

MERIT 海外長期派遣報告書

新領域創成科学研究科 物質系専攻 博士3年 MERIT 9期生

木村剛研究室 林田 健志

派遣先 : Laboratory for Multifunctional Ferroic Materials, D-MATL, ETHZurich

派遣期間 : 2022年10月31日 ~ 2023年4月1日

研究課題 : Observation of spin-driven ferroaxial order via second harmonic generation

概要

スイス連邦工科大学チューリッヒ校の Prof. Fiebig グループに滞在し、第二高調波発生(Second Harmonic Generation, 以下 SHG)を用いた電子スピンの由来するフェロアキシシャル秩序の観測実験を行った。

研究内容

フェロアキシシャル秩序は、結晶中の回転歪みによって特徴づけられる新たな強制的秩序であり、電気双極子の渦上配列に対応する電気トロイダル双極子と同じ対称性を有する。このフェロアキシシャル秩序はこれまで、結晶中のイオンが変位することによって生じる、構造的な秩序として研究が行われてきた。しかし、より一般的には、結晶中の鏡映対称性の破れによって定義されるものであり、必ずしもイオンの直接的な変位を必要としない。そこで本研究においては、結晶中の電子スピンの秩序することによってフェロアキシシャル秩序が発現することを期待し、その観測を試みた。

測定の対象とした物質は NdB_4 である。 NdB_4 は空間群 $P4/mbm$ に属する正方晶の構造を有し、転移温度 $T_0 = 17.2$ K 以下では、ノンコリニアな反強磁性秩序を示す。この反強磁性秩序相における磁気点群は $2'/m$ であり、常磁性相では保たれていた鏡映対称性が破れており、フェロアキシシャル秩序の発現が期待される。このとき、同時に空間反転対称性と時間反転対称性の破れに由来したフェロトロイダル秩序も発現する。今回の滞在では、これらの対称性の破れに由来した秩序状態を、SHG を用いることで観測を試みた。

まず、SHG 強度の温度依存性の測定を行ったところ、転移温度以下において有限な信号が観測され、信号強度が温度に対して秩序変数的に振る舞う様子が観測された。そこで転移温度以下において、SHG の空間分布測定を行った結果、特徴的な暗線のパターンが観測された。これは、ドメイン境界において、異符号の SHG テンソル成分が干渉することによって生じたものと推察される。ここで観測された隣り合うドメイン間において、SHG 強度のアジマス角依存性の測定を行ったが、フェロアキシシャル秩序において期待される、鏡映対称性の破れは観測されなかった。したがって観測されたドメイン構造は、フェロトロイダル秩序に対応するものと考えられる。フェロアキシシャル秩序が観測されなかった原因として、 NdB_4 における主たる秩序がフェロトロイダル秩序であり、フェロアキシシャル秩序由来の SHG がフェロトロイダル秩序由来の SHG によって覆いつくされた可能性が考えられる。一方で、フェロトロイダルドメイン構造が明瞭に可視化された。 NdB_4 は高い導電性を有する金属であり、そのような金属における反強磁性ドメイン、およびフェロトロイダルドメインは観測例が非常に限られている。現在、この反強磁性金属におけるフェロトロイダルドメインの可視化という観点から、今回得られた結果をまとめて論文として発表することを検討している。

キャンパスでの生活

今回滞在した Fiebig グループの研究室は、チューリッヒ中心部から少し離れた丘の上にある ETH Hönggerberg キャンパス内にあった。研究室が入っていた建物のすぐ裏には、広い芝生が広がっており、そこから雄大なスイスの景色が望めた（図 1）。

Fiebig グループは、博士課程の学生だけで 10 名近くが在籍する比較的大きなグループで、毎週の研究室内のセミナーは、学部や修士課程の学生も参加し、20 名以上で行われていた。研究内容も PLD 法による薄膜合成、非線形光学を用いたイメージング、テラヘルツ波を用いた時間分解測定など多岐にわたり、分野をまたいだ活発な議論が行われていた。

Fiebig 教授の部屋の扉は、午前中は執筆等に専念するというので閉じられていることが多かったが、午後になると解放され、快く実験の相談に乗っていただいた。また、グループの共有スペースには高性能な全自動エスプレッソマシンが設置されており、いつでも美味しいコーヒーを飲むことができた。コーヒーを飲みながら議論や雑談をする機会も多く、研究室での生活を豊かにするのに重要な役割を果たしていた。

今回の滞在は 5 ヶ月間と比較的長いものであったが、昨今の情勢を受け、最初の 2 ヶ月間は実験に不可欠な液体ヘリウムを使用することができなかった。滞在開始の 1 週間前に突然そのことを知らされ、不安の中渡航したことを思い出す。その中でも、当初予定しなかった時間分解測定に参加させていただいたり、必要な光学系を一から構築したりと有意義な時間を過ごすことができた。ようやく測定を開始できるようになり、液体ヘリウムをクライオスタットに入れようとしたにまさにその瞬間に、街全体が停電に陥るなど、トラブルに尽きない滞在ではあったが、自身にとって非線形光学測定を行う初めての機会に、時間をかけてそのイロハを習得できたことは収穫である。

現地での生活

冬季の滞在であったため、厳しい寒さに耐えながらの生活だった。チューリッヒの治安は非常によく、夜遅くでも身の危険を感じることなく外を歩くことができた。物価の高さは言わずもがなで、ほぼ毎日自炊して、昼食も前日の夜にたくさん作って弁当にして持参していた。滞在期間にクリスマスシーズンが含まれていたため、週末にクリスマスマーケットを訪れたり、研究室のクリスマスパーティーに参加したりと、ヨーロッパならではの体験もできた。本場のチーズフォンデュはワインの香りが強い。

謝辞

今回の滞在を快く受け入れ指導して下さった Manfred Fiebig 教授をはじめ、滞在中の研究生活の各面をサポートいただいた研究室のスタッフ、学生の皆様に御礼を申し上げます。また、今回の滞在の機会をくださった指導教員の木村剛教授、副指導教員の長谷川達生教授に深く感謝申し上げます。今回の滞在は日本学術振興会 若手研究者交流事業（スイス枠）に支援いただきました。合わせて深く感謝申し上げます。



図 1. ETH Hönggerberg キャンパス。右に見える建物に Prof. Fiebig の研究室が入っている。