

## 論文の内容の要旨

論文題目 絶縁体における熱ホール効果

氏名 赤澤 仁寿

### 1. 研究背景と目的

トポロジは、連続変形によって変化しない特徴や量によって対象を分類する数学的概念である。近年、このトポロジの概念が物性物理学において重要な要素であることが明らかになっている。その例の1つが量子ホール効果である。量子ホール効果は、ホール伝導率が $e^2/h$ を単位として量子化される現象であり、エネルギーバンドのトポロジに起因して生じる有限の幾何学的な位相(Berry位相)を獲得することで生じる[1]。このようなトポロジカル現象は、電子のみならず、電荷中性励起でも熱ホール効果として現れる可能性が提案されている[2]。熱ホール効果は、熱流が磁場と熱流に垂直な方向に曲がる現象であり、電荷中性励起に対しても適用できる。実際に、実験的にマグノン熱ホール効果が観測され[3]、熱ホール効果測定が、電荷中性励起によるトポロジカル現象を捉える有効な手法であると期待されている。その後、電荷中性励起の熱ホール効果は様々な物質で報告されているが、その起源を含め未解明な点も多い。

本研究では、絶縁体の熱輸送特性を調べることで、電荷中性励起が発現するトポロジカル物性の開拓とその起源の理解を深めることが目的である。対象として、カゴメ格子反強磁性体 Cd-kapellasite(Cd-K)、磁気スキルミオンホスト磁性絶縁体  $GaV_4Se_8$ 、キラル磁性絶縁体  $CsCuCl_3$  に着目し、熱輸送特性を調査した。

### 2. 実験手法

本研究では、試料に3つの温度計と1つのヒーターを取り付けることで縦方向温度差 $dT_x$ と横方向温度差 $dT_y$ を同時に測定し、縦熱伝導率と熱ホール伝導率を導出した。また、熱輸送測定は2-80 Kの温度領域を温度可変インサート(VTI)で、0.1-4 Kの温度領域を希釈冷凍機で測定した。なお、印加磁場はVTIが $\pm 15$  T、DRが $\pm 14$  Tである。

Cd-Kについては、物性研究所榊原研究室との共同研究により0.1~2 K、0~14 Tの範囲で比熱測定を行った。 $GaV_4Se_8$ の磁化測定は有馬研究室との共同研究により、MPMSを用いて[111]方向の印加磁場下で行った。

### 3. Cd-kapellasite(Cd-K)の熱ホール効果

カゴメ格子反強磁性体では、幾何学的フラストレーションの存在によって、短距離相関を持ちながらも磁気秩序が抑制されるスピン液体状態が実現し、特異な素励起が存在すると期待されている。また、スピン構造に起因して生じる有限のBerry位相によって、トポロジカルな輸送現象を発現すると期待される。これまでに、volborthite [4]とCa-Kapellasite(Ca-K) [5]のスピン液

体状態における有限の熱ホール効果が観測されている。これらの熱ホール効果は、交換相互作用  $J$  と Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用  $D$  をパラメーターとしてフィットすることで、Schwinger-boson 平均場理論(SBMFT)で予測された計算結果を再現する。また、フィットに用いた  $J$  と  $D$  の値が帯磁率や  $g$ -因子から見積もられた値とよく一致することから、熱ホール効果を発現する素励起が Schwinger-boson でよく記述できると指摘されている。しかし、これら2つの物質の  $J$  と  $D$  の値が同程度で、この一致が偶然か本質的なものであるのかが不明であった。故に、異なる  $J$  を持つ Cd-K の熱ホール効果測定によってカゴメ格子反強磁性体における素励起の更なる理解を目指した。

Cd-K の熱ホール伝導率測定を行った結果、測定したすべての試料で熱ホール伝導率  $\kappa_{xy}$  が観測され、同じ温度依存性を示すことを明らかになった。一方で、熱ホール伝導率の大きさは、試料ごとに異なる値を示した。15 T における  $\kappa_{xy}$  を volborthite や Ca-K の結果と比較すると、非常に似た温度依存性を示す一方で、ピーク温度は低温へシフトしていることが分かった。Cd-K の  $\kappa_{xy}$  の起源を探るために、Ca-K や volborthite と同様に、SBMFT の理論計算に対してフィッティングを行った。Cd-K の実験値は SBMFT で計算された曲線によく一致するものの、用いた  $J$  や  $D$  の値は、磁化率や  $g$ -因子より予測される値と大きく異なった。これは、Ca-K や volborthite とは対照的である。この結果は、Cd-K の  $\kappa_{xy}$  が Ca-K で観測されたスピン由来の熱ホール効果  $\kappa_{xy}^{sp}$  とは異なる起源である可能性を示している。そこで、Cd-K の熱ホール効果のフォノン起源  $\kappa_{xy}^{ph}$  の可能性を検討した。 $\kappa_{xy}^{ph}$  は、縦熱伝導率  $\kappa_{xx}$  と相関があり、同じ温度でピークを示すことが分かっている [7]。この  $\kappa_{xx}$  と  $\kappa_{xy}$  の関係が Cd-K でも確認された一方、Ca-K では確認されなかった。この結果は、Cd-K の熱ホール効果にフォノン寄与が存在していることを示唆している。

また、 $\kappa_{xy}$  の磁場依存性を測定すると、20 K より高温では、 $\kappa_{xy}^{ph}$  に起因する線形の磁場依存性を示しているが、低温では、線形の磁場依存性に加えて、非線形の磁場依存性が現れ、追加の寄与が存在することが明らかになった。非線形な磁場依存性を示す温度領域では、磁場印加による  $\kappa_{xx}$  の強い抑制が観測されており、 $\kappa_{xx}$  にスピンの寄与が存在すると示唆される。故に、熱ホール伝導率の磁場依存性によって確認された非線形成分はスピンの寄与  $\kappa_{xy}^{sp}$  を表している可能性がある。そこで、 $\kappa_{xy}^{ph}$  が磁場に対して線形に増加すると仮定し、その線形性からのずれをスピン成分  $\kappa_{xy}^{sp}$  として推定した。Ca-K や volborthite を含めたカゴメ格子反強磁性体における  $\kappa_{xy}^{sp}$  の  $\kappa_{xx}$  依存性を調べると、 $\kappa_{xy}^{sp}$  は  $\kappa_{xx}$  が小さい領域では一定であるのに対し、 $\kappa_{xx}$  が大きい領域では正の相関を持つことが明らかになった。これは、低  $\kappa_{xx}$  領域では、SBMFT の理論計算でよく説明できる Berry 位相由来の「内因性機構」によって発現しているのに対し、高  $\kappa_{xx}$  領域では、フォノンとの相関を持った「外因性機構」によって発現していることを示唆している。

#### 4. GaV<sub>4</sub>Se<sub>8</sub> のトポロジカル熱ホール効果

磁気スキルミオンは、磁性体中のスピンの渦状に並んでいる磁気構造体であり、外場に対して強固であるというトポロジカルな性質を有している。さらに、磁気スキルミオンが電子に対して、非常に大きな Berry 位相を与えることでトポロジカルホール効果を発現する事が明らかになっている。この磁気スキルミオンが創る Berry 位相は、電子だけではなくマグノンにも影響を及ぼし、トポロジカルな輸送現象を発現する可能性が示唆されている [6]。そこで、本研究では、広い範囲で磁気スキルミオン格子相が安定に存在している [7] GaV<sub>4</sub>Se<sub>8</sub> の熱ホール効果測定を行い、

トポロジカル熱ホール効果の観測と起源の解明を目指した。

GaV<sub>4</sub>Se<sub>8</sub>の $\kappa_{xy}$ の温度、磁場依存性を詳細に調べ、磁化測定から決定された磁気相境界と比較すると、 $\kappa_{xy}$ が磁気スキルミオン格子相でのみ明瞭に出現していることが明らかになった。

また、磁気スキルミオン格子相で観測された $\kappa_{xy}$ は、通常のマグノンやフォノンで期待される $\kappa_{xy}$ とは磁場依存性や温度依存性が異なることを明らかにした。これは、 $\kappa_{xy}$ が磁気スキルミオンによって発現している可能性を示唆している。さらに起源を探るために、Néel型磁気スキルミオン三角格子を仮定した理論シミュレーションとの比較を行った。すると、実験により観測された $\kappa_{xy}$ が、理論計算から求めた $\kappa_{xy}$ の温度依存性をよく再現することが明らかになった。この結果は、 $\kappa_{xy}$ が、磁気スキルミオンがマグノンに有限のBerry位相を与えることで発現していることを支持している。

## 5. CsCuCl<sub>3</sub>の熱輸送特性

物性物理学において、らせんは磁氣的・結晶学的な構造で出現し、キラリティによって右手巻と左手巻に分類される。磁氣的ならせん構造はDM相互作用が存在する時に形成され、磁気スキルミオンをはじめとしたトポロジカル物性の研究が盛んに行われている。また、結晶学的ならせん構造においても、電流誘起磁化[8]などの特異な物理現象の発現が期待されている。そこで、キラル磁性体CsCuCl<sub>3</sub>ホモキラル単結晶[9]の熱輸送特性を調べることで、らせん構造に起因する新奇輸送現象の解明を目指した。

縦熱伝導率の温度依存性を測定した結果、10.7 K以下でらせん磁性に磁気秩序すると縦熱伝導率が增大することが分かった。この磁気秩序相における縦熱伝導率の増大は、マルチドメイン単結晶[10]では観測されていないため、この結果は、らせん磁性に起因するスピンの寄与を捉えていると考えられる。また、縦熱伝導率の磁場依存性を調べると、磁気秩序温度以下の縦熱伝導率は、形成されるらせん秩序相のらせんピッチに強く依存していることが明らかになった。

また、らせん軸方向に熱流を流すと、流した熱に対して非線形に増大する熱ホール応答が観測された。さらに、この非線形な熱ホール応答は、観測されたすべての温度領域で1本の曲線にスケールリングすることが分かった。この非線形な熱量依存性はらせん軸に垂直に熱を流した際には観測されていないことに加え、磁気秩序の有無に関わらないことから、この非線形熱ホール応答は結晶のらせん構造に起因している可能性がある。

## 6. 総括

本研究では、絶縁体における熱ホール効果の研究を行いその起源の解明を目指した。カゴメ反強磁性体Cd-Kapellasiteでは、スピン液体状態で明瞭な熱ホール効果を観測した。このCd-Kでは、これまでに熱ホール効果が確認されたカゴメ反強磁性体とは異なり、スピンとフォノンの両方の寄与が存在していることを明らかにした。また、25 K以下の低温で出現する熱ホール効果が、縦熱伝導率と正の相関を示すことを明らかにし、Berry曲率によって出現する内因的な起源に加えて、外因的な起源が存在することを見出した。さらに、磁気スキルミオンホスト物質GaV<sub>4</sub>Se<sub>8</sub>において、磁気スキルミオン格子相で有限の熱ホール効果を観測し、この熱ホール効果が磁気スキルミオンに起因するトポロジカル熱ホール効果であ

ることを突き止めた。また、キラル磁性体CsCuCl<sub>3</sub>の熱輸送測定によって、らせん構造に起因する非線形熱ホール応答の存在を明らかにした。本研究は、熱ホール効果が電荷中性励起におけるトポロジカル輸送現象を捉える有効な手法であることを明らかにした。

#### 参考文献

- [1] D. J. Thouless *et al.*, PRL **49**, 405 (1982). [2] H. Katsura *et al.*, PRL **104**, 066403 (2010). [3] Y. Onose *et al.*, *Science* **329**, 297 (2010). [4] D. Watanabe *et al.*, PNAS **113**, 8653 (2016). [5] H. Doki *et al.*, PRL **121**, 097203 (2018). [6] K. A. van Hoogdalem, *et al.*, PRB **87**, 024402 (2013). [7] Y. Fujima *et al.*, PRB **95**, 180410 (2017). [8] T. Yoda *et al.*, *Sci. Rep.* **5**, 12024 (2015). [9] Y. Kousaka *et al.*, PRMaterials **1**, 071402 (2017). [10] T. Kawamata *et al.*, *J. Phys. Conf. Ser.* **568** 042013 (2014).