

令和 6 年 6 月 17 日現在

機関番号：13903

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K13879

研究課題名（和文）f電子系キララらせん磁性体の“ひねり”の数の制御とキララらせん秩序発現機構の解明

研究課題名（英文）Investigation of the origin of the chiral magnetic structure and control of the number of "twists" in chiral f-electron magnets

研究代表者

中村 翔太（Nakamura, Shota）

名古屋工業大学・工学（系）研究科（研究院）・助教

研究者番号：40824892

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）：本研究ではf電子系キララらせん磁性体において磁気スピンの“ひねり”の起源であるRKKY型のDM相互作用の基礎学理の構築を目指した。放射光円偏光X線散乱実験によって、我々の研究室で発見された新物質である三方晶GdNi₃Ga₉とその置換試料で反強磁性一軸キララ磁気秩序状態が発現することを明らかにした。また、ひねりに相当するらせん周期が元素置換によって調整できることがわかった。らせん周期を調整できる系の発見により臨界磁場と温度からひねりの起源であるDM相互作用の大きさを見積もり、磁気構造のひねり角とDM相互作用の関係性を見出すことに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

キララ磁性体は磁気スピンの右巻きあるいは左巻きらせん状に配列した特徴的な磁気構造をもつ。結晶構造を反映して電気磁気の変換やキララ誘起スピン選択効果が観測されており、新しい電気磁気デバイスへの応用が期待できる。強磁性体に比べて100倍速い磁気駆動も報告されており、高周波デバイスとの親和性も高い。本研究ではキララ磁性体を特徴づけるらせん周期の調整に成功しており、本研究分野の系統的な研究に貢献できる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aim to establish a fundamental theory of RKKY-type DM interaction, which is the origin of the magnetic spin "twist" in f-electron chiral helical magnets. Circularly polarized X-ray scattering experiments have revealed that an antiferromagnetic uniaxial chiral magnetic ordered state is observed in a new material discovered in our laboratory, triclinic GdNi₃Ga₉, and its element-substituted samples. It was also found that the helical period corresponding to the twist can be tuned by elemental substitutions. Based on the sine-Gordon model, the magnitude of the DM interaction, which is the origin of the twist, is estimated from the critical magnetic field and temperature, and the relationship between the twist angle of the magnetic structure and the DM interaction is successfully found.

研究分野：固体物理

キーワード：キララ金属磁性体 磁気構造 磁気相互作用の制御 反対称スピン相互作用 反対称スピン軌道相互作用
用 キララ磁性

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

キラリティ(掌性; 左右性)は自然界を理解する上で重要な概念である。歴史的には、酒石酸結晶の左右旋光性の選択が観測され、ミクロな構造の左右性がマクロな物性として現れることが確認された。左右性は幅広いスケールかつ多分野にわたって存在する。生命においては DNA やアミノ酸などで左右性が大切な役割を担っている。天文においても銀河の回転方向に左右性がある。

キラリティを反映したマクロな磁気構造はこれまで d 電子系で確認されてきた。立方晶 MnSi では図 1(a)に示すように、磁気スピンの渦巻き状に配列し、その渦巻きが六方格子を組むスキルミオン格子 (Skyrmion Lattice; SkL) が、 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ では強磁性一軸らせん磁気構造で“ひねり”(ソリトン)が周期的に配列したキラルソリトン格子 (Chiral Soliton Lattice; CSL) が観測された。本研究対象の YbNi_3Al_9 (空間群 $R32$) は、我々の研究室で発見された世界初の 4f 電子系キラルらせん磁性体である。この物質に銅置換することでキャリア注入した $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ では、図 1(b)のような CSL や、磁気八極子らせんの発現が確認された [T. Matsumura *et al.*, JPSJ 86, 124702 (2017)]. また最近、立方晶 EuPtSi (空間群 $P2_13$) において SkL が確認された。 YbNi_3Al_9 や EuPtSi のらせん磁気構造は d 電子系の MnSi や $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ の数十 nm に比べて 1/10 の短周期らせんでスピンの向きが離散的であるが、その挙動は不思議なことに、d 電子系の SkL や CSL を記述する、局在スピンを連続媒体として扱うモデルで説明できる。 YbNi_3Al_9 の CSL の場合は、隣り合うスピン同士の間隔が 90 度以上ひねられており、新しい概念である伝導電子を媒介した RKKY 型の Dzyaloshinskii-Moriya (DM)の反対称スピン相互作用がはたらいていると考えられる。

2. 研究の目的

本研究目的は、f 電子系キラルらせん秩序の発現機構を解明することである。我々が発見したキラルらせん磁性体 YbNi_3Al_9 では、元素置換と磁場により、CSL のらせん周期やソリトン(ひねり)の数を調整できる(図 2)。本研究では、この利点を活かし、様々ならせん周期をもつキラルらせん秩序状態をつくり出し、それらを比較した研究を行う。また、交流磁気抵抗測定(図 3)という、実験室系でキラルらせん磁気構造に関する知見を得る測定手法を確立する。

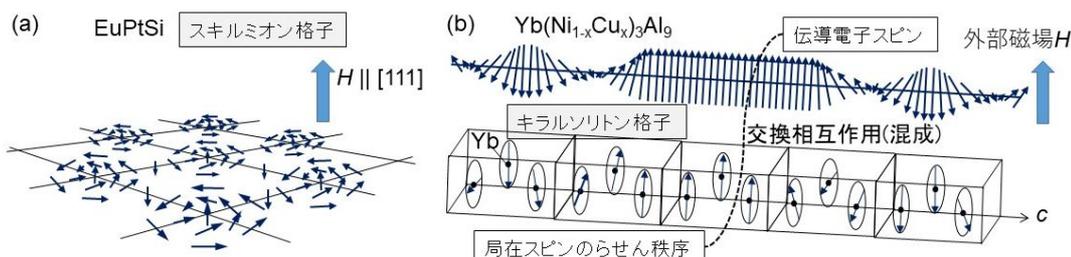


図1 (a) MnSi のスキルミオン格子 (b) $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ のキラルソリトン格子

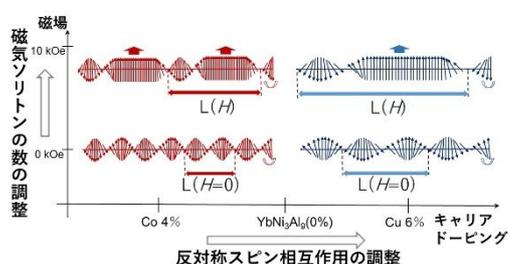


図2 YbNi_3Al_9 における CSL のらせん周期 L の調整

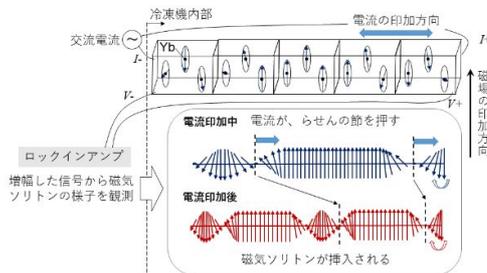


図3 交流磁気抵抗測定装置と CSL の電流応答

3. 研究の方法

(1) 様々ならせん周期を持つ YbNi_3Al_9 とその元素置換系の基礎物性測定

代表的な銅濃度 0, 2, 4, 6% の純良な単結晶を得て、らせん周期の変化が物性に与える影響の全体像を調べた。得られたそれぞれの試料について、Quantum Design 社の MPMS と PPMS を用いて磁化と、ホール効果と電気抵抗測定を行った。

(2) 新しいキラル磁性体の探査と基礎物性測定

方法(1)で得たキラル磁性体に特徴的な基礎物性に注目し、キラル磁性体の新物質探査をした。同じ結晶構造をもつ新物質探査を行いつつ基礎物性測定をおこない、キラル磁性体の候補物質を選別した。選んだ物質について KEK にて円偏光共鳴 X 線実験をおこない、磁気構造を決定してキラル磁性体であるかどうかを判定した。本研究ではフラックス法で単結晶育成をした。

(3) 交流磁気抵抗による磁場誘起 CSL の観測

磁場中でひねり(ソリトン)の数を制御し、CSL に特有の非線形応答を得ることを試みた。試料に交流電流を印加しロックインアンプで高調波を観測した。

4. 研究成果

(1) $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ の基礎物性と普遍性

$\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ では、らせん周期が変化するものの、6%までのいずれの置換量でもキラルらせん秩序状態が発現する。この系において、臨界磁場や温度は置換量に応じて線形的に変化する。温度-磁場相図を臨界磁場と温度で規格化したときに相図の普遍性を見出した。 a 軸方向の磁場を印加していくと臨界磁場をむかえる前に強磁性的な領域の侵入が顕著になる磁場が存在する。この特徴的な磁場は常に臨界磁場の 0.7 倍程度となることがわかった。このことは、キラルらせん秩序状態をよく説明できるモデルハミルトニアン の存在を示唆する。

(2) CSL 由来の交流抵抗の非線形応答の観測

$\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ においてひねり(ソリトン)の数が少ない環境では磁気構造の非線形性を反映した高調波の観測が期待できる。磁場角度回転磁気抵抗測定を行い、 c 軸方向近傍の磁場下および臨界磁場近傍ではソリトンの数が少ないことを見出し、高調波を捉えた。現在は高調波の信号が微弱のため集束イオンビームを用いて試料の微細加工を行い、測定感度向上による定量性の確保を目指している。

(3) 新しいキラル磁性体 GdNi_3Ga_9 の発見

放射光共鳴 X 線実験から新しいキラル磁性体 GdNi_3Ga_9 を発見した。この物質は YbNi_3Al_9 と同じ結晶構造をもつ。図 4 に GdNi_3Ga_9 の磁気構造を示す。この物質では、磁性を担う最近接 Gd モーメントがハニカム層内で反平行に配列している。ゼロ磁場では図 4(a)に示すとおり反強磁性らせん磁気構造が発現する。この磁気構造では隣り合うハニカム層間で磁気モーメントがおおよそ 178 度回転する。 a 軸方向に磁場を印加してらせん磁気相を壊すと、この回転角が 180 度となりハニカム層間も反平行の配列となる反強磁性秩序状態になることがわかった。この物質ではらせんのひねりが 180 度からの角度の差であることを見出した。

(4) 新しいキラル磁性体 GdNi_3Ga_9 においてらせん周期を制御

GdNi_3Ga_9 の Ni に対して Co を元素置換することで、磁気モーメントの回転角がおおよそ 130 度になることがわかった。元素置換によって回転角が大きく変化することから、母体と比較することでらせん秩序の発現機構の解明が期待できる。

元素置換によってキラル磁性体のらせん周期を制御した系は YbNi_3Al_9 に次いで世界で 2 例目となる。ホール抵抗測定からこれらの系では、いずれもキャリア数を変化することが確認されており、それに伴うらせん周期の変化が観測されていることから、この両者には密接な関係があると考えられる。

(5) ひねりの起源である DM 相互作用の大きさの見積

一軸キラル磁性性を説明する代表的なモデルは局在系を取り扱うサインゴールドンモデルである。このモデルでは、ひねり角と臨界磁場、臨界温度が DM 相互作用とスピン間相互作用の大きさによって決定される。本研究では YbNi_3Al_9 と GdNi_3Ga_9 の各置換試料における回転角と臨界磁場、臨界温度を観測することで、元素置換によって DM 相互作用が数倍に増強することを確認した。サインゴールドンモデルを用いて臨界磁場と臨界温度から DM 相互作用の大きさやひねり角が見積もれることを実験から示した。局在モデルで遍歴系のキラル磁性体を説明するこの結果は、伝導電子を媒介とした場合でも DM 相互作用は安定的に作用することを示唆する。

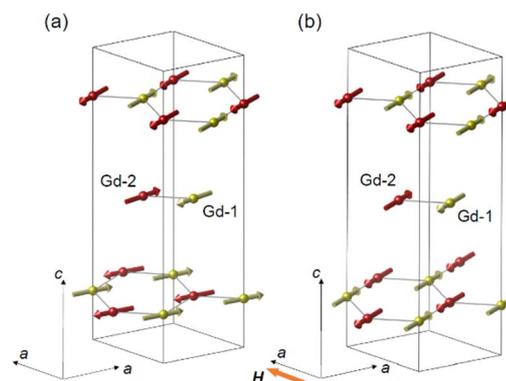


図 4 GdNi_3Ga_9 の磁気構造。(a) ゼロ磁場の反強磁性らせん磁気構造。 c 軸方向のねじれ角は 10 倍に強調している。(b) 磁場誘起相の 180° 反強磁性磁気構造。

5. 主な発表論文等

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

1. 著者名 Nakamura Shota, Matsumura Takeshi, Ohashi Kazuma, Suzuki Hiroto, Tsukagoshi Mitsuru, Kurauchi Kenshin, Nakao Hironori, Ohara Shigeo	4. 巻 108
2. 論文標題 Discovery of antiferromagnetic chiral helical ordered state in trigonal GdNi_3Ga_9	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 104422
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.108.104422	査読の有無 無
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 -

〔学会発表〕 計18件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 塚越舜, 岸田卓, 倉内憲伸, 伊藤大地, 久保光野, 松村武, 池田陽一, 中村翔太, 大原繁男
2. 発表標題 キラル磁性体YbNi ₃ Al ₉ の結晶場状態の決定と物性の解析
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shota Nakamura, Takeshi Matsumura, and Shigeo Ohara
2. 発表標題 Antiferromagnetic chiral helix in trigonal GdNi ₃ Ga ₉
3. 学会等名 アシンメトリ量子スタートアップミーティング
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shota Nakamura, Takeshi Matsumura, and Shigeo Ohara
2. 発表標題 Discovery of an antiferromagnetic chiral helix in trigonal GdNi ₃ Ga ₉
3. 学会等名 SCES2023（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 谷本優希美、中村翔太他
2. 発表標題 カイラル金属磁性体Yb(Ni _{1-x} Cu _x) ₃ Al ₉ の角度分解光電子分光
3. 学会等名 A01・A02合同トピカルミーティング
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中村翔太，大原繁男
2. 発表標題 カイラル金属磁性体Yb(Ni _{1-x} Cu _x) ₃ Al ₉ の試料微細化と磁気抵抗
3. 学会等名 A01・A02合同トピカルミーティング
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 谷元優希美，杉本光昌，佐藤仁，山神光平，中村翔太，大原繁男
2. 発表標題 カイラル金属磁性体Yb(Ni _{1-x} Cu _x) ₃ Al ₉ の軟X線角度分解光電子分光
3. 学会等名 日本放射光学会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 中村翔太
2. 発表標題 カイラル金属磁性体YbNi ₃ Al ₉ とGdNi ₃ Ga ₉ の単結晶育成とらせん磁気構造
3. 学会等名 トピカルミーティング「アシンメトリ量子物質の開発 現状と展望（招待講演）」
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 鈴木大斗, 中村翔太, 大原繁男
2. 発表標題 新物質Sm4Pt9Al24の単結晶育成と電子物性
3. 学会等名 アシンメトリ量子研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村翔太, 大原繁男
2. 発表標題 Investigation of chiral magnetic phase in Yb(Ni _{1-x} Cu _x) ₃ Al ₉ by magnetoresistance measurement
3. 学会等名 アシンメトリ量子研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hiroto Suzuki, Shota Nakamura, and Shigeo Ohara
2. 発表標題 Metamagnetism in a new material EuPdAl ₆
3. 学会等名 LT29 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 鈴木大斗, 山本理香子, 鬼丸孝博, 漆原大典, 中村翔太, 大原繁男
2. 発表標題 重い電子系物質Ce ₂ Pt ₆ Al ₁₅ の単結晶育成と電子物性
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大橋一諒、中村翔太、大原繁男
2. 発表標題 コバルト置換によるカイラル物質GdNi ₃ Ga ₉ の磁気相図の変化
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 谷元優希美、神森龍一、杉本光昌、佐藤仁、有田将司、Shiv Kumar、島田賢也、中村翔太、大原繁男
2. 発表標題 カイラル金属磁性体YbNi ₃ Al ₉ の角度分解光電子分光
3. 学会等名 日本放射光学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 塚越舜、岸田卓、倉内憲伸、伊藤大地、久保光野、松村武、池田陽一、中村翔太、大原繁男
2. 発表標題 キラル磁性体YbNi ₃ Al ₉ の結晶場状態の決定と物性の解析
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中村翔太、大原繁男
2. 発表標題 カイラル金属磁性体Yb(Ni _{1-x} Cu _x) ₃ Al ₉ における磁気抵抗の高調波応答
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 鈴木大斗, 中村翔太, 大原繁男
2. 発表標題 新物質Sm4Pt9Al24の傾角反強磁性秩序
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shota Nakamura
2. 発表標題 Investigation of anisotropy in chiral magnet Yb(Ni _{1-x} Cu _x) ₃ Al ₉ by magnetoresistance measurement
3. 学会等名 J-physics+
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村翔太, 大原繁男
2. 発表標題 カイラル金属磁性体Yb(Ni _{1-x} Cu _x) ₃ Al ₉ における磁気抵抗の異方性
3. 学会等名 日本物理学会2022年年次大会
4. 発表年 2022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
---------	---------