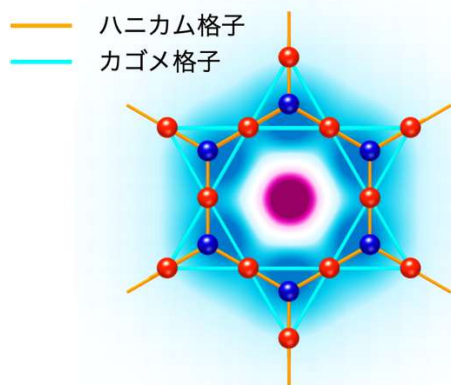


フラットバンドが生む世界最大の横磁気熱電伝導率 ——磁気秩序下での遍歴フラットバンドを初めて実証——

発表のポイント

- ◆フェリ磁性体 GdCo_5 において、室温で過去最大の横磁気熱電伝導率を観測した。
- ◆巨大な磁気熱電効果（異常ネルンスト効果）の起源は、波動関数の干渉効果により生じた遍歴フラットバンドであることを、実験と理論の両面から実証した。磁気秩序が生じている物質で遍歴フラットバンドが観測されたのは世界で初めての事例である。
- ◆磁気熱電効果を用いた横型熱電変換は薄膜形状のデバイスに適している。本成果で見いだされた巨大な磁気熱電効果を利用することで、熱電デバイスやスピントロニクスデバイスへの応用が期待される。

積層ハニカム-カゴメ格子



遍歴フラットバンドの実証

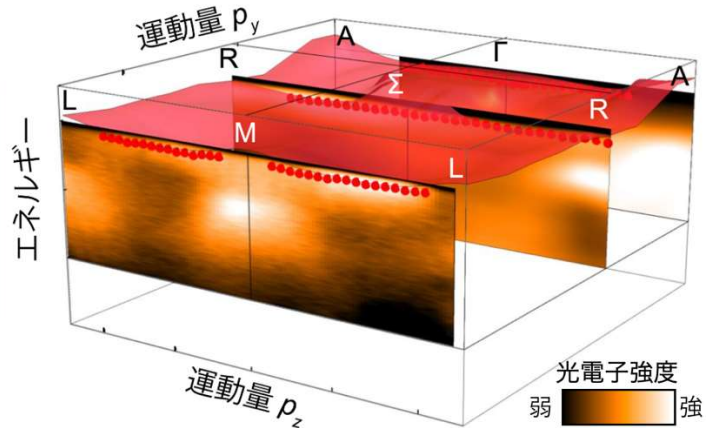


図1 (左) 積層ハニカム-カゴメ格子上に配置された Co 原子による波動関数の干渉効果の模式図。
(右) 遍歴フラットバンドの角度分解光電子分光 (ARPES) による観測結果と理論計算。赤色の面が理論計算による遍歴フラットバンド、赤丸とカラーマップが ARPES により得られた遍歴フラットバンドを表す。

概要

東京大学大学院理学系研究科の見波将特任助教（研究当時、現：京都大学大学院工学研究科助教）、Yangming Wang 博士課程学生（研究当時）、中村紘人博士課程学生（研究当時）、酒井明人講師と中辻知教授らの研究グループは、同大学大学院有田亮太郎教授（兼：理化学研究所創発物性科学研究センターチームディレクター）、理化学研究所創発物性科学研究センターの大岩陸人基礎科学特別研究員（研究当時、現：北海道大学講師）、東北大学材料科学高等研究所（WPI-AIMR）の相馬清吾准教授、佐藤宇史教授らと共同で、フェリ磁性体（注 1） GdCo_5 において、室温で過去最大の横磁気熱電伝導率（注 2）を観測しました。また、巨大な磁気熱電効果の起源が波動関数の干渉効果により生じた遍歴フラットバンド（注 3）であることを、実験と理論の両面から明らかにしました。

GdCo_5 はハニカム格子とカゴメ格子（注 4）が交互に積み重なった結晶構造を持ちます。本研究では、角度分解光電子分光 (ARPES)（注 5）と第一原理計算（注 6）を組み合わせ、この積層格子上的波動関数の干渉効果（注 7）により、遍歴フラットバンドが広い運動量空間にわたって存在することを明らかにしました（図 1）。磁気秩序が生じている物質で遍歴フラットバ

ンドが観測されたのは世界で初めての事例です。さらに、このフラットバンドに由来する巨大な磁気熱電効果を発見し、室温における横磁気熱電伝導率として過去最大の値を達成しました（図2）。本成果で見いだされた巨大な磁気熱電効果を利用することで、熱電デバイスやスピントロニクスデバイスの開発につながることを期待されます。

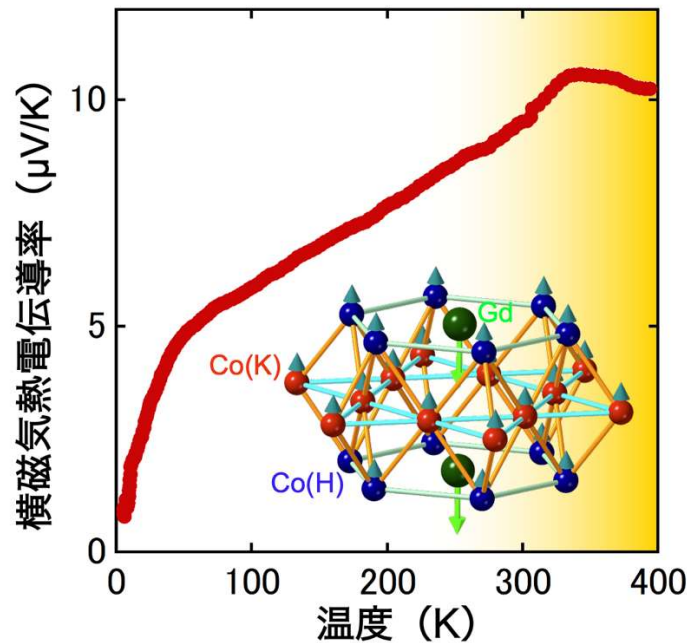


図2：GdCo₅における横磁気熱電伝導率の測定結果。室温(300 K)近傍において世界最大の横磁気熱電伝導率を示す。挿入図はGdCo₅の結晶構造。ハニカム格子(H)、カゴメ格子(K)上のコバルト原子の波動関数の干渉効果により遍歴フラットバンドが生じる。

発表内容

通常、金属中で動き回る電子のエネルギーは運動量の2乗に比例します。しかし、カゴメ格子など三角系をモチーフに持つ結晶格子上では量子力学的な干渉効果により、エネルギーが運動量に依存しない「フラットバンド」と呼ばれる特異な電子状態になることがあります。フラットバンドがフェルミエネルギー（注8）付近に位置すると、電子間のクーロン反発力が有効的に大きくなり、超伝導やトポロジカル相など様々な量子物性を引き起こすことが期待されます。しかし、これまでフェルミエネルギー近傍のフラットバンドは、磁気秩序の無い非磁性体でのみ報告されていました。これは、通常、磁気秩序が生じると、フラットバンドのエネルギーが大きく低下する（フェルミエネルギーから離れる）ためです。

本研究では、永久磁石材料として知られるRCo₅（R=希土類）系化合物の一つであるフェリ磁性体GdCo₅に着目しました。GdCo₅はハニカム格子とカゴメ格子が交互に積み重なった「積層ハニカム-カゴメ格子」を持ち、磁気秩序を示す温度（キュリー温度）が670°C（940 K）と極めて高い磁性体です。理論計算により、この積層格子上のコバルト3d軌道の波動関数の干渉効果が複数のフラットバンドを生み出し、磁気秩序下でもフェルミエネルギー上に安定的に留まることを見いだしました。

この理論予測を検証するため、高エネルギー加速器研究機構フォトンファクトリーにおいて高精度の角度分解光電子分光（ARPES）測定を実施しました。その結果、フェルミエネルギー

近傍に極めてフラットなバンド分散が、ブリルアンゾーンの広い領域にわたって観測され、磁性体における遍歴フラットバンドの存在を世界で初めて実証しました。

さらに、この遍歴フラットバンドが大きなベリー曲率（注 9）を生成することで、巨大な異常ネルンスト効果が発現することを明らかにしました。特に、室温での横熱電伝導率は $10 \text{ Am}^{-1} \text{ K}^{-1}$ を超え、これまで報告されたすべての磁性材料の中で最大の値を達成しました。理論計算との比較により、この巨大な磁気熱電効果の 80%以上が遍歴フラットバンドに由来することが確認されています。

本研究で明らかになったフラットバンドは、 GdCo_5 だけでなく、永久磁石などに活用されている RCo_5 系化合物全体に共通して存在することが理論的に示されています。この成果は、積層ハニカム-カゴメ格子がフラットバンドを生み出す新たなプラットフォームとなることを示しており、時間反転対称性の破れた磁性体におけるフラットバンド物理に新たな展開を拓くものです。本成果は、JST 未来社会創造事業での研究開発をきっかけに進展したものです。強磁性体とトポロジカル反強磁性体をつなぐ研究上のスプリングボードとして、フェリ磁性体の性質を明らかにしたことで、本事業が目指すスピントロニクス光電インターフェースの基盤技術の構築に資する知見が得られました。今後、ハニカム-カゴメ格子を持つ希土類遷移金属磁性体群を基盤として、高性能な熱電変換素子やスピントロニクスデバイスへの応用展開が期待されます。

発表者・研究者等情報

東京大学

大学院理学系研究科物理学専攻

見波 将 特任助教（研究当時）

現：京都大学 大学院工学研究科 機械理工学専攻 助教

Yangming Wang 博士課程（研究当時）

中村 紘人 博士課程（研究当時）

Hang Su 博士研究員

黒沢 駿一郎 博士課程（研究当時）

現：同大学大学院 特任研究員

酒井 明人 講師

中辻 知 教授

兼：東京大学 物性研究所 特任教授

兼：東京大学 トランススケール量子科学国際連携研究機構 機構長

有田 亮太郎 教授

兼：理化学研究所 創発物性科学研究センター 計算物質科学研究チーム

チームディレクター

渡邊 光 助教（研究当時）

現：北海道大学 大学院工学研究院 応用物理学部門 准教授

物性研究所

浜根 大輔 技術専門職員

理化学研究所

創発物性科学研究センター

大岩 陸人 基礎科学特別研究員（研究当時）

現：北海道大学 大学院理学研究院 物理学部門 講師

東北大学

材料科学高等研究所 (WPI-AIMR)・大学院理学研究科物理学専攻

大隅 拓海 博士課程

中山 耕輔 助教

相馬 清吾 准教授

佐藤 宇史 教授

東京都立大学

大学院理学研究科物理学専攻

野本 拓也 准教授

論文情報

雑誌名：Advanced Materials

題名：Evidence for itinerant ferromagnetic flat bands producing large transverse responses

著者名：Susumu Minami, Yangming Wang, Seigo Souma, Hiroto Nakamura, Akito Sakai, Takumi Osumi, Hang Su, Hikaru Watanabe, Shun'ichiro Kurosawa, Rikuto Oiwa, Daisuke Nishio-Hamane, Kosuke Nakayama, Takuya Nomoto, Ryotaro Arita, Takafumi Sato, Satoru Nakatsuji

DOI:10.1002/adma.202517521

URL:<https://doi.org/10.1002/adma.202517521>

注意事項（解禁情報）

日本時間 4 月 28 日 19 時（中央ヨーロッパ夏時間 28 日正午）以前の公表は禁じられています。

研究助成

本研究は、科学技術振興機構（JST）未来社会創造事業 大規模プロジェクト型「スピントロニクス光電インターフェースの基盤技術の創成」（課題番号：JPMJMI20A1）、先端国際共同研究推進事業（ASPIRE）「トポロジカル物質に基づく革新的量子エレクトロニクスの創成」（課題番号：JPMJAP2317）、戦略的創造研究推進事業 CREST（課題番号：JPMJCR18T1, JPMJCR18T3）、戦略的創造研究推進事業 さきがけ（課題番号：JPMJPR20L7）、新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）「NEDO 先導研究プログラム／エネルギー・環境新技術先導研究プログラム／トポロジカル物質を用いたユニバーサルメモリの研究開発」、科学研究費助成（課題番号：JP19H00650, JP19H05825, JP20K22479, JP21H04437, JP21J22318, JP22K14587, JP23K03298, 24KF0186, JP24K00758, 25H01250）事業の支援により実施されました。

用語解説

（注 1）フェリ磁性体

磁石の性質を持つ物質（磁性体）の一種です。通常磁石（強磁性体）ではすべての磁気モーメント（原子の持つ小さな磁石）が同じ方向に揃っていますが、フェリ磁性体では大きさの異なる磁気モーメントが互いに反対方向を向いています。例えば、本研究で使われた GdCo_5 の場合、図 2 挿入図の矢印で示すように、コバルト原子(Co)とガドリニウム原子(Gd)の大きさが異なり反対向きの磁気モーメントを持っています。

(注 2) 横磁気熱電伝導率

物質に温度差を加えると、電子が温度差に沿って移動するため、温度差と同じ方向に起電力が生じ、このような現象は熱電効果（ゼーベック効果）と呼ばれます。一方、磁性体では物質中の磁化により電子の移動が曲げられ、温度差と垂直な方向にも起電力が生じます。このような磁化に由来し温度差と垂直な方向に起電力が生じる熱電効果を異常ネルンスト効果（磁気熱電効果）と呼びます。起電力の向きの違いにより、異常ネルンスト効果を横型熱電効果とも呼びます。ゼーベック効果を用いた従来の熱電素子は立体的で複雑な構造が必要ですが、異常ネルンスト効果では温度差に対して垂直方向に発電するため、薄膜型の簡便なデバイス設計が可能です。横磁気熱電伝導率 (α_{xy}) はこの横方向の熱電変換の性能を表す物理量で、値が大きいほど高性能な発電が可能となります。

(注 3) 遍歴フラットバンド

固体中に存在する電子はそれぞれ異なるエネルギーを持ち、その取りうるエネルギーの範囲を「バンド」と呼びます。通常の金属では、電子は運動量の 2 乗に比例する運動エネルギーを持ちバンドにエネルギーの幅が生じますが、カゴメ格子のように三角形を基本単位とする幾何学的にフラストレートした結晶格子では、格子の幾何学的性質に起因する波動関数の干渉効果（注 7）により、エネルギーが運動量によってほとんど変化せず、幅のない平坦なバンドが現れることがあります。これを「フラットバンド」と呼びます。通常、磁気秩序が生じるとフラットバンドはフェルミエネルギー（注 8）から離れて遍歴性を失うため、遍歴性を有するフラットバンドと磁気秩序は相反するものであると考えられてきました。本研究ではフェリ磁性体 GdCo_5 において磁気秩序下でもフェルミエネルギー近傍に存在する「遍歴フラットバンド」を世界で初めて実証しました。

(注 4) ハニカム格子、カゴメ格子

カゴメ格子は、原子が籠目状に配置された結晶構造を指します。ハニカム格子とは、原子が蜂の巣状に六角形を形成するように配置された結晶構造を指します。本研究の GdCo_5 では、コバルト (Co) 原子がカゴメ格子とハニカム格子を交互に形成しており（図 1 左）、この「積層ハニカム-カゴメ格子」上での波動関数の干渉効果が、遍歴フラットバンドを安定化させる鍵となっています。

(注 5) 角度分解光電子分光 (ARPES)

物質の表面に光を照射して、外部光電効果により物質外に放出される電子のエネルギーと運動量を同時に測定することで、電子の物質中での状態を直接的に観測する実験手法です。

(注 6) 第一原理計算

量子力学のシュレディンガー方程式に従って、物質中の電子の運動をコンピューターで計算する方法を第一原理計算と呼びます。本研究では密度汎関数理論に基づいた第一原理計算を用いています。密度汎関数理論は、第一原理計算の中でも電子密度をベースに物質の性質を計算する手法で、固体物理や量子化学の分野で頻繁に用いられており、スーパーコンピューターなどの大規模な計算機などを活用し、計算を行い物質中の電子状態の高精度な理論予測が可能となります。

(注 7) 波動関数の干渉効果

量子力学では、電子は波としての性質を持つ波動関数として記述されます。水面の波の重ね合わせと同様に、結晶格子上的電子の波動関数も互いに干渉します。カゴメ格子のように三角形を基本単位とする格子では、隣接するサイト間を伝わる電子の波動関数の位相が互いに相殺し、電子が特定の領域に閉じ込められます。この局在化がフラットバンドの起源となります。本研究の GdCo_5 では、積層ハニカム-カゴメ格子に由来した波動関数が互いに干渉することで、複数のフラットバンドが生じ、遍歴フラットバンドの起源となることを理論的に明らかにしました。

(注 8) フェルミエネルギー

固体内の電子が、低いエネルギー状態から順に詰まっていき、絶対零度においてちょうど満たされる最高のエネルギーレベルのことです。金属や半導体などの様々な物性（電気伝導性や磁性、熱電変換性能など）は、このフェルミエネルギー近傍に位置する電子の振る舞いによって決定されます。本研究において「遍歴フラットバンドがフェルミエネルギー近傍に存在する」という事実は、フラットバンド由来の特殊な電子状態が、物質の機能（高い磁気熱電性能など）に寄与していることを意味しています。

(注 9) ベリー曲率

ベリー曲率は運動量空間上の波動関数により定義されます。このベリー曲率は運動量空間上であたかも磁場（仮想磁場）のような振る舞いを電子に与え、温度勾配に対して垂直方向の運動を与えます。この効果が磁気熱電効果特有の温度勾配に対する垂直な起電力の起源の一つとなっています。このベリー曲率は波動関数のトポロジカルな性質（位相幾何学的性質）に起因します。 GdCo_5 において発現した遍歴フラットバンドにより巨大なベリー曲率が発現することを理論的に明らかにしました。巨大な仮想磁場が電子により大きな横方向の運動を与えていると解釈することもでき、遍歴フラットバンドが巨大な磁気熱電効果の起源となっているといえます。