

超高磁场中钒₆氧的分子轨道塌缩¹³

Y.Ishii¹, A.Ikeda², and Y.H.Matsuda¹

¹*Institute for Solid State Physics, University of Tokyo, Kashiwa, Chiba 277-8581, Japan*

²*Department of Engineering Science, University of Electro-Communications, Chofu, Tokyo, 182-8585, Japan*

V₆O₁₃ 表现出随着钒-钒 (V-V) 二聚体形成的金属-绝缘体转变 (MIT)。在本工作中, 沿晶体学 *b* 轴的 V₆O₁₃ 的磁致伸缩已在高达 186 特斯拉的超高磁场中, 并在几个温度下进行了测量。观察到在转变温度以下超过 110 特斯拉时, 存在大的负磁致伸缩, 其数值大至 $\Delta L/L \sim 10^{-3}$ 。基于实验结果和 V₆O₁₃ 的物理性质的讨论表明, 观察到的大负磁致伸缩对应于 V-V 二聚体分子轨道 (MO) 的坍塌。这是首次直接观测到由磁场引起的 V-V 二聚体 MO 坍塌而导致晶格变化的情况。此外, *B-T* 相图和磁致伸缩量表明, V-V 二聚体 MO 的坍塌可能伴随绝缘体到金属的转变。观察到了一个大于 50 特斯拉的大滞后现象, 这可能是由于电荷、自旋和晶格等自由度之间的非平衡交叉相关性引起的。与 VO₂ 的情况进行比较表明, 在绝缘相中剩余顺磁自旋的磁熵可能对 V₆O₁₃ 中的 MIT 起重要作用。

介绍

电子多聚体的形成是电子相变中最引人入胜的机制之一, 因为它诱发了剧烈的相变和奇异的电子状态 [1]。特别是, 金属-绝缘体转变 (MIT) 是伴随电子多聚体形成的相变的代表。

VO₂ 是表现出钒-钒 (V-V) 二聚体 [2] 的 MIT 材料的代表。人们认为 V-V 二聚体的形成是 MIT 的主要机制之一, 这一点仍在激烈讨论中。尖晶石材料 CuIr₂S₄ 和 MgTi₂O₄ 也因其具有电子多聚体的 MIT 而闻名。八聚体排序和螺旋畸变分别出现在 CuIr₂S₄ 和 MgTi₂O₄ 中, [3–5]。这些状态可以通过具有独特二聚结晶模式的轨道驱动 Peierls 态来解释 [5]。最近, 在 CsW₂O₆ 和 RuP [6, 7] 中发现了三聚分子轨道。这些是由晶体结构的特定几何条件以及参与电子多聚体形成的磁性离子上的电子数目所诱导的新电子态。

在电子多聚体中, 分子轨道 (MO) (成键态和反键态) 是由两个离子的电子轨道重叠形成的 (以二聚体 MO 为例)。成键态被电子占据, 导致总能量降低。这是基于 MO 理论对电子多聚体形成机制的解释, 该理论有助于描述局部电子状态。

外部场对 MO 的控制也非常重要, 因为它使我们能够探索材料的新功能并更深入地理解电子状态。特别是磁场控制很重要且有趣, 因为在低温下保持的材料中的磁场效果强调了相变的量子力学效应而非熵效应。此外, 磁场效应可以提取自旋和轨道自由度的重要性, 这对理解材料中的电子状态和相变机制非常有用。

特别地, 磁场导致 MO 坍塌的现象令人感兴趣, 因

为它类似于所谓的“化学灾难”现象 (见参考 [8])。这是指由于极强的磁场通过自旋塞曼效应破坏了化学键合, 这种现象被认为仅在接近中子星时宇宙空间中的极强磁场超过 10⁵ T 时才会发生。因此, 磁场对 MO 的影响不仅对于凝聚态物理学具有重要意义, 而且对于宇宙空间中的分子化学也同样重要。

研究固体中磁场对 MO 效应的影响的优势在于, 影响 MO 所需的磁场可以很小。此外, 在低温下显著的量子效应使得在强磁场中可能出现新相。迄今为止, 只有 VO₂ 中通过实验演示了磁场引起的 MO 崩溃 [8, 9]。这些工作揭示了 VO₂ 在测量高达 600 特斯拉的磁场依赖性光传输时表现出由场诱导的 MO 崩溃和绝缘体到金属的转变。这项工作证实了, 如果磁场足够强, 固体中的 MO 可以被磁场破坏。这可以解释为磁场对固体的非微扰效应。此外, 这一研究也是实验证据, 表明自旋自由度在 VO₂ [8, 9] 中 MIT 中起着重要作用。然而, 目前还没有直接证据证明固体中的场诱导 MO 崩溃。

我们报告了在 Wadsley 型氧化钒 V₆O₁₃ 中, 由磁场诱导的 V-V 二聚体 MO 坍塌的新实验演示。该材料显示出 MIT 现象, 并伴有结构相变, V-V 二聚体形成于 $T_{\text{MIT}} = 160$ K [10] 处。晶体结构由二维单层和双层格架组成, 具有单斜对称性, 如图 1 [11, 12] 所示。V 离子的平均价态为 4.33, 这对应于 V⁵⁺(3d⁰) 和 V⁴⁺(3d¹) 离子以 1:2 的比例存在的情况。V-V 二聚体由单层格架中的 V 离子形成, 这些 V 离子在 T_{MIT} (图 1(b)) 下变为非磁性自旋单态状态。因此, V₆O₁₃ 是一种有前景的材料, 用于探索场诱导的 MO 坍塌现象。在双格子层中, 在 T_{MIT} 以下的 V 离子上出现了顺磁性局域自

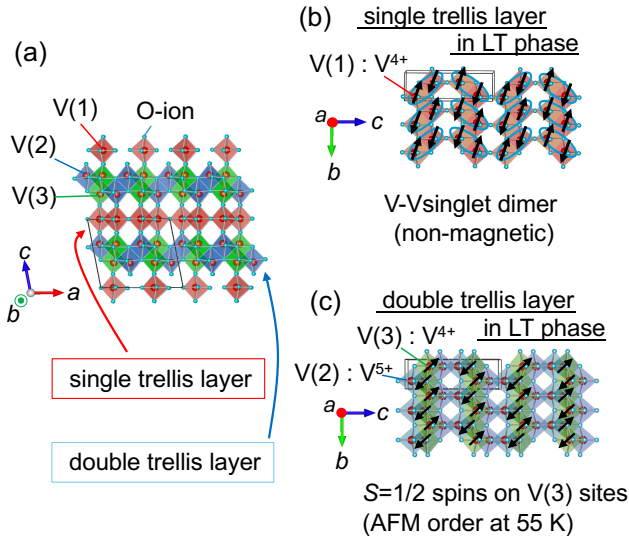


图 1. (彩色在线) (a) 沿 b 轴的 V_6O_{13} 晶体结构。(b), (c) 低温绝缘相中电子和磁性状态的示意图。

旋, 这些自旋在 $T_N=55K$ 时显示出反铁磁 (AFM) 有序 (图 1(c))。另一个有趣的点是与 VO_2 进行比较。局部自旋的存在是与 VO_2 的不同之处; 所有自旋在 VO_2 中形成 MO 并变得非磁性。事实上, V_6O_{13} 的电子状态类似于由 V 离子位点的替代或单轴应力 [13, 14] 引起的 VO_2 的 M2 相。M2 相在 VO_2 中的形成机制尚不明确 [15]。理解 V_6O_{13} 的电子状态将有助于揭示 VO_2 中 M2 相的机制。

在这封信中, 我们报告了通过磁致伸缩 ($\Delta L/L$) 测量, 在 V_6O_{13} 的 V-V 二聚体 MO 上对磁场效应进行研究直至 186T 的结果。我们成功检测到了应该对应于高于 110T 的磁场诱导 MO 坍塌的大变化, 低于 T_{MIT} , 这是首次直接观察到由磁场诱导的 MO 坍塌引起的晶格变化。此外, 我们将讨论 V_6O_{13} 中的 MO 与 MIT 之间的关系、大磁滞的起源以及 V_6O_{13} 和 VO_2 之间的相似性和差异。

实验

V_6O_{13} 的单晶通过化学气相输运方法合成, 该方法在参考文献 [16] 中报道 (更多信息总结在补充材料 [17] 中)。磁化率是在几个小单晶体上使用磁性性质测量系统 (量子设计, MPMS) 测量的, 在磁场平行于 b 轴的条件下进行。超高脉冲磁场高达 186 T 由日本东京大学固体物理研究所的水平型单匝线圈 (HSTC) 系统

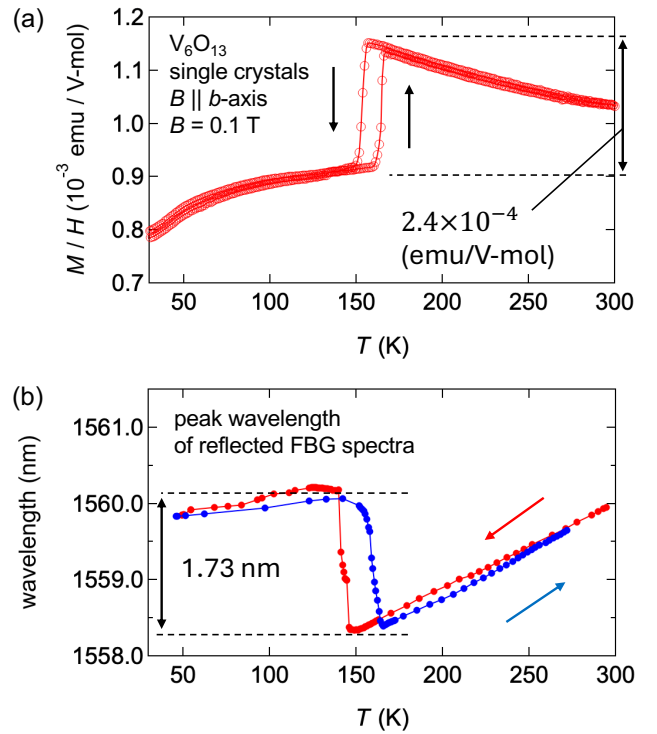


图 2. (彩色在线)(a) V_6O_{13} 单晶在 $B = 0.1$ T 下的磁化率随温度的变化。(b) 固定在沿 b 轴的 V_6O_{13} 单晶上的 FBG 反射光谱峰值波长随温度的变化。

产生 [18]。为了控制温度, 使用了由 (非金属) 纤维增强塑料制成的氦气流动低温恒温器, 以避免在 HSTC 产生的高扫场率磁场下生成感应电流。使用铬镍-康铜热电偶对样品温度进行监控。 $\Delta L/L$ 是通过利用光纤布拉格光栅 (FBG) 和光学滤波器方法的高速应变计测量的 [19]。将光纤的 FBG 部分用 STYCAST1266 固定在 V_6O_{13} 单晶的晶体学 b 轴上。磁场的方向也平行于晶体的 b 轴。

结果

V_6O_{13} 单晶的磁化率随温度的变化如图 2(a) 所示。在冷却和加热过程中, 分别在 153 K 和 165 K 处观察到了尖锐的 MIT (金属-绝缘体转变)。在低温区域, 磁化率开始下降大约在 55 K 左右, 这表明反铁磁有序的发生。这些行为与之前关于 V_6O_{13} [10, 20] 的研究结果一致。

反射光谱的峰值波长来自固定在 V_6O_{13} 晶体上沿 b 轴的 FBG, 如图 2(b) 所示。峰值波长在 T_{MIT} 附近突然增加。波长的变化为 1.73 纳米, 对应于

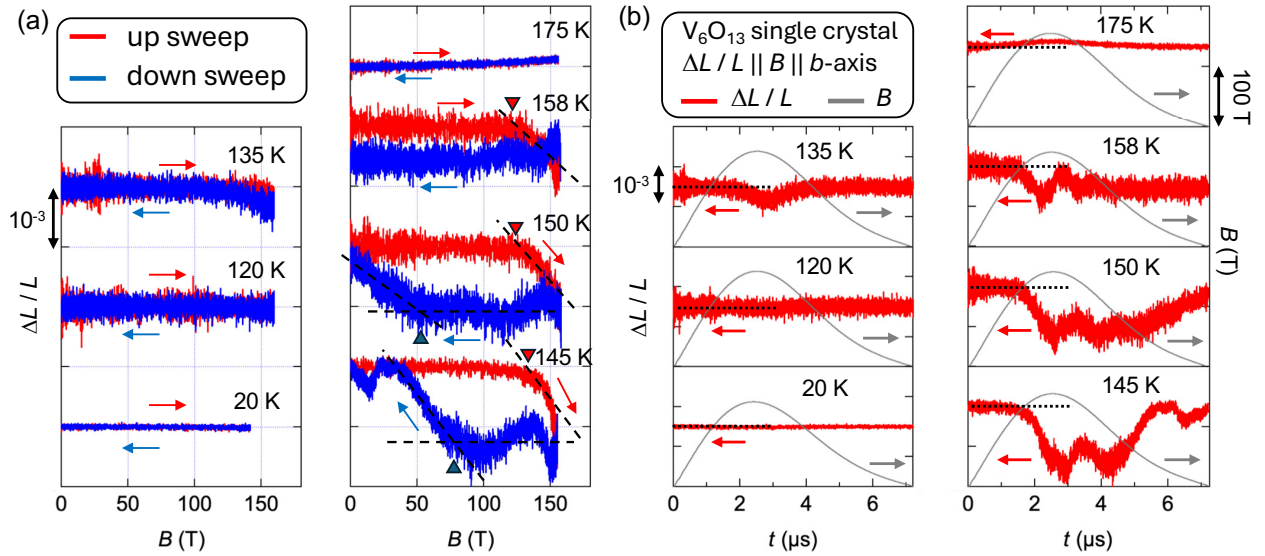


图 3. (彩色在线) (a) 在几个温度下磁致伸缩高达约 155 T。红色和蓝色曲线分别表示磁场上升和下降过程中的数据。(b) 几个温度下的磁致伸缩和磁场随时间的变化。红色和灰色曲线分别是磁致伸缩和磁场。

$\Delta L/L = \Delta\lambda/\lambda/0.76 = 1.4 \times 10^{-3}$ [19]。此 b 轴的伸长来自二聚体的形成。报道的晶格常数 b 分别为在室温 [12] 下的 3.6756 和在 120 K [11] 下的 3.707 Å。因此, $\Delta b/b$ 在 T_{MIT} 处应大于 8.3×10^{-3} 。在 FBG 反射光谱中观察到的 $\Delta L/L$ 小于预期的 $\Delta b/b$, 这是因为从样品到 FBG 的晶格传输率小于 100%。

图 3 显示了在高达约 155 T 的超高磁场下, 在几个温度下的磁致伸缩测量数据。作为磁场函数的磁致伸缩直到 155 T 的数据如图 3(a) 所示。在低温 20 和 120 K 时, 未观察到变化。在 135 K 时, 仅在磁场顶部附近出现一个小的负 $\Delta L/L$ 。 $\Delta L/L$ 在 145 K 和 150 K 处显示出场上升过程中的突然下降以及场下降过程中的增加。这些数据伴随着大的滞后现象, 表明一级相变的发生。滞后非常大, 对应于 ~ 50 T, 并且取决于温度。在 158 K 的数据中, 在磁场上升过程中出现了类似的行为, 然而在磁场下降过程中即使磁场所减小到零它仍然保持负值。158 K 的温度位于零场下 MIT 滞后之间, 因此, 一旦发生磁场诱导相变, 高场 (高温) 状态就可以淬火至零场。本文将变化开始处作为转变点, 在图 3(a) 中用红色和蓝色三角形表示。

$\Delta L/L$ 和磁场作为时间的函数显示在图 3(b) 中。使用了与图 3(a) 相同的数据。磁致伸缩数据显示出剧烈变化 (145、150 和 158 K 时的数据) 伴随有振荡。这种振荡是由晶格的机械振动引起的, 而不是内在的磁致伸缩效应, 这一点将在后文中讨论。

图 4(a) 和 (b) 分别展示了在 120 K 和 145 K 的更高磁场 (高达 186 T) 下的磁致伸缩现象, 以及与图 3(a) 中相同温度下的结果。120 K 时的数据从大约 165 T 开始减少, 然后逐渐持续减少至 186 T。作为时间函数的磁致伸缩在补充材料中有展示, 这使我们能够更清楚地看到变化 [17]。在 145 K 的数据中, 当磁场最大值增加时, 滞后现象变得更大。

B - T 相图由超高磁场实验数据构建的 V_6O_{13} 相图如图 5 所示。 VO_2 的相变点引用自 Ref. [9] 也显示在图 5 中。

讨论

晶格变化与二聚体中 V-V 距离的变化密切相关。 b 轴在低温下由于二聚体的形成而拉长。 V_6O_{13} 中的 V-V 二聚体与诱导 $\Delta M(\Delta\chi)$ 的自旋单态状态相关联, 位于 T_{MIT} 。在磁场下, ΔM (实际上 $\Delta M \cdot B$) 是场致现象的关键因素。在这种情况下, 预期 V-V 二聚体将受到强磁场的影响。我们的实验结果和上述讨论表明, 观察到的 $\Delta L/L$ 对应于 V-V 二聚体的崩溃。

磁致伸缩的绝对值 ($\sim 1.2 \times 10^{-3}$) 与在温度依赖性中观察到的膨胀一致 (1.4×10^{-3})。此外, B - T 相图中 V_6O_{13} 的相边界 (图 5) 是典型的两个状态在转变温度 [21] 附近的穹顶状边界。从这些事实, 我们可以预期系

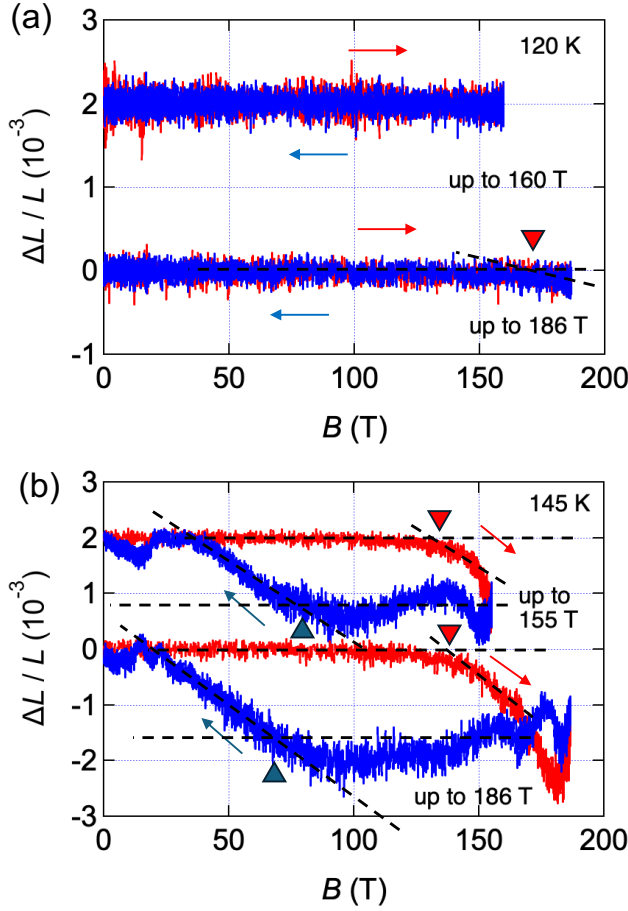


图 4. (彩色在线) 超导磁场下 120 K (a) 和 145 K (b) 的磁致伸缩 ($\Delta L/L$ || b 轴) 数据。红线和蓝线分别表示磁场升温 and 降温过程的数据。数据 (在 120 K 时达到 160 T, 在 145 K 时达到 155 T) 按 2×10^{-3} 偏移。

统会通过超高磁场返回到金属相。因此, 由超高磁场引起的 V-V 二聚体的崩塌可能与场诱导绝缘体到金属的转变同时发生。

这里, 我们对 V_6O_{13} 的 MIT 机制及其 V-V 二聚体性质进行了讨论。到目前为止, 从实验和理论两个方面已经研究了 V_6O_{13} 的电子性能 [22–27]。在 V_6O_{13} 中, 电荷重新分布、轨道排序和 V-V 二聚体形成与 MIT 同时发生。尽管提出了两种可能的机制场景 (带 Jahn-Teller 效应或轨道排序不稳定性) 来解释 V_6O_{13} [27] 中的 MIT, 但这种机制尚未完全理解。单层藤格子中的 V-V 二聚体自旋单态状态迄今为止仅被讨论为一种磁性现象, 如类似自旋 Peierls 的现象。实际上, V-V 二聚体在 V_6O_{13} 中的距离 ($2.984\text{\AA}$) 相对较长 (例如, VO_2 和 V_4O_7 分别为 $\sim 2.6\text{\AA}$ [28, 29] 和 $\sim 2.7\text{\AA}$ [13]), 这表明 V-V 二聚体在 V_6O_{13} 中的 MO 键合强度比其

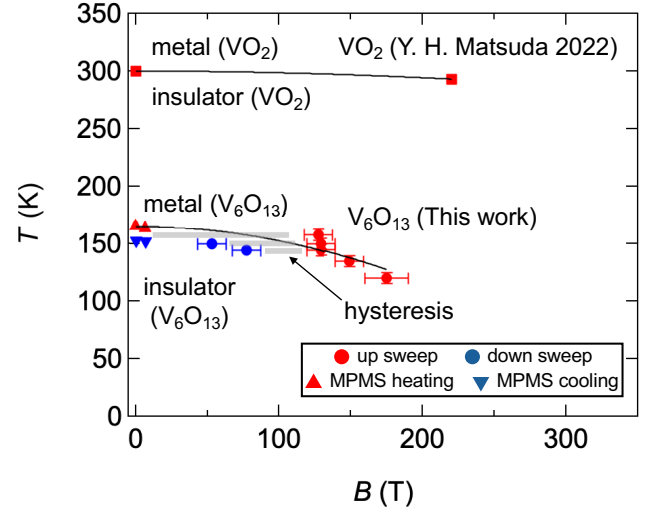


图 5. (彩色在线图) 本工作中构建的 V_6O_{13} 的 B - T 相图, 以及利用从参考文献 [9] 导入的数据构建的 VO_2 相图。黑线是使用二次多项式函数拟合的结果。

他钒氧化物弱。我们的工作揭示了磁场诱导的绝缘体到金属转变可能与 V-V 二聚体在超强磁场下的崩溃同时发生。这一事实表明, V-V 二聚体具有分子轨道特性, 并且即使在 V_6O_{13} 中也可能对 MIT 非常重要。

相变后的磁致伸缩中出现了振荡, 如图 3(b) 所示。该振荡的频率为 $f \sim 550\text{kHz}$ ([17])。实际上, 在超高磁场下测量的磁致伸缩数据中经常看到这种类型的振荡 [30–33]。这种振荡是样品在其机械共振频率下的弹性振动, 这是由于第一次相变过程中晶格的大而快的变化引起的, 如参考文献所述 [19, 32, 33]。使用当前实验中的实验参数 ($\sim 10^6\text{Hz}$) 进行的估算大致与实验结果一致, 并且该值类似于参考文献中报道的数值。[19, 32, 33] (计算过程在补充材料 [17] 中介绍。)

在外磁场诱导的 V_6O_{13} 相变伴随有较大的磁滞, 其大小超过 50 T。这种大磁滞可能来源于自旋、电荷、轨道和晶格等几种自由度之间的交叉耦合。高磁场扫场速率 ($\sim 10^7\text{T s}^{-1}$) 也是导致大磁滞的可能原因之一。实际上, 由超强磁场诱导的伴有结构变化的相变总是伴随着磁滞 [21, 30, 34, 35]。此外, 另一个有趣的点是, 随着最大磁场强度的增加, 磁滞的大小也增大。类似的行为在固态氧中的磁场诱导相变中也有观察到 [35]。他们声称这源于弛豫时间与脉冲超强磁场持续时间相当 [35]。因此, 在当前系统 V_6O_{13} 中, 相变的弛豫时间也足够长 [35]。

我们的结果表明, V_6O_{13} 中的 V-V 二聚体 MO 可

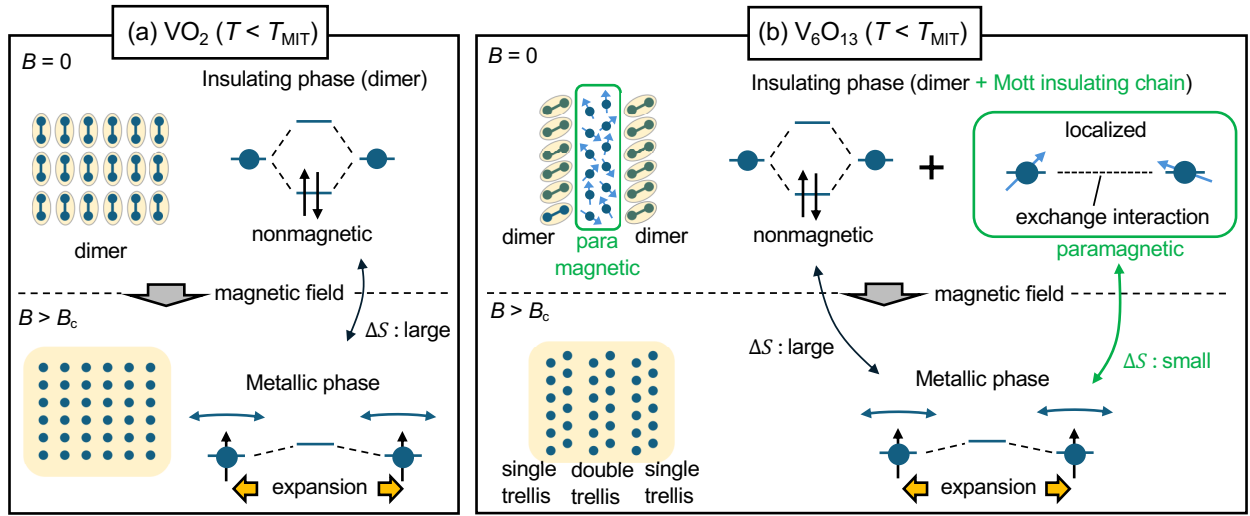


图 6. (彩色在线) 无磁场 (上图) 和磁场超过 B_c 时 (下图) VO_2 (a) 和 V_6O_{13} (b) 电子状态的简化示意图。

以在超过 110 T 的超高磁场中塌缩。对于 VO_2 ，在 $T = 293$ K 时，需要 220 T 才能使 V-V 二聚体 MO 塌缩，这仅比 T_{MIT} [9] 低 7 K。

最后，我们将基于热力学讨论差异。相边界可以按照克劳修斯-克拉佩龙方程描述为 $dT/dB = -\Delta M / \Delta S$ 。这里， ΔM 和 ΔS 分别是相变过程中磁化强度和熵的变化。通过积分，我们可以得到 $T(B) = T_c(B=0) - (\Delta M \cdot B) / (2\Delta S) = T_c(B=0) - (\Delta \chi \cdot B^2) / (2\Delta S)$ ，假设 $\Delta M = \Delta \chi \cdot B$ 。因此，重要项是 $(\Delta \chi) / (\Delta S)$ 。通过简单的二次多项式函数 ($T_c = T_c(B=0) - K \cdot B^2$) 拟合相界的结果如图 5 所示。这里， $K = 1.2 \times 10^{-3}$ 和 1.4×10^{-4} 分别对应 V_6O_{13} 和 VO_2 。 K 对于 V_6O_{13} 的值大约是 VO_2 的 10 倍。 $\Delta \chi$ 在 V_6O_{13} 的相变 ($2.4 \times 10^{-4} \text{ (emu V} \cdot \text{mol}^{-1})$) 比 VO_2 ($5.5 \times 10^{-4} \text{ (emu V} \cdot \text{mol}^{-1})$) 要小。这意味着 V_6O_{13} 的 ΔS 应该远小于 VO_2 的。此讨论基于 $\Delta \chi$ 在临界场之前不发生变化的假设。实际上，至少在 7 T [17] 以下时， $\Delta \chi$ 几乎没有变化。在 VO_2 中，所有的自旋形成单重态 V-V 二聚体分子轨道，另一方面，在 V_6O_{13} 中，即使低于 T_{MIT} ，一半的自旋仍然作为顺磁性自旋存在。图 6 显示了 V-V 二聚体中分子轨道在场诱导下的坍塌示意图，在 V_6O_{13} 和 VO_2 中。电子状态的差异可能是导致 ΔS 差异较大的原因之一。需要注意的是，仅磁熵不足以完全解释这一点。在场诱导相变过程中，电子熵和声子熵的变化对于定量讨论 B - T 相图是必要的。

结论

我们测量了 V_6O_{13} 在高达 186 特斯拉的超高磁场下的磁致伸缩。在 110 特斯拉以上时观察到了较大的负 $\Delta L/L$ ，且该现象发生在低于 T_{MIT} 的情况下。所观察到的 $\Delta L/L$ 可以解释为由超高磁场导致 V-V 二聚体分子轨道塌缩的结果，可能伴随绝缘体到金属的转变。这是首次直接观测到由于超高磁场引起的分子轨道塌缩而导致晶格变化的情况。这一新观察将帮助我们更深入地理解 V_6O_{13} 中金属绝缘体转变的微观机制。磁场诱导的相变伴随着很大的滞后效应，可能大于 50 T，这可能是由于几种自由度之间的交叉耦合所致。从与 VO_2 案例的比较以及基于克劳修斯-克拉佩龙方程的讨论，相变过程中熵变化 ΔS 的巨大差异应该是 V_6O_{13} 和 VO_2 之间 B - T 相图差异的来源。由于在邻近双回廊层中存活的顺磁自旋所导致的剩余磁熵应有助于 ΔS 的显著差异。本研究提供了一种新的实验演示，展示了非微扰磁场对固体的影响，并表明其在理解材料物理性质方面的实用性。

另一个重要的研究点是通过超高磁场在 V_6O_{13} 中直接观测到的绝缘体到金属态的转变。最近，已经开发出了在超过 100 T 的超高磁场下的射频 (RF) 反射型阻抗测量技术 [36, 37]。在未来不久，我们可以使用新的 RF 技术直接检查绝缘体到金属态的转变。此外，在较低温度区域利用电磁通量压缩系统进行高达 1200 T [38] 的更高磁场实验也非常重要且有趣。在低温区，

反铁磁 (AFM) 序也会出现, 因此, 可以预期由于多种有序参数共存而产生新的场致现象。

我们感谢 H. Oike、M. Gen、N. Matsuyama 的有益讨论, R. Ishii 在单晶制备方面的帮助, J. Yamaura 在 XRD 实验方面的帮助。本研究受到 JSPS KAKENHI 资助, 项目编号为 23H01117, JP23H04859, JP23H04860, JP23H04861, 24K17003 和 JP25H02118。

-
- [1] Z. Hiroi, *Progress in Solid State Chemistry* **43**, 47 (2015).
 - [2] F. J. Morin, *Phys. Rev. Lett.* **3**, 34 (1959).
 - [3] P. G. Radaelli, Y. Horibe, M. J. Gutmann, H. Ishibashi, C. H. Chen, R. M. Ibberson, Y. Koyama, Y.-S. Hor, V. Kiryukhin, and S.-W. Cheong, *Nature* **416**, 155 (2002).
 - [4] M. Schmidt, W. Ratcliff, P. G. Radaelli, K. Refson, N. M. Harrison, and S. W. Cheong, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 056402 (2004).
 - [5] D. I. Khomskii and T. Mizokawa, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 156402 (2005).
 - [6] Y. Okamoto, H. Amano, N. Katayama, H. Sawa, K. Niki, R. Mitoka, H. Harima, T. Hasegawa, N. Ogita, Y. Tanaka, M. Takigawa, Y. Yokoyama, K. Takehara, Y. Imanaka, Y. Nakamura, H. Kishida, and K. Takenaka, *Nat. Commun.* **11**, 3144 (2020).
 - [7] D. Hirai, K. Kojima, N. Katayama, M. Kawamura, D. Nishio-Hamane, and Z. Hiroi, *J. Am. Chem. Soc.* **144**, 17857 (2022).
 - [8] Y. H. Matsuda, D. Nakamura, A. Ikeda, S. Takeyama, Y. Suga, H. Nakahara, and Y. Muraoka, *Nat. Commun.* **11**, 3591 (2020).
 - [9] Y. H. Matsuda, Y. Muraoka, D. Nakamura, A. Ikeda, Y. Ishii, X.-G. Zhou, H. Sawabe, and S. Takeyama, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 101008 (2022).
 - [10] K. Kawashima, Y. Ueda, K. Kosuge, and S. Kachi, *Journal of Crystal Growth* **26**, 321 (1974).
 - [11] P. Dernier, *Materials Research Bulletin* **9**, 955 (1974).
 - [12] B. V. Hakala, D. K. Manousou, K. Glazyrin, W. A. Crichton, K. Friese, and A. Grzechnik, *Journal of Alloys and Compounds* **911**, 164966 (2022).
 - [13] M. Marezio, D. B. McWhan, P. D. Dernier, and J. P. Remeika, *Phys. Rev. Lett.* **28**, 1390 (1972).
 - [14] J. P. Pouget, H. Launois, J. P. D'Haenens, P. Merenda, and T. M. Rice, *Phys. Rev. Lett.* **35**, 873 (1975).
 - [15] J. Yanda, Y. Zhang, M. Gao, Z. Yuan, Y. Xia, C. Jin, B. Tao, C. Chen, Q. Jia, and Y. Lin, *Scientific Reports* **4**, 4854 (2014).
 - [16] K. Nagasawa, Y. Bando, and T. Takada, *J. Appl. Phys.*, **8**: 1262(1969) **8**, 1262 (1969).
 - [17] See Supplemental Material at ... for details on sample preparation and characterization.
 - [18] N. Miura, T. Osada, and S. Takeyama, *J. Low Temp. Phys.* **133**, 139 (2003).
 - [19] A. Ikeda, T. Nomura, Y. H. Matsuda, S. Tani, Y. Kobayashi, H. Watanabe, and K. Sato, *Rev. Sci. Instrum.* **88**, 083906 (2017).
 - [20] Y. Ueda, K. Kosuge, and S. Kachi, *Mater. Res. Bull.* **11**, 293 (1976).
 - [21] Y. Ishii, A. Ikeda, M. Tokunaga, K. Kindo, A. Matsuo, and Y. H. Matsuda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **92**, 074702 (2023).
 - [22] S. Shin, S. Suga, M. Taniguchi, M. Fujisawa, H. Kanzaki, A. Fujimori, H. Daimon, Y. Ueda, K. Kosuge, and S. Kachi, *Phys. Rev. B* **41**, 4993 (1990).
 - [23] S. Suga, A. Sekiyama, M. Obara, J. Yamaguchi, M. Kimura, H. Fujiwara, A. Irizawa, K. Yoshimura, M. Yabashi, K. Tamasaku, A. Higashiya, and T. Ishikawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **79**, 044713 (2010).
 - [24] R. Eguchi, T. Yokoya, T. Kiss, Y. Ueda, and S. Shin, *Phys. Rev. B* **65**, 205124 (2002).
 - [25] S. Suga, A. Shigemoto, A. Sekiyama, S. Imada, A. Yamasaki, A. Irizawa, S. Kasai, Y. Saitoh, T. Muro, N. Tomita, K. Nasu, H. Eisaki, and Y. Ueda, *Phys. Rev. B* **70**, 155106 (2004).
 - [26] T. Schmitt, L.-C. Duda, M. Matsubara, M. Mattesini, M. Klemm, A. Augustsson, J.-H. Guo, T. Uozumi, S. Horn, R. Ahuja, A. Kotani, and J. Nordgren, *Phys. Rev. B* **69**, 125103 (2004).
 - [27] T. Toriyama, T. Nakayama, T. Konishi, and Y. Ohta, *Phys. Rev. B* **90**, 085131 (2014).
 - [28] T. Kawakubo, *Journal of the Physical Society of Japan* **20**, 516 (1965), <https://doi.org/10.1143/JPSJ.20.516>.
 - [29] S. Minomura and H. Nagasaki, *Journal of the Physical Society of Japan* **19**, 131 (1964), <https://doi.org/10.1143/JPSJ.19.131>.
 - [30] A. Ikeda, Y. H. Matsuda, and K. Sato, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 177202 (2020).
 - [31] A. Ikeda, Y. H. Matsuda, K. Sato, Y. Ishii, H. Sawabe, D. Nakamura, S. Takeyama, and J. Nasu, *Nat. Commun.* **14**, 1744 (2023).
 - [32] R. Schönmeyer, G. Rodriguez, D. Rickel, F. Balakirev, R. D. McDonald, J. A. Evans, B. Maier, C. Paillard,

- L. Bellaiche, A. V. Stier, M. B. Salamon, K. Gofryk, and M. Jaime, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **118**, e2110555118 (2021).
- [33] M. Gen, A. Ikeda, K. Aoyama, H. O. Jeschke, Y. Ishii, H. Ishikawa, T. Yajima, Y. Okamoto, X. Zhou, D. Nakamura, S. Takeyama, K. Kindo, Y. H. Matsuda, and Y. Kohama, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **120**, e2302756120 (2023).
- [34] S. Takeyama, R. Sakakura, Y. H. Matsuda, A. Miyata, and M. Tokunaga, *J. Phys. Soc. Jpn.* **81**, 014702 (2012).
- [35] T. Nomura, Y. H. Matsuda, S. Takeyama, A. Matsuo, K. Kindo, J. L. Her, and T. C. Kobayashi, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 247201 (2014).
- [36] S. Peng, X.-G. Zhou, Y. H. Matsuda, Q. Chen, M. Tokunaga, Y. Ishii, S. Awaji, T. Arita, and Y. Yoshida, *arxiv:2401.00389* (2023).
- [37] T. Shitaokoshi, S. Kawachi, T. Nomura, F. F. Balakirev, and Y. Kohama, *Rev. Sci. Instrum.* **94**, 094706 (2023).
- [38] D. Nakamura, A. Ikeda, H. Sawabe, Y. H. Matsuda, and S. Takeyama, *Rev. Sci. Instrum.* **89**, 095106 (2018).