

ホイスラー型 $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 化合物における異常ネルンスト効果

Anomalous Nernst Effect in Heusler-type $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ Compounds

名工大¹, 物質・材料研究機構² (M2)長瀬 未都¹, 〇宮崎 秀俊¹, 西野 洋一¹, Zhou Weinan², Xing

Guangzong², 増田 啓介², 桜庭 裕弥²

Nagoya Inst. Tech.¹, NIMS², Mito Nagase,^〇Hidetoshi Miyazaki¹, Yoichi Nishino¹, Weinan Zhou²,

Guangzong Xing², Keisuke Masuda², Yuya Sakuraba²

E-mail: miyazaki@nitech.ac.jp

異常ネルンスト効果は、外部磁場がない状態で磁性材料に垂直な温度勾配を加えると熱起電力が発生する現象であり、IoT デバイスや熱流センサー用の自立型電源への応用が期待されている^[1]。大きな異常ネルンスト係数 (S_{ANE}) を有するためには大きな異常ネルンスト伝導率 (α_{xy}) および異常ホール伝導率 (σ_{xy}) が必要であるが、 $L2_1$ 型 Co_2MnGa 合金は特異な電子構造により、薄膜^[2]や単結晶^[3]において大きな異常ネルンスト係数を持つことが報告されている。Xing らは、 Co_2MnGa の Mn サイトに Fe をドーピングすることで、電子ドーピングによる電子構造のフェルミ準位の最適化により α_{xy} が更に向上する可能性があることを理論的に予測した^[4]。そこで、本研究では、バルク $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 多結晶体の合成方法を確立するとともに、 $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 化合物の結晶構造、電子構造、 S_{ANE} および α_{xy} の関係を調査した。

$\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 化合物は、Ar 雰囲気中でアーク溶融によりインゴットを作製し、粉砕した試料を 50 MPa、1173 K、5 分間の放電プラズマ焼結することにより測定用試料を作製した。電子構造は SPring-8 BL46XU での硬 X 線光電子分光法 (HAXPES)、結晶構造は SPring-8 BL02B2 での高分解能粉末 X 線回折 (XRD) 測定によって評価した。 S_{ANE} および α_{xy} は、NIMS において PPMS (Quantum Design 社) の上に測定用試料を設置し、手作りのホルダーを使用して平面温度勾配を与えることで評価した。理論的電子構造、 α_{xy} は、擬ポテンシャル法に基づく第一原理バンド計算コード Quantum Espresso を使用して計算した。

合成した $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ 多結晶性は、XRD 測定から全試料でホイスラー構造に起因する $L2_1$ ピークが存在し単相であることを確認した。 Co_2MnGa において、 S_{ANE} は $5.4 \pm 0.1 \mu\text{V/K}$ であり、単結晶で報告された $6.0 \mu\text{V/K}$ の値に匹敵する値であった^[3]。しかしながら、 $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ga}$ の α_{xy} および S_{ANE} は、Fe ドーピングにより減少し、理論予測と一致しなかった。そこで我々は最も単純な Co_2MnGa ($x=0$) に着目しその原因を考察した。図 1 に示す HAXPES により観測した Co_2MnGa の価電子帯スペクトルは、Co サイトへ Coulomb 相互作用 ($U=3\sim 4 \text{ eV}$) を追加した第一原理計算により理論的に再現することができた。そこで、図 2 に示すように Co サイトに U を追加した際の $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{Ga}$ における α_{xy} を計算したところ、 $U=3 \text{ eV}$ で実験値を再現することができた。この結果は、ホイスラー型 Co_2MnGa 化合物において、Co サイトへの電子相関の効果適切に考慮することにより、 α_{xy} を正確に予想できることを示しており、今後、理論計算により効率的に高い異常ネルンスト効果を示す材料の探索が可能になることを明らかにした。

参考文献：

- [1] K. Uchida *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 140504, (2021).
- [2] K. Sumida *et al.* Commun. Mater. **1**, 89 (2020).
- [3] A. Sakai, *et al.*, Nat. Phys. **14**, 1119, (2018).
- [4] G. Xing *et al.*, Acta Mater. **270**, 119856 (2024).

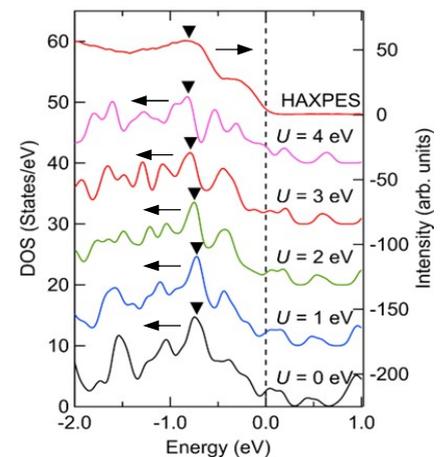


図 1 Co_2MnGa の価電子帯光電子スペクトルおよびバンド計算から求められた電子構造の Co サイトへの U 依存性。

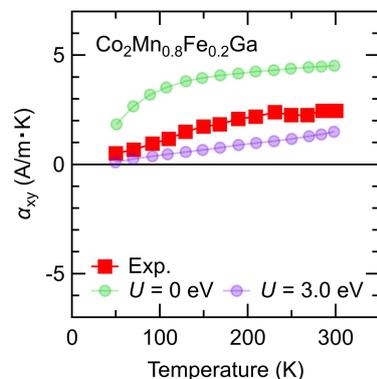


図 2 $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{Ga}$ における α_{xy} の実験値および Co サイトへの Hubbard- U を追加した際に得られた理論計算の温度依存性。