

伝導電子と局在スピン・軌道が織りなす悪魔の調律 ～多極子の衣をまとった電子「多極子ポーラロン」を発見～

物性研究所極限コヒーレント光科学研究センター 新井 陽介、黒田 健太*、近藤 猛
*現所属：広島大学大学院先進理工系科学研究科

概要：

現代のテクノロジーを支える機能物性の多様性は、秩序形成を伴った相転移現象の上に成り立っている。例えば、結晶を形成する原子配列は凝固という相転移で現れ、我々の生活を支える磁性もスピンを綺麗に配列させる磁気相転移として現れる。こうした秩序からのズレに対する復元力として定義される素励起(ボゾン)は、伝導電子と電子ボゾン結合を通して協奏的にやり取りし、このとき形成される準粒子が系のマクロ物性に大きな変化をもたらす。実際に、こうした準粒子の代表例であるポーラロン(電子-フォノン結合)や磁気ポーラロン(電子-マグノン結合)は、超伝導[1]や巨大磁気抵抗[2]といった強相関現象を引き起こす要因の一つとなっている。このような理由から、準粒子を特徴付ける相互作用を理解して制御することが物質科学で最も重要な要素の1つと考えられている。しかしながら、これまで長い歴史をもつ物質科学の分野において実験で観測されてきた準粒子を形成する相互作用はわずか3種類(電子-フォノン結合[3]、電子-マグノン結合[4]、電子-プラズモン結合[5])に限られていた。

本研究で我々は、レーザーARPESとレーザーラマン分光を組み合わせることで、少数キャリア半金属 CeSb の「悪魔の階段」と呼ばれる特異な磁気相転移現象において「多極子ポーラロン」という新しい準粒子が実現していることを解明した[6]。この準粒子状態は、局在 4f 電子による結晶場励起に由来したボゾンと伝導電子との電子ボゾン結合によって形成される。さらに、「悪魔の階段」における準粒子の温度変化を追跡する実験を行った結果、多極子ポーラロンが磁気配列の変調に合わせながら電子ボゾン結合の強さを自在に変化させていることを明らかにした。

実験結果：

CeSb の「悪魔の階段」[7, 8]では、Ce の局在 4f 結晶場による磁気モーメントが異常なまでに長周期の反強磁性構造を組み、その配列が温度・磁場・圧力といった外部パラメータによって逐次的に変化する(図 1)。この「悪魔の階段」では輸送特性の変化[9]や半金属的な電子バンド構造[10]の

劇的な再構成[11]が観測されるなど、磁気相転移に伴って伝導電子の振る舞いが大きく変化することが知られており、局在 4f 結晶場と伝導電子の間に強い相互作用が示唆されていた。

我々がこうした相互作用に注目し、多極子ポーラロンという新しい準粒子を解明するに至った大事な成果は、角度分解光電子分光(ARPES)によるキंक構造の観測である。キंक構造とは電子ボゾン結合に伴って伝導電子のバンド分散に現れる折れ曲がりのことであり、ボゾンとの相互作用を通して伝導電子の有効質量が大きくなったことに対応する。つまり、電子状態のキंक構造を観測することにより、電子が電子ボゾン結合によって準粒子を形成していることがわかる。本研究では、東大物性研で開発されたレーザーARPES装置を利用して CeSb の電子状態を詳細に調べることにより、このキंक構造を見出した。

図 2b-2e に最低温相(AF 相)で測定した CeSb の ARPES 結果を示す。図 2b, 2c は Γ 点付近(図 2a の黄平面)で測定したフェルミ面マッピングの結果と $k_y = 0$ の運動量カット(図 2a, 2b の白矢印)で測定した ARPES バンド分散である。フェルミ準位近傍のより詳細な電子状態を調べるため、図 2c の破線枠で示すエネルギー・運動量範囲を図 2d に拡大した。バンド分散が大きく折れ曲がっており、電子ボゾン結合に伴うキंक構造が現れていることが見て取れる。この ARPES 画像に対して各エネルギーにおける光電子強度分布のピーク位置を追跡したところ(図 2e)、キंक構

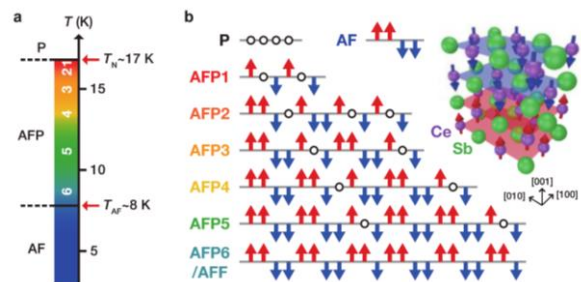


図 1：CeSb の「悪魔の階段」における磁気構造。
(a) 無磁場下における「悪魔の階段」の磁気相図。
(b) 各相における磁気構造の概略図。右上の挿入図は AF 相における磁気配列のイメージ。

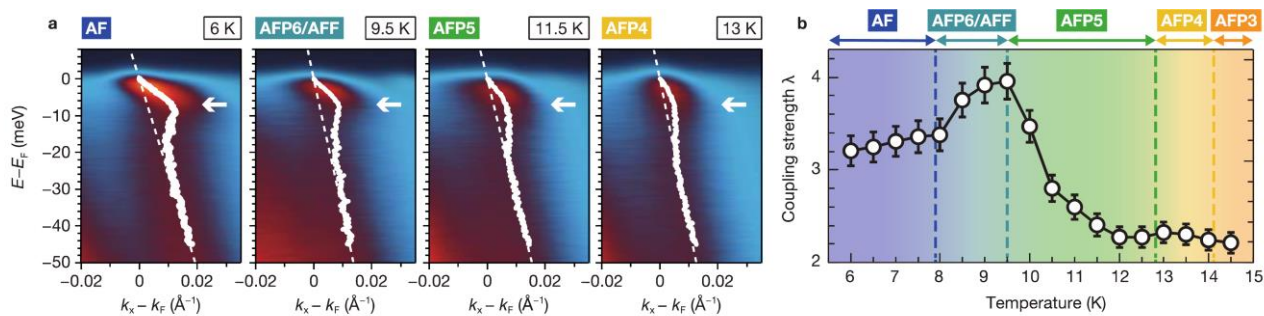


図 3: 「悪魔の階段」における多極子ポーラロン。(a) レーザーARPES で観測したキंक構造の温度依存性。(b) キंक構造の折れ曲がり具合から解析した電子ボゾン結合の強さの温度依存性。

ボゾンと相互作用しているかを表す。したがって、この結果から、多極子ポーラロンを形成する電子ボゾン結合の強さが「悪魔の階段」の中で温度と共に変化していることが明らかになった。

各温度でのキंक構造の折れ曲がり具合から定量的に解析した電子ボゾン結合の強さを、図3bに示す。電子ボゾン結合の強さは、AF相 \leftrightarrow AFP6/AFP相やAFP6/AFP相 \leftrightarrow AFP5相といった「悪魔の階段」の磁気相転移と共にステップ状態に変化していることがわかる。この結果から、CeSbの多極子ポーラロンは「悪魔の階段」で生じる各磁気配列周期の変調に敏感に反応しており、その中で伝導電子と $\Gamma_{80} \leftrightarrow \Gamma_8^*$ 結晶場励起によるボゾンとの電子ボゾン結合の強さを自在に変化させていることが明らかになった。

まとめと今後の展望：

本研究により、CeSbの「悪魔の階段」では、伝導電子と局在4f 結晶場励起が電子ボゾン結合することで「多極子ポーラロン」という新しい準粒子が形成されていることが解明された。さらに、この電子ボゾン結合は「悪魔の階段」の秩序配列に敏感に反応し、相互作用の強さを自在に変化させていることも明らかになった。この結果は、温度・圧力・磁場などの条件でCeSbの長周期磁気配列を制御することにより、電気輸送特性を劇的に変化させることが可能であることを示している。このような機構を今後さらに研究することで、スピトロニクスデバイスへ向けた磁性材料設計の新たな展開が期待される。

謝辞：

本研究は東京大学工学系研究科の有田亮太郎教授・野本拓也助教、大阪大学大学院理学系研究科の田島節子名誉教授・宮坂茂樹准教授、東京大学特別教授室の辛埴特別教授、東京大学物性研究所の鈴木博之高度学術専門職員・徳永将

史教授・木下雄斗特任助教、茨城大学フロンティア応用原子力科学研究センターの岩佐和晃教授、日本原子力開発機構先端基礎研究センターの芳賀芳範研究主幹らとの共同研究として行われました。この場をお借りして御礼申し上げます。

参考文献：

- [1] D. Reznik *et al.*, Nature **440**, 1170 (2006).
- [2] J. M. D. Teresa *et al.*, Nature **386**, 256 (1997).
- [3] T. Valla *et al.*, Phys. Rev. Lett. **83**, 2085 (1999).
- [4] J. Schaffer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 097205 (2004).
- [5] A. Bostwick *et al.*, Science **328**, 999 (2010).
- [6] Y. Arai *et al.*, Nature Mater. **21**, 410 (2022)
- [7] P. Bak, Phys. Today **39**, 38 (1986).
- [8] J. Rossat-Mignod *et al.*, J. Magn. Magn. Mater. **52**, 111 (1985).
- [9] L. Ye *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 081108 (2018).
- [10] K. Kuroda *et al.*, Phys. Rev. Lett., **120**, 086402 (2018).
- [11] K. Kuroda *et al.*, Nat. Commun. **11**, 2888 (2020).