

令和 3 年 4 月 22 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2020

課題番号：19K21841

研究課題名(和文)熱検出型サイクロトロン共鳴による量子化された金属電子状態の研究

研究課題名(英文)Study of electronic states in metals by thermally detected cyclotron resonances

研究代表者

徳永 将史 (Tokunaga, Masashi)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：50300885

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：高移動度の金属で量子振動とサイクロトロン共鳴をともに測定できれば、電子相関の効果の評価することができる。しかしそのような金属では光が透過しないため、サイクロトロン共鳴の実験は不可能であった。この点を解決するため、磁気共鳴現象を試料温度の変化として検出する熱検出型サイクロトロン共鳴の装置開発を行った。

量子カスケードレーザーを使ったテラヘルツ光の発振と試料部までの伝達には成功した。またこのテラヘルツ光の検出機として用いたガリウム置換ゲルマニウムが光を吸収する過程で発熱する様子をミリ秒オーダーの温度計測で確認した。現状では光源素子の冷却能力が不足しており、今後装置改良で磁気共鳴の検出を目指す。

研究成果の学術的意義や社会的意義

強相関電子系と呼ばれる物質群は、バンド模型では説明できない様々な物理現象の舞台として大きな注目を集めてきた。その微視的な電子状態を測定する手法として量子振動現象と磁気共鳴がある。本研究では、これまで光が透過しない金属では困難であった磁気共鳴現象を観測するために、試料自体を検出器として使う熱検出型サイクロトロン共鳴の装置開発を行った。本研究ではその基本原理が有効に作用することを示したが、磁気共鳴の観測にはさらなる装置の改良が必要である。今後、この研究で示した方向性が認知されることにより、熱検出型サイクロトロン共鳴が実用化されることを期待する。

研究成果の概要(英文)：By measuring both quantum oscillation and cyclotron resonance in a high mobility metal, we can evaluate the effect of electron correlation. However, since light does not penetrate such metals, we usually cannot detect cyclotron resonance. We developed a thermal detection cyclotron resonance system that detects the resonance as a change in the sample temperature to solve this problem.

We have succeeded in generating terahertz light using a quantum cascade laser and transmitting it to the sample. We have also confirmed that the germanium used as a detector of the terahertz light heats up in the process of absorbing the light by quickly measuring the temperature in the millisecond order. At present, the cooling capacity of the light source element is insufficient, so we are working to improve the system to detect magnetic resonance in the future.

研究分野：強相関電子系、強磁場物性

キーワード：強相関電子系 サイクロトロン共鳴 強磁場 テラヘルツ光

### 1. 研究開始当初の背景

近年強磁場下の物性測定手法が進化し、高温超伝導体を初めとする多くの強相関電子系物質において量子振動現象の観測が可能になっている。量子振動現象を観測することで得られる情報の一つにキャリアの有効質量があり、この値を評価することで電子相関の寄与を推定できる。一方で半導体におけるキャリアの有効質量を決定する手法としてサイクロトロン共鳴の実験がある。こちらは電子相関の寄与を含まない電子描像における有効質量を反映している。したがってこれら二つの手法で得られる有効質量を比較することで、電子相関の効果を正しく評価することが可能になる。

しかし、ある物質において量子振動とサイクロトロン共鳴の両方を測定することは容易ではない。一般に量子振動現象が観測される試料は高移動度の金属であるため、共鳴実験に必要な光が試料を殆ど透過できない。したがって一部の薄膜を除いては両手法を併用した実験は困難であった。そこで申請者は新しく熱検出型サイクロトロン共鳴のシステムを構築し、両者を併用した実験の確立を目指した。

### 2. 研究の目的

量子振動とサイクロトロン共鳴の実験を併用し、強相関電子系物質やトポロジカル半金属の電子状態を正確に評価する実験手法の確立を目的とした。量子振動現象の観測手段はすでに複数の手法を確立しているため、金属的試料に対してもサイクロトロン共鳴を観測できる手法の開発を目指した。その手法として申請者らが以前開発した高速温度計測の技術(引用文献①)を応用し、共鳴吸収によって生じる試料温度の上昇を測定することで吸収を評価する熱検出型の手法を選択した。

### 3. 研究の方法

(1) 研究代表者は最高 60T までの磁場範囲での物性実験を行うことができる。この磁場範囲で対象物質が共鳴条件を満たす光の周波数はテラヘルツ領域にある。単色のテラヘルツ光を連続発振する光源として量子カスケードレーザーを用いる。量子カスケードレーザーから放出された光はレンズ系を用いて集光し、磁場中におかれた試料に照射する。テラヘルツ光を連続的に照射しながら磁場挿引を行い、共鳴磁場に到達した際に起こる光の吸収による発熱を、試料に貼り付けた温度計で評価する。

(2) このような測定系の開発と同時に、対象となる物質の選定も重要である。強相関電子系やトポロジカル半金属を中心に様々な物質の強磁場物性測定を行い、量子振動現象の観測を通じて興味深いターゲットの選定も行う。

### 4. 研究成果

(1) まず研究協力者であるフランス LNCMI-Toulouse の Drachenko 氏およびドイツの Paul Drude Institute の Grahn 氏の協力により量子カスケードレーザーの素子を手入した。この素子は低温・無磁場下に設置する必要があるため、磁気共鳴を観測する対象物質とは離れた位置に置かなければならない。そこで素子が発生するテラヘルツ光を集光し、磁場中心にある試料に照射するため TPX レンズを用いたプローブを作製した(図 1)。写真の中央に見られている FRP ガイドパイプの中に 2 枚の TPX レンズが設置されており、集光効率を上げるためにその間隔を調整できる仕様になっている。量子カスケードレーザーの発熱を抑えるために素子は真鍮板に銀べ

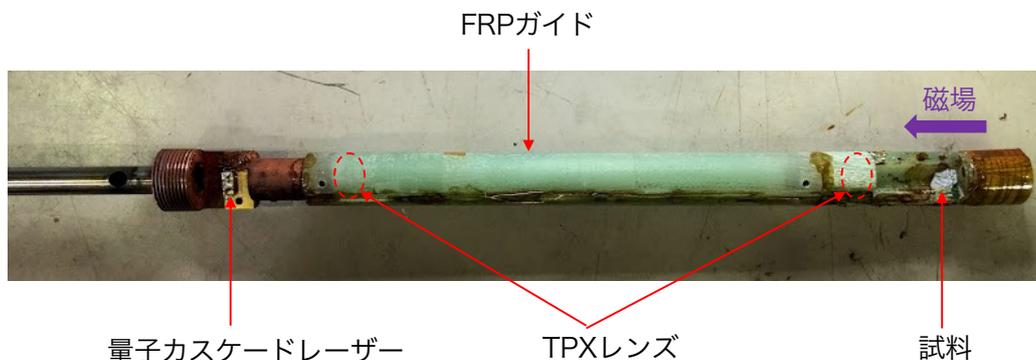


図 1 作製したプローブの写真。この写真で直接は見えないが FRP ガイドパイプの内側に一組の TPX レンズが設置されている。

ーストで固定した上で、真鍮板を銅のブロックにねじ止めする作りになっている。本研究では最高 60T までのパルス磁場中での実験を目指しているが、磁場発生時間が短いパルス磁場では共鳴条件を満たす時間が限られるため、共鳴時に吸収できるエネルギーの総量が小さい。そこで遅い磁場挿引に対しても実験ができるよう、このプローブは Quantum Design 社製の Physical Property Measurement System にも挿入できる設計にしており、最高 14T までの定常磁場下における実験が可能である。

試料部には小型の温度計を貼り付けた試料を設置する。試料温度計測には当初、抵抗温度計を使用する予定であったが、温度計の磁気抵抗効果に対する補償に手間がかかることが予想された。そこで本研究では自作した誘電体を用いて、新しいキャパシタンス温度計を開発した(引用文献②)。非磁性の強誘電体である  $\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$  は顕著な誘電率の温度依存性を示す。我々はこの物質の誘電率が磁場中でほとんど変化しないことを確認した。この物質を薄板状に成形した試料の両面に電極をつけたものをキャパシタンス温度計として用いることで、ほとんど磁場依存性を持たない温度計として利用している。この温度計は小型化が容易であるため、サイクロトロン共鳴の測定対象となる試料と比べて熱容量が十分小さくなるように加工し、試料温度の正確な評価を心がけた。また試料を固定する際には外界との熱交換を抑制することに留意し、共鳴による試料温度の微小な変化を検出できるよう心がけた。

こうして開発したプローブを用いて定常磁場下およびパルス磁場下におけるサイクロトロン共鳴の実験を行なった。測定対象としてはビスマスおよびグラファイトを対象としたが、期待した磁気共鳴は観測できなかった。その原因を調べたところ、使用している量子カスケードレーザー素子の発熱を十分に抑えきれず、テラヘルツ光の発生時間が非常に短くなってしまっているという問題が明らかになった。この問題を解決するため現在図 1 のプローブで量子カスケードレーザーを保持している銅ブロックの体積を増やし熱容量を大きくした物の作製を進めているが、現時点では完成に至っていない。この改良が完成次第、磁気共鳴の実験に挑戦する予定である。

磁気共鳴の観測には至らなかったが、このプローブを使って瞬間的な共鳴吸収による試料温度変化を評価できるか否かについては、試験を行なっている。我々はテラヘルツ光の検出素子として Ga をドーピングした Ge を用いており、この物質における電気抵抗の変化を通じてテラヘルツ光を検出している。この Ge がテラヘルツ光を吸収した際に生じる温度変化を、キャパシタンス温度計を用いて評価した結果が図 2 である。テラヘルツ光は図中で約 11 ミリ秒から発生し、その約 2 ミリ秒後に素子の発熱のため発生が止まっている。この Ge に添付したキャパシタンス温度計はこの瞬間的な吸収現象を敏感に捉えており、手法の有効性を実証している。我々が使用しているパルス磁場の磁場発生時間は通常型で約 36 ミリ秒、ロングパルスのマグネットであれば約 1 秒である。図 2 の結果は熱検出の応答時間が 1 ミリ秒以内であることを示している。

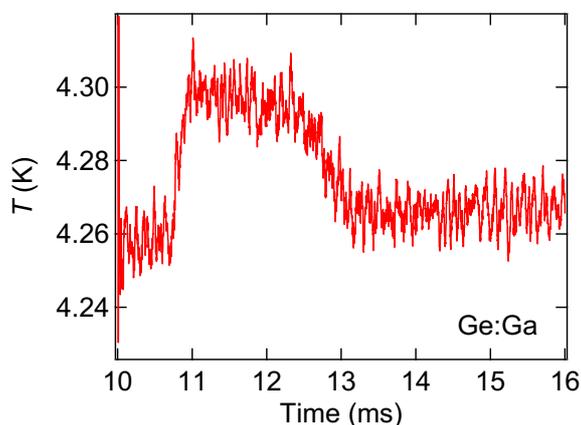


図 2 テラヘルツ光照射時の Ga ドープ Ge 試料温度の時間変化。

ことを示している。このように現状のプローブでも光吸収による約 40mK の試料温度の変化を検知できているが、この感度はさらに向上する余地がある。現在さらなる高精度化に向けてプローブの断熱性や配線の見直しを行なっており、今後のサイクロトロン共鳴の実験に役立てたい。

(2) 測定対象となりうる強相関電子系物質やトポロジカル半金属に対する基礎実験は数多く行なってきた。新規スピン三重項超伝導体として注目が集まっている  $\text{UTe}_2$  に関しては磁場誘起のメタ磁性転移を観測している(引用文献③)。この物質に対しては今のところ、量子振動の観測に関する報告はないが、サイクロトロン共鳴の実験が可能になればメタ磁性転移前後におけるキャリアの微視的情報を得る貴重な実験になる。

量子振動が観測できる対象としては、カイラルな結晶構造を持つ半導体テルルの表面状態の量子振動観測(引用文献④)、 $\text{CeRhIn}_5$  における磁場誘起ネマティック転移における弾性異常の評価(引用文献⑤)、磁性半導体  $\text{EuTiO}_3$  薄膜における量子振動観測(引用文献⑥)、絶縁体で現れる量子振動が注目されている  $\text{YbB}_{12}$  の超音波応答(引用文献⑦)など様々な分野の実験を行なってきた。現在改良中の磁気共鳴システムが完成した際には、こうした物質に対してサイクロトロン共鳴の実験を行ない、量子振動との比較を行なっていきたい。

最後に本研究では光源の安定性の問題により磁気共鳴の観測には至らなかったが、検出手法に関しては十分な応答速度と感度を実現している。すでに単色光源を保有しているグループとの共同研究を行えば、金属試料におけるサイクロトロン共鳴は早期に計測できると期待してい

る。研究機関終了後はそのような連携も含めて、研究の成果を有効に活用できる道を選びたい。

<引用文献>

- ① T. Kihara, Y. Kohama, Y. Hashimoto, S. Katsumoto, and M. Tokunaga, Rev. Sci. Instrum. **84**, 074901 (2013).
- ② A. Miyake, H. Mitamura, S. Kawachi, K. Kimura, T. Kimura, T. Kihara, M. Tachibana, and M. Tokunaga, Rev. Sci. Instrum. **91**, 105103 (2020).
- ③ A. Miyake, Y. Shimizu, Y. J. Sato, D. Li, A. Nakamura, Y. Homma, F. Honda, J. Flouquet, M. Tokunaga, and D. Aoki, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 063706 (2019).
- ④ K. Akiba, K. Kobayashi, T. C. Kobayashi, R. Koezuka, A. Miyake, J. Gouchi, Y. Uwatoko, and M. Tokunaga, Phys. Rev. B **101**, 245111 (2020).
- ⑤ R. Kurihara, A. Miyake, M. Tokunaga, Y. Hirose, and R. Settai, Phys. Rev. B **101**, 155125 (2020).
- ⑥ T. Maruhashi, K. S. Takahashi, M. S. Bahramy, S. Shimizu, R. Kurihara, A. Miyake, M. Tokunaga, Y. Tokura, and M. Kawasaki, Adv. Mater. **32**, 1908315 (2020).
- ⑦ R. Kurihara, A. Miyake, M. Tokunaga, A. Ikeda, Y. H. Matsuda, A. Miyata, D. I. Gorbunov, T. Nomura, S. Zherlitsyn, J. Wosnitza, and F. Iga, Phys. Rev. B **103**, 115103 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Miyake Atsushi, Mitamura Hiroyuki, Kawachi Shiro, Kimura Kenta, Kimura Tsuyoshi, Kihara Takumi, Tachibana Makoto, Tokunaga Masashi	4. 巻 91
2. 論文標題 Capacitive detection of magnetostriction, dielectric constant, and magneto-caloric effects in pulsed magnetic fields	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 105103 ~ 105103
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0010753	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 木下雄斗
2. 発表標題 テラヘルツ量子カスケードレーザーを用いた磁気共鳴分光装置の開発
3. 学会等名 物性研短期研究会 / 強磁場科学研究会 強磁場コラボラトリーによる強磁場科学の新展開 ~ 光科学との融合も視野にいれて ~
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	木下 雄斗  (Kinoshita Yuto)  (90825340)		共鳴実験の実施等
研究協力者	小濱 芳允  (Kohama Yoshimitsu)  (90447524)		高速温度計測に関する助言

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

## 8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
フランス	LNCFI -Toulouse			
ドイツ	Paul Drude Institute			