

令和 2 年 5 月 27 日

海外特別研究員最終報告書

独立行政法人日本学術振興会 理事長 殿

採用年度 2018 年度

受付番号 201860422

氏 名

車地崇

(氏名は必ず自署すること)

海外特別研究員としての派遣期間を終了しましたので、下記のとおり報告いたします。

なお、下記及び別紙記載の内容については相違ありません。

記

1. 用務地（派遣先国名）用務地： マサチューセッツ工科大学（国名： 米国 ）

2. 研究課題名（和文）※研究課題名は申請時のものと変わらないように記載すること。

対称性の破れに誘起されたトポロジカル磁性半金属の開発

3. 派遣期間：平成 30 年 5 月 1 日 ～ 令和 2 年 4 月 30 日

4. 受入機関名及び部局名

マサチューセッツ工科大学 物理学部

5. 所期の目的の遂行状況及び成果…書式任意 **書式任意（A4 判相当 3 ページ以上、英語で記入也可）**

（研究・調査実施状況及びその成果の発表・関係学会への参加状況等）

（注）「6. 研究発表」以降については様式 10－別紙 1～4 に記入の上、併せて提出すること。

対称性の破れに誘起されたトポロジカル磁性半金属の開発 Material development of novel topological magnetic semimetal with symmetry-breaking

マサチューセッツ工科大学	車地 崇
派遣期間	2018 年 5 月 1 日～2020 年 4 月 30 日
研究機関	Department of Physics, Massachusetts Institute of Technology Cambridge, MA 02139, United States
研究指導者	Prof. Joseph G. Checkelsky

研究目的

物質を電気の流れやすさに応じて金属・絶縁体などに分類する見方はバンド理論の発達によって量子力学的に解明され、電子の流れを精密に制御することを可能にし、今日の半導体におけるエレクトロニクスを基礎づけている。将来のさらに高度情報化した社会を支えるための現代物性物理学の課題は、より高効率・省消費電力で電子を操作する新たな技術の基礎原理を構築することである。本派遣者はトポロジーという物性物理における新しい概念に注目している。これは超伝導や量子ホール効果など物質中で発現する劇的な現象を理解するために有用であることが確立され、2016 年のノーベル物理学賞の対象にもなった。本派遣者のこれまでの磁性材料開発の経験を活かし、新規な磁性体・電子材料の合成および強磁場下実験・中性子回折実験による磁気構造の解明を通しての物性解明を行う。

研究経過

本派遣期間中にトポロジカル磁性体候補物質である、下記の 3 種類の物質を対象に研究を行い、結晶育成、磁気特性、電気・熱伝導特性の測定を行った。強磁場実験施設 National High Magnetic Field Laboratory (NHMFL, Tallahassee)および Los Alamos National Laboratory (LANL, Los Alamos)において高磁場下量子振動測定を行い、NIST Center for Neutron Research (Gaithersburg)において単結晶中性子回折実験を行うなどアメリカ国内の出張実験の機会を積極的に活用した。また MIT の他グループ(Comin group, Gedik group)だけでなく、Fang group (Rutgers Univ.), Dean group (Columbia Univ.), Hsieh group (Caltech)などともサンプル提供などを通して共同研究を行い研究のネットワークを広げることができた。以下に研究した物質において得られた結果を記す。

①カゴメスピントクスチャーを実現するフラストレート磁性体 ErGa_2 の電気伝導特性

ErGa_2 は Er の三角格子が Ga のハニカム格子と交互に積層した結晶構造をとり、三角格子面内の Er 磁気モーメント間の相互作用の幾何学的フラストレーションと強いイジング的異方性の競合により多彩なメタ磁性転移を示す物質である [1]。特に反強磁性基底状態(図 1 (c))と磁場誘起強磁性状態(図 1 (a))との間に現れる中間状態は図 1 (b)に描かれるように上向き磁気モーメントがカゴメ格子を形成していることが知られている [1]。このような磁気状態が発現したとき、伝導電子とスピンの強い Hund 結合を起源としてフェルミ面が再構成されディラック電子分散が生じることが理論的に提唱されている [2]。本研究では ErGa_2 のメタ磁性転移に伴う電子バンドのトポロジーの変化を電気伝導測定を通して検出することを試みた。

鉛を使ったフラックス単結晶育成法 [3]を改良することにより 1 ミリメートルを超える良質な単結晶を育成することに成功した(図 1 (d))。磁化測定によって磁化の急激な変化を検出することにより相境界を同定し、図 1 (e)に磁気相図を得ることができた。AFM と kagome 相および kagome および Fi-FM 相の相境界がこれまで報告されていた単一のラインではなくさらに 2 つに分かれることを発見した。それぞれの相ではより複雑な磁気構造が発現している可能性があり、中性子散乱実験などによって今後解明が期待される。

最低温における代表的な磁化、電気伝導特性をまとめたものが図 1 (f)である。メタ磁性転移に伴い白いハイライトの領域で電気伝導度(σ_{xx})はピークを示しており、ドメインウォールが電気伝導を抑制している様子が見て取れる [4]。一方ホール伝導度は磁気転移に伴い磁場に対し非線形に変化している。特に kagome 相においては AFM 相、Fi-FM 相と比べ正の符号に大きく変化している。kagome スピン構造の発達に伴う電子状態の変化との相関が強く示唆される。今後、走査型電子顕微鏡や角度分解光電子分光法などで電子状態を検出するなどの方法で、この非自明はホール伝導度の起源を解明していくことが期待される。

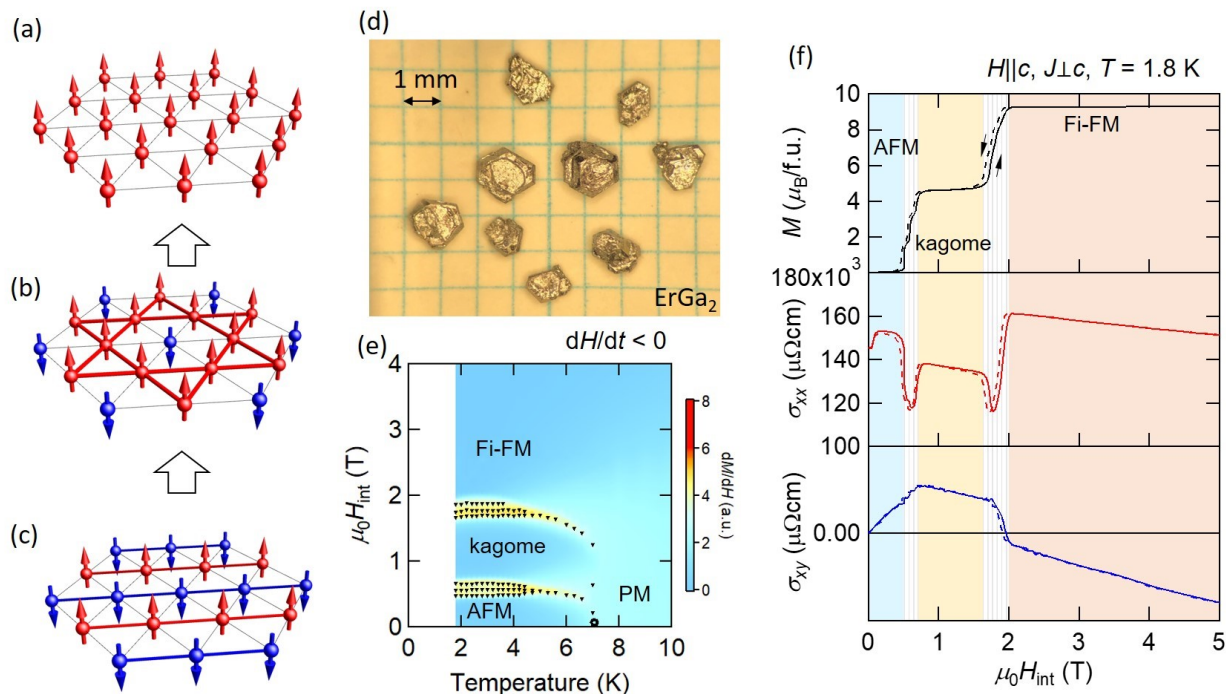


図 1|(a)-(c) ErGa₂ の c 軸磁場下における Er 層の磁気構造の変化。(a) 磁場誘起強磁性状態 (Fi-FM)、(b) kagome スピン状態、(c) 反強磁性基底状態 (AFM)。(d) フラックス法により合成した ErGa₂ の単結晶。(e) 磁化の磁場微分 (dM/dH) により同定した $H||c$ における磁気相図。(f) 温度 1.8 K、 $H||c$ における磁化(M)、電気伝導度(σ_{xx})、ホール伝導度(σ_{xy})の磁場依存性。

②フラストレート磁性体における熱伝導測定と実験系の開発

絶縁体中の熱伝導のホール効果(熱ホール効果)は系のトポロジカルな性質を明らかにする手法として注目されている[5]。これは試料の両端に温度差をつけたときに温度差を解消しようとして流れる熱流が温度差に対して垂直方向に曲がる現象である。金属中の電子が印加電圧と垂直方向に曲がる現象はホール効果として古くから知られており、印加磁場と電荷の結合(ローレンツ力)や磁性体中の磁気モーメントとの結合がその起源であることが分かっている。一方で絶縁体中の熱流は電荷をもたないため、通常ホール効果のような現象は起きない。しかし近年、特殊な結晶格子を有する強磁性体や絶対零度でもスピン構造が生じないスピン液体の候補物質などで熱ホール効果が起きることが確認され、その起源の解明や巨大化などが模索されている。

低温高磁場における熱伝導特性を精密に測定するための実験系の立ち上げを行った。図 2(a)は実験セットアップの概念図。図 2(b)は実際に実験で使ったサンプルに温度測定用の抵抗温度計および熱流印加用の抵抗チップを接続した写真である。単結晶サンプルはサファイヤ基盤を介して銅板と接触しており、これを熱浴としている。温度計はサンプルの各点に熱伝導度の良い銀線・銀ペーストで接着されており温度平衡条件が良く実現するようにしてある。また抵抗チップや温度計を周囲からよく熱絶縁するために、熱伝導度の悪いポリマー線系の上にそれらを固定している。

³He を使用したクライオスタットで熱伝導度(κ)の温度依存性を $T = 0.3$ K まで測定したデータを二つ示す。図 2(c)は銅イオンがゆがんだ kagome 格子を組むように配列した低次元磁性体 Cu₃O₂Bi(SeO₃)₂Cl の熱伝導度の温度依存性である。この物質は磁気転移点 $T = 26$ K を示し、磁場下でのメタ磁性転移や電気磁気結合など興味深い特性が報告されている [6]。 $T = 8$ K において κ はフォノン由来のピークを示し、それ

以下の温度では単調に減少している。特に最低温付近は温度の 2.47 乗の曲線によく説明される。これはフォノン由来の T^3 にスケールする振る舞いよりやや遅く変化していることを示しており、フォノンのサンプル表面における散乱の効果が見えていると考えている。

図 2(d)はスピネル型の結晶構造をとる MnSc_2S_4 の熱伝導度の温度依存性である。転移点($T_N = 2.3 \text{ K}$) [7]において κ には著しい変化は見られず、また 3 T の磁場を印加しても違いがみられない。このことから Mn のスピン秩序は熱伝導に寄与していないことが結論付けられる。このような現象は MnF_2 や RbMnF_3 などでもみられており [8]、Mn スピンと格子との間の相互作用が弱く、熱緩和の速度が遅いためであると考えられる [9]。

現在までのところテスト測定をした 2 つのサンプルで磁気励起由来の熱伝導特性は観測できていないが、フォノン由来の熱伝導のふるまいは十分明瞭に見えていることから、実験セットアップとしては申し分ないことが確認できたと考えている。今後はこの実験系を活用し、別の候補物質を精力的に探索することで熱ホール効果測定に挑戦する予定。測定データをもう一度詳しく見てみると、図 2(d)に示すように κ/T は T^2 に関して線形に変化しているが、絶対零度に外挿すると余剰な成分が存在していることが分かる。デバイ温度(153 K)からフォノンの平均自由工程を算出すると約 100 マイクロメートル程度と見積もれ、フォノンのバリスティックな伝導領域においてサンプル表面でフォノンが鏡面散乱されていることにより、平均自由工程が通常の過程よりも伸びていることが示唆される[10]。このような知見を今後蓄積していくことで、サンプル表面の研磨状態・欠陥の影響から生じるアーティファクトの可能性を慎重に検討し、除外しながら新規物性探索を進めていく。

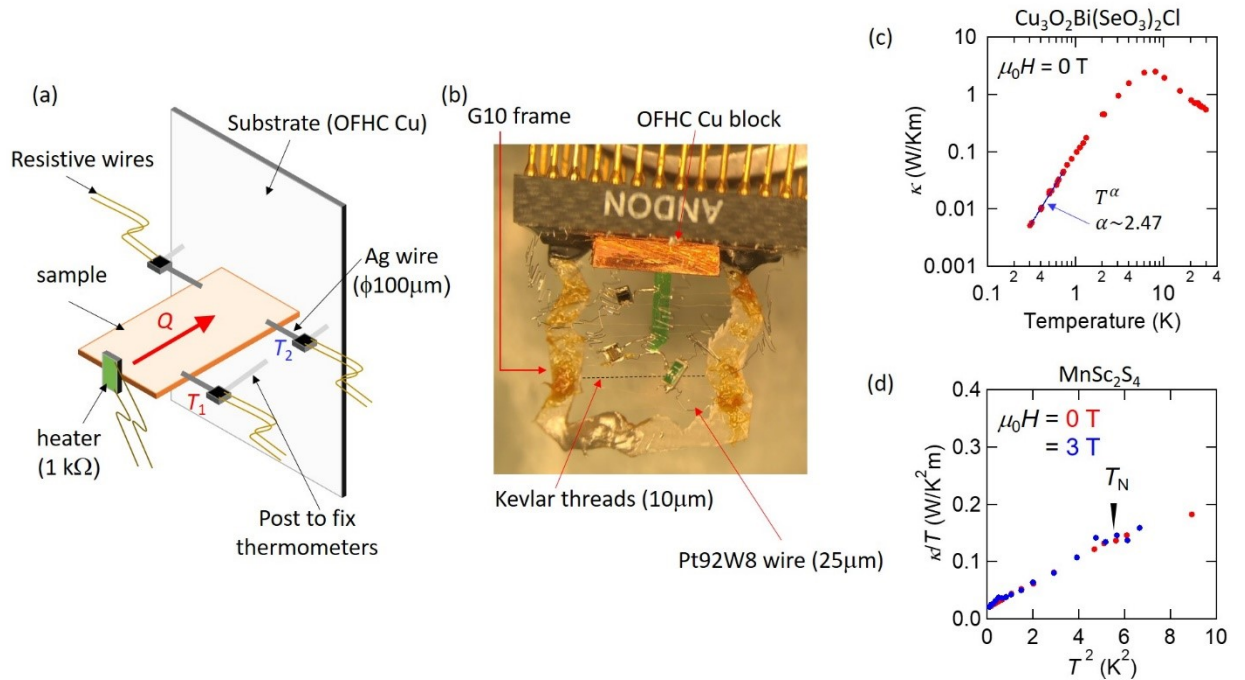


図 2|(a) 熱伝導測定のセットアップの概念図。(b) セットアップの実際の写真。緑色の透明の板が測定した単結晶サンプル。(c) $\text{Cu}_3\text{O}_2\text{Bi}(\text{SeO}_3)_2\text{Cl}$ の熱伝導の温度依存性。(d) MnSc_2S_4 の $H \parallel [111]$ における熱伝導度の温度の二乗(T^2)依存性。測定温度 T で規格化している。

参考文献

- [1] M. Doukoure, and D. Gignoux, J. Magn. Mater. **30**, 111 (1982).
- [2] Y. Akagi, and Y. Motome, Phys. Rev. B **91**, 155132 (2015).
- [3] R. D. dos Reis *et al.*, J. All. Com. **582**, 461 (2014).
- [4] N. V. Baranov *et al.*, J. Alloys Compounds. **200**, 43 (1993).
- [5] Y. Kasahara *et al.*, Nature **559**, 227 (2018).
- [6] H. C. Wu *et al.*, Phys. Rev. B **95**, 125121 (2017).
- [7] V. Fritsch *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 116401 (2004).

- [8] J. Gustafson, and C. T. Walker, Phys. Rev. B **8**, 3309 (1973).
- [9] D. J. Sanders, and D. Walton, Phys. Rev. B **15**, 1489 (1977).
- [10] W. S. Hurst *et al.*, Phys. Rev. **186**, 801 (1969).