



【本件リリース先】

文部科学記者会、科学記者会、
広島大学関係報道機関

令和2年11月20日

国立大学法人 広島大学

本件の報道解禁につきましては、令和2年11月24日(火)19時以降にお願いいたします。

強磁性体薄膜の熱電能の向上に成功
- 電子構造と横熱電能の対応関係を解明 -

【本研究成果のポイント】

- 磁性材料の一つとして知られるホイスラー合金 Co_2MnGa (コバルト・マンガン・ガリウム) 薄膜の中に、スピン偏極したワイル粒子を発見しました。
- ワイル粒子から構成されるバンド分散のエネルギー位置を精密に制御することで、室温で $6.2 \mu\text{V/K}$ (温度 1°C で発生する電圧) にもおよぶ巨大横熱電能を実現しました。また、薄膜試料が持つ大きな残留磁化を利用することで、無磁場下での動作も実現しました。
- 本研究成果によって、毒性元素を含まない磁性体薄膜と未利用熱を活用した環境発電素子や熱流センサーの開発が期待されます。

【概要】

日本原子力研究開発機構の角田一樹研究員(研究当時: 広島大学大学院理学研究科博士課程後期)、広島大学大学院先進理工系科学研究科の木村昭夫教授の研究グループは、広島大学放射光科学研究センターの奥田太一教授、物質・材料研究機構の桜庭裕弥グループリーダー、増田啓介研究員と共同で、広島大学放射光科学研究センターにて高輝度シンクロトロン放射光(*1)を利用したスピン・角度分解光電子分光(*2)を用いて強磁性ホイスラー合金(*3)薄膜中にスピン偏極したワイル粒子(*4)が存在することを明らかにしました。また、ワイル粒子がつくる特殊な電子構造を制御することで異常ネルンスト効果(*5)による横熱電能を飛躍的に向上させることに成功しました。本研究成果により、磁性体薄膜を用いた次世代環境発電素子や高感度熱流センサーの開発につながることを期待されます。

本研究の成果は、Springer Nature のオープンアクセスジャーナル「Communications Materials」に、ロンドン時間の2020年11月24日10時(日本時間: 2020年11月24日19時)に掲載されました。

【論文情報】

論文タイトル: Spin-polarized Weyl cones and giant anomalous Nernst effect in ferromagnetic Heusler films

著者名: *角田一樹^{1,2}、*桜庭裕弥³、増田啓介³、河野嵩²、鹿子木将明²、後藤一希³、Weinan Zhou³、宮本幸治⁴、三浦良雄³、奥田太一⁴、*木村昭夫^{2,5} (*責任著者)

所 属：¹日本原子力研究開発機構、²広島大学大学院理学研究科、³物質・材料研究機構、⁴広島大学放射光科学研究センター、⁵広島大学大学院先進理工系科学研究科

DOI : 10.1038/s43246-020-00088-w

【背景】

近年、磁性体に熱流を印加した際に生じる異常ネルンスト効果が環境発電の観点から大きな注目を集めています。異常ネルンスト効果は、磁性体に熱流を流す際に、温度勾配に直交する方向に電圧を生じる横型の熱電現象です。温度方向と平行方向に電圧が生じる縦型の熱電効果としてゼーベック効果がよく知られていますが、大面積かつ柔軟性を持つモジュールの作成などの観点で、横型熱電現象である異常ネルンスト効果は高い優位性を示します。また、構成材料に有毒元素を含まない点も特筆すべき点です。しかしながら、異常ネルンスト効果による熱電能は一般に $1.0 \mu\text{V/K}$ 以下と極めて低いため、 $10\text{--}20 \mu\text{V/K}$ クラスの熱電能が要求される実用環境発電や高感度熱流センサーに応用するためには熱電能の大幅な向上が求められています。近年発見されたワイル磁性体は鉄などの典型的な磁性体よりも一桁程度大きな熱電能を実現できることがわかってきました。このような熱電能の増強には、フェルミ準位近傍の電子構造が生み出す「仮想磁場（*6）」の存在が重要な役割を果たすと考えられています。しかし、実験手法が限られることとその困難さから、電子構造に関する実験的研究はこれまでほとんど行われてきませんでした。

【研究成果の内容】

本研究チームは、巨大異常ネルンスト効果が報告されているホイスラー合金 Co_2MnGa に着目し、広島大学放射光科学研究センター（HiSOR）のシンクロトロン放射光を利用したスピン・角度分解光電子分光実験を行い、横熱電能と電子構造の対応関係を明らかにしました。一般に、角度分解光電子分光実験には超高真空中で平坦かつ清浄表面をもつ試料が必要となります。しかし、ホイスラー合金のバルク単結晶はその3次元的な結晶構造から、真空中で平坦な表面を得ることが困難であり、これまでほとんど角度分解光電子分光実験が行われてきませんでした。そこで本研究では、物質・材料研究機構（NIMS）の桜庭裕弥グループリーダーと協力して、原子レベルで平坦な表面および大きな残留磁化（*7）を持つ高品質ホイスラー合金薄膜を作成しました。薄膜試料の表面汚染を防ぐため、試料はポータブル真空輸送チャンバーによって NIMS から放射光科学研究センター HiSOR に大気に晒すことなく輸送し、スピン・角度分解光電子分光を行いました。

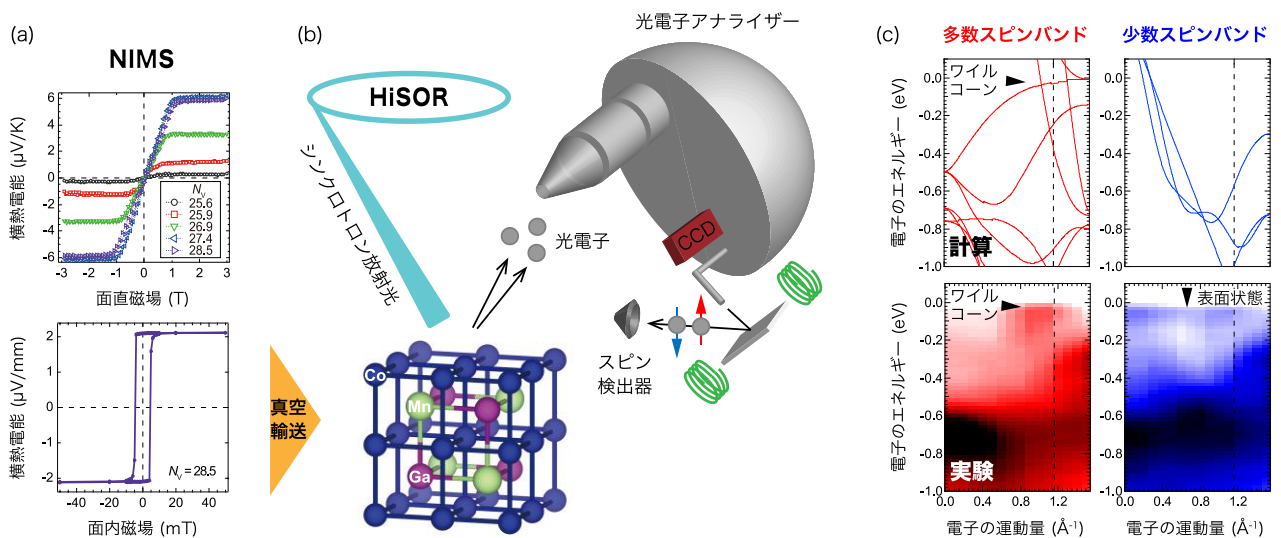


図 1. (a) NIMS で作成された高品質 Co_2MnGa 薄膜の横熱電能。価電子数 N_f を増やすと、異常ネルンスト効果による横熱電能が飛躍的に上昇した（上図）。また、残留磁化を利用した無磁場での横熱電能の観測にも成功した（下図）。(b) 放射光を用いたスピン・角度分解光電子分光実験の

模式図。(c)上段：理論計算によって求められたバンド分散。下段：スピン・角度分解光電子分光によって観測されたバンド分散。最も高い横熱電能を示す試料では、ワイル粒子から構成されるスピン偏極バンド分散（ワイルコーン）がフェルミ準位近傍に存在することが明らかとなった。また、少数スピン成分を持つ特殊な表面状態も観測された。

その結果、Co₂MnGa 薄膜中にスピン偏極したワイル粒子が存在することを世界で初めて明らかにしました。また、組成比をわずかに変化させた薄膜試料を複数作成し、電子構造と横熱電能の対応関係を調べたところ、ワイル粒子によって構成されるバンド分散がフェルミ準位に近づくにつれて横熱電能が系統的に上昇することがわかりました。今回観測した Co₂MnGa 薄膜の横熱電能は最大で 6.2 μ V/K に達し、過去に報告されていた Co₂MnGa 薄膜の約 2 倍以上となっており、バルク単結晶試料の最高値にも匹敵します。これらの実験結果は第一原理計算によって再現され、ワイル粒子から構成されるバンド分散が巨大仮想磁場の源となり、横熱電能を増強していることを突き止めました。

【今後の展開】

本研究で、Co₂MnGa 薄膜における電子構造と横熱電能の対応関係が初めて明らかになり、室温で 6.2 μ V/K にもおよぶ巨大横熱電能を実現しました。薄膜試料はバルク試料と比べて非常に大きな残留磁化を有していることから、無磁場・室温で動作する熱流センサーなどへの応用展開が期待されます。しかし、実用環境発電に必要な動作性能には今一歩及んでいないのが現状であるため、今回の研究で得られた電子構造に関する知見を材料開発にフィードバックし、さらなる熱電能の増強に挑戦したいと考えています。

【用語解説】

* 1. シンクロトロン放射光

光の速度まで加速された電子の進行方向を磁場によって曲げると、シンクロトロン放射光と呼ばれる強い光が発生します。宇宙では星雲の中に放射光を見つけることができますが、地上では専用の加速器が必要です。シンクロトロン放射光は、人類が手に入れた最も強力な光で「夢の光」とも呼ばれます。大型放射光施設 SPring-8 や、国立大学法人として唯一の広島大学放射光科学研究センターHiSOR など、日本にはシンクロトロン放射光施設が多数存在し、最先端の研究が行われています。

* 2. 角度分解光電子分光 (ARPES)

物質に光を当てると、光電効果によって物質内部の電子が放出されます。このとき、散乱を受けなかった電子はエネルギー保存則に従って物質内部の電子状態の情報を保ったまま放出されます。角度分解光電子分光は、放出された電子の運動エネルギーと放出角度を解析することで、固体内部の電子の束縛エネルギーと運動量の関係、つまりバンド分散を直接観測できる手法です。さらにスピン検出器を加えることで、電子の運動エネルギーと運動量だけでなく電子スピンも分離して観測できるため、磁性体の詳細な電子構造を調べることができます。本研究では広島大学放射光科学研究センターの奥田太一教授が独自に開発した世界一の分解能を誇る低速電子線回折 (VLEED) 型スピン検出器を用いて測定を行なっています。

* 3. ホイスラー合金

ホイスラー合金は 3 種類の元素から成る強磁性体で、X₂YZ の分子式で表されるものをフルホイスラー合金、XYZ の分子式で表されるものをハーフホイスラー合金と呼びます。ホイスラー合金は構成元素の組み合わせが豊富で、ハーフメタル性や高い熱電効果、形状記憶効果、磁気冷凍など、多様な物性が得られる魅力的な材料として研究されています。また、X サイトに Co が入った系では高いキュリー温度が得られることが知られており、実用デバイスとしての応用が特に注目されている物質系です。

*4. ワイル粒子

相対論的電子の振る舞いを記述するディラック方程式において、質量をゼロとしたとき得られるフェルミ粒子（半整数スピンをもつ粒子、電子もその一種）のことを指します。電子のエネルギーと運動量の関係を表すバンド分散として直線的な交差点を持つのが特徴です。

*5. 異常ネルンスト効果

物質の両端に温度差があると、温度勾配の方向に起電力が発生しますが、これはゼーベック効果（図2b）と呼ばれています。一方、異常ネルンスト効果は、自発磁化を持つ磁性体で現れ、温度勾配と垂直方向に熱起電力を取り出すことができます（図2a）。

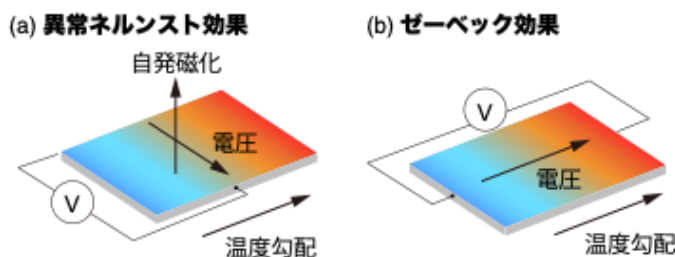


図2. 異常ネルンスト効果とゼーベック効果。

*6. 仮想磁場（ベリー曲率）

通常、磁場は日常の空間（実空間）でコイルに電流を流すことで発生することはよく知られています。一方、本研究で対象としている物質のように、電子がワイル粒子として振る舞う場合には、運動量空間でも、実空間の磁場と同様のものが発生することが知られています。この仮想磁場が異常ネルンスト効果の最大の原因と考えられています。

*7. 残留磁化

強磁性体において、外部磁場をかけていない状態でも、磁化をもつことを指します。例えば、釘を磁石に近づけて一旦離すと、その釘が磁石となり別の釘をくっつける現象がよく見られますが、1番目の釘に残留磁化が存在していることを示します。

【謝辞】

本研究は、日本学術振興会（JSPS）科学研究費補助金基盤研究 A「非共型な結晶対称性を持つ強相関物質の電子状態観測とトポロジーの解明（課題番号：18H03683、研究代表者：木村昭夫）」、同基盤研究 S「実用デバイスに向けたハーフメタルホイスラー合金のスピン依存伝導機構の解明（課題番号：17H06152、研究代表者：宝野和博）」、同基盤研究 S「トポロジカル相でのバルク・エッジ対応の多様性と普遍性：固体物理を越えて分野横断へ（課題番号：17H06138、研究代表者：初貝安弘）」、JST 戦略的創造研究推進事業さきがけ「異常ネルンスト効果を用いた新規スパイラル型熱電発電の創成（課題番号：JPMJPR17R5、研究代表者：桜庭裕弥）」などの支援を受けて行われました。

【お問い合わせ先】

【研究に関すること】

広島大学大学院先進理工系科学研究科物理学プログラム 教授 木村 昭夫

Tel: 090-6346-5384

E-mail: akiok@hiroshima-u.ac.jp

【報道に関すること】

広島大学財務・総務室広報部 広報グループ

TEL: 082-424-3749 FAX: 082-424-6040

E-mail: koho@office.hiroshima-u.ac.jp

発信枚数：A4版 4枚（本票含む）