

# 量子液晶の物性科学

## News Letter Vol. 2

### 初年度（2019年度）成果報告集

2020年4月 発行



新学術領域研究 令和元年度～5年度

量子液晶の物性科学

Quantum Liquid Crystals

## 目次

### A01 量子液晶物質の開発

梯子型鉄系化合物 $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$ におけるマグノンが運ぶ熱伝導.....	大串 研也 3
鉄系超伝導体 $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$ における超伝導と磁性の共存状態.....	永崎 洋 5
ノーダルライン半金属 $\text{CaAgP}$ の元素置換効果:高移動度キャリアと超伝導.....	岡本 佳比古 7
Magnetolectric-coupling mechanism in a room-temperature hexaferrite revealed in magnetic-domain scale by using resonant x-ray microdiffraction technique.....	木村 剛 9
秩序型ラーベス相超伝導体 $\text{Mg}_2\text{Ir}_3\text{Si}$ の発見.....	工藤 一貴 11
高圧合成および薄膜成長を用いた量子液晶新物質開拓.....	島川 祐一 13

### B01 量子液晶の精密計測

分光イメージング走査型トンネル顕微鏡による量子液晶の研究.....	花栗 哲郎 15
精密バルク物性測定による量子液晶の探索と解明.....	笠原 成 17
中性子散乱による磁気スキルミオン格子の電流中の駆動状態解明の研究.....	佐藤 卓 19
鉄系超伝導体 $\text{Ba}_{1-x}\text{Rb}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ における新たな量子液晶状態.....	芝内 孝禎 21
量子スピン液体の低エネルギー励起と磁気相図の解明.....	清水 康弘 23
高強度テラヘルツ電場を用いた極低温・高磁場で動作する時間分解 STM の開発....	廣理 英基 25
Studying charge/spin dynamics by time-resolved x-ray measurements.....	和達 大樹 27

### C01 量子液晶の理論構築

強相関電子系における多彩な量子液晶秩序の理論研究.....	紺谷 浩 29
ニッケル酸化物超伝導体の理論研究.....	有田 亮太郎 31
第一原理計算に基づく理論研究の進展と電流誘起磁性.....	池田 浩章 33
スピン液晶・液体における熱および電磁波駆動非平衡ダイナミクス.....	佐藤 正寛 35
大規模数値計算による $t-t'-J$ 模型とフラストレート量子スピン系の研究.....	遠山 貴巳 37
Quantum Liquid Crystals.....	Nic Shannon 39
遍歴フラストレーションがもたらす磁気テクスチャ:螺旋, 渦, スキルミオン, ヘッジホッグ.....	.....
.....	求 幸年 41

## **D01 量子液晶の機能と制御**

固体素子における多体効果と非平衡輸送.....	小林 研介 43
層状 Gd 合金 $Gd_2PdSi_3$ における磁気スキルミオン三角格子相.....	有馬 孝尚 45
電荷密度波物質における光音響フォノンイメージング.....	石坂 香子 47
鉄系超伝導体 FeSe における時間分解 ARPES と光誘起超伝導.....	岡崎 浩三 49
キラルスピン物質 $CrNb_3S_6$ における磁気共鳴スイッチング.....	戸川 欣彦 51
非対称微小共振器における光渦制御.....	戸田 泰則 53

令和 2 年 3 月 26 日(木)、27 日(金)に予定されていた令和元年度「量子液晶の物性科学」領域研究会は、新型コロナウイルス感染症拡大防止に伴い、残念ながら中止となりました。

領域研究会に代えて、初年度の成果を成果報告集（アクティビティレポート）として公開することにより、班員のみならず、関連する幅広い分野の研究者の皆様にご覧いただき、量子液晶研究の促進につながればと願っています。

量子液晶ニューズレター編集局  
2020 年 4 月 9 日

## 梯子型鉄系化合物 $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$ におけるマグノンが運ぶ熱伝導

A01 班 大串 研也

鉄系超伝導体は、高い転移温度を誇る強相関電子系超伝導体として、活発に研究がなされてきた。鉄系超伝導体には多数のファミリーが存在するが、これまで報告されてきた全ての物質において鉄が正方格子を組んでいるという共通点があった。一方で、我々のグループなどにより、図 1(a)のように鉄が梯子格子を組んでいる物質  $\text{BaFe}_2\text{X}_3$  ( $\text{X} = \text{S}, \text{Se}$ ) においても、超伝導が発現することが明らかになった [1]。この発見は、母物質となりうる結晶構造の可能性を広げ、超伝導発現機構の解明と新超伝導体の探索に新たな指針を提供するものである。梯子型鉄系化合物の際立った特徴は、常圧においてモット絶縁体であることであり、これは金属的な振る舞いを示す従来の鉄系超伝導体と対称をなしている。つまり、梯子型鉄系化合物は、鉄系超伝導体における電子相関効果を研究するための格好の舞台である。強相関電子系ではスピンの自由度が重要であり、実際、 $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  においては  $T_N = 120 \text{ K}$  で、 $\text{BaFe}_2\text{Se}_3$  においては  $T_N = 255 \text{ K}$  で磁気秩序を示す。磁気構造は、 $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  がストライプ型であるのに対して、 $\text{BaFe}_2\text{Se}_3$  はブロック型である (図 1(b))。このような磁気構造の相違は、電子相関効果の観点から理解されており、多軌道ハバード模型において  $U/t$  と  $J_H/t$  が小さい領域に位置する  $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  ではストライプ型が、 $U/t$  と  $J_H/t$  が大きい領域に位置する  $\text{BaFe}_2\text{Se}_3$  ではブロック型が安定となる。超伝導は、圧力を印可して金属状態に転移した後に発現する。このように、超伝導がバンド幅制御型モット転移近傍で発現する様子は、有機超伝導体と類似している。一方で、圧力印可に伴い軌道間で電荷移動が生じ、実効的なフィリング制御も同時になされているという考えが提案されている。この考えが正しいなら、銅酸化物超伝導体と類似していることから興味深い。こうした、強相関電子系超伝導体としての梯子型鉄系化合物への興味について、解説記事にまとめたので興味のある方は是非ご覧いただきたい [2]。

2019 年度は、高圧下における超伝導発現機構の解明のためにも重要となる、常圧下におけるスピンダイナミクスに着目した研究を推進した [3]。これまでの中性子非弾性散乱実験から、結晶構造を反映してスピン波が一次元的であることが判明している。そうであるならば、低次元スピン系に特有の熱伝導が生じるのではないかとというのが我々の問いである。そこで、詳細な熱伝導率測定を行った。図 2(a)に  $\text{BaFe}_2\text{Se}_3$  の熱伝導率の温度依存性を示す。梯子の leg 方向に熱勾配をかけた場合には、 $\sim 10 \text{ K}$  と  $\sim 150 \text{ K}$  に二つのピークが存在する。一方で、梯子の rung 方向に熱勾配をかけた場合には、 $\sim 10 \text{ K}$  に一つのピークが存在する。これらのことから、熱伝導には二つの寄与があることが推察される。低温側のピークの形成は「教科書的な」振る舞いであり、フォノンが担う熱伝導である。結晶構造において、Fe 原子のみに着目すると一次元的であるが、Ba/Se 原子の存在も考慮すると三次元的であり、熱伝導に異方性がないことを説明する。高温側のピークは、マグノンの寄与である。その根拠は、銅酸化物における膨大な研究の蓄積にある。つまり、一次元系ではスピノンが熱を運ぶことで交換相互作用  $J$  程度の温度領域で熱伝導率にピークが生じること、また二次元系ないし三次元系ではこの寄与は小さいことが確立している。我々の観測した  $\sim 150 \text{ K}$  で顕著となる異方的

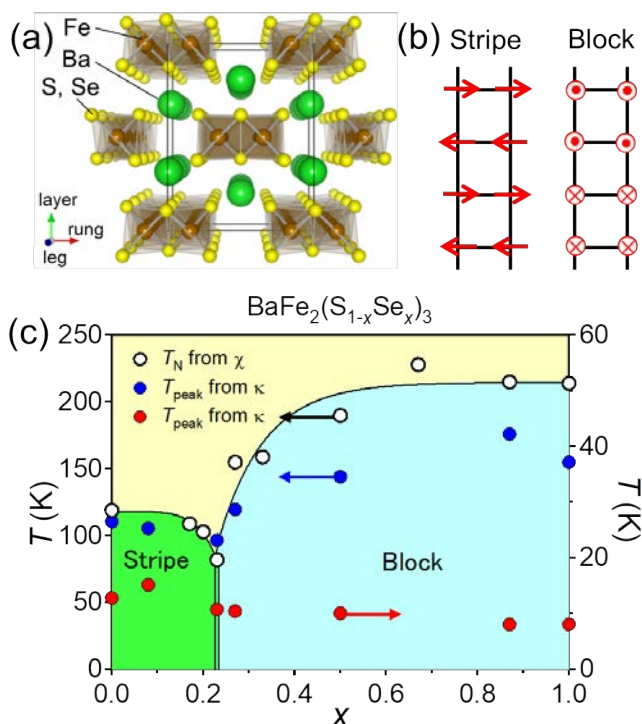


図 1: 梯子型鉄系化合物  $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$  の結晶・磁気構造と電子相図。

な熱伝導は、擬一次元的な分散関係を有するマグノンにより担われていると結論できる。マグノンに由来する熱伝導は、従来の二次元系の鉄系超伝導体では観測されておらず、また銅酸化物以外の物質における観測も極めて少ない。そうした意味でも、我々の成果に意義があると考えている。

運動論的な取り扱いにより、熱伝導率の絶対値よりマグノンの平均自由行程  $l$  を求めることができる。その結果、 $\text{BaFe}_2\text{Se}_3$  では  $l \sim 3 \text{ nm}$  であることが分かった。これは、 $\text{Fe-Fe}$  間距離のおよそ 10 倍である。銅酸化物における一次元鎖では、 $l \sim 1500 \text{ nm}$  に達することが知られており、バリスティック伝導（非散逸性伝導）として興味を惹いている。我々の研究により、梯子型鉄系化合物では確かにマグノンは熱伝導を担うが、バリスティック伝導の極限には達していないことが分かった。これは、梯子間のスピン結合は無視できず、スピン系は二次元ないし三次元的な要素も持っていることに由来すると考えられる。これは、この系の反強磁性転移温度が比較的高いこととも整合する。

ここまで  $\text{BaFe}_2\text{Se}_3$  に対象を絞って議論してきたが、固溶体  $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$  に話を移す。図 1(c)に、磁化率測定から求めた磁気相図を示す。反強磁性転移温度は、 $x=0.23$  で極小値をとることが分かる。これは、この組成において基底状態の磁気構造がストライプ型からブロック型に転移しているのだと解釈される。スピン方向は、ストライプ型においては rung 方向、ブロック型においては layer 方向であり、どちらも Ising 型の異方性を有している。しかし、二つの磁気秩序相の境界点においては XY 型の異方性となる。この場合には、スピン揺らぎが増大することが期待され、従って境界近傍で反強磁性秩序が抑制されることになる。これは、bicritical 現象として広く知られているものである。図 2(b)に、固溶体  $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$  の熱伝導率を示す。全ての組成において、定性的にも定量的にも似た振る舞いを示していることが分かる。このことから、マグノンの熱伝導は、磁気構造の詳細には依存せず、むしろスピン波のバンド幅（交換相互作用  $J$  の大きさ）に支配されていると理解される。しかし、データを細かく見ると、磁気秩序相の境界近傍である  $x=0.23$  において、マグノン由来の熱伝導のピーク温度が低くなっていることが分かる（図 1(c)も参照されたい）。これは、bicritical 点において低エネルギーのスピン揺らぎが多く残存しており、それが熱伝導の担体として有効に働いているものと理解される。

以上、スピン自由度に焦点を当てて熱伝導を議論した。鉄系超伝導体の面白い点の一つとして多軌道性があり、軌道自由度の存在も忘れてはならない。実際、 $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  では  $\sim 200 \text{ K}$  に、 $\text{BaFe}_2\text{Se}_3$  では  $\sim 400 \text{ K}$  に軌道秩序（= 量子液晶状態）の相転移が存在する。軌道秩序相における新奇な素励起が熱伝導を担うか否かは、大変興味のもたれるところである。我々の  $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  に対する実験データでは、 $200 \text{ K}$  付近に異常は観測されていないが、ひょっとしたら低温におけるフォノンの寄与に軌道励起が反映されているのかもしれない。今後の研究を通して、こうした可能性を追求していきたいと考えている。

#### 参考文献

- [1] H. Takahashi, K. Ohgushi, et al., *Nat. Mater.* **14**, 1008 (2015) [https://doi.org/10.1038/nmat4351].
- [2] 山内 徹, 高橋 博樹, 南部 雄亮, 佐藤 卓, 平田 靖透, 大串 研也, *固体物理* **54**, 27 (2019).
- [3] F. Du, Y. Ueda, and K. Ohgushi, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 086601(2019) [https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.086601].

研究室 HP: <http://web.tohoku.ac.jp/mqp/>

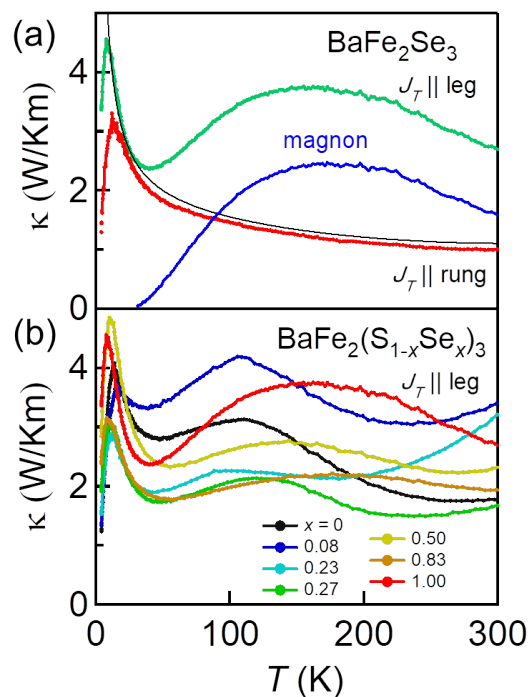


図 2: 梯子型鉄系化合物  $\text{BaFe}_2(\text{S}_{1-x}\text{Se}_x)_3$  の熱伝導率。

鉄系超伝導体  $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  における超伝導と磁性の共存状態

A01 班 永崎洋

非従来型超伝導はしばしば磁気秩序相の近傍で見出されるが、長距離磁気秩序そのもの、特に強磁性は超伝導と相性が悪いので、通常、磁性と超伝導は共存しない。鉄系超伝導体  $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  [1,2] は、超伝導転移を  $T_c \sim 36 \text{ K}$  で示すとともに、Eu の磁気モーメントが  $T_m \sim 15 \text{ K}$  でヘリカル磁性秩序（各 Eu 層では  $ab$  面内に強磁性的に配列し、90 度回転しながら積層する磁気構造（図 1） [3]）を示す。このような磁性超伝導体は超伝導と磁性の共存・競合状態を理解するうえで大変興味深い研究対象であり、超伝導と磁性の相互作用が織り成す新奇現象が観測されると期待され、注目されている。そこで我々は、セルフ・フラックス法を用いて  $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  単結晶試料を作製し、物性測定を行った。

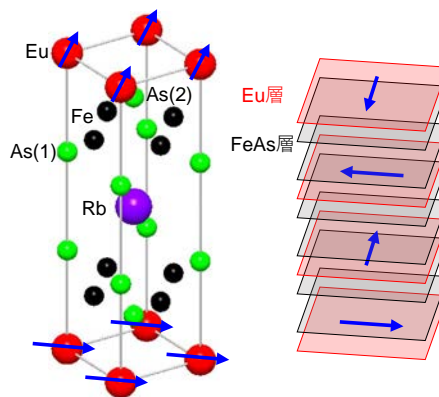


図 1:  $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  の結晶構造および磁気構造の模式図

図 2(a) は我々が育成した  $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  単結晶の写真である。RbAs フラックスを使用することで、 $ab$  面が  $2 \text{ mm}$  角程度、 $c$  軸方向の厚さが  $100 \mu\text{m}$  程度の試料を得ることができた。図 2(b) には、X 線回折パターンを示す。 $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  に由来する  $(00L)$  ピークのみが観測され、 $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  や  $\text{RbFe}_2\text{As}_2$  が含まれない純良な単結晶が得られている。また図 2(c) は磁化率の温度依存性であるが、 $T_c \sim 36 \text{ K}$ （緑矢印）で非常に鋭い超伝導転移を示し ( $\Delta T_c \sim 1 \text{ K}$ )、 $T_m \sim 15 \text{ K}$  に Eu の磁気秩序由来の異常（赤矢印）がはっきり見られる。このような試料を用いて、まずは超伝導と磁性の共存状態における磁化特性を評価した。

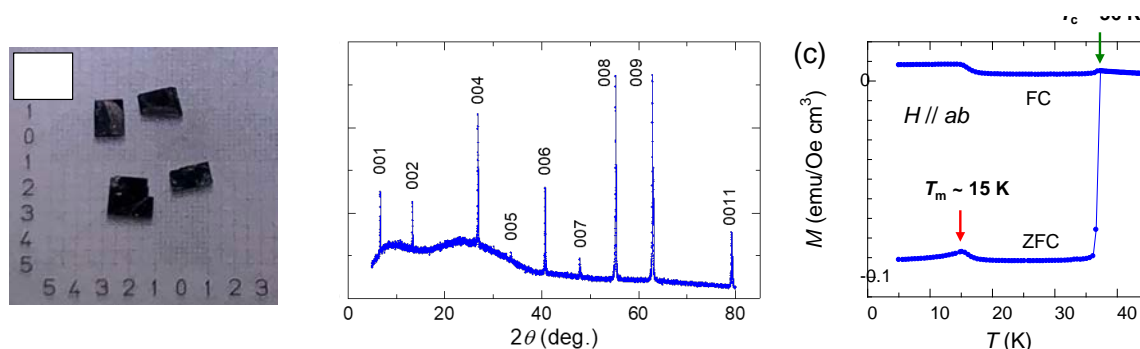


図 2:  $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  単結晶の写真 (a)、X 線回折パターン (b)、磁化率の温度依存性 (c)。

図 3(a) に、測定温度  $5 \text{ K}$  ( $< T_m$ ) において、 $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  単結晶の  $ab$  面方向に外部磁場を印加した時の、磁気ヒステリシス曲線を示す。超伝導体における磁束のピン止め現象により、励磁と減磁の場合で磁化に大きなヒステリシスが生じている。また、磁場の正負に対し非対称な形状になっており、これは Eu の磁気モーメントに起因すると考えられる。磁化測定ではこれらの成分を分離できないが、磁化のヒステリシス成分 ( $\Delta M = M_+ - M_-$ ) がすべて磁束ピン止めに由来すると仮定すれば、励磁と減磁の磁化の平均をとった値 ( $M_{\text{ave}} = (M_+ + M_-)/2$ ) は、Eu の磁気モーメントの磁場応答に対応すると便宜的にみなせる [4]。図 3(a) 中の破線は  $M_{\text{ave}}$  の磁場依存性を示している。外部磁場を印加すると  $M_{\text{ave}}$  は急速に大きくなり、 $1 \text{ T}$  程度でほぼ飽和している。この飽和磁化の値は約  $7 \mu_B/\text{Eu}$  であり、Eu のモーメントが強磁性的に揃ったことに対応している。このことから、Eu の磁気秩序の基底状態はヘリカル磁性であるが、わずかな磁場印加により容易に強磁性配列に変化することが示唆される。前述のように、これまでは磁化のヒステリシス  $\Delta M$  はすべて磁束ピン止め由来のものであると仮定されてきた。一方で、磁場中から減磁してゼロ磁場に戻った場合、超伝導体内には多くの磁束がピン止めされた状態であり、超伝導



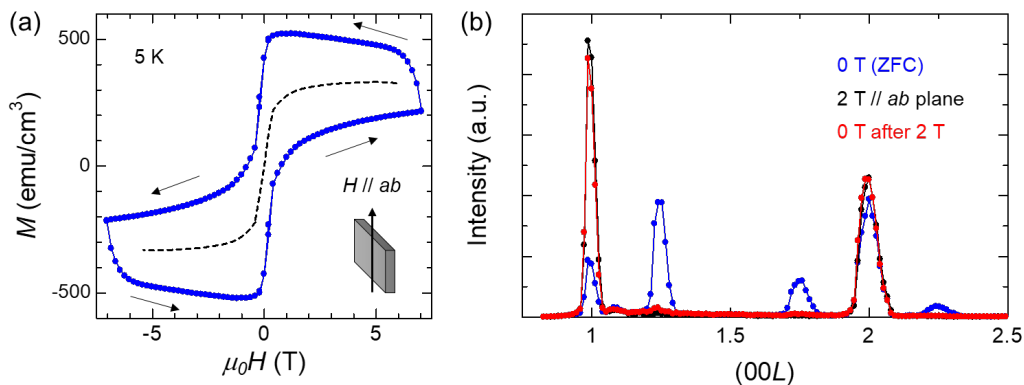


図 3: (a)  $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  単結晶の  $ab$  面方向に磁場を印加した時の磁気ヒステリシス曲線 (測定温度 5 K)。破線は励磁および減磁の場合の磁化の平均値。(b)  $(00L)$  方向の単結晶中性子回折パターン (測定温度 2 K)。青、黒、赤のデータはそれぞれゼロ磁場冷却、 $ab$  面方向に磁場を 2 T 印加した場合、2 T の磁場印加後にゼロ磁場に戻した場合。

体内においては自己磁場が生じている。Eu の磁気モーメントがわずかな磁場で強磁性配列するのであれば、Eu の磁気モーメントの磁場依存性にもヒステリシスが現れることが期待される。

そこで我々は、 $\text{EuRbFe}_4\text{As}_4$  単結晶試料に対して磁場中における中性子回折実験を行い (J-PARC、BL18 千手)、Eu の磁気構造の磁場依存性を調べた。図 2(b) は、2 K ( $< T_m$ ) における  $(00L)$  方向の単結晶中性子回折パターンである。まず、青のデータがゼロ磁場冷却 (ZFC) の場合である。 $(00L)$  ピーク以外に、 $(00L \pm 0.25)$  にピークが観測され、図 1 に示したような 90 度ずつ回転する磁気構造になっていることが示唆される。次に、十分な磁場 (2 T) を  $ab$  面方向に印加すると、黒のデータのように、 $(00L \pm 0.25)$  にあったピークが消え、 $(00L)$  ピークの強度が上がっていることがわかる。これは、Eu のモーメントが強磁性配列していることと一致しており、磁化測定の結果と矛盾しない。一方で、赤のデータは 2 T からゼロ磁場に減磁した場合の回折パターンである。ZFC の場合とは全く異なり、赤と黒のデータがほぼ重なっている。これは、外部磁場がゼロに戻った状態でも Eu のモーメントは強磁性的に配列したままであることを示す結果であり、本研究で Eu の磁気構造が印加磁場に対してヒステリシスを示すことが初めて明らかになった。このようなヒステリシスは超伝導の磁束ピン止めが引き起こしていると考えられ、超伝導が強磁性を誘起するという大変ユニークな現象といえる。

本研究は、石田茂之 (産総研)、飯田一樹 (CROSS)、宗像孝司 (CROSS)、中尾朗子 (CROSS)、D. Kagerbauer (ウィーン工科大)、M. Eisterer (ウィーン工科大)、川島健司 (イムラ材研)、伊豫彰 (産総研)、永崎洋 (産総研) により行われた。

#### 参考文献

- [1] K. Kawashima, T. Kinjo, T. Nishio, S. Ishida, H. Fujihisa, Y. Gotoh, K. Kihou, H. Eisaki, Y. Yoshida and Akira Iyo., *Journal of the Physical Society of Japan* **85**, 064710 (2016) [<https://doi.org/10.7566/JPSJ.85.064710>]
- [2] Y. Liu, Y.-B. Liu, Z.-T. Tang, H. Jiang, Z.-C. Wang, A. Ablimit, W.-H. Jiao, Q. Tao, C.-M. Feng, Z.-A. Xu and G.-H. Cao, *Physical Review B* **93**, 214503 (2016) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.214503>]
- [3] K. Iida, Y. Nagai, S. Ishida, M. Ishikado, N. Murai, A. D. Christianson, H. Yoshida, Y. Inamura, H. Nakamura, A. Nakao, K. Munakata, D. Kagerbauer, M. Eisterer, K. Kawashima, Y. Yoshida, H. Eisaki, and A. Iyo, *Physical Review B* **100**, 014506 (2019) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.014506>]
- [4] M. P. Smylie, K. Willa, J.-K. Bao, K. Ryan, Z. Islam, H. Claus, Y. Simsek, Z. Diao, A. Rydh, A. E. Koshelev, W.-K. Kwok, D. Y. Chung, M. G. Kanatzidis, and U. Welp, *Physical Review B* **98**, 104503 (2018) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.104503>]

研究室 HP: <https://unit.aist.go.jp/esprit/super-ele/index.html>

## ノードルライン半金属 CaAgP の元素置換効果：高移動度キャリアと超伝導

A01 班 岡本 佳比古

近年、トポロジカルに非自明な電子状態を実現する系の一つとして、ノードルラインをもつ物質が注目されている。ノードルラインとは、波数空間において、線形分散をもつ電子バンドの交差により形成される線である。フラットな表面バンドやランダウ準位など、ノードルラインに特有な様々な電子現象が現われると理論的に指摘され、それらの観測を目指して集中的に研究が行われている。しかし、フェルミエネルギー $E_F$ 付近にノードルラインだけが存在するノードルライン半金属と呼べる状況が実現し、かつ、実験研究が可能な化学的安定性をもつ物質がほとんど存在しないため、ノードルラインならではの電子物性はほとんど観測されていない。我々は、ノードルラインに特有の電子物性を実現する候補物質として、CaAgP に注目してきた。まず、スピン軌道結合を考慮しない第一原理計算により、価電子バンドと伝導バンドがフェルミエネルギーにおいて交差し、 $k_z = 0$  面内で $\Gamma$ 点を取り囲むような円環状のノードルライン（ノードルリング）が形成され、ノードルライン半金属状態が実現しうることを見出した（図 a）[1]。スピン軌道結合を考慮した場合にも、ノードルライン上で開くギャップの大きさは 1 meV のオーダーと評価され、ノードルラインならではの電子物性の発現にとって有望である。実験研究については多結晶試料を用いた物性測定を行い、格子欠陥などの何らかの理由により正孔ドーピングされたノードルライン半金属が実現していることを報告した[2]。

本記事では、我々が合成に成功した CaAgP 単結晶を用いて行った、物性測定の結果を報告する[3]。単結晶試料は、Bi をフラックスとして用いたフラックス法により合成された（図 b 挿入図）。まず、無置換の CaAgP 単結晶の電子物性は、ノードルライン半金属に対してわずかに正孔キャリアが注入された低キャリア金属の枠組みの範囲内で概ね理解できた。図 b、c から見てとれるように、電気抵抗率は通常の金属的な温度依存性を示し、横磁気抵抗は上に凸の磁場依存性を示した。ホール抵抗は測定された全ての温度領域において正の線形な振る舞いを示し、正孔キャリアが支配的に存在することが明らかになった。図 e に示したように、正孔キャリア密度は温度によらず  $n_h = 4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  であり、多結晶試料と比べてより欠陥の少ない試料が得られた。移動度 $\mu_h$ は 5-50 K で  $1300 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  であり、多結晶試料の場合と比べて 1 桁大きい。 $n_h$  とバンド計算の結果を組み合わせることにより、無置換試料の  $E_F$  はディラック点から 0.14 eV 低いエネルギーに存在することがわかった。このエネルギーは十分に線形のバンド分散をもつ領域にあり、CaAgP 単結晶においてノードルリングに起因するトーラス形状のフェルミ面が存在することを意味する。

Pd 置換した CaAgP 単結晶の物性は、無置換試料と大きく異なる振る舞いを示した。電気抵抗率は全温度領域で  $dp/dT > 0$  であり金属的だが、約 30 K 以下の低温領域において強く減少した。低温で横磁気抵抗は 0.5 T 以下の低磁場領域で急激に増大し、1 T 以上の磁場領域においてほとんど一定値となる特徴的な振る舞いを示した（図 c）。低磁場領域における磁気抵抗の増加は急激であり、典型的なディラック半金属である  $\text{Cd}_3\text{As}_2$  の純良単結晶の磁気抵抗の増加率に匹敵する。Pd 置換試料の電気抵抗率の低温における強い減少と、低磁場における磁気抵抗の急激な増大は、量子干渉効果による後方散乱過程の減少、つまり弱反局在効果と、磁場によるその破壊に対応すると考えられる。

Pd 置換した CaAgP 単結晶では、このような特徴的な振る舞いが、ディラック点に非常に近い状態にある極めて高い移動度をもつ電子キャリアによりもたらされている可能性が高い。図 d にホール抵抗を示したが、5 K のデータを見ると、ゼロ磁場から磁場を増大すると急激に減少し、0.08 T 付近で負値のピークを取った後、1 T 以上の磁場領域ではほとんど線形に増加した。これは、電子と正孔の両方の伝導キャリアが試料中に共存していることを示す。ホール抵抗と横磁気抵抗から求めたホール伝導度は、正孔と電子の二種類の伝導キャリアの存在を仮定することでよく再現された。図 e に示したように、正孔キャリア密度は温度によらず  $n_h = 2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  程度である。無置換試料の場合と比べて大きく、Ag サイトに対する Pd 置換が正孔ドーピングであることと辻褃が合う。一方、10 K において電子キャリア密度と移動度はそれぞれ  $n_e = 2.3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ 、 $\mu_e = 2.0 \times 10^5 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  であり、正孔に加えて極めて高い移動度をもつ電子キャリアが試料中にわずかに存在することを示す（図 f）。この移動度は、 $\text{Cd}_3\text{As}_2$  における最大値と比べると小さいものの、ワイル半金属の TaAs に匹敵する非常に大きな値であり、



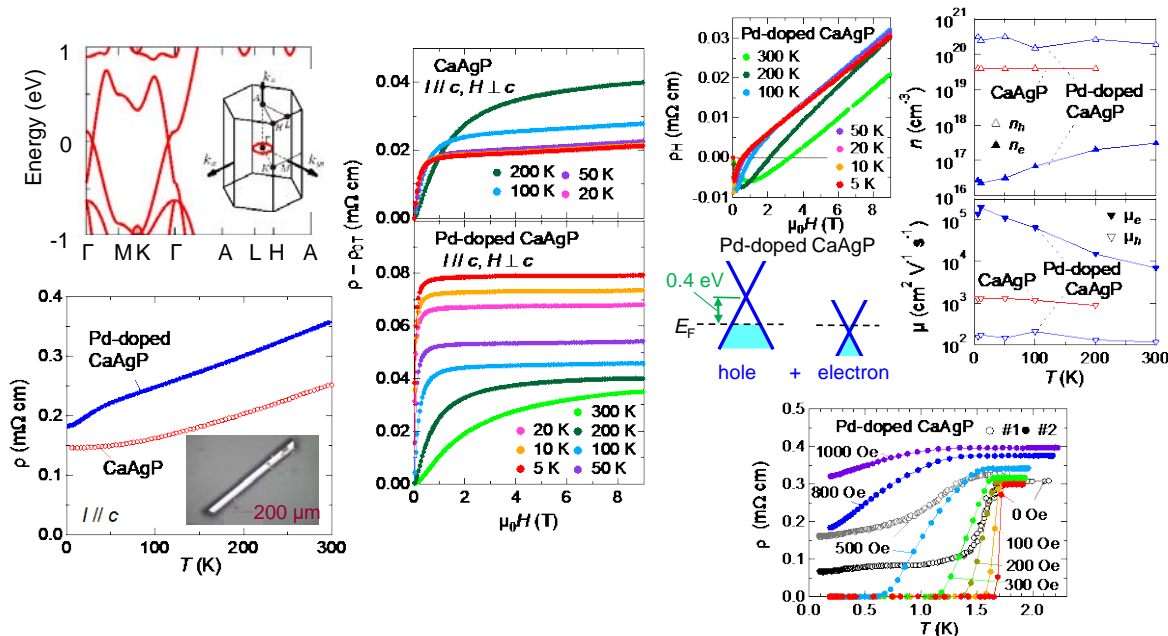


図. (a) CaAgP のスピン軌道結合を考慮しないバンド計算とブリルアンゾーン。 (b) 無置換と Pd 置換 CaAgP 単結晶の電気抵抗率の温度依存性。挿入図は CaAgP 単結晶。 (c) 無置換と Pd 置換 CaAgP 単結晶の電気抵抗率の横磁気抵抗。 (d) Pd 置換 CaAgP 単結晶のホール抵抗。 (e) 無置換と Pd 置換 CaAgP 単結晶のキャリア密度と移動度。 (f) Pd 置換 CaAgP 単結晶の電子状態の概略図。 (g) Pd 置換 CaAgP 単結晶の低温の電気抵抗率の温度依存性。

線形の電子分散の特徴が輸送特性に現れたと考えられる。このような電子キャリアの出現はバルクバンドに対するリジッドバンド的な描像では説明できない。例えば、ノーダルラインに伴う表面バンドが  $E_F$  を横切るなどトポロジカルな表面バンドによる効果や、Pd 置換により導入された乱れやマイクロな相分離の影響による可能性があり、今後の研究により出現機構を解明することが望まれる。

最後に、Pd 置換試料に現れた超伝導転移について報告する。図 g に、2 種類の Pd 置換した CaAgP 単結晶試料の低温の電気抵抗率の温度依存性を示す。電気抵抗率は 1.7 K 以下で急激に減少し、#2 では 1.5 K 以下でゼロ抵抗を示す。#1、#2 とともに磁場を印加することで電気抵抗の減少温度が低下するため、電気抵抗率の減少は超伝導転移によると考えるのが自然である。#2 と同じ条件で合成した Pd 置換試料の比熱には超伝導転移に対応する異常は現れず、この超伝導が単純なバルク超伝導でないことを示唆する。電気抵抗と比熱の振る舞いを説明するシナリオとして、①ノーダルラインによるトポロジカルな表面状態に起因する表面超伝導、②極めて小さい電子比熱係数をもつ相によるバルク超伝導、③不純物による超伝導の三つが考えられる。Cd<sub>3</sub>As<sub>2</sub> や TaAs のような点ノードのディラック・ワイル半金属の場合と異なり、CaAgP のようなノーダルラインをもつ物質では、表面状態がフラットバンドとして形成され得るため、超伝導の発現にとって得である大きな状態密度をもつ可能性がある。Pd 置換試料では、わずかに存在する電子キャリアが関係する表面状態がフェルミエネルギー付近に形成されている可能性があり、これが超伝導転移を担っているかもしれない。Pd ドープ試料において観測された超伝導がどのシナリオによる超伝導であるのか、今後確かめる必要がある。

参考文献

[1] A. Yamakage, Y. Yamakawa, Y. Tanaka, and Y. Okamoto, *Journal of the Physical Society of Japan* **85**, 013708 (2016) [https://doi.org/10.7566/JPSJ.85.013708].  
 [2] Y. Okamoto, T. Inohara, A. Yamakage, Y. Yamakawa, and K. Takenaka, *Journal of the Physical Society of Japan*. **85**, 123701 (2016) [https://doi.org/10.7566/JPSJ.85.123701].  
 [3] Y. Okamoto, K. Saigusa, T. Wada, Y. Yamakawa, A. Yamakage, T. Sasagawa, N. Katayama, H. Takatsu, H. Kageyama, and K. Takenaka, submitted.

## Magnetolectric-coupling mechanism in a room-temperature hexaferrite revealed in magnetic-domain scale by using resonant x-ray microdiffraction technique

A01 Tsuyoshi Kimura

The transverse-conical spin-spiral system is a rare “multiferroic” system in the original framework and possesses both macroscopic magnetization and electric polarization of spin origin. In such a system, the clamping of ferromagnetic and ferroelectric domain walls can be expected. The non-trivial and strong coupling between magnetism and dielectricity is the major attractiveness of multiferroic materials. However, the direct observation of the domain clamping has less been demonstrated due to the difficulty in visualizing the domains formed by a non-trivial spin-spiral order. We examined the coupling of ferroic domains ascribed to the transverse-conical order in a multiferroic material with use of a resonant x-ray microdiffraction technique. The material focused on in this study is a room-temperature magnetolectric Z-type hexaferrite,  $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$ , showing a transverse conical magnetic structure (See illustrations of Figure) [1]. The complex crystallographic and magnetic structure of the magnetolectric hexaferrite makes it difficult to understand its magnetolectric-coupling mechanism. Thus, magnetolectric-coupling mechanism in the hexaferrite has been discussed based on their macroscopic properties such as magnetization and electric polarization. These macroscopic properties can show the presence of magnetolectric coupling but provide indirect information of the microscopic coupling such as the clamping of ferromagnetic and ferroelectric domain walls. In fact, the clamping of the domain walls was predicted in the early stage of the research on magnetolectric multiferroics but has been less demonstrated.

The purpose of this study is to provide insights into the magnetolectric-coupling mechanism in the room-temperature multiferroic  $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$  from the viewpoint of microscopic magnetic domains rather than its macroscopic magnetolectric properties. We examine magnetic-field responses of two-types of magnetic domains formed by the evolution of coexisting order parameters inherent in the transverse conical magnetic structure by adopting a resonant x-ray microdiffraction technique using circularly-polarized incident x rays. This technique enables us to separately observe domain structures ascribed to the coexisting order parameters. Resonant x-ray microdiffraction measurements on a single crystal of  $\text{Sr}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$  with a flat face parallel to the (001) plane were performed at the beamline 17SU, SPring-8. Highly-focused circularly-polarized soft x rays whose beam size and photon energy were approximately  $30 \times 15 \mu\text{m}^2$  and in the vicinity of the Fe  $L_3$  edge ( $\approx 710 \text{ eV}$ ), respectively, were utilized. The crystal was mounted with the [001] direction along the scattering vector. To observe the spatial distribution of magnetic domains, two-dimensional scans of the focused x-ray beam on the cleaved face were carried out.

In this report, we omit the details about the results of the scanning diffraction measurements which is provided in ref. [2]. Here we only show obtained spatial distributions of the two order parameters: ferromagnetic component and ferroelectric cycloidal spiral component, that is, ferromagnetic and cycloidal spiral domains. One of the representative results is shown in Figure. This figure shows the respective magnetic domain structures. The domain states before magnetic-field reversal are single-ferromagnetic and multi-cycloidal ones, as seen in the maps shown in Figures (a) and (c), respectively. After the magnetic field is reversed, the ferromagnetic domain is completely reversed [compare Fig. (a) and (b)]. In addition, the cycloidal spin-spiral domain pattern is perfectly intact but is reversed in its contrast by the magnetic-field reversal [compare Figs. (c) and (d)]. The simultaneous inversion of the two-types of domains by magnetic-field reversal means that a reversal of magnetization always accompanies that of spin-helicity in the cycloidal component. In other words, the domain walls of the cycloidal domains are completely clamped with ferromagnetic ones. This observation directly reveals the process of magnetization reversal in the transverse conical phase, that is, a  $180^\circ$  rotation of the cone axis around [001].

The reversal process of the magnetic structure, together with experimental results of the magnetoelectric effect, leads us to the conclusion that the magnetoelectricity in the Z-type hexaferrite originates mainly from the spin-dependent metal-ligand orbital hybridization with minor contribution from the asymmetric spin exchange interaction. Furthermore, such a mechanism is discussed by the symmetry analysis based on the Landau theory and is well described in terms of couplings among the coexisting order parameters included in the free energy. Thus, observations on field responses of multiple domains in multiferroics provide insights into underlying microscopic magnetoelectric-coupling mechanisms.

This work has been done in collaboration with Hiroki Ueda, Yoshikazu Tanaka, and Yusuke Wakabayashi.

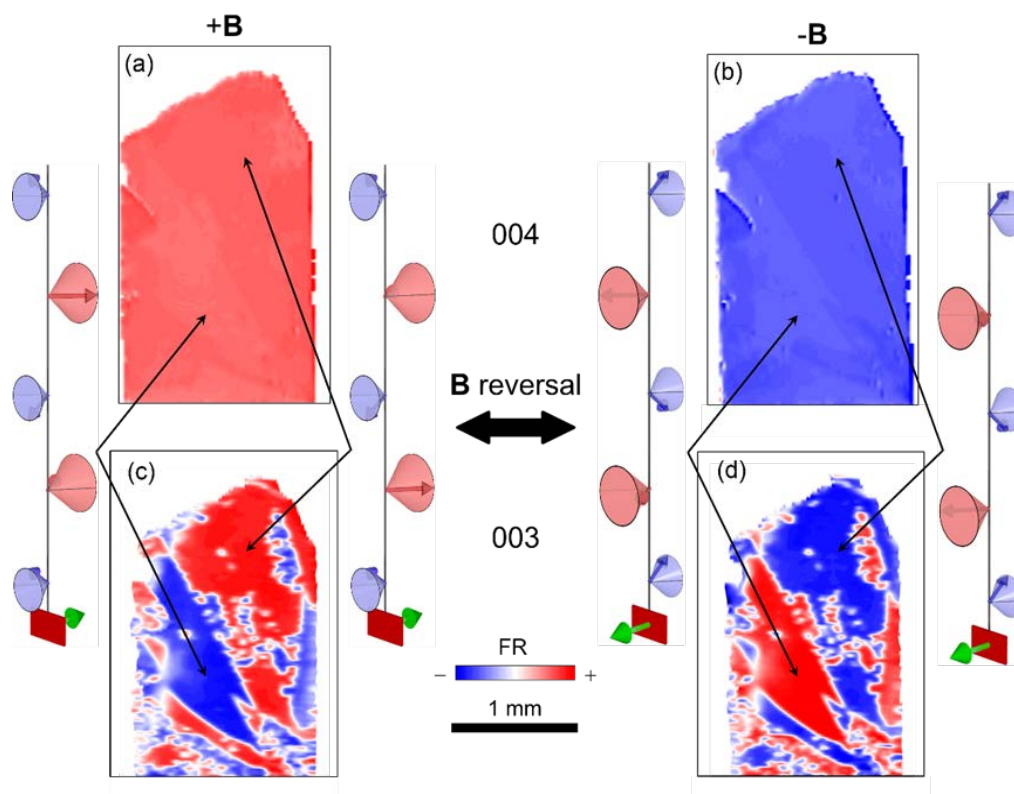


Figure | **The magnetic-field  $B$  reversal effect on spatial distributions of multiferroic domains.** (a),(b) The in-plane ferromagnetic [(c),(d) cycloidal spin-spiral] domains before (a) [(c)] and after (b) [(d)]  $B$  reversal. Schematics represent the corresponding transverse-conical magnetic structures. The data were obtained at room temperature by resonant x-ray microdiffraction measurements.

## References

- [1] Y. Kitagawa, Y. Hiraoka, T. Honda, T. Ishikura, H. Nakamura, and T. Kimura, *Nat. Mater.* **9**, 797 (2010).  
 [2] H. Ueda, Y. Tanaka, Y. Wakabayashi, and T. Kimura, *Phys. Rev. B* **100**, 094444 (2019).

研究室 HP: <http://crystal.k.u-tokyo.ac.jp/hp/>

秩序型ラーベス相超伝導体  $Mg_2Ir_3Si$  の発見

A01 班 工藤 一貴

一般式  $AB_2$  で表されるラーベス相は、様々な結晶構造を示し、物質開発の魅力的な舞台を与えてくれる[1]。代表的な結晶構造は  $C14$ 、 $C15$ 、 $C36$  型であり、それぞれ、六方晶  $MgZn_2$  型 ( $P6_3/mmc$ ,  $D_{6h}^4$ , No. 194)、立方晶  $MgCu_2$  型 ( $Fd\bar{3}m$ ,  $O_h^7$ , No. 227)、六方晶  $MgNi_2$  型 ( $P6_3/mmc$ ,  $D_{6h}^4$ , No. 194) に対応する。与えられた元素  $A$  と  $B$  に対してどの構造が安定するかについては、まだ完全には理解されていない。ラーベス相の基本構造は、 $MgZn_2$  型と  $MgCu_2$  型である。 $MgZn_2$  型では、 $B_4$  四面体が  $c$  軸に沿って頂点と面を交互に共有した構造を成し、 $MgCu_2$  型では、 $B_4$  四面体が全ての頂点を共有してパイロクロアネットワークを形成している。 $MgZn_2$  型と  $MgCu_2$  型を組み合わせると、 $MgNi_2$  型ができる。

三元系のラーベス相では、物質の種類がさらに豊富になる[1]。第一に、true ternary Laves 相と呼ばれる隠れた相が出現する。true ternary Laves 相の化合物を構成する元素から成る二元系のラーベス相化合物は存在しない。例えば、 $Ta(Ni,Al)_2$  と  $Nb(Ni,Al)_2$  は  $C14$  型の構造を取るが、二元系ラーベス相の  $TaNi_2$ 、 $TaAl_2$ 、 $NbNi_2$ 、 $NbAl_2$  は存在しない。第二に、秩序型の相が出現する。その相では、2種類の元素が  $B_4$  四面体を規則的に占有する。例えば、 $Mg_2Ni_3Si$ 、 $Ca_2Pd_3Ge$  ( $R\bar{3}m$ ,  $D_{3d}^5$ , No. 166)、 $Mg_2Cu_3Si$  ( $P6_3/mmc$ ,  $D_{6h}^4$ , No. 194) では、遷移金属元素( $TM$ )と典型元素( $X$ )が、 $B$  サイトにおいて  $TM_{3/4}X_{1/4}$  のように秩序配列し、 $TM$  のブリーディングカゴメネットワークと  $X$  の三角形ネットワークを形成している。もう一つの例が  $Li_2IrSi_3$  ( $P31c$ ,  $C_{3v}^4$ , No. 159) [2,3] である。この化合物は、 $B$  サイトで  $Ir_{1/4}Si_{3/4}$  の秩序配列を取り、 $Si$  のブリーディングカゴメネットワークと  $Ir$  の三角形ネットワークを形成している(図1右)。ちなみに、二元系ラーベス相の  $LiIr_2$  と  $LiSi_2$  は存在しないため、 $Li_2IrSi_3$  は true ternary Laves 相の化合物でもある。

本年度、私たちは、三元系ラーベス相化合物が有する構造の高い自由度に着目し、新物質の開発を行った。その結果、秩序型ラーベス相超伝導体  $Mg_2Ir_3Si$  ( $P6_3/mmc$ ,  $D_{6h}^4$ , No. 194) を発見した[1]。リートベルト解析により決定した結晶構造を図1左に示す。この化合物では、 $Ir$  と  $Si$  が、 $B$  サイトで  $Ir_{3/4}Si_{1/4}$  のように秩序配列し、 $Ir$  のブリーディングカゴメネットワークと  $Si$  の三角形ネットワークを形成している。 $A = Mg$  の  $Mg_2Ir_3Si$  (図1左)と  $A = Li$  の  $Li_2IrSi_3$  (図1右)を比べると、両者の間で  $Ir$  と  $Si$  のサイトが入れ替わっていることが分かる。これまで、 $B_4$  四面体における2種の元素の秩序配列を制御できるかどうかは不明であったが、この結果は、 $B$  サイトの秩序配列が  $A$  サイトの元素に依存して変化することを示唆している。

図2に、 $Mg_2Ir_3Si$  における電気抵抗率、磁化、比熱の温度依存性を示す。 $Mg_2Ir_3Si$  は、転移温度  $T_c = 7\text{ K}$  の超伝導を発現した[1]。図2(c)に示す比熱の飛びが、バルク超伝導であることを示している。比熱の飛びの大きさ  $\Delta C/\gamma T_c$  は 1.78 であった。室温までの電気抵抗率の温度依存性(not shown)が  $S$  字型であることと合わせると、やや強結合の超伝導と言える。

$Li_2IrSi_3$  については、筆者らを含む2つのグループが、 $T_c = 3.8\text{ K}$  の超伝導を報告しており[2,3]、これまでに、比熱の結果から弱結合の超伝導であること、第一原理計算から主に  $Si\ 3p$  がフェルミ準位の状態密度に寄与することが明らかになっている。 $Mg_2Ir_3Si$  の  $T_c = 7\text{ K}$  は、 $Li_2IrSi_3$  の  $T_c = 3.8\text{ K}$  に比べて著しく高い。図2(a)の挿入図に示すように、上部臨界磁場  $H_{c2}(T)$  について

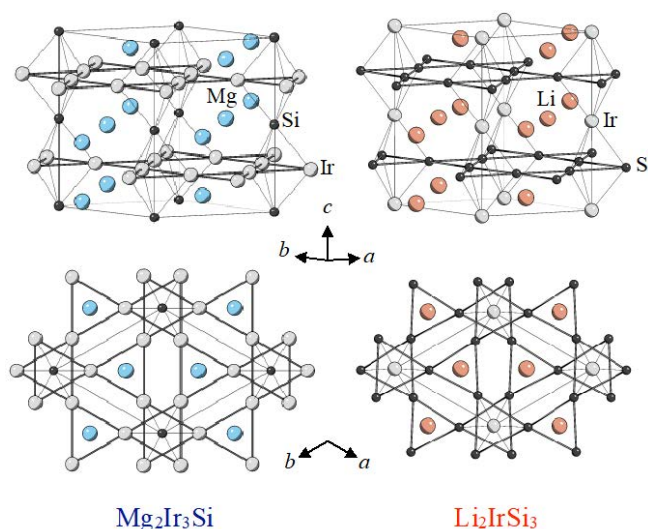


図1:  $Mg_2Ir_3Si$  ( $P6_3/mmc$ ,  $D_{6h}^4$ , No. 194) [1]と  $Li_2IrSi_3$  ( $P31c$ ,  $C_{3v}^4$ , No. 159) [2]の結晶構造。  $Ir$  と  $Si$  のサイトが、両化合物の間で入れ替わっている。



も、 $\text{Mg}_2\text{Ir}_3\text{Si}$ の方が著しく高い値を持つ[1]。絶対零度に外挿して得た  $H_{c2}(0)$ は、 $\text{Li}_2\text{IrSi}_3$ において 3 kOe、 $\text{Mg}_2\text{Ir}_3\text{Si}$ において 60 kOeであった。 $\text{Mg}_2\text{Ir}_3\text{Si}$ では、 $B$ サイトの秩序配列の変化に伴い、超伝導特性が大きく向上している。

以上まとめると、私たちは、三元系の秩序型ラーベス相化合物  $\text{Mg}_2\text{Ir}_3\text{Si}$  を発見した。この化合物は、 $\text{Ir}$ のブリージングカゴメネットワークと  $\text{Si}$ の三角形ネットワークを持ち、 $T_c=7\text{K}$ の超伝導を示した。この  $T_c$ は、 $\text{Si}$ のブリージングカゴメネットワークと  $\text{Ir}$ の三角形ネットワークを持つ  $\text{Li}_2\text{IrSi}_3$ の 3.8 K よりも著しく高い。 $\text{Mg}_2\text{Ir}_3\text{Si}$ において超伝導特性が向上した原因を明らかにするために、今後、 $\text{Ir}$ のブリージングカゴメネットワークの性質を詳しく調べる必要がある。さらに、秩序型ラーベス相の構造を制御するパラメーターを調べ、 $A$ サイトの元素に依存して  $B$ サイトの秩序配列が変化する理由を明らかにすれば、秩序型ラーベス相が有用な物性開拓の場になると考えられる。

本研究は、岡山大学の野原実、柗輝、本田寿明、藤村一徳、出井宏幸の各氏との共同研究によるものである。

参考文献

- [1] K. Kudo, H. Hiiragi, T. Honda, K. Fujimura, H. Idei, and M. Nohara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **89**, 013701 (2020) [<https://doi.org/10.7566/JPSJ.89.013701>].
- [2] S. Pyon, K. Kudo, J. Matsumura, H. Ishii, G. Matsuo, M. Nohara, H. Hojo, K. Oka, M. Azuma, V. O. Garlea, K. Kodama, and S. Shamoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 093706 (2014) [<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.093706>].
- [3] D. Hirai, R. Kawakami, O. V. Magdysyuk, R. E. Dinnebier, A. Yaresko, and H. Takagi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 103703 (2014) [<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.103703>].

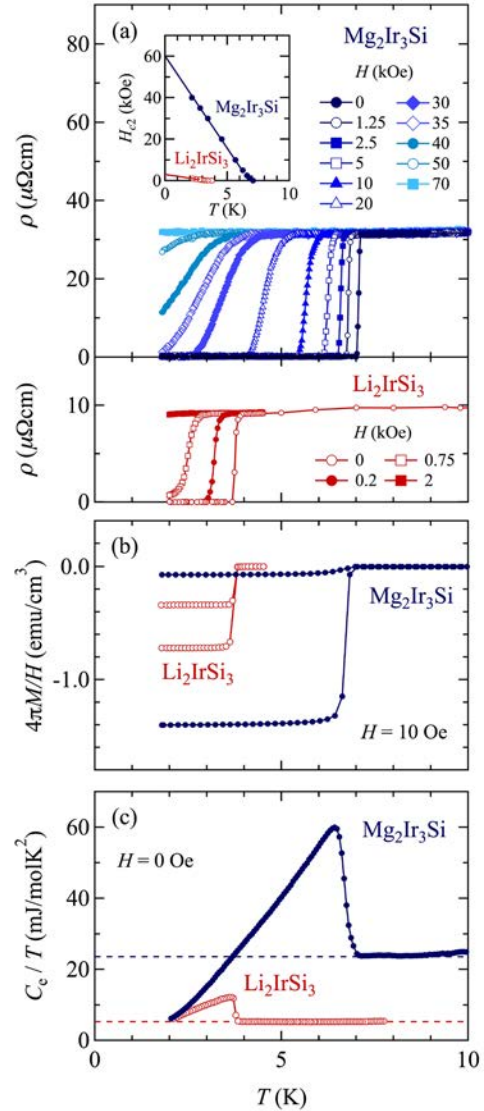


図2:  $\text{Mg}_2\text{Ir}_3\text{Si}$  [1]と  $\text{Li}_2\text{IrSi}_3$  [2]における電気抵抗、磁化、電子比熱の温度依存性。

## 高圧合成および薄膜成長を用いた量子液晶新物質開拓

A01 班 島川 祐一

非自明な対称性の破れを伴う量子液晶状態を示す新規物質探索を合成手法の開拓と併せて進めている。特に、高圧合成とエピタキシャル薄膜作製に注力して、物質作成と評価を行った。

### (1) A サイト秩序型ペロブスカイト構造酸化物 $\text{CaFe}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$ の高圧合成と特異な磁気構造

高圧合成ではしばしば特異なカチオン秩序配列を示す物質群を得ることができる。その例の一つとして、一般式  $\text{AA}'_3\text{B}_4\text{O}_{12}$  で表される A サイト秩序型ペロブスカイト構造酸化物がある。多くのペロブスカイト構造酸化物では、B サイトに遷移金属イオンが入り、その磁気輸送特性に重要な役割を果たすが、A サイト秩序型ペロブスカイト構造酸化物では、平面 4 配位となった A' サイトにも遷移金属イオンが入り多彩な磁気・輸送特性を示すことが特徴である。そのため、複数サイトの遷移金属イオンの協奏による新たな量子液晶新物質開拓の舞台となることが期待される。<sup>1)</sup>

磁気特性に注目すると、単純ペロブスカイト構造酸化物では、一般に B サイトの磁性イオン間に酸素を介した超交換相互作用に基づく磁気相互作用がみられるが、A サイト秩序型ペロブスカイト構造酸化物で A' サイトに磁性イオン、B サイトに非磁性イオンが入ると珍しい A サイトの磁性イオンにのみ起因する多彩な磁気特性が現れる。例えば、 $\text{CaCu}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$  では A サイトの  $\text{Cu}^{2+}$  ( $S=1/2$ ) が  $T_N=25\text{ K}$  の G 型反強磁性となるが、B サイトが非磁性の  $\text{Ge}^{4+}$  や  $\text{Sn}^{4+}$  の場合には、A サイトの  $\text{Cu}^{2+}$  ( $S=1/2$ ) が  $T_c=13\text{ (Ge), 10 (Sn) K}$  の強磁性となることが知られている。また、 $\text{YMn}_3\text{Al}_4\text{O}_{12}$  では  $\text{Mn}^{3+}$  ( $S=2$ ) が  $T_N=37\text{ K}$  の G 型反強磁性を示す。<sup>2)</sup>

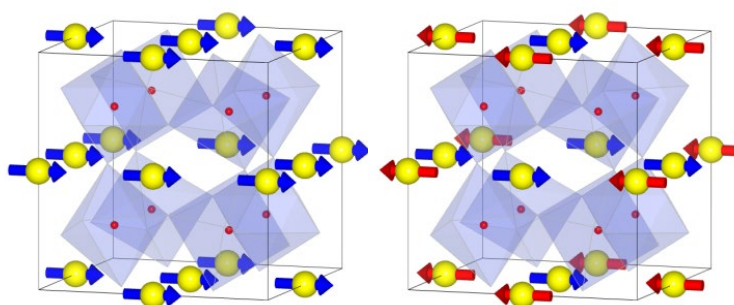


図 1.  $\text{CaCu}_3(\text{Ge, Ti, Sn})_4\text{O}_{12}$  での A サイトの  $\text{Cu}^{2+}$  ( $S=1/2$ ) の強磁性 (左) と反強磁性 (右)

今期に注目したのは、酸素八面体中の B サイト  $\text{Ti}^{4+}$  が非磁性であり、A サイトにある酸素平面 4 配位の  $\text{Fe}^{2+}$  ( $S=2$ ) が立方晶の面心位置で磁気格子を作る A サイト秩序型ペロブスカイト構造酸化物  $\text{CaFe}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$  である。この物質では低温まで磁気秩序が見出されていなかったが、最近、 $T_N=2.8\text{ K}$  で反強磁性的長距離磁気秩序を示し、 $T_N$  以下では、特異な磁気構造となることを見出した。 $\text{CaCu}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$  での  $\text{Cu}^{2+}$  ( $S=1/2$ ) の  $T_N=25\text{ K}$ 、 $\text{YMn}_3\text{Al}_4\text{O}_{12}$  での  $\text{Mn}^{3+}$  ( $S=2$ ) の  $T_N=37\text{ K}$  の反強磁性を考えると、磁気モーメントの大きい  $\text{Fe}^{2+}$  ( $S=2$ ) でのこの低い  $T_N$  は、この系での磁気フラストレーションを強く示唆する。

中性子回折では  $T_N$  以下で  $k=(1/2, 1/2, 0)$  の磁気回折ピークが観測され、直交する 3 つのスピ副格子による反強磁性磁気構造が明らかとなった。酸素平面 4 配位の  $\text{Fe}^{2+}$  にはスピン軌道相互作用のために強い異方性がはたらき、その結果、第一および第二近接の  $\text{Fe}^{2+}$  スピンが直交する。各副格子を形成する第三近接  $\text{Fe}^{2+}$  スピン間では、強磁性と反強磁性が両立する複雑な磁気構造である。さらに、この反強磁性状態は外部磁場を印加すると強磁性へと転移することも明らかとなってきた。



(2) 遍歴強磁性 SrRuO<sub>3</sub> 薄膜の作成とその特異な磁気輸送特性

4d 遍歴強磁性体である SrRuO<sub>3</sub> ではフェルミ準位付近に交差を持つ特異なバンド構造に起因した特異な磁気輸送特性が現れる。例えば、温度変化や電界印加によるベリー曲率の変化に応じて異常ホール効果の符号が反転することなどが知られている。最近では、単純な異常ホール効果の描像では説明できないホール抵抗率のピークも見出されており、トポロジカルホール効果や磁気スキルミオンがそのような物性に関与するという指摘もあり注目を集めている。本研究ではエピタキシャル SrRuO<sub>3</sub> 薄膜を作製し、その輸送特性が電界印加によって示す特異な振る舞いに注目した。

パルスレーザー堆積法により(110)NdGaO<sub>3</sub> 基板上に SrRuO<sub>3</sub> 薄膜をエピタキシャル成長させ、SrRuO<sub>3</sub>/NdGaO<sub>3</sub> ヘテロ構造を作製した。フォトリソグラフィによって試料をホールバー形状に加工した後、原子層堆積法により HfO<sub>2</sub> ゲート絶縁層を積層させ、SrRuO<sub>3</sub> 層へゲート電圧 ( $V_G$ ) を印加して、異常ホール効果 ( $\rho_{\text{AHE}}$ ) の測定を行った。この薄膜では約 27 K と 77 K において  $\rho_{\text{AHE}}$  の符号反転が見られる。この符号反転温度近傍 (76.6 K) での  $\rho_{\text{AHE}}$  の外部磁場依存性では、トポロジカルホール効果と報告されたものに似た複数のピーク形状を示す変化が観測される。しかしながら、 $V_G$  の印加によって  $\rho_{\text{AHE}}$  の符号だけでなくこのピーク構造も変調されることなどから、観測されたピーク構造やその変調がトポロジカルホール効果ではなく、「薄膜中に正と負の異常ホール効果を示す領域が共存する」というモデルを用いても説明することが可能である。<sup>3,4)</sup>

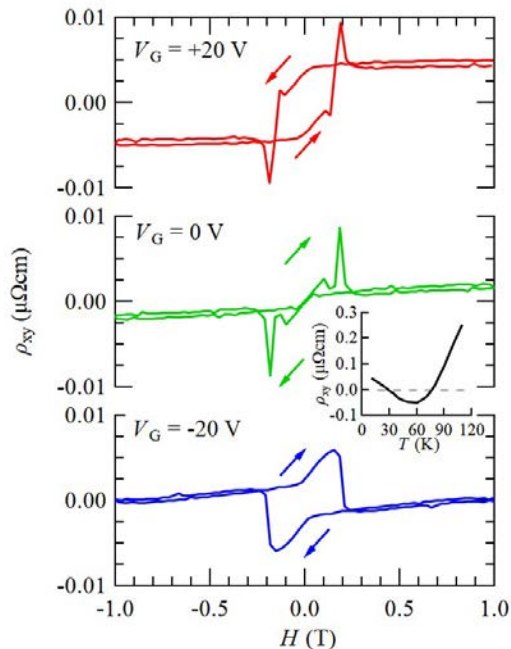


図2. SrRuO<sub>3</sub>/NdGaO<sub>3</sub>ヘテロ構造における異常ホール抵抗率  $\rho_{\text{AHE}}$  の外部磁場依存性

## 参考文献

- [1] Y. Shimakawa, *J. Phys. D* **48**, 504006/1-13 (2015). DOI: 10.1088/0022-3727/48/50/504006  
 [2] Y. Shimakawa and T. Saito, *Physica Status Solidi B* **249**, 423-434 (2012). DOI: 10.1002/pssb.201147477  
 [3] D. Kan and Y. Shimakawa, *Appl. Phys. Lett.* **115**, 022403 (2019). DOI: 10.1063/1.5097927  
 [4] D. Kan, T. Moriyama, and Y. Shimakawa, *Phys. Rev. B* **101**, 014448/1-5 (2020). DOI: 10.1103/PhysRevB.101.014448

研究室 HP: <https://www.scl.kyoto-u.ac.jp/~shimakgr/index.html>

## 分光イメージング走査型トンネル顕微鏡による量子液晶の研究

B01 班 花栗 哲郎

我々のチームは、電子状態の実空間分布を調べる実験手法である分光イメージング走査型トンネル顕微鏡(Spectroscopic-Imaging Scanning Tunneling Microscopy: SI-STM)を用いて、様々な量子液晶の空間構造と電子励起スペクトルを解明することを目指している。本年度は、電子対液晶の一形態である Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO)状態の可能性がある鉄系超伝導体 FeSe の低温高磁場相の研究を行うとともに、スキルミオン格子をはじめとする様々な磁気秩序を示す遍歴磁性体  $\text{GdRu}_2\text{Si}_2$  をスピン液晶物質としてとらえ、磁気構造が伝導電子に与える影響を調べた。

## FeSe における低温高磁場相の分光イメージング

鉄系超伝導体 FeSe は、軌道秩序に関連したネマティック状態で超伝導を示す典型的な電荷液晶物質であるが、電子対液晶の候補物質としても有力である。FeSe は、Fermi エネルギー  $E_F$  が数 meV ~ 10 meV と極めて小さい一方、超伝導ギャップ  $\Delta$  が数 meV と比較的大きく、弱結合極限の BCS 超伝導と強結合極限の BEC 超伝導のクロスオーバー領域にあると考えられる [1]。  $E_F$  と  $\Delta$  の比  $\Delta/E_F$  は、軌道効果による上部臨界磁場と、スピン磁化による上部臨界磁場の比におおよそ対応する。すなわち、大きな  $\Delta/E_F$  を持つ超伝導体では、スピン磁化の効果が顕著になることを意味している。このような場合、強磁場中で超伝導ギャップが印加磁場の方向に周期的に振動する FFLO 状態に転移することが期待される [2]。超伝導を担う Cooper 対密度が非自明な空間構造を持つことから、FFLO 状態は電子対液晶の一種とみなすことができる。FeSe では、c 軸方向へ磁場を印加した場合、1.5 K 以下の低温、約 14 T 以上の強磁場中で低磁場とは異なる超伝導相への相転移が熱伝導度測定から示唆されている [1]。この高磁場超伝導相が低磁場相とどのように異なる電子状態を持つのか、FFLO 状態とどのような関係にあるのか、興味もたれるが、このような極端条件下での分光実験が困難であるため、電子状態の詳細は分かっていなかった。

我々は、90 mK 以下の超低温、17.5 T の強磁場に到達できる走査型トンネル顕微鏡を用い、FeSe の電子状態を調べた。図 1 に約 90 mK において c 軸方向の様々な磁場中で得た  $E_F$  におけるトンネルコンダクタンスマップを示す。8 T の磁場中では明瞭な渦糸格子が観測された。渦糸芯はネマティシティを反映して大きな面内異方性を持つ。磁場の上昇とともに渦糸像は不明瞭になり、高磁場相が現れる 14 T 以上では渦糸像は観測されなかった。同一試料における電気抵抗の測定から、この温度における上部臨界磁場は 16 T 以上と見積もられるので、渦糸コントラストの消失は常伝導状態に転移したためではない。もし高磁場相が FFLO 状態であれば、コントラストの消失は次のように理解される。FFLO 状態では、磁場方向に周期的な超伝導ギャップの節が現れる。試料表面で超伝導が弱められている場合、節が表面にピン止めされた方が超伝導凝集エネルギーの損が小さい。したがって、超伝導状態であっても、SI-STM で観測される表面の電子状態は、常伝導と変わらなくなると考えられる。FFLO 状態のより直接的な検出のためには、観測表面に平行な磁場中での実験が必要である。

本研究は、B01 班の笠原グループ、芝内グループ、京大物理の松田グループとの共同研究である。

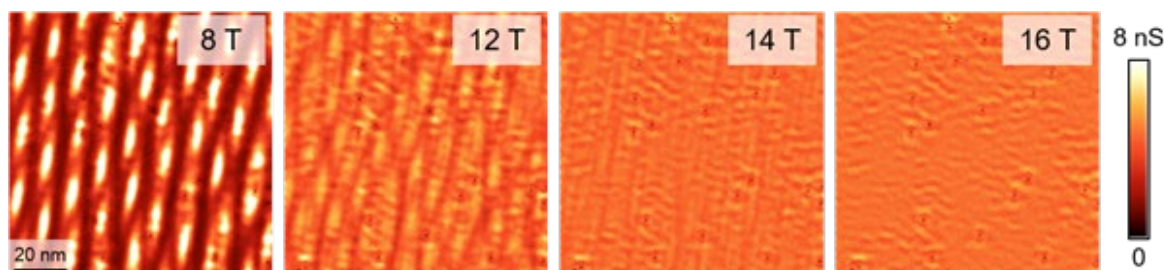


図 1：約 90 mK の超低温強磁場中で得られた FeSe の  $E_F$  におけるコンダクタンスマップ (100 nm × 100 nm)。磁場は c 軸方向に印加。バイアス電圧：+20 mV、トンネル電流：0.1 nA。

GdRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>における伝導電子を介した磁気構造イメージング

GdRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>は、磁性を担う Gd 層と伝導を担う RuSi 層が積層した金属磁性体であり、約 45 K 以下で Gd の局在磁気モーメントは波数  $Q_1 = (0.22, 0, 0)$  で特徴づけられる螺旋秩序を示す [3]。c 軸方向に磁場を印加すると、約 0.21 T から約 0.26 T の狭い磁場範囲で  $Q_1$  とそれに垂直な  $Q_2 = (0, 0.22, 0)$  との重ね合わせによる double-Q スキルミオン正方格子が現れる [3]。より高磁場では、Gd モーメントがほぼ磁場方向を向いた Fan 相が現れるが、これが single-Q であるか、double-Q であるかは明らかになっていない [3]。10 T 以上の強磁場では、全ての Gd モーメントが磁場方向に完全偏極する [3]。このような多様な磁気秩序は、伝導電子を介した高次の Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida 相互作用に起因すると考えられる [4]。本研究では、逆に、磁気秩序が伝導電子に与える影響を SI-STM を用いて調べた。

劈開によって得られる Si 終端面と Gd 終端面のうち、Si 終端面でのみ STM 像に明瞭な格子像が観測された。Si 終端面において、トンネルコンダクタンスマップの詳細な印加磁場依存性を調べたところ、図 2 に示すように、磁気秩序に応じて電子状態に特徴的な空間構造が現れることが分かった。Fourier 解析によって、各相における電子状態変調の特徴的な波数を調べたところ、完全偏極相を除く全ての相で  $2Q_1$ 、 $2Q_2$  が観測された。また、スキルミオン相でのみ  $Q_1$ 、 $Q_2$  が観測された。螺旋相では、a 軸方向と b 軸方向に異方性があり、single-Q を基にした構造と矛盾しない。一方、スキルミオン相以上の高磁場では電子状態は 4 回対称であり、スキルミオン格子だけでなく Fan 相も double-Q であることが分かった。これらの電子状態分布は、局在モーメントと伝導電子間の交換相互作用を考えたモデルで再現できた。これらの結果は、局在モーメントの構造を電気的に調べる手法に繋がることが期待される。

本研究は、C01 班の有田グループ、求グループ、D01 班の有馬グループ、理研 CEMS・東大の十倉グループ、東大理工の関グループとの共同研究である。

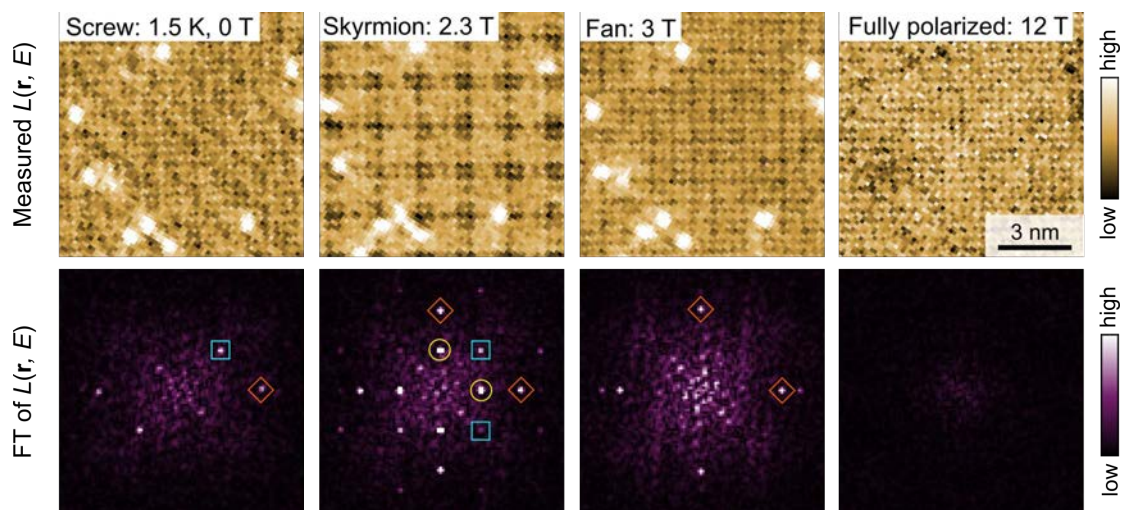


図 2 : GdRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の Si 終端面における -20 meV における規格化コンダクタンスマップ  $L \equiv (dI/dV)/(I/V)$  とその Fourier 変換像。黄○ :  $Q_1$ 、 $Q_2$ 、赤◇ :  $2Q_1$ 、 $2Q_2$ 、青□ :  $Q_1 \pm Q_2$ 。磁場は c 軸方向に印加した。温度 : 約 1.5 K、バイアス電圧 : +100 mV、トンネル電流 : 0.1 nA。

## 参考文献

- [1] S. Kasahara, T. Hanaguri, H. Ikeda, T. Shibauchi, Y. Matsuda *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **111**, 16309 (2014) [<https://doi.org/10.1073/pnas.1413477111>].  
 [2] Y. Matsuda and H. Shimahara, *JPSJ* **76**, 051005 (2007) [<https://doi.org/10.1143/JPSJ.76.051005>].  
 [3] N. D. Khanh, T. Arima, S. Seki, *et al.*, *arXiv:2003.00626* [<https://arxiv.org/abs/2003.00626>].  
 [4] S. Hayami, R. Ozawa, and Y. Motome, *PRB* **95**, 224424 (2017) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.224424>].

研究室 HP: <https://cems.riken.jp/jp/laboratory/epmrt>



## 精密バルク物性測定による量子液晶の探索と解明

B01班 氏名 笠原 成

我々は超高感度の磁気トルク測定や強磁場熱輸送測定など、各種精密バルク測定を通じて量子液晶の研究に取り組んでいる。本年度は、銅酸化物高温超伝導体の擬ギャップ状態において従来にはない電子ネマティック秩序が実現していることを発見するとともに、強磁場・極低温領域での熱輸送測定システムを欧州の強磁場施設に立ち上げ、鉄系超伝導体において電子対液晶状態の存在を見出すに至った。また、二次元三角格子系における量子スピン液体状態の研究にも取り組み、遍歴的ギャップレス励起とランダムネスによって誘起される局在励起の微視的共存状態を明らかにした。

(1) 銅酸化物高温超伝導体  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+d}$  の擬ギャップ状態における新奇な電荷液晶状態

銅酸化物高温超伝導体に関する膨大な研究において、アンダードープ領域に広がる擬ギャップ状態の問題は現代物理学における最大の謎の一つとされてきた。擬ギャップの出現機構については、これまで様々な提唱がなされてきたが、未だ解明には至っておらず、これがクロスオーバーにより現れているのか、或いは何らかの相転移現象によるものであるのかも論争とされてきた。我々のグループでは、その様な中、銅酸化物高温超伝導体  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+d}$  において超高感度の面内磁気トルク測定を行うことで、擬ギャップ温度  $T^*$  において電子系が結晶の面内四回回転対称性を自発的に破る相転移が起きており、擬ギャップ状態が電子ネマティック相(電荷液晶相)であることを報告してきた[1]。ただし、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+d}$  は斜方晶構造をもち、格子の四回回転対称性も破れている。このため、電子系の自発的対称性の破れを真に示すには、正方晶構造をもつ系での検証が重要となる。そこで本研究では、正方晶構造を有する銅酸化物超伝導体  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+d}$  に着目し、面内磁気トルクの精密測定を行なった[2]。

本研究の結果、 $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+d}$  においても  $T^*$  以下において回転対称性の破れが確認され、擬ギャップ状態が自発的回転対称性の破れに伴った電子ネマティック相である熱力学的証拠を得た。さらに注目すべきことに、この物質の回転対称性の破れは、これまで銅酸化物で議論されてきた[100]/[010]方向(Cu-O-Cu 方向)のネマティシティとは異なり、[110]方向に発達していること、また電荷密度波(CDW)温度以下で強く抑制されることが明らかになった(図 1)。この結果は、擬ギャップ相が Cu-O-Cu ボンド方向への相関の発達を示す CDW 相とは別の機構によって生じた秩序相であり、CDW のゆらぎや前駆現象ではないという重要な結果を示している。本研究結果は、様々な論争がなされてきた擬ギャップ状態の起源について強い制約を与える非常に重要な結果と考えられる。

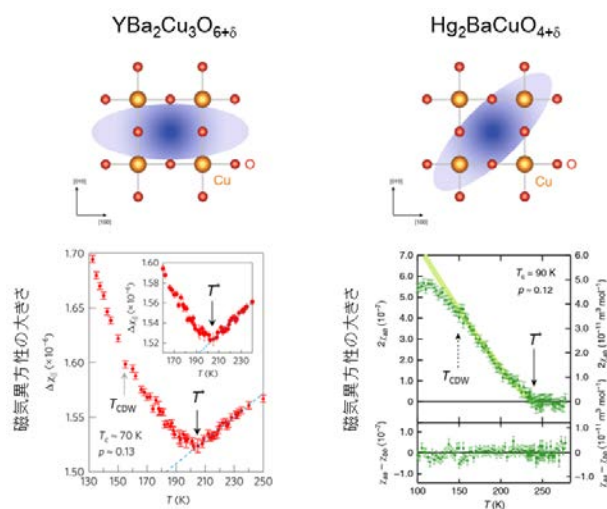


図 1:  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$  および  $\text{HgBa}_2\text{CuO}_{4+x}$  における  $\text{CuO}_2$  面に対する面内回転対称性の破れのイメージ図(上図)と磁気異方性の温度依存性(下図) [1, 2]。

## (2) BCS-BEC クロスオーバー領域にある鉄系超伝導体の電子対液晶状態

有限の重心運動量を持ったクーパ対が形成される Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) 超伝導は、固体電子系のみならず、冷却原子系や高エネルギー物理学においてもその存在が議論されているエキゾチック量子凝縮状態である。FFLO 状態では超伝導秩序変数が実空間で変調した並進対称性の破れた状態が実現するとされ、これは電子対液晶の典型例とみることができる。FFLO 状態の探索は過去に様々な系で試みられてきたものの、その候補物質は数える程しかなかった。

鉄系超伝導体  $\text{FeSe}$  は FFLO 状態が実現する有力な候補物質である。この物質は、異常に小さなフェルミエネルギー  $\epsilon_F$  と、これと同程度の超伝導ギャップ  $\Delta$  を有することから、BCS-BEC クロスオーバー領域に位置すると考えられ [3]、また、Maki パラメータ  $\alpha_M = 2^{1/2} H_{c2}^{\text{orb}}/H_{c2}^{\text{p}} \sim 2m^*/m_e \cdot \Delta/\epsilon_F$  が非常に大

きいこと、面内方向での上部臨界磁場が低温で上昇を示すことなどから、低温・高磁場領域において FFLO 状態が実現する可能性が考えられている。

今回我々は、欧州強磁場機構の一つであるナイメーヘン強磁場研究所（オランダ）において、最大磁場 35 T、最低温度域 0.5 K という未踏の熱伝導率測定が可能なシステムを新たに立ちあげ、FeSe の超純良単結晶を用いて、面内に磁場を印加した際の超伝導状態を調べた。その結果、熱伝導率に顕著な異常を観測し、およそ 2 K 以下、24 T 以上の低温高磁場域で一次相転移によって隔てられた FFLO 状態と考えられる新たな超伝導状態が実現していることを見出した(図 2)。FeSe の FFLO 状態ではフェルミ面を構成する Fe の軌道成分に依存した特異な電子対形成が実現していると考えられ、今後、その特徴を解明していくことが重要になると考えられる。

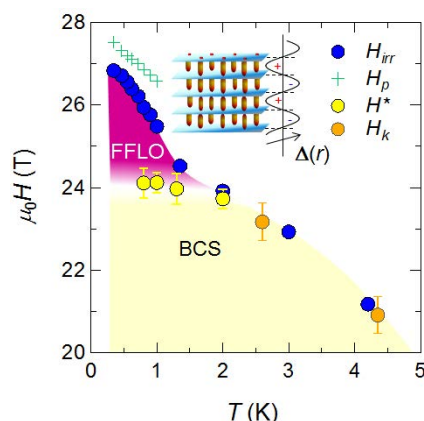


図 2: FeSe の面内磁場中における温度磁場相図。24 T 以上の低温高磁場中で一次相転移によって隔てられた FFLO 状態が実現する。

### (3) 量子スピン液体における局在孤立スピンと遍歴励起の共存

強い量子揺らぎによって絶対零度までスピンの凍結しない量子スピン液体状態は、物質が示す新しいエキゾチック状態として注目を集めている。本研究では、量子スピン液体における素励起の詳細を調べる為、遷移金属カルコゲナイド 1T-TaS<sub>2</sub> において極低温における熱伝導率と比熱の測定を行なった。この物質は約 200 K において電荷密度波相への相転移を示し、ダビデの星と呼ばれる 13 個の Ta からなるクラスターが形成される。低温においてはモット絶縁体状態となり、各クラスターに局在したスピン 1/2 が歪みのない二次元三角格子を形成することから、量子スピン液体の理想的候補物質と考えられる。まず、1T-TaS<sub>2</sub> は絶縁体であるにもかかわらず、有限の比熱係数と残留熱伝導率を示すことが明らかになった。熱伝導率は遍歴的励起に、比熱は局在および遍歴的励起の両者に敏感であり、熱伝導率の残留値は、1T-TaS<sub>2</sub> においてスピノンのような遍歴的ギャップレス励起が存在すること示している。更に本研究では、欠損などのランダムネスが量子スピン液体の素励起に与える影響を調べる為、Se ドープ、並びに電子線照射により系統的に乱れを導入した試料での実験を行った。その結果、遍歴的励起はランダムネスの導入により抑制されることが確認され、また、磁場中での比熱が特徴的なスケールリング則に従うことを明らかにした。これは量子スピン液体状態と、ランダムネスにより誘起された孤立スピンとが共存し、更に孤立スピン同士はシングレットを形成することで局在的な励起を生じているという描像で説明される。

### 参考文献

- [1] Y. Sato, S. Kasahara, H. Murayama, Y. Kasahara, E.-G. Moon, T. Nishizaki, T. Loew, J. Porras, B. Keimer, T. Shibauchi and Y. Matsuda, *Nature Physics* **13**, 1074 (2017) [<https://doi.org/10.1038/nphys4205>].
- [2] H. Murayama, Y. Sato, R. Kurihara, S. Kasahara, Y. Mizukami, Y. Kasahara, H. Uchiyama, A. Yamamoto, E.-G. Moon, J. Cai, J. Freyermuth, M. Greven, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, *Nature Communications*, **10**, 3282 (2019) [<https://doi.org/10.1038/s41467-019-11200-1>].
- [3] S. Kasahara, T. Hanaguri, H. Ikeda, T. Shibauchi, Y. Matsuda et al., *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **111**, 16309 (2014) [<https://doi.org/10.1073/pnas.1413477111>].
- [4] S. Kasahara, Y. Sato, S. Licciardello, M. Čulo, S. Arsenijević, T. Ottenbros, T. Tominaga, J. Böker, I. Eremin, T. Shibauchi, J. Wosnitza, N. E. Hussey, and Y. Matsuda, *Physical Review Letters* **124**, 107001 (2020) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.124.107001>].
- [5] H. Murayama, Y. Sato, T. Taniguchi, R. Kurihara, X. Z. Xing, W. Huang, S. Kasahara, Y. Kasahara, I. Kimchi, M. Yoshida, Y. Iwasa, Y. Mizukami, T. Shibauchi, M. Konczykowski, and Y. Matsuda, *Phys. Rev. Research* **2**, 013099 (2020) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.2.013099>].

## 中性子散乱による磁気スキルミオン格子の電流中の駆動状態解明の研究

B01 班 佐藤卓

連続的に変形可能な場で定義できる位相幾何学的な欠陥は、結晶の螺旋欠陥や、液晶中の欠陥、第二種超伝導体の渦糸など物理現象の中で広く存在している。最近、このような欠陥が渦状の磁気構造「磁気スキルミオン」として磁気現象中にも存在することが発見され注目を集めている。結晶の空間反転対称性の破れたカイラル磁性体  $\text{MnSi}$  では、中性子小角散乱実験により 6 回対称の磁気スキルミオン反射が観測され、磁気スキルミオンが高密度に存在し三角格子をなすことが明らかにされている。磁気スキルミオンが三角格子を形成した場合の概念図を図 1 に示す。このような位相幾何学的な欠陥は外力により流動する。流動中の位相幾何学的欠陥の動力学研究は第二種超伝導体の渦糸を対象に盛んに行われているが、スピンの配列の情報が得られる中性子散乱を用いて流動中の位相幾何学的欠陥を研究した例は著者の知る限りあまり存在しない。この理由として第二種超伝導体の渦糸からの中性子回折強度が非常に弱いことがある。 $\text{MnSi}$  の磁気スキルミオン反射強度は典型的な渦糸格子からの中性子回折強度に比較し 5 桁以上強いことが予想されるため、外力下での中性子小角散乱実験が可能と判断し研究を開始した。外力下で駆動している磁気スキルミオン格子の状態が中性子回折実験によって明らかにされれば、第二種超伝導体の渦糸や液晶中の欠陥等の動力学解明に寄与するものと考えられるため、本研究遂行による波及効果は大きいと考えている。

低温で磁気スキルミオン格子を形成する典型物質である  $\text{MnSi}$  において、電流下で駆動中の磁気スキルミオン格子の変形を捉えるべく、スイスの PSI 及び米国の NIST の中性子源を使って電流下中性子小角散乱実験を行なった。高電流かつ低熱勾配下での実験が可能な独自の試料セルを開発することで、2 Ampere 程度の電流下でも熱勾配が 0.03 K/mm 以下の条件を保ちつつ 30 K まで冷却して中性子実験を行うことに成功した。また、電流下で駆動している磁気スキルミオン格子が試料端から受ける影響を調べるため、図 2(a)のように左右それぞれ試料端から 0.2 mm 程度の領域のみに中性子を照射した実験を行なった。

小角中性子散乱実験の結果を図 2 (b) に示す。無電流時は中性子の照射位置に関わらずほぼ同じ角度位置に 6 回対称の磁気スキルミオン反射が観測された。一方、高電流下 ( $j = 2.7 \times 10^6 \text{ A/m}^2$ ) では磁気スキルミオン反射が無電流で観測された位置から回転していることが観測された。高電流下において試料の右端と左端に中性子を照射して得られる磁気スキルミオン反射はそれぞれ逆方向に回転しており、電流を反転すると回転方向も反転した。しかし、磁場の反転に対しては磁気スキルミオン反射の回転は変化しないことが分かった。この磁気スキルミオン反射の回転には、非常に小さな  $j_t \sim 10^6 \text{ A/m}^2$  程度の閾電流密度が存在することが分かった。この値はトポロジカルホール効果の電流密度依存性より磁気スキルミオンの駆動状態を間接的に議論した先行研究で得られている閾電流密度と一致している。また、一度閾電流密度を超えると磁気スキルミオン格子の回転現象は電流を切っても保たれるメモリー効果が存在していることも分かった。閾電流密度よりも高い電流密度下で観測された反射は 6 回対称の回折線を保ち乱れが少ないことから磁気スキルミオンは三角格子を保ったまま駆動していると考えられる。以上の実験結果と合致するような電流下での磁気スキルミオン反射の回転を説明するモデルを以下に説明する。閾値以上の電流下では磁気スキルミオンは格子を保ったまま流

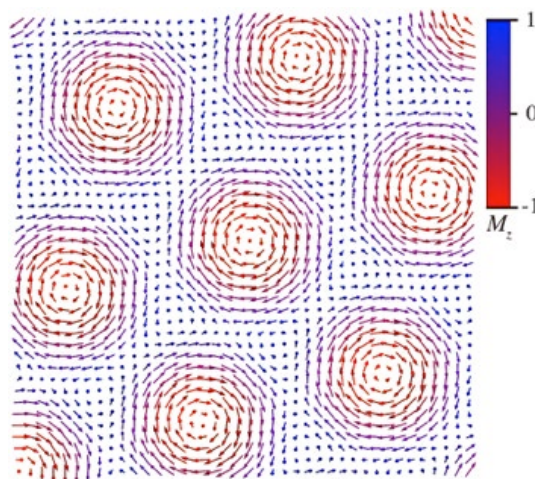


図 1: 磁気スキルミオン格子の概念図。矢印の方向はそれぞれの場所でのスピンの方向を指している。紙面垂直方向のスピンの成分は矢印の色で表されている。



動を始めるが、図 2(c)のように試料端からの（おそらくピン留め効果による）摩擦力的な影響を受け、端付近の流動が相対的に遅くなると予想される。この結果磁気スキルミオン格子が曲げ塑性変形をうけるのであろう[1]。

このように駆動中の磁気スキルミオン反射は塑性変形に伴う回転を示すことが分かった。この磁気スキルミオン反射は電流反転によりその回転方向を反転するため、電流反転後の過渡過程が存在するはずである。そこで磁気スキルミオン格子の電流反転に対する応答時間を調べるべく、交流電流を印加して中性子小角散乱実験を行なった。その結果、電流反転に対する磁気スキルミオン格子の回転の追従には、数秒程度の緩和時間を要することが判明した。このような緩和は磁気現象としては非常に遅く、位相幾何学的な欠陥の特徴を表していると考えている。

また、我々は最近、MnSi の Si サイトを Ge で置換した  $MnSi_{1-x}Ge_x$  において、Ge をドーブすると磁気交換相互作用と DM 相互作用が増大することで、螺旋磁気転移温度  $T_C$  及び磁気スキルミオン格子相の温度領域が著しく増大することを発見した[2]。以上のように当グループでは位相幾何学的な欠陥である磁気スキルミオン格子の特徴を捉えるべく中性子散乱を用いた研究を行っている。

尚、本研究は、奥山大輔氏（東北大学多元物質科学研究所）を中心とした東北大グループ、PSI グループ、NIST グループ、理研グループの共同研究である。

参考文献

[1] D. Okuyama, M. Bleuel, J.S. White, Q. Ye, J. Krzywon, G. Nagy, Z.Q. Im, I. Zivkovic, M. Bartkowiak, H.M. Ronnow, S. Hoshino, J. Iwasaki, N. Nagaosa, A. Kikkawa, Y. Taguchi, Y. Tokura, D. Higashi, J.D. Reim, Y. Nambu, **T.J. Sato**, Commun. Phys. **2**, 79 (2019) [<https://doi.org/10.1038/s42005-019-0175-z>].  
 [2] S. Aji, H. Ishida, D. Okuyama, K. Nawa, T. Hong, **T.J. Sato**, Phys. Rev. Matt. **3**, 104408 (2019) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.3.104408>].

研究室 HP: [http://www2.tagen.tohoku.ac.jp/lab/sato\\_tj/](http://www2.tagen.tohoku.ac.jp/lab/sato_tj/)

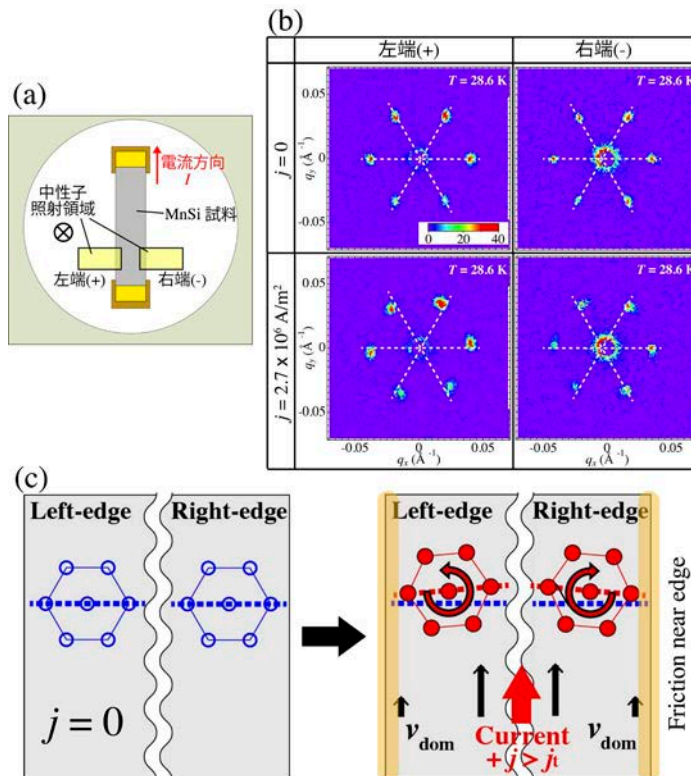


図 2: (a) カイラル磁性体 MnSi の試料端に中性子を照射した概念図。(b) 配置(a)で観測された無電流及び電流下での磁気スキルミオン反射。電流下では磁気スキルミオン反射の回転が見られる。(c) 電流下の磁気スキルミオン反射の回転を説明するモデル。スキルミオン格子が駆動に伴って試料端より摩擦を受け、塑性変形を起こすモデルで説明できる。

## 鉄系超伝導体 $Ba_{1-x}Rb_xFe_2As_2$ における新たな量子液晶状態

B01 班 芝内 孝禎

鉄系超伝導体では、電子の集団が量子効果によりある特定の方向に動きやすくなる量子液晶状態（電子ネマティック状態）が実現していることが知られている。このような方向性を示す量子液晶状態の起源について、様々な可能性が議論されており、またその量子液晶状態が消失する際に増大すると期待できる液晶揺らぎが超伝導発現に寄与しているかどうかが重要な課題となっている。

代表的な例として、鉄系超伝導体の母物質である  $BaFe_2As_2$  では、135 K 以下で鉄ヒ素平面内の Fe-Fe 方向に配向した量子液晶状態が実現すると同時に、ストライプ型の反強磁性秩序が形成されることが知られており、元素置換等によりこの量子液晶・反強磁性相が抑制することで超伝導が出現する。例えば Ba の一部を K に置換するとホールがドーピングされ、置換量が 0.3 程度で量子液晶・反強磁性秩序が消失し、転移温度  $T_c \sim 35$  K 程度の超伝導が現れる。さらに置換量を増やすと  $T_c$  は減少して超伝導ドームを形成し、量子液晶の揺らぎはどんどん小さくなることが知られていた。

本研究では、K 置換と同様にホールドーピング系である Rb 置換系に着目し、ホールが過剰にドーピングされた完全置換系  $RbFe_2As_2$  を含む  $Ba_{1-x}Rb_xFe_2As_2$  系において、今までにない新しい量子液晶状態を見出したので報告する[1]。

Rb 置換系は K 置換系に比べて研究例が少なく、単結晶の報告もなかったため、A01 班の永崎グループと共同で広い置換領域における単結晶作製を行った。この単結晶作製は、我々のグループの大学院生が実際に産総研に通い、永崎グループの指導の下、共同研究を行ったものである。その結果、超伝導転移温度の置換量依存性は K 置換系と非常に似通っており、図 1 に示すようなドーム状の変化を示すことがわかった。これらの単結晶を用いて、ピエゾ素子を用いた弾性抵抗測定を行った[1]。この測定

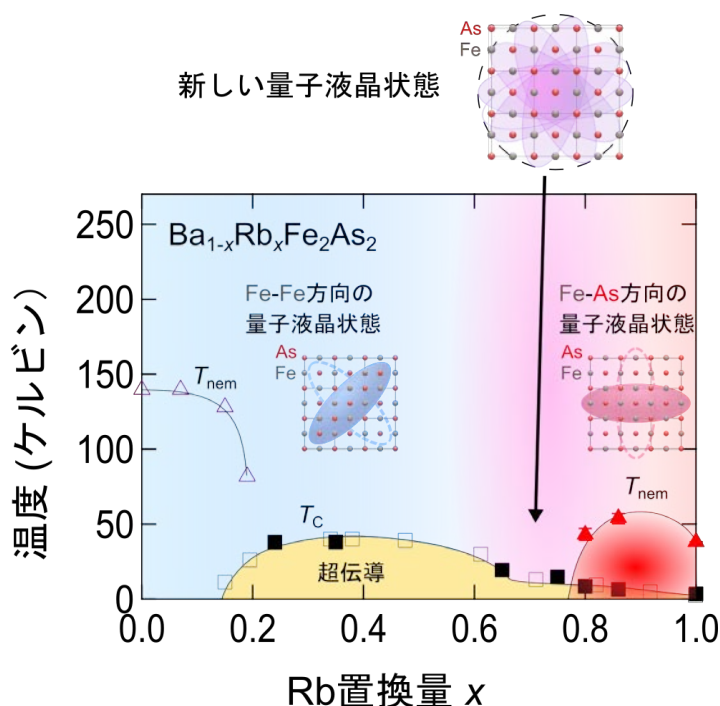


図 1: 鉄系超伝導体  $Ba_{1-x}Rb_xFe_2As_2$  の Rb 置換量  $x$  を変化させた際の電子状態相図。黒四角および白四角は超伝導転移温度( $T_c$ )を表す。図中の白三角は向きが Fe-Fe 方向の量子液晶状態が実現する温度( $T_{nem}$ )、赤三角は Fe-As 方向の量子液晶状態が実現する温度( $T_{nem}$ )を表す。図中には対応する量子液晶状態の概念図を示しており、楕円は電子の集団がどの方向に揃ったかを示している。Rb 置換量  $x$  が少ない青色の領域では Fe-Fe 方向、多い赤色の領域では Fe-As 方向であるのに対し、 $x=0.75$  付近では向きがある方向に限定されていない、新しい量子液晶状態の揺らぎが見出された。

は、単結晶試料をピエゾ素子に貼り付け、一軸方向に歪みを加えたときの電気抵抗率の変化を測定し、量子液晶状態の揺らぎの大きさをネマティック感受率として定量評価できるものである[2]。

低置換領域では、 $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ と同様にFe-Fe方向（正方晶結晶の $\langle 110 \rangle$ 方向）に歪みを加えたときの抵抗率変化が大きく、この方向のネマティック感受率が温度低下とともに増大する。この感受率の増大は $x > 0.3$ で徐々に小さくなっていき、量子液晶揺らぎが減少していくことがわかる。この傾向はK置換系でも報告されている。

今回新たに明らかになったことは、高置換領域で今まで知られていた方向とは45度異なるFe-As方向のネマティック感受率の増大が観測されたことである。

さらに詳細な解析から、 $\text{RbFe}_2\text{As}_2$ では35 K付近以下でFe-As方向の量子液晶相が実現していることが明らかになった。この新しい方向の量子液晶相は、図1のように $x \sim 0.8$ 以上の過剰ホールドープ領域で観測され、その転移温度はドーム型のドープ量依存性を示している。このような方向が異なる2つの量子液晶状態が1つの物質系で実現することは非常に興味深い。我々の結果に基づき、すでに様々な理論的な考察が始まっている[3-5]。C01班の紺谷らは、Baリッチ側で軌道秩序が起こるのに対し、Rbリッチ側ではボンド秩序が起きることを理論的に示した[3]。また、他のグループからは、異なるスピン構造を持つ磁気秩序との関連性が議論されている[4,5]。なお現時点では、磁気的な測定からは、過剰ドープ領域での磁気秩序は観測されていない。

さらに興味深いことに、これら2つの方向性を持つ量子液晶状態の中間領域にあたる $x \sim 0.75$ 付近では、45度異なる2つの方向のネマティック感受率がほぼ同様の振舞いをするのが明らかとなった。この結果は、少なくともこの領域において量子液晶状態の揺らぎがどの方向でも同じように発達していることを意味している。今まで、固体中の電子の振舞いは結晶格子の影響を受けているため、電子集団が示す量子液晶状態は、結晶によって決まる特定の方向にしか向かないイジング型と考えられていたが、このような2方向の量子液晶の中間状態をうまく作り出すことで、結晶の方向によらずどんな方向にでも向くことができるXY型の量子液晶を実現することができる、という新しい知見を得たことになる。

高分子などの一般的な液晶では、分子が任意の向きに揃うことが可能であり、その特性を活かした応用が展開されている。量子液晶では、外場により電子状態そのものを変化させることができるため高速かつ巨大な応答が期待される反面、電子は物質中の結晶格子から影響を受けるため、揃いうる方向に制限があるという点が通常の古典液晶とは決定的に異なる点であった。今回明らかとなったXY型量子液晶揺らぎを秩序化することができれば、古典液晶と同様にその向きを自由に制御できるため、新しい量子技術の開拓につながることを期待される。

#### 参考文献

- [1] K. Ishida, M. Tsujii, S. Hosoi, Y. Mizukami, S. Ishida, A. Iyo, H. Eisaki, T. Wolf, K. Grube, H. v. Loehneysen, R. M. Fernandes, and T. Shibauchi, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* DOI:10.1073/pnas.1909172117 (2020) [https://doi.org/10.1073/pnas.1909172117].
- [2] J.-H. Chu, H.-H. Kuo, J. G. Analytis, and I. R. Fisher, *Science* **337**, 710-712 (2012) [https://doi.org/10.1126/science.1221713].
- [3] S. Onari and H. Kontani, *Phys. Rev. B* **100**, 020507(R) (2019) [https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.020507].
- [4] Y. Wang, W. Hu, R. Yu, and Q. Si, *Phys. Rev. B* **100**, 100502(R) (2019) [https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.100502].
- [5] V. Borisov, R. M. Fernandes, and R. Valenti, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 146402 (2019) [https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.146402].

本成果の解説ビデオを QLC チャンネルにてご覧いただけます。 <https://youtu.be/G0kU18WABVw>

研究室 HP: <http://qpm.k.u-tokyo.ac.jp/>



## 量子スピン液体の低エネルギー励起と磁気相図の解明

B01 班 氏名 清水 康弘

磁気秩序を示さない量子スピン液体は、マクロな量子エンタングルメントによって特徴づけられ、新奇な準粒子や誤り耐性量子計算の舞台として近年注目を集めている。量子スピン液体を厳密解とする Kitaev 模型のモデル物質となるスピン軌道相互作用の強い系が特に注目され、2次元ハニカム格子をもつ $\alpha$ -RuCl<sub>3</sub>はその最有力候補として盛んに研究されている。Kitaev 模型によると、量子スピン液体のスピン励起は、遍歴的な Majorana フェルミオンと局所的な Z<sub>2</sub> フラックスに分数化され、それぞれが異なるエネルギースケールで出現すると理論的に予言されている。前者はギャップレスのディラック分散をもつものに対して、後者は小さなエネルギーギャップをもつ。磁場下では、量子ホール状態と類似したカイラルなスピン励起が期待され、半整数量子熱ホール効果とみられる結果が報告されている。バルクのスピンギャップの存在がカイラル量子スピン液体の根拠を与えるが、ギャップの有無や磁場依存性に関しては、さまざまな実験結果において整合性がとれていないのが現状であった。

微小な内部磁場や低エネルギー励起を検出する NMR は、量子スピン液体の必要条件となる長距離磁気秩序の有無の判定やスピンギャップの構造を解明する上で、なくてはならない実験手法のひとつである。すでに、 $\alpha$ -RuCl<sub>3</sub> の NMR に関する研究だけでも 4 つのグループによる結果が報告され、スピン励起に関して異なった解釈が飛び交っている。しかし、これまでの NMR による研究は、高磁場・高温域の実験に留まり、ゼロ磁場下や量子スピン液体状態が出現する臨界磁場域の詳細な性質は未解明であった。核スピン格子緩和率  $1/T_1$  の詳細な磁場依存性を極低温まで測定し、磁場下の磁気相図を調べるとともに、動的帯磁率の量子臨界性や分数化励起の磁場依存性について調べた[1]。

<sup>35</sup>Cl/<sup>37</sup>Cl 核を用いて、核四重極共鳴(NQR)および NMR 測定を行った結果、ゼロ磁場下で鋭い NQR スペクトルおよび単一の反強磁性転移温度( $T_N = 6.5$  K)での核スピン格子緩和率  $1/T_1$  の発散的振る舞いを観測した。スピン困難軸である面直(c 軸)磁場下では、9 T まで  $T_N$  はほぼ変化しないのに対して、面内磁場によって  $T_N$  は臨界磁場  $H_c = 7.4$  T で消失した(図 1)。 $H_c$  付近の詳細な実験を行った結果、わずかに低い磁場で反強磁性秩序状態のマグノンギャップが閉じることが分かった。また、 $T_N$  におけるスピンゆらぎ臨界発散が抑えられ、常磁性状態においてギャップ的な振る舞いが観測された。このスピンギャップ  $\Delta_H$  は、 $aH^3 + b$  の磁場依存性を示した。 $H_c$  以上の磁場下では、さらに低温で  $1/T_1$  がピークを示した後、指数関数に減少することから、量子スピン液体状態において、2種類のスピンギャップの存在が示唆される。低温のスピンギャップ  $\Delta_L$  は、磁場とともに増加するが、高磁場で飽和傾向にある特徴が見られた(図 1)。

Kitaev 模型に基づいた理論計算によると、磁場下で Majorana フェルミオンとフラックスは結合し、いずれもギャップ的な励起をもつ。前者が支配的な成分は、磁場の 3 乗に比例してギャップが開くものに対して、後者の成分はあまり磁場に依存しないと予想される。したがって、ある磁場で二つの励起が交差し、準位反発することが期待される。今回得られた実験結果は、 $H_c$  付近で 2 つの励起エネルギー間準位反発が起きているとみることができ、分数化励起のひとつ

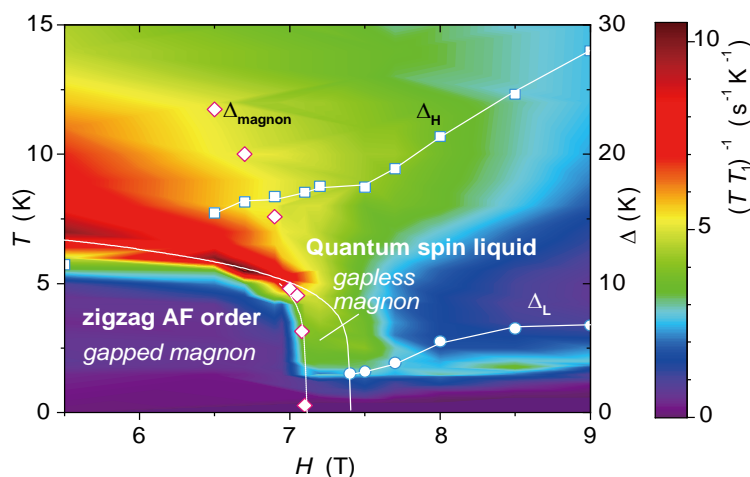


図 1:  $\alpha$ -RuCl<sub>3</sub>における核スピン格子緩和率  $1/T_1T$  の等高線図、NMR から得られた 2 種類のスピンギャップ ( $\Delta_H$ ,  $\Delta_L$ ) とマグノンギャップ  $\Delta_{\text{magnon}}$  の面内磁場依存性および磁気相図[1]。

つの根拠を与えるものである。現在、より詳細なスピギャップの磁場方位依存性の実験から、Kitaev 模型との整合性を検証するプロジェクトが進行中である。なお、本研究は、長井優弥、神野貴明、伊藤正行(名大理)、那須謙治(横浜国大理)、吉竹純基、求幸年(東大工, C01 班) 各氏との共同研究である。

平面状の有機分子から構成される分子磁性体・伝導体は、多様な幾何学的構造をとることで、超伝導や量子スピン液体をはじめとして様々な物性を生み出してきた。その多くは、低次元電子系であり、3次元構造を有する物質は稀である。最近、分子性物質としては初めてダイヤモンド格子を有する物質(BEDT-TTF)Ag<sub>4</sub>(CN)<sub>5</sub>を見出し、その基底状態について究明した[2,3]。第一原理計算から、フェルミ準位近傍でバンドが交差する三次元ディラック分散を有することが判明した(図2)。この特徴は、三次元トポロジカル絶縁体を予言した理論計算とも一致している。常圧下では、強いクーロン斥力によって絶縁化し、スピン 1/2 が各分子上に局在した反強磁性体( $T_N = 102$  K)であることが明らかになった。常磁性帯磁率はダイヤモンド格子ハイゼンベルク反強磁性模型(相互作用定数  $J = 230$  K)に従い、反強磁性転移温度以下で磁気モーメントは図2に示すような長距離秩序構造を有することが<sup>13</sup>C NMR 測定により観測された。低磁場下では、磁気モーメントは Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によってわずかに傾いた弱強磁性を示した。さらに、高圧印加によって、転移温度が 200 K にまで急上昇することを見出した。これは、分子性物質の示す最高の磁気転移温度を更新するものであり、3次元系強相関係への道が開けたといえる。今後、更なる超高圧の印加によって、絶縁体から半金属へのモット転移を誘起することで、3次元ディラック電子系の実現が期待される。なお、分子性物質に関する研究は、大塚晃弘、前里光彦、矢持秀起、吉田幸大(京大理)、土射津昌久(奈良女大)、中尾朗子(CROSS)、平松孝章、斎藤軍治(名城大)との共同研究である。

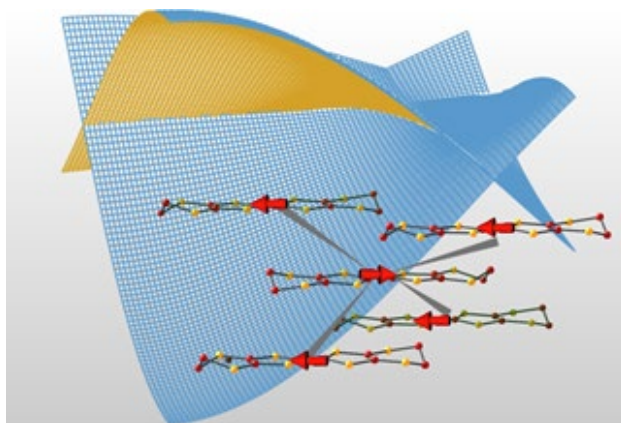


図2：ダイヤモンド格子を有する分子性モット絶縁体(BEDT-TTF)Ag<sub>4</sub>(CN)<sub>5</sub>で観測された反強磁性秩序のスピ構造、および第一原理バンド計算から三次元Dirac分散。

#### 参考文献

- [1] Y. Nagai, T. Jinno, J. Yoshitake, J. Nasu, Y. Motome, M. Itoh, Y. Shimizu, *Phys. Rev B* **101**, 020414(R)/1-6 (2020) [<https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.101.020414>].
- [2] A. Otsuka, Y. Shimizu, G. Saito, M. Maesato, A. Kiswandhi, T. Hiramatsu, Y. Yoshida, H. Yamochi, M. Tsuchiizu, Y. Nakamura, H. Kishida, H. Ito, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **93**, 260–272, (2020) [<https://www.journal.csj.jp/doi/10.1246/bcsj.20190279>]. *BCSJ Award Article*
- [3] Y. Shimizu, A. Otsuka, M. Maesato, M. Tsuchiizu, A. Nakao, H. Yamochi, T. Hiramatsu, Y. Yoshida, G. Saito, *Phys. Rev. B* **99**, 174417/1-7 (2019) [<https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.99.174417>].

研究室 HP: [http://i-ken.phys.nagoya-u.ac.jp/index\\_j.html](http://i-ken.phys.nagoya-u.ac.jp/index_j.html)

## 高強度テラヘルツ電場を用いた極低温・高磁場で動作する時間分解 STM の開発

B01 班 廣理 英基

非平衡の時間分解量子ダイナミクスは現在の物性物理学の最先端のテーマであり、その実験的手法の開発は重要な研究課題である。特に非自明な空間構造・対称性の破れによって特徴づけられる特異な電子状態を持つ量子液晶物質において、光励起直後の電子状態をナノスケールの空間分解能とフェムト秒スケールの時間分解能で観測することは、その秩序形成の機構や、様々な物性（導電性、磁性、光学特性）との微視的な関連を理解する上で極めて重要である。

本研究では、高強度テラヘルツ (THz) パルス発生技術と走査型トンネル顕微鏡 (STM) 技術を融合した時間分解 THz-STM を開発することを目指す。ここでは特に極低温・高磁場下で動作する装置開発に挑戦する。このような超高速時間分解イメージング技術の物性物理へのインパクトは極めて大きく、強相関電子系に創発する量子液晶物質への適用をはじめ、トポロジカル物質や単原子層物質など特異な電子状態を持つ様々な物質群の電子物性・超高速光応答の理解にもつながることが期待できる。

ここでは装置開発の一環として、STM 探針先端を光励起することより生じる光電子放出を利用して、テラヘルツ近接場波形の可視化を行ったのでその結果について示す。PtIr で被覆されたタングステン (W) STM チップを測定用のナノチップ探針として使用した。まず、本研究で開発したテラヘルツ近接場波形の可視化する実験手法について説明する。プローブ光 (517nm) をナノチップに照射すると、多光子吸収によって光電子放出が誘起される。生成された光電子は、ナノチップに対して試料に直流バイアス電圧  $V_{DC}$  を印加するとナノチップから試料である高配向性熱分解グラファイト (HOPG) へと流れ光電子電流として検出される。光電子発生効率は、ナノチップ表面と真空との間のポテンシャル障壁の高さに依存する。このため、光電流強度は、障壁高さのプロファイルと共に変化するのだが、これは DC 電圧 ( $V_{DC}$ ) およびプローブ光と同時に照射したテラヘルツ近接場によって変調されるため、ナノチップ近傍のテラヘルツ電場分布をテラヘルツパルスによる光電子電流の変調成分  $\Delta I_{THz}$  として測定することができる。テラヘルツパルスとプローブパルスとの間の遅延時間を変化させながら  $\Delta I_{THz}$  を測定することにより、テラヘルツ近接場プロファイルを調べることが可能である。弱い信号を検出するために、ここでは、テラヘルツパルスを発生させるポンプレーザーを 430Hz でチョッピングし、 $\Delta I_{THz}$  をロックイン検出法によって測定した。

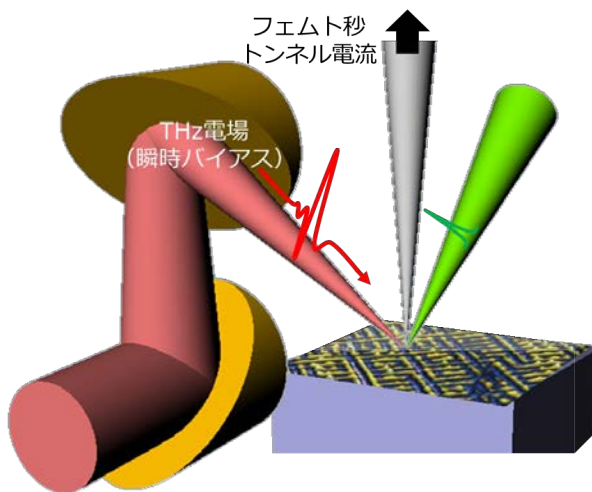


図 1: 時間分解 THz-STM の概念図。

テラヘルツパルスの発生には、LiNbO<sub>3</sub> 結晶を用いたパルス面傾斜法を使用した。グレーティングとレンズを組み合わせた光学系に、レーザー光源から発生した赤外光 (IR) パルス (1035nm, 300fs, 1MHz) を照射することによって効率的にテラヘルツパルスを発生することができる[1]。生成されたテラヘルツパルスの時間波形は、1ps 幅の大きな第 1 ピークを有するほぼ単一サイクルであり、時間分解 STM を構成して過渡的なトンネル電流を発生させる電気パルスとしては最適である。プローブ光の発生には、 $\beta$ -BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (BBO) 結晶に基本波を照射して第二高調波発生を用いた。

図 2 は、ナノチップの対電極としてグラファイト試料を用いて得られた光電流の空間分布を示した実験結果である[2]。図 2a は、使用したナノチップの光学顕微鏡写真を示している。プローブ光パルスのスポット位置をナノチップ上で二次元的に走査し、I-V 曲線測定およびテラヘルツ電場波形の測定を各ピクセル位置で行った。図 2b,c は、光電子電流として観測されたテラヘルツパルスのマッピングの結果



果を示す。各画素において  $V_{DC}=0$  の場合に、テラヘルツバイアスだけで生じる光電子がグラファイトサンプルに到達することによって得られたテラヘルツ電場誘起の光電子電流を測定したものである。ここでは、観測された電場波形の時間変化をフーリエ変換することによって、異なる周波数成分の空間分を観測した。測定した空間領域は  $139.5 \times 31.5 \mu\text{m}^2$  である。各マップはほぼナノチップの形状を反映しているが、ナノチップの直径はプローブ光のスポットサイズよりも小さいため、先端の頂点では強度が低くなっていることがわかった。

以上のように、効率的に発生させた高強度テラヘルツパルスをもつ STM 装置に組み合わせた実験装置開発に成功した。これまでに STM ナノチップを光励起した場合に発生する光電子電流を、これと同時に照射したテラヘルツ電場パルスの近接場によって変調することによって、ナノチップ近傍に発生するテラヘルツ近接場の空間分布を観測することに初めて成功した。現在は、ここで得られた技術と知見を元に本研究の究極的な目標である極低温・高磁場下で動作する時間分解 STM の設計・開発を行っている。

光励起やテラヘルツなどの外場によって劇的に物性が変化する試料において、そのメカニズム解明のために THz-STM は有用と考えられる。ここでは、THz-STM 研究の候補物質の探索を目指し、金属絶縁体転移を示すモデル物質の一つである  $\text{VO}_2$  に対して強電場テラヘルツ応答の観測を行った[3]。本研究で使用したサンプルは、パルスレーザー堆積（192 nm の ArF エキシマレーザーを使用）によって  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  基板上に成長した 85 nm のエピタキシャル  $\text{VO}_2$  薄膜である。励起用のテラヘルツパルスの最大電界強度  $E_m$  は 0.3 MV/cm 以下であるが、テラヘルツ電場を増強するために  $\text{VO}_2$  薄膜の表面に金ダイポールアンテナを作製し、電場強度が 7 倍向上することが計算された。試料内部の最大電場強度は、アンテナギャップの中心で 2.1 MV/cm である。異なる電場強度に対して NIR プロブによって測定された過渡反射率変化から、テラヘルツパルス照射が絶縁体から金属相への相転移を引き起こすことが示された。この現象を理解するために、テラヘルツ電場による Poole-Frenkel (PF) 効果によるキャリア生成とそれに続く生成されたキャリアからのジュール加熱を考慮したモデルを使用した。PF 効果は、強い電場がキャリアホッピングに対するポテンシャル障壁を低下させ、絶縁体相におけるキャリア密度を増加させ導電率を増加させる。結論として、強いテラヘルツ電場パルスが PF 効果によって  $\text{VO}_2$  薄膜中にキャリアを生成し、テラヘルツ電場によって生じるジュール加熱によって効率的に転移が生じたものと結論付けられる。

光励起やテラヘルツなどの外場によって劇的に物性が変化する試料において、そのメカニズム解明のために THz-STM は有用と考えられる。ここでは、THz-STM 研究の候補物質の探索を目指し、金属絶縁体転移を示すモデル物質の一つである  $\text{VO}_2$  に対して強電場テラヘルツ応答の観測を行った[3]。本研究で使用したサンプルは、パルスレーザー堆積（192 nm の ArF エキシマレーザーを使用）によって  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  基板上に成長した 85 nm のエピタキシャル  $\text{VO}_2$  薄膜である。励起用のテラヘルツパルスの最大電界強度  $E_m$  は 0.3 MV/cm 以下であるが、テラヘルツ電場を増強するために  $\text{VO}_2$  薄膜の表面に金ダイポールアンテナを作製し、電場強度が 7 倍向上することが計算された。試料内部の最大電場強度は、アンテナギャップの中心で 2.1 MV/cm である。異なる電場強度に対して NIR プロブによって測定された過渡反射率変化から、テラヘルツパルス照射が絶縁体から金属相への相転移を引き起こすことが示された。この現象を理解するために、テラヘルツ電場による Poole-Frenkel (PF) 効果によるキャリア生成とそれに続く生成されたキャリアからのジュール加熱を考慮したモデルを使用した。PF 効果は、強い電場がキャリアホッピングに対するポテンシャル障壁を低下させ、絶縁体相におけるキャリア密度を増加させ導電率を増加させる。結論として、強いテラヘルツ電場パルスが PF 効果によって  $\text{VO}_2$  薄膜中にキャリアを生成し、テラヘルツ電場によって生じるジュール加熱によって効率的に転移が生じたものと結論付けられる。

#### 参考文献

- [1] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, K. Tanaka, *Applied Physics Letters* **98**, 091106 (2011).  
 [2] S. Yoshida, H. Hirori, T. Tachizaki, K. Yoshioka, Y. Arashida, Z. -H. Wang, Y. Sanari, O. Takeuchi, Y. Kanemitsu, H. Shigekawa, *ACS Photonics* **6**, 1356 (2019).  
 [3] T. Tachizaki, A. N. Hattori, H. Tanaka, and H. Hirori, *Japanese Journal of Applied Physics* **58**, 083002 (2019).

#### 謝辞

本研究は、主に立崎氏(東海大学)、吉田氏、重川氏(筑波大学)、服部氏(大阪大学)との共同研究による成果である。

研究室 HP: <https://www.scl.kyoto-u.ac.jp/~opt-nano/index.html>

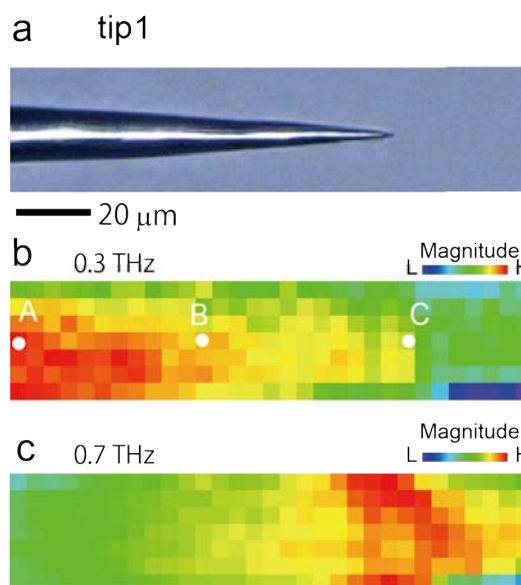


図 2 : テラヘルツ近接場のイメージング

## Studying charge/spin dynamics by time-resolved x-ray measurements

B01 班 和達大樹

Ultrafast optical control of valence and spin states in materials is one of the hottest topics of spintronics and information processing technologies. A lot of studies on such control with a high intensity femtosecond visible-infrared laser have been reported. One example is all-optical helicity-dependent switching (AO-HOS), where the magnetization is selectively reversed by the irradiation of circularly polarized laser. AO-HOS was reported on ferrimagnets such as Gd-Fe-Co intermetallics.

First, we present time-resolved x-ray absorption study (TR-XAS) of mixed valence transition in  $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ . Valence transition phenomena originating from the hybridization between 4f and conduction electrons are strongly related to the quantum critical phenomena of the strongly correlated rare-earth compounds. These materials exhibit a valence transition induced by temperature, magnetic field and/or pressure. We performed TR-XAS study of  $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{0.21}\text{Ge}_{0.79})_2$  to observe photoninduced valence transition between  $\text{Eu}^{2+}$  ( $4f^7$ ,  $J = 7/2$ ) and  $\text{Eu}^{3+}$  ( $4f^6$ ,  $J = 0$ ) [1]. The schematic diagram of the experimental setup is shown in Fig. 1 (a). We used a Ti:sapphire laser (800 nm, repetition rate = 1 kHz, width = 50 fs) as a pump and SPring-8 BL07LSU soft x-ray pulse at the Eu  $M_5$  edge as a probe.

Figure 1 (b) shows the Eu  $M_5$ -edge XAS spectrum at 40 K. The peaks at 1129.6 and 1131.5 eV originate from the  $\text{Eu}^{2+}$  and  $\text{Eu}^{3+}$  components, respectively. Figure 1 (c) shows the TR-XAS results obtained at the energy for  $\text{Eu}^{2+}$  (1129.6 eV) and  $\text{Eu}^{3+}$  (1131.5 eV). An increase of  $\text{Eu}^{2+}$  was observed by about 10%, suggesting an increase in the ratio of  $\text{Eu}^{2+}$  by the laser irradiation. The intensity of  $\text{Eu}^{3+}$  decreased by about 10% just after the laser irradiation. These results suggest the mean valence of Eu becomes closer to  $\text{Eu}^{2+}$  by laser irradiation, indicating a photoinduced valence transition between Eu 4f and its conduction electrons. Faster timescale measurements using x-ray free electron laser will lead to give more insight into the photoinduced state within 1 ps.

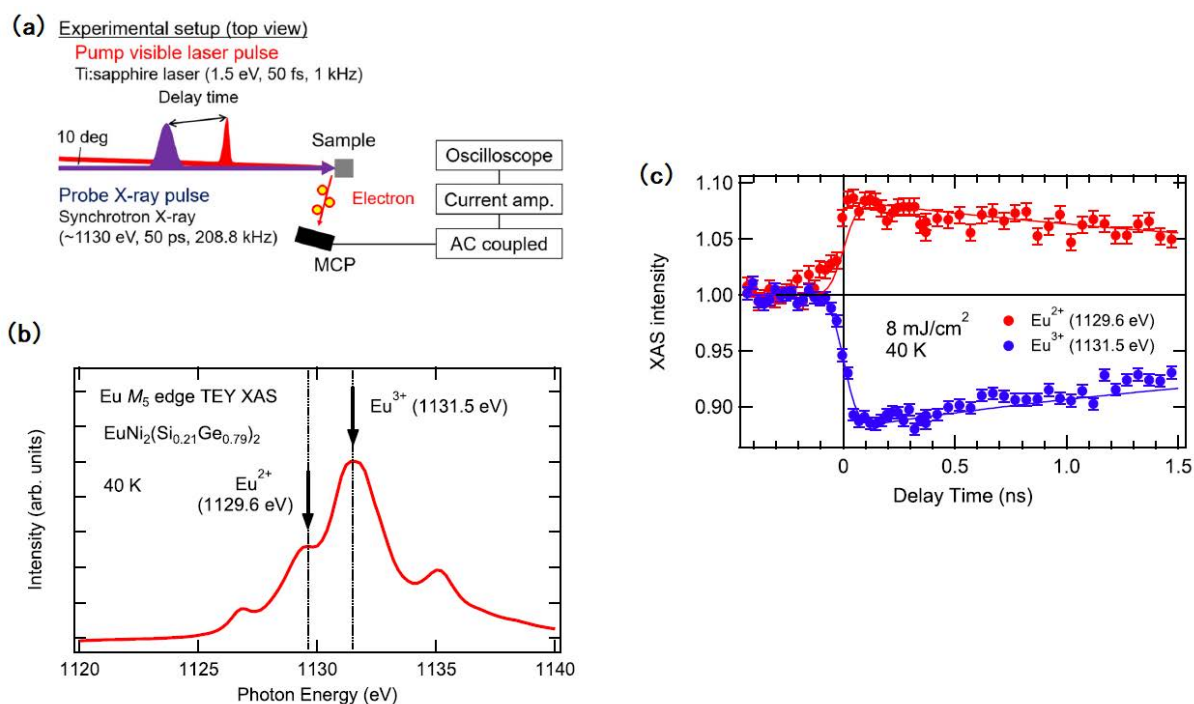


Figure 1: (a) Schematic diagram of the TR-XAS experimental setup in SPring-8 BL07LSU. (b) Eu  $M_5$ -edge XAS spectrum of  $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{0.21}\text{Ge}_{0.79})_2$ . (c) TR-XAS results for  $\text{Eu}^{2+}$  (1129.6 eV) and  $\text{Eu}^{3+}$  (1131.5 eV).

The next topic is time-resolved x-ray magnetic circular dichroism study (TR-XMCD) of L1<sub>0</sub>-FePt thin films [2]. AO-HOS was recently observed in ferromagnetic materials such as Co/Pt thin films and granular L1<sub>0</sub>-FePt recording medium, so observing ultrafast demagnetization of Pt magnetic moment is essential for understanding the mechanism of AO-HOS. The schematic diagram of the experimental setup is shown in Fig. 2 (a). We used a Ti:sapphire laser (800 nm, repetition rate = 1 kHz, width = 50 fs) as a pump and SACLA BL3 hard x-ray pulse at the Pt L<sub>3</sub> edge as a probe.

Figure 2 (b) shows the TR-XMCD results plotted together with the laboratory time-resolved magneto-optical Kerr effect (TR-MOKE). Fe magnetic moment dominates the total magnetic moment in FePt, so one can conclude that Fe demagnetizes much faster than Pt. We propose that this time-scale difference is a key to realize AO-HOS in Pt-containing ferromagnetic materials. We also performed further TR-MOKE experiments on both the Fe and Pt edges in SACLA BL1 and found a similar time scale of demagnetization [3].

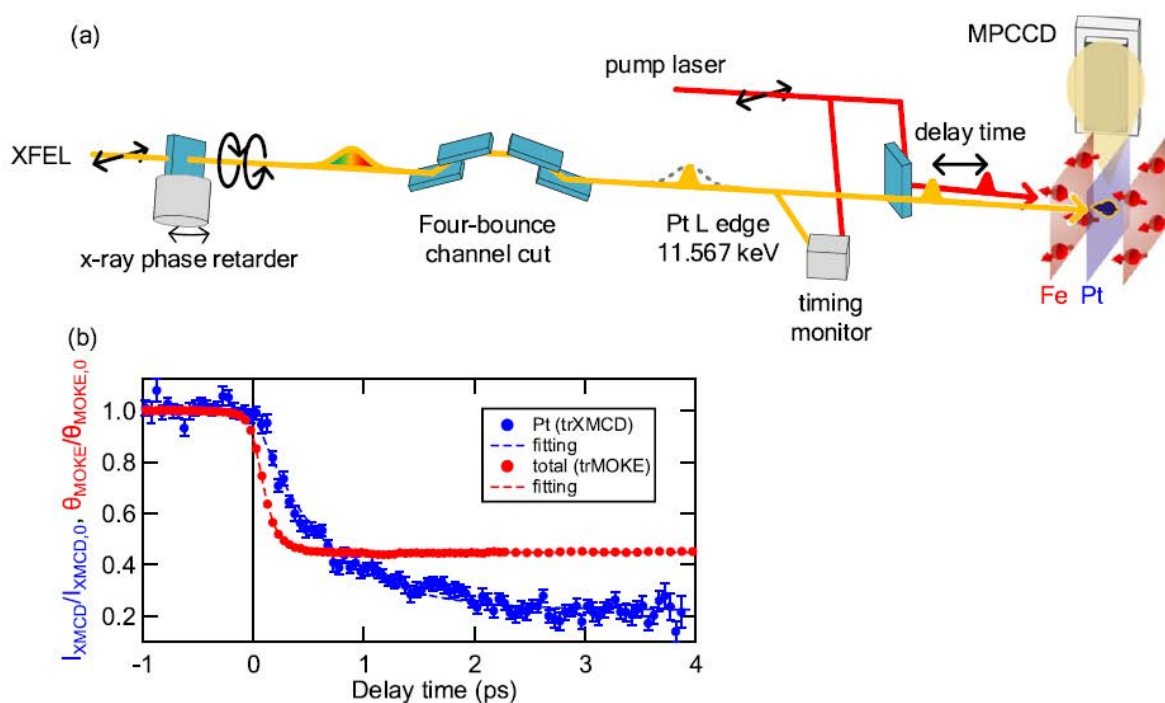


Figure 2: (a) Schematic diagram of the TR-XMCD experimental setup in SACLA BL3. (b) TR-XMCD results plotted together with TR-MOKE.

#### 参考文献

- [1] Y. Yokoyama, K. Kawakami, Y. Hirata, K. Takubo, K. Yamamoto, K. Abe, A. Mitsuda, H. Wada, T. Uozumi, S. Yamamoto, I. Matsuda, S. Kimura, K. Mimura, and H. Wadati, *Phys. Rev. B* **100**, 115123 (2019) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.115123>].
- [2] K. Yamamoto, Y. Kubota, M. Suzuki, Y. Hirata, K. Carva, M. Berritta, K. Takubo, Y. Uemura, R. Fukaya, K. Tanaka, W. Nishimura, T. Ohkochi, T. Katayama, T. Togashi, K. Tamasaku, M. Yabashi, Y. Tanaka, T. Seki, K. Takanashi, P. M. Oppeneer, and H. Wadati, *New J. Phys.* **21**, 123010 (2019) [<https://doi.org/10.1088/1367-2630/ab5ac2>].
- [3] K. Yamamoto, S. E. Moussaoui, Y. Hirata, S. Yamamoto, Y. Kubota, S. Owada, M. Yabashi, T. Seki, K. Takanashi, I. Matsuda, and H. Wadati, arXiv:1910.01556v1 [<https://arxiv.org/abs/1910.01556>].

研究室 HP: [https://www.sci.u-hyogo.ac.jp/material/chem\\_extreme/index.html](https://www.sci.u-hyogo.ac.jp/material/chem_extreme/index.html)

## 強相関電子系における多彩な量子液晶秩序の理論研究

C01 班 紺谷 浩

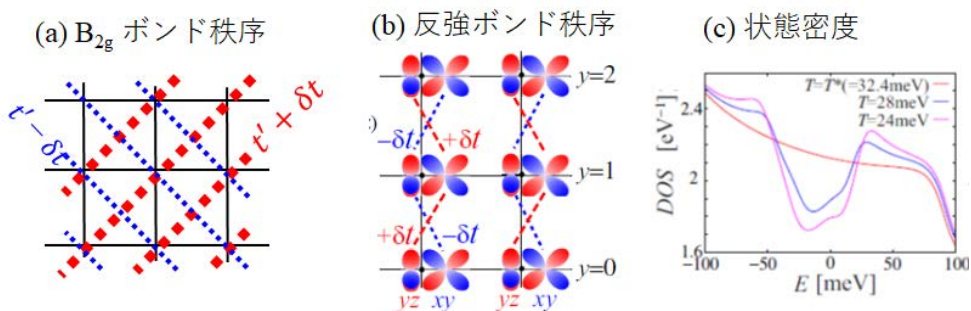
新学術領域研究「量子液晶」が発足してから9カ月が経過しました。発足以来、他の新学術のメンバー共同研究者と協力して、鉄系および銅酸化物超伝導体、重い電子系における量子液晶秩序の機構解明や新規液晶秩序の理論提案を行ってきました。

### ●鉄系超伝導体における新奇ネマティック秩序：

この系では、電子状態の回転対称性が破れる「電子ネマティック秩序」が普遍的に発現します。我々はBa122系やFeSe系のネマティック秩序を「強的軌道秩序」として説明することに成功しました[1-2]が、最近の研究により予想を超えた多様性が明らかになってきました。我々は、過剰ホールドープ系 $AFe_2As_2$  ( $A=Cs,Rb$ )で観測された、主軸がFe-As方向の「 $B_{2g}$ ネマティック秩序」の解明に取り組みました。（多くの鉄系ではFe-Fe方向です。）当研究室で開発した線形density-wave (DW)方程式に基づき可能なネマティック秩序を解析し、 $d_{xy}$ 軌道の電子相関により「ホッピングの対称性が破れるボンド秩序」が生じることを見出し、巨大なネマティック感受率 $\chi_{nem}$ （芝内研）を説明しました[3]。

また我々は、Ba122系やNaFeAsにおいて観測される、構造相転移温度 $T_S$ より高温の $T^*$ から生じる「隠れたネマティック秩序」を研究しました。線形DW方程式の理論を適用し、 $T^*$ において「反強的ボンド秩序」が生じることを見出しました[4]。これにより、隠れたネマティック秩序における擬ギャップやband foldingが満足に説明されました。さらに我々は、量子液晶の量子揺らぎが媒介する強い引力相互作用に着目し、過剰電子ドープFeSeにおける $s++$ 波超伝導状態の発現機構を説明しました[5]。

図1 (a)過剰ホールドープ系の $B_{2g}$ ボンド秩序[3]。(b)隠れたネマティック秩序を与える反強的ボンド秩序と(c)得られた擬ギャップ[4]。



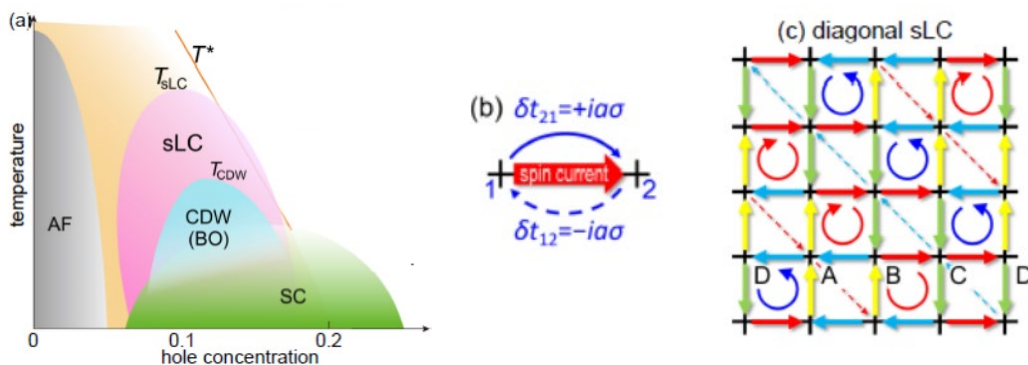
### ●銅酸化物高温超伝導体における新奇カレントループ秩序：

銅酸化物超伝導体も鉄系超伝導体と同様に、液晶秩序の宝庫です。擬ギャップ領域内では、 $T=T_{CDW}$ において周期 $4a_{Cu-Cu}$ のボンド秩序が生じ、回転対称性と並進対称性が破れます。最近の実験では、より高温の擬ギャップ温度 $T^*$ から電子ネマティック秩序が生じることが松田研・芝内研により見出されました。我々は汎関数繰り込み群法(fRG)を適用してこの問題に取り組み、 $T^*$ において強的ボンド秩序が生じることを見出しました。しかし、擬ギャップ領域で生じる状態密度の擬ギャップやFermi arc構造は、 $q \neq 0$ の何らかの秩序によるbond foldingの存在を示唆します。

我々はfRG理論と相補的關係にある線形DW方程式に基づき、この問題に取り組みました。論文[3]で開発したDW方程式を、スピン依存性を持つform factor  $\langle c_{\mathbf{k}+q/2,\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}-q/2,\sigma} \rangle = \sigma \cdot \mathbf{g}_q(\mathbf{k})$ へと拡張し、波数 $q=(\pi/2,\pi/2)$ のループ状のスピンカレント秩序 $\mathbf{g}_q(\mathbf{k}) \propto \text{sink}_x, \text{sink}_y$ を得ました[6]。その実空間構造を図2に示します。スピンカレント秩序は、(ループ電流秩序と異なり)時間反転対称性を破らず、自発磁化を伴わない「隠れた秩序」です。得られた相図を図2に示します。今後は本理論をIr酸化物や重い電子系に適用し、強相関電子系における量子液晶秩序の普遍的原理の解明に取り組む予定です。

図2 (a)理論で得られた銅酸化物超伝導体の相図[6]。sLCはスピングループカレント。(b)スピングループカレント。(c)得られたsLC解の実空間構造。



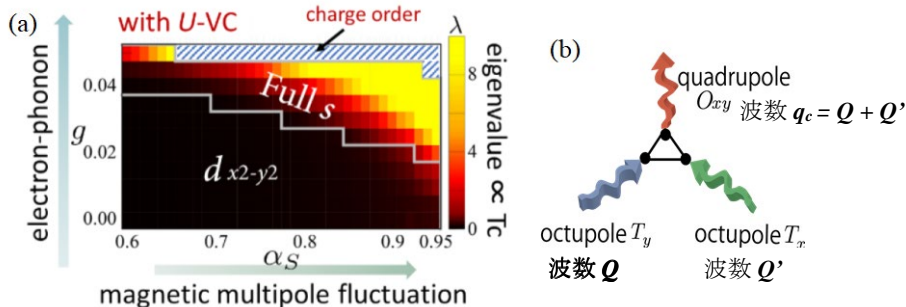


●重い電子系における多極子秩序と揺らぎ：

重い電子系では、f 電子の強いスピン軌道相互作用によって高次の多極子自由度が発現するため、豊かな量子液晶秩序の舞台となります。重い電子系では、強い電子間斥力が非 s 波超伝導をもたらす例が多いですが、代表的な超伝導体である  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  が単純な s 波超伝導体であるという、予想外の実験的事実が実験的に見出されました (T. Yamashita et al, Science Advances (2017).)。そこで我々は、多極子揺らぎ間の量子干渉効果 (= 高次バーテックス補正) に着目し、フォノン由来の引力相互作用がバーテックス補正により著しく増大して、電子間斥力に打ち勝ち s 波超伝導が実現することを見出しました[7]。さらに我々は、バーテックス補正によりフォノンに依らずとも電気的多極子揺らぎが発達することを見出し、電気 16 極子揺らぎが媒介する s 波超伝導機構を提唱しました[8]。

並行して我々は、重い電子系の特徴である、高次多極子の秩序機構を研究しました。重い電子系  $\text{CeB}_6$  に対してバーテックス補正の理論を適用し、異なる多極子揺らぎが量子力学的に干渉して、 $\text{CeB}_6$  の実験に合致する電気 4 極子秩序が生じることを見出しました[9]。この遍歴描像に基づく多極子秩序機構は、今後様々な重い電子系への適用が期待されます。

図 3 (a) 理論で得られた  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  の相図[7]。反強磁性相関が強い時、広い領域でフルギャップ S 波が得られた。(b)多極子揺らぎ間の干渉効果の例：磁気 8 極子揺らぎが干渉して、電気 4 極子秩序を与える[9]。



●d 波超伝導体のエッジに誘起する d+ip 波状態：

d 波超伝導体である銅酸化物超伝導体の(1,1)エッジでは、アンドレーフ束縛状態が生じ、状態密度の発散的増大に増大します。我々はこの事実に着目して、アンドレーフ束縛状態に由来するエッジ誘起の強相関電子状態の研究を行い、(1,1)エッジに強い強磁性揺らぎが誘起されること[10]、さらに時間反転対称性を破ったエッジ誘起 d+ip 超伝導状態が起きること[11]を見出しました。

[1] S. Onari and H. Kontani, Phys. Rev. Lett. 109 (2012) 137001. [2] Y. Yamakawa, S. Onari, and H. Kontani, Phys. Rev. X 6, 021032 (2016). [3] S. Onari and H. Kontani, Phys. Rev. B 100, 020507(R) (2019). [4] S. Onari and H. Kontani, arXiv:1911.10689. [5] Y. Yamakawa, S. Onari, and H. Kontani, arXiv:1911.00363. [6] H. Kontani, Y. Yamakawa, R. Tazai and S. Onari, arXiv:2003.07556. [7] R. Tazai and H. Kontani, Phys. Rev. B 98, 205107 (2018). [8] R. Tazai and H. Kontani, J. Phys. Soc. Jpn. 88, 063701 (2019). [9] R. Tazai and H. Kontani, Phys. Rev. B 100, 241103(R) (2019). [10] S. Matsubara and H. Kontani, Phys. Rev. B 101, 075114 (2020). [11] S. Matsubara and H. Kontani, arXiv:2002.06891.

研究室 HP: <http://www.s.phys.nagoya-u.ac.jp/>

## ニッケル酸化物超伝導体の理論研究

C01 班 有田亮太郎

最近、100GPa を越える高圧下で、水素化合物(LaH<sub>10</sub>)が 250K という高い超伝導転移温度を持つことが発見され話題になっているが[1]、常圧という条件のもとでは銅酸化物超伝導体を越えるものはまだに見つかっていない。銅酸化物高温超伝導体のフェルミ面近傍の電子状態は d-p 模型や Hubbard 模型、t-J 模型といった二次元強相関格子模型で記述されると考えられている。そこで似たような電子状態を持つ物質が合成できれば、銅酸化物と同程度か、場合によってはより高い転移温度の超伝導が実現するかもしれないと期待するのは自然なことである。このような期待のもとで、「2次元」「正方格子」「単一軌道」「half-filling 近傍」といったキーワードを兼ね揃える（と期待される）物質が数多く実験的、理論的に調べられてきた。

銅酸化物では e<sub>g</sub> 軌道のエネルギー分裂はエネルギーの高い順に d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub>, d<sub>3z<sup>2</sup>-r<sup>2</sup></sub> の順であるが、頂点酸素の位置を押し下げることで、その順を逆にし、d<sup>7</sup> 系で銅酸化物のような電子状態を実現する可能性も考えられる。Ni は 3 価のイオンになりやすいが、その場合 d 電子は 7 つであるため、Ni 酸化物は銅酸化物の d<sup>7</sup> 類似物を設計する上で格好の舞台となる。問題はどのように頂点酸素の位置を下げるかであり、人工ヘテロ構造を考えることで理想的な状況を実現する可能性が検討されているものの実際の実現は難しいようである。

最近、NdNiO<sub>2</sub> で銅酸化物同様 d<sup>9</sup> 系が実現し、Sr をドーブすることで超伝導が発現するという実験報告がなされた[2]。本稿を執筆している 2020 年 3 月の時点ではまだこの実験の再現に成功したという報告がなく、必ずしも Ni 酸化物における超伝導が確立したと言える状況ではないが、仮に実現していたとすれば銅酸化物の電子状態とどのような類似点、相違点があるか、銅酸化物との類似性をより高めるにはどうすればよいかを考えることは非常に興味深い。本稿ではこの動機から行なった最近の我々の仕事の結果[3,4]を紹介する。

まず、当該 Ni 酸化物において、もし超伝導が実現したとした場合に、その超伝導がフォノンを媒介とする従来型の超伝導の可能性があるかどうかをあらかじめ検討しておくことは重要な問題である。文献[3]では NdNiO<sub>2</sub> のフォノン分散、電子格子相互作用見積りを行なった。その結果、電子格子結合定数  $\lambda$  は 0.2 ないし 0.3 程度で、全く強くない。一方、フォノンのエネルギースケールも 300K 以下で、これらを組み合わせると転移温度は 1K をはるかに下回るものとなる。したがって、文献[2]が主張するように転移温度が 9K から 15K 程度の超伝導が実現するなら、その発現機構は非従来型である可能性が非常に高い。

次に NdNiO<sub>2</sub> の電子状態を見てみよう。図に示されているバンド分散(a)を見ると、フェルミ面近傍の電子状態は大まかにいって次の三つの自由度が重要になると考えられる。一つは Ni の d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub> 軌道で、これは銅酸化物高温超伝導体と同じである。残りの二つは Nd 層に由来し、一つは Nd の d<sub>3z<sup>2</sup>-r<sup>2</sup></sub> 軌道、もう一つは Nd 層の空隙に存在する s 的な状態である(b)。後者はどの原子軌道の近くにも存在せず、ちょうど電子化物と似たような状況が実現している。

3 つの軌道がどのように絡み合っているかをみるために、状態密度を見てみよう(c)。二つの軌道の混成が強い場合、それらの軌道がつくる状態密度は同じ場所でピークをもつ傾向がある。この観点で Ni の状態密度と Nd の状態密度を比較すると、両者にまったく相関の傾向がないことが見て取れる。これは、対称性から Ni の d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub> 軌道と Nd の二つの軌道の間最隣接の transfer hopping が非常に小さいことから理解できる。文献[2]による超伝導の報告以来、Nd の電子を伝導電子、Ni の d 電子を局在スピンとする近藤格子模型を考えるシナリオが検討されているが、Nd と Ni の間にはハミルトニアンの一項目がほとんどないという事実はこのシナリオの正当性を考える上で非常に重要である。

(d)には低エネルギーバンドにおける、それぞれの軌道の寄与を示した。この図を見ると、Ni の d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub> 軌道が大きなフェルミ面を作ると同時に、Nd の d<sub>3z<sup>2</sup>-r<sup>2</sup></sub> 軌道が  $\Gamma$  点近傍に、Interstitial s 軌道が A 点の近傍にフェルミポケットを生成することが見て取れる。つまり、Ni の d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub> 軌道は half-filling ではなく、Nd からホールがドーブされている。



次にこの系を三軌道あるいは一軌道の Hubbard 模型にマップしたとき、銅酸化物と比べて強相関となるか、あるいは弱相関となるかを見ておこう。銅酸化物のときと違って Nd 層由来のバンドフェルミ面を作るため、単純には金属遮蔽によって Ni の  $d_{x^2-y^2}$  軌道が非常に弱相関になることが予想される。しかしながら、上で述べたように

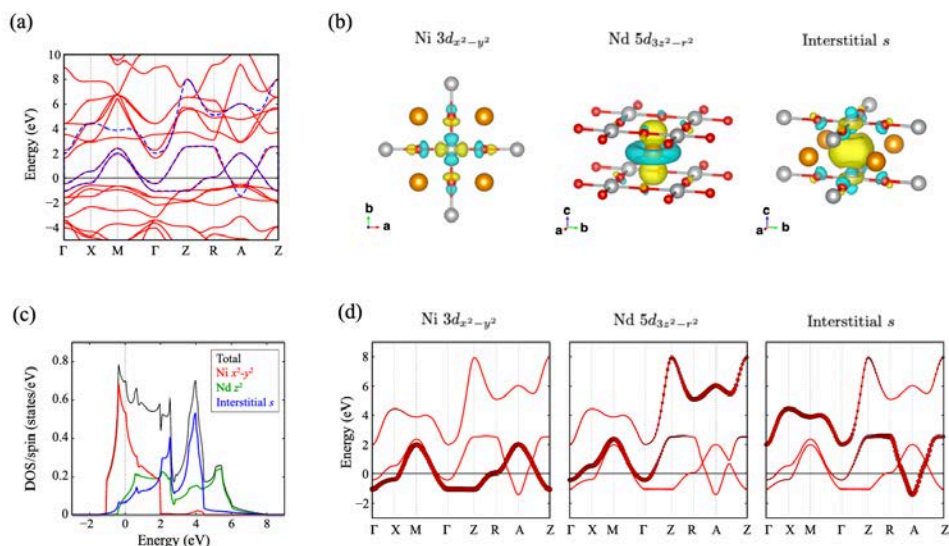


図: (a)NdNiO<sub>2</sub> のバンド分散。赤線は密度汎関数理論が与えるバンド分散、青線は三軌道模型の分散。(b)3軌道模型の基底となるワニエ関数。(c)状態密度。3つ軌道の軌道に射影した部分状態密度もプロットしている。(d)3軌道模型における各軌道の寄与。

Ni と Nd の間は一項目が非常に小さく、遮蔽効果も非常に限定的なものになる。計算によれば、NdNiO<sub>2</sub> を単一軌道模型にマップしたとき、Ni の  $d_{x^2-y^2}$  軌道の Hubbard  $U$  は 3eV 程度あり、バンド幅の比で考えれば銅酸化物高温超伝導体と比べても全く遜色のない「強相関系」であるといえる[3]。

前節で見たように、銅酸化物高温超伝導体と NdNiO<sub>2</sub> を比較したときの最も大きな差異は Nd 層由来の状態がフェルミ面を作ってしまう、Nd 層からホールが NiO<sub>2</sub> 層にドーピングされてしまう、という点である。この Nd 由来の状態のエネルギーを上げるにはどうしたらよいだろうか？

$\Gamma$  点と A 点のフェルミ面を比較すると、 $\Gamma$  点のバンドの底は非常に浅く、取り除くのがより難しいのは A 点のフェルミポケットである。このフェルミポケットは、Nd の  $d_{3z^2-r^2}$  軌道と Interstitial s 軌道が結合バンドを作っていることに由来する。したがって、この結合-反結合バンドの分裂を小さくするか、あるいはバンド幅を縮めてしまえば A 点のフェルミポケットは消えてなくなってしまうことが期待される。

詳細は文献[4]に譲るが、NiO<sub>2</sub> 層と Nd 層の間に適当なブロック層をはさむことにより  $d_{3z^2-r^2}$  軌道と Interstitial s 軌道の中心をずらすことで、実際に A 点のフェルミポケットを取り除くことができる。文献[4]ではこのような考察のもとで候補にあがった Ni 酸化物について系統的なフォノン計算をおこない動的安定性を調べることによって、安定かつ単一軌道系が実現する有望な物質群を特定した。この中の物質がどれかが合成できれば、2次元の Mott-Hubbard 型のモット絶縁相近傍の超伝導の可能性を議論する上で格好の物質となることが期待される。

#### 参考文献

- [1] 高圧下水素化合物超伝導体の最近の review として J. A. Flores-Livas, L. Boeri, A. Sanna, G. Profeta, R. Arita, M. Eremets, Physics Reports (2020) [https://doi.org/10.1016/j.physrep.2020.02.003].
- [2] D. Li *et al.*, Nature, **572**, 624-627 (2019).
- [3] Y. Nomura *et al.*, Phys. Rev. **B 100**, 205138 (2019) [https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.205138].
- [4] M. Hirayama, T. Tadano, Y. Nomura, and R. Arita, Phys. Rev. **B 101**, 075107 (2020) [https://doi.org/10.1103/PhysRevB.101.075107].

研究室 HP: <http://arita-lab.t.u-tokyo.ac.jp/index.html>

## 第一原理計算に基づく理論研究の進展と電流誘起磁性

C01 班 池田 浩章

本年度は、キラル物質に関する物性について微視的な立場から理解を深めるため、そのスキルミオン構造の発見で注目されている  $\text{EuPtSi}$  を取り上げ、第一原理計算に基づいてフェルミ面上のスピ構造を計算した。また、キラル物質に付随する電流誘起磁性の性質を理解するため、より基本的と考えられるジグザグ模型に対して電流印加時の振る舞いを調べた。一方、これら磁性材料のような強相関物質の電子状態を調べるための計算手法の開発においては LDA+DMFT のコーディングを行ってきたが、概ね完成に至ったため、いくつかの典型物質に適用することでその妥当性について検証した。

EuPtSi におけるスピ構造

現在活発に議論されている磁気スキルミオンの研究は、 $\text{MnSi}$  での発見を皮切りに基礎的な研究のみならず、応用面からも高い興味を持たれている。キラルな結晶構造を持つ  $\text{EuPtSi}$  は、 $\text{MnSi}$  と同じ空間群  $P2_13$  を持ち、最近の中性子散乱実験において、 $\text{MnSi}$  のような磁気スキルミオンが形成されていることが明らかにされた。[1] 磁気スキルミオンが  $d$  電子系のみならず、 $f$  電子系においても発見されたことで、その類似点と相違点、そして、その発現機構に高い注目が集まっている。ともにゼロ磁場においてキラルな螺旋磁性が安定化しており、これに磁場を印加することで磁気スキルミオン格子が出現することはよく似通っているが、 $\text{MnSi}$  における螺旋構造の周期が  $180\text{\AA}$  と非常に長周期であるのとは異なり、 $\text{EuPtSi}$  ではその周期長は約  $1/10$  と短い。また、 $\text{MnSi}$  では磁気スキルミオン相は狭い領域でのみ観測されるが、 $\text{EuPtSi}$  で磁気スキルミオン相と考えられている A 相は比較的広い温度領域にわたって出現し、異方性も大きい。 $\text{EuPtSi}$  において、磁性を担うのは  $\text{Eu}$  原子の局在  $f$  スピン ( $S=7/2$ , 軌道磁気モーメントゼロ) であり、これらは伝導電子を媒介とした  $f$  電子スピンの  $\text{RKKY}$  相互作用を通して、螺旋磁性を生じていると考えられる。したがって、磁気異方性や螺旋構造のピッチも  $\text{RKKY}$  相互作用に書き込まれていると考えられるため、フェルミ面を構成する伝導バンドのスピ構造がどのような役割を果たしているか、そもそもこのようなキラルな磁気構造を示すにおいてフェルミ面上の電子スピンのような構造をもっているかは興味を持たれる。

そこで、我々は  $f$  電子を持たない類似結晶として  $\text{SrPtSi}$  のバンド構造、および  $\text{Eu}$  の  $f$  電子が局在したものとして  $\text{open core}$  の計算を行い、得られたバンド構造からワニエ関数を用いて、有効模型を構築、フェルミ面上のスピ構造について計算した。[2] 図 1 に示されるように、主たるフェルミ面においてそのスピ構造は放射状で、いわゆる  $\text{hedgehog}$  構造となっており、 $[111]$  方向から見るとちょうどキラルな構造に整合する形での螺旋構造が確認できた。今後は、このような構造が媒介する  $\text{RKKY}$  相互作用

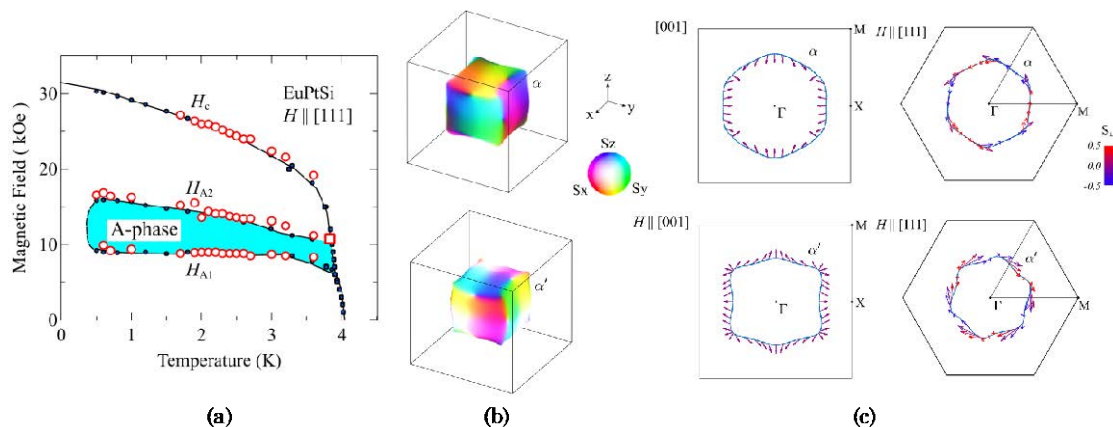


図 1.  $\text{EuPtSi}$  の磁場相図(a)と主なフェルミ面上のスピ構造(b)とその断面図(c)。[2]より転載。

用が実際に局在 f スピン間にキラルな構造を生じるかについての詳しい計算が必要であり、MnSi と比較しながら、その起源についてさらに追求する予定である。

ジグザグ鎖における電流誘起反強磁性

単体テルルで確認されたように、キラルな結晶構造を持つ物質においては、電流印加によって磁性が誘起されうる。その最も簡単な構造はジグザグ模型であり、スピン軌道相互作用が存在する場合には、反転中心がボンドの midpoint にあるため、グローバルな反転対称性は保たれるが局所的には反転対称性は破れている。[3] このような系において出現する電流誘起磁性や非相反効果は現在のホットトピックの一つであり活発に研究が進んでいるが、次のステップとして非線形応答にも興味を持たれる。

ここでは電流印加の効果を実験的位相として取り込んだときの電流や誘起磁化の時間発展を計算することで非線形応答についての研究を行った。図 2 は電場印加による電流と反強磁性磁化の時間発展である。確かに電場  $F$  が小さいときにはそれに比例して反強磁性磁化が誘起されるが、電場が大きくなると反強磁性磁化に非線形応答に伴う振動現象が見られる。ただ、今回の計算では散逸がないため、電流がブロッホ振動を示し、通常の結晶においてどの程度の非線形性が期待できるかなど定量性についてはよく分からなかった。一方で、ブロッホ振動のため  $Ft \sim 3.6$  で電流がゼロの状態に戻るが、このとき完全には元の状態に戻らず、ジグザグ構造のために反強磁性が誘起された状態に遷移する場面があるのは興味深い。実際、この瞬間において印加電場をゼロにしても反強磁性状態にとどまるため、ある種の電流誘起反強磁性転移が見られたと言えるが、現状、電子間相互作用は考慮していないため、このような状態がなぜ安定化したのかについては目下検討中である。この状態では、正味の電流はゼロであるが、局所的にループ電流も残っており、軌道磁性も反強磁性的に出現している。実際の結晶においてこのような効果を期待するのは難しいが、冷却原子系では観測可能かもしれない。

LDA+DMFT の進捗

現在主流の第一原理計算では、磁性材料のような強相関物質の電子状態を正しく予測することは難しい。海外を中心に LDA+DMFT 法を用いて電子相関を議論することが多くなっているが、f 電子系のようにスピン軌道相互作用の強い場合を記述するのは現在も困難である。我々のグループではこれを改良するための独自コードを開発しており、概ね完成に至っている。今年度は Ce 系化合物を中心にそのベンチマークを取った。現状、重い電子系化合物の典型例である  $CeRu_2Si_2$  は正しく記述することができたが、 $CeCu_2Si_2$  の電子状態は癖が強く、その記述には今しばらく時間が必要である。もう少し適用例を増やすことで、その有用性について徐々に公開して行く予定である。

参考文献

[1] K. Kaneko, M.D. Frontzek, M. Matsuda, A. Nakao, K. Munakata, T. Ohhara, M. Kakihana, Y. Haga, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Onuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 013702 (2019).  
 [2] Y. Onuki, M. Kakihana, W. Iha, K. Nakaima, D. Aoki, A. Nakamura, F. Honda, M. Nakashima, Y. Amako, J. Gouchi, Y. Uwatoko, S. Nakamura, T. Sakakibara, T. Takeuchi, Y. Haga, H. Ikeda, H. Harima, M. Hedo, and T. Nakama, *JPS Conf. Proc.* **29**, 012001 (2020).  
 [3] Y. Yanase, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 014703 (2014).

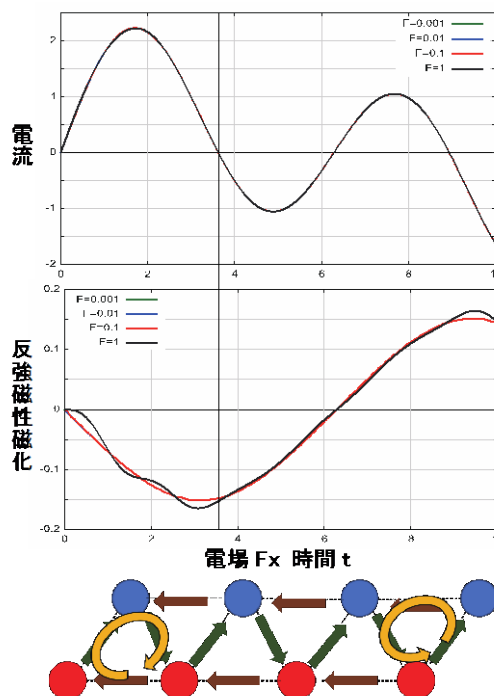


図 2. ジグザグ格子における電流および反強磁性磁化の時間発展と電流誘起反強磁性転移



## スピ液体・液体における熱および電磁波駆動非平衡ダイナミクス

C01 班 佐藤正寛

本研究グループでは、主に、スピ液体やその関連系に温度勾配や高強度電磁波(レーザー)を印加して生じる新しい非平衡・非線形ダイナミクスを理論的に発掘・予言することを目指している。

光物性科学に注目すると、近年、エレクトロニクス(低周波数側)と光物性科学(高周波数側)で主要な研究対象となる周波数帯のちょうど中間に位置するテラヘルツ( $\text{THz}=10^{12}\text{Hz}$ )帯のレーザーの高強度化が実現している[1]。THz 波フォトンエネルギーは磁気励起のそれに匹敵する為、THz レーザーを利用した磁気励起や磁気秩序の高速制御はまさにタイムリーな研究テーマといえる。

一方、熱に関係した磁性体の非平衡現象として、ナノスケールで減衰してしまうスピ流(角運動量の流れ)を熱的に生成し検出する方法—スピゼーベック効果[2]—が発展している。これは、近年進展を続けているスピントロニクス[2]やナノサイエンスの象徴的成果の1つでもある。熱伝導度測定では、磁気励起に加えてフォノンや伝導電子など全準粒子による寄与の総和を観測するが、スピ流のみを選択的に検出する方法では、対象とする系の磁性や磁気励起構造をより明確に理解できる。

このような背景から、現在、スピ液体(スピネマティック)や他の量子液晶において熱や光が誘導する現象の物理学を発展させる絶好の機会を迎えていると言えるだろう。以下では、熱・光駆動の非平衡磁気現象に関わる本年度の研究成果[3,4,5,6]のうち、2つの成果[3,4]について紹介する。

### (1) スピネマティック液体相におけるスピゼーベック効果

スピネマティック (spin nematic: SN) 秩序状態とは、スピ(双極子)秩序を持たず、スピ四極子秩序(例えば  $\langle S_r^+ S_r^+ + S_r^- S_r^- \rangle$ ) を持つ状態を指す[7]。熱力学量(磁化や比熱)測定や磁気共鳴法などを介してスピ秩序やスピ相関を検出することは比較的容易であるが、一方、四極子秩序を検出するナイーブな戦略は四極子秩序そのものや SN 相関関数(スピ 4 点関数)の観測であり、これは容易ではない。すなわち、量子スピ液体同様、SN 相は検出しにくい「見えない」磁気状態と言える。

SN 秩序の創発にはスピ秩序を抑制する必要がある。また隣接スピのテンソル積  $S_r^- S_{r+1}^+ (S_r^+ S_{r+1}^-)$  はマグノンペアの生成(消滅)演算子とみなせて、マグノンペアがボーズ・アインシュタイン凝縮を起こせば、その生成消滅演算子  $S_r^- S_{r+1}^+$  と  $S_r^+ S_{r+1}^-$  が有限の期待値を持ち SN 秩序が発現する。強磁性相互作用はマグノン間引力をもたらし、一般に空間次元が低いほど準粒子の束縛状態は安定化する。以上の考察を統合すると、低次元フラストレート強磁性体が SN 相の理想的舞台と言える。例えば、最近 10 年ほどの研究で、最近接強磁性結合  $J_1$  と次近接反強磁性結合  $J_2$  をもつフラストレート強磁性スピ鎖において飽和磁場から低磁場までの広い領域で SN 液体(準長距離秩序)相が実現することが分かってきた。

このような背景の下、我々は、代表的な  $J_1$ - $J_2$  スピ鎖磁性体である  $\text{LiCuVO}_4$  のスピゼーベック効果 (spin Seebeck effect: SSE) の実験を行い、SN 液体相の新物性を探索した。また、それを説明する微視的理論も構築した[3]。SSE のイメージを図 1(a)に示した。これは、磁性体と金属の接合系に温度勾配を加えて熱的スピ流を生成させる現象である。磁性体中のスピ流は界面の交換相互作用を介して金属側に注入され、金属中で生じる逆スピホール効果によりスピ流の一部が電流に変換され、最終的に電気信号としてスピ流が検出される。

さて、理論研究により、SN 液体相では gapless マグノンペアと gap を持つマグノンが共存すると考えられている。実際、我々は以前にこの特性を活かして NMR を用いれば SN 液体相の特徴を捉えられることを予言[8]し、実験でも検証されている。マグノンペアは角運動量  $2\hbar$

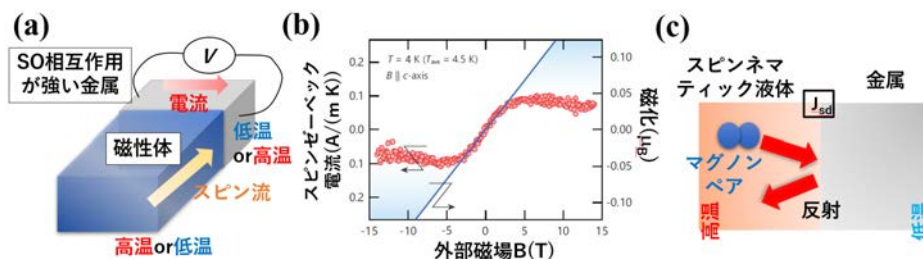


図 1: (a)スピゼーベック効果の実験の概念図。(b) $\text{LiCuVO}_4$  のスピネマティック液体相におけるスピゼーベック電流の外部磁場依存性。(c)スピネマティック液体相と金属の界面におけるマグノンペアの反射過程のイメージ。



をもち、マグノンのそれは $\hbar$ なので、SN液体のSSEではマグノンペアによるスピン流が支配的だと一見予想される。しかし、実験結果の図1(b)は、むしろマグノンがスピン流を担っていることを支持している。J<sub>1</sub>-J<sub>2</sub> スピン鎖のマグノン gap は低磁場領域で磁場とともに単調増加することが知られており、図1(b)のように SSE 信号が磁場増加で減少に転じるのは、マグノン(スピン流キャリア)の gap が増加し、キャリア密度が磁場とともに減少することで説明できる。では何故マグノンペアは SSE に貢献できないのだろうか？マグノンの角運動量は界面の交換相互作用 1 回の作用で金属側の伝導電子に受け渡されるが、マグノンペアのそれは高次のプロセスで初めて伝導電子に伝わる。それ故、図1(c)に示したように、ほとんどのマグノンペアは界面で反射されてしまうのだ。

上記の我々の研究から、SSE はスピン 1 の準粒子(マグノン)流を選択的に検出すること、及び、SN液体の熱的スピン流の特性が明らかにされた。前者は熱伝導実験が持たない SSE 固有の特性である。

**(2) スピン液体・磁気秩序相におけるスピン流版シフトカレント(スピン流版太陽電池)**

AC 外場により物質中にある特定方向の DC 流を生成するには、反転対称性の破れが重要な役目を果たす。AC 外場は左右に振動し特定の方向を選択しない為、物質中に流れの方向を指示する「種」が必要な訳である。AC 外場から DC 流を作る典型的なデバイスは太陽電池であり、その基本構造は p 型と n 型半導体の接合系であり、まさにこれは反転非対称な構造である。一方、近年、微視的なレベルで反転対称性を破った結晶単体における光誘起電流の研究が活性化している。反転対称性が破れた結晶では単位胞が少なくとも 2 格子点を含み、エネルギーバンドが複数枚現れる。バンド間エネルギーに相当するフォトンが注入されると電子遷移が起きる。反転非対称性により下位バンドと上位バンドの電子の単位胞内の重心位置がずれている為、電子遷移は重心のシフトをもたらす。これが反転対称性の破れた結晶における光電流生成メカニズムの 1 つであり、生じる電流はシフトカレントと呼ばれている[9]。より正確には、このような重心シフトによる光電流の中でキャリアの緩和時間依存性が弱い(つまりある程度の散乱に対して安定な)ものをシフトカレントという。

我々は、非線形応答理論を駆使し、磁性絶縁体におけるスピン流版シフトカレント生成の可能性を考察した[4]。すなわち、遍歴電子系における「反転非対称な結晶、可視光、電流」を磁性体における「反転非対称な磁性体、THz 波、スピン流」で置換できる可能性を理論的に考察した。その結果、反転対称性の破れた量子スピン鎖と反強(又はフェリ)磁性体において、各々フェルミオン(スピノン)とマグノンによるレーザー誘起シフト DC スピン流が生成可能であることを示した[4]。

電磁波による DC スピン流生成法としてスピンプンプ(図 2(a))が確立しているが、上記スピン流整流はスピンプンプと本質的に異なる現象であることを強調しておく。スピンプンプでは、磁性体に AC 磁場を照射し磁気共鳴を起こし、共鳴で生じた磁気励起(マグノンなど)が拡散的に広がることでスピン流を生成する。一方、我々のスピン流整流現象では、反転非対称な磁性結晶自体がスピン流の流れる方向を決めるのである(図 2(b))。

参考文献

- [1] 固体物理「高強度 THz・赤外パルスが拓く非平衡物性」アグネ技術センター(2019年11月号)
- [2] 固体物理「スピントロニクスの新展開-スピン変換現象を中心に」(2015年11月号)
- [3] D. Hirobe, M. Sato, M. Hagihara, Y. Shiomi, T. Masuda, and E. Saitoh, PRL**123**, 117202 (2019).
- [4] H. Ishizuka and M. Sato, PRL**122**, 197702 (2019); PRB**100**, 224411 (2019).
- [5] K. Takasan and M. Sato, PRB**100**, 060408(R) (2019).
- [6] T. N. Ikeda and M. Sato, PRB**100**, 214424 (2019).
- [7] 例えば、K. Penc and A. M. Lauchli, *Introduction to Frustrated Magnetism* (Springer, 2011) p.331.
- [8] M. Sato, et al, PRB**79**, 060406(R) (2009); M. Sato, et al, PRB**83**, 064405 (2011).
- [9] V. Belinicher, et al, JETP**56**, 359 (1982); J. E. Sipe and A. I. Shkrebtii, PRB**61**, 5337 (2000).

研究室 HP: <http://sugar.sci.ibaraki.ac.jp/index.html>

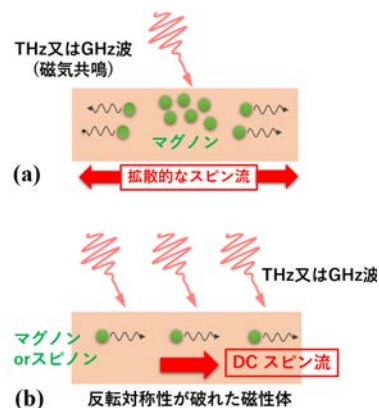


図 2:(a)スピンプンプと(b)我々が提案するスピン流整流のイメージ図。

大規模数値計算による  $t-t'-J$  模型とフラストレート量子スピン系の研究

C01 班 遠山貴巳

(1) ストライプ状態を生み出す  $t-t'-J$  模型のスピンダイナミクス

ホールドープ系銅酸化物高温超伝導体では、「砂時計型」の磁気励起分散やホール濃度の増加に伴う磁気励起の方向依存性が観測されている。これらの特徴的な磁気励起の機構は、高温超伝導の起源とも関わって未解決の問題として残っている。この問題に対する糸口を見つけるため、以前の研究では、4本足梯子格子系（ $24 \times 4 = 96$  格子点のシリンダー境界条件）の  $t-t'-J$  模型に対して、二次元動的密度行列繰り込み群法(2D-DDMRG)を適用して、ホールドープ系の動的スピン構造因子の計算を行った [1]。この4本足梯子格子模型は基底状態で実験と対応する電荷ストライプ秩序を示すことが知られている。磁気励起スペクトルには、「砂時計型」の特徴は現れたが、非弾性中性子散乱実験との定量的な一致は得られなかった。その原因が4本足という正方格子からはかなりずれた形状にあるのではと考え、4本足から8本足まで変化させたとき基底状態とともに動的スピン構造因子がどのように変化するか調べた。

$x$  軸方向は自由境界条件、 $y$  軸方向は周期境界条件を持つ  $L_x = m \times n = 96$  ( $L_x = m, L_y = n$ ) の  $n$  本足梯子  $t-t'-J$  模型に対して、2D-DDMRG によって動的スピン構造因子

$$S(\mathbf{q}, \omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} \langle 0 | S_{-\mathbf{q}}^z \frac{1}{\omega - H + E_0 + i\gamma} S_{\mathbf{q}}^z | 0 \rangle$$

を計算した。ここで、 $|0\rangle E_0$  はそれぞれ、基底状態とそのエネルギー、 $S_{\mathbf{q}}^z$  は運動量  $\mathbf{q}$  を持つスピン演算子の  $z$  成分のフーリエ成分、 $\gamma$  は小さな正のエネルギーである。 $\mathbf{q}$  の  $x$  成分は  $q_x = n_x \pi / (L_x + 1)$  ( $n_x = 1, 2, \dots, L_x$ )、 $y$  成分は  $q_y = 2n_y \pi / L_y$  ( $n_y = 0, \pm 1, \dots, L_y/2$ ) で与えられる。スピン演算子のフーリエ成分は

$$S_{\mathbf{q}}^z = \left[ \frac{2}{L_y (L_x + 1)} \right]^{1/2} \sum_l \sin(q_x l_x) e^{-iq_y l_y} S_l^z$$

となる。

図1には、 $\mathbf{q} = (q_x, q_y) = (\pi, \pi)$  から  $q_x$  を減少させる方向に変化させた時の動的スピン構造因子の  $n$  依存性を示す (キャリア密度は  $x_h = 1/8$  に固定)。 $n=4$  (図の最上段) の  $q_x = 0.7\pi$  付近の低エネルギー構造が砂時計の最下端部に対応する。 $q_x$  を  $q_x = \pi$  まで増加させると励起エネルギーが増大してスペクトルが砂時計のように振舞う [1]。 $n=4$  の基底状態では電荷の周期が4格子点の電荷ストライプが実現しており、その秩序が砂時計型の振る舞いの起源であると見ることもできる。しかし、 $n=4$  の結果を非弾性中性子散乱実験と比較すると、次の2点で問題があった。一つ目は、 $q_x = 0.7\pi$  付近から小さな  $q_x$  へ向かう磁気励起構造は実験では観測されていないが、計算では大きな強度が現れること、二つ目は、 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$  付近のエネルギーが実験より2倍ほど高いことである。そのため、電荷ストライプ状態の出現が実験を説明する条件とは言い切れない。一方、図1に示すように、 $n$  を  $n=6, n=8$  と増加させるにつれて  $n=4$  で見られた上述の実験との2つの不一致点が解消されていることがわかる。一つは  $q_x = 0.7\pi$  付近から小さな  $q_x$  へ向かう励起構造が非常に弱くなり実験と対応する点、もう一つは  $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$  付近のエネルギーが  $\omega \sim 0.2t \sim 50 \text{ meV}$  であり、実験とよく対応している点である。 $n=8$  の基底状態では電荷ストライプ秩序は弱ま

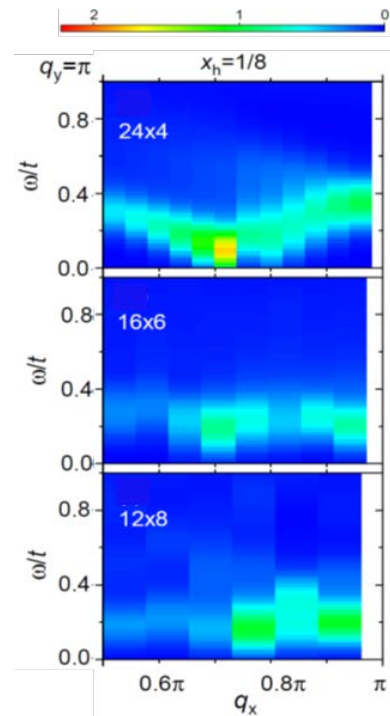


図1: 2D-DDMRG による  $m \times n = 96$  格子点  $n$  本足梯子格子  $t-t'-J$  模型の  $\mathbf{q} = (q_x, q_y) = (\pi, \pi)$  近傍の動的スピン構造因子。上から  $n=4, n=6, n=8$ 。キャリア密度  $x_h = 1/8$ 。

っており、周期性は崩れているが一方向に電荷が分布する傾向が見えている。

そのような周期性が崩れた不均一な電荷分布は正方格子  $8 \times 8$   $t$ - $t'$ - $J$  模型の基底状態でも見られる。詳細は省略するが、 $\mathbf{q}=(0,0)$ からほぼ等距離にある  $\mathbf{q} \sim (\pi,0)$ と  $\mathbf{q} \sim (\pi/2,\pi/2)$  での磁気励起のエネルギー差がホール濃度とともに増加していくという共鳴非弾性 X 線散乱実験の特徴を、この  $8 \times 8$   $t$ - $t'$ - $J$  模型の動的スピン構造因子の計算でとらえることができた。これまで、 $t$ - $t'$ - $J$  模型を数値的に厳密に取り扱うことによって不均一な電荷分布の下で磁気励起構造の詳細な特徴を総合的に明らかにした研究はなく、本成果はオリジナルの結果となっている。現在、論文を投稿中である [2]。

## (2) スピン液体を特徴づけるウィルソン比

幾何学的フラストレーションのある  $S=1/2$  ハイゼンベルグ模型はスピン液体の可能性を秘めており、数多くの理論研究がなされてきた。スピン液体の理論研究の多くは基底状態に関するものである。そのため、スピン液体状態か秩序状態かによって有限温度での物理量がどのような違いを見せるかという系統的な議論は行われていない。

本研究では有限温度の物理量として一様磁化率  $\chi_0(T)$ と磁気比熱（スピン自由度によるエントロピー  $s(T)$ ）に着目する。カゴメ格子上的反磁性  $J_1$ - $J_2$  ハイゼンベルグ模型、正方格子上的反強磁性  $J_1$ - $J_2$  ハイゼンベルグ模型、三角格子上的反強磁性  $J_1$ - $J_2$  ハイゼンベルグ模型に対して、 $\chi_0(T)$ と  $s(T)$ を有限温度ランチョス法で計算する。ここで、 $J_1$ 、 $J_2$ はそれぞれ最近接、次近接の交換相互作用である。 $\chi_0(T)$ と  $s(T)$ とともに、それらから定義されるウィルソン比  $R(T)=4\pi^2 T \chi_0(T)/(3s(T))$ を調べた。

図2には36格子点のカゴメ  $J_1$ - $J_2$  ハイゼンベルグ模型の  $s(T)$ 、 $\chi_0(T)$ 、 $R(T)$ を示す。 $J_2=0$  近傍ではスピン液体状態が基底状態と考えられている。 $J_2=0$  近傍では  $R(T)$ は  $T \rightarrow 0$  でゼロに向かっていくこと、一方、 $J_2$ が大きくなると逆に低温に向かって発散するという特徴的な振る舞いがみられる。この傾向は他の格子系でも同様であり、ウィルソン比がスピン液体かどうかを判断する一つの指標となっていることを示している[3]。 $s(T)$ からは、スピン液体状態の領域ほど低温までエントロピーが生き残っていることがわかる。一方、 $\chi_0(T)$ にはスピン液体の領域で特徴的な変化はない。 $\chi_0(T)$ とは異なり、 $s(T)$ には全スピンの一重項状態も寄与していることから、スピン液体状態では、一重項の励起が三重項以上の磁気励起よりも低エネルギー側に分布していることが予想される。実際、エネルギー準位を丁寧に調べるとそのような傾向があることがわかる [3]。スピン・ネマティック状態のような新奇な状態でも有限温度でのウィルソン比などの特徴量を詳細に調べることは重要であろう。

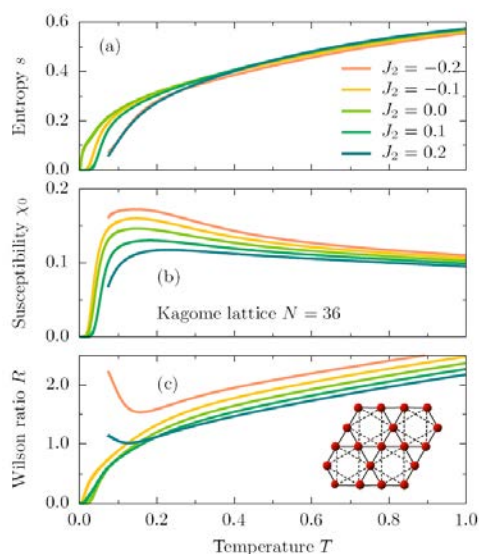


図2:36 サイト・カゴメ格子  $J_1$ - $J_2$  ハイゼンベルグ模型の(a)エントロピー  $s(T)$ 、(b)磁化率  $\chi_0(T)$ 、(c)ウィルソン比  $R(T)$ の温度依存性。

## 参考文献

- [1] T. Tohyama, M. Mori, and S. Sota, *Phys. Rev. B* **87**, 235137 (2018)  
[\[https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.235137\]](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.235137)  
 [2] T. Tohyama, S. Sota, and S. Yunoki, submitted to *Phys. Rev. B*; arXiv:2003.11161.  
 [3] P. Prelovsek, K. Morita, T. Tohyama, and J. Herbrych, *Phys. Rev. Research*, in press (2020).

研究室 HP: <https://www.rs.tus.ac.jp/tohyamalab/>

## Quantum Liquid Crystals

C01 班 Nic Shannon

### Introduction

The possibility that magnets could exhibit phases analogous to liquid-crystals has been discussed for a little over 50 years [1], and the “quantum spin nematic”, a phase in which magnetic ions spontaneously form quadrupole moments on the sites or bonds of lattice [2], is one of the earliest examples of a quantum liquid crystal (QLC). For a long time this novel phase was viewed as theoretical curiosity, but in the last few years, strong candidates have been identified in a range of different materials [3-6]. This provides a strong motivation to return to the models found in the theoretical literature, to properly characterise their properties, and to try to bridge the gap between theory and experiment. Our research within the QLC project will address both of these issues, using a range of different analytic and numerical techniques.

### Quantum spin nematics in high magnetic field

The best prospects for observing a quantum spin-nematic are in magnets with competing ferromagnetic (FM) and antiferromagnetic (AF) interactions, in high magnetic field, where magnons can condense as bound pairs, leading to a state which breaks (spin-)rotation symmetry in the same way as a nematic liquid crystal [7, 8]. Several such materials are now under discussion as potential quantum spin nematics, including the linear spin-chain compound LiCuVO.[3], the mineral Volborthite [4] and the (approximately) square-lattice frustrated FM, BaCdVO(PO). [5, 6].

In the case of 1D spin chains, detailed numerical results are available through DMRG calculations [9-12]. But unfortunately the high values of magnetic field  $H \sim 45$  T required to saturate the magnetization of LiCuVO make experiment very challenging. More data is available in the case of Volborthite, and the experimental situation is very promising in the case BaCdVO(PO), where the saturation field is only  $H \sim 5$  T. But in these cases, theoretical predictions are lacking, because of the challenge of carrying out numerical simulations in 2D.

To address this problem, we have brought modern numerical techniques to bear on 2D models of spin-1/2 frustrated ferromagnets, starting with the paradigmatic “J-K model” [2, 8]. Our preliminary results are consistent with a broad domain of spin-nematic order [Fig. 1]. And since this is the same type of QLC as predicted for LiCuVO, Volborthite and BaCdVO(PO), results will also inform how we think about these systems.

### Simulating the semi-classical dynamics of quantum liquid crystals

The analogy between QLC and magnets is particularly strong in the case of spin-1 moments, which can support a quadrupole moment on a single site, with symmetry equivalent to a molecule in a nematic liquid crystal. To learn more about these systems, we have developed a novel (semi-)classical Molecular-Dynamics (MD) simulation technique, based on equations of motion written for U(3) matrices, which is capable of accessing both Goldstone modes [13, 14], and topological excitations [15].

As a test case, we have looked the dynamics of the ferro-quadrupolar (FQ) state in the spin-1 bilinear-biquadratic

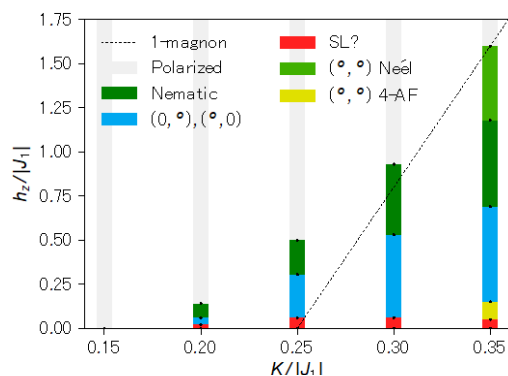


Fig.1 Phase diagram of a two-dimensional frustrated ferromagnet as a function of magnetic field, showing a quantum spin-nematic state approaching saturation for a broad range of parameters. The model considered has spin-1/2 moments on a square lattice where ferromagnetic 1-neighbour exchange,  $J_1 < 0$ , competes with antiferromagnetic 4-spin exchange,  $K > 0$ .



model on a triangular lattice — a canonical model originally motivated by the unconventional magnetic behavior of NiGaAs. [16, 17, 18]. Our results perfectly reproduce the earlier flavour-wave calculations [18], once corrected for the classical statistics of the simulations [see Fig. 2]. These results provide a starting point for a wider exploration of dynamics in spin-1 models.

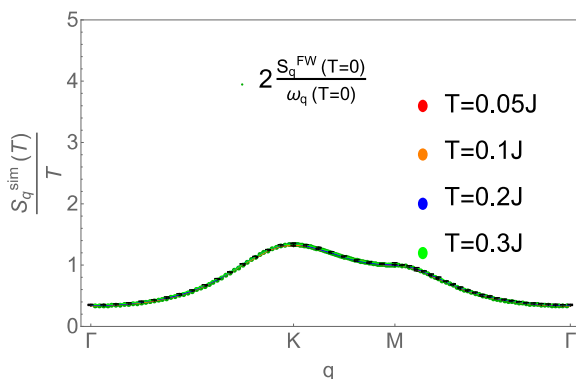


Fig. 2 Comparison of results for the equal-time structure factor  $S(q)$  of a ferro-quadrupolar state, obtained in flavour wave theory at zero temperature (cf. Ref. 18), and in molecular dynamics simulation carried out at finite temperature  $T$ . The model considered is the spin-1 bilinear-biquadratic (BBQ) model on a triangular lattice. Simulation data has been collapsed in such a way as to eliminate the effect of classical statistics, and shows perfect agreement with analytic results at  $T=0$ .

## References

- [1] M. Blume and Y. Y. Hsieh, *J. App. Phys.* 40, 1249 (1969) [<https://doi.org/10.1063/1.1657616>]
- [2] A. F. Andreev and I.A. Grishchuk, *Sov. Phys. JETP* 60, 267 (1984) [<http://www.jetp.ac.ru/cgi-bin/e/index/e/60/2/p267?a=list>]
- [3] A. Orlova, E. L. Green, J. M. Law, D. I. Gorbunov, G. Chanda, S. Krämer, M. Horvatić, R. K. Kremer, J. Wosnitzer, and G. L. J. A. Rikken, *Phys. Rev. Lett.* 118, 247201 (2017) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.118.247201>]
- [4] Y. Kohama, H. Ishikawa, A. Matsuo, K. Kindo, N. Shannon, and Z. Hiroi, *Proc. Natl. Acad. Sci.* 116, 10686 (2019) [<https://doi.org/10.1073/pnas.1821969116>]
- [5] M. Skoulatos, F. Rucker, G. J. Nilsen, A. Bertin, E. Pomjakushina, J. Ollivier, A. Schneidewind, R. Georgii, O. Zaharko, L. Keller, Ch. Rüegg, C. Pfleiderer, B. Schmidt, N. Shannon, A. Kriele, A. Senyshyn, and A. Smerald, *Phys. Rev. B* 100, 014405 (2019) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.014405>]
- [6] V. K. Bhartiya, K. Yu. Povarov, D. Blosser, S. Bettler, Z. Yan, S. Gvasaliya, S. Raymond, E. Ressouche, K. Beauvois, J. Xu, F. Yokaichiya, and A. Zheludev, *Phys. Rev. Research* 1, 033078 (2019) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.1.033078>]
- [7] A. V. Chubukov, *Phys. Rev. B* 44, 4693 (1991) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.44.4693>]
- [8] N. Shannon, T. Momoi, and P. Sindzingre, *Phys. Rev. Lett.* 96, 027213 (2006) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.027213>]
- [9] T. Hikihara, L. Kecke, T. Momoi, and A. Furusaki, *PRB* 78, 144404 (2008) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.78.144404>]
- [10] J. Sudan, A. Lüscher, and A. M. Läuchli, *PRB* 80, 140402 (2009) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.80.140402>]
- [11] H. Onishi, *J. Phys. Soc. Jpn.* 84, 083702 (2015) [<https://doi.org/10.7566/JPSJ.84.083702>]
- [12] F. B. Ramos, S. Eliëns, and R. G. Pereira, *Phys. Rev. B* 98, 094431 (2018) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.094431>]
- [13] A. Smerald and N. Shannon, *Phys. Rev. B* 88, 184430 (2013) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.88.184430>]
- [14] A. Smerald, H. T. Ueda, and N. Shannon, *Phys. Rev. B* 91, 174402 (2015) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.174402>]
- [15] H. T. Ueda, Y. Akagi, and N. Shannon, *Phys. Rev. A* 93, 021606(R) (2016) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevA.93.021606>]
- [16] S. Nakatsuji, Y. Nambu, H. Tonomura, O. Sakai, S. Jonas, C. Broholm, Hi. Tsunetsugu, Y. Qiu, Y. Maeno, *Science* 309, 1697 (2005) [<https://doi.org/10.1126/science.1114727>]
- [17] H. Tsunetsugu, and M. Arikawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* 75, 083701 (2006) [<https://doi.org/10.1143/JPSJ.75.083701>]
- [18] A. Läuchli, F. Mila, and K. Penc, *Phys. Rev. Lett.* 97, 087205 (2006) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.087205>]

Unit website: <https://groups.oist.jp/tqm>

Nic Shannon (OIST • Theory of Quantum Matter Unit • Professor)

## 遍歴フラストレーションがもたらす磁気テクスチャ: 螺旋, 渦, スキルミオン, ヘッジホッグ

C01 班 求 幸年

スピンの互いに非共線的あるいは非共面的な構造をもつ磁気テクスチャでは、ベクトルカイラリティ ( $\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$ ) やスカラーカイラリティ ( $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_k$ ) といった高次の自由度が物性に顔を出す。例えば、後者はベリー位相を通じて有効的な磁場を創発し、トポロジカルホール効果を引き起こす。こうした磁気テクスチャには、単純な螺旋構造や、それらの重ね合わせで構成される磁気渦などが知られている。とりわけ、スピンの非共面的に球面を覆う構造をもつ磁気スキルミオンと呼ばれる磁気テクスチャでは、そのトポロジカルな堅牢性から、それぞれが独立な粒子の様に振る舞うことが見出されている。このように、こうした特異な磁気テクスチャは、量子ゆらぎや熱ゆらぎのもとで融解し、液体あるいは液晶的に振る舞う可能性を有することから大変興味深い研究対象である。

こうした磁気テクスチャの起源として、スピン軌道相互作用に由来する Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用や長距離に及ぶ双極子相互作用などが議論されている。本研究では、それらと異なる機構として、遍歴電子が媒介する有効相互作用に着目する。このような有効相互作用のよく知られた例に、スピンと電荷の結合に関する2次摂動から生じる Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) 相互作用がある。これは、遍歴電子のフェルミ波数に対応した特徴的な振動をもつ長距離相互作用であり、一般に磁気螺旋を安定化する。我々はこれまでの研究で、RKKY 相互作用にフェルミ面のもつ対称性からフラストレーションが生じ、より高次の有効相互作用が重要となることで、新規な磁気テクスチャが現れることを見出してきた[1-5]。例えば、DM 相互作用によるものとは異なるトポロジカル数をもつ磁気スキルミオンが安定化することを見出している[4,5]。

最近、1次元的な磁気螺旋、2次元的な磁気渦やスキルミオンに加えて、3次元的な非共面構造をもった磁気ヘッジホッグが注目を集めている。磁気ヘッジホッグは、ベリー位相を通じて創発する有効磁場が磁気モノポールや反モノポールを構成することから、スキルミオンとは定性的に異なる物理が期待される興味深い磁気テクスチャである(図1)。実験的には、B20化合物の一つである MnGe において磁気ヘッジホッグが周期的に配列した磁気構造が見出されている[6,7]。これは、3つの異なる波数をもつ螺旋の重ね合わせとなっているため、 $3Q$ ヘッジホッグ格子と呼ばれる(図2上)。さらに、この MnGe と磁気スキルミオンが見出されている MnSi との固溶系において、MnGe のものとは異なる磁気ヘッジホッグの配列も見出された[8]。こちらは4つの螺旋で構成されるため、 $4Q$ ヘッジホッグ格子と呼ばれる(図2下)。いずれのヘッジホッグ格子も2~3 nm程度という非常に短い磁気周期をもち、従来のDM相互作用からは説明が難しいとされている。また、これまでの局在スピンモデルに基づく理論研究では、これらのヘッジホッグ格子がゼロ磁場で安定に現れることを説明できていなかった。

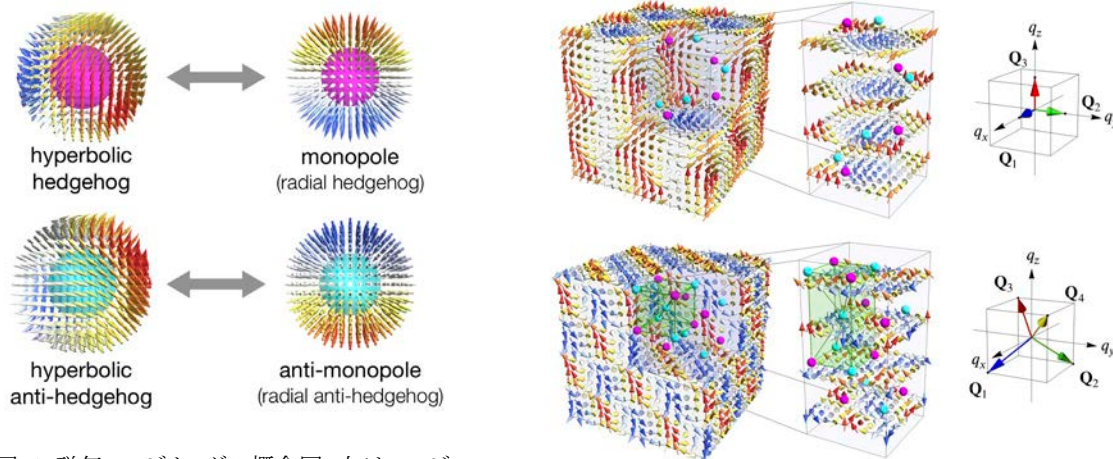


図 1: 磁気ヘッジホッグの概念図。左はヘッジホッグと反ヘッジホッグのスピン配置、右はそれらから創発する有効磁場が作る磁気モノポールと反モノポールを示す。

図 2: 焼きなまし法によって得られた磁気ヘッジホッグ格子。左はスピン配置とモノポール・反モノポールの位置、右はそれぞれの磁気テクスチャを特徴付ける螺旋の波数を示す。

そこで本研究では、上記の遍歴電子との結合によるフラストレーションと高次の有効相互作用の機構に基づいて、磁気ヘッジホッグの安定性と、磁場印加による相転移現象を理論的に調べた[9,10]。その結果、まずゼロ磁場では、スピンと電荷の結合に由来する4スピン相互作用と、スピンと軌道の結合に由来するDM的な相互作用の協調により、3Qや4Qヘッジホッグ格子が安定に現れることを見出した(図2)。さらに、それぞれの場合に[001], [110], [111]方向に磁場を印加した計算を行い、磁場の方向に応じて様々な相転移が現れることを見出した(図3上)。とりわけ、3Qや4Qヘッジホッグ格子相では、磁気モノポールと反モノポールの対消滅によるトポロジカル相転移を見出した。磁場の変化に対して、モノポールと反モノポールがどのように移動して対消滅を起こすかを追跡することに成功し(図3下)、その際のモノポールと反モノポールを結ぶ有効磁場の変化から、スカラーカイラリティの磁場依存性が理解できることを明らかにした。

これらの結果は、磁気ヘッジホッグという特異な磁気テクスチャにおけるスピン・電荷・軌道の結合の重要性を示しているのみならず、螺旋、磁気渦やスキルミオンといった次元の異なる磁気テクスチャとの間の興味ある相転移現象を調べる基盤を与えている。こうした相転移では、創発有効磁場が大きく変化するため、それに応じた特異な量子輸送現象が期待される。現在、こうした相転移と輸送現象に関する研究を進めている。

#### 参考文献

- [1] Y. Akagi and Y. Motome, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79**, 083711 (2010).  
 [2] Y. Akagi, M. Udagawa, and Y. Motome, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 096401 (2012).  
 [3] R. Ozawa, S. Hayami, K. Barros, G-W. Chern, Y. Motome, and C. D. Batista, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 103703 (2016).  
 [4] R. Ozawa, S. Hayami, and Y. Motome, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 147205 (2017).  
 [5] S. Hayami, R. Ozawa, and Y. Motome, *Phys. Rev. B* **95**, 224424 (2017).  
 [6] N. Kanazawa, J.-H. Kim, D. S. Inosov, J. S. White, N. Egetenmeyer, J. L. Gavilano, S. Ishiwata, Y. Onose, T. Arima, B. Keimer, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **86**, 134425 (2012).  
 [7] T. Tanigaki, K. Shibata, N. Kanazawa, X. Yu, Y. Onose, H. S. Park, D. Shindo, and Y. Tokura, *Nano Letters* **15**, 5438 (2015).  
 [8] Y. Fujishiro, N. Kanazawa, T. Nakajima, X. Z. Yu, K. Ohishi, Y. Kawamura, K. Kakurai, T. Arima, H. Mitamura, A. Miyake, K. Akiba, M. Tokunaga, A. Matsuo, K. Kindo, T. Koretsune, R. Arita, and Y. Tokura, *Nat. Commun.* **10**, 1059 (2019).  
 [9] S. Okumura, S. Hayami, Y. Kato, and Y. Motome, *accepted for the publication in Phys. Rev. B* (arXiv:1908.05044).  
 [10] S. Okumura, S. Hayami, Y. Kato, and Y. Motome, *JPS Conf. Proc.* **30**, 011010 (2020).

研究室 HP: <http://www.motome-lab.t.u-tokyo.ac.jp>

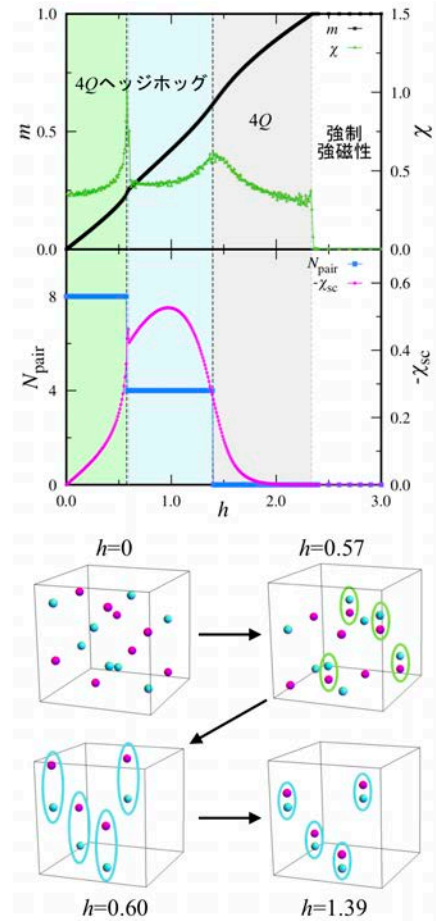


図 3: 4Qヘッジホッグ格子に[001]磁場を印加した場合の磁化  $m$ 、磁化率  $\chi$ 、モノポール・反モノポールの数  $N_{\text{pair}}$ 、スカラーカイラリティ  $\chi_{\text{sc}}$  の磁場  $h$  依存性。下の図はモノポール・反モノポールの対消滅の様子を示す。



## 固体素子における多体効果と非平衡輸送

D01 班 小林研介

近年、様々な物質において、その電子状態が流動的でありながら、同時に、異方性を獲得する事例が次々と発見されている。このような特異な電子状態を量子液晶と呼ぶことができる。量子液晶の最大の特徴は、自己組織化した柔軟な電子状態を持ち、外場に対して高速かつ巨大な応答を示す点にある。D01 班の研究目的は、高速巨大応答を生み出す素励起の実体を解明し、外場による量子液晶の素励起・配向性の制御を行い、機能を創出することにある。我々の研究グループでは、特に、量子液晶物質のための微細加工技術を開発すると同時にナノサイエンスによる電気的アプローチを行っている。

我々はメゾスコピック系を用いて、研究を推進している。メゾスコピック系とは、半導体や金属を微細加工して作製される微小な電子回路のことである。その最大の特長は、量子力学的効果が本質的であるようなスケールにおいて、制御性の高い実験ができる点にある。我々は、このようなメゾスコピック系における様々な現象、主に量子多体現象、非平衡現象、スピン輸送現象などに注目して研究を行ってきた。高精度な電流ゆらぎ測定やスピン輸送測定を行うことで、定量的に量子輸送・スピン輸送を観測・制御することができ、量子液晶の機能開拓につながると期待される。

本年度は主として以下の研究を行った。

### 1. 量子液体の非平衡ダイナミクス [1,2]

近藤効果については半世紀にわたって数多くの研究が行われてきた。理論的には近藤状態は「局所フェルミ液体」として記述されることが確立しており、近藤状態の振る舞いを研究することは、強い電子相関に支配される量子液体を研究することと等価である。

我々は、カーボンナノチューブに作製した量子ドットにおける近藤効果を研究してきた。素子の概念図を図1に示す。研究によって、近藤状態においては一粒子の伝導過程だけではなく二個の粒子が関与する伝導過程もあり、それによって電流ゆらぎが通常値よりも増大することを明らかとした。この電流ゆらぎから、量子液体を特徴づけるウィルソン比を求めることができ、量子ドットが極めて強い量子多体状態にあることを実証した。さらに、これまでに知られていなかった非平衡スケール則を実験的に確立した。また、SU(2)とSU(4)という対称性の異なる近藤状態の間の連続的な遷移にともなうウィルソン比の変化を定量的に抽出することにも成功した。本年度はこれまでの成果を総説として報告した[1]。

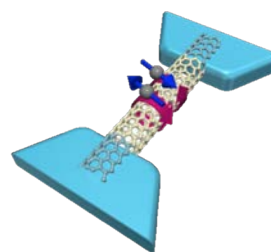


図1：カーボンナノチューブ人工原子。電子数を一個ずつ制御することにより、スピンおよび軌道に由来する近藤効果を制御可能。

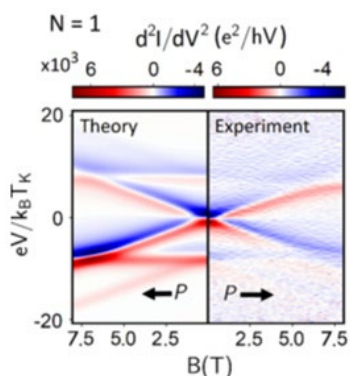


図2：微分伝導度の磁場依存性。縦軸は近藤温度でスケールしたバイアス電圧、横軸は磁場。左側が理論、右が実験を示す。本来は伝導が生じない状況でも、近藤相関によって伝導が生じることを示す。

さらに、非平衡状態でも近藤相関が生き残ることを実験的に示した[2]。すなわち、量子ドットにおける近藤効果は、微分伝導度におけるゼロバイアスピークとして観測される。これは平衡状態近傍の性質であるが、それに対し、有限バイアス下（非平衡）においても、近藤相関が輸送に影響を与える場合がある。例えば、カーボンナノチューブ量子ドットにおける近藤効果は、電子がスピンと軌道の両方の自由度を持つため、SU(2)×SU(2)の対称性を示す。この場合、近藤効果は、クラマース擬似スピンを保持するように非弾性トンネル過程を抑制する。つまり、クラマース擬似スピンの保存されるようなバイアス電圧においては、本来は伝導が生じないと考えられる。ところが、我々は、そのようなバイアス電圧におい



でも伝導が観測されることを実験的に見出した（図2）。この効果は、そのバイアス電圧において擬似スピンの保存しないような遷移が共鳴し強め合うことによって生じることを理論的に明らかにした。2つのクラマース二重項とリード線との結合が非対称であることがその原因である。

以上の成果は、非平衡量子多体系の精密な定量化に成功したものであり、今後の理論・実験の発展を促すものと期待される。

## 2. 二層系におけるラシュバ型スピン軌道相互作用 [3]

二次元電子系が近接して存在する2層2次元電子系は、擬スピン渦状態に起因する meron と呼ばれる素励起のコステリッツ-サウレス転移が予言されるなど、非自明な秩序が創発する舞台として知られる。我々は、GaAs/AlGaAs トンネル結合二重量子井戸構造の中に実現された2層2次元電子系上に量子ポイントコンタクト構造を作製し、量子輸送過程を伝導度とショット雑音測定によって精密に調べた。その結果、二重井戸のトンネルバリアを横切るポテンシャル勾配に起因するラシュバ型のスピン軌道相互作用が重要な役割を果たしていることを実証した。

本研究は、GaAs/AlGaAs のヘテロ構造を工夫することによってスピン軌道相互作用を増強し利用できることを意味している。

## 3. 磁気ゆらぎによる巨大磁気抵抗効果など [4, 5]

近年、反強磁性体ベースのデバイスで多くの興味深い物理的性質が報告されている。我々は、マイクロメートルサイズの三角格子反強磁性体  $\text{Ag}_2\text{CrO}_2$  がバタフライ型の特殊な磁気抵抗を示すことを発見した。この物質は、反強磁性的に結合した  $S=3/2$  スピンの2次元三角格子  $\text{CrO}_2$  層と、高い導電性を持つ  $\text{Ag}_2$  層で構成されている。バタフライ型の磁気抵抗は、磁場が  $\text{CrO}_2$  平面に垂直に印加された状況で、磁気秩序温度付近でのみ発現する点でユニークである。しかも、その磁気抵抗比は最大で約15%であり、単一結晶が低磁場下で示す磁気抵抗としては非常に大きい。論文でスピンのゆらぎが巨大な磁気抵抗をもたらしていることを理論的に明らかにした。また、原子層でも強磁性を保持する  $\text{Fe}_5\text{GeTe}_2$  についてナノデバイスを作製し、磁気抵抗について調べた[6]。

このような研究は量子液晶物質の新たな機能開拓につながる。

## 4. スピン流と準安定磁化状態 [6]

スピン流によって微小磁性体における磁化の準安定状態の保持時間を制御できることを実証した。マクロな磁化状態を動的に制御する手法の一つを提案したことに相当する。

## 参考文献

- [1] M. Ferrier, R. Delagrangé, J. Basset, H. Bouchiat, T. Arakawa, T. Hata, R. Fujiwara, Y. Teratani, R. Sakano, A. Oguri, K. Kobayashi, and R. Deblock, *Journal of Low Temperature Physics* (2019) (online published) [<https://doi.org/10.1007/s10909-019-02232-4>].
- [2] A. Lahiri, T. Hata, S. Smirnov, M. Ferrier, T. Arakawa, M. Niklas, M. Marganska, K. Kobayashi, and M. Grifoni, *Physical Review B* **101**, 041102(R) (2020) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.101.041102>].
- [3] D. Terasawa, S. Norimoto, T. Arakawa, M. Ferrier, A. Fukuda, K. Kobayashi and Y. Hirayama, *Physical Review B* **101**, 115401 (2020) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.101.115401>].
- [4] H. Taniguchi, M. Watanabe, M. Tokuda, S. Suzuki, E. Imada, T. Ibe, T. Arakawa, H. Yoshida, H. Ishizuka, K. Kobayashi, and Y. Niimi, *Scientific Reports* **10**, 2525 (2020) [<https://doi.org/10.1038/s41598-020-59578-z>].
- [5] T. Ohta, K. Sakai, H. Taniguchi, B. Driesen, Y. Okada, K. Kobayashi, and Y. Niimi, *Applied Physics Express* **13**, 043005/1-4 (2020) [<https://doi.org/10.35848/1882-0786/ab7f18>].
- [6] S. Iwakiri, S. Sugimoto, Y. Niimi, K. Kobayashi, Y. K. Takahashi and S. Kasai, *Applied Physics Letters* **115**, 092407 (2019) [<https://doi.org/10.1063/1.5098866>].

研究室 HP: 東京大学 <https://meso.phys.s.u-tokyo.ac.jp/>、大阪大学 <http://meso.phys.sci.osaka-u.ac.jp/>

層状 Gd 合金  $Gd_2PdSi_3$  における磁気スキルミオン三角格子相

D01 班 有馬孝尚

$MnSi$  において磁気スキルミオンの三角格子相が発見されて以来 10 年余りが経過した。基本的に強磁性的な相互作用を有するキラルな磁性体においては、キラリティに起因する一様な反対称性交換相互作用が存在し、隣り合うスピンの平行配置からずれようとする。その結果、長周期のらせん磁性が出現することが多い。このキラル磁性体に磁場を印加すると、一般には、らせんの変調ベクトルが磁場方向に平行となる円錐磁気構造が最も安定となる。しかし、磁気転移点直下の弱磁場領域においては、磁気スキルミオンと呼ばれる磁気構造体の三角格子が形成されることが理論的にも実験的にも明らかになっている。磁気スキルミオンとは、一様な強磁性状態の中の一部に、磁場と逆向きに磁化した一次元の芯が生じてその周りの磁化がらせん磁性と同様に緩やかにねじれることで周囲の強磁性状態と一体化するようなトポロジカルな欠陥のことである。磁気スキルミオン格子状態が形成されるための主要因は、強磁性的な交換相互作用に加えて、隣り合うスピンのねじれるような機構が存在することと、熱揺らぎであることが直観的に想像できる。

結晶がキラルな場合と同様に、結晶が極性を有する場合も、結晶に一様な反交換相互作用が働くために、磁気スキルミオンが存在しうる。実際に、この機構による磁気スキルミオン格子相も複数の系で見出されている。

隣り合ったスピンをねじれさせる機構は、反交換相互作用に限られない。例えば、幾何学的フラストレーションを有する磁性体ではしばしばらせん磁性が生じる。しかし、幾何学的フラストレーションは本来反強磁性的な交換相互作用が優勢の場合に出現しやすく、強磁性的な交換相互作用と共存させることは容易ではない[2]。別のタイプのらせん磁性は、ランタニドを含む遍歴磁性体で見られる。このような系での磁気スキルミオン格子相の出現は、まず理論的に予想された[3]。しかし、実際の f 電子系はしばしば強い磁気異方性を有し、これが磁気スキルミオンの出現の阻害要因となると懸念された。そこで、希土類としては、4f 軌道に電子が 7 つ入って軌道角運動量  $L$  が 0 となることが多い Gd が選択された。また、結晶構造としては、等軸結晶か一軸結晶が良いと考えられた。

このような検討の結果、我々は  $Gd_2PdSi_3$  という遍歴磁性体の研究を行った。 $Gd_2PdSi_3$  は Fig. 1 上図に示すように、二次元三角格子を形成する Gd と蜂の巣状につながった PdSi が交互に積層した結晶構造を有する。これまでに、低温において不整合な磁気構造が出現することと、メタ磁性転移を示すことが報告されていた[4]。そこで、我々は、単結晶を用いて各磁気相のふるまいを詳細に調べた[5]。Fig. 1 下図に、2K における磁化とホール抵抗率の磁場変化を示す。このように、磁気転移点以下でホール係数の磁場依存性が非単調に振る舞う。また、磁化にも弱い異常が観測されており、少なくとも 2 段のメタ磁性があることがわかる。このような磁化と輸送現象の測定結果から、磁場と温度の二次元平面での相図を作製した。

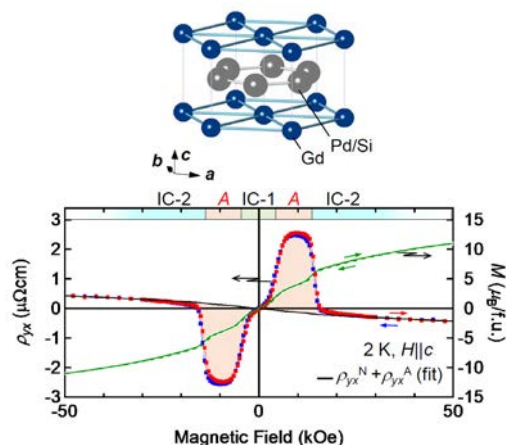


Figure 1: (上)  $Gd_2PdSi_3$  の結晶構造。(下) 2 K における  $Gd_2PdSi_3$  の磁化 (緑線) とホール抵抗率 (点)。磁場は、c 軸方向に印加した。Ref. [5]からの抜粋。

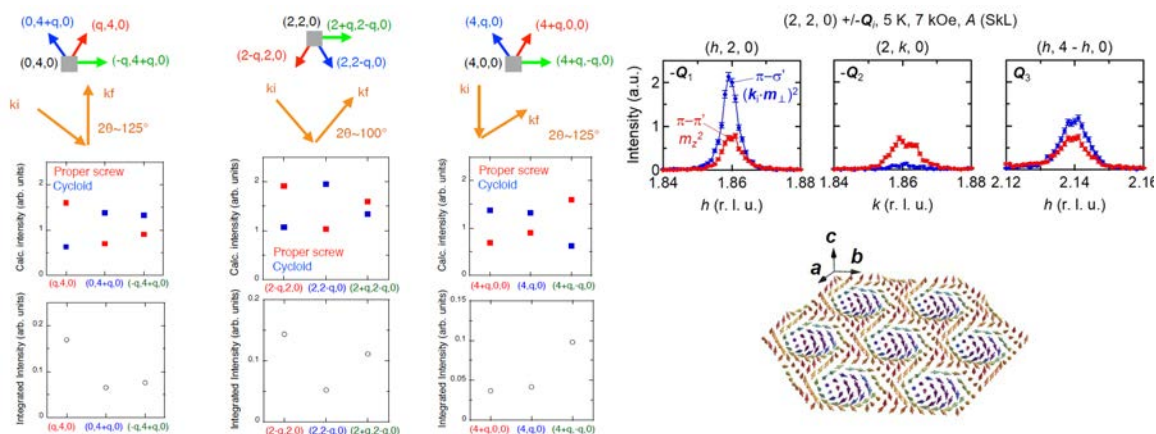


Figure 2: 中間磁場相の共鳴 X 線超格子反射。（左）反射強度の測定結果と 2 種類の磁気構造モデルとの比較。詳しくは本文を参照のこと。（右）偏光状態を解析した結果。Ref. [5]からの抜粋。

そのうえで、各相の磁気構造を実験的に決めることを目指した。磁気構造を決める方法としては中性子回折実験が最も一般的であるが、測定対象が Gd を含む場合は中性子の吸収強度が大きいため、中性子回折の優位点である定量的な回折強度データの取得がほぼ不可能となる。そこで、我々は中性子回折に加えて共鳴 X 線回折実験を行った。Gd の端の格子エネルギーを持つ X 線を用いることで、Gd の L2 吸収、すなわち、Gd2p1/2 状態の内殻準位から Gd5d 状態への電気双極子遷移を経て元に戻る過程を X 線の回折としてとらえることが可能となる。この電子と光子の相互作用項が Gd4f のスピン状態に依存するため、この共鳴弾性散乱の強度の移行運動量依存性と偏光状態依存性を測定することにより、磁気構造が精度よく推定できる。ただし、Gd5d 状態を介しての測定であることもあり、あくまで定性的な磁気構造評価手段であることは認識する必要がある。

0.7T の磁場を c 軸方向に印加した場合の磁気構造の解析過程を Fig. 2 に示す。この磁場は Fig. 1 で大きなホール磁気抵抗が見られている領域にあたる。(0,4,0), (2,2,0), (4,0,0) の各基本反射の周りの衛星反射の強度の測定結果をスクリュウ型、およびサイクロイド型のらせん磁気構造を仮定した場合と比較すると、Fig. 2 左に示すように、スクリュウ型のらせん磁気構造と対応することがわかる。また、磁場を掃引した場合の強度変化などから、この磁気相で見られる 3 つの磁気変調成分が、多磁区状態に起因するものではなく、3 つの磁気変調の重ね合わせで近似できるような磁気構造が出現したことによるものであることも結論できた。3 つの磁気変調と、磁化測定から存在が確認される一様な磁化成分を足し合わせることで、磁気スキルミオンの三角格子状態 (Fig. 2 右図) がほぼ再構成できる。

#### 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] T. Okubo, S. Chung and H. Kawamura, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 017206 (2012).
- [3] S. Hayami, R. Ozawa and Y. Motome, *Phys. Rev. B* **95**, 224424 (2017).
- [4] S. R. Saha, H. Sugawara, T. D. Matsuda, H. Sato, R. Mallik and E. V. Sampathkumaran, *Phys. Rev. B* **60**, 12162 (1999).
- [5] T. Kurumaji, T. Nakajima, M. Hirschberger, A. Kikkawa, Y. Yamasaki, H. Sagayama, H. Nakao, Y. Taguchi, T. Arima, Y. Tokura, *Science* **365**, 914 (2019). [<https://doi.org/10.1126/science.aau0968>].

研究室 HP: <http://symm.k.u-tokyo.ac.jp/>



## 電荷密度波物質における光音響フォノンイメージング

D01 班 石坂 香子

近年、物質やデバイス中で起こる多様な量子現象の実時間計測への要求が高まっている。特に、これまでのエレクトロニクスの主役であった電子だけではなく、物質中のスピン磁気モーメントや原子振動（フォノン）などの自由度が注目され、それぞれスピントロニクス、フォノンクスといった分野を基に相互に融合しつつ続々と新分野を形成している。私達は、物質中の様々な自由度が示す時空間構造を（ナノ～サブミリメートル）×（サブピコ～マイクロ秒）の広いスケールで実観測を行うことを目指し、超短パルスレーザーと電子顕微鏡を組み合わせた時間分解計測手法である「超高速時間分解透過型電子顕微鏡（Ultrafast Transmission Electron Microscope: UTEM）」（図1）の開発を進めている。

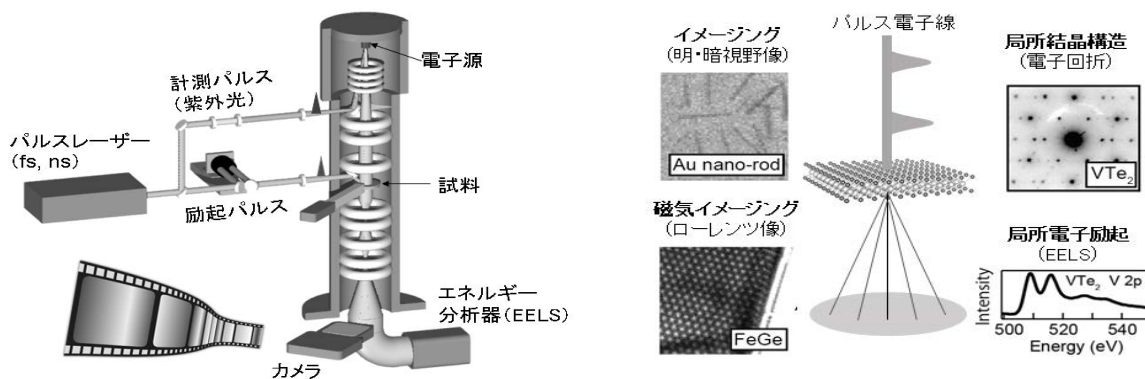


図1：（左）本研究で用いる超高速透過型電子顕微鏡（UTEM）。（右）透過型電子顕微鏡（TEM）の持つ主な計測機能。パルス電子線により超高速計測が可能となる。

物質の示す性質（物性）を制御するメカニズムを理解するうえで、状態の集団励起であるフォノン、スピン波、プラズモンなどの計測は極めて重要である。UTEMは、原理的にこれらの励起を同一環境にてナノスケールで検出することが可能な実験室手法である。ベースとなる透過型電子顕微鏡（TEM）は、通常の明暗視野イメージングに加え、ローレンツ法による磁気コントラスト像、制限視野電子回折による局所結晶構造、電子エネルギー損失分光（Electron Energy Loss Spectroscopy: EELS）による局所電子励起（プラズモン、バンド間遷移、内殻遷移）など、多様な情報を得ることのできる計測手法である（図1右）。通常TEMの実時間計測は検出器のフレームレートで律速されており、現状で得られる時間分解能はミリ秒程度である。これに対し本研究で用いるUTEMは、短パルス紫外光とフォトカソード電子源を組み合わせることにより得られる短パルス光電子線を用いるものであり、原理的にはフェムト秒オーダーの時空間分解能でTEM計測を行うことが可能である。

このようなUTEMを用いて、現在私達は物質の光照射によって生じるフォノン的な応答の実観測を進めている。図2に示すように、固体物質に光を照射すると、電子励起から電子格子相互作用による結晶へのエネルギー移動を経て、コヒーレントフォノン生成や熱・変形膨張、系によっては構造相転移や相変化など、様々な

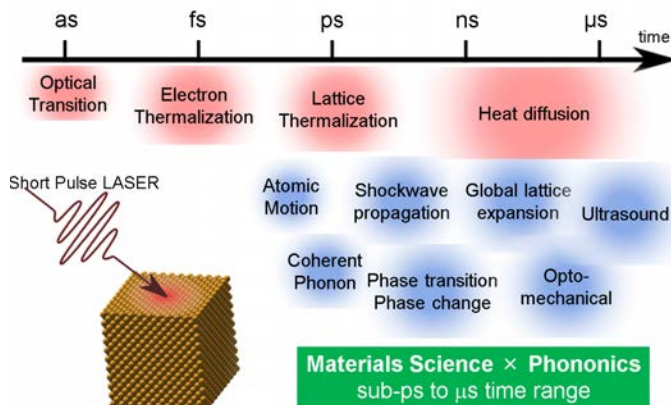


図2：光照射によりみられるフォノン的な現象



高速応答を引き起こす。また、それらは時間を経て、主に音響フォノンによる熱流や音、振動として系を伝播し広がっていく。これらはごく一般的な現象であるが、量子液晶などの複雑な階層構造が絡んだ系においては、固有の興味深い応答が見られる可能性がある。ここでは、最近取り組んできた電荷密度波物質  $\text{VTe}_2$  で見られる特徴的な音響フォノンについて紹介する[1,2]。

本研究で対象とした遷移金属ダイカルコゲナイド  $\text{VTe}_2$  は、ファンデルワールス積層による擬2次元的な層状構造を持つ物質である。高温相において三方晶の  $\text{CdI}_2$  型 (1T型と呼ばれる) 構造を持つが、480 K 近傍において電荷密度波 (CDW) による構造相転移を示す[3]。擬2次元 CDW 物質として古くからよく研究されてきた  $\text{TaS}_2$  や  $\text{NbSe}_2$  における等方的なパターンとは異なり、強いバナジウム間の結合によるジグザグ鎖状のパターンを伴った擬1次元的な構造を示す (図3右上)。

私達は、 $\text{VTe}_2$  の CDW 相 (室温) において、190 fs の近赤外パルス光を照射した際の光応答の計測を行った。まず、CDW 相固有の超格子反射の回折強度がただちに減少し、パルス光によって CDW が融解する様子を明らかにした。さらにその後、50 もしくは 100 ps 程度かけて様々な指数の回折強度が振動する様子を観測した (図3中列)。これらはそれぞれ音速との比較により、横波音響フォノンと縦波音響フォノンの伝播を介した薄片の膜厚方向の共振と解釈することができる (図3右列)。

通常の等方的な物質では、光による音響フォノン生成はほぼ熱膨張によるメカニズムに限定されており、横波音響フォノンはほとんど発生しないことが知られている。これを裏付けるように、今回観測された横波音響フォノンは CDW 融解と同じ閾値を示し、 $\text{VTe}_2$  の CDW 相に固有の現象であることを確認することができた。また、明視野イメージング計測により、薄片内を異方的な音速で伝播する音響フォノンの波状のパターンを観測した。これらの音速は薄片を伝わる板波の分散関係のシミュレーションによりよく再現され、CDW 融解で生じる変形を各方向に伝播させる shear horizontal 波と symmetric lamb 波で特徴づけられることを明らかにした。

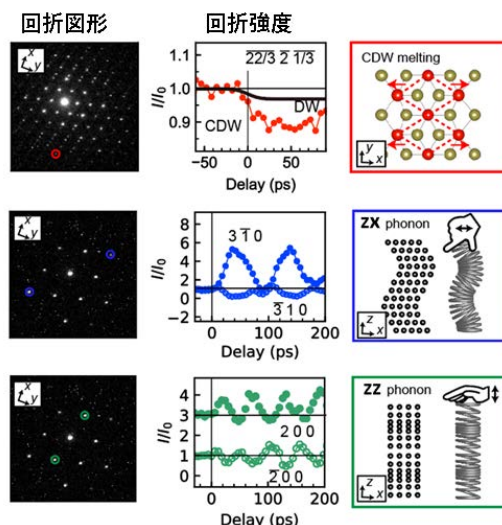


図 3: 時間分解電子回折により得られた  $\text{VTe}_2$  結晶の光応答。(左列) 回折図形, (中列) 回折強度, (右列) 各応答の模式図。

参考文献

[1] A. Nakamura, T. Shimojima, M. Matsuura, Y. Chiashi, M. Kamitani, H. Sakai, S. Ishiwata, H. Li, A. Oshiyama and K. Ishizaka, *Appl. Phys. Express* **11**, 092601 (2018) [https://doi.org/10.7567/APEX.11.092601].  
 [2] A. Nakamura, T. Shimojima, Y. Chiashi, M. Kamitani, H. Sakai, S. Ishiwata, H. Li, and K. Ishizaka, arXiv:2003.05596 [https://arxiv.org/abs/2003.05596].  
 [3] T. Ohtani *et al.*, *Solid State Commun.* **40**, 629–631 (1981).

研究室 HP: <http://ishizaka.t.u-tokyo.ac.jp/> (東大) <https://cems.riken.jp/jp/laboratory/esprt> (理研)

石坂香子 (東京大学・大学院工学系研究科・教授)

## 鉄系超伝導体 FeSe における時間分解 ARPES と光誘起超伝導

D01 班 岡崎浩三

物質に光を照射することで相転移が起きる光誘起相転移という現象がある。近年開発が進んでいるフェルト秒レーザーによる光照射によって光誘起相転移を起こす物質も存在し、我々も励起子絶縁体という特殊な絶縁体が光誘起によって半金属に相転移することを発見している[1]。このような現象は、将来的には低消費電力の超高速スイッチング素子などへの応用も期待される。鉄系超伝導体 FeSe は、低温で電荷液晶状態となることが知られているが、常圧下では超伝導転移温度( $T_c$ )が 10 K 程度であるのに対し、静水圧、インターカレーション、単層化など、様々な方法によって  $T_c$  が上昇する。光誘起によって常伝導から超伝導へ相転移する光誘起超伝導の可能性が銅酸化物などで議論されているが、我々は鉄系超伝導体においてもそのような可能性がないかを探るため、FeSe を対象としてフェムト秒レーザーを用いた時間・角度分解光電子分光(時間分解 ARPES)測定を行った[2]。

時間分解 ARPES はこれまで、非線形光学結晶による波長変換を用いた 6 eV 程度のプローブ光で行われることが多かった。しかし 6eV では、測定できるエネルギー・運動量の範囲が狭く、鉄系超伝導体に共通する特徴であるブリルアン・ゾーンの中心周りに存在するホールフェルミ面と、端に存在する電子フェルミ面のうち、電子面を測定することができない。我々は高次高調波発生という現象を利用して極紫外光を発生させ、27.8 eV の光をプローブ光として用いることで、ホール面、電子面両方での時間分解 ARPES 測定を行った。

まず FeSe において、ホール面、電子面の双方での光励起後の光電子強度分布の変化を観測すると、コヒーレントフォノン励起による特徴的な光電子強度の振動が観測された。以前測定した鉄系超伝導体の母物質である BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> でもコヒーレントフォノン励起が観測されたが、この物質では、興味深いことに電子面とホール面で振動の位相が反転していた[3]。一方、FeSe では BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> とは異なり同位相であることがわかった。

コヒーレントフォノン励起とは、光励起によって位相を揃えたフォノンが励起される現象であるが、その代表的なメカニズムとして、瞬間的誘導ラマン散乱(impulsive stimulated Raman scattering)と変位型励起(displacive excitation of coherent phonons, DECP)とがあることが知られている。DECP 機構によるコヒーレントフォノン励起は、全対称モードである A<sub>g</sub> もしくは A<sub>1g</sub> フォノンのみが励起されると考えられているが、BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> や FeSe におけるコヒーレントフォノン励起においてもその振動数から、A<sub>1g</sub> フォノンが励起され、これはニクトゲンやカルコゲンのブリージングモードであることがわかっていく。DECP 機構によるコヒーレントフォノン励起は、図 1 に示すように、まず電子励起によって占有される軌道が変わることで電荷分布が変化し、その電荷分布の変化に応じて原子位置に対するポテンシャルエネルギー面の最小位置が変わることで、その最小位置に向かってコヒーレントに格子振動が生じることによって考えられている。また、時間分解 ARPES によって観測されるコヒーレントフォノン励起

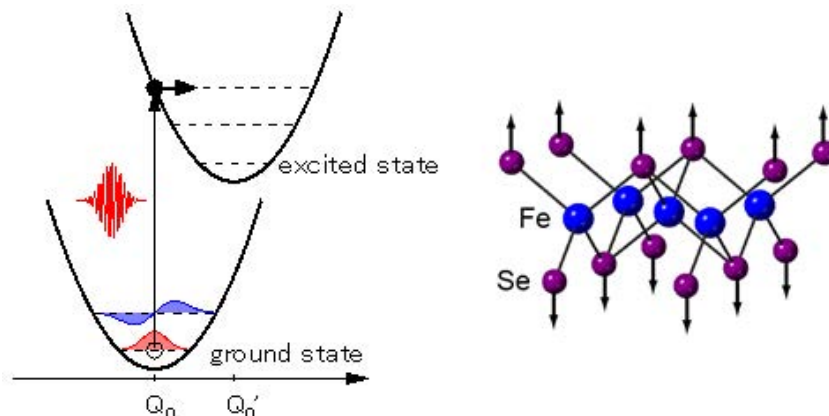


図 1 : 変位励起機構(DECP)によるコヒーレントフォノン励起のメカニズムと FeSe における DECP コヒーレントフォノン。FeSe では、光励起により Se の安定位置が Fe の層との距離が大きくなる位置になることで、Se の振動によるコヒーレントフォノンが励起される。

に伴う変化は、コヒーレントな格子振動が生じることで電子構造も変化することによると考えられ、鉄系超伝導体の  $A_{1g}$  フォノンでは、ニクトゲンもしくはカルコゲンの平衡位置における Fe の層との距離が長く、もしくは短くなることで、その距離の変化に応じて電子構造も変化し、フェルミ面の大きさも変わることで、光電子強度の変化として観測されると考えられる。実際、第一原理バンド計算によってニクトゲンもしくはカルコゲンの高さを変えてフェルミ面の変化を計算すると、 $BaFe_2As_2$  ではホール面と電子面とで大きさの変化が逆になるのに対して、 $FeSe$  では同じになることがわかり、時間分解 ARPES の結果と整合することがわかった。さらにこの  $BaFe_2As_2$  と  $FeSe$  との違いは、ARPES によって観測されるフェルミ面とその軌道成分の違いによることもわかった。

さらに、光励起によるバンドの変化を詳細に見ると、図 2 に示すように、ホールバンドにおけるスペクトルの立ち上がりが大きく低エネルギー側にシフトしているのに対し、電子バンドでは若干高エネルギー側にシフトし、さらにそのシフトがプローブ光のポンプ光に対する遅延時間の測定限界である 1 ns 程度継続することがわかった。これはホールバンドを占有していた電子が光励起によって電子バンドを占有するようになったと考えることで、部分的に理解できる。しかしながらその場合、それぞれのシフト量の比はそれぞれのフェルミ面の状態密度の逆比になるはずであるが、実際にはそうっていない。このことから、ホールバンド、電子バンドともにギャップが開いたと考えられる。 $FeSe$  においてコヒーレントフォノンを励起する格子変調は、高圧下において  $T_c$  が高くなる際の変化と同じであることから、光励起によって  $T_c$  が上昇することで、超伝導状態が実現されたと考えられる。

以上のように、我々は高次高調波を用いた時間分解 ARPES によって鉄系超伝導体  $FeSe$  の光励起後の非平衡電子状態の観測を行い、コヒーレントフォノン励起の観測とその機構解明、さらに光誘起超伝導による超伝導ギャップの観測に成功した。

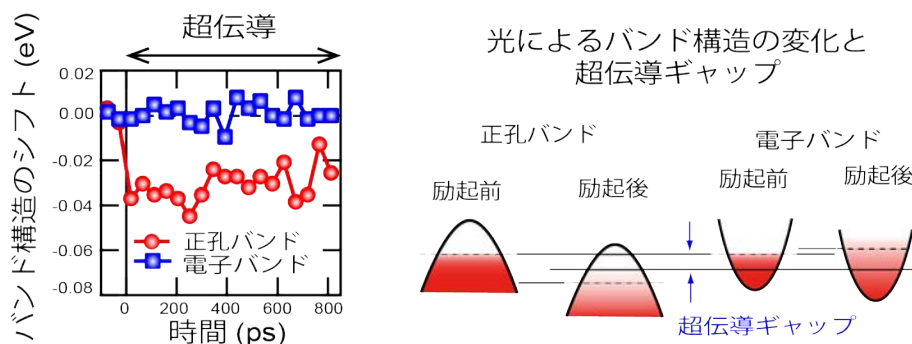


図 2 :  $FeSe$  における光励起後のホールバンド、電子バンドのスペクトルの立ち上がり位置の変化とバンド構造の変化の模式図。ホールバンドにおけるスペクトルの立ち上がりは  $0.04\text{ eV}$  ほど低エネルギー側にシフトしている一方で、電子バンドはわずかに高エネルギー側にシフトしている。このことから、超伝導ギャップが開いており、その状態が 800 ps 継続していることが分かる。

#### 参考文献

- [1] [K. Okazaki](#), Y. Ogawa, T. Suzuki, T. Yamamoto, T. Someya, S. Michimae, M. Watanabe, Y.-F Lu, M. Nohara, H. Takagi, N. Katayama, H. Sawa, M. Fujisawa, T. Kanai, N. Ishii, J. Itatani, T. Mizokawa, and S. Shin, *Nature Communications* **9**, 4322 (2018). [<https://doi.org/10.1038/s41467-018-06801-1>].
- [2] T. Suzuki, T. Someya, T. Hashimoto, S. Michimae, M. Watanabe, M. Fujisawa, T. Kanai, N. Ishii, J. Itatani, S. Kasahara, Y. Matsuda, T. Shibauchi, [K. Okazaki](#), and S. Shin, *Communications Physics* **2**, 115 (2019) [<https://doi.org/10.1038/s42005-019-0219-4>].
- [3] [K. Okazaki](#), H. Suzuki, T. Suzuki, T. Yamamoto, T. Someya, Y. Ogawa, M. Okada, M. Fujisawa, T. Kanai, N. Ishi, J. Itatani, M. Nakajima, H. Eisaki, A. Fujimori, and S. Shin, *Physical Review B* **97**, 121107(R) (2018) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.121107>].

研究室 HP: <https://okazaki.issp.u-tokyo.ac.jp/>



キラルスピ物質  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  における磁気共鳴スイッチング

D01 班 戸川 欣彦

本研究では、量子液晶物質から成るナノデバイスにおいて、相制御の高度化を図り、マイクロ波領域までの電磁計測により得られる知見をもとに、量子液晶物質が固有に発現すると期待される物質機能を開拓することを目指している。その手始めとして、キラルスピ物質に注目し、スピ液晶秩序に発現する非自明な電磁応答を明らかにすることを目的に研究を進めた。

研究対象とするキラルスピ物質はキラルな結晶構造を有している。キラル磁性体とも呼ばれ、Heisenberg 交換相互作用と反対称交換 (Dzyaloshinskii-Moriya) 相互作用が競合するため、キラルならせん磁気秩序を発現する。磁場中ではキラルスピソリトン格子や磁気スキルミオンと呼ばれる非自明なキラル磁気秩序を示す。特に、キラルスピソリトン格子は周期可変であり、その形成過程は古典的なキラルネマティック液晶 (コレスレリック液晶) に知られるフレデリクス転移と同様にモデル化されることから、スピ系の液晶状態と見なすことができる。キラル磁気秩序と電荷液晶、電子対液晶、密度波などに見出されうる普遍性は学術的かつ応用的に大変興味深い。

また、キラル磁気秩序の空間スケールは数 nm から数百 nm 程度であり、生来のメソスコピック系である。加えて、試料サイズをマイクロメートル程度に微細化すると、キラル磁気秩序に対する表面バリア効果が顕著に効く。表面バリアはキラル磁性ナノデバイスにおいて相制御を行うために重要な役割を果たすと考えられる。そこで、集束イオンビーム加工や電子線リソグラフィーなどを用いたナノ加工技術により微細加工デバイスを作製し、キラルスピソリトン格子の集団励起の特性を明らかにすべく、マイクロ波分光により広帯域での電磁応答を精査した。

キラル磁性体として、キラルソリトン格子を発現する遷移金属ダイカルコゲナイド  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  に着目した。単軸性結晶  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  の空間群は  $P6_322$  であり、キラルな結晶構造を示す。らせん磁気転移温度は 130 K であり、ゼロ磁場でのキラルらせん磁気秩序の周期は 48 nm である。らせん軸に対応する  $c$  軸に垂直に磁場を印加すると、図 1(a) に示すように、らせん構造のねじれ部位が等間隔に保たれたまま、ねじれが一つずつほぐれていく。この超格子構造は臨界磁場  $H_c$  以上で強制強磁性状態となる。

図 1 (b, c) に  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  を用いて作製した高周波測定用デバイスを示す。より詳細には、電子線リソグラフィー法を用いて、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  基板上に GHz 帯域用のコプラナーウェーブガイドを作製する。続いて、集束イオンビーム加工装置を用いて  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  バルク結晶から 10  $\mu\text{m}$  角程度の微細薄膜結晶試料を切り出し、信号線上に設置する。ベクトルネットワークアナライザから交流電流を入力し、信号線上に交流励起磁場を発生させる。主に面内励起磁場成分 ( $h_{ip}$ ) により試料をマイクロ波励起し、透過する信号を検出する。低温・磁場下でのスペクトル解析からキラルスピソリトン格子のマイクロ波透過特性を得る。

図 1 に示す試料は  $c$  軸を面直方向に配置しており、面内磁場を印加することでキラルソリトン格子が面直方向に発現する。用いた実験装置では外部磁場 ( $H$ ) の印加方向を面内に回転することができる。

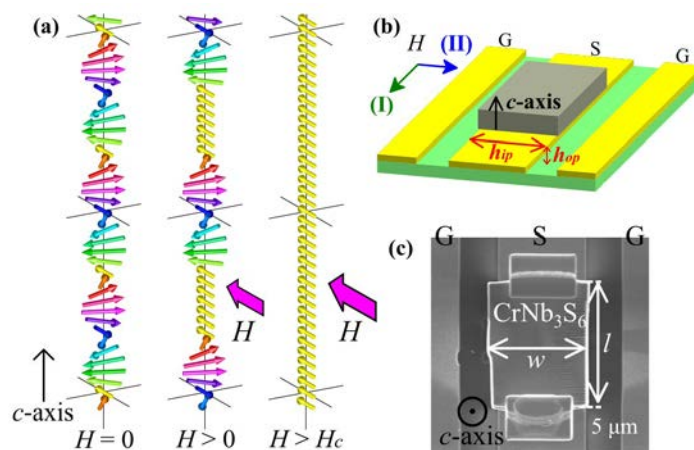


図 1:キラルスピソリトン格子の磁場応答の模式図(a)。コプラナーウェーブガイドを用いた磁気共鳴実験配置(b)と信号線上に配置した微細加工  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  試料(c)。グランド線 G に囲まれた信号線 S 上にはマイクロ波領域の面内励起磁場( $h_{ip}$ )と面直励起磁場( $h_{op}$ )が生じる。



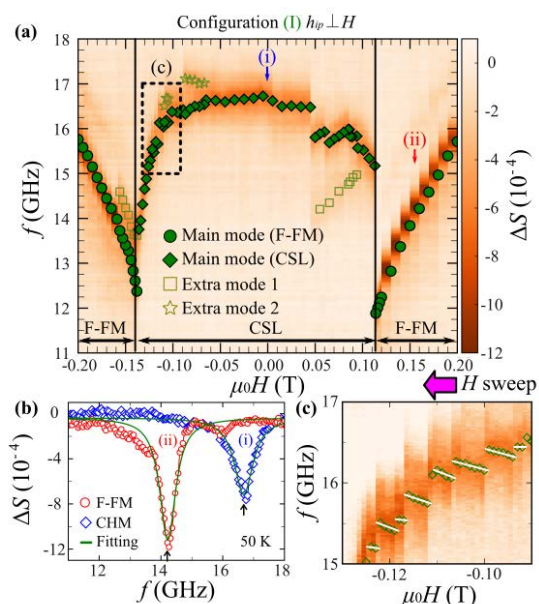


図 2: 垂直励起配置 ( $h_{ip} \perp H$ ) での磁気共鳴周波数の磁場依存性(a)と強制強磁性相とキラルスピソリトン格子での共鳴スペクトル(b)。離散応答領域の拡大図(c)。

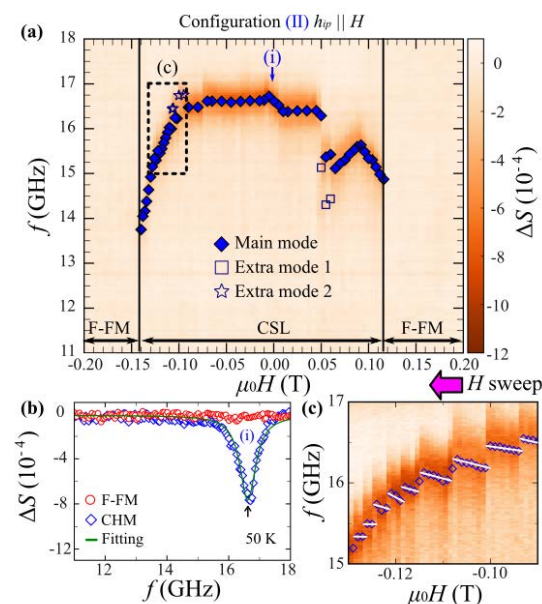


図 3: 平行励起配置 ( $h_{ip} // H$ ) での磁気共鳴周波数の磁場依存性(a)と強制強磁性相とキラルスピソリトン格子での共鳴スペクトル(b)。離散応答領域の拡大図(c)。

そのため、面内磁場方向に対してキラルスピソリトン格子が発現する様子は変わらない。そこで、 $h_{ip} \perp H$  と  $h_{ip} // H$  の二通りの配置にて実験を行い、磁気共鳴の異方的応答を調べた[1]。

図 2 に磁気共鳴周波数の磁場依存性を示す。キラルスピソリトン格子における磁気共鳴特性は励起配置に対してほとんど変化しない。しかしながら、強制強磁性相では  $h_{ip} // H$  の配置において磁気共鳴が完全に抑制されていることがわかる。この抑制は線形領域での平行励起 (parallel pumping) において知られる現象であるが、通常は面直励起磁場成分の寄与が無視することができないため観察するのは困難である。実際、 $c$  軸が面内方向に向いた試料では、強制強磁性相は平行励起においても磁気共鳴を示すことが見出されている[2]。共鳴特性の抑制は 2 桁近くに及んでおり、単軸性キラル磁性結晶  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  の強い異方性を反映するものと考えられる。一方で、表面バリアに起因するキラルスピソリトン格子における離散的応答は励起配置に変わらずに観察されている。

また、表面バリアを利用したキラルスピソリトン格子における磁気共鳴特性の制御[3]にも成功している。これらの実験結果はキラルスピソリトン物質におけるキラル磁気秩序の高い制御性を反映するものであり、物質機能発現の顕れといえる。更なる機能探索のため、より系統的な実験が望まれる。

#### 参考文献

- [1] Y. Shimamoto, F. J. T. Goncalves, T. Sogo, Y. Kousaka, and Y. Togawa, *Applied Physics Letters* **115**, 242401/1-4 (2019) [<https://doi.org/10.1063/1.5129556>], selected as a Featured Article.
- [2] F. J. T. Goncalves, T. Sogo, Y. Shimamoto, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, D. Yoshizawa, M. Hagiwara, M. Mito, R. L. Stamps, I. G. Bostrem, V. E. Sinitsyn, A. S. Ovchinnikov, J. Kishine, and Y. Togawa, *Physical Review B* **95**, 104415 (2017) [<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.104415>].
- [3] F. J. T. Goncalves, Y. Shimamoto, T. Sogo, G. W. Paterson, Y. Kousaka, and Y. Togawa, *Applied Physics Letters* **116**, 012403/1-5 (2020) [<https://doi.org/10.1063/1.5131067>], selected as an Editor's Pick.

研究室 HP: <http://www2.pe.osakafu-u.ac.jp/pe8/>

## 非対称微小共振器における光渦制御

D01 班 戸田 泰則

光波断面に位相や偏光の特異点を有するトポロジカル光波は、特異点周りの位相勾配（光の軌道角運動量：OAM）や偏光分布、急峻な強度勾配を電子励起や応答検出に反映できる。D班の課題である量子液晶の制御と機能を開拓するため、本研究ではトポロジカル光波励起を用いて量子液晶を特徴づける対称性変化を見出し、新たな光誘起相制御へと展開することを目的として研究を進めている。本稿では今年度の主要成果である半導体微小共振器における光渦制御についてまとめる[1]。

大口径半導体微小共振器では、レーザーの横モードとして、特異点で形成される渦格子生成が一種の相転移として観測されることが知られている。また近年、センシングや光通信の分野におけるトポロジカル光波応用の進展に伴い、その実用性から面発光レーザー（VCSEL）を用いた光源開発が盛んである。この場合はカイラルな対称性破れを伴う横モード制御が重要となるが、共振器に対してスパイラル構造やメタ構造、フォトニック結晶構造などを導入することにより光渦発振が実現されている。ただし高い純度を持つ光渦発振を実現するためには高精度な共振器設計と製造プロセスが要求される。本研究では、伝播方向に対して垂直な面内に異方性を持つ非対称共振器で発現する幾何学的位相（グイ位相）に着目することにより、自発的な光渦発振が実現されることを示す。高精度な共振器構造を必要とする従来方式に比べ、本提案では共振器の構造や対称性に拘ることなく光渦発振が可能となるため、大幅な設計の自由度向上と作製プロセスの簡略化が期待できる。

非対称共振器における光渦発振の原理を明らかにするため、光渦の伝播モードについてまとめる。光渦の代表例として知られるラゲールガウス（LG）モードは、近軸波動方程式の円筒座標系における固有伝播解であり、方位指数  $l$  は位相特異点周りの螺旋状波面の巻き数（トポロジカルチャージ）に対応する。ここで螺旋の向きは光渦のカイラリティを反映し、方位指数の符号で定義される。座標系からも明らかな通り、単一 LG モードの直接発振を実現するためには円筒対称な共振器を構築した上でカイラリティを選択しなければならない。高精度な共振器設計と製造プロセスが要求される理由はここにある。他方、一般的な共振器、特に微小共振器では構造や結晶の異方性が存在し、直角座標系の固有伝播解であるエルミートガウス（HG）モードが観測される。HG モードは特異点を持たないが、LG モードと HG モードは共に完全直交基底なので、互いに可換である。例えば 1 次の直交する HG モードを位相差  $\pi/2$  で足し合わせると、特異点を持つ 1 次の LG モードが生成できる。実際、この関係性にもとづいた円筒レンズ対による光渦生成は広く知られる手法である。このとき位相差  $\pi/2$  は、円筒レンズの主軸とそれに直交する方向の幾何学的位相（集光により生じる波数ベクトルの広がりをもたらす位相）の違いによって生じる。また主軸方向を 90 度回転させると位相差の向きが逆転し、LG モードのカイラリティを選択できる。このような異方性を反映した幾何学的位相制御は非対称共振器でも成立するはずである。したがって LG モードが発振利得を持つ条件下で共振器内に生じる異方的な幾何学的位相を上手に利用できれば、同様の原理にもとづいた光渦の直接発振を期待できる。

測定対象として AlGaAs/GaAs 量子井戸を活性層に持つブロードエリア型 VCSEL（開口径：10 $\mu$ m、発振波長：約 780nm）を用いた。電流値に応じて 0 次ガウスモードから 1 次の HG、偏光特異点を有するベクトルビームへと共振器の対称性や利得飽和を反映した特徴的な横モード変化が現れる[2]。図 1(a)は共鳴スペクトルおよび代表的な横モード強度分布であり、1 次の共鳴は直交する非縮退 HG モードとして分裂が観測される。すなわち共振器の

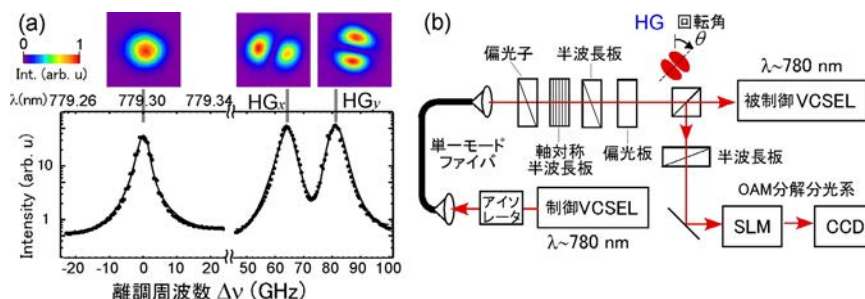


図 1:(a)VCSEL の共鳴スペクトルおよび強度分布。離調周波数は最低次ガウスモードの発振波長を基準とした。(b)外部光注入を用いた実験系の概要。1 次の HG モードに対して回転角を変化させて OAM 分解分光測定を行った。

異方性を確認できる。共振器構造そのものは変更できないため、外部光注入による利得変化を通して発振モードを調査した（図 1(b)参照）。測定を容易にするため、同一仕様の VCSEL からの出力をモードクリーニングした後、特定の高次横モードへと変換して注入光として用いた。また LG モード発振を定量的に評価するため、空間位相変調器 (SLM) を利用した OAM 分解分光を用いて方位指数  $l$  に対するスペクトル観測を実施した。

図 2(a)-(d)に示すのは 1 次の HG モードを注入光として用いた場合に得られる共鳴スペクトルである。1 次の HG モードは位相変化方向の自由度を持つので、これを回転角と定義し、代表的な 4 つの異なる回転角を持つ HG モード励起の結果をまとめた。また光渦発振を確認するため、スペクトルは OAM 分解された 3 つの主要モード ( $l=-1,0,+1$ ) の対数強度で表した。共鳴ピークの強度分布に見られる特異点から明らかなように、注入する HG 光の回転角に直交する方向の非縮退 HG 共鳴で光渦 (LG モード) 発振が実現される。また共鳴を形成する OAM 分解スペクトルに着目すると、回転角に応じてカイラリティが選択されることを確認できる。例えば  $HG_x$  共鳴では  $y$  軸方向の回転角を持つ HG 光で光渦発振が実現され、その方向に応じて共鳴ピークとなる  $l$  の符号が逆転する（図 2(a)と(b)を参照）。以上の結果を踏まえ、まず共鳴と注入光の直交性について考える。LG モードと HG モードの関係性を思い出すと、HG モードを異なるカイラ

リティを持つ LG モードの足し合わせとして表せることが分かる。したがって共鳴と直交する HG モードで光注入を行うと、本来の HG モードの代わりに LG モードが利得を得る条件が整う。このとき LG モードのカイラリティが非対称共振器の持つ幾何学的位相差にもとづいて選択されれば、単一 LG モードに利得が集中し、光渦発振が実現する。実際に LG モード強度を回転角に対して極座標表示すると、共振器の異方性を反映する主軸に対して対称な回転角でカイラリティが逆転すること、および各主軸は共鳴軸に直交することを確認できる（図 2(e),(f)）。

以上のように非対称共振器内に生じる異方的な幾何学的位相を利用した光渦発振を実現した。本成果にもとづけば、光渦レーザー実現に従来求められてきた共振器構造や対称性に対する厳密な要求が大幅に緩和される。また今後の展望として、本研究で進める量子液晶の相制御への応用を見据え、微小共振器における渦形成ダイナミクス観測や高密度励起で誘起される特徴的な渦格子を対象にした相制御の可能性を探索したい。

#### 参考文献

- [1] K. Nakagawa, K. Yamane, R. Morita and Y. Toda, *Appl. Phys. Express* **13**, 042001 (2020) [<https://doi.org/10.35848/1882-0786/ab7bf7>].
- [2] Y. Toda, A. Moriya, K. Yamane, R. Morita, K. Shigematsu, and Y. Awaji, *Appl. Phys. Lett.* **111**, 101102 (2017) [<https://doi.org/10.1063/1.4989479>].

研究室 HP:<https://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/optphys/exp/>

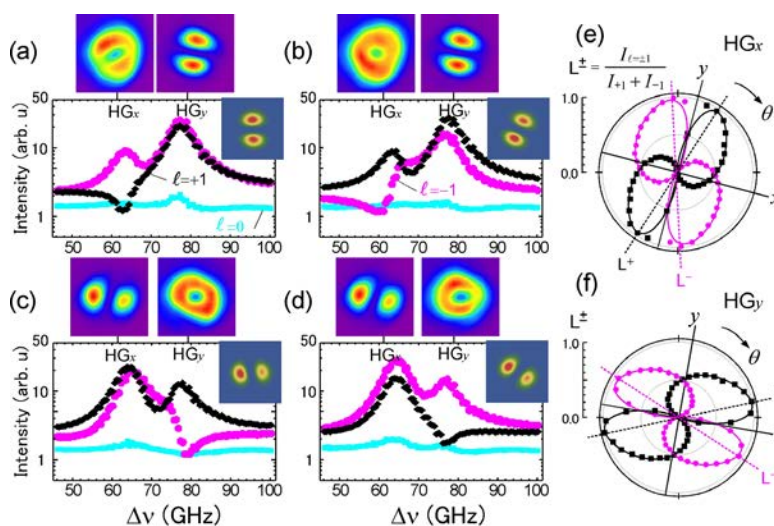


図 2: (a)-(d) 内挿図に示す HG モードを注入光とした場合の OMA 分解共鳴スペクトルおよび共鳴で観測された強度分布. (e)  $HG_x$  および (f)  $HG_y$  共鳴で観測される LG モード強度の偏光角依存性.

## **量子液晶の物性科学**

文部科学省科学研究費補助金「新学術領域研究」（令和元年度～5年度）

新学術領域研究

「量子液晶の物性科学」ニュースレター 第2号

初年度（2019年度）成果報告集（アクティビティレポート）

2020年4月 発行

領域事務局：[office@qlc.jp](mailto:office@qlc.jp)

領域ホームページ：<http://qlc.jp/>