

エネルギーハーベスティングのための磁気構造の制御

Control of magnetic structures for energy harvesting

研究代表者 東京大学 大学院工学系研究科 物理工学専攻 准教授 ヒルシュベルガー マクシミリアン

Max Hirschberger

Via the thermoelectric effect, energy may be ‘harvested’ from heat lost in industrial applications or consumer electronics, and converted back to useful electricity. Research on such thermoelectric effects is thus believed to be integral to the ‘green energy revolution’, a core mission of this foundation. We investigated the thermoelectric Nernst effect of magnetic materials with noncoplanar (twisted) electron spins, and discovered two major effects: Firstly, a static magnetic structure with a twist in CoNb_3S_6 can generate a large thermoelectric voltage, termed topological Nernst effect. Second, we revealed the key importance of temperature fluctuations in generating a large thermoelectric Nernst effect in NdAlSi and $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$.

要旨

熱電変換技術を用いることで、産業用途や家庭用電化製品で失われた熱からエネルギーを「回収」し、有用な電力として利用することが可能になります。したがって、このような熱電効果に関する研究は、この財団の中核的使命である「グリーンエネルギー革命」に不可欠であると考えられます。私たちは、非共面的な（ねじれた）電子スピンを持つ磁性材料の熱電ネルンスト効果を調査し、2つの主要な効果を見出しました。第一に、 CoNb_3S_6 のねじれを持つ静磁構造は、トポロジカルネルンスト効果と呼ばれる大きな熱起電圧を生成することができます。次に、 NdAlSi と $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ で大きな熱電ネルンスト効果を生じさせるには温度揺らぎが重要であることを明らかにしました。

1. 背景

私たちのグループはこれまでに、ねじれたスピン渦である磁気スキルミオンを調査し、その大きな熱電応答を明らかにしました [1, 2]。理論の観点から見ると、大きな熱電効果は、伝導電子の動きを曲げる創発（仮想）磁場によって発生します。先行研究では、熱電ネルンスト効果を生み出すには、通常は弱い効果である相対論的なスピン軌道結合が必要でしたが、実際には、創発磁場はスピン軌道相互作用がなくても存在します。マツダ財団の支援により、私たちは磁気スキルミオンからより一般的な種類の材料に研究を拡大しました。(A) CoNb_3S_6 などの傾斜した磁気秩序を持つ反強磁性体、および (B) 温度によって磁気スピンの方向がランダムに変動す

る材料です。完全に秩序化された磁気構造がなくても創発磁場が生成されることを明らかにしました。

2. 実験結果

2.1 方法

蒸気輸送法により CoNb_3S_6 の大型単結晶を、浮遊帯域法により $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ の大型単結晶を育成しました。結晶構造と化学組成を、X線回折と表面イメージングによって評価しました。また、 -273°C から $+80^\circ\text{C}$ までの熱電測定用に1ナノボルトの分解能を備えた測定技術を開発しました [1]。

2.2 反強磁性体における創発磁場に起因したネルンスト効果

スキルミオンスピン渦と比較すると、 CoNb_3S_6 [1] の傾斜した反強磁性構造ははるかに小さく（渦サイズ約1ナノメートル）、非常に限られた数の磁気スピンのみで構成されています（図1）。

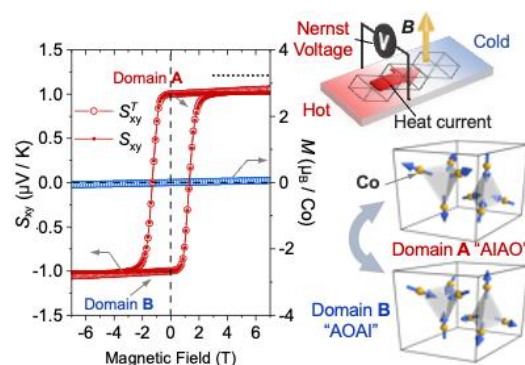


図1: CoNb_3S_6 の傾斜磁気秩序 (AIAO 状態) によるネルンスト効果。熱電効果 (赤) は大きいですが、正味の磁化 (青) はほとんどゼロである [1]。

スキルミオンに関する以前の研究と同様に、出現磁場による巨大な熱電ネルンスト効果を観測しました。しかし、この大きなネルンスト効果は外部磁場がゼロの場合でも存在するため、実際のアプリケーションで大きな利点を持ちます。共同研究により、国内の計算クラスターを用いて、最先端の密度汎関数理論法により CoNb_3S_6 の電子構造を計算することに成功しました。この計算から、反強磁性体における大きな熱電ネルンスト効果の一般的な設計原理を確立することができました。鏡面对称性や反転対称性をすべて欠くキラル（左巻きまたは右巻き）結晶構造における熱電材料の設計は、アプリケーションへの将来的な展開が期待できます。

2.3 熱揺らぎによるネルンスト効果の増大

私たちの以前の研究では、カゴメ格子を備えた材料の常磁性（熱揺らぎ）状態におけるネルンスト効果を実証しました (3)。今年、我々は、六方晶系 $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ [2] と正方晶系 NdAlSi [3] という2つの金属において、磁気長距離秩序を持たず、相対論的スピン軌道相互作用を必要としない大きな熱電ネルンスト信号を明らかにした。前者では、熱揺らぎは、3つの隣接する磁気モーメントに対するスピנקラリティ $\mathcal{S}_i \cdot (\mathcal{S}_j \times \mathcal{S}_k)$ と呼ばれるスピン傾斜を誘発し、伝導電子は、長距離相関を持つ磁性体が存在しないにもかかわらず、定性的には CoNb_3S_6 [1] の場合と同様に動作します。後者では、スピנקラリティは強い磁気異方性によって抑制されますが、その揺らぎにより電子散乱が誘発されます。このような電子散乱も熱電効果を高めることを発見しました。

3. 結論と展望

我々は磁性材料の熱電特性に関する基礎研究を行い、相対論的スピン軌道相互作用がなくても大きなネルンスト効果を発見しました。理論と実験の比較により、このような現象を発見するための一般的な設計原理を実証しました。この研究に基づいて、新しい熱電現象の発見に適した非共線磁性体の大きなクラスが同定されました。

発表論文

- [1] N.D. Khanh, S. Minami, M.M. Hirschmann, T. Nomoto, M.C. Jiang, R. Yamada, D. Yamaguchi, Y. Hayashi, Y. Okamura, H. Watanabe, G.Y. Guo, Y. Takahashi, S. Seki, Y. Taguchi, Y. Tokura, R. Arita, and M. Hirschberger, *Gapped nodal planes drive a large topological Nernst effect in a chiral lattice antiferromagnet*, Nature Communications (in print).
- [2] K.K. Kolincio, M. Hirschberger, J. Masell, T.-h. Arima, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Kagome lattice promotes chiral spin fluctuations*, Physical Review Letters **130**, 136701 (2023)
- [3] R. Yamada, T. Nomoto, A. Miyake, T. Terakawa, A. Kikkawa, R. Arita, M. Tokunaga, Y. Taguchi, Y. Tokura, and M. Hirschberger, *Nernst effect of high-mobility Weyl electrons in NdAlSi enhanced by a Fermi surface nesting instability*, Physical Review X **14**, 021012 (2024)

口頭発表、受賞等

- 2024 日本物理学会 若手奨励賞
- 招待口頭発表・ドイツ物理学会大会 (3/2024、ベルリン)
- 招待口頭発表・日本物理学会大会 (3/2024、オンライン)
- 招待口頭発表・「Exotic States of Quantum Matter」マックス・プランク学会シンポジウム (11/2023)
- 招待口頭発表・「Dynamical Response and Transport in Quantum Magnets」カブリ理論物理学研究所、サンタバーバラ、米国 (7/2023)
- 招待口頭発表・「Correlated and Topological Quantum Materials」ロスアラモス国立研究所、米国 (8/2023)

参考文献

- (1) M. Hirschberger, L. Spitz, T. Nomoto, T. Kurumaji, S. Gao, J. Masell, T. Nakajima, A. Kikkawa, Y. Yamasaki, H. Sagayma, H. Nakao, Y. Taguchi, R. Arita, T.-h. Arima, and Y. Tokura, *Topological Nernst effect of the two-dimensional skyrmion lattice*, Physical Review Letters **125**, 076602 (2020)
- (2) H. Oike, T. Ebino, T. Koretsune, A. Kikkawa, M. Hirschberger, Y. Taguchi, Y. Tokura, and F. Kagawa, *Topological Nernst effect emerging from real-space gauge field and thermal fluctuations in a magnetic skyrmion lattice*, Physical Review B **106**, 214425 (2022)
- (3) K.K. Kolincio, M. Hirschberger, J. Masell, S. Gao, A. Kikkawa, Y. Taguchi, T.-h. Arima, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Large Hall and Nernst responses from thermally induced spin chirality in a spin-trimer ferromagnet*, Proceedings of the National Academy of Sciences **118**, e2023588118 (2021)