

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 16 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K13874

研究課題名（和文）トポロジカル磁性体における新規熱輸送・熱電特性の開拓

研究課題名（英文）Development of emergent thermal and thermoelectric properties in topological magnets

研究代表者

車地 崇 (Kurumaji, Takashi)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・助教

研究者番号：90750373

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000 円

研究成果の概要（和文）：八ニカム格子磁性体や極性磁性体などは新規な量子熱輸送特性が生じる舞台として注目されている。本研究課題では熱伝導や熱電特性の精密測定セットアップを新しく構築し、種々の新規量子物質における測定を行うことで新規物性探索及び機構の解明を目指した。Coからなる八ニカム反強磁性体や希土類半金属RAuGeにおいて元素に関して敏感な巨大磁気熱伝導効果や異常ネルンスト効果の観測に成功した。またこれらにおいて確立した熱測定技術を利用してマルチフェロイクスにおける電気熱量効果の研究も発展した。さらに近年注目されている面内ホール効果に関する議論を進めており、新規電気熱応答物性の方向性を見出すこともできた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁性体における熱輸送・熱電特性は近年主に強磁性体や反強磁性体に関して進展が著しい。フォノンやマグノンなどの準粒子の分散関係に潜む幾何学的位相や電子バンドのトポロジカルな性質によって応答が巨大化することが報告されている。本研究で発見した八ニカム格子反強磁性体の巨大な磁気熱伝導効果はマグノンと格子との結合が磁性とは関係のない陽イオンの種類によって鋭敏に変化することを明らかにしており、より顕著な応答を示す物質を設計するための指針となる。またRAuGeにおける異常ネルンスト効果電子バンドのワイル点の存在を示唆しており、希土類元素による非自明な熱電応答の増強や制御に期待できる。

研究成果の概要（英文）：Honeycomb-lattice magnets and polar magnets are attracting attention as platforms for novel quantum thermal transport properties. In this research project, we aimed to explore new properties and elucidate the underlying mechanisms by constructing a setup for precise measurement of thermal conductivity and thermoelectric properties, and conducting measurements on various novel quantum materials. We successfully observed element-sensitive giant magneto-thermal conductivity in honeycomb antiferromagnets composed of Co and anomalous Nernst effects in rare-earth semimetal RAuGe. Furthermore, utilizing the established thermal measurement techniques, we expanded our research on magnetoelectrocaloric effects in multiferroics. Additionally, we have been advancing consideration on the in-plane Hall effect, which allowed us to identify the directionality of novel electric (thermal) response properties in quantum materials.

研究分野：磁性物理学

キーワード：熱伝導量効果 ゼーベック効果 異常ネルンスト効果 八ニカム格子磁性体 磁性ワイル半金属 電気磁気熱面内ホール効果

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

熱輸送・熱電特性は電気伝導特性と同様に固体中の基本的な輸送現象として古くから研究されてきた。特に磁性体におけるこれら物理量の理解は磁性材料を利用したセンサー、熱電素子、情報伝達やその制御をめざすスピントロニクスへの応用の観点から工学的にも興味を持たれている。従来までは磁性体における熱輸送・熱電特性はマグノンが波数空間でどのような分散関係を持つかあるいはフォノン・伝導電子が局在スピンにどのように散乱されるかといった議論をすることによって理解されてきた。しかし近年、固体中の熱に関わる物性現象の理解は様々な異常なふるまいを示す量子状態の発見により急速な展開を見せている。

特に注目すべきは強磁性絶縁体におけるマグノンの熱ホール効果 (Onose et al., *Science* 329, 297 (2010))、マルチフェロイクスにおける格子とスピンの強い結合により生み出される巨大な熱ホール効果 (Ideue, Kurumaji et al., *Nat. Mater.* 16, 797, (2017))、キタエフ型量子スピン液体候補物質 α - RuCl_3 における量子化熱ホール効果 (Kasahara et al., *Nature* 559, 227 (2018))そして異常ネルンスト効果が反強磁性体 Mn_3Sn における巨大な異常ホール効果と相関して巨大化する現象 (Ikhlasi et al., *Nat. Phys.* 13, 1085 (2017)) などがあげられる。これらの現象により磁性体の熱のふるまいは磁性原子が組む格子の特殊性やスピンの構造とそれによって作り出される準粒子の幾何学的位相の性質などと密接に関与していることが分かってきた。

上記のような研究の進展と並行してトポロジーによって特徴づけられるスピン構造をもった物質群の発見が近年相次いでおり、急速な進展を示している。磁気スキルミオンに代表されるこれらのスピントクスチャはトポロジカルな性質をもつ渦状の構造で、スピンが非自明な配列を示す珍しさ以上にそのトクスチャを背景としたときに物質中の準粒子が示す応答に特異性があることから、創発電磁気現象の舞台として広く注目されている (Nagaosa et al., *Nat. Nanotech.* 8, 899 (2013))。このことは伝導電子がスキルミオンの実空間におけるベリー位相の影響を受けて曲がる現象、トポロジカルホール効果として観測できることを代表に理解が進んでおり、この効果の反作用として電流によってスキルミオンを曲げる効果、スキルミオンホール効果の観測などにも発展している。またスキルミオン以外の多彩なスピントクスチャが発現する物質の報告もここ数年で急増している。これらの物質における新規な創発電磁気現象の発見が今後大いに期待できる。また近年反転対称性のある物質における磁気スキルミオン形成と巨大創発電磁気応答の観測 (Kurumaji et al., *Science* 365, 914 (2019)) がなされたことを契機に類似物質での非自明な磁気構造や応答の探索が進んでいる。

主に電気伝導現象に関する研究が多数報告されている一方でスピントクスチャが熱電・熱輸送特性に与える影響に関する研究はまだ報告が少なく学理構築が遅れている。伝導電子がスピン構造の影響を受けるようにマグノンやフォノンなどの準粒子も同様の応答を示す可能性が議論されている (Oh et al., *Phys. Rev. B* 91, 104435 (2015)) にもかかわらず、測定に高度な技術を必要とすること、データの解釈が単純ではないこと、研究対象の候補物質が限定されていることなどが進捗を阻んでいる。本研究課題の「問い」はフォノンやマグノンといった準粒子も伝導電子と同様にスピントクスチャのトポロジカルな性質の影響を受けて非自明なふるまいを示すかどうか、またその場合熱ホールやネルンスト効果などの物性は多彩なトポロジカルスピントクスチャに応じてどのように整理し理解できるのかということである。

2. 研究の目的

本研究の目的はスキルミオンや磁性ワイル半金属をはじめとする新規トポロジカル磁性体における熱輸送特性・熱電特性の解明である。特に熱伝導および異常ネルンスト効果の観測を通してスピントクスチャや電子バンドのトポロジーが準粒子の熱の輸送に与える影響について理解を深めることを目的とする。

3. 研究の方法

低温磁場下で熱伝導や熱電特性を精密に測定するセットアップを構築する。低温における信号は微弱なので外部の熱擾乱の影響を受けないような改良を加えていく。測定系を確立しつつ、種々の候補物質をテスト測定することで有望な物質を探索する。特に顕著な応答が出る物質に関しては集中的に測定し、広範囲の温度磁場領域での特性や元素置換に関する系統性を調べつつ、放射光や中性子散乱実験などで明らかにした磁気構造と合わせて物性の起源を議論する。

4. 研究成果

本研究課題で得られた結果について以下に述べる。

(1) ハニカム格子反強磁性体における巨大磁気熱伝導効果の観測

α - RuCl_3 をはじめとしたハニカム格子磁性体における熱伝導特性に興味を持たれている。ハニカム格子は強いスピン・軌道相互作用の影響で Kitaev 型交換相互作用が寄与することで量子スピン液体やマヨラナ準粒子の発現の舞台となることが提案されている。一方で熱伝導特性に関し

で統一的な理解が進んでいない。絶縁体における磁気熱伝導はスピンと格子の結合が重要な役割を担っており電気磁気効果が大きな物質では特に異常熱ホール効果の発現などによってそれが顕著になることが分かっている。本研究ではスピン・軌道結合の強い Co^{2+} イオンを有し、非線形な電気磁気効果を示すことが知られている $\text{Co}_4(\text{Nb}, \text{Ta})_2\text{O}_9$ の磁気熱伝導率、電気磁気応答、磁歪、結晶構造を系統的に調べた。非磁性陽イオンは磁気熱伝導に影響を与えにくいと考えられてきたがNbとTaの違いによって顕著に熱伝導率が影響を受けることを発見した。磁場をかけることで熱伝導率が変化するふるまいもTaの方がNbのそれよりも大きく、わずかな非磁性イオンの重さの違いがフォノンやマグノン分散に影響を与えることでこのような結果になったものと考えられる。ここで得られた結果は他のハニカム格子磁性体の熱伝導現象を理解する上での重要な知見を与え、より有望な物質を検討・探索する上で有用である。本結果は日本物理学会で発表し、現在論文準備中。

(2) 極性磁性半金属 RAuGe における異常熱電輸送現象の観測

新規磁性ワイル半金属を探索する過程で当該物質を発見した。本物質群はこれまで多結晶における研究はなされていたものの、単結晶の育成法が確立されていなく、磁性と電子輸送現象の関係が明らかにされていなかった。本研究によって $R = \text{Y}, \text{Gd-Tm}, \text{Lu}$ の広い組成において3mm程度の純良単結晶を効率よく育成する方法の開発に成功し、電気伝導性、熱電特性、磁気構造、結晶構造を明らかにすることができた。特に強磁性状態を示すいくつかの物質においてはバンド計算の結果、ワイル点の発現が示唆されており磁性ワイル半金属の候補物質と考えられる。実際、大きな異常ホール効果や異常ネルンスト効果の観測にも成功した。さらのいくつかの物質では希土類原子の三角格子内の磁気フラストレーションによって $(1/2, 0, 0)$ や $(1/3, 0, 0)$ の長周期磁気構造が発現していることを共鳴x線散乱実験によって明らかにした。三角格子に関して面直に磁場をかけることで3段のメタ磁性転移がおり、輸送特性も影響を受けている。今後このふるまいをより詳細に調べていくことで非自明な磁気テクスチャーの発現に伴う異常輸送特性の解明に期待できる。上記結果の一部は日本物理学会で発表し、現在論文準備中。

(3) マルチフェロイクスにおける電気磁気熱量効果の発見

熱輸送特性の精密測定に必要な技術として測定系内での熱流の制御がある。電流は非常に良い絶縁体を基板などに使うことによって容易に周囲と電氣的に絶縁できるが、熱の絶縁体は存在しない(真空すらも輻射で熱が伝わるができる)ので想定した熱流が流れるようにセットアップを組むことは注意深い設計技術を要する。この原理は熱量効果測定系を組む上でも共通しており、本研究課題の発展的なテーマとして新規熱量測定系の開発も行った。磁気熱量効果は磁性体に磁場をかけることで磁気エントロピーが格子系に移って物質の温度が変化する現象である。熱量効果を起こすための外場は磁場だけに限らず、電場・圧力・歪みなど様々なものが知られている。特に電場は比較的大きくすることが容易で高周波応答にも向いており、絶縁体において用いればジュール熱による損失も少ない。一方で熱量効果としては磁気熱量効果の方が応答を巨大化する上では見通しがつけやすい。そこで両者の特徴を併せ持つ電場による磁気熱量効果(電気磁気熱量効果)を探索した。マルチフェロイクス GdFeO_3 は Gd^{3+} や Fe^{3+} など異方性が少ないスピンが磁性を担うことから大きな磁気熱量効果の電場での制御が期待できる。電場をかけながら熱量効果を測定するセットアップを構築し、高い効率を示す電気磁気熱量効果の観測に成功した。本結果はアメリカ物理学会でも発表し論文投稿中。

(4) 対称性に基づいた面内ホール効果の非自明な特徴と測定方法の提案

本研究課題を構想した当時は磁場をサンプルの面直にかけたときの横方向の応答に関して注目していた。一方で最近磁場を面内にかけて生じるホール効果(面内ホール効果)が量子物質のトポロジカルな側面を明らかにするプローブとして注目されつつある。異常量子伝導物性の開拓を目指して本現象をより詳細に調べる取り組みも発展させた。面内ホール効果はよく知られているプレナーホール効果とは異なり、磁場に関して反対称な現象である。このことから真に時間反転の破れに敏感な応答である。また結晶の対称性ととの相関が従来の正常・異常ホール効果と異なっているため、通常現れないツイン依存性や測定法の改良の必要性が現れることを明らかにした。これらのことは最近の類似研究ではまだ十分注意深く検討されていないことをかんがみ、理論研究として論文にまとめてPhysical Review Research(アメリカ物理学会、オープンアクセス)で発表した。これまでの議論で見落とされていた本現象の理解が深まり、今後の新規物質・新規現象の探索に貢献することが期待できる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kurumaji Takashi, Gen Masaki, Kitou Shunsuke, Ikeuchi Kazuhiko, Nakamura Mitsutaka, Ikeda Akihiko, Arima Taka-hisa	4. 巻 947
2. 論文標題 Single crystal growths and magnetic properties of hexagonal polar semimetals RAuGe (R = Y, Gd-Tm, and Lu)	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Alloys and Compounds	6. 最初と最後の頁 169475 ~ 169475
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2023.169475	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kurumaji Takashi, Gen Masaki, Kitou Shunsuke, Sagayama Hajime, Ikeda Akihiko, Arima Taka-hisa	4. 巻 6
2. 論文標題 Anisotropic magnetotransport properties coupled with spiral spin modulation in a magnetic semimetal EuZnGe	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 94410
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.6.094410	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 -

1. 著者名 Kurumaji Takashi	4. 巻 5
2. 論文標題 Symmetry-based requirement for the measurement of electrical and thermal Hall conductivity under an in-plane magnetic field	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Research	6. 最初と最後の頁 23138
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.5.023138	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Takashi Kurumaji
2. 発表標題 Broken Helix and Anisotropic Magnetotransport Properties of a Eu-based Semimetal EuZnGe
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2023 (SCES 2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 R. Ikeda, T. Kurumaji, Y. Tokunaga, T.-h. Arima
2. 発表標題 Magnetoelectrocaloric effect of multiferroic GdFeO ₃ : electric-field-driven magnetic entropy change
3. 学会等名 APS March Meeting 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 上野正人, 車地崇, 徳永祐介, 有馬孝尚
2. 発表標題 電気磁気効果を示す八ニカム格子反強磁性体における磁気熱伝導
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 車地崇, 巖正輝, 鬼頭俊介, 池内和彦, 中村充孝, 池田暁彦, 有馬孝尚
2. 発表標題 極性磁性半金属RTX (R = Y, Gd-Tm, Lu)の単結晶育成と物性
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 車地崇, 木俣基, 今城周作, 三石夏樹, 坂野晶人, 巖正輝, 鬼頭俊介, 池内和彦, 中村充孝, Jorge. I. Facio, 佐賀山基, 石坂香子, 金道浩一, 有馬孝尚
2. 発表標題 希土類金属間化合物TbTXの量子振動におけるリフシツツ-コセヴィッチの式の破れ
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 車地崇
2. 発表標題 面内ホール効果と対称性
3. 学会等名 物性研究所短期研究会－固体におけるエニオンと分数統計粒子研究の最前線－
4. 発表年 2023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		
アルゼンチン	CONICET		