

研究終了報告書

「らせん構造に立脚した新規トポロジカル磁性体の理論的研究」

研究期間:2020年11月～2024年3月

研究者:速水 賢

1. 研究のねらい

電気磁気応答や異常ホール効果などの興味深い物性現象を通じて、幾何学的なスピントクスチャをもつ磁性体(トポロジカル磁性体)に対する研究が著しい進展を見せている。これらのトポロジカル磁性体のうち、磁気スキルミオンは、2009年に空間反転対称性をもたない B20 系合金 MnSi で観測されて以来、実験・理論ともに盛んに研究が行われている。これらの系における磁気スキルミオン相の発現には、空間反転対称性が破れた系のもとの「スピン-軌道相互作用」に由来したジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用が重要な役割を果たすことが明らかにされている。一方、こうした磁気スキルミオン相をはじめとするトポロジカルな磁気秩序相が、スピン-軌道相互作用とは異なる他の要因によっても安定に存在しうるか、また磁気スキルミオンとは異なる機能性をもつトポロジカル磁性体は実現可能なのか、という2つの重要な問いに関しては、未解明な点が数多く残されていた。

研究者は、これまでに自身が発展させてきた「空間反転対称性を有する系における磁気スキルミオン相の安定化機構」に関する理論形式を、様々な結晶構造や磁氣的相互作用を包括するよう拡張することで、より一般的な枠組みを構築することを試みた。特に、磁気スキルミオンを含むトポロジカルな磁気構造はらせん磁気構造の重ね合わせで記述されるため、構成要素であるらせん構造の種類や、重ね合わせるらせんの数、その際のらせん間の位相といった要素を組み合わせることで、多彩なトポロジカル磁気構造を表現・整理できることに着目した。また、得られたトポロジカル磁気構造が発現するために必要な結晶構造や微視的相互作用を系統的に明らかにすることを目指した。具体的には以下の5つの点を明らかにすることを目指した。

- (i) マクロな結晶対称性とミクロな安定化機構に基づいた有効モデルの構築
- (ii) 磁気スキルミオン相の新しい安定化機構の理論提案
- (iii) 新規トポロジカル磁気構造の理論提案
- (iv) 典型物質の解析
- (v) スピнкаイラリティ自由度に基づいた新しい物性応答の探索

2. 研究成果

(1) 概要

上記の5つの点に関して得られた主な成果を記す。

(i) マクロな結晶対称性とミクロな安定化機構に基づいた有効モデルの構築

・トポロジカル磁性体を効率良く探索するために有効スピンモデルの構築を行った。有効スピンモデルは波数依存した相互作用により特徴づけられる理論モデルであり、従来の実空

間相互作用により特徴づけられるハイゼンベルグスピン模型やハバード模型、近藤格子模型を計算する際にボトルネックとなっていた計算コストを大幅に削減して基底状態相図の作成を可能にした。

- ・上記の有効スピン模型のもとで、対称性から許される異方的な相互作用の発現条件を32の点群に対してまとめあげた。

(ii) 磁気スキルミオン相の新しい安定化機構の理論提案

- ・空間反転対称性をもつ系における正方格子型スキルミオン相の安定化機構を明らかにした。

- ・水平鏡映対称性の破れた結晶構造に着目することで、高いトポロジカル数をもつ磁気スキルミオン結晶相の新しい安定化機構を発見した。

(iii) 新規トポロジカル磁気構造の理論提案

- ・メロン結晶、バブル結晶、4軸磁気渦結晶、反強磁性スキルミオン相といった多様な磁気構造が発現することを明らかにした。特に4軸磁気渦結晶に関しては、位相自由度を介したトポロジカル磁気構造の新しい制御方法を示している。

(iv) 典型物質の解析

- ・スキルミオン相を示す六方晶物質 $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ に対する理論模型を構築することで、容易面型の磁気異方性とボンド型の磁気異方性の競合がスキルミオン相の発現に重要であることを明らかにした。

- ・スキルミオン相を示す立方晶物質 EuPtSi に対する理論模型を構築することで、DM相互作用と双二次交換相互作用の競合がスキルミオン相の発現に重要であることを明らかにした。

- ・スキルミオン相を示す正方晶物質 GdRu_2Si_2 および EuAl_4 に対する理論模型を構築することで、実験で観測された磁気相図を再現することに成功した。

- ・二種類のスキルミオン相を示す正方晶物質 GdRu_2Ge_2 に対する理論模型を構築することで、実験で観測された磁気相図を再現することに成功した。

(v) スピンカイラリティ自由度に基づいた新しい物性応答の探索

- ・スピンカイラリティが起源となる非相反伝導現象の新しい機構を理論的に明らかにした。

- ・レーザー照射下で誘起される磁気相互作用を対称性およびフロッケ理論の観点から分類することで、円偏光レーザー下でスピンカイラリティを伴う磁気構造が誘起されることを明らかにした。

また、上記の結果についてまとめたレビュー論文の執筆を行った [SH and Y. Motome, J. Phys.: Condens. Matter **33**, 443001 (2021)].

(2) 詳細

以下に、5つの点に関する主な成果について記す。

(i) マクロな結晶対称性とマイクロな安定化機構に基づいた有効模型の構築

テーマ「波数空間相互作用をもつ有効スピン模型構築と 32 の結晶点群への適用」

本テーマでは、立方晶系、正方晶系、六方晶系および三方晶系に属する結晶点群に対して、磁性表現論を駆使することで波数依存性をもつ異方的相互作用の分類を行った。具体的には、スピンの入れ替えに対して対称な6つの相互作用[例えば、 $E_q (S^x_q S^y_{-q} + S^y_q S^x_{-q})$]および反対称な3つの相互作用[例えば、 $D_q (S^x_q S^y_{-q} - S^y_q S^x_{-q})$]を対象とした。その結果、結晶がもつ種々の対称操作に応じて、下図に示すような6つの規則が存在することを見出した。また、摂動論から導出した有効模型を解析することで、異方的相互作用の符号や大きさを電子状態や結晶場パラメータによって大きく制御できることを示した。さらに、これらの効果を取り込んだ有効スピン模型を構築し、数値シミュレーションを行うことで、異方的相互作用が磁気スキルミオン相を含む多様な多重 Q 磁気秩序の源になっていることを明らかにした。

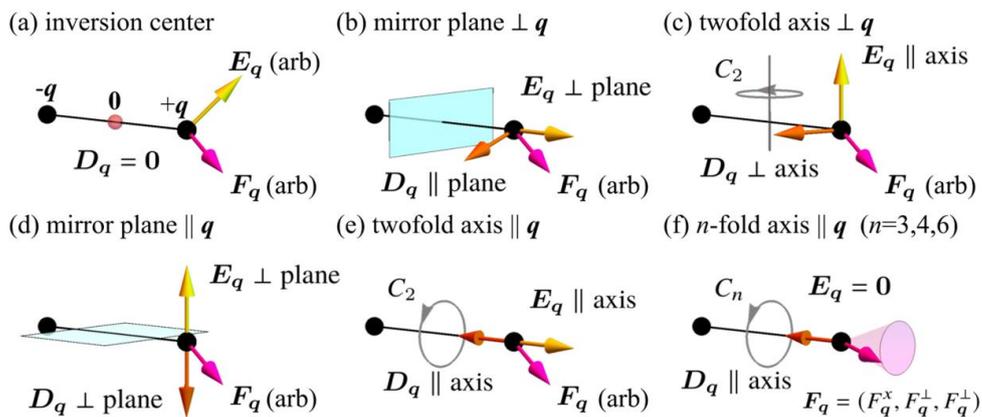


図 1：波数空間における異方的相互作用と対称性の関係。

(ii) 磁気スキルミオン相の新しい安定化機構の理論提案

案

テーマ「正方格子型スキルミオン相の安定化機構の解明」

正方格子上の遍歴磁性体模型に対して、ボンド型の磁気異方性 (J^{BA}) と高次のスピン間相互作用 (K) の効果を取り込んだ有効スピン模型を構築し、基底状態相図を数値シミュレーションにより調べた。その結果、右図の赤い斜線領域で示されているように、正方格子型の磁気スキルミオン結晶相が有限のボンド型の磁気異方性と高次のスピン間相互作用のもとで広く安定に存在することを明らかにした。さらに、得られた磁気相図が磁気スキルミオン結晶相を示す

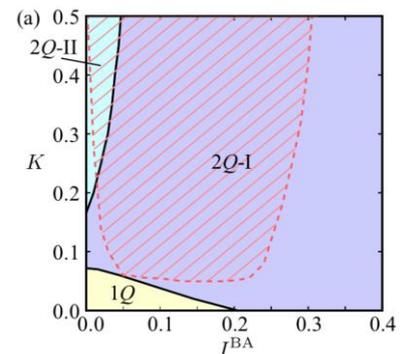


図 2：ゼロ磁場における基底状態相図。赤い斜線領域は磁場中において磁気スキルミオン結晶相が現れる領域を表す。

GdRu₂Si₂の磁気相図をよく再現することを見出した。

テーマ「水平鏡映対称性の破れた結晶構造における高いトポロジカル数をもつ磁気スキルミオン結晶相の新しい安定化機構の発見」

水平鏡映面をもたない空有間反転対称な結晶点群 D_{3d} に属する遍歴磁性体に対する磁気スキルミオン結晶相の発現可能性を理論的に調べた。結晶点群 D_{3d} に属する結晶構造は右図上のように、一層の磁性層と二層の非磁性層からなる構造を示しており、それぞれの層は三角格子を形成している。また、磁性層は局所的な f 電子からなり、非磁性層は遍歴的な s 電子からなる遍歴電子モデルを考える。こうした模型に対して摂動論を用いて有効スピンモデルを構築し、焼きなまし法と変分法による解析を行うことで、水平鏡映面の破れに起因した異方的な RKKY 相互作用が磁場の値に依存してスキルミオン数 1 と 2 の磁気スキルミオン結晶相を誘起することを明らかにした(図 1 下)。さらには、異なる磁気スキルミオン結晶相が磁場によって互いに移り変わることで、それらの相転移にはスキルミオン結晶の位相自由度が重要な役割を果たすことを解明した。

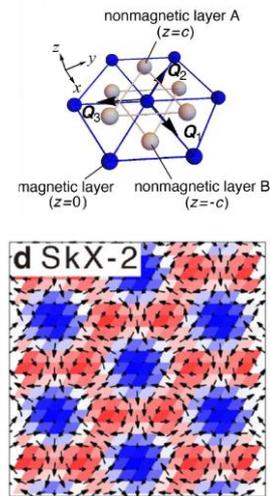


図 3 : (上)結晶点群 D_{3d} に属する結晶構造。(下)スキルミオン数 2 の磁気スキルミオン結晶相。

(iii) 新規トポロジカル磁気構造の理論提案

テーマ「スピンの波の位相変化を用いたスキルミオン結晶の新しい制御法を発見」

スキルミオン結晶における位相自由度の役割を詳細に調べることにより、構成要素であるスピン密度波間の位相のずれが新しいタイプの磁気渦結晶(4 軸磁気渦結晶)をもたらすことを理論的に見出した。具体的には、遍歴電子と局在スピンからなる三角格子上の近藤格子模型に対して、大規模数値シミュレーションを行うことにより、有限温

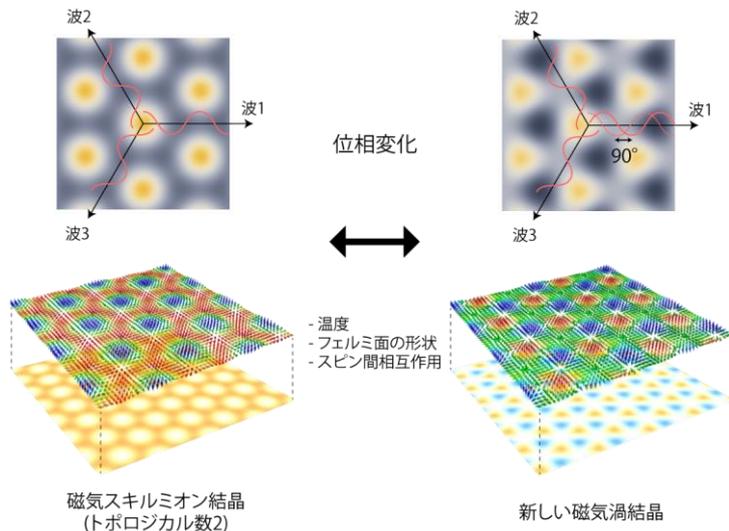


図 4 : 位相変化による磁気スキルミオン結晶と新しい磁気渦結晶。

度領域において新しい磁気渦結晶が現れ、そこから温度を下げると、スキルミオン結晶へと位

相変化を伴うトポロジカル相転移が生じることを明らかにした。また、この位相変化の微視的な機構が、遍歴電子系におけるフェルミ面に起因した多スピン間相互作用に類似の相互作用がエントロピーの効果として現れるためであることを示した。さらに、局在スピン間の相互作用やフェルミ面に起因した多スピン間相互作用を変化することで、基底状態においても同様の位相変化を伴うトポロジカル相転移が生じ得ることを明らかにした。

(iv) 典型物質の解析

テーマ「磁場方向に敏感な短周期磁気スキルミオン結晶相の安定化機構の発見と f 電子化合物 EuPtSi への適用」

本テーマでは、ジャロシンスキー・守谷相互作用と電子の遍歴性に起因した多重スピン相互作用の協奏効果に着目することにより、 EuPtSi で観測されたような磁場方向に敏感な振る舞いを示す短周期スキルミオン結晶相の実現可能性を調べた。具体的には、カイラルな結晶構造に由来する反対称スピン軌道相互作用を有する近藤格子モデルから、局在スピンと遍歴電子スピン間に働く交換相互作用に関する摂動展開を行うことで有効スピンモデルを構築し、焼きなまし法を用いて磁場相図を作成することにより、短周期の磁気スキルミオン結晶相が安定に存在できるパラメータ領域を明らかにした(図5)。また、得られた磁気スキルミオン結晶が磁場方向に対して敏感であるという特異な振る舞いを見出した。

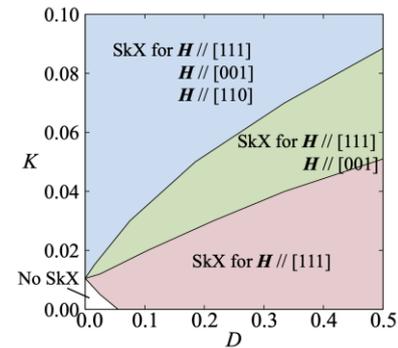


図 5 : ジャロシンスキー・守谷相互作用(D)と多重スピン相互作用(K)を変化させた際に現れるスキルミオン相(SkX)の磁場(H)方向を示す。

テーマ「磁気スキルミオン結晶を示す GdRu_2Si_2 および EuAl_4 で観測された多重磁気スキルミオン相に対する理論モデルの構築」

空間反転対称性を有する f 電子系物質 GdRu_2Si_2 および EuAl_4 において観測された磁気スキルミオン結晶の発現機構を明らかにするために、有効スピンモデルの構築を行った。その結果、両者ともに遍歴磁性体を起点とした有効スピンモデルによってよく再現されることを明らかにした。その際、前者においては、正の双二次相互作用である多重スピン相互作用が重要な役割を果たすこと、後者においては、波数空間におけるフラストレーションに起因したスピン相互作用が重要な役割を果たすことを明らかにした。

(v) スピンカイラリティ自由度に基づいた新しい物性応答の探索

テーマ「スピンカイラリティが誘起する新規非相反伝導」

スピンカイラリティを伴う磁気構造が秩序化すると、創発磁場が発生し、その結果、磁化を必要としないトポロジカルホール効果が現れることが先行研究により理解されていた。本テーマでは、スピンカイラリティが非線形伝導におよぼす影響をマイクロなモデル解析により調べた。その結果、空間反転対称性の破れをもたらすような局所的なスピン

カイラリティを伴う磁気構造が生じた際には、たとえ系全体のスピнкаイラリティがゼロであるような場合においても、非相反伝導が現れるということを示した。こうした非相反伝導の起源は、空間反転対称性を破るスピнкаイラリティのもとで電子のバンド分散が非対称になるためであることを明らかにした。ここで得られた非相反伝導機構は、スピン軌道相互作用に有無に依らない新しい機構であり、今後の物質開発の可能性を開拓するものである。

テーマ「対称性に基づくレーザー誘起磁気異方性の分類とスピнкаイラリティ誘起」

本テーマでは、磁性絶縁体における磁化（電気分極）が円偏光レーザー磁場（電場）と結合した際に生じるレーザー誘起磁気異方性を、点群対称性およびフロッケ理論の観点から詳細に調べた。先行研究では電気分極が逆ジャロシンスキー・守谷(DM)機構で生じるとき、最近接交換相互作用の異方性として反対称相互作用に相当するレーザー誘起DM相互作用が現れることが示されていたが、本研究では、より一般的なスピン依存する電気分極機構を起点とすることで、ボンド間に生じる対称・反対称相互作用に相当するレーザー誘起異方性を全て導出した。ここで、スピン依存する電気分極は結晶構造に依存するため、得られたレーザー誘起異方性は結晶点群に応じて大きく異なるが、網羅的な解析によってそれらの分類を系統的に行った。その結果、円偏光レーザー磁場と電場の一次の結合を通じて、系は構造キラリティをもつように磁気異方性を獲得することを示した。さらに、円偏光レーザー電場に関する二次の結合を通じて、スピンと電気四極子間の異方的相互作用が生じることを見出し、それらがレーザーによる結晶構造対称性の低下に起因することを明らかにした。また、円偏光レーザー下での有効スピン模型に対する数値シミュレーションを行うことで、スピнкаイラリティを伴う磁気構造が誘起されることを明らかにした。

3. 今後の展開

これまでのトポロジカル磁性体の研究での対象は、主に空間反転対称性の破れたスピン軌道相互作用を有する系に限定されており、候補物質の選択肢は極めて狭いものになっていた。本研究では、固体における結晶構造や微視的相互作用の多様性に注目することで、スピン軌道相互作用に頼らないトポロジカル磁性体の候補物質を膨大な数に増やす挑戦的な試みを行ってきた。とりわけ、安定な磁気構造を計算するための汎用的な理論スキームを構築することにより、新規トポロジカル磁性体の探索および実験と理論の密接な比較が可能になってきた。実際に、新機構のスキルミオン相を示す GdRu_2Si_2 、 $\text{Gd}_3\text{Ru}_4\text{Al}_{12}$ 、 EuAl_4 、 GdRu_2Ge_2 などで観測された磁気相図を再現するに留まらず、異なるトポロジカル磁性体（例えば、 SrFeO_3 や $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ における磁気ヘッジホッグ相や CeAuSb_2 における磁気バブル相）に対する解析を行い、それらの安定化に重要な微視的相互作用を明らかにしている。近年の実験技術の向上により、今後も多くの物質において、トポロジカル磁気構造の観測が予期されるが、本課題で構築した理論形式が、それらの発現機構を理解する礎になると期待できる。また、従来は見落とされていた「局所的なスピнкаイラリティ自由度」に基づい

て量子伝導や交差相関現象を明らかにすることで、これまでの「トポロジカル磁性体⇔トポロジカルホール効果」といった既存の知識に囚われない新規の機能物性開拓への道標を示した。こうした理論の進展からトポロジカル磁性体におけるミクロな電子自由度とマクロな対称性のつながりの見通しが良くなり、革新的材料・デバイス探索や機能性物質開発を大きく進展させることにつながるため、将来のスピン트로ニクスデバイスに貢献できると考える。

4. 自己評価

当初申請書に記した3つの達成目標

- (a) トポロジカル磁性材料を効率的に探索するための理論的データベースの確立
- (b) スキルミオンに囚われない新規トポロジカル磁性体の開拓
- (c) スピンカイラリティ制御による新しい物性現象の理論枠組みの構築

については、上記で述べた通り、十分に達成したと思われる。(a)に関しては、様々な結晶構造および磁気相互作用の組合せに対して、系統的な解析を行い、複数の論文出版を行った。(b)に関しては、従来のスキルミオンとは質的に異なるトポロジカル磁性体(メロン結晶、バブル結晶、4軸磁気渦結晶、反強磁性スキルミオン相)の発現機構を示した。(c)に関しては、スピンカイラリティ自由度に由来した新しい非相反伝導現象、およびレーザー照射によるスピンカイラリティ制御方法について明らかにした。

さらに、当初の申請書では予期していなかった以下のような成果を得ることができた。

- (i) 局所的な反転対称性の破れた系に由来して現れる交替的なジャロシンスキー・守谷相互作用によるスキルミオン相の安定化機構を発見した。
- (ii) 122の磁気点群に対する多極子自由度の分類を行うことで、スキルミオンを始めとするトポロジカル磁性体を示す交差相関応答現象を系統的に整理した。
- (iii) 電荷密度波や反対称スピン分裂などの電子状態とトポロジカル磁性体の関係性を明らかにした。
- (iv) 遍歴磁性体の模型の一つであるハバード模型に対して平均場解析を行うことにより、新しい磁気渦相を発見した。
- (v) フェロアキシシャル秩序が示す新規非対角応答について明らかにした。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 86件

1. S. Hayami, T. Okubo, and Y. Motome, "Phase Shift in Skyrmion Crystals", Nat. Commun. **12**, 6927 (2021).

スキルミオン結晶における位相自由度の役割を詳細に調べることにより、構成要素であるスピン密度波間の位相のずれが新しいタイプの磁気渦結晶をもたらすことを理論的に見出した。具体的には、遍歴電子と局在スピンからなる近藤格子模型に対して、大規模数値シミュレーション

ンを行うことにより、有限温度領域において新しい磁気渦結晶が現れ、そこから温度を下げる
と、スキルミオン結晶へと位相変化を伴うトポロジカル相転移が生じることを明らかにした。

2. R. Yambe and S. Hayami, "Effective spin model in momentum space: Toward a systematic understanding of multiple- Q instability by momentum-resolved anisotropic exchange interactions", Phys. Rev. B **106**, 174437 (2022).

32 種類の結晶点群に対して、磁性表現論を駆使することで波数依存性をもつ異方的相互作用の分類を行った。その結果、結晶がもつ種々の対称操作に応じて、6つの規則が存在することを見出した。また、摂動論から導出した有効モデルを解析することで、異方的相互作用の符号や大きさを電子状態や結晶場パラメータによって大きく制御できることを示した。さらに、数値シミュレーションを行うことで、異方的相互作用が磁気スキルミオン相を含む多様な多重 Q 磁気秩序の源になっていることを明らかにした。

3. S. Hayami and M. Yatsushiro, "Nonlinear nonreciprocal transport in antiferromagnets free from spin-orbit coupling" Phys. Rev. B **106**, 014420 (2022).

スピнкаイラリティが非線形伝導におよぼす影響をマイクロなモデル解析により調べた。その結果、局所的なスピнкаイラリティが系の空間反転対称性の破れを伴う際に、非相反伝導が現れるということを示した。こうした非相反伝導の起源は、スピнкаイラリティを伴う磁気構造下で電子のバンド分散が非対称になるためであることを明らかにした。こうした非相反伝導機構は、従来のスピン軌道相互作用を必要とする機構とは異なる新しい機構であり、今後の物質開発の可能性を開拓するものである。

(2)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. [招待講演] S. Hayami, "Chiral magnetic textures in itinerant magnets", APS March Meeting 2023, K54.00001, Las Vegas, Nevada, United States (3/5-10 2023)
2. [招待講演] S. Hayami, "Skyrmion crystals in centrosymmetric magnets", Young Leaders Workshop: Emerging Quantum Spintronics, online (1/19 2022)
3. [招待講演] S. Hayami, "Mechanisms of square and triangular skyrmion crystals", International Conference on Frustration, Topology, and Spin Textures, Kobe International Conference Center, Hyogo, Japan (12/22-23 2021)
4. [招待講演] 速水 賢, "らせん磁性とらせん構造", 日本物理学会 2023 年春季大会 シンポジウム講演, 25pC2-3, オンライン開催 (3/22-25 2023)
5. [レビュー論文] S. Hayami and Y. Motome, "Topological spin crystals by itinerant frustration" J. Phys.: Condens. Matter **33**, 443001 (2021).