

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：21K13877

研究課題名(和文) Topological spin textures in frustrated magnets and their coupling to conduction electrons

研究課題名(英文) Topological spin textures in frustrated magnets and their coupling to conduction electrons

研究代表者

Hirschberger Maximilian (ヒルシュベルガーマックス) (Hirschberger, Maximilian)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授

研究者番号：70871482

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)：金属間化合物では、ナノメートルサイズのスキルミオンスピントポロジカルなスピントクスチャーの形成が先行研究において報告されてきました。本研究プロジェクトでは、中心対称な結晶構造を持つ金属間化合物におけるスピンと電荷の相互相関、特に伝導電子の波動的運動(量子位相)に対する(スカラーまたはベクトルの)スピんキラリティの効果について明らかにすることを目的としました。これまでの2年間、スピン配置をランダム化し、電荷とスピン間の結合を抑制すると期待される熱揺らぎの効果に着目してきました。その結果、物質の格子構造や対称性に依存して、揺らぎが量子位相効果を高めることを発見しました。

研究成果の学術的意義や社会的意義

物性物理学の分野では、マルチフェロイック物質とは、磁氣的刺激と電氣的刺激によって電氣的性質と磁氣的性質をそれぞれ相互制御することができる物質を指します。マルチフェロイック物質の一つにらせん磁性体があり、らせん磁性絶縁体のマルチフェロイック特性は20年近く前から盛んに研究されてきました。らせん磁性金属では、スピンが仮想的な電磁ベクトルポテンシャル(創発磁場・電場)を生成し、動く電荷の運動をねじ曲げたりすることがあります。私たちの研究は、このような一般化された金属マルチフェロイックと、その高温での機能的応答の理解に貢献するものです。

研究成果の概要(英文)：In intermetallic compounds, our previous work established the formation of nanometer-sized skyrmion spin vortices and other complex textures. In this research project, we aimed to reveal cross-correlation between spin and charge sectors in centrosymmetric intermetallics, especially regarding the effect of (scalar or vector) spin chirality on the wave-like motion of conduction electrons (quantum phase). Over the past two years, we have especially focused on the effect of thermal fluctuations, which randomize spin configurations and may be expected to suppress coupling between charge and spin sectors. We found that fluctuations can in fact enhance quantum phase effects, depending on the lattice structure and symmetry of the material host.

研究分野：固体物理

キーワード：磁性 液晶 強相関電子系 スキルミオン

様式 C - 1 9、F - 1 9 - 1、Z - 1 9 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

(1) Intermetallic magnetic materials, i.e. magnetic alloys, represent a frontier in the search for generalized multiferroic conductors, which enable the cross-control of electric and magnetic properties. Here, starting with G.E. Volovik (1987), the concept of ‘emergent electrodynamics’ was developed to describe virtual electric and magnetic fields generated by the spin sector of the system, which influence the motion of electric charges.

(2) It is believed that emergent electrodynamics, associated with the wave-like nature of quantum-mechanical conduction electrons, will form a cornerstone of next-generation (quantum) computation circuits. Previously, the applicant and international researchers had mostly focused on the realization of static (time-independent) spin textures, and their effect on moving charges. However, more recently, it has been proposed that even for thermally agitated and rapidly vibrating magnetic moments, spin chirality persists and generates large emergent electromagnetic fields [W. T. Hou *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 140403 (2017)].

### 2. 研究の目的

(1) In this project, we focus on the effect of the emergent magnetic field that is closely related to spin chirality, i.e. to the triple product  $\chi = \mathbf{S}_i \times (\mathbf{S}_j \cdot \mathbf{S}_k)$  for three neighboring spins at sites  $i, j, k$ . We demonstrate the existence of this emergent field even in the thermally disordered state, in absence of static (time-averaged) spin textures. Furthermore, we discuss the role of lattice symmetry on  $\chi$  in the thermally disordered regime.

(2) To connect transport properties and magnetic ordering of local magnetic moments  $\mathbf{S}_i$ , it is essential to probe the spin polarization induced in the conduction electron states. For this, we use element-sensitive resonant x-ray scattering, directly probing the magnetism of conduction electrons, and aim to reveal the spin and orbital properties of these electrons.

### 3. 研究の方法

(1) We design materials based on symmetry principles and, depending on the target, simple ab-initio calculations of the electronic structure. High-quality single crystals are synthesized via a variety of techniques, such as flux, arc melting, Czochralski, and floating zone growth. Finally, we study transport properties in custom-built probes suitable for precision-measurement of nanovolt signals in cryomagnets.

(2) We collaborate with experts at leading x-ray scattering facilities in Japan and overseas, such as Photon Factory (KEK), SPring-8 (JASRI), and PETRA-III (DESY, Hamburg, Germany). For the present study, we visited DESY and used tender x-rays at the Ru-4d absorption edge (2.8-3.0 keV), implemented with a full-vacuum sleeve beam path at beamline P09 of PETRA-III.

### 4. 研究成果

#### (1) Thermal spin fluctuations, spin chirality, and emergent electrodynamics.

We choose ternary intermetallics  $R_3Ru_4Al_{12}$  ( $R$  = rare earth), with distorted Kagome structure and spin-trimers of large, localized magnetic moments on the  $R$ -site, as model systems for spin chirality in intermetallics. The  $R$ -site forms triangular spin clusters, which are the essential building block of spin-chirality  $\chi$  in magnetic solids [S. Nakamura *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 054410 (2018)]. Our previous work has revealed a spiral magnetic ground state and field-induced skyrmion lattice in  $Gd_3Ru_4Al_{12}$  by resonant x-ray scattering; collaboratively, we have also discovered all-in-all-out and twisted spin-trimer patterns in  $Dy_3Ru_4Al_{12}$  by detailed neutron diffraction experiments. In this research project, we have studied thermal fluctuations using electric Hall and thermoelectric Nernst effect measurements in

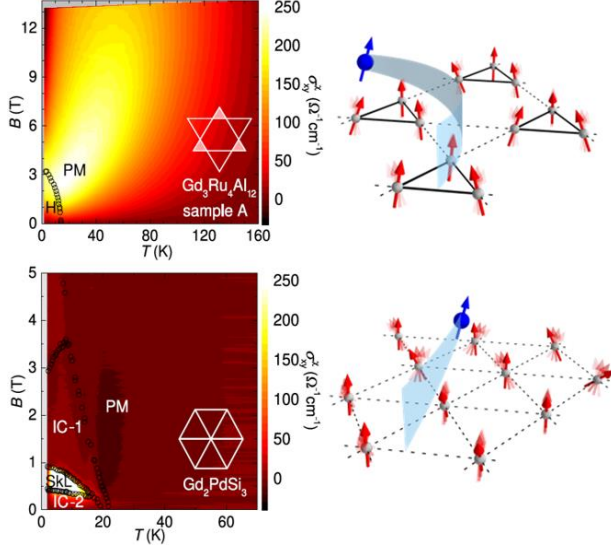


Figure 1: Chirality-driven Hall effect  $\sigma_{xy}$  on the Kagome lattice of  $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$  (upper, strong signal above  $T_N$ ) and on the triangular lattice of  $\text{Gd}_2\text{PdSi}_3$  (lower, weak signal). Adapted from Phys. Rev. Lett. **130**, 136701 (2023).

to highlight the effect of lattice geometry on the observed signatures of emergent electrodynamics, we studied a triangular lattice material with similar magnetic ground state,  $\text{Gd}_2\text{PdSi}_3$ . Here, high-temperature anomalies of electron transport are largely suppressed, indicating cancellation of spin chirality on neighboring lattice plaquettes. If neighboring plaquettes are dissimilar (e.g. on the Kagome lattice), this cancellation of  $\chi$  is broken and a lattice-averaged emergent magnetic field can appear. In future, we hope to expand our work to frustrated metallic magnets with much higher transition

## (2) Element-specific probe of conduction electron magnetism by tender x-ray scattering.

Our tender x-ray measurements on the Ru-4d conduction electrons of  $R_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$  ( $R$  = rare earth) were, unfortunately, delayed by the global coronavirus pandemic. Only in late 2022, we were able to obtain additional beamtime at PETRA-III's beamline P09 to finalize the experimental component of this work. Please kindly note that Ru-4d resonant elastic x-ray scattering (REXS) with high resolution is currently not available at synchrotron x-ray sources in Japan. Figure 2 shows preliminary results of our ongoing data analysis, revealing a sharp discrepancy for azimuthal scans at Ru- $L_2$  and  $L_3$  absorption edges, likely related to dissimilar textures for spin and orbital magnetic moments of the Ru-4d states. We are currently modeling these data based on the site symmetry of two Ru-sites,  $2/m$  and  $-3m$ , in  $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ . We aim of to develop a microscopic (Kondo-type) model of RKKY interactions, taking into account spin-orbit coupling of the conduction electron gas.

$\text{Nd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$  and  $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ , together with coworkers at RIKEN Center for Emergent Matter Science. Figure 1 shows the magnetic phase diagram and contour map of the fluctuation-induced Hall conductivity in  $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ . At temperatures as high as three times the Néel temperature ( $T_N = 19$  K), clear anomalies in electron transport coefficients are observed. This indicates the existence of the emergent magnetic field at  $T > T_N$ , with future potential for realizing magneto-optical and nonlinear electronic effects far above  $T_N$ . Monte Carlo simulations explain finite  $\chi$  at high temperature using local Dzyaloshinskii-Moriya interactions (DMI), which – although averaged globally to zero due to the centrosymmetric space group  $P6_3/mmc$  of  $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$  – locally distort the texture of magnetic moments. Under the influence of local DMI, the probability distribution of  $\chi$  in the paramagnetic state is skewed, with a preference for left- or right- handed chirality depending on the direction of the external magnetic field. To

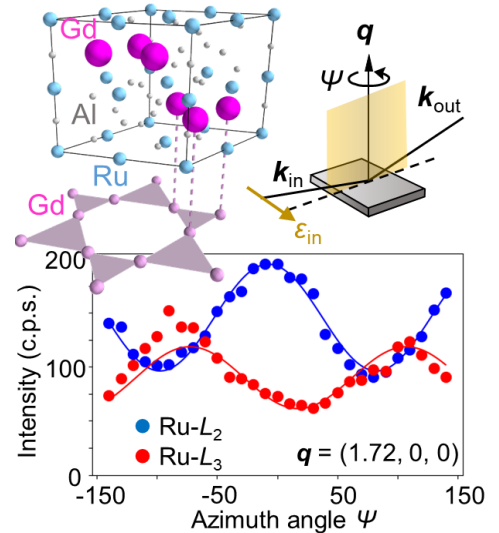


Figure 2: Preliminary resonant x-ray scattering data of  $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$  at the Ru-4d edge. Spin-orbit interaction causes qualitatively different behavior at  $L_2$ ,  $L_3$  edges.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 6件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Kolinco Kamil K., Hirschberger Max, Masell Jan, Gao Shang, Kikkawa Akiko, Taguchi Yasujiro, Arima Taka-hisa, Nagaosa Naoto, Tokura Yoshinori	4. 巻 118
2. 論文標題 Large Hall and Nernst responses from thermally induced spin chirality in a spin-trimer ferromagnet	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 e2023588118
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1073/pnas.2023588118	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 該当する
1. 著者名 Hirschberger Max, Kaneko Yoshio, Spitz Leonie, Nakajima Taro, Taguchi Yasujiro, Tokura Yoshinori	4. 巻 104
2. 論文標題 Robust noncoplanar magnetism in band-filling-tuned (Nd <sub>1-x</sub> Cax) <sub>2</sub> Mo <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 24436
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.024436	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
1. 著者名 Hirschberger Max, Tokura Yoshinori	4. 巻 20
2. 論文標題 Weyl fermions promote collective magnetism	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Materials	6. 最初と最後の頁 1592 ~ 1593
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41563-021-01133-w	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 -
1. 著者名 Oike H., Ebino T., Koretsune T., Kikkawa A., Hirschberger M., Taguchi Y., Tokura Y., Kagawa F.	4. 巻 106
2. 論文標題 Topological Nernst effect emerging from real-space gauge field and thermal fluctuations in a magnetic skyrmion lattice	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214425
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.214425	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

1. 著者名 Ju Jiwon, Saito Hiraku, Kurumaji Takashi, Hirschberger Max, Kikkawa Akiko, Taguchi Yasujiro, Arima Taka-hisa, Tokura Yoshinori, Nakajima Taro	4. 巻 107
2. 論文標題 Polarized neutron scattering study of the centrosymmetric skyrmion host material Gd <sub>2</sub> PdSi <sub>3</sub>	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 24405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.024405	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

1. 著者名 Spitz Leonie, Nomoto Takuya, Kitou Shunsuke, Nakao Hironori, Kikkawa Akiko, Francoual Sonia, Taguchi Yasujiro, Arita Ryotaro, Tokura Yoshinori, Arima Taka-hisa, Hirschberger Max	4. 巻 144
2. 論文標題 Entropy-Assisted, Long-Period Stacking of Honeycomb Layers in an AlB <sub>2</sub> -Type Silicide	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 16866 ~ 16871
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.2c04995	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

1. 著者名 Kolincio Kamil K., Hirschberger Max, Masell Jan, Arima Taka-hisa, Nagaosa Naoto, Tokura Yoshinori	4. 巻 130
2. 論文標題 Kagome Lattice Promotes Chiral Spin Fluctuations	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 136701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.130.136701	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22件 (うち招待講演 12件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spirals and skyrmions in centrosymmetric lattices, and their emergent electromagnetism (online)
3. 学会等名 SKYMAG 2021: Challenges for Magnetic Skyrmions and opportunities for skyrmionic devices (招待講演)
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Commensurate 'chirality crystals' and their emergent electromagnetism (online)
3. 学会等名 Condensed Matter and Quantum Materials, IoP / Bristol, UK
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Oxides as a material platform for the interplay of noncoplanar magnetism and band theory (online)
3. 学会等名 Quantum Oxide Research Online Meeting (QUOROM-4)
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Topological Nernst effect from spin chirality (online)
3. 学会等名 Around-the-Globe / Around-the-Clock 2021, Tokyo, Japan
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Metals with spin topology and resonant elastic x-ray scattering (Gd-L and Ru-L) (online)
3. 学会等名 RIXSREXS2021 Workshop, Brookhaven National Laboratory, NY, USA
4. 発表年 2021年 ~ 2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spirals and skyrmions in magnets and their emergent electromagnetism (online)
3. 学会等名 VI International Workshop Dzyaloshinskii-Moriya Interaction and Exotic Spin Structures (招待講演)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin topology and resonant elastic x-ray scattering in metals (Gd-L and Ru-L) (online)
3. 学会等名 Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES) 2020/2021, Brasilia, Brazil
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Emergent electromagnetic response of nanometer-sized spin textures (online)
3. 学会等名 Autumn Meeting of the German Physical Society (DPG) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin chirality: from static magnetic order to thermal fluctuation processes (online)
3. 学会等名 APW-RIKEN-Tsinghua-Kavli workshop “Highlights on condensed matter physics” (招待講演)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin chirality and spin-orbit coupling in an oxide ferromagnet (poster, online)
3. 学会等名 APW-RIKEN-Tsinghua-Kavli workshop “Highlights on condensed matter physics”
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin chirality and spin-orbit coupling in an oxide ferromagnet (poster, online)
3. 学会等名 Quantum Oxide Research Online Meeting (QUOROM-5)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Resonant tender x-ray scattering from Ru-4d conduction electrons: The emergent inductor Gd <sub>3</sub> Ru <sub>4</sub> Al <sub>12</sub> (online)
3. 学会等名 Materials Research Meeting (MRM) 2021, Yokohama, Japan
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin chirality: from static magnetic order to thermal fluctuation processes (in-person)
3. 学会等名 International Conference on Frustration, Topology, and Spin Textures, Kobe, Japan (招待講演)
4. 発表年 2021年～2022年



1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Topological Hall and Nernst effects in spin-chiral magnets (online)
3. 学会等名 March Meeting of the American Physical Society, Chicago, Illinois, USA (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin-chiral fluctuation processes in magnetic insulators and metals (in-person)
3. 学会等名 Topmax22: Band Topology in Quantum Magnets (Dresden, Germany) (招待講演)
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin chirality: Static and dynamic responses (in-person)
3. 学会等名 From Solid State to Biophysics (Cavtat, Croatia) (招待講演)
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Planar Hall effect related to formation of short-period spin texture (in-person)
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」QLC Publicly Offered Research Kickoff Meeting, ISSP, Univ. of Tokyo, Kashiwa, Japan (招待講演)
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin chirality: from static order to dynamic processes (in-person)
3. 学会等名 Young Research Leaders Group Workshop: Spins, Orbits, Charges, and Heat in Magnets (Ingelheim, Germany) (招待講演)
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin-chiral fluctuation processes in magnetic metals (poster, in-person)
3. 学会等名 29th Conference on Low Temperature Physics (Sapporo, Japan)
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Spin dynamics: emergent inductance and chiral fluctuations (online)
3. 学会等名 Around-the-Globe / Around-the-Clock Conference 2022 (招待講演)
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Topological (3D) Magnets: Electrical and thermal transport (in-person)
3. 学会等名 Workshop on Topology in Magnetic Materials, Herzberg, Switzerland (招待講演)
4. 発表年 2022年～2023年

1. 発表者名 Max Hirschberger
2. 発表標題 Thermal fluctuations & spin chirality (poster, online)
3. 学会等名 FYR04 Quantum Liquid Crystal (新学術) meeting, Nagoya University, Nagoya, Japan
4. 発表年 2022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
---------	---------