

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「量子状態の高度な制御に基づく革新的
量子技術基盤の創出」
研究課題「ナノスピン構造を用いた電子量子
位相制御」

研究終了報告書

研究期間 2018年10月～2024年03月

研究代表者: 永長 直人
(理化学研究所 創発物性科学研究
センター グループディレクター・
副センター長)

§1 研究実施の概要

(1)実施概要

磁性体におけるナノスピン構造に伴う創発電磁場を用いた電子機能開拓を目的として、本プロジェクトは、永長グループによる理論設計・解析と十倉グループによる物質開発、物性測定、賀川グループによる機能開拓の3者が協力して、多くの仕事が共同研究という形で行われた。

1. 物質開発については、巨大な創発電磁場の創成とその電磁機能の開拓に向けて、短周期のナノスピン構造が必要であったが、従来のジャロシンスキー・守谷相互作用に代わって、金属磁性体における伝導電子を介した **RKKY** 相互作用によるスキルミオン物質開発を行った。当初の計画では、永長グループによる物質設計を十倉グループによる物質合成へと展開する予定であったが、後者が先行する形で進み、ブリージングカゴメ格子の $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ や四角格子の GdRu_2Si_2 、 EuAl_4 といった空間反転対称性を有する様々な物質系を開拓し、超短周期らせん構造・超高密度スキルミオン状態を実現することに成功した。これらの物質を用いて、デバイス化に向けた人工構造作製を行うとともに薄膜構造におけるスキルミオンのダイナミクスの数値シミュレーションによって有限サイズ効果を明らかにした。
2. 創発電磁現象の開拓では、永長グループがナノスピン構造に伴う非線形・非相反輸送現象の理論を構築し、スピנקラスタースカッターという概念を提唱した。これにより **MnSi** における非相反電気抵抗の実験結果を半定量的に再現することに成功するとともに、十倉グループによる **MnGe** における巨大スキュー散乱ホール効果の発見へとつながった。また、賀川グループの伝導雑音測定によって **MnSi** におけるスキルミオンの運動の詳細が明らかとなった。また同グループは **MnSi** の準安定スキルミオン相における、巨大なトポロジカル横熱電応答の観測に成功し、磁気スキルミオンと結合した伝導電子が感じる創発ベクトルポテンシャルがトポロジカルホール効果とともに熱流に関しても特異な伝導現象を引き起こすことを示した。さらに、実空間のナノスピン構造による創発電磁場だけでなく、プロジェクトの途中から運動量空間における創発電磁場へと視野を広げることで、いくつかの進展があった。永長グループでは、創発電磁場による非線形光学応答の理論を発展させ、ワイルフェルミオンに伴う2次の非線形光学効果であるシフトカレントの増大を予言し、さらに線形応答、2次応答、3次応答を、リーマン幾何学によって統一的に扱う理論的な枠組みを構築した。十倉グループは、マルチフェロイック半導体 (**Ge,Mn**)**Te** 薄膜における巨大非相反伝導の観測に成功し、さらに極性半金属の **In** ドープ (**Pb,Sn**)**Te** において、空間反転対称性が破れた系のバンド構造において発現する運動量空間の“ベリー曲率ダイポール”に起因した2次の非線形ホール効果を観測した。
3. 創発機能開拓では、インダクター機能とダイオード機能を目的とした。永長グループが、らせんスピン構造が創発電場によって交流電流下でその時間微分に比例した電圧降下を示すことを予言し、対応するインダクタンスがらせんのピッチと試料の断面積に反比例することを示した。この予言に対応して、1.で開発した短周期のらせん構造を示す $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ において、十倉グループ、賀川グループが創発インダクタンスの観測に(低温ではあるが)世界で初めて成功した。さらに室温で短周期らせん磁気構造を示す **YMn₆Sn₆** を合成・微細デバイス化することによって、創発インダクターの室温動作を実現した。また、永長グループによる理論に基づき、**YMn₆Sn₆** への磁性不純物(**Tb**)ドーピング効果を調べ、**Tb** ドーピングによるらせん並進モードの抑制とそれに伴う負の創発インダクタンスの減少を観測した。ダイオード効果に関しては、トポロジカル絶縁体や極性半導体、極性半金属、超伝導体、それらの人工格子も新しいターゲットとして、スピンと運動量がロックした最も理想的な系であるトポロジカル絶縁体の表面状態に磁性不純物をドーピングし、量子化異常ホール状態を実現した上で、そこにキャリアをドーピングして表面状態とエッジ状態の伝導が共存する状況を用意し、10数%におよぶ非相反電気抵抗を観測した。また、永長グループは超伝導における非相反ダイオード効果の理論を世界に先駆けて提出した。

(2) 顕著な成果

< 優れた基礎研究としての成果 >

1. RKKY 相互作用によるスキルミオン物質の発見

概要: 従来、カイラルな結晶構造を持つ磁性体でのみ観測されていたスキルミオンが反転対称性を持つ物質でも、交換相互作用のフラストレーションによって実現することを、実際の物質で実験的に示し、短周期のナノスケールスピン構造を観測した。この発見は創発電磁場を増大させる途を切り拓いたことを意味し、これにより種々の創発電磁現象を巨大化することが可能になった。その一例が、創発インダクターである。

2. 反転対称性の破れた結晶におけるシフトカレントの理論と実証

概要: 反転対称性が破れた結晶におけるプロホ電子状態は、創発電磁場のベクトルポテンシャルに対応するベリー位相によって特徴づけられる。光学遷移に伴ってこの位相が変化することで流れるシフトカレントの理論・実験研究を進め、ワイルフェルミオンにおける増大の予言、強誘電絶縁体におけるフォノン励起直流光電流の実証、磁性強誘電体のマグノン励起によるシフトカレントの実証、などの成果を上げた。

3. スピンクラスター散乱による非相反電気抵抗と巨大異常ホール効果

概要: スピンによる伝導電子の散乱は近藤効果を始めとして多くの興味深い現象をもたらすが、スピンの間の相関、特にスピнкаイラリティを伴うスピンクラスターによる散乱が輸送現象にもたらす影響を明らかにした。ベクトルスピнкаイラリティは、非相反電気抵抗やスピンホール効果、スカラースピнкаイラリティは異常ホール効果を誘起し、特に後者に関しては MnGe や $\text{Nd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ において巨大な異常ホール効果をもたらすことを見出した。

< 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果 >

1. 創発インダクターの提案と実証

概要: らせん磁性を始めとするナノスケールスピン構造に交流電流を印加すると、創発電場によって電流の時間微分に比例する電圧が発生する、いわゆるインダクターとして働くことを理論的に予言し、実験的に $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ において実証した。さらに YMn_6Sn_6 では室温動作を確認した。この創発インダクターはインダクタンスが断面積およびらせんピッチに逆比例することから微細化に有利な新原理のインダクターとなっている。

2. 磁場で制御できるダイオード効果の提唱と実証

概要: pn接合などの構造を作り込むことなく、一様な系で磁場の向きにより反転できるダイオードの理論提案と実証を行った。この効果は MnSi などのカイラル磁性体におけるナノサイズのスピンクラスター散乱によるものと、磁性トポロジカル絶縁体の表面におけるエッジチャンネルと2次元表面状態の共存によるものの2つの系を開拓し、特に後者では10数%におよぶ非相反電気抵抗を実現した。

3. スキルミオンによる巨大なトポロジカル横熱電応答の観測

概要: MnSi バルク単結晶において、磁場・温度相図上で横熱電応答(ネルンスト効果)を測定し、準安定磁気スキルミオン相において顕著なネルンスト信号を観測した。これは、創発磁場による熱流の生成であり、低温における値を過去に報告された様々な磁性体における値と比較すると、ベストレコード、もしくはそれに近い値を示していることが分かった。この結果は創発磁場の効果を考慮した第一原理計算の結果からも裏付けられた。

< 代表的な論文 >

1. Tomoyuki Yokouchi, Fumitaka Kagawa, Max Hirschberger, Yoshichika Otani, Naoto Nagaosa and Yoshinori Tokura, "Emergent electromagnetic induction in a helical-spin magnet", *Nature* **586**, 232–236 (2020).

概要: RKKY 相互作用による種々の短周期スピン構造を示す $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ において、磁場と温度を変えながら交流インピーダンスの測定を行い、らせん磁性相で大きなインダクタンスを示すことを見出した。また電流の方向依存性、試料のサイズ依存性、周波数依存性、なども理論解析と一致することを示した。この論文は創発インダクター研究の端緒となった。

2. Max Hirschberger, Taro Nakajima, Shang Gao, Licong Peng, Akiko Kikkawa, Takashi Kurumaji, Markus Kriener, Yuichi Yamasaki, Hajime Sagayama, Hironori Nakao, Kazuki Ohishi, Kazuhisa Kakurai, Yasujiro Taguchi, Xiuzhen Yu, Taka-hisa Arima and Yoshinori Tokura, "Skyrmion phase and competing magnetic orders on a breathing kagomé lattice", Nat. Commun. **10**, 5831 (2019).

概要:カゴメ格子を有する希土類化合物 $Gd_3Ru_4Al_{12}$ において、伝導電子が媒介する RKKY 相互作用に着目し、超短周期のヘリカル、コニカル、ファン構造に加え、超高密度のスキルミオン結晶といった複数の競合する磁気相の発現を実現した。特に、スキルミオン結晶相における巨大創発磁場をトポロジカルホール効果として検出した。この成果は、巨大創発電磁機能の開拓に向けた物質設計指針を確立し、世界初の創発インダクター実証などの研究基盤となった。

3. K. Yasuda, T. Morimoto, R. Yoshimi, M. Mogi, A. Tsukazaki, M. Kawamura, K. S. Takahashi, M. Kawasaki, N. Nagaosa, and Y. Tokura, "Large non-reciprocal charge transport mediated by quantum anomalous Hall edge states", Nat. Nanotechnol. **15**, 831–835 (2020).

概要:トポロジカル絶縁体に磁性不純物をドーブした系で、表面状態を量子化異常ホール状態にした後で、フェルミエネルギーを変化させて縦方向の伝導を生じさせると、エッジチャンネルと表面状態の双方が寄与することになる。この状態で電流に関して 2 次の電圧を測定すると、10 数%におよぶ大きな非相反電気抵抗が観測された。この現象を、エッジと表面状態間の不純物散乱によって説明した。

§ 2 研究実施体制

1. 研究チームの体制について

(1) 永長グループ(東京大学)

研究代表者:永長 直人(東京大学工学系研究科 教授/
理化学研究所創発物性科学研究センター 副センター長)

研究項目

- ・ナノスピン構造生成と電子位相制御の理論

(2) 十倉グループ(東京大学)

主たる共同研究者:十倉 好紀 (東京大学工学系研究科 教授/理化学研究所創発物性科学研究センター センター長)

研究項目

- ・ナノスピン構造物質創製と磁気構造観察

(3) 賀川グループ(東京大学)

主たる共同研究者:賀川 史敬 (東京工業大学理学院物理学系 教授)

研究項目

- ・動的創発電磁場の検出とその機能開拓

2. 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

CREST チーム(トポロジカル絶縁体ヘテロ接合による量子技術の基盤創成、2016-2021、代表:川崎雅司教授、東京大学)と連携して、磁性トポロジカル絶縁体の表面とエッジチャンネルを用いた巨大非相反伝導の共同研究を行った。CREST チーム(Beyond Skyrmion を目指す新しいトポロジカル磁性科学の創出、2020-2025、代表:于秀珍チームリーダー、理化学研究所)と連携することにより、3次元スピントクスチャーの直接観察を行い、ホフィオンなどのトポロジー構造を明らかにした。また、巨大創発電磁応答を示す短周期ナノスピン構造の観察は電子顕微鏡法といった実空間観測だけでは捉えられない場合もあり、中性子回折法といった運動量空間の情報を引き出す観測法を相補的に用いることが必要である。量子ビームを用いた磁気構造観察について、国内では物性研究所(中島多朗研究室)、国外ではスイス Paul Scherrer 研究所の Solid State Structures グループ(Jonathan White グループリーダー)と緊密に連携することで研究を推進してきた。実際に本研究プロジェクトの中心となる超短周期スキルミオン物質や室温創発インダクター物質におけるナノ磁気構造の特定を含めて 23 報の論文について共同研究を行ってきた。特に若手教員、研究

員、博士学生が携わっており、今後も本ネットワークを活かした共同研究が期待できる。また、国内部品メーカーから共同研究のコンタクトがあり、NDA を交わし検討している。今後の産業応用の可能性についても展開が期待できる。

創発インダクター研究における試料の微細加工、測定に関して、理化学研究所の横内博士（現、理研ユニットリーダー）と大谷チームリーダーと共同研究を推進した。また、純良な MnSi 単結晶は、理化学研究所創発物性科学研究センターの吉川氏、田口グループリーダーより提供を受けた。2022 年 9 月より約 3 か月間、英国 Durham University より JSPS サマープログラムの一環として博士課程の学生 1 名 (Peter Hatton グループ) を受け入れ、マイクロマグネティックシミュレーションによるヘリカル電磁誘導現象や創発インダクター挙動の研究を開始した。この共同研究の成果は投稿論文にまとめられ、国際誌に投稿した（現在査読中）。

理論研究では、東京大学の森本高裕准教授のグループと非相反輸送現象の共同研究を、非線形光学効果の研究では、台湾国立大学物理学科の Guang-Yu Guo 教授、および Harvard 大学物理学科の Junyeong Ahn 博士、Ashvin Vishwanath 教授との共同研究を、超伝導ダイオードでは名古屋大学の田仲由喜夫教授、および University of Science and Technology of China の James Jun He 教授と共同研究を行った。