

Thermoelectric Effects Driven by Nanoscale Magnetic Order: A Theoretical Study

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2018-07-02 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/2297/00051423

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



平成 29 年度 博士論文 要旨

ナノスケール磁気秩序に由来する熱電効果の理論的研究
Thermoelectric Effects Driven by Nanoscale Magnetic Order: A
Theoretical Study

金沢大学自然科学研究科 数物科学専攻
水田耀ピエール

概要

Finding magnetic materials hosting large anomalous Nernst effect (ANE) is an essential and urgent task so that the heat-to-electricity conversion using the ANE can be practicable. The object of this study was to theoretically reveal the behavior of ANE expected in a material with magnetic structure known as *Skyrmion crystal*(SkX), which is of particular interest due to the particle-like nature of its magnetic unit. The principal discovery regarding the simplest model of SkX was a striking peak of the magnitude of ANE that appears in a particular range of electron density (Fermi energy $\sim \mu_0$). Its origin was identified in quantum picture to be the bands that are multiply twisted topologically, i.e. possessing large Chern numbers, accumulating around μ_0 . This was in turn understood to be the combined effect of (i) the unity of magnetic flux associated with each Skyrmion and (ii) a van Hove singularity residing around μ_0 , which is derived from the atomic lattice structure. Thus, the present finding motivates the search for materials where SkX is stabilized under an appropriate electron density, by extensively applying the first-principles method employed in this study to realistic systems beyond the present simplest model.

目次

1	はじめに	2
1.1	熱電変換の全体像と本研究の位置づけ	2
1.2	ANE の発現機構	2
1.3	候補系	3
2	モデル	3
3	評価すべき量	4
4	計算手法	4
5	結果と考察	5
5.1	電子状態と電気伝導度	5
5.2	熱電物性	6
5.3	バンドのトポロジー: バンド毎の Chern 数の分布	7
6	補足	8
7	まとめと今後	8

1 はじめに

1.1 熱電変換の全体像と本研究の位置づけ

産業・輸送機械から人体表面に至るまで、熱の流れはあらゆるスケールでありふれている。多くの熱は使われぬまま環境に散逸しており、全体としてエネルギー効率の低い社会になっている。社会の省エネルギー化のためには、これらを回収して利用可能なエネルギーに戻すサイクルをうまく回すことが求められる。

その一つの方法が、廃熱を直接に電力へ変える「熱電変換」である。熱電変換は、固体材料の両端に温度差 $(\Delta T)_x$ をつけたときに、その固体に取り付けた端子間に起電力 ΔV が発生する「熱電効果」を使って実現する。 $\Delta V \parallel (\Delta T)_x$ の効果は Seebeck 効果、 $\Delta V \perp (\Delta T)_x$ の効果は Nernst 効果として知られる。それぞれを用いた熱電変換の効率を高めるのに有効な戦略の一つは、出力因子 $PF_X \equiv \sigma X^2$ を増大せしめることである。ここに、 σ は (対角) 電気伝導度、 X は熱電係数で次の Seebeck 係数 S または Nernst 係数 N を表す：

$$\begin{cases} S \equiv \frac{(\Delta V)_x}{(\Delta T)_x} \\ N \equiv \frac{(\Delta V)_y}{(\Delta T)_x} \end{cases} \quad (1)$$

現在までに知られている値をはるかに凌ぐ熱電係数を示す材料が見つければ、熱電変換の普及に拍車がかかると期待される。

良い熱電材料を探す従来の試みのほとんどは Seebeck 効果の方に注がれてきた。それは、通常の (“ordinary”) Nernst 効果 (OHE) で高効率を得るにはある程度強い外部磁場 B_{ext} をかけねばならず、実用には不向きとされるからである。

しかし Nernst 効果には、異常 (“anomalous”) Nernst 効果 (ANE) として知られる、物質内在の磁場 (内部磁場 B_{int}) で引き起こされるものもある。 B_{int} 自体、一般には B_{ext} によって変化するものであるが、後者を切っても前者が残ることは珍しくなく、その時には B_{ext} なしに Nernst 発電ができることになる。このような ANE を活かした熱電変換素子には、主に “熱流 \perp 電流” というベクトル関係に由来して、Seebeck による発電にはない種々のメリットがあるとされる [1]。このことから、大きな Nernst 係数 N を示す材料を探すことには大きな意味があるといえる。

そこで本研究では、“巨大 ANE を期待させる系”に注目して N の振る舞いを理論的に探るとともに、あわよくばプロトタイプと制御指針を提案することを目指した。

1.2 ANE の発現機構

ANE の発現機構はいくつかあるが、本研究が対象としたのは、結晶が完全な並進対称性をもっている状況で唯一機能する “内因性機構” である*1。内因性機構は、電子状態 (Bloch 状態 $|\psi_{n\mathbf{k}}\rangle = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}|u_{n\mathbf{k}}\rangle$) 自身が誘起する “内部磁場” によって電子の運動が曲げられる、というものである。その内部磁場は、Bloch 状態の波数 \mathbf{k} をパラメータとする表示では Berry 曲率 $\Omega_{n\mathbf{k}} = i\langle u_{n\mathbf{k}}|\partial_{\mathbf{k}}|u_{n\mathbf{k}}\rangle$ と同定される。

ところで、“熱学的効果” である ANE は有限温度 $T > 0$ を考えないと現れないが、実は、絶対零度の量子力学でも考えられる “力学的効果” である異常 Hall 効果 (AHE) に派生するものとして理解されている。実際、

*1 現実の固体結晶には必ず乱れが存在するが、その乱れの程度が適度な範囲にあると、内因性機構による寄与が主要になると理解されている [2]。

理論的には AHE の大きさを測る伝導度 σ_{xy} の関数形が分かれば、ANE の大きさを測る伝導度 α_{xy} も決まる (式 (4) 参照)。

1.3 候補系

したがって、巨大 ANE を探す上で巨大 AHE が手がかりになることは容易に想像できる。第 3 節に示す式を考察すれば、正確には、「Fermi エネルギーの変化に対する AHE の巨大な変化」こそが巨大 ANE を意味することが分かる。そこで本研究が目をつけたのは、大きな AHE の発現を窺わせる電子状態が予測されていた [3] “スキルミオン結晶 (SkX)” である。SkX は、磁気モーメントが創る渦構造の一種 “スキルミオン” [4] が格子上に並んだ磁気秩序である。電子のスピン自由度と実空間内運動の自由度が有効的に結合した種々の系で発現が予測されているだけでなく、実験的にも次々と確認されている [5]。

2 モデル

前述の先行報告 [3] が扱ったモデルに最大限対応する状況を調べるために設定したのは、次のような系である：

原子結晶構造 2次元正方格子 (格子定数 $a = 3.3\text{\AA}$) の各基本単位胞に水素原子 (1 個の s 電子がある状況を想定)

スピン結晶構造 原子構造の基本単位胞の各辺を N 倍した単位胞の超格子でひとつのスキルミオン (直径 $2\lambda \equiv Na$) を形成している。 $N = 6$ のものを図 1 に示す。単位スキルミオンを形成するスピンの方向

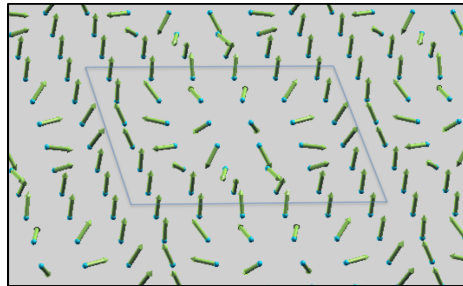


図 1 6×6 SkX をなすスピンの周期構造. 四角枠が正方形の単位胞で、その半径が λ である.

ベクトルは、単位胞の中心を原点とする極座標 (θ, ϕ) を使うと

$$\begin{cases} \theta = \pi \left\{ 1 - \left(\frac{r}{\lambda} \right) \right\} & \text{for } r < \lambda, \\ \phi = \tan^{-1} \left(\frac{y}{x} \right) & 0 \text{ otherwise} \end{cases} \quad (2)$$

で指定される。本研究の第一原理計算では、スピンを所望の構造に拘束しながら電子状態を求める手法 [6] を用いて、このスキルミオン構造をシミュレートした。

以下で輸送係数の結果は $N = 6$ のものについてのみ示し、 N をより大きくした場合については定性的振る舞いを考察するに留める。 $N = 6$ のときのスキルミオン直径 1.98nm は、これまでに報告されている最小レベル $1 \sim 3\text{nm}$ [7, 8] におおよそ対応している。

現実系との対応 ここでの計算は水素そのものの結晶状態ではなく、例えば実際にナノスケールのスキルミオン状態が示唆されている SrFeO₃[9] などの金属元素化合物を想定している。特に、各サイトに単一軌道であるという意味で、本モデルとの良い対応関係が期待できる例としては、3d 軌道の結晶場分裂とスピン分裂により孤立的な $e_{g\uparrow}$ 軌道の現れた状況が考えられる。

3 評価すべき量

電場 \mathbf{E} と温度勾配 ∇T を駆動力とする電流の線形応答の形： $\mathbf{j} = \tilde{\sigma}\mathbf{E} + \tilde{\alpha}(-\nabla T)$ における伝導度テンソルの各成分が分かれば、式 (1) で定義される熱電係数は

$$\begin{cases} S \equiv S_{xx} \equiv \frac{E_x}{(\nabla T)_x} = \frac{S_0 + r_H N_0}{1 + r_H^2} \\ N \equiv S_{xy} \equiv \frac{E_x}{(\nabla T)_y} = \frac{N_0 - r_H S_0}{1 + r_H^2} = -S_{yx}. \end{cases} \quad (3)$$

で評価できる。ここで、 $S_0 \equiv \alpha_{xx}/\sigma_{xx}$, $r_H \equiv \sigma_{xy}/\sigma_{xx}$, $N_0 \equiv \alpha_{xy}/\sigma_{xx}$ を定義した。伝導度は、 $\mathcal{L}_{ij}^{(n)}(\mu, T) = \int d\varepsilon \Sigma_{ij}(\varepsilon)(\varepsilon - \mu)^n \left(-\frac{\partial f}{\partial \varepsilon}\right)$ で定義される量を使うとききれいな形に書いて、 $\sigma_{ij} = e^2 \mathcal{L}_{ij}^{(0)}$, $\alpha_{ij} = \frac{\mathcal{L}_{ij}^{(1)}}{eT}$ となる。 \mathcal{L}_{ij} 中に現れた $\Sigma_{ij}(\varepsilon)$ は絶対零度における対角伝導度と非対角伝導度 (異常 Hall 効果の大きさ) を表し、本研究の扱いの範囲では、

$$\Sigma_{xx}(\varepsilon) = \sum_{n,\mathbf{k}} \tau_{n\mathbf{k}} [\mathbf{v}_{n\mathbf{k}}]_x^2 \delta(\varepsilon - \varepsilon_{n\mathbf{k}}), \quad \Sigma_{xy}(\varepsilon) = \sum_{n,\mathbf{k}} [\boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}}]_z \Theta(\varepsilon - \varepsilon_{n\mathbf{k}}) \quad (4)$$

の形である。ここに、 $e (< 0)$, $\tau_{n\mathbf{k}}$, $f(\varepsilon, \mu)$, $\mathbf{v}_{n\mathbf{k}}$, $\varepsilon_{n\mathbf{k}}$, $\boldsymbol{\Omega}_{n\mathbf{k}}$, μ および Θ はそれぞれ、電気素量, 緩和時間 (以降、定数 τ と近似), Fermi 分布関数, バンド n 上で波数 \mathbf{k} の状態にある電子の群速度・バンドエネルギー・Berry 曲率、化学ポテンシャル、およびステップ関数である。本論文では xy 面内の純 2次元系を考えるので、伝導度は z 方向の厚み分を取り除いて定義した $\sigma_{ij} \equiv \sigma_{ij}^{2D} \equiv d \times \sigma_{ij}^{3D}$ を議論する。それは e^2/h 単位に測られるものであり、ディメンションは $(\text{Ohm})^{-1}$ となる。

なお、式 (3) にそのまま入る量ではないが、Chern 数と呼ばれる位相不変量が後の考察で本質的に重要とわかる。それは電子状態の幾何学の理論によって次のような物理的意味をもつことが知られている量である：2次元系の $\sigma_{xy} = \sum_n \sigma_{xy}^n$ に対するバンド n の寄与 σ_{xy}^n は、そのバンドが完全に占有されているならば e^2/h の整数倍であり、その整数は、そのバンドの Chern 数である。

4 計算手法

OpenMX[10] による第一原理電子状態計算

スピン被拘束ノンコリニア DFT[11, 6] に基づく数値計算により、SkX 構造に拘束された Bloch 波動関数の組 $\{|\psi_{n\mathbf{k}}\rangle\}$ を得る。次のステップに渡す情報として、必要なエネルギー範囲内の Bloch 状態に関して、重なり積分 $\{M_{mn}^{\mathbf{k},\mathbf{b}} \equiv \langle u_{m\mathbf{k}} | u_{n\mathbf{k}+\mathbf{b}} \rangle\}$, 初期試行の原子様関数 $\{ |g_n\rangle \}$ の成分 $\{A_{mn} = \langle \psi_{m\mathbf{k}} | g_n \rangle\}$ およびエネルギー固有値 $\{\varepsilon_{n\mathbf{k}}\}$ をファイルに書き出す。

Wannier90 のメインモジュール *wannier90.x* による、基底の局在化手続き [12]

本研究で扱う輸送係数を含めて波数積分で評価される量は、空間的になるべく局在した基底 (最局在

Wannier 関数) で計算するほど、精度を保ちつつより効率良く計算できる。そこで、前ステップで得られた 3 つのファイルを読み込みデータとして、広がり関数の最小化手続き [13, 14] により、基底を改善する。

Wannier90 の後処理モジュール *postw90.x* による輸送係数計算 [15, 16]

前ステップで得られた良い Wannier 関数を基底として式 (4) の量を計算し、そこに温度による電子分布広がり効果を加えた計算を行って最終的に式 (3) を評価する。

5 結果と考察

5.1 電子状態と電気伝導度

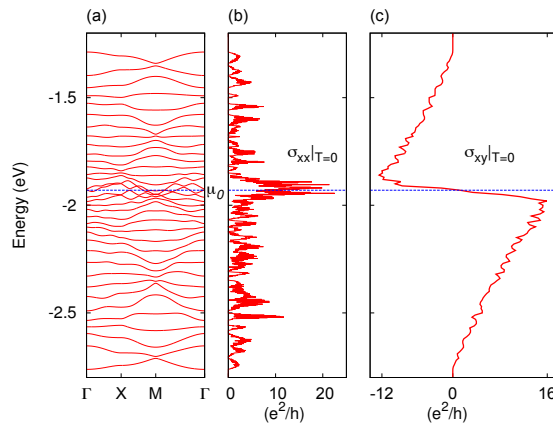


図2 6×6 SkX の (a) バンド分散関係, (b,c) 縦伝導度 σ_{xx} (b) と横伝導度 σ_{xy} (c) の Fermi エネルギー依存性.

占有された 36 本のバンドの分散関係を図 2 の (a) に示す。次の特徴が読み取れる：

1. 中央付近のエネルギー $E \sim \mu_0$ に関して対称的な形状である
2. $E \sim \mu_0$ よりも十分に低いか高いエネルギーでは (各隣接バンドペアのギャップが明瞭で) バンドの孤立性が高いのと対照的に、 $E \sim \mu_0$ では 4, 5 本のバンドが“絡まっている”(以後、「特異バンド」と呼ぶ)。

これらは、いわゆる「電子・正孔対称性」を反映した振る舞いであり、後で詳しく考察する。また、図 2(a) の特異バンド領域を拡大したのが図 3(上) であり、そこで赤く描いたバンド (特異バンドのひとつ) の Berry 曲率を対数プロットしたのが同図 (下) である。同図 (上) インセットで更に拡大して示しているのが描画経路において最も小さいバンド間ギャップであり、約 0.05meV である。つまり、“ほぼ縮退している”特異バンドたちもすべて、数値的には微小なギャップで互いに分離している。一方、同図 (下) からは、「より小さなギャップの近傍ほど、より強い Berry 曲率が分布する」傾向が読み取れる。

さて、図 2 の (b) と (c) はそれぞれ、絶対零度での電気伝導度の対角・非対角成分の Fermi エネルギー依存性である。上述 1. の特徴と対応するように、両成分ともに μ_0 に関して良い対称性を示している。具体的に言

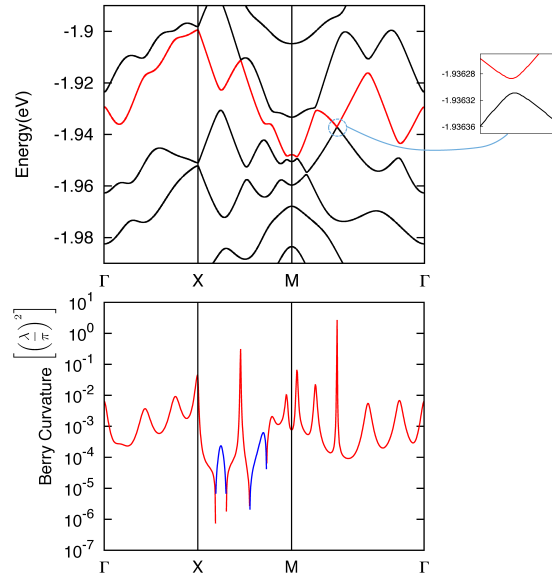


図3 図2(a)の特異バンド領域拡大図(上)、および、そこで赤く示したバンド上のBerry曲率分布(下). 下図の赤(青)線は正(負)値を示す.

うと、

- 対角電気伝導度は、 μ_0 を原点とする偶関数に近い。とくに、特異バンドの領域に著しいピークをもつ。
- 非対角電気伝導度は、 μ_0 を原点とする奇関数に近い。とくに、特異バンドの領域の外では概して単調的な増加関数であり、その領域のすぐ上・下でそれぞれ負・正の極値をとる。

5.2 熱電物性

ここでは、電子充填率の変化に対して図2(a)のバンド構造が大きく変化しないと仮定し (rigid band 近似)、そのバンド上に振られた化学ポテンシャル μ の各値に対する物性値を議論する。図4(a)は測定にかかる熱電係数 [式(3)]、同図(b)はそれらを構成する純粋な伝導度比、同図(c)は(a)の係数それぞれに対応する熱電変換における出力を決める量(出力因子)である。(a-c)すべてに示している点線 $\mu_0 \simeq -1.93\text{eV}$ は、先に議論した特異バンド中央付近に対応するが、より正確に言うと、 $r_H \simeq 0$ となるエネルギーである。

まず、Seebeck と Nernst の関係の仕方を強く規定する Hall 角比 r_H [(b)の緑データ] に注目すると、その概形は図2(c)の σ_{xy} と似ていて、 μ_0 を原点とする奇関数に近い。 r_H の定義から、今見ているのは奇関数的な σ_{xy} を偶関数的な σ_{xx} で除した量であるから、当然期待される振る舞いである。注目すべきは、 μ_0 からのズレに対して r_H の傾きが極めて大きく、(目分量で線形近似して) $\delta r_H / \delta \mu \simeq 1/40\text{meV}$ となっていることである。このことから、 $\mu \simeq \mu_0$ の特異バンド領域に焦点を当てるならば、式(3)の分母で $r_H^2 \simeq 0$ と近似できるのは、図4のデータ点(20meV 間隔)の中では丁度 μ_0 の点だけであると言ってよい。その点(のごく近く)で $S_0 \sim 0$ 、対して N_0 は極大をとり、結果として $S \simeq 0$ と非常に大きな $N \simeq N_0 \simeq 200\mu\text{V/K}$ が出ている。また、その点 $\mu \simeq \mu_0$ を中心に概形をみると、 S_0 は奇関数的、 N_0 は偶関数的となっているが、これは、(300K

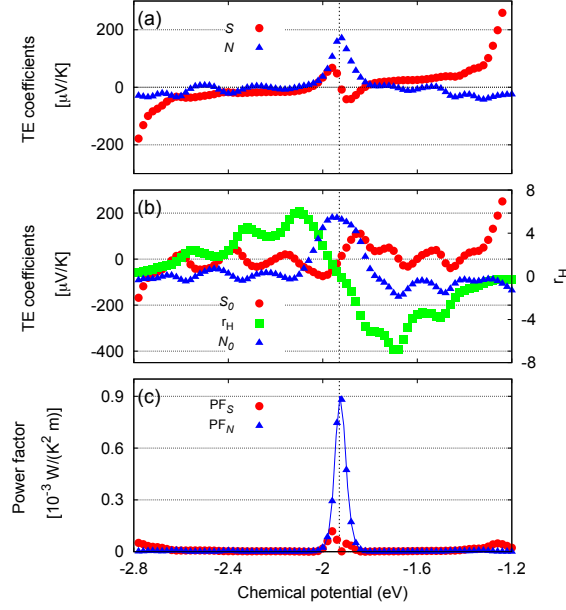


図4 6×6 SkX の熱電係数の化学ポテンシャル依存性. 温度は 300K. (a) S と N . (b) S_0 と N_0 (左軸) および r_H (右軸). (c) S, N それぞれを用いた熱電変換における出力因子.

よりも広いエネルギースケールで $\sigma_{xx}(\varepsilon)$, $\sigma_{xy}(\varepsilon)$ のそれぞれが示している偶的、奇的振る舞いを、 α_{xy} の低温近似の式

$$\alpha_{ij}(T, \mu \simeq \varepsilon_F) \simeq \frac{\pi^2 k_B^2}{3e} \left[\frac{d\sigma_{ij}(\varepsilon_F)}{d\varepsilon_F} \right]_{T=0} T, \quad (5)$$

に当てはめれば予測できることである。即ち、図4の $\mu \simeq \mu_0$ での大きな構造は、式(3)の下の積分 $\mathcal{L}^{(1)}$ を数値的に実行しなくても、被積分関数中の $\Sigma_{ij}(\varepsilon_F) \propto$ [図2の (b-c)] を“目で微分”することで予測できたのである。また、巨大な N から当然期待されることではあるが、 $\mu \simeq \mu_0$ にピークをもった出力因子 PF_N は、バンド中央から離れた領域のそれとは桁違いに大きく、また、バンド中央領域の PF_S よりも相当に大きい。

本小節で分かった重要なことは、本スキルミオン結晶モデルのバンド中央領域まで電子を詰めた状況では、異常 Hall 伝導度 σ_{xy} が電子の増減に対して急峻に変化するおかげで巨大な Nernst 係数が期待される、ということである。

5.3 バンドのトポロジー: バンド毎の Chern 数の分布

次に、そのような $\sigma_{xy}(\varepsilon)$ の特徴的振る舞い (5.1 小節末の箇条書き 2 点目に対応) の理解を深めたい。上述したように、この量が各バンドからどれだけの寄与を受けるかは、各バンドの Chern 数 [そのバンドの“捻れ具合”(トポロジーの特徴)を決める数] と直接に関係する。そこでこの量を見つめてみることにする。

まず、図2(a),(c)の概形と、式(4)第2式を踏まえると、 $\sigma_{xy}(\varepsilon) = e^2 \Sigma_{xy}(\varepsilon)$ をバンド分解した量、即ちバンド毎の Chern 数が単純な規則に従った分布をしていることは、ほぼ明らかである。特異バンド領域以外のバンド幅が狭いところでは、Chern 数の値 “-1” が連続しているのではないかと推測はできる。実際に Fukui-Hatsugai-Suzuki による方法 [17] で計算した結果を図5に示す [18]。特異バンド領域外については予

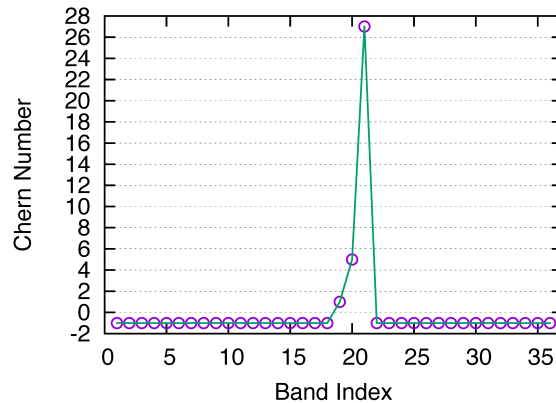


図5 6 × 6 SkX の各バンドの Chern 数. 横軸は低エネルギー側から数えたバンド番号.

想通り “-1” が連なり、特異バンド領域の 3 本だけが $|C_n| > 1$ をもっている。ゆえに、本スキルミオン結晶モデルの巨大な Nernst 係数の起源は、バンドの特徴的なトポロジー構造に求められるという重要な理解に到達する。

6 補足

- 本研究結果でその重要性を突き止めた特異的なバンドトポロジー (Chern 数分布) は、
 1. 本研究の計算では波数空間の Berry 曲率として見ていた有効磁場を、実空間に翻訳して一様化した磁場が真に存在する場合のバンドトポロジーに近いこと、および、
 2. スキルミオン由来の有効磁場が、もとの原子構造に由来する電子状態の “Van Hove 特異性” に作用することで生じること、
 を近年の関連諸研究 [19, 20, 21] を通して認識した。
- 本研究の対象を現実の物質に拡張する試みとして、スキルミオン様の磁気構造が近年の実験で示唆された物質 EuO[22] を取り上げ、ここで扱ったものと同じスキルミオン構造を EuO 薄膜上に仮定した計算を行った (論文未発表)。そこでも大きな ANE が期待される領域を見出せた。その状況は、ここで扱った s 軌道系とはかなり異なるものであった。

7 まとめと今後

社会を省エネルギー化する一助として普及が望まれる熱電変換であるが、その際とくに温度勾配に垂直な起電力を外部磁場なしに生じる異常 Nernst 効果 (ANE) を使う方式は、従来の Seebeck 方式に対して有利な特徴をもつ。その実用化の大前提として必要となるのが大きな ANE を示す材料であり、本研究では、その候補プロトタイプを探る試みとして、ANE を示す磁性体の一種 “スキルミオン結晶” に焦点を当てた。

格子点あたり s 電子 1 個の正方格子薄膜上にスキルミオン結晶の磁気構造を仮定して計算を行ったところ、(i) 大きく振じれたトポロジーをもつ電子バンド (特異バンド) が現れること、(ii) 特異バンド付近に Fermi エネルギーが来るように系の電子数を調整できれば、(i) の反映として著しく大きな ANE が期待できること、が

明らかになった。

今後、本研究の様な第一原理計算が様々な物質に適用されることによって、ここで見出されたメカニズムの効いた高性能熱電材料を見つけることが強く望まれる。

参考文献

- [1] Y. Sakuraba. Potential of thermoelectric power generation using anomalous Nernst effect in magnetic materials. *Scripta Materialia*, 111:29–32, 2016.
- [2] S. Onoda, N. Sugimoto, and N. Nagaosa. Quantum transport theory of anomalous electric, thermoelectric, and thermal Hall effects in ferromagnets. *Physical Review B*, 77(16):165103, 2008.
- [3] K. Hamamoto, M. Ezawa, and N. Nagaosa. Quantized topological Hall effect in skyrmion crystal. *Physical Review B*, 92(11):115417, 2015.
- [4] N. Nagaosa and Y. Tokura. Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions. *Nature nanotechnology*, 8:899, 2013.
- [5] S. Seki and M. Mochizuki. *Skyrmions in Magnetic Materials*. Springer Briefs in Physics. Springer, 2016.
- [6] T. Ozaki. Constrained non-collinear density functional theory implemented in OpenMX. http://www.openmx-square.org/tech_notes/NCDFE_WS08.pdf.
- [7] S. Heinze, K. v. Bergmann, M. Menzel, J. Brede, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, G. Bihlmayer, and S. Blügel. Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions. *Nature Physics*, 7:713, 2011.
- [8] N. Kanazawa, Y. Onose, T. Arima, D. Okuyama, K. Ohoyama, S. Wakimoto, K. Kakurai, S. Ishiwata, and Y. Tokura. Large topological Hall effect in a Short-Period helimagnet MnGe. *Physical Review Letters*, 106(15):156603, 2011.
- [9] S. Chakraverty, T. Matsuda, H. Wadati, J. Okamoto, Y. Yamasaki, H. Nakao, Y. Murakami, S. Ishiwata, M. Kawasaki, Y. Taguchi, Y. Tokura, and H. Hwang. Multiple helimagnetic phases and topological Hall effect in epitaxial thin films of pristine and Co-doped SrFeO₃. *Physical Review B*, 88(22):220504(R), 2013.
- [10] T. Ozaki, H. Kino, J. Yu, M. Han, N. Kobayashi, M. Ohfuti, F. Ishii, T. Ohwaki, H. Weng, and K. Terakura. *Open source package for Material eXplorer*. www.openmx-square.org/.
- [11] T. Ozaki. Non-collinear spin density functional: Ver.1.0. http://www.openmx-square.org/tech_notes/tech2-1_0.pdf.
- [12] *Wannier90*: A tool for obtaining maximally-localised Wannier functions. *Computer Physics Communications*, 185:2309, 2014. www.wannier.org/.
- [13] N. Marzari and D. Vanderbilt. Maximally localized generalized Wannier functions for composite energy bands. *Physical Review B*, 56(20):12847, 1997.
- [14] I. Souza, N. Marzari, and D. Vanderbilt. Maximally-localized Wannier functions for entangled energy bands. *Physical Review B*, 65:035109, 2001.
- [15] G. Pizzi, D. Volja, B. Kozinsky, M. Fornari, and N. Marzari. A code for the evaluation of thermoelectric and electronic transport properties with a maximally-localized Wannier functions basis.

- Computer Physics Communications*, 185:422, 2014. www.wannier.org/.
- [16] X. Wang, J. R. Yates, I. Souza, and D. Vanderbilt. *Ab initio* calculation of the anomalous Hall conductivity by Wannier interpolation. *Phys Rev B*, 74(19):195118, 2006.
- [17] T. Fukui, Y. Hatsugai, and H. Suzuki. Chern Numbers in Discretized Brillouin Zone: Efficient Method of Computing (Spin) Hall Conductances. *Journal of the Physical Society of Japan*, 74(6):1674–1677, 2005.
- [18] Thanks to the implementation interfacing to *OpenMX* by H. Sawahata and F. Ishii.
- [19] Y. Hatsugai, T. Fukui, and H. Aoki. Topological analysis of the quantum Hall effect in graphene: Dirac-Fermi transition across van Hove singularities and edge versus bulk quantum numbers. *Physical Review B*, 74(20):205414, 2006.
- [20] M. Arai and Y. Hatsugai. Quantum Hall effects of graphene with multiorbitals: Topological numbers, Boltzmann conductance, and semiclassical quantization. *Physical Review B*, 79(7):075429, 2009.
- [21] B. Göbel, A. Mook, J. Henk, and I. Mertig. Unconventional topological Hall effect in skyrmion crystals caused by the topology of the lattice. *Physical Review B*, 95:094413, 2017.
- [22] Y. Ohuchi, Y. Kozuka, M. Uchida, K. Ueno, A. Tsukazaki, and M. Kawasaki. Topological Hall effect in thin films of the Heisenberg ferromagnet EuO. *Physical Review B*, 91(24):245115, 2015.

学位論文審査報告書（甲）

1. 学位論文題目（外国語の場合は和訳を付けること。）

Thermoelectric Effects Driven by Nanoscale Magnetic Order: A Theoretical Study

(ナノスケール磁気秩序に由来する熱電効果の理論的研究)

2. 論文提出者 (1) 所属 数物科学 専攻

(2) 氏名 水田 耀 みずた ようびえーる
ピアール

3. 審査結果の要旨（600～650字）

1月22日に主査、副査により予備審査をおこない、2月7日に学位論文公聴会を実施した。公聴会の後に、主査と副査で審査会を開き、合格と判断した。近年、エネルギー問題解決に向けて、排熱の有効利用に重要な熱電変換現象に関する研究の必要性が高まっている。水田氏は磁性体において電子状態のトポロジーが重要となる異常ネルンスト効果に着目した。これまで報告されている磁性体の異常ネルンスト係数の多くは大きくても $1\mu\text{V/K}$ 程度であり、熱電変換素子への応用には不十分であることが知られていた。そこで水田氏は大きな異常ネルンスト係数を示す物質に必要な条件を検討し、大きな異常ホール係数が理論予測されていた磁気スキルミオン結晶（電子スピンのナノスケールに秩序した結晶）の異常ネルンスト効果の研究に取り組んだ。まず、磁気スキルミオン結晶の二次元正方格子模型の電子状態計算をおこなった。そして波動関数のトポロジーを考慮したボルツマンの半古典論に基づいて輸送係数を見積もった。その結果、スキルミオン結晶で $100\mu\text{V/K}$ を超える異常ネルンスト係数が生じる可能性と、その起源がスキルミオン結晶の形成する有効磁場であることを明らかにした。また、これらの結果が磁場下でのホール効果の古典論とのアナロジーで解釈できることを示した。以上の様に、水田氏の研究は高効率な熱電変換材料開発に新たな指針をもたらす重要な基礎研究であると判断し、合格と結論する。

4. 審査結果 (1) 判定（いずれかに○印） 合格 ・ 不合格

(2) 授与学位 博士（理学）