

令和 6 年 6 月 19 日現在

機関番号：32660

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2022～2023

課題番号：22K20360

研究課題名（和文）キラルな磁性金属における新奇な熱電・電子輸送特性の開拓

研究課題名（英文）Novel thermoelectric transport properties in chiral magnetic metals

研究代表者

佐藤 芳樹 (Sato, Yoshiki)

東京理科大学・創域理工学部先端物理学科・助教

研究者番号：30962550

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、キラルな結晶構造をもつ物質における特異な磁性やエネルギーバンド構造、またそれらに起因する電子輸送現象に着目した。キラル結晶の磁性および電子輸送現象に関する研究成果として、新物質GdPt2Bの発見および、その単結晶育成に成功した。加えて、結晶のキラリティに起因する特徴的な磁性を示すGdPt2Bにおいて非自明な機構で生じる異常なホール効果を観測した。非磁性のキラル結晶においても、強い電子格子相互作用を有する電子流体候補物質NbGe2のフェルミ面のトポロジーの解明と特徴的な熱電輸送現象や、キラル金属LaPt2Bのフェルミ面の次元性に起因した軸性依存伝導極性など興味深い研究成果が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

持続可能な社会の実現のため、省エネルギーなメモリデバイスや、高効率な廃エネルギーの利用を可能にする熱電素子など、新しい機能性材料にかかる期待は大きい。キラル結晶は上述したような材料を探索する上で非常に有望なプラットフォームであり、また同時に、基礎学理を探求する上でも興味深い物質群である。本研究で報告した新しいキラル化合物や、そこで観測された異常な輸送現象や熱電変換は、基礎・応用の両方の観点から興味深い研究成果である。

研究成果の概要（英文）：The present study focuses on the peculiar magnetism and energy band structure in materials with chiral crystal structures, as well as the electronic transport phenomena arising from them. We reported the discovery of a new material GdPt2B and succeeded in growing single crystals of GdPt2B. In addition, we observed an anomalous Hall effect, which occurs by a non-trivial mechanism in GdPt2B, which exhibits characteristic magnetism due to the chirality of the crystal. Interesting results were also obtained in non-magnetic chiral crystals, such as the topology of the Fermi surface and characteristic thermoelectric transport phenomena in NbGe2 with strong electron-phonon interactions, and the axis-dependent conduction polarity in the chiral metal LaPt2B due to the mixed-dimensionality of the Fermi surfaces.

研究分野：物性物理学

キーワード：キラル化合物 熱電物質 フェルミ面 横熱電変換 単結晶育成

1. 研究開始当初の背景

右手・左手の関係に例えられるキラルな結晶構造をもつ物質における特異な磁性やエネルギーバンド構造、またそれらに起因する電子輸送現象は、基礎・応用の両方の観点から注目されている。例えば、結晶のキラリティを反映したらせん磁性や、キラル結晶の対称性に保護されたクラマース・ワイル点はよく知られた例である。また、らせん磁性体において観測される非相反伝導現象や異常ホール効果は、結晶の対称性が異常な輸送現象と密接に関係していることを示しており、その発現機構は興味深い。このような背景から、国内外でキラル化合物の物質開発や物性研究が盛んに行われてきた。

2. 研究の目的

キラルな結晶構造を反映した特異な輸送現象がキラル化合物において普遍的に観測されるのかという問題意識のもとで、キラルな結晶構造をもつ物質群のうち系統的な物質合成が可能な系に着目し、その輸送特性の測定を通して、キラル構造と輸送特性の関連性を探り、その理解を目指すことが本研究の目的であった。キラル磁性体の先行研究においては、比較的多くのキラル磁性体が発見されている d 電子系化合物が主な研究対象であった。これに対し本研究では、キラル化合物の中でも f 電子系である希土類磁性体を主な研究対象とし、 d 電子系の化合物群との比較も含め、その特異な輸送現象の開拓・解明を系統的に進めていくことを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、六方晶で c 軸方向にらせん軸をもつ希土類化合物 RPt_2B (R : 希土類元素) を主な研究対象物質とし、電気抵抗率、熱伝導率、そして熱電能といった電子輸送特性を評価し、キラル物質における特異な輸送現象の開拓およびその起源の解明に取り組んだ。

RPt_2B は 2000 年に多結晶体の合成が報告 [O. Sologub *et al.*, *J. Alloy and Compd.* **307**, 40 (2000).] された化合物群であり、申請者はこの系の単結晶育成手法の探索や新物質探索を精力的に行ってきた。この物質では、 R に入る希土類元素を軽希土類元素から重希土類元素まで系統的に変化させることが可能であり、本研究の目的に適した物質だと考えられる。チョクラルスキー法やブリッジマン法など適切な単結晶育成手法を選択し、 RPt_2B の単結晶試料を作成して研究に用いた。測定としては、先述した RPt_2B の単結晶試料を用いて、電気抵抗・ホール効果・非線形伝導・熱伝導率・熱電能の精密測定を行った。

4. 研究成果

(1) 新物質 $GdPt_2B$ の特徴的な磁性とトポロジカルホール効果

本研究の主な研究対象である RPt_2B の系では、これまで、 $R = La, Ce, Pr, Nd, Tm, Yb, Lu$ の化合物が報告されていた。本研究を進める中で、新しい RPt_2B 化合物である $GdPt_2B$ を発見し、単結晶育成にも成功した (図 1)。 $GdPt_2B$ は、 RPt_2B 化合物の中で最も高い 87 K で磁気相転移を示した。興味深いことに、 $GdPt_2B$ の磁気相転移はほとんど強磁性に近い振る舞いをする一方で、磁化過程においてヒステリシスを示さず、面内磁場方向では転移点においてカスプ状の異常を示した。この振る舞いは典型的なキラル磁性体の振る舞いと類似して

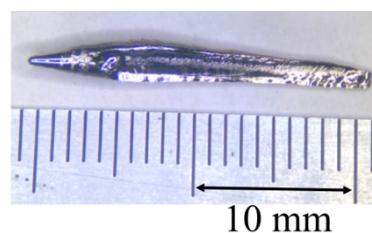


図 1. $GdPt_2B$ の単結晶試料

おり、 GdPt_2B では強磁性的な相互作用が支配的であるものの、キラルな結晶構造に起因する反対称交換相互作用（ジャロシンスキー・守谷相互作用、DM 相互作用）の働きで結晶構造のキラリティを反映したような磁気秩序状態が表れている可能性がある。この GdPt_2B の発見および単結晶試料を用いた基礎物性については、アメリカ物理学会誌 *Physical Review Materials* 誌で発表し、編集部から **Editors' Suggestion**（注目論文）として選出された。

結晶構造にキラリティをもつ磁性体においては、渦状の磁気構造である磁気スキルミオンや、離散的な磁気構造である磁気キラルソリトンなど特徴的な磁気構造が現れることが知られている。これらの特徴的な磁気相においては、磁気構造を反映した磁気抵抗効果やホール効果が現れることが議論されており、理論的・実験的に注目されている分野である。本研究では、特徴的な磁性を示すキラル化合物 GdPt_2B の磁気抵抗およびホール効果を測定した。磁気抵抗と磁化のデータから正常ホール効果と異常ホール効果の成分を見積もり、 GdPt_2B の磁気相でトポロジカルホール効果と呼ばれる成分が存在していることを示した（図2）。興味深いことに、 GdPt_2B のトポロジカルホール伝導度の磁場依存性は磁気相の臨界磁場の半分程度の磁場で最大値を示し、臨界磁場を用いてトポロジカルホール伝導度の磁場依存性をスケールすることが可能である。これはキラル結晶における一軸性 DM 相互作用がトポロジカルホール効果の発現機構と関わっている可能性を示唆する結果である。この GdPt_2B における一軸性 DM 相互作用が関わるトポロジカルホール効果は、アメリカ物理学会誌 *Physical Review B* 誌で発表した。

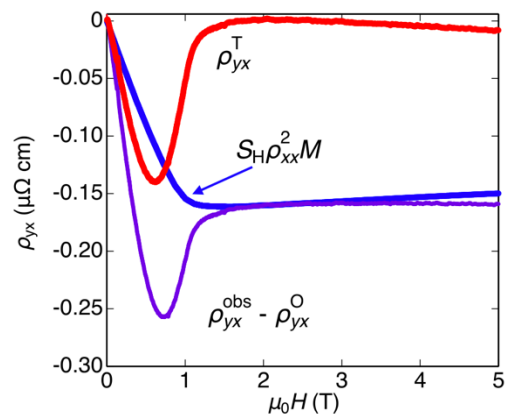


図 2. GdPt_2B の特異なホール効果

(2) 非磁性キラル金属 NbGe_2 および LaPt_2B における特異な熱電輸送現象

研究計画時のキラル磁性金属における特異な輸送現象に加え、非磁性キラル金属における輸送現象についても研究が大きく発展した。非磁性のキラル金属である NbGe_2 は、電子の弾性散乱が支配的となる電子流体状態が実現している可能性が理論的に指摘[C. A. C. Garcia *et al.*, *Phys. Rev. Mater.* **5**, L091202 (2021).]されている物質である。本研究では、化学気相成長法で育成した NbGe_2 の純良単結晶試料を用いて、熱電輸送測定および量子振動現象を通じた電子状態の研究を行なった。単結晶の純良性を反映して明瞭な量子振動が観測され、角度依存性の測定からフェルミ面のトポロジーを明らかにした。先行研究を含めた第一原理計算の結果とコンシステントな実験結果が得られ、 NbGe_2 のエネルギーバンド構造を実験的に決定した。 NbGe_2 のバンド構造はフェルミ準位近傍に鞍点を有しており、そのためフェルミ準位直上にファンホープ特異的な状態密度のピーク構造が存在する（図3）。一方、等構造・等電子数の参照物質 NbSi_2 は状態密度のピーク構造を持たない。そのため、本研究では NbGe_2 と NbSi_2 の熱電輸送特性を比較し、 NbGe_2 は特に低温で熱電能が増強する振る舞いを示すことが明らかになった。また、 NbGe_2 は強い電子格子相互作用を示し、特徴的な電気抵抗率の温度依存性を示すとともに、量子振動効果の実験から電子の有効

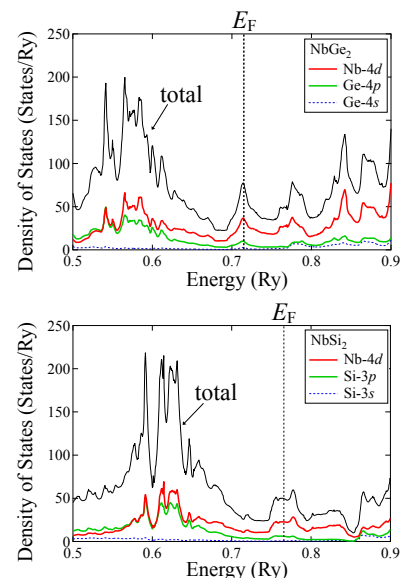


図 3. NbGe_2 と NbSi_2 の状態密度

質量が増大していることが明らかになった。このキラル結晶の興味深い電子状態とそれを反映した特異な熱電輸送現象の結果は、アメリカ物理学会誌 *Physical Review B* 誌で発表した。

非磁性のキラル結晶である LaPt_2B は、Pt-B の一次元的ならせん鎖と、La-Pt 層および B 層が交互に積層した二次元的な構造を併せ持つ。その特徴的な結晶構造を反映して、 LaPt_2B は一次元的なホール面と二次元的な電子面を有する (図 4)。このフェルミ面の次元性の共存により、 LaPt_2B は二つの主要な結晶軸方向で異なる輸送キャリアが支配的となる。熱電能は輸送キャリアの種類を反映する物理量であり、 LaPt_2B では熱電能の符号が二つの主要な結晶軸方向で異なることが期待される。本研究では実際に熱電能の異方性を測定し、 LaPt_2B が軸依存性の伝導極性を示すことを明らかにした (図 5)。このような物質においては、高効率な横型熱電変換が実現できる可能性があり、今後の研究の展開が期待される。

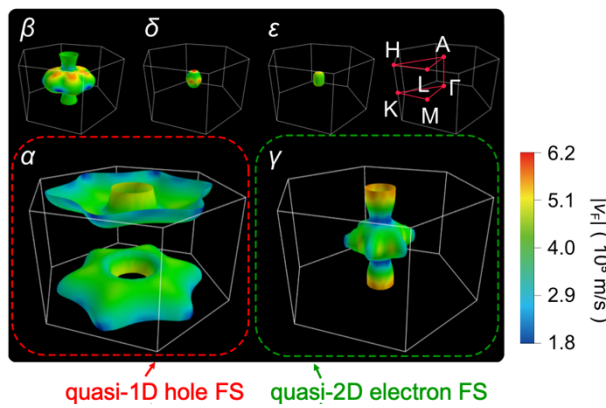


図 4. LaPt_2B のフェルミ面

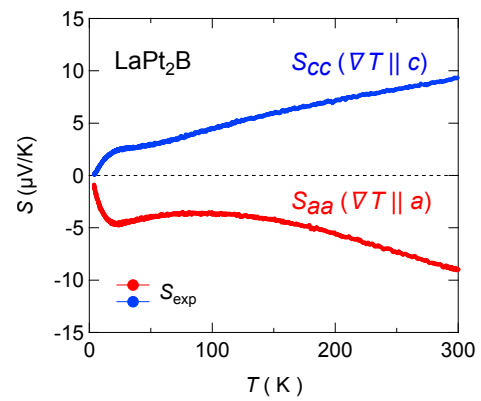


図 5. LaPt_2B において観測された軸依存性伝導極性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5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 Sato Yoshiki J., Nakamura Ai, Nishinakayama Rei, Okazaki Ryuji, Harima Hisatomo, Aoki Dai	4. 巻 108
2. 論文標題 Fermi surface topology and electronic transport properties of chiral crystal NbGe ₂ with strong electron-phonon interaction	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevb.108.235115	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 Sato Yoshiki J., Manako Hikari, Okazaki Ryuji, Yasui Yukio, Nakamura Ai, Aoki Dai	4. 巻 107
2. 論文標題 Monoaxial Dzyaloshinskii-Moriya interaction-induced topological Hall effect in a new chiral-lattice magnet GdPt ₂ B	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevb.107.214420	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 Otsuki Ryota, Sato Yoshiki J., Okazaki Ryuji, Komine Tomoya, Kurihara Ryosuke, Yaguchi Hiroshi	4. 巻 7
2. 論文標題 Carrier filtering effect for enhanced thermopower in a body-centered tetragonal ruthenate	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevmaterials.7.125401	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 Okada Reiji, Isomura Hiroto, Sato Yoshiki J., Okazaki Ryuji, Inoue Masayuki, Yoshioka Shinya	4. 巻 123
2. 論文標題 Mechanically exfoliated low-layered [Ca ₂ Co ₃]0.62[Co ₂]: A single-crystalline p-type transparent conducting oxide	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0162677	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 Sato Yoshiki J., Manako Hikari, Homma Yoshiya, Li Dexin, Okazaki Ryuji, Aoki Dai	4. 巻 6
2. 論文標題 New Gd-based magnetic compound GdPt2B with a chiral crystal structure	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.6.104412	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6件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Y. J. Sato, H. Manako, R. Okazaki, A. Nakamura, D. Aoki, Y. Yasui
2. 発表標題 Magnetic properties and Hall effect in a new chiral-lattice magnet GdPt2B
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. J. Sato, H. Manako, S. Ohsumi, R. Okazaki, D. Aoki
2. 発表標題 Orthogonal thermoelectricity in a multi-dimensional goniopolar conductor LaPt2B
3. 学会等名 ISSP Regular Workshop: How high can we raise thermoelectric performance? (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐藤芳樹, 眞子日佳里, 岡崎竜二, 安井幸夫, 仲村愛, 青木大
2. 発表標題 一軸らせん結晶GdPt2Bにおけるトポロジカルホール効果
3. 学会等名 日本物理学会 第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐藤芳樹, 仲村愛, 西中山怜, 岡崎竜二, 播磨尚朝, 青木大
2. 発表標題 キラルな結晶構造を有するNbGe ₂ における強い電子格子相互作用とフェルミオロジー
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 佐藤 芳樹, 眞子 日佳里, 本間 佳哉, 李 徳新, 岡崎 竜二, 青木 大
2. 発表標題 キラルな結晶構造を有する希土類磁性体の新物質GdPt ₂ B
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 佐藤 芳樹, 仲村 愛, 西中山 怜, 岡崎 竜二, 播磨 尚朝, 青木 大
2. 発表標題 キラルな結晶構造を有するNbGe ₂ における強い電子格子相互作用とフェルミオロジー
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会
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
---------	---------