

# 博士論文（要約）

Exploration of quantum transport phenomena  
via engineering emergent magnetic fields  
in topological magnets

（トポロジカル磁性体における  
創発磁場の制御による量子輸送現象の開拓）

藤代 有絵子

## 第1章 背景と目的

位相幾何学「トポロジー」の概念は、固体中の量子相の分類とその物性の理解において、新たな枠組みをもたらしてきた。特に、トポロジカルに非自明な磁気構造・電子構造は、固体中の伝導電子と結合することで、ゲージ場である「創発磁場」を生成し、特異な電磁気応答を生み出すことが明らかにされている。この創発磁場を通して、固体中の電子の振る舞いを自在に制御することは、非散逸エレクトロニクスの実現にむけた重要な課題である。従来の研究では、個々のトポロジカル量子相の物性が明らかにされてきたが、特に「トポロジー」が変化する相境界は、磁気構造や電子構造の劇的な変化を伴うため、未開拓の量子相や非自明な電磁気応答の発現が期待される。

本博士論文では、そのような「トポロジカル相転移」近傍における、新たな量子相・電磁気応答の発見を目指し、研究を行った。実空間においては、高密度な創発磁場をもつ3次元トポロジカル磁気構造「ヘッジホッグ格子」に着目し、化学圧力制御による2次元トポロジカル磁気構造「スキルミオン格子」との磁気相転移や、強磁場印加による強磁性状態へのトポロジカル磁気相転移に着目した。これにより、大きな未解決課題であったヘッジホッグ格子の形成起源や消失過程に伴う基礎学理の構築を行った。また、波数空間においては、次元性の制御による、ワイル半金属相から量子異常ホール絶縁体への相転移に着目し、高温量子異常ホール効果にむけた新たな舞台の構築を行った。以下では、具体的に得られた研究成果について記述する。

## 第3章 カイラル磁性体 $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ におけるスキルミオン格子ーヘッジホッグ格子間のトポロジカル磁気相転移

B20型化合物は、トポロジカル磁気構造の代表的な舞台として注目を浴びており、2009年に $\text{MnSi}$ において初めてスキルミオン格子（磁気周期 $\lambda = 18 \text{ nm}$ ）が報告された。一方、同じ結晶構造をもつ $\text{MnGe}$ においては、ヘッジホッグ格子とよばれる3次元トポロジカル磁気構造（ $\lambda = 3 \text{ nm}$ ）が実現しており、40Tにも及ぶ巨大な創発磁場が特異な輸送現象をもたらすことが明らかにされている。スキルミオン格子とヘッジホッグ格子のような、創発磁場の大きさや空間分布が全く異なるトポロジカル磁気構造間の相転移現象を調べた例は、これまで報告されていなかった。

本研究では、新規固溶系 $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ を高圧合成法によって作製し、組成 $x$ を変化させながら、磁気構造や創発輸送現象を系統的に調査した。その結果、中間組成（ $x = 0.4\text{-}0.6$ ）において、4本の波数ベクトルをもつ新しいトポロジカル磁気構造（tetrahedral-4q hedgehog lattice）が形成されていることを、中性子回折実験とトポロジカルホール効果の測定の両面から発見した。また $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ で観測された磁気特性の変化は、従来のスキルミオン格子の形成起源であるDzyaloshinskii-Moriya相互作用では説明することができず、伝導電子を媒介とするようなスピン間相互作用が、短周期のヘッジホッグ格

子の形成に重要である可能性を提唱した。

また、スキルミオン格子にはないヘッジホッグ格子特有の現象として、高温領域でのトポロジカルホール効果の符号反転も挙げられる。本研究では、 $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ において中性子スピンエコー実験を行い、これがスピン揺らぎの有無と関係していることを示した。本実験結果は、ヘッジホッグ格子のトポロジカルホール効果の符号変化が、スカラーสปิน・カイラリティのゆらぎによるスキュー散乱が起源である、という理論予測に実験的な証拠を与えるものである。

## 第4章 MnGeにおける強磁性転移に伴う磁気揺らぎと巨大創発輸送現象

MnGeのヘッジホッグ格子では、磁場印加により創発磁気モノポールと反モノポールの対消滅が発生し、そのまわりで磁気揺らぎの効果が顕著になることが期待されている。実験的にも強磁性転移近傍では、磁気抵抗や弾性定数の異常が報告されている。同様の現象は、スキルミオン格子では観測されていないため、高密度かつ特異点的なスピン構造を含有するヘッジホッグ格子特有の現象であると考えられる。本研究では、強磁性転移に伴う磁気揺らぎの効果に着目し、電子散乱に起因する新規輸送現象の探索を行った。

### (1) MnGeバルク多結晶における巨大磁気ゼーベック効果の発見

一般にキャリアのエントロピーが小さくなる低温・高磁場ではゼーベック効果は小さくなることが知られているが、MnGeにおいては、磁場印加によってゼーベック係数がむしろ増大し、通常の金属化合物より1桁大きな値を示すことを発見した。光電子分光やバンド構造計算の結果からは、この巨大なゼーベック効果が電子構造からの寄与では説明できないことが明らかになった。

そのため、電子が特殊な散乱を受け、ゼーベック効果の増大が起きている可能性が高い。散乱機構に敏感な磁気抵抗に着目すると、創発磁場の揺らぎに起因する異常が強磁性転移磁場においても残っていたため、磁気抵抗・熱電効果の強磁場測定を初めて行った。その結果、低温・強磁場極限において磁気抵抗の異常分が消失し、それに伴ってゼーベック係数も減少することを観測した。従って、MnGeにおける磁場誘起の巨大磁気ゼーベック効果の起源が、強磁性転移に伴う創発磁場の揺らぎに起因している可能性を提唱した。これは磁気構造のトポロジーを利用した巨大熱電効果という視点から、高効率な熱電変換現象の探索において新たな指針を与える結果である。

### (2) MnGe単結晶薄膜におけるスカラーสปิน・カイラリティによる巨大スキュー散乱

MnGe薄膜では膜厚による磁気異方性の制御が可能であり、膜厚が小さいほど面内磁気異方性が増大することが知られている。この薄膜において強磁場測定を行ったところ、強磁性転移近傍においてホール伝導度が $\sigma_{xy} \sim 40,000 \text{ } \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ 、ホール角が18 %にも及

ぶような巨大な異常ホール効果を観測した。ホール伝導度と縦伝導度は、スキュー散乱に特有の線形のスケーリング則 ( $\sigma_{xy} \propto \sigma_{xx}$ ) を示す一方、**18%**という巨大なホール角は従来のスキュー散乱機構（単一スピン不純物や非磁性不純物によるもの）では説明ができず、何らかの新しい機構によるスキュー散乱である可能性が示唆された。

近年理論的に提案されたスカラースピン・カイラリティ (**SSC**) によるスキュー散乱はホール角が大きくなる可能性が指摘されていたため、今回の観測結果がその機構により説明できるかどうかを調査した。まずホール伝導度の温度依存性は、一定磁場下では有限温度で最大値を取ることを見出した。これは熱的に励起された**SSC**がスキュー散乱を引き起こしているという描像と一致する結果であり、高温極限では逆符号の**SSC**励起によりホール効果が打ち消し合っていると考えられる。また、膜厚を小さくするほど、低温・強磁場領域においてもホール効果が増大する振る舞いを観測した。これは面内磁気異方性の増大により、強磁性状態から**SSC**励起が生成されやすくなった（面内にスピンの傾きやすくなった）ためと考えられ、**SSC**励起によるスキュー散乱が、観測された巨大異常ホール効果の起源である可能性を提唱した。

今回の発見は、数十年に及ぶ異常ホール効果の研究の歴史において、新たな機構を提案するものであり、今後様々な物質系（特に**SSC**励起が期待される、フラストレート磁性体や対称性の破れた薄膜界面等）において、同様の巨大異常ホール効果の発見が期待される。

## 第5章 カゴメ格子磁性体における高温創発輸送現象の探索

室温における非散逸伝導の実現は物性物理学の究極の目標のひとつである。特に量子異常ホール効果 (**QAHE**) の高温化は重要な課題であり、様々なアプローチがある中でも、高い磁気転移温度をもった磁性トポロジカル半金属の2次元化は、有力な手段であると考えられている。カゴメ格子をもつワイル半金属**Co<sub>3</sub>Sn<sub>2</sub>S<sub>2</sub>**はその代表物質として現在大きな注目を浴びており、厚さ**10 nm**程度で量子閉じ込め効果による**QAHE**が起きることが期待されている。

本研究では、化学輸送法を用いて世界で初めて**Co<sub>3</sub>Sn<sub>2</sub>S<sub>2</sub>**薄片を作製することに成功した。その結果、厚さ**250 nm**の試料において、バルク単結晶では見られなかった様々な輸送特性を観測した。ひとつは高移動度電子の発現であり、既存のトポロジカル磁性体の中で最大値を記録した (**2,600 cm<sup>2</sup>/Vs**)。また異常ホール効果も増大を示し ( $\sigma_{xy} \sim 1,400 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ )、ホール角は最大で**32 %**であった。これらは薄片の品質が高いことを示すだけでなく、**30 meV**程度のホールドーピングによって理解できることを第一原理計算によって示した。一方で、観測されたホール伝導度は計算値よりも大きく、既に表面状態からの寄与やバンド構造の非自明な変調が起きている可能性も考えられる。今

後さらに薄い薄片を作製し、高温QAHEの実現を目指す。

また、室温以上の磁気転移温度をもつカゴメ格子磁性体 $RMn_6Sn_6$  ( $R =$  希土類)の探索も行っている。これらの化合物群はギャップのあいたディラック点をもっており、フェルミ準位や希土類の制御によって、ベリー位相由来の巨大物性が高温で観測できることが期待される。将来的には高温QAHEの舞台として2次元化することを見据えつつ、バルク単結晶における基礎物性の解明を行った。

## 第6章 総括

本博士論文では、実空間・波数空間における「トポロジー制御」を通して、新規トポロジカル磁気相・創発輸送現象の発見に成功した。まず $MnSi_{1-x}Ge_x$ におけるスキルミオン格子—ヘッジホッグ格子のトポロジカル相転移においては、新しいトポロジカル磁気構造の発見に加え、ヘッジホッグ格子の形成機構についての知見を与えることに成功した。また、 $MnGe$ のヘッジホッグ格子が消失する強磁性転移に着目し、強磁場測定を初めて行うことで、巨大な磁気ゼーベック効果・異常ホール効果の発見・起源解明に成功した。特に高密度なヘッジホッグ格子が消失する強磁性転移まわりでは、強い磁気揺らぎが残存し、特異な電子散乱が起きていることを実証した。最後に、磁性ワイル半金属 $Co_3Sn_2S_2$ の高品質な薄片作製方法を確立し、高温量子異常ホール効果の実現に向けた舞台を確立した。

本博士論文での研究成果は、トポロジカル磁気構造・電子構造の基礎物性解明の点から顕著な結果であるだけでなく、物質の様々な自由度が顕在化する「相転移」現象に着目し、個々のトポロジカル量子相の枠組みを超えた新しい現象の発見に至ったという観点からも、基礎学理の構築に大きく貢献したといえる。