

空間反転対称な正方晶物質 GdRu_2Ge_2 における多段階トポロジカル磁気相転移の発見

吉持遥人¹, 高木里奈², 周芝苑², Nguyen Duy Khanh¹, 齋藤開², 佐賀山基³, 中尾裕則³, 伊藤晋一³, 十倉好紀^{1,4,5}
有馬孝尚^{4,6}, 速水賢⁷, 中島多朗^{2,4}, 関真一郎^{1,8}

¹ 東京大学 工学系研究科, ² 東京大学 物性研究所, ³ 高エネルギー加速器研究機構, ⁴ 理化学研究所 創発物性科学研究センター, ⁵ 東京大学 東京カレッジ, ⁶ 東京大学 新領域創成科学研究科, ⁷ 北海道大学 理学系研究科, ⁸ 東京大学 先端科学技術研究センター

Discovery of Multistep Topological Transitions in a Centrosymmetric Tetragonal Magnet GdRu_2Ge_2

Haruto YOSHIMUCHI¹, Rina TAKAGI², Jiwon JU², Nguyen Duy KHANH¹, Hiraku SAITO²
Hajime SAGAYAMA³, Hironori NAKAO³, Shinichi ITOH³, Yoshinori TOKURA^{1,4,5}
Taka-hisa ARIMA^{4,6}, Satoru Hayami⁷, Taro NAKAJIMA^{2,4}, Shinichiro SEKI^{1,8}

¹Department of Applied Physics, University of Tokyo, ²Institute for Solid State Physics, University of Tokyo

³High Energy Accelerator Research Organization, ⁴RIKEN Center for Emergent Matter Science

⁵Tokyo College, University of Tokyo

⁶Graduate School of Frontier Sciences, University of Tokyo

⁷Graduate School of Science, Hokkaido University

⁸Research Center for Advanced Science and Technology, University of Tokyo

Abstract

スキルミオンはトポロジーに保護されたスピンの渦構造であり、高密度・省電力な次世代磁気メモリへの応用が期待されている。従来、スキルミオンの形成には空間反転対称性の破れた結晶構造が必須であると考えられてきたが、近年では空間反転対称な希土類合金において、遍歴電子が媒介する相互作用による新機構に由来したスキルミオンが報告されており、注目を集めている。本研究では、空間反転対称な正方晶物質 GdRu_2Ge_2 に注目し、共鳴 X 線散乱実験に基づく磁気構造解析を行った結果、新機構に由来する多彩なトポロジカルスピン構造が実現していることを明らかにした。

1. はじめに

近年では、物性物理学においてトポロジカル物性の分野が確立され、飛躍的な発展を遂げている。トポロジーに立脚した多くの物性が開拓される中、スキルミオンやメロンといった磁性体中のスピンの渦巻き構造 (Fig. 1) が、新たな情報担体の候補として大きな注目を集めている。スキルミオンは、「スピン構造を構成するスピンを球面に貼り合わせた際に、何回球面を覆うか」を表すスキルミオン数 N_{sk} によって特徴付けられ、トポロジーによって保護された安定した粒子としての性質を有する。その上、スキルミオンの直径は数~数百 nm と非常に小さく、一般の磁気メモリに用いられる磁壁と比べて 10 万分の 1 程度の小さな閾値電流によって駆動できるという特徴を持つことから、次世代の磁気記憶・演算素子のための高密度・省電力な情報担体としての応用が大いに期待されている [1-5]。

従来、空間反転対称性の破れた結晶構造を伴う物質におけるスキルミオンが積極的に開拓されてきた [6-12]。こうした物質では、Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用がスキルミオンの安定化に重要な寄与を果たすことが分かっている。一方で、最近では全く異なるアプローチによっ

てもスキルミオンを実現できることが予言されており [13-15]、特に遍歴電子が媒介する RKKY・多体相互作用が高対称な結晶格子に存在するとき、従来の DM 相互作用に由来するものより 1 桁以上小さな、数 nm スケールの極小サイズのスキルミオンを実現できることが理論的に提案されている [16-19]。

こうした新機構では、空間反転対称性の保たれた系においてもスキルミオンが実現可能であるため、物質開拓の幅が非常に広がることが期待される。実際、近年の物質開拓によっていくつかの希土類合金系において、数 nm スケールのスキルミオン格子の発現が報告されている [20-25]。しかしながら、こうしたスキルミオン物質の報告例はごく僅かに限られている上、1つの物質では1種類のトポロジカル磁気構造が発現することがほとんどであり、外部磁場によって異なるトポロジーに特徴付けられるスピン構造の間を制御できるかどうかは、これまで明らかになっていなかった。

このような背景のもと、本研究では空間反転対称な正方晶物質 GdRu_2Ge_2 を対象とした。以下では、本研究によって得られた成果 [26] を紹介する。

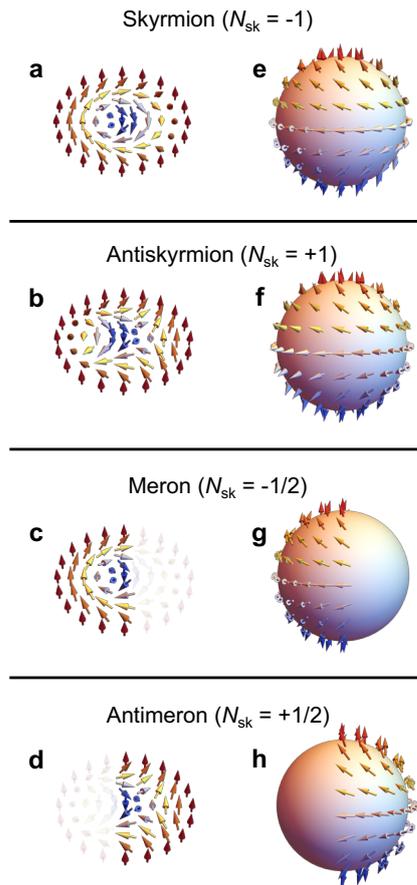


Figure 1 Schematic illustration of various topological spin textures such as skymion(a), antiskyrmion(b), meron(c), and antimeron(d) spin textures. e-h, Their projections onto a unit sphere. Skymion and antiskyrmion are characterized by integer values of skymion number N_{sk} since the spins wrap whole unit spheres, while meron and antimeron are characterized by half-integer values of N_{sk} since the spins wrap half of unit spheres.

2. 正方晶物質 GdRu₂Ge₂ における磁化特性・電気輸送特性

本研究では、空間反転対称性の保たれた正方格子構造を有する希土類合金 GdRu₂Ge₂ を対象とした。Figure 2a に示すように、本物質では磁性を担う Gd³⁺ による二次元的な正方格子の層と、電気伝導を担う Ru と Ge による層が、それぞれ交互に積層する構造を有している。Figures 2b, c に示すように、本物質に対して磁化測定および電気輸送測定を行い、磁化・縦抵抗率およびホール抵抗率の磁場依存性を測定した。Figure 2b の温度磁場相図に示すように、本物質の積層方向に外部磁場をかけていくと多段階に磁気構造が相転移していき、その中でも Figure 2c の色付きで示す II と IV の 2 種類の磁気相においては、ホール抵抗率に増大が生じることが明らかとなった。一般に、スキルミオン上を電子が運動するとき、スキルミオンの特異なトポロジーを反映して、電子が仮想的な磁場を感じてその進行方向が曲げられる、トポロジカルホール効果が生じることが分かっている。本物質で見られたホール抵抗率の増大は、

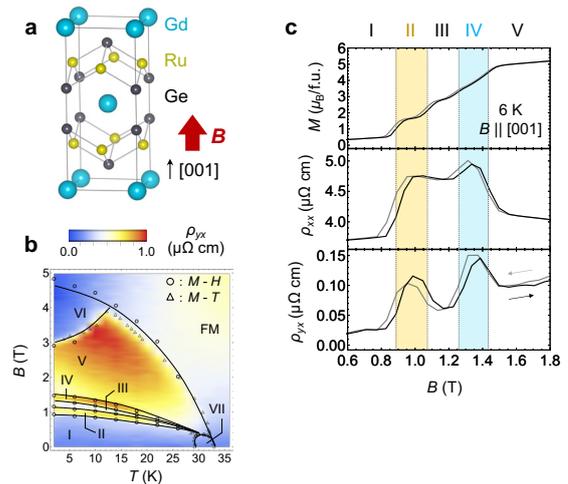


Figure 2 a, Crystal structure of GdRu₂Ge₂. b, B - T magnetic phase diagram of GdRu₂Ge₂ for $B \parallel [001]$. The background color represents the value of Hall resistivity ρ_{yx} . Open circles (triangles) indicate phase boundaries obtained from the magnetic-field (temperature) dependence of magnetization M . c, Magnetic-field dependence of magnetization M , longitudinal resistivity ρ_{xx} and Hall resistivity ρ_{yx} measured at 6 K for $B \parallel [001]$ and electric current $I \parallel [100]$. Black and gray lines represent the field increasing and decreasing runs, respectively.

このようなトポロジカルホール効果によるものであると考えられ、本物質において複数のスキルミオン相が生じていることを示唆する結果である。

3. 正方晶物質 GdRu₂Ge₂ における中性子散乱実験・共鳴 X線散乱実験

そこで、ミクロな磁気構造を特定するため、大強度陽子加速器施設 J-PARC 物質・生命科学実験施設 (MLF) の BL-12 に設置された高分解能チョッパー分光器 (HRC) を用いて中性子散乱実験を、高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所の Photon Factory BL-3A において共鳴 X線散乱実験をそれぞれ行った。Figure 3 に示すように、Phase I から V までの全ての磁気相において、磁気変調波数 $q \sim 0.22$ で特徴づけられる $\mathbf{Q}_A = (q, 0, 0)$ の磁気変調ベクトルが観測されており、さらに Phase II, III, IV の 3 つの磁気相では $\mathbf{Q}_A = (q, 0, 0)$ と $\mathbf{Q}_B = (q/2, q/2, 0)$ の 2 種類の磁気変調ベクトルが観測された。続いて、共鳴 X線散乱実験における散乱 X線ビームに対して偏光解析を行うことで [27], \mathbf{Q}_A と \mathbf{Q}_B に対応する磁気変調が、全て screw 型の磁気変調で特徴付けられることが明らかとなった。

続いて、実験的に得られた各磁気相における磁気変調成分の情報をもとに、実空間の磁気構造を再現することを試みた。それぞれの磁気反射に対応する磁気変調成分の大きさと、対応する磁気相における一様磁化の大きさに関する情報をもとに、screw 型らせんや一様磁化成分を足し合わせることで、元の実空間磁気構造を再構築することができる。しかしながら、散乱実験では各らせんの位相の情報を求めることができない点に注意する必要がある。

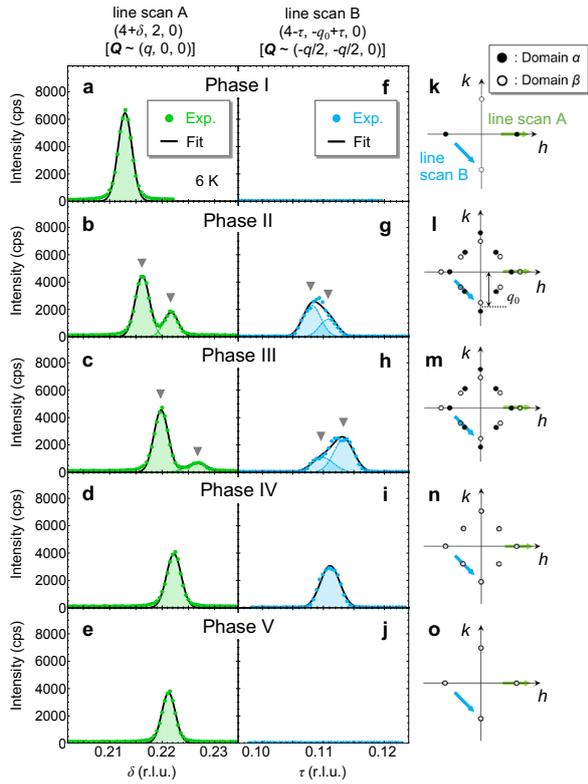


Figure 3 a-e, Line profiles of $(4 + \delta, 2, 0)$ scan (that is, line scan A) for Phases I ($B = 0$) (a), II (0.92 T) (b), III (1.03 T) (c), IV (1.13 T) (d) and V (1.3 T) (e) to identify the $\mathbf{Q} \approx (q, 0, 0)$ magnetic satellite peaks around the fundamental Bragg spot $(4, 2, 0)$. Each experimental data (closed circles) is fitted by one or two Gaussian functions. f-j, Line profiles of $(4 - \tau, -q_0 + \tau, 0)$ scan (that is, line scan B) to identify $\mathbf{Q} \approx (q/2, q/2, 0)$ magnetic satellite peaks around the fundamental Bragg spot $(4, 0, 0)$ for Phases I (f), II (g), III (h), IV (i) and V (j). The definition of q_0 is shown in k. Magnetic modulation peak positions are indicated with grey triangles in b, c, g and h. k-o, Reciprocal-space distribution of magnetic satellite reflections, as well as the directions of line scans A and B for Phases I (k), II (l), III (m), IV (n) and V (o). The selection rule of magnetic satellite reflections is common to both $(4, 2, 0) \pm \mathbf{Q}$ and $(4, 0, 0) \pm \mathbf{Q}$ positions. Closed and open circles in k, l and m represent the contributions of magnetic domains α and β , respectively. a.u., arbitrary units; exp., experiment; r.l.u., reciprocal lattice units; cps, counts per second.

ある。そこで本解析においては、「 GdRu_2Ge_2 の磁性を担う Gd イオンが局在スピンであるため、再構築後の磁気構造のノルム分布がほとんど一樣になる」という事実に着目した。具体的には、考えられる全ての位相の組み合わせに対して、再構築した磁気構造のノルム分布が最も一樣になるような位相の組み合わせを、しらみつぶしに探索した。その結果、Phase I から V までの全ての磁気相における磁気構造を、一意的に特定することに成功した。

Figure 4 に、解析によって特定した Phase I から V までの磁気構造を示す。その結果、Phase II および IV の磁気相においては、直径 2.7 nm のスキルミオンが格子を組んだ状態で安定化していることが分かった。その上、本物質では外部磁場に応じて多段階の磁気構造相転移が生じており、特に II, III, IV の磁気相では、「楕円形スキルミオン」や「メロン-アンチメロン分子」、「円形スキルミオン」といった多彩なトポジカル磁気構造が発現することを明らかにした。

4. 遍歴電子が媒介する相互作用モデルに基づく GdRu_2Ge_2 の磁気構造の理論計算

最後に、遍歴電子が媒介する相互作用モデルに基づく GdRu_2Ge_2 の磁気構造の理論計算を行った。実験結果で得られた一連の磁気構造を、驚くべき精度で再現することに成功した。本結果は、本物質 GdRu_2Ge_2 で観測された多彩なトポジカル磁気構造を安定化させるための微視的な起源として、遍歴電子が媒介する相互作用を特徴付ける磁気感受率における複数ピークの競合 [28] が重大な寄与を果たしていることを示している。すなわち、遍歴電子が媒介する相互作用における一種のフラストレーションの機構が、多彩なトポジカルスピン構造発現の鍵であることを突き止めた。

5. まとめ

本研究は、遍歴電子が媒介する相互作用の一種のフラストレーションの機構に基づく、極小サイズの多彩なトポロ

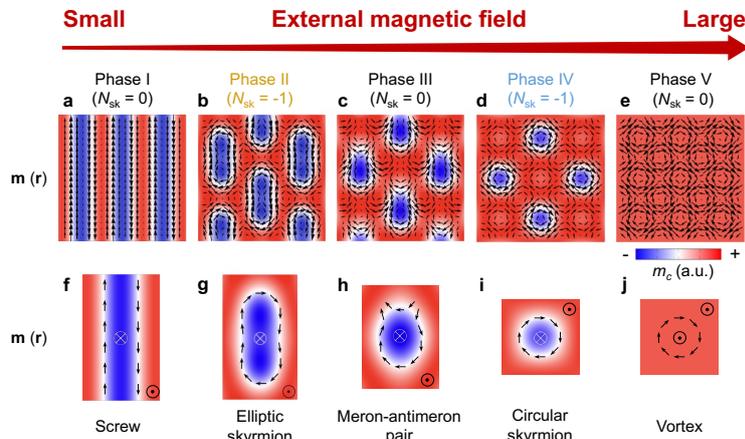


Figure 4 Experimentally deduced magnetic structures for GdRu_2Ge_2 . a-e, The magnetic structure $\mathbf{m}(\mathbf{r})$ for Phases I, II, III, IV and V for magnetic field $B \parallel [001]$, reconstructed based on the resonant X-ray scattering experiment. The black arrows and background color represent the in-plane and out-of-plane component of local magnetic moment $\mathbf{m}(\mathbf{r})$, respectively. f-j, Schematic illustration of spin textures in a-e.

ジカルスピン構造を実現するための新しい物質設計指針を確立するものであると言える。本物質で実証した、外部磁場による異なるトポロジカル数によって特徴付けられるスピン構造の切り替え、すなわち多彩なトポロジカルスピン構造間のスイッチングは、多値メモリ素子などの新しい応用可能性を秘めている。また、本研究で明らかにした物質設計指針をもとに、今後さらなる物質探索が進むことで、超高密度・超低消費電力な次世代素子への応用に貢献することが期待される。

謝辞

本研究は、科学技術振興機構（JST）戦略的創造研究推進事業 CREST の「未踏探索空間における革新的物質の開発」研究領域（No. JPMJCR23O4）および「量子状態の高度な制御に基づく革新的量子技術基盤の創出」研究領域（No. JPMJCR1874）、同戦略的創造研究推進事業個人型研究（さきがけ）の「トポロジカル材料科学と革新的機能創出」研究領域（No. JPMJPR18L5, JPMJPR20L8）および「情報担体とその集積のための材料・デバイス・システム」研究領域（No. JPMJPR20B4）、日本学術振興会（JSPS）科学研究費助成事業基盤研究 S（No. JP21H04990, JP22H04965）、同基盤研究 A（No. JP18H03685, JP20H00349, JP21H04440）、同挑戦的研究（萌芽）（No. JP21K18595）、同若手研究（No. JP21K13876, JP23K13069）、同新学術領域研究（研究領域提案型）（No. JP22H04468）、同学術変革領域研究（A）（No. JP23H04869）、同特別研究員奨励費（No. JP22KJ1061）、旭硝子財団、村田学術振興財団、東京大学克研究奨励賞、UTEC-UTokyo FSI Research Grant Program の助成を受けて行われました。中性子散乱実験は J-PARC 物質・生命科学実験施設の利用研究課題（2020S01）として、共鳴 X 線散乱実験は高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 フォトンファクトリーの研究課題（2020G665）としてそれぞれ行われました。

引用文献

- [1] N. Nagaosa and Y. Tokura, Nat. Nanotechnol. **8**, 899 (2013).
- [2] F. Jonietz *et al.*, Science **330**, 1648 (2010).
- [3] W. Jiang *et al.*, Science **349**, 283 (2015).
- [4] A. Fert, N. Reyren and V. Cros, Nat. Rev. Mater. **2**, 17031 (2017).
- [5] B. Göbel *et al.*, Phys. Rev. B **99**, 060407 (2019).
- [6] Y. Tokura and N. Kanazawa, Chem. Rev. **121**, 2857 (2021).
- [7] S. Mühlbauer *et al.*, Science **323**, 915 (2009).
- [8] X. Z. Yu *et al.*, Nature **465**, 901 (2010).
- [9] S. Seki *et al.*, Science **336**, 198 (2012).
- [10] Y. Tokunaga *et al.*, Nat. Commun. **6**, 7638 (2015).
- [11] A. K. Nayak *et al.*, Nature **548**, 561 (2017).
- [12] K. Karube *et al.*, Nat. Mater. **20**, 335 (2021).
- [13] T. Okubo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 017206 (2012).

- [14] A. O. Leonov and M. Mostovoy, Nat. Commun. **6**, 8275 (2015).
- [15] Z. Wang *et al.*, Phys. Rev. B **103**, 104408 (2021).
- [16] S. Hayami, R. Ozawa, and Y. Motome, Phys. Rev. B **95**, 224424 (2017).
- [17] R. Ozawa, S. Hayami, and Y. Motome, Phys. Rev. Lett. **118**, 147205 (2017).
- [18] S. Hayami and Y. Motome, Phys. Rev. B **103**, 024439 (2021).
- [19] S. Hayami and Y. Motome, J. Phys.: Condens. Matter **33**, 443001 (2021).
- [20] T. Kurumaji *et al.*, Science **365**, 914 (2019).
- [21] M. Hirschberger *et al.*, Nat. Commun. **10**, 5831 (2019).
- [22] N. D. Khanh *et al.*, Nat. Nanotechnol. **15**, 444 (2020).
- [23] R. Takagi *et al.*, Nat. Commun. **13**, 1472 (2022).
- [24] K. Kaneko *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn **88**, 13702 (2019).
- [25] D. Singh *et al.*, Nat. Commun. **14**, 8050 (2023).
- [26] H. Yoshimochi *et al.*, Nat. Phys. **20**, 1001 (2024).
- [27] M. Blume, in “Resonant Anomalous X-Ray Scattering” (eds Materlik, G., Sparks, C. J. and Fischer, K.), 495-512, Elsevier, (1994).
- [28] S. Hayami, J. Phys. Soc. Jpn. **91**, 23705 (2022).

(原稿受付日：2025 年 3 月 28 日)

著者紹介



吉持通人 Haruto YOSHIMOCHI
東京大学 大学院工学系研究科
博士後期課程 3 年（投稿当時）
〒153-8904 東京都目黒区駒場 4-6-1
e-mail: yoshimochi765@gmail.com

略歴：2022 年東京大学大学院工学系研究科博士前期課程修了，2025 年東京大学大学院工学系研究科博士後期課程修了，工学博士。

最近の研究：空間反転対称な希土類合金を対象とした，新規スキルミオン物質の開拓。



関真一郎 Shinichiro SEKI
東京大学 先端科学技術研究センター 教授
〒153-8904 東京都目黒区駒場 4-6-1
e-mail: seki@ap.t.u-tokyo.ac.jp

略歴：2019 年東京大学大学院工学系研究科准教授。2024 年同教授。2025 年東京大学先端科学技術研究センター 教授。

最近の研究：幾何学に立脚した新物質・新機能の開拓。