

平成 30 年 9 月 3 日現在

機関番号：32682

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05176

研究課題名(和文)空間・時間反転対称性の破れが創出する量子伝導と光学応答の理論

研究課題名(英文) Theory of quantum conducting states and optical responses by space-time inversion breaking

研究代表者

楠瀬 博明 (Kusunose, Hiroaki)

明治大学・理工学部・専任教授

研究者番号：00292201

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：スピン軌道相互作用が強い $f-d$ 電子系化合物を対象として、時空反転対称性の自発的な破れによって生じる量子伝導と光学応答を開拓し、その微視的な起源を明らかにした。特に、UNi4Bにおける強制的トロイダル秩序による電流磁気効果の予言、 $-Cu_2V_2O_7$ に対する非相反なマグノン励起の予測、 $Co_4Nb_2O_9$ で見られる特異な磁気電気効果の微視的起源の解明、単層ハニカム模型によるスピン・軌道秩序と非対角応答の全容の解明などの成果を得た。また、これらの特異な交差相関現象を統一的に理解するために、時空反転対称性の偶奇性で分類されたクラスター多極子と混成多極子という概念を構築し、その微視的な数学的表現を導いた。

研究成果の概要(英文)：We have developed the quantum-conducting phenomena and exotic optical responses driven by spontaneous symmetry breaking of space-time inversion symmetry for f - and d -electron systems with strong spin-orbit coupling. We have elucidated their mechanism from the microscopic point of view. Especially, we have achieved the following results: (1) the prediction of magneto-current effect in UNi4B showing vortex-like magnetic ordering, which is regards as the ferroic toroidal ordering, (2) the prediction of non-reciprocal magnon in the zig-zag structure corresponding to $-Cu_2V_2O_7$, (3) microscopic understanding for peculiar magneto-electric effect observed in $Co_4Nb_2O_9$, (4) comprehensive understanding of cross correlations based on two-band Hubbard model on the honeycomb lattice. Moreover, we have developed the theoretical framework of argumented multipoles, namely, cluster and hybrid multipoles, which are very useful to analyze a variety of cross-correlated phenomena in a systematic way.

研究分野：物性理論

キーワード：多極子 奇パリティ スピン軌道相互作用 時空反転対称性 トポロジー 電気・電流磁気効果 バレ
ー選択型光学応答 混成軌道

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

1. 研究開始当初の背景

- (1) 空間反転対称性のない系の超伝導、マルチフェロイクス、トポロジカル絶縁体などの研究が盛んに行われているが、これらの系においては、スピン軌道相互作用と反転対称性の欠如が重要と考えられている。通常、空間反転対称性の欠如は、結晶構造に由来するものであり、自由にコントロールできるものではない。
- (2) 電子系の秩序にともなって発生する空間反転対称性の自発的な破れに着目して、上記の特異な現象を積極的にコントロールするという視点からの研究はほとんど行われていなかった。ハニカム構造などの原子サイトに反転中心を持たない結晶群における電子系の秩序は、自発的な反転対称性の破れを引き起こす、という点に着目して、時空反転対称性の破れを自在にコントロールし、相転移とともに発現する新しい量子伝導や光学応答を積極的に開拓することが重要との認識に至った。

2. 研究の目的

- (1) スピン・軌道相互作用が強い f ・ d 電子系において自発的な時空反転対称性の破れが創出する量子伝導と光学応答を開拓し、その微視的な起源を明らかにする。特に、絶縁体におけるマルチフェロイクスだけでなく、伝導系におけるスピン制御や電流による歪み応答などの非対角応答を開拓する。
- (2) マルチフェロイクスに代表される非対角応答は、時空反転対称性の偶奇性を転換する応答であり、時空反転対称性の偶奇性によって分類される多極子自由度と密接な関係がある。上記の量子伝導や光学応答の微視的な理解には多極子自由度という視点が重要となるため、その微視的な理論を整備する。

3. 研究の方法

- (1) 空間反転対称性が破れた状況で活性化する磁気四極子やトロイダル双極子、複数サイトにまたがる多量体自由度を、一般化された多極子として扱うための表現論を構築する。ミクロな理論模型や観測量を一般化多極子を用いて整理することで対称性に関する見通しが良くなり、新現象の解析と予言が容易になる。ハニカム構造、ダイヤモンド構造など原子位置に反転中心のない結晶構造に着目して、その特徴を捉えた多軌道模型を構築する。
- (2) 構築した多軌道模型に基づき、自発的な

空間・時間反転対称性の破れにともなって発現する量子スピン伝導や非線形光学応答の現象論を展開する。平均場近似の計算結果を解析して、反対称スピン軌道相互作用と奇パリティ多極子を用いた有効模型を導出し、量子伝導や光学応答の発現機構と特性を定性的に理解する。

- (3) 有効模型解析から得られる知見を活かして大規模数値計算に適したミニマル模型を構築し、モンテカルロ法を用いて、基底状態における秩序の安定性を調べる。

- (4) 秩序にともなって発現する量子伝導や光学応答に対する揺らぎの効果を解明する。特に、転移点近傍で増大する揺らぎの効果と、増大した揺らぎによる巨大応答の可能性を調べる。スピン軌道相互作用を可変パラメタにとり、電気・電流磁気効果、スピンホール効果、光学伝導度、ファラデー効果などの物理量を定量的に評価する。

- (5) 上記の微視的なモデル計算で得られた知見を元に、典型物質の解析を行う。典型物質として、単層カルコゲナイド $MnPX_3$ ($X=S, Se$)、磁気四極子秩序が予想される $BaMn_2As_2$ 、部分秩序相でトロイダル秩序が期待される UNi_4B などが挙げられる。さらに、多量体の観点から、擬二次元三角格子系 $LiVX_2$ ($X=O, S, Se$) における三量体形成、三角形をベースにした三次元構造をもつ $AV_{10}O_{15}$ ($A=Ba, Sr$) における三量体形成、 $Cd_2Re_2O_7$ 、 $Pb_2Ru_2O_7$ や $Pb_2Ir_2O_7$ などのパイロクロア化合物における反転対称性の自発的な破れが見られる物質も研究対象とする。

- (6) 空間反転対称性の破れた系におけるスピン軌道選択型の金属絶縁体転移、異常な円二色性光学応答などの可能性も追求する。

4. 研究成果

- (1) トロイダル秩序状態に発現する非対角な電流磁気応答について理論予測を行った。ハニカム構造の格子点に渦状の磁気秩序が発生するとき、各サイトに放射状の局所電場と合わせて一様なトロイダル秩序が発生し、それにともなって非対角応答が起こることを理論的に示した。このような効果が期待される系として UNi_4B を挙げたが、長年の実験研究によってそのような効果が実際に観測されたことにより、新しい電流磁気効果の予言が検証された。

- (2) ハニカム構造上の二軌道ハバード模型を用いて、スピンや軌道の副格子秩序状態が生じると、空間反転対称性が自発的に破れて、様々な非対角応答が生じることを示した。また、各秩序に対して有効的な反対称スピン軌道相

相互作用を導出した。このように自発的に現れる反対称スピン軌道相互作用は、反転対称性が欠如した単層カルコゲナイドが有する反対称スピン軌道相互作用と同形であり、このような相互作用を相転移によってコントロールできることが明らかになった。このような反対称スピン軌道相互作用は、特異な光学応答、電気磁気効果、磁気弾性効果やトポロジカル転移の起源であり、そのような効果はすべて相転移によってコントロールできることを意味する。

(3) 局所的な反転対称性の破れを持つ系において発現するトロイダル磁気秩序状態の集団励起構造を計算し、波数空間で非対称なマグノン分散が現れることを明らかにした。これらは、 α - $\text{Cu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ に対する中性子散乱実験により確認された。

(4) 多軌道ハバード模型において、電荷の不均一化をともなった自発的な対称性の破れによる反対称スピン軌道相互作用の活性化と、それによる新規なトポロジカル物性を明らかにした。

(5) 正四角台塔とよばれる低対称なクラスタを有する $\text{Ba}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$ に見られるマルチフェロイックな性質を説明する理論モデルを構築し、磁場中相図を明らかにするとともに、新しい磁気誘電特性を理論的に予言した。

(6) カイラル磁性体に対する伝導電子を含んだモデルに対するモンテカルロ計算を行い、カイラルソリトン格子とよばれる状態における伝導性と磁性の絡み合いの様子を明らかにした。

(7) MoS_2 に代表されるような単層ハニカム構造をもつスピン軌道結合電子系を念頭に時空反転対称性の破れと光学選択則の関係を明らかにした。交替的な電荷・スピン秩序が生じたとき、時空反転対称性の破れにより K 点と K' 点の電流演算子の行列要素に差異が生じ、これによりバレー選択型の光学応答が発生する。また、分子場の大きさに依存してトポロジカル転移が生じるが、そこで光学選択則が変化することを明らかにした。

(8) $\text{Co}_4\text{Nb}_2\text{O}_9$ で観測された面内磁場で制御可能な磁気電気効果の微視的発現機構をバンド計算から構築した模型によって解明した。また、得られた模型から特異な磁気電気効果の発現に必要な最小条件を導いた。その条件は、単層のハニカム構造、スピン軌道相互作用が面内成分のみをもつ、スピン軌道相互作用が反強磁性分子場に比べて十分小さいこと、の3点である。

(9) 多サイトで定義されるクラスター多極子という概念は複雑な磁気構造をもつ物質の物性を理解する上で有用であるが、このような概念

に加えて、1サイトの多軌道にまたがって定義される混成多極子という概念も提唱した。また、このような多極子の量子力学的な表現を導出した。これにより、時空反転対称性の偶奇性の変換をともなう一般的な交差相関現象を微視的な多極子という立場から理解することを可能とした。また、これらの多極子は電子自由度を表現するための完全系をなすことを明らかにした。

(10) 三角形の量子ドット系では、近藤効果によって駆動される電気磁気効果があることを以前に我々が示したが、このような効果に対する反対称スピン軌道相互作用の影響を明らかにした。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 17 件)[全て査読あり]

- ① S. Hayami, H. Kusunose, Y. Motome, Spontaneous multipole ordering by local parity mixing, *J. Phys. Soc. Jpn.* **84**, 064717/1-10 (2015). DOI: 10.7566/JPSJ.84.064717
- ② S. Hayami, H. Kusunose, Y. Motome, Asymmetric Magnon Excitation by Spontaneous Toroidal Ordering, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 053705/105 (2016). DOI: 10.7566/JPSJ.85.053705
- ③ M. Koga, M. Matsumoto, H. Kusunose, SU(2)-SU(4) Kondo Crossover and Emergent Electric Polarization in a Triangular Triple Quantum Dot, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 063702/1-5 (2016). DOI: 10.7566/JPSJ.85.063702
- ④ T. Onimaru, H. Kusunose, Exotic Quadrupolar Phenomena in Non-Kramers Doublet Systems - A Case of $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ (T=Ir,Rh) and $\text{PrT}_2\text{Al}_{20}$ (T=V,Ti), *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 082002/1-22 (2016). DOI: 10.7566/JPSJ.85.082002
- ⑤ S. Hayami, H. Kusunose, Y. Motome, Emergent spin-valley-orbital physics by spontaneous parity breaking, *J. Phys.:Condens. Matter* **28**, 395601/1-21 (2016). DOI: 10.1088/053-8984/28/39/35601
- ⑥ Y. Yanagi, H. Kusunose, Optical Selection Rules in Spin-Orbit Coupled Systems on Honeycomb Lattice, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 083703/1-5 (2017). DOI: 10.7566/JPSJ.86.083703
- ⑦ Y. Yanagi, S. Hayami, H. Kusunose, Manipulating magnetoelectric effect -

Essence learned from $\text{Co}_4\text{Nb}_2\text{O}_9$, Phys. Rev. B **97**, 020404(R)/1-5 (2018). DOI: 10.1103/PhysRevB.97.020404

- ⑧ S. Hayami, H. Kusunose, Microscopic Description of Electric and Magnetic Toroidal Multipoles in Hybrid Orbitals, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 033709/1-5 (2018). DOI: 10.7566/JPSJ.87.033709

〔学会発表〕(計 39 件)

- ① H. Kusunose, Competing Kondo effects in non-Kramers doublet systems, New Quantum Phases Emerging from Novel Crystal Structure (Tokyo, Japan) (2016) (招待講演)
- ② 楠瀬博明、強トロイダル秩序、日本物理学会シンポジウム (仙台) (2016) (招待講演)
- ③ H. Kusunose, Mass-imbalanced superconductivity in effective two-channel Kondo lattice, 14th Bilateral Japanese-German Symposium (Sapporo, Japan) (2016) (招待講演)
- ④ 楠瀬博明、強磁性超伝導と自己誘起磁束格子状態の理論、U系およびBiS2系の物理の最近の発展、(東京) (2016) (招待講演)
- ⑤ H. Kusunose, Magnetoelectric response induced by generalized multipole orders, J-Physics 2017 International Workshop on Multipole Physics and Related Phenomena (Iwate, Japan) (2017) (招待講演)
- ⑥ 楠瀬博明、多極子物理の進展と多様な非対角応答、第11回物性科学領域横断研究会 (柏) (2017) (招待講演)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

○取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

- ・明治大学 物性理論研究室
<http://www.isc.meiji.ac.jp/~hk/index.html>
- ・東京大学 求研究室
<http://www.motome-lab.t.u-tokyo.ac.jp/index.html>
- ・北海道大学 速水賢

<http://phys.sci.hokudai.ac.jp/~hayami/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

楠瀬博明 (KUSUNOSE HIROAKI)

明治大学・理工学部・物理学科・教授
研究者番号:00292201

(2) 研究分担者

求幸年 (MOTOME YUKITOSHI)

東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号:40323274

速水賢 (HAYAMI SATORU)

北海道大学・理学研究院・助教
研究者番号:20776546

(3)連携研究者
なし

(4)研究協力者
なし