

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2022

課題番号：20K22479

研究課題名（和文）高効率熱電変換性能を有する新規磁気熱電材料の探索と設計指針の構築

研究課題名（英文）Search for high-efficiency thermoelectric magnetic material and establish design guide principles

研究代表者

見波 将（Minami, Susumu）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・特任助教

研究者番号：10876840

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題では、巨大な異常ネルンスト効果を発現する磁性体の探索とその発現機構を解明することを目指した。従来、スピン軌道相互作用を考慮した際に生じるワイル点に注目した研究が多くなされてきた。本研究ではスピン軌道相互作用を導入する前のノーダルラインのもつエネルギー分散に着目し、その停留点近傍でBerry曲率が発散し異常ネルンスト効果が増大することを明らかにした。また、強磁性ハーフホイスラー合金CoMnSbにおけるワイル点に由来する対数的な異常ネルンスト効果の温度依存性及び、カゴメ格子強磁性体Fe₃Snにおける巨大な異常ネルンスト効果を報告した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

排熱などの有効利用を目指すエネルギーハーベスティング技術の基礎原理の一つとして熱電効果が知られている。本研究で焦点を当てている異常ネルンスト効果は磁性体において発現し、その起源は電子波動関数の位相に由来している。異常ネルンスト効果は電位差が温度勾配に対して垂直に生じる特徴を有しており、工学応用において様々な利点があることが報告されているが、より大きな応答を示す磁性熱電材料が求められている。本研究の成果として、異常ネルンスト効果を増大させるためのメカニズムとして逆格子空間上で定義されるノーダルラインの停留点近傍の状態密度が重要であり、今後の物質設計の指針の一つとなりうることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：In this research project, we aimed to search for magnetic materials with a large anomalous Nernst effect and elucidate its manifestation mechanism. Previous studies have focused on the Weyl points that arise when considering spin-orbit interaction. We focused on the energy dispersion of the nodal line without spin-orbit coupling. We showed that the Berry curvature diverges near the stationary point, enhancing the anomalous Nernst effect. We have also reported the logarithmic divergence of the anomalous Nernst effect originating from the Weyl points in a ferromagnetic half-Heusler alloy CoMnSb and the large anomalous Nernst effect in a Kagome-lattice ferromagnet Fe₃Sn.

研究分野：計算物性物理学

キーワード：熱電変換材料 異常ネルンスト効果 異常ホール効果 第一原理計算

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

効率的なエネルギー活用の重要性が社会的に高まっている中で、日常生活の中に多く存在する排熱の有効利用が可能となる熱電効果の研究が重要になっている。近年、熱電発電モジュールの簡素化や様々な環境に対応可能な熱電変換デバイスの開発といった観点から、異常ネルンスト効果に注目が集まっている(REF)。異常ネルンスト効果は物質の持つ局所的な磁気モーメントにより誘起され、強磁性体、反強磁性体などの磁性体において観測される。このような異常ネルンスト効果特有の利点は、異常ネルンスト効果が磁性体において発現し熱勾配に対し垂直方向の電導現象であることによる。異常ネルンスト効果が発現するメカニズムの1つは、電子状態を指定する波数空間における波動関数の曲がりであるベリー曲率が電子に横方向の速度を与えるというものである。近年、巨大な異常ネルンスト効果が報告された磁性材料として Co_2MnGa 、 Fe_3X ($\text{X}=\text{Ga}, \text{Al}$)や Fe-Pt 薄膜などが報告されており、現在報告されている室温以上での最大のネルンスト係数の大きさはおよそ $N \sim 6 \mu\text{V/K}$ 程度である。しかしながらこの値は通常の熱電効果であるゼーベック効果と比較し、100倍以上小さい値である。熱電発電デバイスの応用化に向け、巨大なANEを示す物質の探索が重要となる。また、いかにして巨大な異常ネルンスト効果を得るかという具体的な物質設計指針は得られておらず、巨大な異常ネルンスト効果を示す物質の背景にある特徴量を明らかにする必要がある。各々の磁性材料での異常ネルンスト効果を評価するためには異常ネルンスト係数を見積もる必要があり、そのためには物質の電子状態のトポロジに由来するベリー曲率を求める必要がある。以前の研究成果として、Nature(2020)ではFeを用いた合金において、電子状態の詳細な解析を行うことで、巨大なANE及びベリー曲率の起源が電子状態のトポロジに由来するノーダルラインであることを明らかにした。しかしながら、巨大なANEを誘起する電子構造(ノーダルラインなど)の設計指針は未だ自明ではない。そのため、多くの磁性体においてANEの評価、電子状態のトポロジの解析(ノーダルライン、ベリー曲率、バンド構造の対称性)が重要となる。そのため近年盛んに研究が行われている、ワイル半金属、ノーダルライン半金属、スキルミオンといった系において、巨大な異常ネルンスト効果が発現することが期待される。

2. 研究の目的

本研究ではデバイス応用の可能性の観点から、広い温度領域で動作可能且つ高効率な磁性熱電材料の探索を密度汎関数理論に基づく第一原理計算により行う。また、電子状態のトポロジ(ノーダルラインやバンド構造の対称性)といった観点から、巨大な異常ネルンスト効果を発現するための普遍的な特徴量を明らかにする。第一原理計算によって、磁気材料を用いた高効率熱電変換デバイスの実現に向け磁気熱電変換材料の設計指針を導くことを目的とする。

3. 研究の方法

本研究の目的である「高効率磁気熱電変換材料の提案と物質設計指針の構築」を達成するために、以下の2つテーマについて取り組む。高温で動作可能な巨大磁気熱電材料の探索・提案、巨大な異常ネルンスト効果を示す物質の設計指針の構築。テーマ1については第一原理計算を用い、応用上に有利である高い磁気転移温度を有する強磁性物質群について異常ネルンスト効果の解析をおこなう。強磁性材料は無機材料データベースを参照し、磁気転移温度の高い物質から系統的な解析をおこなう。テーマ2については、巨大な異常ネルンスト効果の起源を第一原理計算により得られた電子状態の解析によりおこなう。逆格子空間上でのベリー曲率・ノーダルラインなどの電子状態のトポロジに関する解析をおこない、その起源となっている電子状態を明らかにする。テーマ1とも連動し、連動して巨大な異常ネルンスト効果を示す磁気材料を中心に解析を進める。

4. 研究成果

異常ネルンスト効果の起源を解明するため、大きな異常ネルンスト効果が発現する強磁性体($\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 、 Co_2MnGa 、 Fe_3Al)において、その起源の詳細を第一原理計算による電子状態の解析により明らかにした。本研究では、通常のゼーベック効果が物質中の状態密度(DOS)の急激なピーク(van Hove 特異点)近傍において増大することに着目し、ノーダルラインが作る状態密度(DOS-NL)を新たに導入し、異常ネルンスト効果の解析をおこなった。異常ネルンスト係数はDOS-NLの停留点近傍において発散し、通常のMott関係式で説明される線形な温度依存性を逸脱し、対数、冪などの温度依存性を示すことを明らかにした。この傾向は解析をおこなった典型的な強磁性材料においても再現し、巨大な異常ネルンスト効果を示す材料を探索する上での新たな設計指針となりうるものである。

強磁性ハーフホイスラー合金 CoMnSb において、異常ネルンスト効果の温度に対する対数的な振る舞いが実験的に観測された。第一原理計算を用いた異常ネルンスト効果及び電子状態の解析の結果、その起源がフェルミ準位近傍に存在するワイル点に由来する事を明らかにした。

カゴメ格子構造を有する強磁性体 Fe_3Sn において巨大な異常ネルンスト効果を報告した。これまでに報告されたノーダルラインによる起源とは異なり、アップスピンとダウンスピンが縮退した特殊な電子状態が巨大なベリー曲率と異常ネルンスト効果の起源となることが第一原理計算を用いた電子状態の解析により明らかになった。

巨大な異常ネルンスト効果が報告されているトポロジカル強磁性体 Fe_3Ga において、不純物に対する熱電効果の高いロバスト性を示すことを報告した。磁性元素のドーピングにより異常ネルンスト効果が増大することが明らかとなったが、その起源が磁性元素のドーピングによるフェルミエネルギーのシフトにより、ノーダルラインの停留点に近づくためであることを第一原理計算による解析により明らかにした。

ワイル反強磁性体 Mn_3Ge において、観測された異常ホール効果及び異常ネルンスト効果の起源がフェルミエネルギー近傍に存在するWeyl点にあることを第一原理計算により明らかにした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Chen Taishi, Minami Susumu, Sakai Akito, Wang Yangming, Feng Zili, Nomoto Takuya, Hirayama Motoaki, Ishii Rieko, Koretsune Takashi, Arita Ryotaro, Nakatsuji Satoru	4. 巻 8
2. 論文標題 Large anomalous Nernst effect and nodal plane in an iron-based kagome ferromagnet	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eabk1480-1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1126/sciadv.abk1480	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Nakamura Hiroto, Minami Susumu, Tomita Takahiro, Nugroho Agustinus Agung, Nakatsuji Satoru	4. 巻 104
2. 論文標題 Logarithmic criticality in transverse thermoelectric conductivity of the ferromagnetic topological semimetal CoMnSb	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L161114-1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.L161114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Tomita Takahiro, Minami Susumu, Ikhlas Muhammad, Nakamura Hiroto, Arita Ryotaro, Nakatsuji Satoru	4. 巻 2164
2. 論文標題 Anomalous transport properties of the antiferromagnetic Weyl semimetals Mn ₃ X (X = Sn, Ge)	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012065-1-4
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1742-6596/2164/1/012065	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Minami Susumu, Ishii Fumiyuki, Hirayama Motoaki, Nomoto Takuya, Koretsune Takashi, Arita Ryotaro	4. 巻 102
2. 論文標題 Enhancement of the transverse thermoelectric conductivity originating from stationary points in nodal lines	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205128-205128
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.102.205128	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chen Taishi, Tomita Takahiro, Minami Susumu, Fu Mingxuan, Koretsune Takashi, Kitatani Motoharu, Muhammad Ikhlas, Nishio-Hamane Daisuke, Ishii Rieko, Ishii Fumiyuki, Arita Ryotaro, Nakatsuji Satoru	4. 巻 12
2. 論文標題 Anomalous transport due to Weyl fermions in the chiral antiferromagnets Mn ₃ X, X=?Sn, Ge	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 572-586
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-020-20838-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Sawahata Hikaru, Yamaguchi Naoya, Minami Susumu, Ishii Fumiyuki	4. 巻 107
2. 論文標題 First-principles calculation of anomalous Hall and Nernst conductivity by local Berry phase	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 0244044-0244044
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.024404	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Feng Zili, Minami Susumu, Akamatsu Shuhei, Sakai Akito, Chen Taishi, Nishio Hamane Daisuke, Nakatsuji Satoru	4. 巻 32
2. 論文標題 Giant and Robust Anomalous Nernst Effect in a Polycrystalline Topological Ferromagnet at Room Temperature	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Functional Materials	6. 最初と最後の頁 2206519 ~ 2206519
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adfm.202206519	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 見波将, Taishi Chen, 酒井明人, Yangming Wang, Zili Feng, 野本拓也, 平山元昭, 石井梨恵子, 是常隆, 有田亮太郎, 中辻知
2. 発表標題 第一原理計算によるカゴメ格子磁性体 Fe ₃ Sn における 異常ネルンスト効果の予測と検証
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hiroto Nakamura, Susumu Minami, Takahiro Tomita, Agustinus A Nugroho, Satoru Nakatsuji
2. 発表標題 Logarithmic criticality in transverse thermoelectric conductivity of the ferromagnetic topological semimetal CoMnSb
3. 学会等名 APS March Meeting 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 見波将, 是常隆, 野本拓也, 平山元昭, 石井史之, 有田亮太郎
2. 発表標題 Fe ₃ X (X=Ga, Al)における異常ネルンスト効果の第一原理計算
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 中村紘人, 見波将, M. Y. P. Akbar, 富田崇弘, D. A. A. Nugroho, 中辻知
2. 発表標題 強磁性体CoMnSbの磁気熱輸送測定および第一原理計算に基づくトポロジカル状態の検証
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Susumu Minami, Akito Sakai, Taishi Chen, Yangming Wang, Zili Feng, Takuya Nomoto, Motoaki Hirayama, Rieko Ishii, Takashi Koretsune, Ryotaro Arita, Satoru Nakatsuji
2. 発表標題 Large anomalous Nernst effect in the iron-based Kagome ferromagnet Fe ₃ Sn
3. 学会等名 The 15th Asia Pacific Physics Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hiroto Nakamura, Susumu Minami, Takahiro Tomita, Agustinus Agung Nugroho, Satoru Nakatsuji
2. 発表標題 Logarithmic criticality in the transverse thermoelectric conductivity of the ferromagnetic topological semimetal CoMnSb
3. 学会等名 The 15th Asia Pacific Physics Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yangming Wang, Susumu Minami, Akito Sakai, Hao Gu, Taishi Chen, Zili Feng, Daisuke Nishio-Hamane, Satoru Nakatsuji
2. 発表標題 Anomalous Nernst effect in the topological Fe ₃ Ga _{1-x} Al _x polycrystals
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中村紘人, 小池祐樹, 見波将, 富田崇弘, 小池美夏, M. Y. P. Akbar, A. A. Nugroho, 町田洋, 中辻知
2. 発表標題 低温異常ネルンスト効果測定による磁気トポロジカル状態の検証
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------