強磁場で解き明かすトポロジカル磁気相転移

-スキルミオン格子から創発磁気モノポール格子へ-

東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻 金澤 直也、藤代 有絵子、十倉 好紀 物性研究所 国際超強磁場科学研究施設 三田村 裕幸、三宅 厚志、松尾 晶、金道 浩一、徳永 将史

スキルミオン格子と創発磁気モノポール格子

量子ホール効果の発見を契機として、物質中のトポロジ カルな構造に由来した実効的な電磁場(創発電磁場)が量子 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 りました[1]。スピン構造のトポロジーに目を向けると、 実空間の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を秘めています。特にナノ メートルスケールの2次元渦状磁気構造であるスキルミオ ン(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ます[2]。

スキルミオンは MnSi や Fe1-xCoxSi といった B20 型遷 移金属化合物で観測されてきましたが[3,4]、同じ結晶構 造を持つ MnGe ではヘッジホッグとよばれる 3 次元の特 異なトポロジカルスピン構造が存在することが明らかに なりました(図 1 下段右下) [5]。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、 $\propto S_i \times S_i$)が強磁性相互 作用($\propto S_i \cdot S_i$)と競合し、強磁性構造が捻られた状態が現 れます。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(q1, q2, q3)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)が形成します。 ここでヘッジホッグがもたらす創発磁場分布は中心から 湧き出すまたは中心に吸い込まれるような構造であるた め、ヘッジホッグ格子は創発磁気モノポール格子のよう に振舞います。

同じ結晶構造を持つ MnSi と MnGe 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}Gex 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ます。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を合成 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 ル格子へと変形する過程を明らかにしました。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強磁場 物性を示すことがわかりました。以下では、強磁場測定に よって明らかにできた B20型化合物 MnSi_{1-x}Ge_xにおける トポロジカル磁気構造の変遷と創発磁場応答(トポロジカ ルホール効果)について紹介したいと思います。



3q-ヘッジホッグ格子(3q-HL)



図1: スキルミオン格子(SkL, 上段)とMnGeに現れるヘッジホッ グ格子(3q-HL下段)。共に3つの磁気変調の重ね合わせ状態で記 述できるが、それぞれ磁気変調方向が同一平面上であるか(SkL)、 互いに直交するか(3q-HL)でスピン構造のトポロジーが異なって くる。

相転移の狭間に出現する新たな創発磁気モノポール 格子

スピンがどのように捻れて配列しているかを大まかに示 唆してくれる物理量に強磁性転移磁場があります。直感的 には、2 次元方向にスピンが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を揃えるのにより大きな外 部磁場が必要になってくるため、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訳です。 実際に $MnSi_xGe_x$ の磁化の強磁場測定を行い、磁化が飽 和するときの磁場(強磁性転移磁場)を見てみると、最低温 において組成0 $\leq x \leq 0.25$ では1T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10T程度となり、 0.7 $\leq x \leq 1.00$ MnGeに近い領域では20Tを超えるとい う明確な2段階磁気転移が現れています。このように組成に よってその大きさや温度依存性が大きく異なり、スピン構 造に劇的な変化が起きていることが予想できます(図2上段)。



図 2: MnSi_{1-x}Ge_xにおける磁気相図の変遷(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)。

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 を行うと、MnSi 側の Ge 低ドープ領域($0 \le x \le 0.25$)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($0.7 \le x \le 1.0$)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現れま した。さらに中間組成においては、これまでにない磁気散 乱が観測され、図2下段に示した4つの磁気変調の重ね合 わせ状態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)が発現している可能性が見出されました。 (詳細は[6]参照。)

実際に相境界においてどのようにトポロジカル磁気構造 が変形し磁気転移を示すのかは明らかになっていませんが、 MnGeのヘッジホッグ格子から MnSiのスキルミオン格子 ヘ転移する際に、一度ヘッジホッグ位置の組み替えが生じ ることは、スピン構造のトポロジーという幾何学的な観点 からも興味深い現象であるように思えます。

ロングパルス磁場を用いた精密トポロジカルホール 効果測定

MnSi_{1-x}Gex 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ます。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ようになります。

大きさの予測が難しい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(α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 もられます。そのためこれらの通常の寄与をトポロジカル ホール効果が現れない状態、すなわち強磁性状態で見積も る必要が出てきますが、磁化測定で明らかになったように、 3次元ヘッジホッグスピン構造を強磁性状態へと解くため には強磁場が必要となります。特に 3q-ヘッジホッグ格子 相である Ge 高ドープ領域(0.7 ≤ x ≤ 1.0)においては、強 磁性転移磁場が最大で 23 T にも達しています。パルス強 磁場下における低抵抗バルク金属物質の微小なホール抵抗 測定は測定精度の観点から通常困難ですが、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μΩ程度の高精度でホー ル抵抗を測定することに成功したので、ここでは例として x = 0.8 におけるトポロジカルホール効果について紹介し ます。



図 3: MnSi_{1-x}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)。100 K 以上の温度では PPMS を用いて測定している。微小なホール抵抗率も高精度で測定できていることを強調し たい。

図3左に示した各温度におけるホール抵抗率の磁場依存 性を見ると、強磁性転移磁場以下の領域でホール抵抗率が 非単調に変化していることが分かり、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が示唆されます。実 際に正常・異常ホール効果の寄与を見積もると強磁性状態 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ました(図 3左網掛け、網掛け部分を抜き出した図3中央)。見積もっ たトポロジカル抵抗率を温度-磁場平面にプロットすると、 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し ています。この符号変化は磁場や温度によって誘起された スピン構造のダイナミクス(とそれに伴う創発電磁場)と関 連している可能性があり、今後詳細な機構解明が望まれて います。

まとめ・展望

キラル磁性体 MnSi_{1-x}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 様子を解明しました。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ー自体を制御できるか も知れません。一方で磁場によってもスピン構造を解く、 すなわちトポロジカル磁気転移を引き起こすことが可能で、 密に配列したヘッジホッグ格子状態をはじめとして複雑に 絡み合った様々なトポロジカル磁気構造[7]に対して多角 的な強磁場測定の威力が発揮されると期待されます。

謝辞

本研究における強磁場測定は物性研究所国際超強磁場科学 研究施設共同利用による成果です。また JSPS 科研費 (15H05456, 18K13497)ならびにJST 戦略的創造研究推進 事業 CREST(JPMJCR16F1)の助成を受けて行われました。

- K. v. Klitizng, 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] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Böni, *Science* 323, 915 (2009).
- [4] X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Nature* 465, 901 (2010).
- [5] 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).
- [6] 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.* 7, 11622 (2016).
- [7] P. Sutcliffe, J. Phys. A: Math. Theor. 51, 375401 (2018).