磁性半導体 $MnBi_2Te_4$ 超薄膜における横型熱電効果の第一原理計算

First-principles calculation of the transverse thermoelectric effect in ultrathin films of magnetic semiconductor $MnBi_2Te_4$

○盛島　夢 [1], 山口　直也 [2], 澤端　日華瑠 [2], 石井　史之 [2] (1. 金沢大自然, 2. 金沢大 NanoMaRi)
○Yume Morishima, Naoya Yamaguchi, Hikaru Sawahata, Fumiyuki Ishii
([1]Grad. Sch. of Sci. & Tech., Kanazawa Univ., [2]NanoMaRi, Kanazawa Univ.)
E-mail: morishima@cphys.s.kanazawa-u.ac.jp

【はじめに】Bi_2Te_3 の発見以降、温度勾配と平行に電場を生み出す縦型の熱電効果(ゼーベック効果)は省エネルギーの観点から注目されてきた。Bi_2Te_3 はファンデルワールス力で積層した層状物質であり、室温で~ 0.7程度の高い無次元性能指数$ZT = \sigma S^2 T/\kappa$ (σ: 電気伝導度、S: ゼーベック係数、T: 温度、κ: 熱伝導度)を達成した[1]。類似物質として層間で反強磁性秩序を持つ $MnBi_2Te_4$ が挙げられ[2]、特に 3 以上の奇数層ではフェリ磁性体となり、異常ホール伝導度が量子化された値を取ることが予測されている[3]。この場合、従来の縦型熱電効果だけでなく、温度勾配と磁性体の磁化の外積方向に電場を生じる横型熱電効果(異常ネルンスト効果)の発生が期待される。さらに Bi と Te が比較的重い元素であることに加えて超薄膜では低い格子熱伝導度が期待されることから、$MnBi_2Te_4$ では高いZTが得られると考えられる。本研究では磁性半導体となる 1、2、3 層の超薄膜 $MnBi_2Te_4$ に着目し密度汎関数理論に基づく第一原理計算を行い、ネール温度 25 K[2]付近において横型熱電効果の大きさを表す異常ネルンスト係数Nと無次元性能指数ZTを見積もった。

【計算方法】異常ネルンスト係数Nは電気伝導度テンソル$\hat{\sigma}$、熱電伝導度テンソル$\hat{\alpha}$を用いて $N = (N_0 - \theta_H S_0)/(1+\theta_H^2) = (\alpha_{xy} - \sigma_{xy} S_0)/(\sigma_{xx} + \sigma_{xy}\theta_H)$と書け、$S_0 = \alpha_{xx}/\sigma_{xx}$、$N_0 = \alpha_{xy}/\sigma_{xx}$、$\theta_H = \sigma_{xy}/\sigma_{xx}$はそれぞれ純粋ゼーベック係数、純粋ネルンスト係数、ホール角を表す。Nを求めるためにまず擬ポテンシャル法を用いた第一原理計算コードである OpenMX を用いて 1、2、3 層の $MnBi_2Te_4$ の電子状態を計算した。その後 Boltzmann の輸送方程式に基づく計算コード BoltzTraP を用いて定数緩和時間近似の下で縦方向の係数σ_{xx}とS_0を、Fukui-Hatsugai-Suzuki 法に基づく計算コード[4]を用いて横方向の係数σ_{xy}とα_{xy}を計算し、これらを組み合わせることで異常ネルンスト係数Nを求めた。

【結果と考察】横型熱電効果の応用には20 μV/K 以上の異常ネルンスト係数Nが必要であると報告されている[5]。そのため Table. 1 では 3 層の $MnBi_2Te_4$ に対して$|N| \geq 20\mu$V/K となるケースについて、キャリア密度nと散乱の緩和時間τの観点から分類した。全てのケースにおいてゼーベック項$-\theta_H S_0$と純粋ネルンスト係数N_0は同じ符号となって強め合い、$|\theta_H S_0|$が$|N_0|$よりも大きな値となることが分かった。$n \sim 10^{12}$ cm^{-2}, $\tau = 10$ fs の場合、$|N_0|$と$|\theta_H S_0|$は同じオーダーの値となって$|N| \sim 20$ μV/K に寄与する。$\tau = 100$ fs の場合は、ホール/電子ドープの両方で大きなNが得られ、$|\theta_H S_0|$は$|N_0|$よりも常に 1 桁大きい値となった。$n \sim -10^9$ cm^{-2}, $n \sim 10^{11}$ cm^{-2} の希薄キャリアはバンドのエッジに対応する。このキャリア密度で$\tau = 1$ ps の場合、大きな純粋ゼーベック係数$|S_0| \sim 10^2$ μV/K によって$|\theta_H S_0|$が支配的となるNが得られ、最大で 120 μV/K の大きな値が得られた。これらの結果は、磁性半導体が FePt/Si で提案されたゼーベック駆動の横型熱電効果[6]を達成し得ることを示唆している。

Table. 1 Typical cases with $|N| \geq 20$ μV/K for $|\theta_H| < 1$ and $T = 20$ K.

n [/cm^2]	τ	$\lvert N\rvert$ [μV/K]	$-\theta_H S_0/N_0$	$\lvert\theta_H S_0\rvert$ [μV/K]	$\lvert\theta_H\rvert$
10^{12}	10 fs	~ 20	~ 2	~ 25	> 0.5
$-10^{10}, -10^{11}, 10^{12}$	100 fs	≤ 67	< 20	10^1 - 10^2	> 0.3
$-10^9, -10^{10}$	1 ps	≤ 120	10^1	10^1 - 10^2	> 0.1
10^{11}	1 ps	≤ 53	10^1	10^1	0.1 - 0.3

【参考文献】

[1] T. M. Tritt, Science **283**, 804 (1999).
[2] M. M. Otrokov et al., Nature **576**, 416 (2019).
[3] M. M. Otrokov et al., Phys. Rev. Lett. **122**, 107202 (2019).
[4] H. Sawahata, N. Yamaguchi, S. Minami, F. Ishii, Phys. Rev. B **107**, 024404 (2023).
[5] Y. Sakuraba, Scr. Mater. **111**, 29 (2016).
[6] W. Zhou, K. Yamamoto, A.Miura, R. Iguchi, Y. Miura, K. Uchida, Y. Sakuraba, Nat. Mater. **20**, 463 (2021).