

令和元年6月11日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H06015

研究課題名(和文) 強相関ディラック電子系磁性体の新規開拓

研究課題名(英文) Study of magnets hosting strongly correlated Dirac fermions

研究代表者

酒井 英明 (Sakai, Hideaki)

大阪大学・理学研究科・准教授

研究者番号：20534598

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、磁性層とディラック電子層が積層した層状磁性体において、超高移動度のディラック電子と局在スピンの強相関状態に起因する量子輸送現象の開拓と、その基礎物理構築を目的とした。この結果、ランダウ準位のスピン分裂構造の詳細を解明し、ディラック電子バンドが局在スピンとの交換相互作用により、磁気秩序に依存した変調を受けることを実験・理論面から示した。さらに、中性子回折実験により反強磁性パターンの磁場依存性を調べ、巨大磁気抵抗効果の起源を考察した。またブロック層の元素置換によりディラック電子のキャリア濃度制御を実証し、熱電材料としての性能向上やディラック点近傍の特異な電子状態の解明に取り組んだ。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、多層ディラック電子系磁性体において磁性やスピンと結合した輸送特性だけでなく、ディラック電子の微視的なバンド構造が磁気秩序との強い結合により変調されることを半定量的に解明できた点は、トポロジカル物質における強相関効果として学術的に重要な上、今後の物質設計の基盤となる成果といえる。またブロック層を利用したディラック電子のキャリア濃度制御を実証できたことは、本物質系がエレクトロニクスや熱電変換を含めた幅広い応用展開が可能であることを示唆している。

研究成果の概要(英文)：In this research, we aimed to study the correlated quantum transport phenomena in a layered bulk magnet EuMnBi_2 to reveal the fundamental physics of Dirac fermions coupled with magnetism. To show the variation of band structure upon the antiferromagnetism in EuMnBi_2 , we have first studied the Landau level splitting in a tilted magnetic field up to ~ 35 T and found effective g factor differs by $\sim 50\%$ between two antiferromagnetic phases, which reflects the strong exchange coupling with Eu spins as verified by first-principles calculations. We have also studied the details of field-tunable antiferromagnetic order of both Eu and Mn layers by the neutron diffraction and discussed its impact on the spin-flop-induced giant magnetoresistance effects in the present system.

研究分野：凝縮系物理学

キーワード：ディラック電子 反強磁性体 量子ホール効果 磁気抵抗効果 中性子回折 局在スピン g因子 スピン分裂

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) ディラック電子系物質は、線形なエネルギー分散に起因した超高移動度や、特異な磁気伝導（半整数量子ホール効果、カイラル異常等）を示すため、基礎と応用の両面から注目を集めている。これらのスピントロニクス応用には、外部磁場ではなく物質内のスピンによるディラック電子の制御が可能な物質の開拓が必須である。この好例として、磁性トポロジカル絶縁体薄膜の表面ディラック状態において、自発磁化による量子ホール効果が近年観測され、大変な注目を集めた[C. Chang 他. Science (2013)]。

(2) このような磁性と結合したディラック電子系を幅広く開拓できれば、磁気秩序やバンド構造を変化させることにより、従来にない多彩なスピン依存量子輸送や非散逸伝導が期待できる。これに向け、磁気秩序相が豊富で、様々な物性（熱物性、熱力学特性）が解明できるバルク磁性体の創製が不可欠である。しかし、最近精力的に開拓されているディラック・ワイル電子系バルク物質のほとんどは非磁性であり、磁性体のバラエティは限られていた。

2. 研究の目的

(1) 以上のような背景に対し、申請者は近年、ディラック電子を担う二次元伝導層（Bi 正方格子）と絶縁体的なブロック層が積層した多層ディラック電子系バルク物質に着目し、ブロック層を磁性体化（Eu や Mn 層）することにより、ディラック電子と磁気秩序が強相関状態となる磁性体の合成に成功した（図 1）。その基本輸送特性を測定した結果、二次元面内において $15,000\text{cm}^2/\text{Vs}$ もの高移動度が観測された上、磁場によりブロック層の磁気秩序を変化させると、1,000%以上の巨大な層間磁気抵抗効果を示すことが分かった。さらにバルク量子ホール効果の兆候となるホール抵抗のプラトーを観測できており、ディラック電子の量子伝導を固体中のスピンの制御することができる [H. Masuda, H. Sakai *et al.*, Sci. Adv. (2016)]。そこで本研究では、EuMnBi₂ における強相関ディラック電子のスピン依存量子輸送現象を詳細に解明し、その制御法確立を目的とする。また、その微視的なメカニズムの解明を目指し、ディラック電子のバンド構造が磁性層の反強磁性秩序により、どのような影響を受けるかを明らかにする。

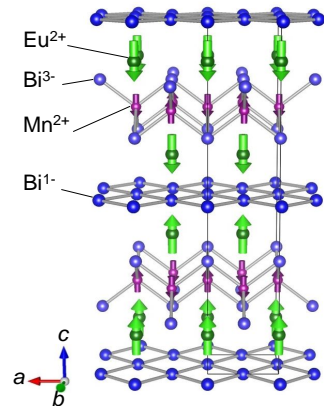


図 1: EuMnBi₂ の結晶構造と反強磁性状態の模式図。

(2) 物質開拓の観点では、多層ディラック電子系は、空間的に分離したブロック層の化学修飾により、伝導層のディラック電子状態を保持したまま、多彩なディラック電子状態を実現できる特徴がある。この強みを生かし、ブロック層の系統的な部分置換によるキャリア濃度や磁気秩序の制御を実証することを目指す。

3. 研究の方法

(1) 磁気秩序とカップルしたディラック電子の電気・熱輸送現象を解明するため、15 テスラ超伝導マグネットを立ち上げ、電気抵抗、ゼーベック係数、ネルンスト係数の精密測定を行った。また、量子振動の解析にはさらに高磁場が必要であったため、東京大学物性研究所においてパルスマグネットを利用し、55 テスラまでの電気抵抗を回転ステージ上で測定した。

(2) 磁性層の反強磁性秩序の詳細を解明するために、J-PARC BL-18 において磁場中での中性子回折実験を行った。また、Eu 層の反強磁性秩序の磁場依存性の解明には、KEK BL-3A における共鳴エックス線散乱実験を相補的に利用した。

(3) 元素を部分置換した単結晶や新物質の合成は、真空フラックス法やブリッジマン法により行った。

4. 研究成果

(1) EuMnBi₂ のランダウ準位における、反強磁性秩序に依存したスピン分裂構造の解明
本物質の電気抵抗率は、Eu 層の反強磁性状態に強く依存する。具体的には、ゼロ磁場では図 1 のように c 軸方向を向いている Eu スピンが、 c 軸方向の磁場（約 5.3 テスラ）により、面内方向にフロップすると、層間方向の電気抵抗率は約一桁増加し、量子振動の振幅も増大する。しかし、これら二つの反強磁性相において、ディラック電子のバンド構造がどのような変化しているかについては未解明であった。そこで、それぞれの反強磁性相において、ランダウ準位のスピン分裂の詳細な特性を調べた。二次元電子系では、磁場の方位を変化させることで、サイクロトロンエネルギーに対するゼーマンエネルギーの比を制御できることを利用し、 g 因子などの微視的なパラメータを実験的に見積もることを目指した。

図 2 に、層間方向の伝導度 σ_{zz} の量子振動の強度（ランダウ準位の状態密度）を、磁場の面直成分の逆数 ($1/\mu_0 H_{\perp}$) と磁場の傾斜角度 θ の平面上にプロットした結果を示す。平面はスピンプロップ磁場 H_f により二つの反強磁性相に分割されており、右側が低磁場の反強磁性相 (AFM)、

左側が高磁場のスピフロップ反強磁性相 (spin-flop AFM) に対応する。いずれの反強磁性相においても、 H_{\perp} の逆数でプロットした場合、量子振動の周期が θ に依存せず、フェルミ面が高い二次元性を有することが分かる。最も重要な点は、傾斜角度を増加させると量子振動の位相が反転することである ($\theta = \theta_c$)。これは $\theta = \theta_c$ において、サイクロトロンエネルギーとゼーマンエネルギーの大きさが逆転することを意味する。この θ_c の値は、微視的なパラメータ g^*m^* (g^* : g 因子、 m^* : サイクロトロン質量) で決定されるため、図 2 で示すように θ_c の値が反強磁性相に依存することは、微視的状态が変化していることを示す。より具体的には、別の実験からサイクロトロン質量は、反強磁性相に大きく依存しないことが分かっているため、 g 因子が反強磁性相により大きく変化している。

この起源を明らかにするために、第一原理計算を行った結果、スピフロップ反強磁性相では、 c 軸方向に正味の磁化が発現するため、ゼーマンエネルギーに加え、Eu 局在スピンとの交換エネルギーによるスピン分裂が付加されること分かった。この相では ($H > H_f$)、Eu の磁化が磁場に比例するため、実効的に g 因子がくりこみを受けることになり、低磁場相の g 因子と大きな違いが生じたと考えられる。このように、実験的に明らかとなった g 因子の反強磁性相に対する依存性を通じて、ディラック電子バンドが Eu 局在スピンと強相関状態にあることを実証することができた。(発表論文)

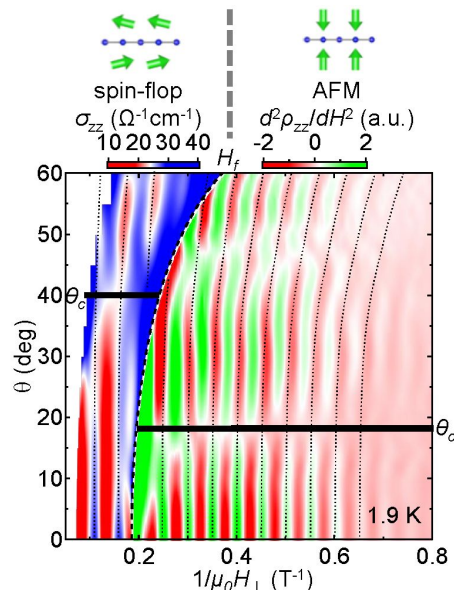


図2: EuMnBi₂の二つの反強磁性相における、量子振動の磁場傾斜角度依存性。

(2) EuMnBi₂のEu層とMn層の反強磁性秩序の解明

反強磁性秩序したEu層が、 c 軸方向の磁場によりスピが面内方向にスピフロップする際に、層間方向の抵抗率が大きく変化する。この磁気抵抗効果の具体的な起源を解明することは、本系の伝導制御に向けた重要な知見となる。そこで、ゼロ磁場と磁場中においてEu層とMn層の反強磁性秩序の詳細を明らかにするために、中性子回折実験を行った。まずゼロ磁場では、Eu層の反強磁性秩序に由来する磁気反射($H0L$)、 $H+L=$ 奇数の観測に成功した(図3の赤矢印)。これにより、Eu層は、図1のような面内は強磁性的で面間が反強磁性的な秩序パターンであることが確定した。さらに6テスラの磁場中中性子回折の結果、反強磁性の秩序パターンは変化せず、Euスピンの向きが面内にフロップしていることが示唆された。各回折点の強度を比較した結果、Euスピンの面内の向きが90度異なるドメインが形成されていることが明らかとなった。これらの結果は、Eu L_3 端における共鳴エックス線散乱の結果と良く一致している。さらに磁場中の中性子回折の結果を用いて、Mn層の磁気秩序におけるEuスピンのフロップの影響を調べた。半定量的な磁気構造解析の結果、Mn層の磁気秩序はEuのスピフロップの前後での有意な変化をしていないことが示唆された。以上の結果から、スピフロップ反強磁性相での層間抵抗率の増大は、EuやMnの局在スピン間のトランスファの変化だけでは説明できないことが分かった。反強磁性秩序によるゾーン境界でのギャップの変化などの詳細を考慮する必要があると推察される。(論文投稿準備中)

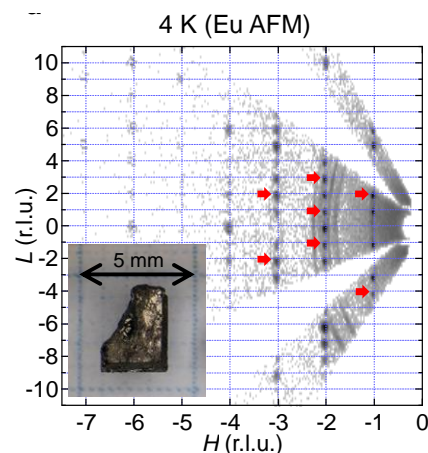


図3: EuMnBi₂の中性子回折強度の逆格子マッピング[($H0L$)面、ゼロ磁場、4 K]。写真は典型的な測定サンプル。

(3) 元素置換を利用したキャリア濃度制御と電気・熱輸送特性の解明

より多彩なディラック電子状態を実現するために、ブロック層を利用したキャリア濃度制御を試みた。この結果、Eu²⁺に対しGd³⁺を少量ドーピングすることにより、母物質の p 型キャリア濃度を減少できることを見出した。キャリア濃度を母物質の半分以下に減少させた結晶では、より低磁場で量子極限に到達できるようになり、ディラック点近傍のランダウ準位の詳細を解明することに成功した。特にスピン分裂以外の分裂構造があることを見出し、量子極限ではクーロン相互作用が顕著となり、バレー自由度の分裂が生じている可能性が示唆された。さらにGdドーピング量を増加させることにより、 n 型に転換させることにも成功した。キャリア濃度を系統的に制御した一連の単結晶に対し、ゼーベック・ネルンスト効果を測定した結果、熱電性能の電力因子をキャリア濃度の調整により最適化できることを実証した。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計8件)

T. Nishimura, H. Sakai (責任著者), H. Mori, K. Akiba, H. Usui, M. Ochi, K. Kuroki, A. Miyake, M. Tokunaga, Y. Uwatoko, K. Katayama, H. Murakawa, and N. Hanasaki, "Large Enhancement of Thermoelectric Efficiency Due to a Pressure-Induced Lifshitz Transition in SnSe", Phys. Rev. Lett. **122**, 226601 (2019).

H. Masuda, H. Sakai (責任著者), M. Tokunaga, M. Ochi, H. Takahashi, K. Akiba, A. Miyake, K. Kuroki, Y. Tokura, and S. Ishiwata, "Impact of antiferromagnetic order on Landau-level splitting of quasi-two-dimensional Dirac fermions in EuMnBi₂", Phys. Rev. B **98**, 161108(R) (2018).

J. Park, H. Sakai, O. Erten, A. P. Mackenzie, and C. W. Hicks, "Effect of applied orthorhombic lattice distortion on the antiferromagnetic phase of CeAuSb₂", Phys. Rev. B **97**, 024411 (2018). [Editors' Suggestion]

K. Yokoi, H. Murakawa, M. Komada, T. Kida, M. Hagiwara, H. Sakai and N. Hanasaki "Enhanced magnetoresistance in the binary semimetal NbAs₂ due to improved crystal quality", Phys. Rev. Materials **2**, 024203 (2018).

J. Park, H. Sakai, A. P. Mackenzie, and C. W. Hicks, "Effect of uniaxial stress on the magnetic phases of CeAuSb₂", Phys. Rev. B **98**, 024426 (2018).

K. Akiba, A. Miyake, H. Sakai, K. Katayama, H. Murakawa, N. Hanasaki, S. Takaoka, Y. Nakanishi, M. Yoshizawa, and M. Tokunaga, "Quantitative evaluation of Dirac physics in PbTe", Phys. Rev. B **98**, 115144 (2018). [Editors' Suggestion]

S. Torigoe, T. Hattori, K. Kodama, T. Honda, H. Sagayama, K. Ikeda, T. Otomo, H. Nitani, H. Abe, H. Murakawa, H. Sakai, and N. Hanasaki, "Nanoscale ice-type structural fluctuation in spinel titanates", Phys. Rev. B **98**, 134443 (2018).

H. Sakai, S. Yokoyama, A. Kuwabara, J. S. White, E. Canevet, H. M. Ronnow, T. Koretsune, R. Arita, A. Miyake, M. Tokunaga, Y. Tokura, and S. Ishiwata, "Negative-pressure-induced helimagnetism in ferromagnetic cubic perovskites Sr_{1-x}Ba_xCoO₃", Phys. Rev. Mater. **2**, 104412 (2018).

[学会発表](計 11 件)

ISSP ワークショップ-スピン軌道強結合伝導系におけるサイエンスの新展開(東京大学物性研究所), 2018 年 11 月 12 日, 「Bi/Sb 正方格子を有するディラック電子系磁性体における交換相互作用とスピン軌道相互作用」; 酒井英明(招待)

強スピン軌道結合系研究会 SSOCs (電気通信大学), 2018 年 6 月 9 日, 「二次元ビスマス伝導層をもつ層状磁性体の強相関ディラック電子状態」; 酒井英明(招待)

ポスト新機能物質開発のための戦略会議(東京大学), 2017 年 11 月 14 日, 「磁性や伝導性の設計が可能な強相関ディラック電子系物質」; 酒井英明(招待)

Max-Planck Institute CPfS seminar, Dresden, Germany, 25 July, 2017, "Dirac fermion transport coupled with magnetic order in a layered antiferromagnet EuMnBi₂"; H. Sakai (Invited)

物性研究所短期研究会-光で見る・操る電子物性科学の最前線(東京大学物性研究所), 2017 年 6 月 14 日, 「多層ディラック電子系 EuMnBi₂ における磁気秩序とカップルした電気・熱輸送現象」; 酒井英明(招待)

2016 年度第 2 回界面ナノ科学研究会(新世代研究所), 2017 年 3 月 30 日, 「機能性原子層の三次元積層物質における新奇量子物性の開拓」; 酒井英明(招待)

平成 28 年度大阪大学物質材料科学研究推進機構講演会(大阪大学), 2017 年 1 月 26 日, 「ディラック電子をキャリアとする新しい磁性体の開拓」; 酒井英明(招待)

東邦大学 物理学科コロキウム(東邦大学), 2016 年 11 月 29 日, 「磁性体の中のディラック電子とスピンを利用したその伝導制御」; 酒井英明(招待)

第二回ディラック電子系マルチフェロイクス研究会(名古屋大学物質科学国際研究センター), 2016 年 11 月 17 日, 「多層ディラック磁性体 EuMnBi₂ の電気・熱輸送特性からみたランダウ準位構造」; 酒井英明(招待)

日本物理学会 2016 年秋季大会合同シンポジウム「トポロジカル材料開発の新展開」(金沢大学), 2016 年 9 月 14 日, 「ディラック電子系磁性体 EuMnBi_2 における異常磁気伝導と量子ホール効果」; 酒井英明 (招待)

第 4 回酸化物研究の新機軸に向けた学際討論会 (京都大学化学研究所), 2016 年 8 月 5 日, 「特殊なアニオン構造をもつニクタイト系磁性体における強相関ディラック電子状態」; 酒井英明 (招待)

〔図書〕(計 3 件)

酒井英明, “磁石の中のスピン秩序を利用したディラック電子の制御”, パリティ (丸善出版) 32, No. 01, 30-32 (2017).

酒井英明, “ディラック電子の流れを制御できる新磁性体”, パリティ (丸善出版) 31, No. 11, 30-33 (2016).

酒井英明, 増田英俊, 石渡晋太郎, “新しい多層ディラック電子系 EuMnBi_2 における磁気秩序と結合した量子伝導現象”, 固体物理 (アグネ技術センタ) 51, No. 9, 491-507 (2016).

〔産業財産権〕

出願状況 (計 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年:
国内外の別:

取得状況 (計 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年:
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等
<http://hide-sakai.net>
6 . 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名:

ローマ字氏名:

所属研究機関名:

部局名:

職名:

研究者番号 (8 桁):

(2) 研究協力者

研究協力者氏名:

ローマ字氏名:

については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。