chen, T. Higo, Y. Wang, T. Nomoto, M. Hirayama, S. Miwa, D. Nishio-Hamane, F. Ishii, R. Arita and S. Nakatsuji, *Nature* **581**, 53-57 (2020).