

新物質探索によるスキルミオン物質空間の拡張

代表研究者 北海道大学大学院理学研究院 教授 吉田 紘行

〔研究の概要〕

本研究は、空間反転対称性を有する金属間化合物における新物質探索と物性評価を通し、非従来型のメカニズムに基づくスキルミオン創発を実験的に観測することを目的として行った。いくつかの候補物質の開発に成功し、中でも純良単結晶が得られた GdOs_2Si_2 について詳細な物性評価を行った。 GdOs_2Si_2 は空間反転対称性を有する金属化合物であり、低磁場では $T_N = 26.6$ K で反強磁性秩序を示す。 T_N 以下の高磁場領域には複数の磁気相が確認され、multi- q で記述されるスキルミオン相の存在が示唆された。今後、スキルミオンの創発を実験的に確立することで、スキルミオン創発空間の拡張が実験的に実証できると期待される。

〔研究経過および成果〕

半導体素子や磁気記録デバイスに代表される機能性電子材料は電子の基本的自由度であるスピン・電荷・軌道を制御するものであり、現代社会を支える基盤材料として、長きにわたり研究されてきた。一方、近年固体中で観測されたスキルミオンは、従来の基本的電子自由度の制御に基づいた機能性材料に変革をもたらす可能性から大きな注目を集めている。

スキルミオンは、単純な強磁性・反強磁性構造の連続変形では移り変わることができないトポロジカルに保護された渦状の磁気構造である。スキルミオンは電流駆動が可能のため、大容量かつ高速な記録デバイスの創成等も期待される。研究黎明期にはスキルミオンは空間反転対称性の破れた金属化合物という限られた物質系においてのみその発現が予想され、実際に観測されてきた [1]。一方、研究の進展とともにスキルミオンが創発する物質空間は拡がりつつあり、空間反転対称性が破れていない金属化合物や絶縁性三角格子反強磁性体においてもスキルミオン創発の可能性が指摘されている [2-4]。

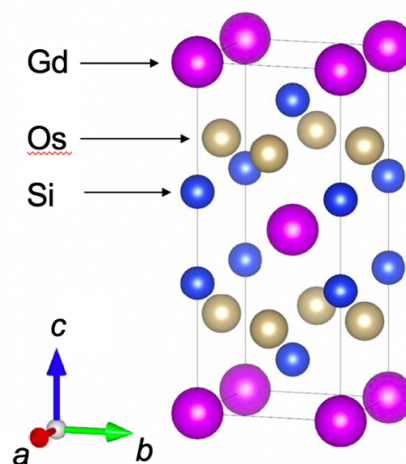


図 1 GdOs_2Si_2 の結晶構造。

本研究では、空間反転対称性を有する金属間化合物の合成と物性評価によるスキルミオンの実験的観測を通して、スキルミオンが創発する物質空間を拡張することを目的として研究を行った。

我々は化学的な手法を用いて、磁気スキルミオンを発現する物質の新規開発に取り組んだ。アーク熔融法や 6 GPa、2000°C までの条件下における高温高压合成法を駆使することにより、候補物質として六方晶の $\text{Gd}_3\text{Os}_4\text{Al}_{12}$ と正方晶の GdOs_2Si_2 を見出した。両

者はともに空間反転対称性を有する金属間化合物である。

Gd₃Os₄Al₁₂ においては、結晶を育成することは出来たものの、結晶構造解析から単ドメイン試料ではない事が明らかになった。そのため粉末試料を用いた物性評価を行い、スキルミオン相の存在を示唆する温度磁場相図を得たが、その詳細を明らかにするには至っていない。今後より詳細な物性評価を行うために、純良な単結晶試料の育成を行う必要がある。

一方、GdOs₂Si₂ においては良質の単結晶試料を得ることに成功した。単結晶構造解析から、GdOs₂Si₂ は ThCr₂Si₂ 構造を有し、空間群は *R*/*mmm* で格子定数は $a = 4.1549(2) \text{ \AA}$ 、 $c = 9.8117(8) \text{ \AA}$ である。我々は、単結晶における電気抵抗、磁化、比熱測定を行い GdOs₂Si₂ のバルク物性を評価した。GdOs₂Si₂ の電気抵抗率は降温とともに減少し、金属的な電気伝導特性を示した。磁化率は高温で Curie-Weiss 則に従い、Weiss 温度は $\Theta_W = 43 \text{ K}$ 、有効磁気モーメントは $8.02 \mu_B$ となった。これは Gd の磁気モーメントが局在していることを示している。低磁場における磁化率の温度依存性から、GdOs₂Si₂ は $T_N = 26.6 \text{ K}$ で反強磁性的な磁気秩序を示すことが明らかになった。特に、磁場を *c* 軸に平行に印加すると逐次的な磁気相転移を示し、低温に複数の相が存在することが明らかになった。各相の磁気状態の詳細は現段階で明らかになっていないものの、この相図はスキルミオン物質として知られる GdRu₂Si₂ の温度磁場相図と類似したものであり、GdOs₂Si₂ においても低温磁場中で multi-*q* 状態として記述されるスキルミオンの創発を示唆している。

GdRu₂Si₂ ではスキルミオン発現機構として、遍歴電子に由来する多重スピン間相互作用に起因した新た

なメカニズムが提案され、理論・実験の両側面から大きな注目を集めている [5,6]。これは、従来考えられてきた反転対称性の破れた系における Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用に起因したメカニズムとは異なるものであり、より多彩な物質系においてスキルミオンが創発することを示している。今後、GdOs₂Si₂ における異常ホール効果の観測や量子ビームを用いた回折実験により、スキルミオン創発を実験的に確立することで、スキルミオン創発空間の拡張が実験的に実証できると期待される。

本研究は、北海道大学大学院総合化学院、物質・材料研究機構の林浩章氏、山浦一成氏との共同研究として実施したものである。

[参考文献]

- [1] S. Mühlbauer, et al. *Science*, **323**, 915 (2009).
- [2] M. Hirschberger et al., *Nat. Commun.*, **10**, 5831 (2019).
- [3] T. Kurumaji, et al., *Science*, **365**, 914 (2019).
- [4] T. Okubo et al., *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 017206 (2012).
- [5] S. Hayami et al., *J. Phys. Condens. Matter*, **33**, 443001 (2021).
- [6] N. D. Khanh et al., *Nat. Nanotech.*, **15**, 444 (2020).

[発表論文]

1. Hiroaki Hayashi, Hiroyuki K Yoshida, Hiroya Sakurai, Naoki Kikugawa, Kazunari Yamaura, Crystal, growth and physical properties of GdOs₂Si₂, JPS Conference Proceedings LT29, in press.