

令和 2 年 4 月 22 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K13497

研究課題名（和文）スピン構造のトポロジカル相転移における臨界ゆらぎとその高効率熱電変換への応用

研究課題名（英文）Critical fluctuations in topological transitions of spin structures and their application to high efficiency thermoelectric conversion

研究代表者

金澤 直也（Kanazawa, Naoya）

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・講師

研究者番号：10734593

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）：物質中に多数存在する電子のスピンは微小な磁石として振舞います。これらのスピンは多彩な集団構造を示しますが、スキルミオンといったトポロジーという数学で特徴付けられるスピン配列構造が実現されると、電子のもつ電荷の自由度との結合により、古典電磁気学では実現できないような巨大な電磁気応答が現れます。本研究ではキラル磁性体を開拓し、ヘッジホッグ格子と呼ばれる新しいトポロジカルスピン構造を実現しました。特に、磁場や圧力といった外部刺激によってこのスピン構造を別の構造に変形できること（トポロジカル相転移）を発見し、それに伴うスピンの強いゆらぎに由来して巨大な電気伝導特性が現れることを明らかにしました。

研究成果の学術的意義や社会的意義

2009年にスキルミオンという新しいスピン構造が発見されて以降、様々なタイプのトポロジカルスピン構造が発見されてきました。それらはナノメートルスケールの磁気粒子として振舞うため、磁気記録メモリの性能を向上させる物質中の状態として注目を集めました。本研究では、トポロジカルスピン構造を磁場や圧力といった外部刺激によって自在に変形させることができ、その変形（トポロジカル相転移）に伴うスピンの強いゆらぎが電気伝導現象に大きな影響を与えるという新しい物理の側面を明らかにできました。

研究成果の概要（英文）：Many electron spins in a material behave as small magnets. These spins show various collective structures. When a spin structure with characteristic topological properties, such as skyrmion, is realized, there appears a huge electromagnetic response, which cannot be realized by classical electromagnetism. In this research, we developed chiral magnets and identified new topological spin structures called spin-hedgehog lattices. Those topological spin structures can be transformed into other structures by external stimuli such as a magnetic field and pressure. We also found giant Hall responses in association with the strong spin fluctuations upon the topological phase transition.

研究分野：物性物理

キーワード：スキルミオン ヘッジホッグ トポロジカル相転移 小角中性子散乱 キラル磁性体

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) 量子ホール効果の発見を契機として、物質中のトポロジカルな電子・スピン構造は実効的な電磁場(創発電磁場)の源として振舞い量子物性に大きな影響を与えていることが認識されるようになった[1]。実空間におけるスピン構造のトポロジーに着目すると、スピン配列やその時間変化で決まる創発電磁場分布が現れるため、スピン構造の制御により多種多様な創発電磁場物性を実現できる可能性がある。

(2) 近年発見されたスキルミオンという2次元トポロジカル磁気構造(図1上段右)は、外部刺激による生成や消去、そして創発磁場を用いた高効率な検出や駆動といった制御が可能であるため、スキルミオンを情報ビットとする磁気メモリデバイス開発といった応用も期待されている[2]。

(3) B20型遷移金属化合物と呼ばれるスキルミオンが発現する典型的な物質群においては、スキルミオンだけでなくヘッジホッグと呼ばれる3次元の特異なトポロジカルスピン構造も発現することがわかってきた[3]。B20型化合物はキラルな結晶構造であるため、反対称的スピン間相互作用(Dzyaloshinskii-守谷相互作用、 $\propto S_i \times S_j$ )が強磁性相互作用( $\propto S_i \cdot S_j$ )と競合し、強磁性構造が捻られた状態が現れる。その捻り方向が複数ある場合、すなわち複数の磁気変調にモード間結合がある場合、トポロジカルな磁気構造が周期的に並んだ格子状態が実現します。例えば平面上の3方向の磁気変調( $q_1, q_2, q_3$ )が重なり合うと、スキルミオンが三角格子を組んだスキルミオン格子状態が現れ(図1上段)、互いに垂直に重なり合うとヘッジホッグ格子(3q-ヘッジホッグ格子、図1下段)が形成される。ここでヘッジホッグ構造から発生する創発磁場は中心から湧き出すまたは中心に吸い込まれるような分布を示すため、ヘッジホッグ格子は磁気モノポール格子のように振舞う。

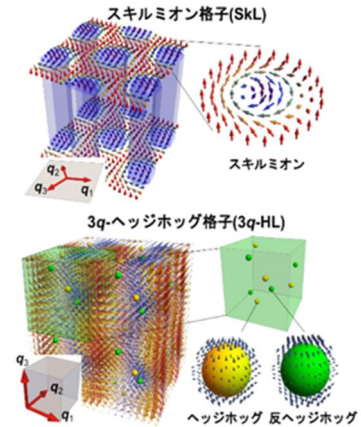


図1: スキルミオン格子(SkL, 上段)とヘッジホッグ格子(3q-HL, 下段)。

### 2. 研究の目的

(1) 本研究では、トポロジカルスピン構造が強磁性状態といった非トポロジカルスピン構造や異なるトポロジカルスピン構造への転移(トポロジカル磁気転移)に着目し、その時に現れる強いスピンゆらぎに由来した巨大伝導特性の実現とその機構の解明を目指した。この目的を実現するために、以下の研究目標を設定した。

- (2) トポロジカル磁気転移が期待され、且つその機構解明に繋がる物質の合成と単結晶育成。
- (3) トポロジカル磁気構造の観測と実証。
- (4) トポロジカル磁気転移に伴う固有の伝導特性の観測。
- (5) トポロジカル磁気転移の外場制御性の検討。

### 3. 研究の方法

- (1) 研究目的で示した各項目(2)-(5)を実現するためにそれぞれ以下のように研究を実施した。
- (2) 新規 B20 型化合物  $MnSi_{1-x}Ge_x$  の高圧合成。3次元ヘッジホッグ格子が発現する B20 型化合物  $MnGe$  の単結晶育成。
- (3) 小角中性子散乱実験によるトポロジカルスピン構造の格子状態の観測。
- (4) パルス強磁場を用いたホール伝導度の測定。
- (5) 組成変化によるトポロジカルスピン構造への化学圧力の効果や磁場印加によるトポロジカルスピン構造の変形の観測。

### 4. 研究成果

(1) 同じ B20 型結晶構造を持つ  $MnSi$  (スキルミオン格子, SkL) と  $MnGe$  (3q-ヘッジホッグ格子, 3q-HL) において全く異なるスピン構造のトポロジーが現れることから、それらの固溶体である  $MnSi_{1-x}Ge_x$  の特定の組成において劇的なトポロジカル磁気転移が生じることが期待できる。本研究では Si と Ge の組成比を変化した一連の  $MnSi_{1-x}Ge_x$  を高圧合成法によって育成することにより、スキルミオン格子から創発磁気モノポール格子へどのように転移するかを明らかにした[4]。特に、中間組成 ( $x=0.3-0.6$ ) においてヘッジホッグ(創発磁気モノポール)と反ヘッジホッグ(反モノポール)が面心立方格子状に配列した新しいトポロジカル磁気構造が現れ、スキルミオン格子とも  $MnGe$  のヘッジホッグ格子とも異なる電気伝導特性を示すことがわかった。

(2) パルス強磁場測定により新規化合物  $MnSi_{1-x}Ge_x$  におけるスピンの“非共線配列度合い”を調べた。スピンのどのように捻れて配列しているかを大まかに示唆する物理量に強磁性転移磁場がある。直感的には、2次元方向にスピンの捻れて配列しているスキルミオンよりも3次元のあらゆる方向に捻られたヘッジホッグの方が、強磁性状態へとスピンの向きを揃えるのにより大きな外部磁場を印加する必要があるため、強磁性転移磁場の大きさはスピン構造のトポロジーを表す良い指標となる。 $MnSi_{1-x}Ge_x$  の磁化の強磁場測定を行い、強磁性転移磁場(磁化が飽和するときの磁場)を明らかにした(図2上段)。最低温において組成  $0 \leq x \leq 0.25$  では 1 T 程度の強磁性転移磁場が、中間組成  $0.3 \leq x \leq 0.6$  において 10 T 程度となり、 $0.7 \leq x \leq 1.0$  の  $MnGe$  に

近い組成領域では 20 T を超えるという明確な 2 段階磁気転移が現れた。この結果からスピン構造に劇的な変化が起きていることが示唆された[4]。

(3) 磁気構造の詳細を明らかにするため小角中性子散乱実験を行った。MnSi 側の Ge 低ドープ領域 ( $0 \leq x \leq 0.25$ ) ではスキルミオン格子形成に特有の磁気散乱パターンが観測でき、Ge 高ドープ領域 ( $0.7 \leq x \leq 1.0$ ) においては MnGe に現れるヘッジホッグ格子形成に見られるパターンが観測できた。中間組成 ( $0.3 \leq x \leq 0.6$ ) では、前述の 2 つの場合とは全く異なる磁気散乱が観測され、図 2 下段に示した 4 つのらせん磁気構造の重ね合わせで記述される新しいヘッジホッグ格子 (4q-ヘッジホッグ格子) が形成している可能性を明らかにした[4]。

(4)  $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$  に現れる 3 つの異なるトポロジカル磁気構造 (SkL, 3q-, 4q-HL) は、それぞれの構造を反映した創発磁場分布によって、トポロジカルホール効果と呼ばれる伝導電子の運動方向の偏向現象が引き起こされる。磁場印加に伴うトポロジカル磁気構造の解け方がそれぞれ異なることに対応して、各磁気相においてトポロジカルホール効果も特徴的な磁場依存性を示すことがわかった。トポロジカルホール効果は、測定されたホール抵抗率のうち正常ホール効果 ( 磁場  $H$  ) · 異常ホール効果

( 磁化  $M$  ) では説明できない寄与として見積もられる。本研究ではフライホイールを用いた非破壊型長時間パルス (ロングパルス) と数値位相検波法を用いることによって数  $\mu\Omega$  程度の高精度でホール抵抗を測定することに成功し、トポロジカルホール低効率を正確に見積もることができた。例えば  $x=0.8$  におけるトポロジカルホール効果は図 3 のようになった。図 3 左に各温度におけるホール抵抗率の磁場依存性を示した。強磁性転移磁場以下でホール抵抗率が磁場・磁化に対して非単調に変化していることが分かった。これは複雑な創発磁場分布によるトポロジカルホール効果の存在を示唆している。実際に正常・異常ホール効果の寄与を見積もった結果、強磁性状態でホール抵抗率を再現するような曲線となり ( 図 3 左の細線)、有限のトポロジカルホール効果が観測できた ( 図 3 左網掛け、図 3 中央は網掛け部分を抜き出したもの)。トポロジカル抵抗率を温度-磁場平面にカラーマップすると ( 図 3 右)、低温低磁場では負の寄与となっているが、常磁性・強磁性転移に近づく高温高磁場において正の寄与へと符号変化することがわかった。この符号変化はヘッジホッグ格子-強磁性のトポロジカル磁気転移に伴うスピン構造のダイナミクスと関連している可能性があり[4]、今後詳細な機構解明を行いたい。

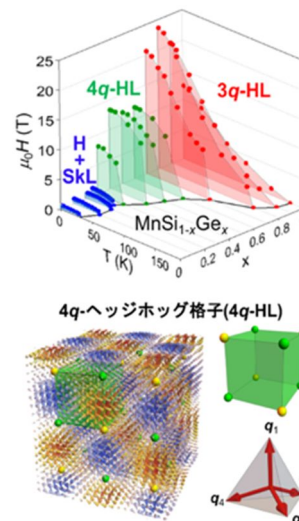


図2:  $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$  における強磁性転移磁場の変遷 ( 上段 ) と中間組成領域に現れた新しいヘッジホッグ格子 ( 4q-HL, 下段 ) 。

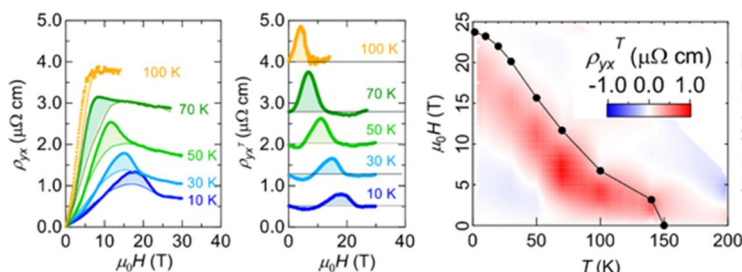


図3:  $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$  ( $x=0.8$ ) におけるホール抵抗率 ( 左 )、見積もったトポロジカルホール抵抗率 ( 中央 )、トポロジカルホール抵抗率の温度・磁場依存性 ( 右 ) 。

(5) キラル磁性体  $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$  において、スキルミオン格子から異なる 2 つのヘッジホッグ格子へと多段階に転移する様子を解明した。Si と Ge の組成比制御は格子定数の変化に対応するため、同様に格子定数を変化させる外部圧力によってもスピン構造のトポロジ自体を制御できる可能性を示すことができた。

(6) 高圧法によって MnGe の単結晶の合成に成功した。また MnGe のエピタキシャル薄膜成長にも成功した。これらの試料を用いることによって、磁場による 3q-ヘッジホッグ格子のトポロジカル磁気転移の観測に成功した。この結果は論文としてまとめ成果発表する予定である。

(7) B20 型化合物 MnSi がどのような結晶ドメインを形成してシリコン基板上に薄膜成長しているのかを透過型電子顕微鏡を用いた共同研究を通して解明した[5]。

(8) 一連の研究を含めたトポロジカルスピン構造制御について総説論文を出版した[6]。

<引用文献>

[1] K. v. Klitzing, G. Dorda, and M. Pepper, Phys. Rev. Lett. **45**, 494 (1980).  
 [2] 金澤直也, 于秀珍, 賀川史敬, 十倉好紀, 固体物理 **50**, 721 (2015).  
 [3] N. Kanazawa, Y. Nii, X.-X. Zhang, A. S. Mishchenko, G. De Filippis, F. Kagawa, Y. Iwasa, N. Nagaosa, and Y. Tokura, Nature Commun. **7**, 11622 (2016).  
 [4] Y. Fujishiro, N. Kanazawa, T. Nakajima, X. Z. Yu, K. Ohishi, Y. Kawamura, K. Kakurai, T. Arima, H. Mitamura, A. Miyake, K. Akiba, M. Tokunaga, A. Matsuo, K. Kindo, T. Koretsune, R. Arita, and Y. Tokura, Nature Commun. **10**, 1059 (2019).  
 [5] D. Morikawa, Y. Yamasaki, N. Kanazawa, T. Yokouchi, Y. Tokura, and T.-h. Arima, Phys. Rev. Materials **4**, 014407 (2020).  
 [6] Y. Fujishiro, N. Kanazawa, and Y. Tokura, Appl. Phys. Lett. **116**, 090501 (2020).



## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Y. Fujishiro, N. Kanazawa, T. Nakajima, X. Z. Yu, K. Ohishi, Y. Kawamura, K. Kakurai, T. Arima, H. Mitamura, A. Miyake, K. Akiba, M. Tokunaga, A. Matsuo, K. Kindo, T. Koretsune, R. Arita, Y. Tokura	4. 巻 10
2. 論文標題 Topological transitions among skyrmion- and hedgehog-lattice states in cubic chiral magnets	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1059-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-019-08985-6	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 金澤 直也、十倉 好紀	4. 巻 13
2. 論文標題 トポロジカル磁性体の創発物性・機能	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 まぐね	6. 最初と最後の頁 289-298
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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 Morikawa Daisuke, Yamasaki Yuichi, Kanazawa Naoya, Yokouchi Tomoyuki, Tokura Yoshinori, Arima Taka-hisa	4. 巻 4
2. 論文標題 Determination of crystallographic chirality of MnSi thin film grown on Si (111) substrate	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 014407-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PHYSREVMATERIALS.4.014407	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 Fujishiro Y., Kanazawa N., Tokura Y.	4. 巻 116
2. 論文標題 Engineering skyrmions and emergent monopoles in topological spin crystals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 090501 ~ 090501
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5139488	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 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Naoya Kanazawa
2. 発表標題 Various topological spin structures and emergent transport phenomena in B20-type chiral magnets
3. 学会等名 Quantum Complex Matter 2018 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 金澤 直也
2. 発表標題 B20型キラル磁性体における多彩な磁気構造と創発物性
3. 学会等名 基研研究会 スピン系物理の最前線 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Naoya Kanazawa
2. 発表標題 Various topological spin textures and emergent transport phenomena in B20-type chiral magnets
3. 学会等名 2018 MRS Fall Meeting & Exhibit (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 N. Kanazawa, J. S. White, H. M. Ronnow, A. Tsukazaki, M. Ichikawa, M. Kawasaki, Y. Tokura
2. 発表標題 Deformation of spin-hedgehog lattice in chiral magnet MnGe as seen via small-angle neutron scattering
3. 学会等名 CEMS Symposium on Emergent Quantum Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 金澤直也, Jonathan White, Henrik Ronnow, 塚崎敦, 市川昌和, 川崎雅司, 十倉好紀
2. 発表標題 小角中性子散乱から見たカイラル磁性体 MnGeのスピンのヘッジホッグ格子の変形過程
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Kanazawa
2. 発表標題 Emergent Phenomena and Functionality in Topological Magnets
3. 学会等名 日本磁気学会第43回学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Naoya Kanazawa
2. 発表標題 Formation of spin-hedgehog lattices and giant topological transport properties in chiral magnets
3. 学会等名 DPG Spring Meeting（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

researchmap <a href="https://researchmap.jp/n_kanazawa">https://researchmap.jp/n_kanazawa</a>
--

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
--	---------------------------	-----------------------	----