

〈一般研究課題〉らせん周期を制御したカイラル磁性体の電気磁気交差相関
助成研究者 名古屋工業大学 中村 翔太



らせん周期を制御したカイラル磁性体の電気磁気交差相関

中村 翔太
(名古屋工業大学)

Magnetic and electric cross correlations in chiral magnets with controlled helical period

Shota Nakamura
(Nagoya Institute of Technology)

Abstract :

Chirality is a phenomenon that exists widely, from astronomy to biology, and it is one of the most intriguing themes when classifying nature through symmetry. Chirality can be observed as a physical phenomenon, and recently, magnetic chirality has been attracting attention in both fundamental and applied research fields. In uniaxial chiral helimagnetic materials, magnetic moments form a helical magnetic structure with a single-handedness. We have successfully observed and controlled the helical period of this magnetic structure through elemental substitution, and demonstrated that changes in the antisymmetric magnetic interaction are the underlying cause. It was found that this antisymmetric interaction can be enhanced by several to several tens of times through elemental substitution. In microfabricated GdNi_3Ga_9 , we detected a signal believed to originate from nonreciprocal conduction associated with chiral helimagnetism. Nonreciprocal conduction is an effect arising from magnetoelectric cross-correlation, and with further research, it is expected that connecting this effect with the strength of the antisymmetric interaction will contribute to the design and development of novel magnetoelectric devices.

1. はじめに

カイラリティ(またはキラリティ、掌性; 左右性)は天文から生命まで広く存在し、自然界を理解する上で重要な概念である。歴史的には、酒石酸結晶の左右旋光性の選択が観測され、ミクロな構

造の左右性がマクロな物性として現れることが確認された。左右性は幅広いスケールかつ多分野にわたって存在する。

生命においてはDNAやアミノ酸などで左右性が大切な役割を担っている。天文においても銀河の回転方向に左右性がある。ここ10年間で、磁性の分野でも磁気構造の左右性が観測され、左右性を有する物理現象やその制御に関心が高まっている。

カイラリティを反映したマクロな磁気構造は最初にd電子系で確認された。立方晶MnSi [1]では図1(a)に示すように、磁気スピンが渦巻き状に配列し、その渦巻きが六方格子を組むスキルミオン格子 (Skyrmion Lattice; SkL) が、 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ [2,3]では強磁性一軸らせん磁気構造で“ひねり” (ソリトン) が周期的に配列したキラルソリトン格子 (Chiral Soliton Lattice; CSL) が観測された。本研究対象のカイラル金属磁性体 YbNi_3Al_9 [4-8]と GdNi_3Ga_9 [9] (空間群R32) は、我々の研究室で発見された世界初の4f電子系キラルらせん磁性体である。この物質に銅置換することでキャリア注入した $\text{Yb}(\text{Ni}_{1-x}\text{Cu}_x)_3\text{Al}_9$ では、図1(b)のようなCSLや、磁気八極子らせんの発現が確認された [8]。また最近、立方晶EuPtSi [10-13] (空間群P2₁3) においてSkLが確認された。 YbNi_3Al_9 やEuPtSiのらせん磁気構造はd電子系のMnSiや $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ の数十nmに比べて1/10の短周期らせんでスピンの向きが離散的であるが、その挙動は不思議なことに、d電子系のSkLやCSLを記述する、局在スピンを連続媒体として扱うモデルで説明できる。 YbNi_3Al_9 のCSLの場合は、隣り合うスピン同士の角度が90度以上ひねられており、新しい概念である伝導電子を媒介したDzyaloshinskii-Moriya (DM)の反対称磁気相互作用[14, 15]がはたらいていると考えられる。しかし、伝導電子を介した反対称スピン相互作用を記述する理論モデルは未だなく、この起源やこれにより引き起こされる物理現象の解釈は難しい。

本研究対象のカイラル金属磁性体 YbNi_3Al_9 と GdNi_3Ga_9 では、元素置換により強磁性と反強磁性の一軸磁気らせんの周期を制御できることが放射光実験によって最近明らかになってきた[8, 9]。このことは様々な反対称磁気相互作用の大きさをもつ系を創製できることを意味する。図2におけるらせん周期の調整の模式図を示した。このように反対称磁気相互作用を制御することで、カイラル磁性体の磁気的対称性の破れ“度合い”を特徴づける量である磁気らせん周期とカイラリティによって引き起こされる物理現象の関係性を調べる。これまでにカイラル磁性体の報告例は限られており、十分な研究が無い。元素置換により様々ならせん周期をもつ本系は、磁気カイラリティの比較研究を推進する。

金属磁性体がカイラリティをもつ場合、空間反転対称性は破るために電気と磁気の交差相関の効果 (ME効果) が現れる[16]。本研究目的は、微細加工試料を用いて高感度に電気磁気交差相関の感受率を測定し、カイラル磁性体の磁気的対称性の破れ度合いであるらせん周期との関係性を解明

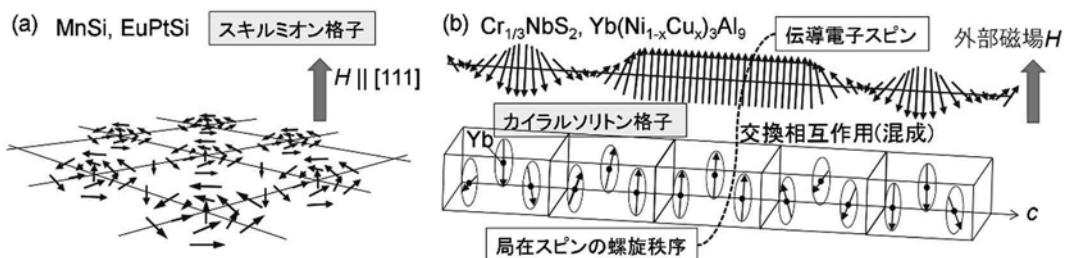


図1 (a)スキルミオン格子 (b)カイラルソリトン格子

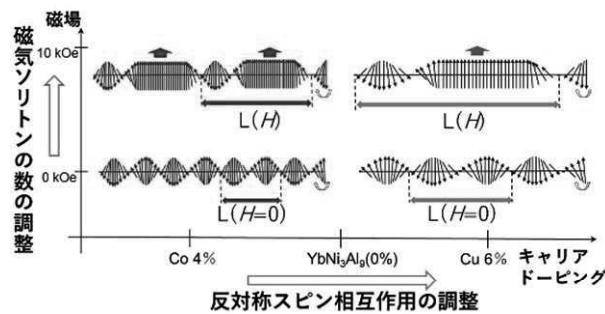


図2 YbNi₃Al₉におけるCSLのらせん周期Lの調整



図3 名工大のFIB-SEM

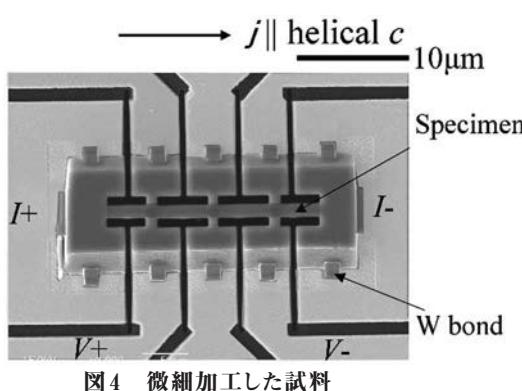


図4 微細加工した試料

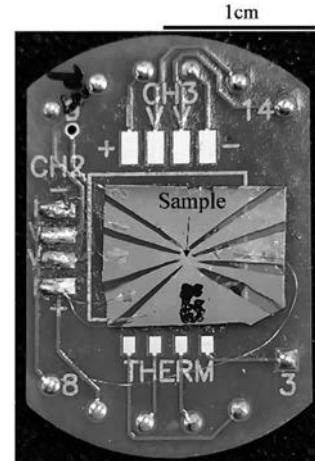


図5 試料を設置した基板のようす

することである。ME効果は省電力メモリなどのデバイスへの応用が期待される。ME効果をはじめとする交差相関はマルチフェロイクスで良く知られ、磁性体と誘電体など物質やスケールを問わず幅広い分野の融合を実現する。

2. 実験方法

今回測定に用いたカイラル金属磁性体YbNi₃Al₉とGdNi₃Ga₉とその元素置換試料の単結晶はそれぞれアルミニウムとガリウムを溶媒として用いたフラックス法によって得られた。得られた単結晶試料を高エネルギー加速器研究機構などの放射光実験施設に持ち込み、各々のカイラルらせん磁気構造を決定した。具体的には、週遮光を円偏光させた蛍光X線回折実験を行い、磁気らせんの周期とその左右性を決定した。

磁気構造を決定した試料について、集束イオンビーム(FIB)と走査電子顕微鏡(SEM)を組み合わせたFIB-SEM(日本電計JIB-4700F)を用いて試料の微細加工を行った。FIB-SEMは図に写真を示す本学の共同利用設備を使用した。この装置を用いることで、ナノメートルスケールでの見る、削る、着ける加工が可能になる。本研究では図に示すような微細加工試料を作製した。サファイア基板の表面に金膜をスパッタし、基板中央に試料を設置した。図4は微細加工した試料のようすである。試料の大きさは30 μm × 10 μm × 1 μmで、試料中央の橋の部分(Specimen)の電圧信号を計測する。橋の両端から電流を流し、橋の分岐部分の電位差を測定した。電流が流れる橋の部分の断面積は1 μm²程度であり、電流密度はバルク試料の最大1万倍に及ぶ。橋の下の金膜はFIBにより取り除かれており、試料外側は端子の役割をしている。図5にサファイア基板の全体像を示した。端子は

サファイア基板上まで延長され、数mm程度の幅をもつため容易に電気配線を取り付けることができる。

3. 実験結果

3.1 カイラル磁性体GdNi₃Ga₉の結晶構造と基礎物性

図にカイラル金属磁性体YbNi₃Al₉とGdNi₃Ga₉の結晶構造を示す。結晶構造は三方晶ErNi₃Al₉型である。GdNi₃Ga₉の各サイトの原子位置などの結晶構造パラメータは文献17と18を参照されたい。格子定数は $a = 0.7264$ nm、 $c = 2.7497$ nmである。図6 (a)はGdNi₃Ga₉の複合六方格子での単位胞である。単位胞にはGdNi₃Ga₉が6分子含まれる。この物質の結晶構造はNiとGaの三角格子層とGdとGa(5)からなるGd₂Ga₃ハニカム層が c 軸方向に積層していると見ることができる。図6(b)はGd₂Ga₃ハニカム層を示したもので、Gdのハニカム構造の中にGaの小さな正三角形が配置されている。Gdは主軸(3回軸)上にあり、対称軸上にないNiやGaが c 軸方向にらせんを描いている。図6(c)にそのようすを示した。

GdNi₃Ga₉は磁気秩序温度 $T_N = 19.5$ Kで反強磁性カイラルらせん磁気秩序を示す。図7(a)に磁化率の温度依存性を示す。らせん軸である c 軸に垂直な a 軸方向に磁場を加えると、低磁場0.05 kOeと1 kOeでは T_N 直下で尖頭がみられる。これはカイラルらせん磁気構造を持ち、磁場中でソリトン格子を形成する場合に特徴的な振る舞いである[19]。らせん軸である c 軸方向に磁場を加えた場合には尖頭は観測されない。図7(b)に a 軸方向に磁場を印加した場合の磁化曲線を示す。ゼロ磁場から3 kOeまではらせん磁気 α 相、45 kOeまでは反強磁性 β 相、さらに高磁場では反強磁性 γ 相が発現する。強制強磁性状態になるのは200 kOeと、Gd³⁺自由イオンのモーメントの大きさ $7 \mu_B$ から見積もられる。磁化測定によって作成した温度-磁場相図を図7(d)に示した。図7(c)は図7(b)に示した磁化曲線の低磁場領域である。らせん磁気相では磁化曲線に特徴的な下凸の振る舞いが現れる[20]。

3.2 放射光共鳴X線散乱測定による磁気構造の決定

放射光共鳴X線散乱測定によって決定した磁気構造を図8に示す[9]。Gd₂Ga₃ハニカム層内では最近接のGd-1とGd-2が反平行に整列している。 α 相では c 軸方向をらせん軸として、隣接した層間ではGd-1あるいはGd-2同士が c 軸に沿って反時計回りに178.2°回転した反強磁性カイラルらせん構

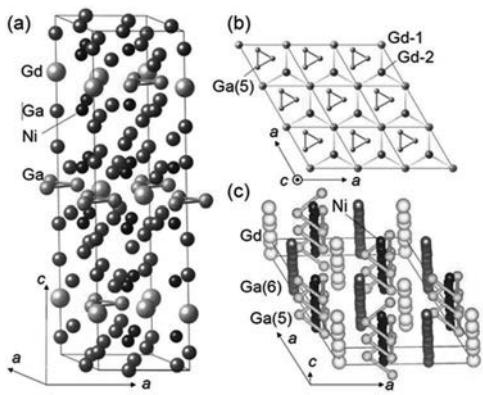


図6 GdNi₃Ga₉の結晶構造 [9]

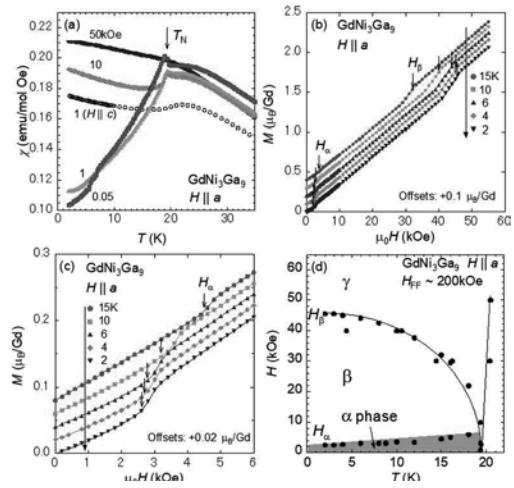


図7 GdNi₃Ga₉の磁化と磁気相図 [9]

表1 元素置換したGdNi₃Ga₉の磁気秩序温度 T_M 、臨界磁場 H_c 、サインゴルドンモデルを用いて計算した対称、反対称磁気相互作用 J^{\parallel} 、 D とねじれ角、磁気構造における回転角と β 相からのねじれ角

Co (%)	T_M [K]	H_c [kOe]	J^{\parallel}	D	D/J^{\parallel}	Cal. twist	Twists from β phase (120 or 180 deg.)	Rotation angle in magnetic structure
0	19.5	3	0.71	0.02	0.029	1.6	1.8	178.2
6	13.5	10	0.33	0.07	0.20	11.5	9.6	129.6
7	15	34	0.31	0.23	0.73	36.1	36	144

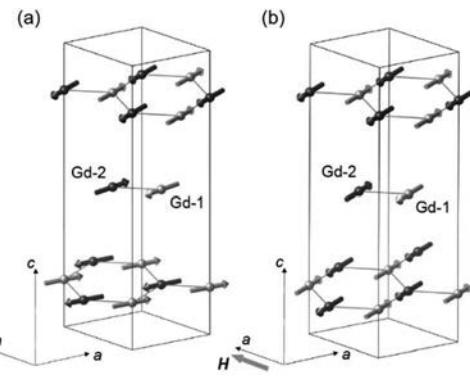


図8 GdNi₃Ga₉の(a) α 相と(b) β 相の磁気構造 [9]

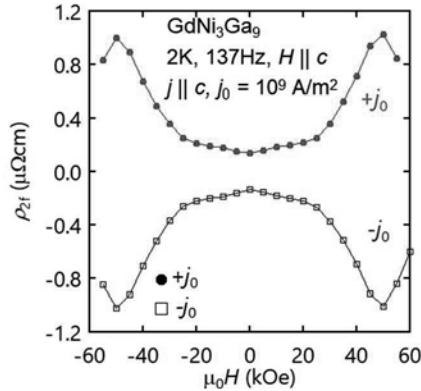


図9 GdNi₃Ga₉の非相反伝導

造が発現する。178.2°は180°から1.8°だけずれており、全く同じ磁気モーメントの向きの層が再び現れるのはc軸方向に66.7単位胞すなわち180 nmだけ進んだときである。単位胞にはGd₂Ga₃層が3層あるので、これは200層分に相当する。 β 相では α 相の磁気らせん構造が磁場で壊される。層内のGd-1とGd-2は α 相と同様に反平行に配列し、隣接した層間でGdモーメントが180°回転している。反強磁性 γ 相では隣接したモーメント間の角度がゼロになる。

表1にNiをCoに元素置換したGdNi₃Ga₉の磁気秩序温度 T_M 、臨界磁場 H_c と対称磁気相互作用 J^{\parallel} 、反対称磁気相互作用 D 、磁気構造の回転角(Rotation angle)を示した。表の太字で示した T_M と H_c 、磁気構造の回転角は観測値である。 J^{\parallel} と D は連続体近似をした1次元サインゴルドンモデル[21-24]をもとに T_M と H_c から計算した。 J^{\parallel} と D がわかれば反対称磁気相互作用によるねじれ角は $\tan^{-1}(D/J^{\parallel})$ から見積もることができる。計算によって見積もったねじれ角をCal. twistに示した。この値は磁場誘起の反強磁性 β 相の磁気構造の回転角からのずれに相当する観測値Twists from β phaseとよく一致する。この結果は今回計算で求めた反対称磁気相互作用の大きさ D の見積もりが妥当であることを示唆しており、Coを元素置換することで D が増強することが明らかとなった。このように実験と理論の両面から D の大きさを見積もった例は世界初であり、今後の研究の進展が望まれる。

3.3 微細加工試料を用いた電気磁気交差相関の観測

集束イオンビームを用いて試料を微細加工し、高い電流密度を実現することでカイラルらせん磁性体における電気磁気交差相関現象すなわち非相反伝導を捉えた。理論によると、らせん軸方向に對して平行に電流を掛けた場合のみに強い非相反伝導が現れることが予想される。このような研究設備を整えるためにノイズ対策機器を新たに導入した。

非相反伝導は交流磁気抵抗測定において2次高調波として現れることが知られている。図9に今回観測された電気抵抗の2次高調波を示す。磁気秩序温度以上ではこの信号は消失していることか

ら、磁気相由来の信号である。測定は磁場の正負と電流の直流成分の正負を反転させた条件でも行った。印加電流は直流電流 j_0 と交流電流 $j_{\text{AC}} \sin \omega t$ を足しあわせた信号を任意波形発生器によって入力した。図9をみると反強磁性 β 相と γ 相の相境界で信号のピークが観測され、印加する直流電流の正負によって信号の符号が反転している。GdNi₃Ga₉の母体では α 相でのみカイラルらせん磁気構造が観測されたが、元素置換試料では β 相まで反強磁性とカイラルらせん磁性が共存するようすが観測されている。試料を微細化することで母体でも2相共存し β 相までカイラルらせん磁性が発現するようになり、反強磁性 β 相と γ 相の相境界で非相反伝導のピークが観測されたと考えられる。非相反伝導の磁場中の振る舞いは電気磁気交差相関の他に伝導電子系の周期構造を反映したフェルミ面の形状に大きく左右される。今後は角度分解光電子分光実験でのフェルミ面の観測をし、理論モデルと比較検討をすることで定量解析を進めていきたい。定量解析は測定による反対称磁気相互作用の大きさの見積もりにつながり、将来的に電気磁気デバイスの設計への貢献が期待される。

4. まとめ

反強磁性カイラル磁性体GdNi₃Ga₉の元素置換試料について高エネルギー加速器研究機構において放射光共鳴X線回折実験を行った。この実験からコバルトの元素置換量に応じてらせん周期が変化することが確認された。これまでにこの物質と同じ結晶構造をもつ強磁性カイラル磁性体YbNi₃Al₉において、元素置換によって磁気らせん周期や臨界磁場、秩序温度を制御できることがわかっている。この系では様々ならせん周期をもつカイラルらせん磁性体を反強磁性、強磁性にまたがって系統的に調べることができることがわかった。

カイラルらせん磁気構造の“ひねり”の起源は反対称磁気相互作用である。この大きさを見積もることができればらせん磁気構造のねじれ度合、すなわち対称性の破れ度合がわかり、非相反伝導の定量的な分析につながる可能性がある。絶縁的なカイラル磁性体に用いられる連続体理論モデルであるサインゴルドンモデルを用いて反対称磁気相互作用の大きさを見積もると、YbNi₃Al₉とGdNi₃Ga₉のどちらの場合も元素置換によって数倍から数十倍まで増強されることがわかった。また、微細加工をしたGdNi₃Ga₉においてカイラルらせん磁性由来の非相反伝導と思われる信号を検出した。今後、この見積もりと伝導電子を媒介としたカイラルらせん磁気相における非相反伝導を比べて研究と考察を進めたい。

参考文献

- [1] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Böni, *Science* **323**, 915 (2009).
- [2] Y. Togawa, T. Koyama, K. Takayanagi, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. Ovchinnikov, and J. Kishine, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 107202 (2012).
- [3] Y. Togawa, Y. Kousaka, K. Inoue, and J. Kishine, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 112001 (2016).
- [4] S. Ohara, T. Yamashita, Y. Mori, and I. Sakamoto, *J. Phys.: Conf. Ser.* **273**, 012048 (2011).
- [5] T. Yamashita, R. Miyazaki, Y. Aoki, and S. Ohara: *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 034705 (2012).
- [6] R. Miyazaki, Y. Aoki, R. Higashinaka, H. Sato, T. Yamashita, and S. Ohara: *Phys. Rev. B* **86**,

155106 (2012).

- [7] S. Ohara, S. Fukuta, K. Ohta, H. Kono, T. Yamashita, Y. Matsumoto, and J. Yamaura: JPS Conf. Proc. **3**, 017016 (2014).
- [8] T. Matsumura, Y. Kita, K. Kubo, Y. Yoshikawa, S. Michimura, T. Inami, Y. Kousaka, K. Inoue, and S. Ohara: J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 124702 (2017).
- [9] S. Nakamura, T. Matsumura, K. Ohashi, H. Suzuki, M. Tsukagoshi, K. kurauchi, H. Nakao, and S. Ohara: Phys. Rev. B **108**, 104422 (2023).
- [10] M. Kakihana, D. Aoki, A. Nakamura, F. Honda, M. Nakashima, Y. Amako, S. Nakamura, T. Sakakibara, M. Hedo, T. Nakama and Y. Ōnuki: J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 023701 (2018).
- [11] M. Kakihana, D. Aoki, A. Nakamura, F. Honda, M. Nakashima, Y. Amako, T. Takeuchi, H. Harima, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Ōnuki, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 094705 (2019).
- [12] C. Tabata, T. Matsumura, H. Nakao, S. Michimura, M. Kakihana, T. Inami, K. Kaneko, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Ōnuki, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 093704 (2019).
- [13] T. Sakakibara, S. Nakamura, S. Kittaka, M. Kakihana, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Ōnuki, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 093701 (2019).
- [14] I.E. Dzyaloshinskii, J. Phys. Chem. Solid. **4**, 241–255 (1958).
- [15] T. Moriya, Phys. Rev. **120** (1), 91–98 (1960).
- [16] R. Aoki, Y. Kousaka, and Y. Togawa, Phys. Rev. Lett. **122**, 057206 (2019).
- [17] S. Nakamura, J. Inukai, T. Asaka, J. Yamaura, and S. Ohara; J. Phys. Soc. Jpn. **89**, 104005 (2020).
- [18] 大原繁男, 中村翔太, 固体物理 **55** (11) 647 (2020).
- [19] J. Kishine K. Inoue, Y. Yoshida: Progress of Theoretical Physics Supplement **159**, 82 (2005).
- [20] Y. Kousaka, S. Yano, J. Kishine, Y. Yoshida, K. Inoue, K. Kikuchi, and J. Akimitsu, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 123709 (2007).
- [21] J. Kishine et al. Solid State Physics **66**, 1-130 (2015).
- [22] A. Zheludev et al., Phys. Rev. Lett. **78**, 4857 (1997).
- [23] A. Zheludev et al., Phys. Rev. B **57**, 2968 (1998).
- [24] M. Shinozaki, S. Hoshino, Y. Masaki, J. Kishine, and Y. Kato, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 074710 (2016).