

令和 6 年 6 月 4 日現在

機関番号：32661

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03454

研究課題名（和文）非自明な磁気構造を有するトポロジカル物質の磁気輸送特性の解明

研究課題名（英文）Magnetotransport properties of topological materials with nontrivial magnetic structure

研究代表者

鈴木 健士（Suzuki, Takehito）

東邦大学・理学部・講師

研究者番号：80564947

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：非自明な磁気秩序とトポロジカルな電子バンド構造を併せ持つ希土類金属間化合物が示す磁気輸送特性を研究した。その結果、磁化プラトーを示すトポロジカル半金属では、磁気的な揺らぎの発達による電子散乱の増大を機構とする、磁化プラトー間遷移における電気抵抗率の増大を観測した。更に、特定の磁化プラトー状態では、その磁気構造により生じる非自明なトポロジーに起因したホール伝導度の異常が現れる事を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で明らかになった磁気輸送特性は、これまでに磁性トポロジカル物質で精力的に研究されてきた磁気秩序に伴う時間反転対称性の破れ及び電子バンド構造の交換分裂の効果を超える新たな機構に起因する輸送応答であり、電子バンド構造が持つ非自明なトポロジーと電子相関効果の結合により生じる強相関トポロジーの物理分野を開拓・解明に向けた研究に資する結果であると期待される。また、外場により非自明なトポロジーを有する状態を制御できる機能性は、トポロジーを動作原理に持つ将来的な素子への応用が期待される。

研究成果の概要（英文）：We investigated magnetotransport properties of rare-earth intermetallic compounds with a nontrivial magnetic ordering pattern and a topological electronic band structure, and observed that topological semimetals with magnetization plateaus show the enhanced resistivity upon plateau transitions, which originates from the enhancement of electron scattering due to the development of magnetic fluctuations. In addition, we found the anomaly in the Hall conductivity in the specific magnetization plateau state, that is due to the nontrivial topology inherent to the magnetic structure.

研究分野：物性物理学

キーワード：磁性トポロジカル半金属 磁気抵抗効果 ホール効果 単結晶育成 磁化プラトー

## 様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

電子バンド構造が有する非自明なトポロジにより発現する物性は、対称性の物理を越えた新奇性とトポロジにより保護される堅牢生から精力的な研究が進められている[1]。特に3次元系ワイル半金属では、フェルミ準位付近の電子バンド構造に現れるバンド交差点が運動量空間における仮想的な磁気単極子として働き、カイラル磁気効果や内因性の異常ホール効果といった磁気輸送特性が発現する事が明らかとなってきた[2]。また、トポロジカルに非自明な電子バンド構造を持つ物質の探索についても、電子相関が本質的でない極限においては、結晶の対称性と構成元素からトポロジカルに電子バンド構造を分類する手法(トポロジカル量子化学)が確立し、これに基づく物質のデータベース化が進んでいる[3,4]。

一方、遷移金属酸化物をはじめとする強相関電子系においては、電子が持つ電荷・スピン・軌道の自由度が結合する事により、様々な相関現象が観測される事が知られている[5]。ここで、スピン自由度の秩序化は特に重要な役割を果たしており、スピン秩序化に伴い発現する相関現象の例としては、外部磁場によるスピン秩序状態の制御によって生じる超巨大磁気抵抗効果や巨大磁歪効果、スピン秩序パターンが非自明な磁気的トポロジを持つ事に起因するトポロジカルホール効果などを挙げる事ができる[5,6]。しかしながら、トポロジカルに非自明な電子バンド構造を有する物質においてスピン自由度の果たす役割については、磁気的秩序化に伴う時間反転対称性の破れ及び電子バンド構造の交換分裂の効果は知られているものの[7-9]、それ以上の秩序パターンにより発現する物性については明らかとなっていなかった。

### 2. 研究の目的

スピン秩序状態が、時間反転対称性の破れや交換分裂による電子バンド構造の変化を越えてトポロジカルに非自明な電子バンド構造に与える影響を明らかにするため、試料育成から物性測定までを一貫して行う実験的手法により研究を展開する。本研究では特に、トポロジカル量子化学に基づくデータベースからフェルミ準位近傍に電子バンド交差点を有し、かつ結晶構造中に磁性を担う希土類元素を母物質として含むものを候補物質として取り上げる。その中から更に、磁気モーメントが互いに平行もしくは反平行に揃った自明なスピン秩序状態では説明できない磁化の振舞を示す物質を選別し、本研究の対象物質とする。このような非自明な磁気秩序構造と非自明な電子バンド構造を併せ持つ物質において、長波長・低エネルギー励起に敏感なプローブである輸送係数の測定を行い、磁性転移に伴う応答の変化を観測する事で、トポロジカルに非自明な電子バンド状態と詳細な磁気秩序パターンとの絡み合いにより生じる相関物性の解明を目指す事が本研究の目的である。

### 3. 研究の方法

輸送係数測定を通じて系の電子物性を明らかにするには、系の異方性を考慮し、また粒界等の外因的な要素に由来する応答を極力除去する必要がある。単結晶試料を用いた測定が望ましいという事情がある、そのため、本研究では、真空封入下における金属フラックス法により単結晶試料を育成し、得られた試料は粉末 X 線回折法により得られるピークプロファイルから構造の評価を、磁化測定から磁性の評価をそれぞれ行った。更に、低温・磁場下における電気抵抗率及びホール抵抗率の測定を行い、特に磁性転移に伴う輸送係数の応答を解析する事で、局在磁気モーメントと伝導電子の結合に起因した物性の解明を目指した。

### 4. 研究成果

(1) 磁化プラトーを示す磁性ワイル半金属  $R\text{AgGe}$  ( $R = \text{Dy}, \text{Ho}$ )における磁気輸送特性

$\text{ZrNiAl}$  型構造をとる希土類金属間化合物  $R\text{AgGe}$  ( $R = \text{希土類}$ )は、バンド計算によりフェルミ準位近傍にワイル点を持つ事が明らかになっている[10]。また、歪んだカゴメ副格子を形成する希土類イオンが磁性を担い、特に基底状態の磁気秩序状態が自発磁化成分有する  $\text{DyAgGe}$  とカゴメスピンアイス秩序をとる  $\text{HoAgGe}$  は磁場印加に伴い磁化プラトーを示す事が知られている[11,12]。本研究では、 $\text{DyAgGe}$  及び  $\text{HoAgGe}$  単結晶試料を(Ag,Ge)をフラックス材とする真空封入下金属フラックス法により育成し、最大で短辺 1 mm、長辺 3 mm 程度の六角柱形状の単結晶試料を得る事ができた。得られた結晶について、粉末 X 線回折法及び磁化測定により、これまでに報告されているものと同等

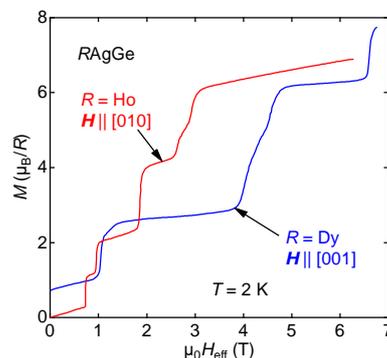


図 1.  $\text{DyAgGe}$  及び  $\text{HoAgGe}$  の磁化プラトー

の構造的特性及び磁性が再現できている事を評価したうえで(図1) 磁場下における電気抵抗率及びホール抵抗率の測定を行った。

HoAgGe の零磁場下における電気抵抗率は反強磁性転移温度においてピーク状の異常を示すと共に、磁場中における電気抵抗率は、図2に示す様に、磁場印加に伴う磁化プラトー間の遷移に伴って電気抵抗率の増大する振舞が観測された。これは、常磁性状態から磁気秩序相への転移際に発達するスピン揺らぎや、異なる磁化プラトー状態間の遷移近傍において増大するスピン磁気的ドメインの揺らぎによって伝導キャリアが散乱する為と考えられる。また、磁化飽和状態への転移に伴い電気抵抗率が急激な減少を示すと共にホール係数の符号反転が起こる振舞も観測された。これはカゴメスピンアイス秩序及び磁化プラトー状態と飽和磁化状態との間で磁気的ユニットセルの違う事に起因して磁場誘起のリフシツ転移が起こっている為であると考えられる。

DyAgGe においても磁性転移及び磁化プラトー間の遷移に伴う電気抵抗率の急峻な増大が観測された。これに加え、DyAgGe では磁気抵抗移動度及びホール係数が磁化プラトー状態間で異なる値をとる事が明らかになった。これは、各状態で異なる磁化の大きさを持つ事に由来して電子バンド構造の交換分裂の大きさが異なり、フェルミ面の形状が変化する為であると解釈できる。更に、図3に示す様に、 $T = 2\text{ K}$ ,  $B = 5\text{ T}$  近傍において生じる磁化プラトー状態ではホール伝導度が大きな変化を示すが、この結果は、イジング型磁化プラトー金属RB4 ( $R = \text{Er}, \text{Tm}$ )で解釈されている磁気的揺らぎによる緩和時間の変化のモデル[13]では説明できない事が明らかになった。これは、対応する磁化プラトー状態の磁気秩序状態が固有の非自明なトポロジカルホール効果として現れたものと考えられる。

## (2) その他の磁性ワイル半金属

非自明な磁気構造と電子バンド構造のトポロジーの相関の物理の解明のため、対象を拡充した研究を展開した。特に、正方格子を有するPbFCl型RSbTe及び鉄系超伝導体と同一の構造を有する $\text{ThCr}_2\text{Si}_2$ 型 $\text{RFe}_2\text{Ge}_2$ については、真空封入下金属フラックス法により単結晶試料育成に成功し、粉末X線回折法及び磁化測定による構造・磁性の評価を行った。これら結晶を用いた磁場下における輸送係数の測定を現在進めている。特に本対象の類縁物質では電子相関効果が比較強いという報告もされており、本研究で遂行中の磁気輸送特性の解明を通じて、トポロジカルなバンド構造と非自明な磁気構造の結合において電子相関効果が果たす役割に関する知見が実験的に得られると期待される。

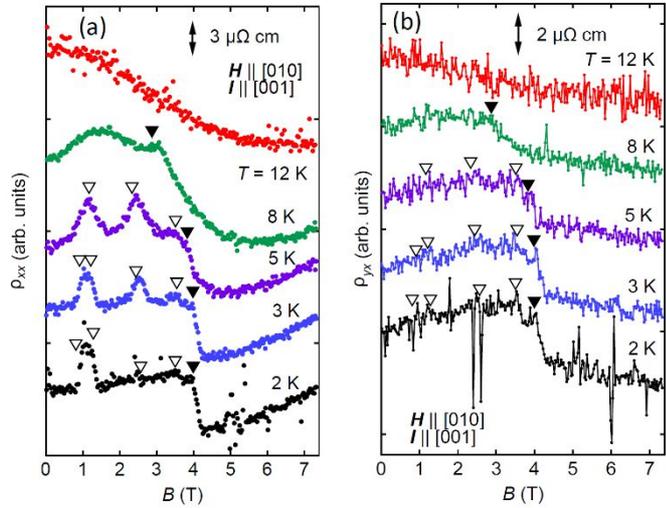


図2. HoAgGeの(a)電気抵抗率及び(b)ホール抵抗率。図中の  $\blacktriangledown$  は磁化プラトー間の遷移に対応する磁場、 $\blacktriangle$  は飽和磁化状態への転移磁場をそれぞれ示す。

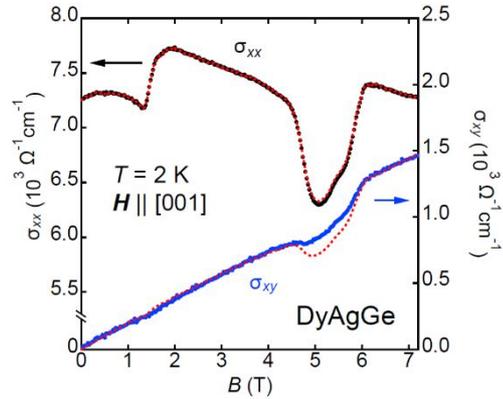


図3. DyAgGeの電気伝導度及びホール伝導度。赤の破線が磁気的揺らぎによる緩和時間の変化により期待される振舞を示す。

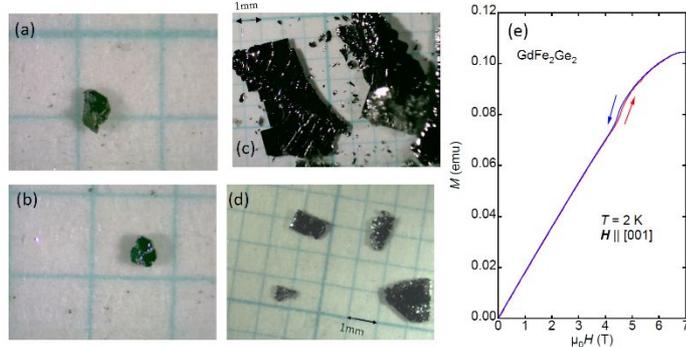


図4. 育成した(a)GdSbTe, (b)HoSbTe, (c)GdFe<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>, 及び(d)DyFe<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>単結晶試料。(e) GdFe<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>の  $T = 2\text{ K}$  におけるヒステリシスを伴う磁化曲線(磁気的な試料評価の例)

以上の結果は、これまでに精力的に研究がなされてきた磁気秩序に伴う時間反転対称性の破れや交換分裂による電子バンド構造の変化だけでは説明できない磁性トポロジカル半金属の磁気

輸送応答であり，現在理論的な研究が先行しているトポロジカルに非自明な電子バンド構造と電子相関の絡み合いにより生じる強相関トポロジーの物理を実験的に解明していくにあたり，その足掛かりとなるに資する成果であると期待される．

#### 参考文献

- [1] N. P. Armitage et al., *Rev. Mod. Phys.* **90**, 015001 (2018).
- [2] A. A. Burkov., *J. Phys.: Condens. Mater.* **27**, 113201 (2015).
- [3] B. Bradlyn et al., *Nature* **547**, 298 (2017).
- [4] Y. Xu et al., *Nature* **586**, 702 (2020).
- [5] Y. Tokura, *JSAP International* **2**, 12 (2000).
- [6] N. Nagaosa et al., *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1539 (2010).
- [7] L. Ye et al., *Nature* **555**, 638 (2018).
- [8] D. F. Liu et al., *Science* **365**, 1282 (2019).
- [9] T. Suzuki et al., *Nature Phys.* **12**, 119 (2016).
- [10] V. Ivanov and S. Y. Savrasov, *Phys. Rev. B* **99**, 125124 (2019).
- [11] S. Baran et al., *J. Alloys Compd.* **281**, 92 (1998).
- [12] K. Zhao et al., *Science* **367**, 1218 (2020).
- [13] L. Ye et al., *Phys. Rev. B* **95**, 174405 (2017).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Wakefield J. P., Kang M., Neves P. M., Oh D., Fang S., McTigue R., Frank Z. S. Y., Lamichhane T. N., Chen A., Lee S., Park S., Park J., Jozwiak C., Bostwick A., Rotenberg E., Rajapitamahuni A., Vescovo E., McChesney J. L., Graf D., Palmstrom J. C., Suzuki T., Li M., Comin R., Checkelsky J. G.	4. 巻 623
2. 論文標題 Three-dimensional flat bands in pyrochlore metal CaNi <sub>2</sub>	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nature	6. 最初と最後の頁 301 ~ 306
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41586-023-06640-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Takehito Suzuki
2. 発表標題 Transport properties of topological semimetal with magnetization plateau
3. 学会等名 the 22nd Japan-Korea-Taiwan Symposium on Strongly correlated electron systems（国際学会）
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Takehito Suzuki
2. 発表標題 Singular angular magnetoresistance in a nodal semimetal
3. 学会等名 Workshop on Innovative Nanoscale Devices and Systems 2022（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 織田百合奈、井上悠、勝藤拓郎、鈴木健士
2. 発表標題 三方晶PtBi <sub>2</sub> における化学置換効果
3. 学会等名 第9回ZAIKEN Festa
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 服部 央弥, 福原 迅士郎, 赤星 大介, 勝藤 拓郎, 鈴木 健士
2. 発表標題 三重縮退点を有するPtBi2における輸送特性
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
米国	マサチューセッツ工科大学		