拓扑增强的反常能斯特横向热电效应

刘恩克^{1,2*}, 张伸^{1,3}

1. 中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100190;

2. 松山湖材料实验室, 东莞 523808;

3. 中国科学院大学, 北京 100049

*联系人, E-mail: ekliu@iphy.ac.cn

收稿日期: 2019-10-25; 接受日期: 2019-11-04; 网络出版日期: 2019-11-08

国家自然科学基金委优青基金(编号: 51722106)、国家自然科学基金面上基金(编号: 11974394)和中国科学院合肥大科学中心“高端用户培育基金”(编号: 2019HSC-UE009)资助项目

摘要 磁性拓扑材料是拓扑物理与长程磁有序的统一, 是一类新兴的先进磁性量子材料. 体系中的时间反演对称破缺使得外尔费米子表现出强的贝利相位, 有望产生拓扑增强的、零磁场的能斯特横向热电效应, 为基于新原理下的全固态热电制冷带来了契机.

关键词 磁性拓扑材料, 横向热电, 能斯特效应, 埃廷豪森效应

PACS: 03.65.Vf, 72.15.Eb, 75.47.-m, 72.20.Pa, 85.80.-b

在纵向电场和垂直磁场共同驱动下, 导体中会产生横向电压, 这是人们熟知的霍尔效应; 而在纵向温度场和垂直磁场的共同驱动下, 导体中也会产生横向电压, 这被称之为能斯特效应(图1(a)). 能斯特效应是热产生电的横向模式, 其纵向模式是纵向温度场所产生的纵向电压, 即塞贝克效应. 在高温超导研究中, 能斯特效应曾被用以探测超导转变温度之上可能存在的磁通涡旋态^[1]. 在热电材料研究中, 塞贝克效应则是传统热电材料的主要物理基础^[2,3]. 能斯特效应不仅可以用于横向发电, 也可以利用其逆过程埃廷豪森效应来进行制冷(图1(b)). 相较于塞贝克效应, 目前能斯特效应的横向热电转换效率较低, 且需要外磁场条件. 因

此, 能斯特横向热电效应的研究目前尚少.

事实上, 能斯特效应在横向热电方面表现出独特的优势. 在传统热电中, 双载流子的补偿作用会导致塞贝克效应大大弱化; 而在横向热电中, 电子和空穴向两侧的分离可以产生电压叠加效果, 从而增强能斯特效应. 在实际应用中, 热电材料需要采用p型和n型配对的电极来构成塞贝克电堆, 而横向热电材料只需要采用一种电极材料即可实现能斯特电堆. 在横向热电材料中, 由于温度梯度与电压方向相互垂直, 在器件设计中可以实现电流与传热的空间分离, 不再受电-热输运中Wiedemann-Franz定律的限制, 有可能实现热电参数的独立设计. 最近, 研究人员研究了外尔半金属

引用格式: 刘恩克, 张伸. 拓扑增强的反常能斯特横向热电效应. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2019, 49: 127001

Liu E K, Zhang S. Topologically enhanced zero-field transverse Nernst thermoelectric effect in magnetic topological semimetals (in Chinese). Sci Sin Phys Mech Astron, 2019, 49: 127001, doi: [10.1360/SSPMA-2019-0367](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2019-0367)

图 1 (网络版彩图)(a)能斯特效应和(b)埃廷豪森效应
Figure 1 (Color online) (a) Nernst effect and (b) Ettingshausen effect.

NbP的能斯特效应,发现其能斯特功率因子可达纵向功率因子的4倍^[4].在另一个工作中,研究人员利用狄拉克半金属 Cd_3As_2 的高纵向电导、低横向热导和大能斯特系数,在2 T磁场和室温下获得了高达0.5的横向热电优值 zT ,展现出潜在的高热电转换效率^[5].

对于磁性材料,施加较低的外磁场即可获得较大的能斯特信号,具有灵敏的外场响应,这就是反常能斯特效应.这与磁性材料的反常霍尔效应类似.原理上,反常能斯特和反常霍尔效应均无需施加外磁场,但由于磁性材料存在多磁畴行为,需要外磁场的技术磁化而获得单一磁畴状态.进入单磁畴态后,与材料的磁化行为一致,反常霍尔和反常能斯特信号也进入饱和态.而对于具有矫顽场的硬磁材料,当磁场由饱和态卸载到零场时,体系依然较大程度地保持单畴态,可以获得零场反常能斯特效应.外磁场并非必需条件,这是磁性拓扑材料的反常能斯特效应的一个优势.而采用外磁场来调控材料的磁畴磁化方向,则可以灵活地改变电堆的能斯特电压极性,这进一步为新一代热电器件的智能控制提供了更多自由度.

近十年来,拓扑物理和拓扑材料已经成为凝聚态物理前沿的一个热点方向^[6-9].对于磁性拓扑半金属而言,其能带结构具有稳定的拓扑保护特征.在时间反演对称破缺下,其线性色散的能带交叉节点对应着外尔费米子准粒子激发,这是一种无质量且有手性的电子态.作为动量空间里的磁单极子,外尔节点处具有极强的贝利曲率磁通分布;而连接外尔节点的、具有窄能隙的节点线上也会产生强的贝利曲率磁通分布.磁性外尔材料的贝利曲率可以看作是动量空间里的赝磁场,可以产生内禀的、巨大的横向电子行为,包括反常

霍尔效应和反常能斯特效应.对于横向热电而言,磁性拓扑材料有可能产生拓扑增强的横向热电优值 zT ,从而获得更强的热电响应.

磁性拓扑材料的能带结构所产生的贝利曲率为反常能斯特效应及反常霍尔效应提供了内禀根源.而反常霍尔效应、反常能斯特效应与贝利曲率之间的关系均可由布洛赫电子的自由能推得.可以获得霍尔电导率^[10]:

$$\begin{aligned}\sigma_{xy} &= -e \left(\frac{\partial n}{\partial B_z} \right)_{\mu, T} = -e \left(\frac{\partial M_z}{\partial \mu} \right)_{B, T} \\ &= -\frac{e^2}{\hbar} \int [\mathbf{dk}] \Omega_z(\mathbf{k}) f; \end{aligned} \quad (1)$$

能斯特热电导率^[10]:

$$\begin{aligned}\alpha_{xy} &= \frac{j_x}{-\nabla_y T} \\ &= -\frac{ek_B}{\hbar} \int [\mathbf{dk}] \Omega_z(\mathbf{k}) \\ &\quad \cdot [\beta(\epsilon_m - \mu) f + \ln(1 + e^{-\beta(\epsilon_m - \mu)})] \\ &= -\frac{ek_B}{\hbar} \int [\mathbf{dk}] \Omega_z(\mathbf{k}) g, \end{aligned} \quad (2)$$

式中, f 代表费米分布, $f = 1 / (1 + e^{\beta(\epsilon_m - \mu)})$, $\beta \equiv 1 / k_B T$.对比式(1)和(2)可知,忽略积分号外的常数,只有 f 和 g 不相同,这两部分函数可以理解为对贝利曲率的积分权重,它们体现了不同能量占据态的贝利曲率对霍尔电导和能斯特热电导贡献的差别.图2给出了两个积分权重的函数分布.由图可知,费米分布 f 使得费米能以下所有占据态的贝利曲率对内禀反常霍尔效应均有贡献,而在 $x = \beta(\epsilon_m - \mu) = 0$ 费米能级以上的分布占比较少;而函数分布 g 却在 $x = \beta(\epsilon_m - \mu) = 0$ 费米能级处取

图 2 (网络版彩图)内禀反常霍尔效应和内禀反常能斯特效应的积分权重分布函数

Figure 2 (Color online) Weight function of intrinsic anomalous Hall and Nernst effects.

得极大值, 在偏离费米能级时以指数形式趋于0, 即只有费米能附近的贝利曲率对内禀反常能斯特效应才有主要贡献。

正如传统塞贝克效应中, 热电势与电导率满足莫特关系一样, 反常霍尔效应与反常能斯特效应之间同样满足莫特关系^[11]:

$$\alpha_{xy} = \frac{\pi^2 k_B^2 T}{3e} \frac{\partial \sigma_{xy}}{\partial \mu}. \quad (3)$$

由该公式可知, 反常能斯特效应正比于内禀反常霍尔电导对能量的一阶导数。式(3)所给出的二者之间的对应关系, 有助于统一地理解并寻找、设计大的能

斯特横向热电效应。

磁性拓扑物理为横向热电效应的研究带来了直接的推动效应。最近, 研究人员在磁性外尔金属Heusler合金 Co_2MnGa 中获得了较大的反常能斯特效应^[12,13]。基于费米能级附近的强贝利曲率(图3(a)), 该体系表现出了巨大的反常能斯特系数, 其数值是常规磁性材料的7倍, 而反常能斯特因子是常规磁性材料的50倍左右。这使得人们有机会基于拓扑物理行为去思考和寻找反常能斯特效应的物理条件和候选体系。而 Co_2MnGa 本身的高居里温度也使得该体系为室温能斯特效应的研究提供了便利。

具有kagome晶格和硬磁特性的 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 铁磁体是最近被提出的第一个磁性外尔半金属^[14]。该材料表现出强的反常霍尔效应, 同时具备大反常霍尔电导和大反常霍尔角, 其数值均比常规磁性材料高1个数量级。新近, 角分辨光电子能谱(ARPES)和扫描隧道谱(STM)从谱学上提供了清晰而坚实的实验证据, 证实了该体系中存在外尔节点和表面态费米弧这些拓扑物态^[15,16]。研究人员研究了 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 的能斯特效应^[17], 在零磁场和80 K条件下测得的能斯特系数 $S_{xy} = 3 \mu\text{V K}^{-1}$ 。虽然所得的能斯特系数的数值不是已知材料中最高的, 但 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 的饱和分子磁矩仅为 $0.9 \mu_B/\text{f.u.}$, 其反常能斯特因子高达 $35 \mu\text{V K}^{-1} \text{T}^{-1}$, 比常规铁磁性材料高约1个数量级(图3(b))。这说明了磁性外尔半金属 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 的反常能斯特效应的主导因素并非磁矩。计算结果表明, 与大反常霍尔效应的物理根源一致, $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 中反常能斯特效应与体态中节点线和外尔点引起的强贝利曲率密切相关(图3(a))。同时, 该体系在不同尺寸

图 3 (网络版彩图) (a)电子能带的贝利曲率分布与(b)铁磁性材料中反常能斯特系数及反常能斯特因子对比

Figure 3 (Color online) (a) Berry curvature of energy bands and (b) comparison of anomalous Nernst coefficients and anomalous Nernst factors among ferromagnetic materials.

下可以具有高达 5 T 的巨大矫顽场, 可以保持硬磁单畴状态, 无需额外施加磁场即可持续地产生能斯特效应. 这一结果对于大能斯特效应材料的探索具有重要的借鉴意义.

拓扑材料中由贝利曲率产生的霍尔效应和能斯特效应均已在理论和实验中得到证实, 铁磁拓扑半金属材料有望成为探索反常输运性质的良好平台, 为反常能斯特热电转换、埃廷豪森横向制冷甚至高温量子反常霍尔效应等物理行为和应用提供了可能. 磁性拓扑材料的贝利曲率特殊之处在于其来源于拓扑能带性质,

受拓扑保护. 从拓扑相关的贝利曲率的物理机制着眼, 探索大反常霍尔、反常能斯特效应、埃廷豪森效应及相关材料, 是未来的重要研究方向.

磁性拓扑半金属材料目前已被证实的体系尚不多, 需要进一步地去实现、优化出更多的材料体系, 尤其是具有高居里温度、大矫顽场的硬磁拓扑半金属材料. 这方面的研究正在进行中. 磁性拓扑材料在横向热电方面展现出重要的应用前景, 有望为下一代热电能量转换技术提供基于新型物理原理的设计方案.

参考文献

- 1 Xu Z A, Ong N P, Wang Y, et al. Vortex-like excitations and the onset of superconducting phase fluctuation in underdoped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$. *Nature*, 2000, 406: 486–488
- 2 Goldsmid H J. Introduction of Thermoelectricity. Heidelberg: Springer, 2010
- 3 Xie Z X, Chen X K, Yu X, et al. Reduction of phonon thermal conduction in isotopic graphene nanoribbon superlattices. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2017, 60: 107821
- 4 Fu C G, Guin S N, Watzman S J, et al. Large Nernst power factor over a broad temperature range in polycrystalline Weyl semimetal NbP. *Energy Environ Sci*, 2018, 11: 2813–2820
- 5 Xiang J, Hu S L, Lyu M, et al. Large transverse thermoelectric figure of merit in a topological Dirac semimetal. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2020, 63: 237011
- 6 Yan B H, Zhang S C. Topological materials. *Rep Prog Phys*, 2012, 75: 096501
- 7 Burkov A A. Topological semimetals. *Nat Mater*, 2016, 15: 1145–1148
- 8 Guo Z P, Lu P C, Chen T, et al. High-pressure phases of Weyl semimetals NbP, NbAs, TaP, and TaAs. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2018, 61: 038211
- 9 Zhang S F, Zhang C W, Wang P J, et al. Low-energy electronic properties of a Weyl semimetal quantum dot. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2018, 61: 117811
- 10 Xiao D, Yao Y G, Fang Z, et al. Berry-phase effect in anomalous thermoelectric transport. *Phys Rev Lett*, 2006, 97: 026603
- 11 Heremans J P, Jovovic V, Toberer E S, et al. Enhancement of thermoelectric efficiency in PbTe by distortion of the electronic density of states. *Science*, 2008, 321: 554–557
- 12 Sakai A, Mizuta Y P, Nugroho A A, et al. Giant anomalous Nernst effect and quantum-critical scaling in a ferromagnetic semimetal. *Nat Phys*, 2018, 14: 1119–1124
- 13 Guin S N, Manna K, Noky J, et al. Anomalous Nernst effect beyond the magnetization scaling relation in the ferromagnetic Heusler compound Co_2MnGa . *NPG Asia Mater*, 2019, 11: 16
- 14 Liu E K, Sun Y, Kumar N, et al. Giant anomalous Hall effect in a ferromagnetic kagome-lattice semimetal. *Nat Phys*, 2018, 14: 1125–1131
- 15 Liu D F, Liang A J, Liu E K, et al. Magnetic Weyl semimetal phase in a Kagomé crystal. *Science*, 2019, 365: 1282–1285
- 16 Morali N, Batabyal R, Nag P K, et al. Fermi-arc diversity on surface terminations of the magnetic Weyl semimetal $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$. *Science*, 2019, 365: 1286–1291
- 17 Guin S N, Vir P, Zhang Y, et al. Zero-field Nernst effect in a ferromagnetic kagome-lattice Weyl-semimetal $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$. *Adv Mater*, 2019, 31: 1806622

Topologically enhanced zero-field transverse Nernst thermoelectric effect in magnetic topological semimetals

LIU EnKe^{1,2*} & ZHANG Shen^{1,3}

¹ State Key Laboratory for Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;

² Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China;

³ University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Magnetic topological materials are a class of advanced magnetic quantum materials that combine the topological physics and long-range magnetic order. The Weyl fermions under time-reversal symmetry breaking bear strong Berry curvature that probably produces topologically enhanced zero-field transverse Nernst thermoelectric effect, offering a promising strategy for all-solid-state thermoelectric cooling based on novel physical principles.

magnetic topological materials, transverse thermoelectricity, Nernst effect, Ettingshausen effect

PACS: 03.65.Vf, 72.15.Eb, 75.47.-m, 72.20.Pa, 85.80.-b

doi: [10.1360/SSPMA-2019-0367](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2019-0367)