

NEWS LETTER

J-Physics

Physics of Conductive Multipole Systems

#08

September



巻頭言

時代の節目 播磨 尚朝 02

研究解説

PrTi₂Al₂₀が示す磁場による
強四極子秩序変数のスイッチング 谷口 貴紀 04

四極子自由度のおりなす物理とその磁場効果 服部 一匡 10

磁場による超伝導対形成引力の制御：
強磁性超伝導体のNMR研究 徳永 陽 16

ウラン系超伝導体の対称性と磁気応答
-UBe₁₃とU_{1-x}Th_xBe₁₃の超伝導をめぐって- 清水 悠晴 23

カイラル磁性：実験の立場から 大原 繁男 30

カイラル磁性体の物理：理論の立場から 岸根 順一郎 39

特集 EuPtSi

琉球から広がる研究の輪
-キラル反強磁性体EuPtSiのスキルミオン相- 垣花 将司 46

カイラル反強磁性体EuPtSiの共鳴X線散乱 田端 千紘 48

単結晶中性子回折で探るEuPtSiの
磁気スキルミオン格子 金子 耕士 50

NMRによるEuPtSiの磁気揺らぎの研究 比嘉 野乃花 53

カイラル磁性体EuPtSiの一次転移と
磁気揺らぎの¹⁵¹Euメスバウアー分光による観測 本間 佳哉 56

今号の研究成果

金属絶縁体転移から超伝導へ移り変わる
Ru_{1-x}Rh_xAsの微視的電子状態 桑田 祥希 59

局所的に空間反転対称性の破れた結晶における
奇パリティ多極子揺らぎと超伝導 石塚 淳 61

高結晶性2次元超伝導体における量子相転移 野島 勉 64

パルス磁場下の超音波測定で浮き彫りにする
URu₂Si₂の格子不安定性の対称性 柳澤 達也 67

反強磁性金属EuMnBi₂における
磁気圧電効果の観測 塩見 雄毅 69

共鳴X線散乱による電子軌道選択的な
軌道混成状態の観測 中尾 裕則 71

正負両極性の巨大磁気抵抗効果を示す
遍歴反強磁性体BaMn₂Pn₂'s (Pn = As, Sb, Bi) 谷垣 勝己 73

BiCh₂系層状超伝導体LaO_{0.5}F_{0.5}BiSSeに
おける磁気抵抗の特異な面内異方性 星 和久 75

研究会報告

49èmes Journées des Actinides
(JdA-2019)会議参加記 田端 千紘 77

J-Physics地域研究会 - 北九州 研究会参加報告 本山 岳 80

J-Physics地域研究会 - 仙台 研究会報告 鈴木 通人 82

研究会報告 J-Physics地域研究会 - 本郷 大槻 匠 84

J-Physics地域研究会 - 大阪 研究会報告 植木 輝 86

会議報告：J-Physics地域研究会 札幌 速水 賢 88

CONTENTS

滞在記

The Kobe Experience Khusboo Rana 90

若手紹介

日本物理学会学生優秀発表賞(領域8)を受賞して
「高対称線における
トポロジカル結晶超伝導ノードの分類」 角田 峻太郎 92

日本物理学会学生優秀発表賞を受賞して
「Pr希薄系Y(Pr)Ir₂Zn₂₀の
極低温磁化と非フェルミ液体的挙動」 山根 悠 93

退官された方よりメッセージ

平成の30年を振り返って 小堀 洋 94

一研究者の言葉

寝ても覚めても 青木 大 96

事務局からのお知らせ

2019年9月からの領域関連行事 98

編集後記 99



時代の節目

領域代表 **播磨 尚朝**

神戸大学大学院理学研究科 教授

私たちの新学術領域が最終年度を迎えた時に新しい元号が決まり、令和の時代となりました。元号についてはいろいろな意見があるかと思いますが、平成と呼ばれる30年の期間を振り返る良い機会にはなったように思います。

実は、私が最初に辞令をいただいたのは昭和が終わる三ヶ月前でしたので、ほぼ平成の30年を大学教員として過ごしたことになります。巷ではあまり話題になりませんでした。平成の中間地点である平成16年(2004年)4月に国立大学が法人化されましたので、平成の30年間は国立大学が大きく変貌を遂げた30年であったようにも思います。

平成の初日は1月8日の日曜日でした。翌日から箱根の強羅青雲荘での理論研究会に参加するために、この日の朝は何人かが新宿駅に集まっていました。時代の節目ということもあり駅の売店で朝刊を買い集めたところ、本編は「平成元年1月8日」となっているのに、日曜版は「昭和64年1月8日」となっており、日曜版は間に合わなかったみたいだね、と話していたことを思い出します。小田急線新宿駅から電車に乗り、小田原で箱根登山電車に乗継いで箱根強羅に辿り着きました。

平成最初の研究会を行った箱根の強羅青雲荘は共済組合の施設であり、特にY先生のお気に入りではなかったか、と思います。東大の定年を物性研所長で迎えられ、東京理科大に移られたY先生は温泉地での研究会でないと参加しないという噂で(真偽は定かではない)、私も作並温泉や那須塩原温泉での研究会の末席を汚す機会に恵まれました。共済組合の施設だったからか、強羅青雲荘での開催は特に多かったように思います。私ごときも3、4回は参加させていただきました。

当時は、物性理論の研究会が年に一度は温泉地で開催されていたように思います。私は幸いにして、修士1年の時から研究会に参加させていただく機会に恵まれました。最初の作並の研究会では、阪大応物のO先生の気合いに圧倒され、また修士卒で助手一年目の(同年代の)K先生が異次元の存在に見えたものです。那須塩原温泉での研究会では、夜にY先生の部屋に大勢が集まり、K先生がその頃に出版されたご自身の著書(「金属電子論-磁性合金を中心として-」)の紹介をされていたことは印象的です。新幹線的那須塩原駅から宿に向かうバスではこのK先生に加えて、名古屋大のK先生やM先生も山歩きの格好をされていて、研究会後は山歩きを楽しんで帰られたと聞いています。

強羅青雲荘での思い出はさらにたくさんあります。初めてスピン軌道結合を考慮したバンド計算の結果を発表したときは、阪大基礎工のM先生が頷きながら自分の話を聞いてくださっていることを大変うれしく思ったものです。その後、北大に移られたO先生には、よく話しかけていただきました。理研と東大を兼務している(こちらも同年代の)N先生の話を最初に聞いたのも、強羅青雲荘でした。その強羅青雲荘は、この9月1日で閉館となったようです。昭和29年に開設して60年以上の営業ということなので、私たちが研究会を行っていたのは、その真ん中の、あるいは最盛期の頃だったのかもしれない。

平成元年(1989年)はもう一つ大きな行事がありました。9月11日から15日の間に米国のSanta Feで開催されたThe International Conference on the Physics of Highly Correlated Electron Systems (ICPHCES)[1]です。丁度、銅酸化物高温超伝導体が発見されて、いわゆる強相関電子系としての研究が盛んになった頃です。この会議には日本から大勢が参加するようにとの動員がかかっていましたが、それは1992年に同様の会議を仙台に誘致するためでした。ご存知の様に、1992年9月に仙台でThe International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES)が開催されて、この後SCESという名前の会議が30年近く続くことになります。

9月の岡山で開催されたSCESは800名を超える参加者でしたが、1989年の会議は200名程度ではなかったかと思います。そもそも、当時は海外出張に科研費を使うことは許されておらず、海外の国際会議に参加することは(経費の面でも)大変なことでした。国際会議に出席するには、それを目的とした資金を獲得するか、企業などによる寄付金を受けるか、家族に内緒で自腹を切るか、という様な時代です。学生については、国内出張でさえも科研費は使えない時代ですから、学生が国際会議で発表することなど、学生が自費で参加する以外は考えられませんでした。実は、Santa Feでの国際会議が私の初めての海外渡航で、大変にありがたいことに、この時は研究室の教授に費用を工面していただきました。海外での国際会議参加や学生の旅費として科研費が使えるようになったのは、1990年代の半ば以降だったと思います。それと並行してインターネットが急速に普及することで、海外との距離は大いに縮んだと言えます。

こうして30年前を振り返りますと、国内での研究会が重要な役割を果たしていた時代から国際会議が中心の時代へ大きく変わり始めたのが、30年位前だった様にも思えます。個々の研究が、身近な国内の研究グループで揉まれ熟成されて世界に発信された時代とは違い、すぐに世界に発信されて評価される時代へと変わってきたとも言えるでしょうか。研究がグローバル化しているという点では大変に結構だと思いますが、一方で個性がなくなってきたようにも思います。あるいは、研究の評価について、多様な視点が欠けてきているとも言えるでしょうか。

新学術領域研究の活動は、個性的な—日本独自の—研究を成熟させていくことにもあると思います。皆さんの活発な研究活動によって、日本ならではの視点や手法による研究が大きな成果を出してきています。そのことに留意しつつ、この新学術領域のまとめを行っていかれたらと思っています。最終報告まであと一年あまりありますが、どうぞよろしくお願いいたします。

[1] PREFACE of the Proceedings, Physica B **163**, 1 (1990).



PrTi₂Al₂₀が示す磁場による 強四極子秩序変数のスイッチング

谷口 貴紀

東北大学金属材料研究所 助教

服部 一匡 首都大学東京 准教授	中村 翔太 名古屋工業大学 助教	榊原 俊郎 東京大学物性研究所 教授	酒井 明人 東京大学物性研究所 助教	中辻 知 東京大学物性研究所 教授	瀧川 仁 東京大学物性研究所 教授
-------------------------------	-------------------------------	---------------------------------	---------------------------------	--------------------------------	--------------------------------

本稿では、PrTi₂Al₂₀の強四極子秩序が示す磁場中相転移について、磁化と核磁気共鳴 (NMR) の実験結果を説明します。磁場に依存した四極子間相互作用やLandau理論に関しては本号の服部氏の記事をご参照ください。

強いスピン-軌道相互作用に起因する数多くの量子現象は、最近の物性研究の中心課題の一つです。特に、*f*電子系化合物において、強いスピン-軌道相互作用と対称性の高い結晶場のもとで基底状態に縮退が残り、多極子の自由度が生じる場合があります。実際に、多くの*f*電子系化合物で、電気四極子秩序や磁気八極子秩序などの高次の多極子による相転移が観測されています[1,2]。しかしながら、磁気秩序と違って、微視的に高次の多極子を検出するのは困難です。最近になって、共鳴X線、中性子散乱、そしてNMRで観測例が出てきており、今後の発展が期待されます。

CeやYb系では*f*電子の数が奇数個である(Kramers系)ため、基底状態は磁気双極子の自由度をもちます。磁気双極子の影響で系のハミルトニアンが複雑になり、詳細な多極子の研究を行うことが困難になります。一方で、PrやU系の*f*電子の数は偶数個である(非Kramers系)ため、非磁性でかつ多極子の自由度をもった結晶場基底状態が実現する可能性があります。2010年代に、非クラマース系PrT₂X₂₀ (T: 遷移金属、X: Al, Zn, Cd)において、非磁性で四極子秩序を示す物質群が見出されました[2]。このうちPrTi₂Al₂₀は強四極子秩序を示す唯一の物質であるため、最もシンプルに四極子間相互作用を研究できると考え、強四極子秩序に対する磁場効果を調べました。

本研究で着目したPrTi₂Al₂₀は、立方晶CeCr₂Al₂₀構造をもち、Prサイトはダイヤモンド構造の立方晶T_d群をとり、Alは結晶学的に異なる3つのサイトをとります[2]。Prは4*f*²配位をとるので、Hund則により*f*電子の全角運動量はJ = 4です。立方晶の結晶場効果により、J = 4の基底J多重項はΓ₁一重項、Γ₃二重項、Γ₄三重項、Γ₅三重項に分裂します。PrTi₂Al₂₀の結晶場基底状態はΓ₃二重項で、磁気双極子の期待値はゼロである一方、二つの電気四極子(Q_z = (3J_z² - J²)/8, Q_x = √3(J_x² - J_y²)/8)と一つの磁気八極子(T_{xyz} = √15/6 × J_xJ_yJ_z)の自由度をもちます[3]。ここで、上付きのバーは巡回和を表します。二つの電気四極子の演算子と熱平均値(秩序変数)はそれぞれ2次元表記で記述すると便利です。本稿では以下のように記述します。

$$\mathbf{Q} = (Q_z, Q_x) \quad (1)$$

$$(\langle Q_z \rangle, \langle Q_x \rangle) = (\cos \theta, \sin \theta) \quad (2)$$

PrTi₂Al₂₀では、*c-f*混成が重要であると考えられています。電気抵抗率では100 K以上の広い温度範囲で磁気的
近藤効果による $-\ln T$ 依存性が観測され[4]、光電子分光測定による近藤ピークの検出[5]、1 K以下での巨大なSeebeck係数[6,7]、de Hass-van Alphen効果による大きな有効質量の同定[8]、NMRによって観測された古典双極子では説明できない超微細結合定数などの報告があります[9,10]。また、比熱は約2 Kでピークを示します[4]。

μ SR測定で内部磁場は検出されていないので、非磁性転移であることが示唆されます[11]。さらに、超音波測定では、弾性定数が2 K付近に向かって急激なソフト化を示すので、強四極子転移であることが提案されました[12]。中性子散乱とNMRのマイクロ測定により、4 T以上の高磁場で Q_z タイプの強四極子秩序状態であることが明らかになりました[13,14]。

【相図】

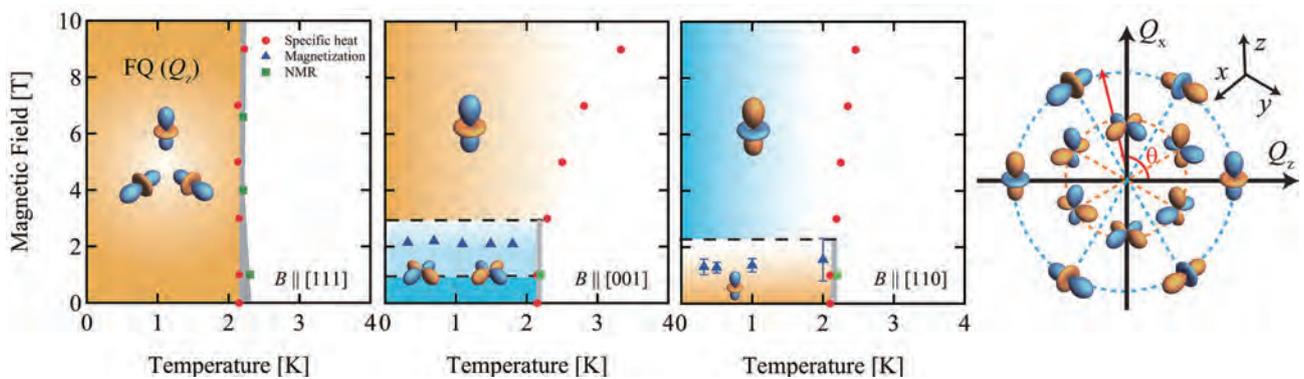


図1. PrTi₂Al₂₀における強四極子秩序状態の温度-磁場相図[15]。磁場の印可方向はそれぞれ[111], [001], [110]方向である。右図に示すように、 θ は秩序変数である四極子を表す二次元空間の特徴的な角度に対応している。

図1は、PrTi₂Al₂₀の実験で決定した温度-磁場相図です[15]。磁場を[111]方向に印加した場合、3種類のドメインを持つ Q_z タイプの強四極子(FQ)転移が起こります。一方で、磁場を[001]及び[110]方向に印加すると、一次の磁場誘起相転移が起きます。相境界をはさんだ低磁場側と高磁場側の相はどちらも強四極子秩序ですが、 Q_z と Q_x の二次元空間において秩序変数に飛びが生じます。この振る舞いは、磁場に依存した強四極子相互作用とZeeman相互作用の競合として理解でき、低磁場では前者の影響が大きく、高磁場では後者が支配的であると考えられます。実際、NMRにより測定されるKnight shiftと磁化率の比例係数である超微細結合定数は、低磁場側で大きく変化し、 $c-f$ 混成の強さが転移に伴って変化することを示唆します。私たちは、この強四極子秩序の秩序変数の磁場変化の背後には“フィードバック効果”があると考えています。すなわち、(1) 強四極子秩序状態が $c-f$ 混成を変化させる、(2) $c-f$ 混成が強四極子相互作用を変化させる、(3) 強四極子相互作用が強四極子秩序状態を変化させる・・・という繰り返しによって、低磁場では四極子相互作用が強くなるというシナリオです。

実験結果

本稿では、特に[001]方向の磁場中での測定結果について述べます。磁場 $B || [111]$ での結果については、以前のニュースレターに紹介記事がありますので、そちらをご参照ください[16]。

図2(a)は、磁場を[001]方向に印可したときの比熱の温度依存性です[4]。 $B=0, 1$ Tで比熱はシャープなピークを示し、このピークは3 T以上で磁場の増大に伴ってブロードになります。このクロスオーバーの振る舞いは、図2(b)に

示す4 Tの磁化率の温度変化にも現れます。4 Tでの磁化率は、4 K近傍から降温とともにブロードな上昇を示します。一方で、図2(c)のように、1 Tの磁化率はほとんど上昇しません。さらに、図2(d)の磁化率の磁場依存性では、2 T近傍でピークが観測され、磁場誘起相転移を示唆します。後述するNMRの測定結果のところで議論しますが、磁場誘起相転移によって強四極子秩序相の秩序変数が切り替わっていると考えられます。

ここで秩序変数について考察するために、以下の立方晶 T_d 群の結晶場ハミルトニアン \mathcal{H}_{CEF} 、Zeeman相互作用 \mathcal{H}_Z 、分子場近似モデルにおける双極子間相互作用 \mathcal{H}_D と四極子間相互作用 \mathcal{H}_Q の和をとって、磁化率の温度依存性を評価しました。

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{CEF} + \mathcal{H}_C + \mathcal{H}_E + \mathcal{H}_F \quad (3)$$

それぞれのハミルトニアンは以下のように記述できます。

$$\mathcal{H}_{CEF} = \epsilon_2 |\mathbf{Q}|^2 - \epsilon_3 [\mathbf{Q}_D^3 - 3\mathbf{Q}_Z\mathbf{Q}_x^2] \quad (4)$$

$$\mathcal{H}_Z = -g_J \mu_B \mathbf{J} \cdot \mathbf{B}_{ext} \quad (5)$$

$$\mathcal{H}_D = -\lambda_d \langle \mathbf{J} \rangle \cdot \mathbf{J} \quad (6)$$

$$\mathcal{H}_Q = -\lambda \langle Q_Z \rangle Q_Z - \lambda \langle Q_x \rangle Q_x \quad (7)$$

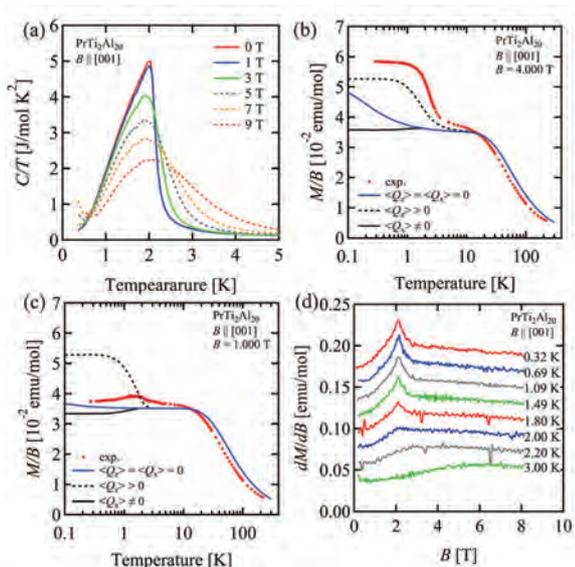


図2. PrTi₂Al₂₀の(a)比熱[4], (b), (c) 4 Tと1 Tの磁場中の磁化率の温度依存性と(d)磁化率の磁場依存性[15]。

ここで、各パラメータの定義は文献[15]に記してあります。図2(b), (c)の青色の実線は、四極子相互作用を無視した場合です。灰色の実線と点線は、それぞれ Q_x と Q_z タイプの強四極子秩序を仮定した場合の磁化率の計算結果です。 Q_z タイプでは磁化率が増大しますが、 Q_x ではほぼ一定となります。また、四極子相互作用を無視した場合(青線)は、磁化率が増大し始める温度が Q_z タイプ(灰色の点線)より低くなります。ここで実験結果と比較すると、 $B=4$ Tのデータは Q_z タイプでよく再現できます。一方で、1 Tのデータは、 Q_x タイプ(灰色の実線)の強四極子秩序とした計算に近い振る舞いを示します。

- [1] P. Santini, *et al.*, *Rev. of Mod. Phys.* **81**, 807 (2009).
 [2] T. Onimaru and H. Kusunose, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 082002 (2016).
 [3] K. Hattori and H. Tsunetsugu, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 034709 (2014).
 [4] A. Sakai and S. Nakatsuji, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 063701 (2013).

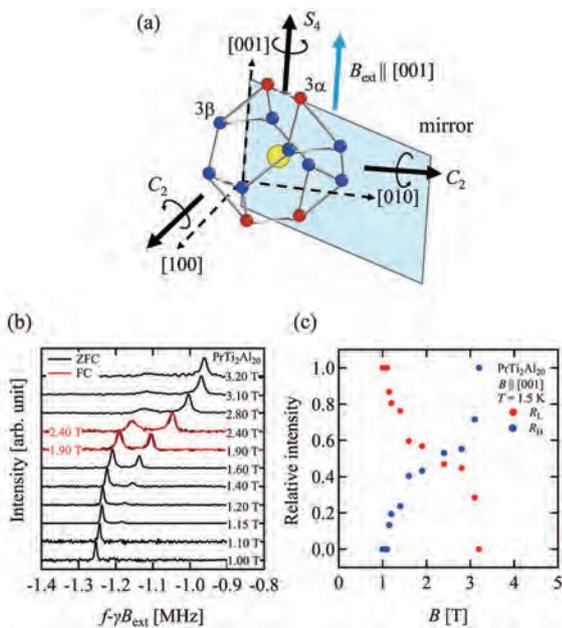


図3. (a) Prサイト周りの12個のAl(3)サイト。磁場を[001]方向に印可すると 3α と 3β の2つのサイトに分裂する。1.5 Kにおける (b) NMRスペクトルと(c) 強度の磁場依存性 [15]。

site	Q_z		Q_x		T_{XYZ}	
	F	AF	F	AF	F	AF
3α	1	2	1	1	2	2
3β	1	2	2	2	2	2

表1. Al(3)の 3α と 3β サイトにおけるNMRスペクトルの分裂数。秩序変数が電気四極子と磁気八極子の場合。

鏡面对称性が破れます(図4(b))。さらに、 S_4 対称性が低下して C_2 となり、[100]と[010]方向の C_2 対称性も存在します。従って、 3α サイトは分裂せずに1サイトのままで、 3β サイトは(C, D, H, K)と(E, F, I, L)の2つのサイトに分裂します。位相が反転した反強的秩序(AFO)についても考えます。 $\langle Q_x \rangle > 0$ と $\langle Q_x \rangle < 0$ の二つの副格子が存在するとき、(1-10)面に対する鏡映操作によって移り変わることができるので、共鳴線の数是不会変わります。一方で、 $\langle Q_z \rangle > 0$ と $\langle Q_z \rangle < 0$ の二つの副格子が存在するとき、両者を結びつける対称操作は存在しません。このとき、発生する超微細磁場は

次に、NMRの結果について紹介します。図3(a)に、磁場を[001]方向へ印可した場合のPrサイトと周りの籠を構成するAl(3)サイトを示します。立方対称性が破れても S_4 対称性と鏡面对称性は保たれるので、Al(3)は 3α と 3β の2つのサイトに2:1の強度比で分かります[10]。図3(b)に、1.5 Kにおける 3α サイトの第二サテライト低周波側共鳴線の磁場依存性を示します。 $B = 1$ Tでは共鳴線は1本ですが、1.15 Tで高周波側に別の共鳴線が現れます。磁場の増大に伴って、低周波成分の強度は減少し、高周波成分の強度が増大します(図3(c))。従って、2 T付近の磁場誘起相転移は1次の相転移であることが分かりました。また、それぞれの相で、転移に伴うNMRスペクトルの分裂は観測されていません[15]。

ここでは、2つの電気四極子の秩序変数の対称性を基にして、NMRスペクトルに対する考察から、秩序構造の同定を試みます。磁気八極子(図4(c))については文献[15]に定量的な議論がありますので、ここでは結果だけ記します。

$B \parallel [001]$ で秩序変数が Q_z の場合を、図4(a)に示します。無秩序相と秩序相で対称性は変化しないため、 3α と 3β サイトは分裂しません。一方、秩序変数が Q_x の場合は、

[5] M. Matsunami, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **84**, 193101 (2011).
 [6] T. Kuwai, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 074705 (2013).
 [7] Y. Machida, *et al.*, *J. Phys.* **592**, 012025 (2015).
 [8] S. Nagashima, *et al.* *JPS. Conf. Proc.* **3**, 011019 (2014).

両者で異なるので、共鳴線の数はいくらにもなります。

これらの議論をまとめて、表1に秩序状態とNMRスペクトルの分裂数の関係を示します。高磁場側の相では、 $T < 2$ Kの低温領域でも 3α と 3β サイトの両方で共鳴線の分裂は観測されなかったので、 Q_z タイプの強四極子秩序で説明できます。この結果は、磁化率に対する考察とも符合します。一方、低磁場側の相については、磁化率と矛盾した結果となります。 Q_x タイプの強四極子秩序ならば 3β サイトの共鳴線は分裂するはずですが、この理由として、次の可能性が考えられます。 $\mathbf{B}_{\text{ext}} \parallel [111]$ では、磁場に垂直な成分をもつ磁気双極子が誘起され、超微細磁場を発生させていました。しかし、 $\mathbf{B}_{\text{ext}} \parallel [001]$ では垂直成分の磁気双極子は誘起されず、高次の磁気八極子 $T_{\beta z}$ が誘起されます。その場合、(1-10)面の鏡面对称性が破れるため、 3α サイトは分裂せず、 3β サイトは2つのサイトに分裂して超微細磁場が発生します。しかし、 Γ_3 で $T_{\beta z}$ は不活性であり、励起準位との混成により $T_{\beta z}$ が有限の期待値をとったとしても、超微細結合定数が小さいので、影響は非常に小さくなります[15]。従って、 $B = 1$ Tでの磁化率の温度依存性を考慮すると、低磁場側の相の秩序変数は Q_x タイプのFOである可能性が高いと考えられます。

議論

磁場を[110]方向にかけた場合についても、同様の手法によって秩序変数を決定し、磁場に対して異方的な相図を再現しました(図1)。従来のシンプルな模型(結晶場+Zeeman相互作用+磁場に依存しない四極子相互作用)では、磁場誘起相転移を説明することができません。この異方的な相図の起源は、結晶場効果とZeeman相互作用、磁場に依存した四極子相互作用の競合です。(詳細は本号の服部氏の文章をご覧ください。)ゼロ磁場及び[111]方向に磁場を印可した場合の秩序変数は、結晶場による異方性のみで決まります。[001]および[110]方向に磁場を印可すると、低磁場側では磁場に依存した四極子相互作用がZeeman相互作用よりも支配的となります。一方で、高磁場側ではZeeman相互作用が磁場に依存した四極子間相互作用よりも強くなります。これが、磁場誘起相転移の機構の定性的な説明です。

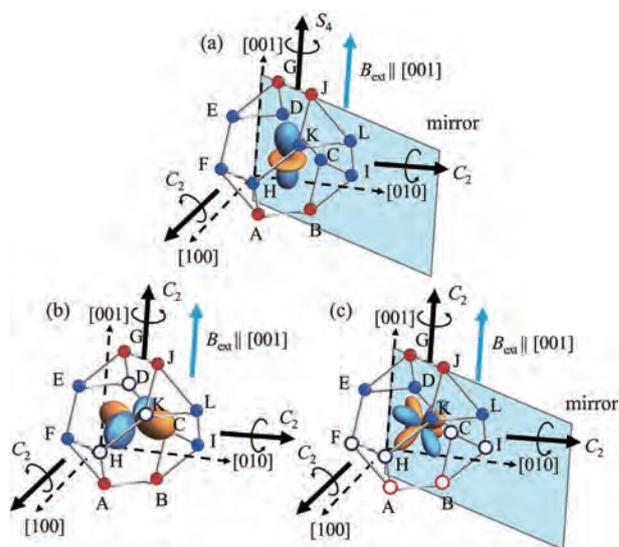


図4. Al(3)の籠と、(a) Q_z , (b) Q_x , (c) T_{xyz} が秩序変数であるときの系の対称性[15]。

[9] Y. Tokunaga, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **88**, 085124 (2013).

[10] T. Taniguchi, *et al.*, *J. Phys.*, **683**, 012016 (2016).

[11] T. U. Ito, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **80**, 113703 (2011).

[12] M. Koseki, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **80**, SA049 (2011).

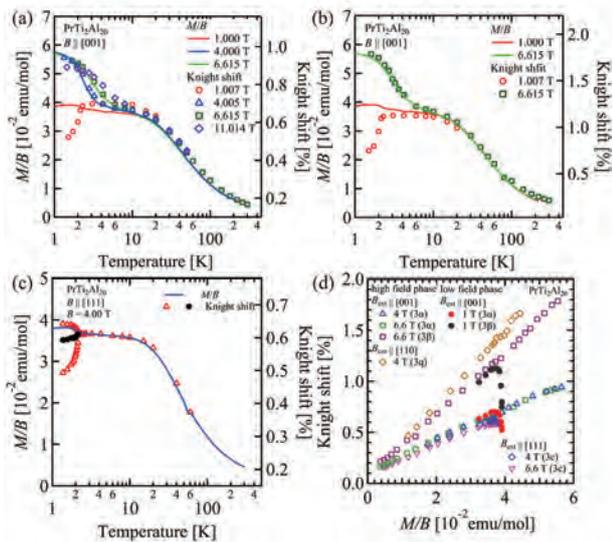


図5. (a), (b) 3α , 3β サイトにおけるKnight shiftと磁化率の温度依存性。 (c) [111]方向に4 Tの磁場を印可した際のKnight shiftと磁化率の磁場依存性。 (d) K - χ プロット[15]。

転移磁場が2 T付近という低磁場であることを踏まえると、磁場に依存した四極子相互作用は伝導電子が絡んだものであると思われます。したがって、以下ではRKKY型四極子相互作用と呼びます。RKKY型四極子相互作用の起源である c - f 混成の強さは、NMR測定によって得られる K - χ プロットの傾きである超微細結合定数に対応します。図5(a), (b)に、磁場を[001]方向に印可した場合の 3α と 3β サイトの K と磁化率の温度依存性を示します。クロスオーバー領域である $B > 2$ Tでは、高温から低温まで磁化率とKnight shiftは比例関係にある一方で、 $B < 2$ Tの低磁場側の相では比例関係が破れています。また、 $B \parallel [111]$ での K と χ についても、同様に比例関係は破れています(図5(c))。 $B \parallel [110]$ の結果も加えた K - χ プロットを図5(d)に示します。超微細結合定数が磁場によって大きく変化することが分かります。

さて、 $B \parallel [001]$ における超微細結合定数の磁場依存性から、 c - f 混成の大きさが磁場誘起相転移に伴って劇的に変化することが分かりました。私たちは、RKKY型四極子相互作用の背景には「フィードバック効果」が存在するのではないかと考えています。しかし、低磁場でフィードバック効果が顕著に表れる理由は未だ分かっておらず、四極子相互作用の磁場依存性をFermi面の変化と合わせて議論する必要があります。

まとめと展望

本稿では、 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ で見出した強四極子秩序における磁場誘起相転移と四極子の秩序変数のスイッチングに関する実験結果を紹介した後、磁場に依存した四極子相互作用を導入するまでの流れを整理し、有力な模型について紹介しました。 Γ_3 空間で強四極子秩序を示すシンプルな系でも新事実があったことから、四極子に関する物理にはまだまだ未開拓な領域が残されていると考えています。例えば、 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ の高圧領域における重い電子超伝導や、逐次転移を示す $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ の秩序相と重い電子超伝導の関係は非常に興味深く、本稿で紹介した四極子秩序の秩序変数の同定手法は強力な手法になると信じています。また、磁場に依存した四極子相互作用はFermi面に影響を及ぼしているはずですので、トランスポートなどの実験が重要であると思われます。

最後に、本稿の執筆に際して、吉田誠様、武田晃様、辻本真規様、松本洋介様に多大なるご協力を頂きました。ここに感謝致します。

[13] T. J. Sato, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **86**, 184419 (2012).

[14] T. Taniguchi, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 113703 (2016).

[15] T. Taniguchi, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 084707 (2019).

[16] 谷口貴紀, 新学術領域研究「J-Physics:多極子伝導系の物理」ニューズレター #5, 65



四極子自由度のおりなす物理と その磁場効果

服部 一匡

首都大学東京 理学研究科 物理学専攻 准教授

昨今、非クラマース二重項結晶場基底状態をとる立方晶のPr1-2-20系化合物に関心が集まっている[1]. 本稿では四極子に関連した話題について、主に理論的側面から著者の理解の範囲で解説したいと思う. 詳細は参考文献等に当たってもらうことにして、概観をつかむことの助けになれば幸いである.

非クラマース二重項とは、電子のスピン1/2縮退のように、時間反転(TR)で互いに移りかわる縮退ではないものを指し、偶数個のフェルミオンからなる状態で可能になる. 上述のPr化合物であれば、Pr³⁺配置をとることが知られており、4f電子が2つPr原子内に存在する. このとき、フント則で決まる全角運動量J = 4の9重縮退が、周りの立方対称結晶場の効果で分裂し、その中の一つとしてΓ₃非クラマース二重項:

$$|\Gamma_3 u\rangle = \frac{1}{\sqrt{12}} \left[\sqrt{7} \left(\frac{|4\rangle + |-4\rangle}{\sqrt{2}} \right) - \sqrt{5}|0\rangle \right], \quad |\Gamma_3 v\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|2\rangle + |-2\rangle), \quad (1)$$

が基底状態になり得る. ここで、ケット内の数字は全角運動量Jのz成分J_zを表す. 明白に、TR(J_z → -J_z)でu ↔ vと入れ替わらない. ヒルベルト空間をu, vに「制限すれば」、uとvは以下のΓ₃四極子演算子

$$\{Q_z, Q_x\} \equiv \left\{ \frac{3J_z^2 - J^2}{8}, \sqrt{3} \frac{J_x^2 - J_y^2}{8} \right\} \leftrightarrow \{\sigma_z, \sigma_x\}, \quad (2)$$

の固有値で区別でき、四極子は式(2)の最後のようにパウリ行列で表すことができる. そうすると、{u, v}は{↑, ↓}のように完全な擬スピン1/2と思いたくなるが、これが便利で良いときと若干よろしくないときがある.

まずは便利で良い場合を紹介しよう. それは、有名なCoxの四極子近藤模型[2]に特徴的な非フェルミ液体を理解する場合である. 四極子近藤模型とは、uとvが伝導電子の「四極子」自由度と近藤相互作用する模型のことで、散乱の過程で伝導電子のスピンが保存することが特徴である. これは典型的な多チャンネル近藤模型であり、伝導電子スピンの数がチャンネル数M = 2になる. 多チャンネル近藤模型に関しては、80~90年代にかけて理論が完成している(厳密解・数値繰り込み群・共形場理論・ボゾン化法・NCA, etc.[3]). M = 2の四極子近藤模型の主な性質は、スピン・四極子感受率, 比熱係数, 電気抵抗, 残留エントロピーの順に,

$$\chi_{\text{spin}}, \chi_Q, \frac{C}{T} \sim -\ln T, \quad \rho \sim 1 - \sqrt{T}, \quad S_0 = \frac{1}{2} \ln 2, \quad (3)$$

のような温度(T)依存性を持つことである. これらの結果は、四極子を擬スピン1/2とみなして[U(1)電荷 × SU(2)スピン × SU(2)擬スピン]対称な模型を解析することで明瞭に理解される. 残留エントロピーはフェルミオン自由度(いるorいない = 2)の半分に対応し、自由なマヨラナフェルミオンがT=0でも残ることに対応している. 以上が、2チャンネル近藤模型——Pr³⁺が1つだけ——の結果である. 最近の理論研究では、現実の物質のようにPr³⁺が格子上

に配置されている2チャンネル近藤格子模型が解析されつつあり、動的平均場による解析や、1/N展開による研究[4]などは、Pr系化合物の実験結果を一部説明できているように見える。ただし、解析は容易ではなく、現状では2チャンネル近藤模型の理解ほどは格子模型についての理解は進んでいないように思う。多体問題を正面から扱う必要があり、用いられる近似の妥当性など種々の問題に挑戦する必要がある。

さて、次に四極子を擬スピン1/2と思うと困ってしまう場合を紹介する。状態をu, vに制限すれば、誰がどう思おうと擬スピン1/2であるが、実際には Q_z と Q_x は(J=4に制限すれば)9 x 9の行列であり、J = 4の他の状態に遷移する行列要素を持っている。この励起状態の効果によって、立方対称 T_d 群の元での異方性が生じることになり[5]、四極子の秩序状態を議論するときには決定的に重要になってくる。以下では、簡単のため、 Γ_3 四極子の強制的秩序のランダウ自由エネルギーFを考えよう。秩序変数 $\mathbf{Q}=(Q_z, Q_x)=q(\cos \theta, \sin \theta)$ はTRおよび空間反転に関して偶なので、Fに出てくる項は \mathbf{Q} に関して奇数次も許される。群論的考察から、

$$F \simeq \frac{a}{2}|\mathbf{Q}|^2 - \frac{b}{3}[Q_z^3 - 3Q_z Q_x^2] + \frac{c}{4}|\mathbf{Q}|^4 + \dots = \frac{aq^2}{2} - \frac{bq^3}{3} \cos 3\theta + \frac{cq^4}{4} + \dots, \quad (4)$$

のように書けることがわかる。六次の項には $\cos 6\theta$ に比例する項等が存在するが、係数は小さいとして無視し、四次までに限った(少なくともPr-1-2-20系の結晶場状態ではあまり効かない)。図1(a)(b)に二次元 \mathbf{Q} 空間内の角度 θ に対応する四極子ドメインを示した。基本的に二次元面の反対側は電荷分布の符号が反対であり、 $\theta = n\pi/3$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, 3$)は Q_z 型、 $\theta = n\pi/3 + \pi/2$ ($n=0, \pm 1, \pm 2, 3$)は Q_x 型の秩序に対応する。図1(c)にはあまりお目にかからない三次の異方性ポテンシャルを示した。図を見れば明らかのように、 $Q_x \rightarrow -Q_x$ でポテンシャルは不変だが、 Q_z に関しては対称でない。このことは、bの符号で「伸びたい」のか「縮みたい」のかが決まるということである。b \geq 0としても一般性は失わないので、以下b \geq 0とする。

さて、教科書的には式(4)を最小化すれば実現する状態が得られる。b = 0(六次の異方性も無視している)の場合は二次転移を境にして強四極子相が現れるが、異方性項がないので四極子はどこを向いても良い。このときは連続対称性があるため、ギャップレスの励起(スピン波のようなもの)が存在する。このように、異方性を無視すると、秩序状態を適切に議論できなくなってしまう。これが、四極子を擬スピン1/2と思った場合の弊害である。一般にはb > 0なので二次転移は起こらず、転移は一次となる。b > 0より、安定な方向は Q_z 型の $\theta = n\pi/3$ ($n=0, \pm 2$)となり、立方晶のz, x, y方向に伸びる(or縮む)縮退がある(図1参照)。この相転移は3候補から1つを選ぶ転移なので、3状態ポッツ模型のユニバーサルリティクラスに属することになる[6]。

次に四極子と磁場 \mathbf{H} の結合を考慮してみよう。四極子はTRに関して偶なので、磁場の偶数次の項としか結合できない。O(\mathbf{H}^2)の項で \mathbf{Q} と同じ Γ_3 表現になる組み合わせは[$3\mathbf{H}_z^2 - \mathbf{H}^2, \sqrt{3}(\mathbf{H}_x^2 - \mathbf{H}_y^2)$]なので、結局

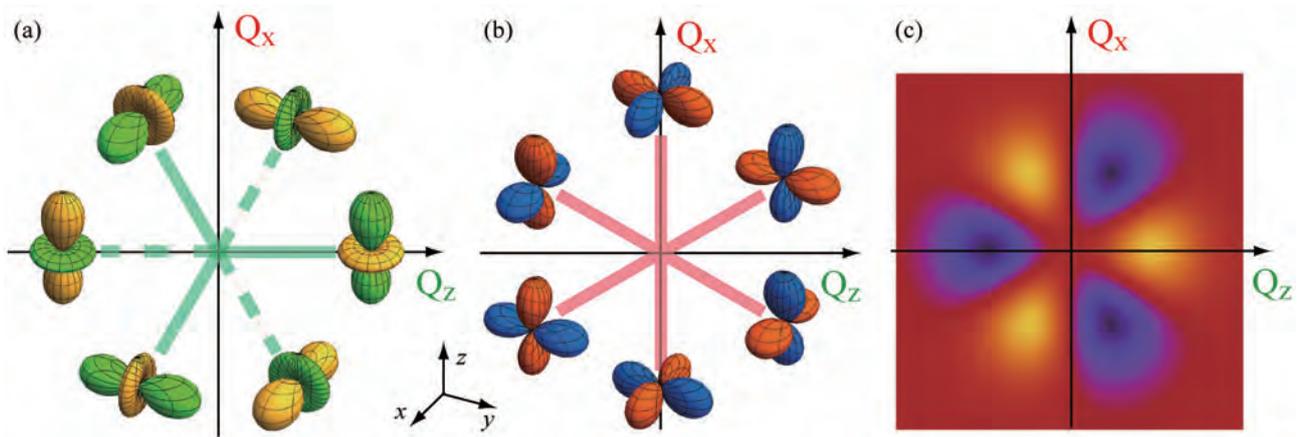


図1：(a) Q_z型(b) Q_x型の秩序変数とQ空間での角度の対応。(c) $\cos 3\theta$ 項のポテンシャル.

$$H_Q = -\alpha \left[(3H_z^2 - \mathbf{H}^2) Q_z + \sqrt{3}(H_x^2 - H_y^2) Q_x \right], \quad \alpha = \left(\frac{4\mu_B}{5} \right)^2 \left(\frac{7}{3\Delta_4} - \frac{1}{\Delta_5} \right), \quad (5)$$

となることがわかる[5]. ここで、 μ_B はボーア磁子、 α は \mathbf{H} に関する二次摂動での表式で、 $\Delta_{4,5}$ は励起 $\Gamma_{4,5}$ 状態までの励起エネルギーである(後述の強四極子秩序が実現しているPrTi₂Al₂₀やPrIr₂Zn₂₀では $\alpha > 0$). 以下、式(5)を擬ゼーマン項とも呼ぶことにしよう. 式(5)より、 $\mathbf{H} // [001]$ のとき、 $\theta = 0$ のQ_z型が好まれることがわかる. 図2に $\mathbf{H} // [001]$ の場合の秩序変数 $|\mathbf{Q}|$ の温度磁場依存性を示す. 図は、式(4)ではなく、微視的な模型の平均場近似で得られたものである. この結果はたしかに初期の中性子散乱実験の結果[7]と整合している. 低磁場ではゼロ磁場での一次転移が続いているが、すぐにクロスオーバーに変わっていくことがみえる. 一方、 $\mathbf{H} // [110]$ の場合は、式(5)によれば $\theta = \pi$ のQ_z型が好まれることがわかる. このときは、磁場と異方性が競合することになり、磁場中でも、Q_z型の $\theta = \pm 2\pi/3$ の二つの状態を選ぶイジング転移が存在する. $\mathbf{H} // [111]$ の場合、式(5)は0であり、四極子は磁場と結合せず、代わりに Γ_3 状態の持つもう1つの自由度である磁気八極子 $\sim \sigma_y$ が誘起される. 話が前後するが、式(5)から四極子近藤模型の重要な性質も明らかになる. 四極子近藤模型に磁場をかけると、非フェルミ液体は不安定化しフェルミ液体にクロスオーバーすることが知られている[3]. これは Γ_3 状態が擬ゼーマン項[式(5)]により分裂するからであり、

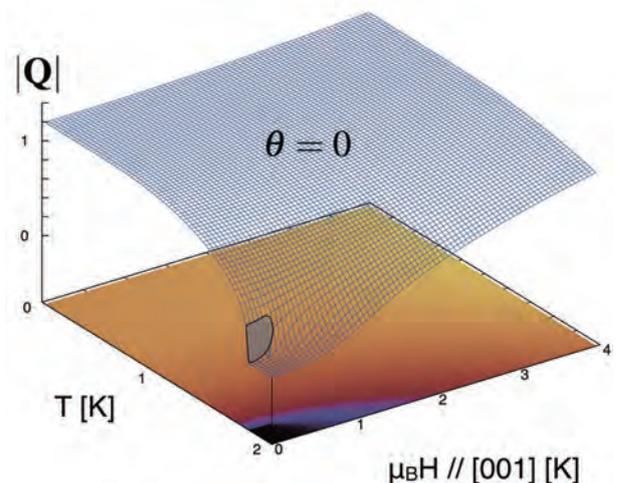


図2： $|\mathbf{Q}|$ の磁場温度依存性($\mathbf{H} // [001]$).

このクロスオーバーの温度スケール T^* が $T^* \sim a^2 H^4 / T_K$ になることを示すことができる。ここで T_K は近藤温度である。

以上の議論でわかることは、強四極子の秩序は異方性が少し通常と異なっていたが、「大した話ではない」、ということである。実際、我々の初期の研究では強四極子は「普通」なので、あまり興味も持っていなかった[5,6]。この認識は最近（といってもだいぶ前のような気がする）の $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ における低磁場実験によって覆された。詳細は論文[8]および谷口氏による記事[9]を参照していただくとして、主要な点は以下の通りである。

(i) $\mathbf{H} // [001]$ では $\mathbf{H} \sim 2 \text{ T}$ で一次転移があり、低磁場相は Q_x 型の $\theta \sim \pm \pi/2$ のように見える。

(ii) $\mathbf{H} // [110]$ では $\mathbf{H} \sim 1.5 \text{ T}$ で一次転移があり、低磁場相は $\theta = 0$ の Q_z 型のように見える。

(i) (ii)ともに、上述の磁場下での強四極子秩序の理論とは相容れない。観測された振る舞いは、擬ゼーマン項[式(5)]による帰結とは全く異なるものである。このため、低磁場では他の「何か」が存在している可能性があり、本稿では、磁場誘起の四極子間の相互作用が一つの可能性として考えられるということを紹介したい。

まず、本当に磁場誘起の相互作用が重要になり得るのかについて、スピン系における磁場誘起相互作用を考えてみよう。2体の相互作用の範囲ではTRの制約のため、低磁場での磁場誘起相互作用は i サイトのスピンを \mathbf{S}_i と表すと、 $\sim H^2 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ のような形になるはずである。この項は、低磁場において磁場の一次項であるスピンのゼーマン項 $\sim \mathbf{H} \cdot \mathbf{S}_i$ に勝つことはできない。よって、スピン系では特別な事情がない限り磁場誘起の相互作用が重要になることはない。一方、非磁性の自由度である四極子ではゼーマン項に対応するものが式(5)の擬ゼーマン項であり、磁場に関して $\sim H^2$ である。よって、 i サイトの四極子を \mathbf{Q}_i と表すと、 $\sim H^2 \mathbf{Q}_i \cdot \mathbf{Q}_j$ のような相互作用があれば、式(5)と競合することが可能である。しかし、 $H^2 \mathbf{Q}_i \cdot \mathbf{Q}_j$ の形では単に元々あった強的な相互作用を補正するだけであり、異方性が生じることはない。つまるところ、問題は $\mathbf{Q}_i \mathbf{Q}_j$ の形で磁場の二次と結合できるその他の組み合わせがあるかどうかである。答えはイエスで、 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ のように四極子がダイヤモンド構造をとる場合には、最近接四極子間の結合定数を λ として、次のような形になる[9]($\Gamma_3 \times \Gamma_3 = \Gamma_1 + \Gamma_2 + \Gamma_3$ と式(5)の磁場の組み合わせを考えれば良い)：

$$V = \lambda \sum_{\langle i,j \rangle} \left[(3H_z^2 - \mathbf{H}^2)(Q_{zi}Q_{zj} - Q_{xi}Q_{xj}) - \sqrt{3}(H_x^2 - H_y^2)(Q_{zi}Q_{xj} + Q_{xi}Q_{zj}) \right]. \quad (6)$$

この相互作用に対応して、式(4)のランダウの自由エネルギーの二次の項は修正をうけるが、議論を簡単にするため、以下では磁場方向を $[110]$ と $[001]$ 方向を含む面にとろう。そうすると、式(6)の第二項は0になる。よって式(4)の第一項は、

$$\frac{a}{2} |\mathbf{Q}|^2 \rightarrow \frac{1}{2} \left\{ \left[a + \lambda'(3H_z^2 - \mathbf{H}^2) \right] Q_z^2 + \left[a - \lambda'(3H_z^2 - \mathbf{H}^2) \right] Q_x^2 \right\}, \quad (7)$$

のように補正される。ただし、式(6)から式(7)に移行する際に最近接格子点数の因子と係数の符号等を含め、新しい係数 λ' を定義した。端的に言えば(転移が一次であることに目をつむって)、式(6)は Q_z 型と Q_x 型の「転移温度」を

ずらす効果がある。 $\lambda' > 0$ であれば、 $\mathbf{H} // [001]$ では Q_z 型の転移温度は $2\lambda'H^2$ 分「下がり」、 Q_x 型の転移温度は $2\lambda'H^2$ 分「上がる」ことになる。つまり、 $\mathbf{H} // [001]$ では $\theta = \pm \pi/2$ の Q_x 型が安定化されやすい、ということが言える。 $\mathbf{H} // [110]$ ではどうだろうか？ この場合は Q_z 型の転移温度は $\lambda'H^2$ 分「上がり」、 Q_x 型の転移温度は $\lambda'H^2$ 分「下がる」ことになる。つまり、 $\mathbf{H} // [110]$ では $\theta = 0$ の Q_z 型が安定化されやすく、そのエネルギー利得は $\mathbf{H} // [001]$ の半分ということである。この結果は、実験結果(i)(ii)と整合するとともに、 $\mathbf{H} // [001]$ と $[110]$ での臨界磁場の大きさの違いといった相対的な秩序相の安定性も説明することができる。

以上は式(7)の磁場誘起相互作用だけを考慮した議論だが、実際には擬ゼーマン項[式(5)]に打ち勝たなければならない。実はこの条件はかなり厳しいことがわかっており、例えば小さなフェルミ面の存在などがその説明を与えてくれるかもしれない[10]。また、 H^2 までの議論では、擬ゼーマン項と磁場誘起相互作用の勝敗が磁場下で変わることがない。解析では磁場誘起相互作用が高磁場で押さえられるような状況を「手」で入れることで実験相図を定性的に再現している(図3)。磁場誘起相互作用が伝導電子の媒介するRKKY相互作用と仮定し、種々のバンド構造でその磁場依存性を解析すると、当たり前だが、高次の寄与はバンドの詳細に依存することがわかる[11]。よって、「手」で入れた磁場の二次以上の寄与も決して非物理的というわけではない。どちらにしろ、 λ' の定量的な見積りは今後の重要課題の一つになる。ひとつ強調しておきたいことは、 $\mathbf{H} // [001]$ で磁場誘起相互作用[式(7)]が擬ゼーマン項を凌駕していれば、必ず $\mathbf{H} // [110]$ でも凌駕する、ということであり、このことも実験結果と整合する。

良い面ばかり書いているが、最後に実験と不整合な点の一つ残っていることに言及しておきたい。 $\mathbf{H} // [110]$ に磁場をかけた場合、低磁場相は上述の磁場誘起相互作用で安定化する Q_z 型の $\theta = 0$ の強四極子秩序である。この秩序が不安定になる高磁場では、擬ゼーマン項のエネルギー利得が大きい Q_z 型の $\theta = \pi$ が実現する。実は理論ではこの間に中間相が存在し、 $\theta = \pm(2\pi/3 \sim \pi)$ 、つまり $Q_z < 0$ で Q_x は正負どちらでもよい、という状態が安定化する(したがって転移はイジングクラス)。模型のパラメータを微調整すれば中間相がでてこない場合もあるが、典型的な場合はこの中間相が現れる方が自然である。実験的にはこの中間相に対応するような明瞭な異常は今のところ観測されていない[9]。磁化曲線で判別する限り、理論の結果にはこの中間相があっても顕著な異常が見えない為、種々のプローブで多角的に実験を行うことが重要になってくるように思う。

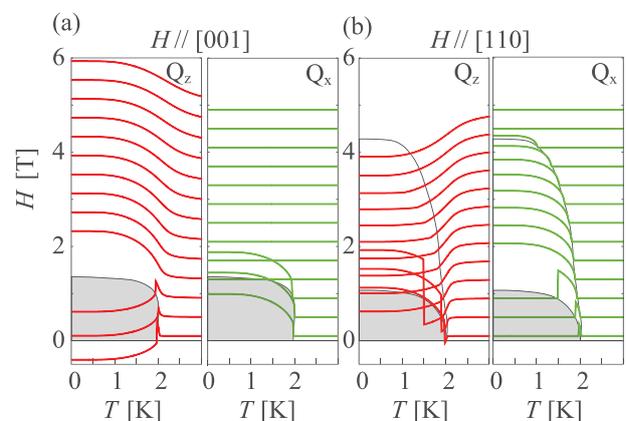


図3：式(6)を考慮した模型の平均場近似で得られる温度磁場相図 (a) $\mathbf{H} // [001]$, (b) $\mathbf{H} // [110]$. 複数の曲線は磁場 $H = 0.1 \sim 4.9$ T までの 0.4 T 毎における Q_z (赤) および Q_x (緑) を表す。各曲線のオフセットは縦軸の磁場の値を用いている。

以上、本稿では主に最近のPr化合物の強四極子状態について議論してきた。PrTi₂Al₂₀において実現している低磁場の強四極子状態は、非磁性自由度特有の磁場誘起相互作用によって安定化している珍しい例である可能性があり、今後の進展が楽しみである。また、前半にごく簡単に紹介した四極子近藤格子模型やその非フェルミ液体状態については、理論の難易度としては後半の話の何(十?)倍も大変であり、今後の重要な課題の1つである。

最後になりましたが、本稿の内容は、東北大学・谷口貴紀博士、東京大学・常次宏一教授、瀧川仁教授、中辻知教授、榊原俊郎教授、首都大学東京大学院生の鈴木浩平氏、および関係する方々との共同研究によるものです。この場を借りて御礼申し上げます。また、この研究は科研費(Nos.16H04017, 18K03522)からの支援を受けて行われました。

-
- [1] レビューとして, T. Onimaru and H. Kusunose, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 082002 (2016).
 - [2] D. L. Cox, Phys. Rev. Lett. **59**, 1240 (1987).
 - [3] まとまったレビューとして例えば, D. L. Cox and A. Zawadowski, Adv. Phys. **47**, 599 (1998).
 - [4] S. Hoshino, J. Otsuki, and Y. Kuramoto J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 044707 (2013), S. Hoshino and Y. Kuramoto, Phys. Rev. Lett. **112**, 167204 (2014), A. Tsuruta and K. Miyake, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 114714 (2015).
 - [5] K. Hattori and H. Tsunetsugu, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 034709 (2014).
 - [6] 3状態だから3状態ポツのはず, というのは少々乱暴な議論で, 反強四極子秩序の場合は6状態だが, 転移はXYクラスになる. K. Hattori and H. Tsunetsugu, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 094001 (2016).
 - [7] T. J. Sato *et al.*, Phys. Rev. B, **86**, 184419 (2012).
 - [8] 谷口貴紀, 新学術領域「J-Physics: 多極子伝導系の物理」ニュースレター第8号.
 - [9] T. Taniguchi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, (2019), 084707 (2019).
 - [10] S. Nagashima *et al.*, JPS Conf. Proc. **3**, 011019 (2014), P. Swatek *et al.*, Comp. Mater. Sci. **153**, 461 (2018).
 - [11] 鈴木浩平, 服部一匡, 日本物理学会 第73回年次大会, 24pK403-6 (2018).



磁場による超伝導対形成引力の制御： 強磁性超伝導体のNMR研究

徳永 陽

原子力機構 先端基礎研究センター 研究主幹

神戸 振作

原子力機構
先端基礎研究センター

酒井 宏典

原子力機構
先端基礎研究センター

青木 大

東北大学
金属材料研究所

はじめに

「磁気ゆらぎによる超伝導」という概念は、強相関電子物性の全般を貫くものです。現在この概念は広く受け入れられていますが、その一方で、それを実験で証明するのは簡単ではありません。強磁性ゆらぎによる超伝導が実現していると考えられるウラン系強磁性超伝導体は、その格好の舞台を提供しています。さらにそこで生じるスピン三重項超伝導はトポロジカル超伝導の主要な舞台でもあることから、強磁性超伝導体がトポロジカル超伝導の重要な研究対象になりつつあります [1,2]。

本稿ではNMR研究の結果を中心に、2つの強磁性超伝導体UCoGeとURhGeで観測される上部臨界磁場 H_{c2} の異常な振る舞いが、「強磁性ゆらぎを介した磁場による対形成引力の制御」という概念で、統一して理解できることを紹介します。最後にそれらを踏まえ、昨年新たに発見されたUTe₂の超伝導について少し考えてみたいと思います。なおウラン系強磁性超伝導に関するより詳しい解説が文献[3,4]にあります。ご興味を持たれた方は、ぜひあわせてご覧下さい。

強磁性と共存する超伝導

現在までUGe₂, URhGe, UCoGeという3つのウラン化合物で強磁性と超伝導のミクロな共存が確認されています。いずれもイジング型の磁気異方性を示す強磁性体です。温度の低下に伴い、まず強磁性秩序が確立し、さらに冷やすと重い電子の超伝導が出現します。このときウランの5f電子は、強磁性秩序と超伝導を同時に担うことになります。

ウラン系強磁性超伝導体は、現時点でスピン三重項超伝導の最有力候補のひとつです。通常、スピンの平行に対形成する一重項の超伝導に対して、スピンを

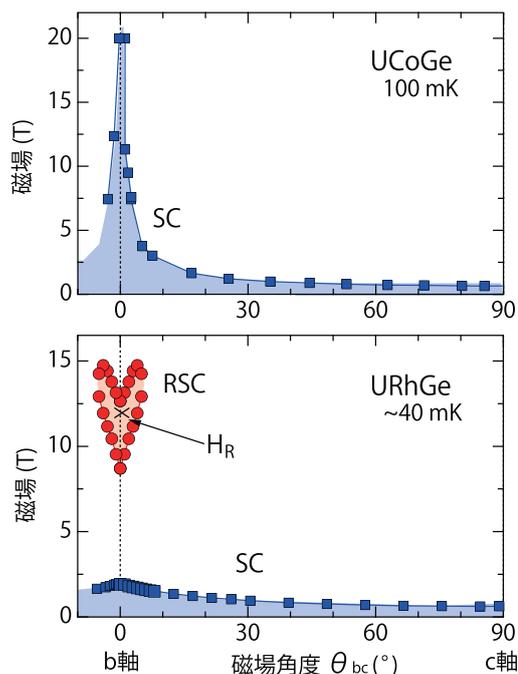


図1: H_{c2} の磁場角度依存性[3]。URhGeでは低磁場の超伝導(SC)が一度消えた後、強磁場下でリエントラント超伝導(RSC)が、臨界磁場 H_R 周辺で出現する。

[1] A.K.C.Cheung and S.Raghu, Phys.Rev.B **93**,134516 (2016)

[2] A.Daido, T.Yoshida, and Y.Yanase, Phys.Rev.Lett.122,227001(2019)

[3] D.Aoki, K.Ishida, and J.Flouquet, J.Phys.Soc.Jpn.**88**,022001 (2019)

[4] 石田憲二, 青木大, 日本物理学会誌 **74-1**,24(2019).

平行に揃えようとする磁場は、大きな対破壊効果(パウリ対破壊効果)をもたらします。この効果によって一重項超伝導の超伝導対が壊される磁場が、パウリ・リミット(H_p)と呼ばれる臨界磁場です。強磁性超伝導体の超伝導転移温度(T_{sc})は最高でも0.8K程度なので、一重項s波超伝導の弱結合のBCS理論で期待されるパウリ・リミット $H_p=1.8 T_{sc}$ (T/K)は1.5 T程度になります。しかし実際の H_{c2} はこの値を遥かに超え、数十Tにも達します。

H_{c2} の異方性はさらに異常です。図1にUCoGeおよびURhGeで観測された H_{c2} の磁場角度依存性を示します[3]。両者は同じ結晶構造を持ち、結晶のc軸方向が磁化容易軸です。UCoGeでは磁場をちょうどb軸方向にかけると、 H_{c2} が20Tに到達します。ところがそこからc軸方向へわずかに傾けただけで、 H_{c2} は急激に減少します。通常、 H_{c2} の異方性は電子状態の次元性と関係し、例えば2次元電子系などでは大きな異方性が観測されますが、UCoGeの電子状態は3次元的で、 H_{c2} の特異な異方性はそれではまったく説明できません。

さらにURhGeではb軸方向付近で2つの超伝導相が出現します。超伝導は2 T程度の磁場で一旦消失しますが、8-15 T付近で再び現れます(リエントラント超伝導)。このような磁場中で超伝導が復活する機構としては、古くはJaccarino-Peter補償効果が知られています[5]。これはスピン分極によって生じた内部磁場が、外部磁場を補償することで、非常に狭い磁場角度範囲で超伝導が現れる現象です。しかしURhGeのリエントラント超伝導はこれとは本質的に異なります。例えば、後ほど見るように、URhGeでは容易軸に垂直な方向を保ったまま、bからa軸へと磁場方向変えた場合、広い磁場角度範囲でリエントラント超伝導が残ります。

このようにUCoGeおよびURhGeの H_{c2} の異常な振る舞いは、強磁性超伝導体の発現機構が、従来の超伝導体とはまったく異なることを示唆しています。そして以下に述べるように、実はこの H_{c2} の異常な振る舞いこそ、これらの超伝導が強磁性ゆらぎを対形成引力の起源とする、確かな証拠と考えられるのです。

磁場による対形成引力の制御

通常のフォノンを引力とする超伝導の理論では、超伝導対を形成する引力の磁場変化は考えません。これは基本的にはフォノンと磁場との直接の相互作用は考えなくて良いためです(もちろん超伝導対そのものには磁場は直接の影響を与え、パウリ対破壊効果や軌道対破壊効果を通じて超伝導を抑制します)。ところが超伝導が強磁性ゆらぎを引力とする場合、磁場が強磁性ゆらぎに直接作用し、そのエネルギーを変化させることで、結果的に超伝導の対形成引力も強い磁場依存性を持つことになります。これが図1で紹介した H_{c2} の異常な振る舞いを理解する鍵となります。

強磁性超伝導体における超伝導と磁気ゆらぎの密接な関係を最初に明らかにしたのは、京都大学の服部-石田

[5] V. Jaccarino and M. Peter, Phys. Rev. Lett. **9** (1962) 290.

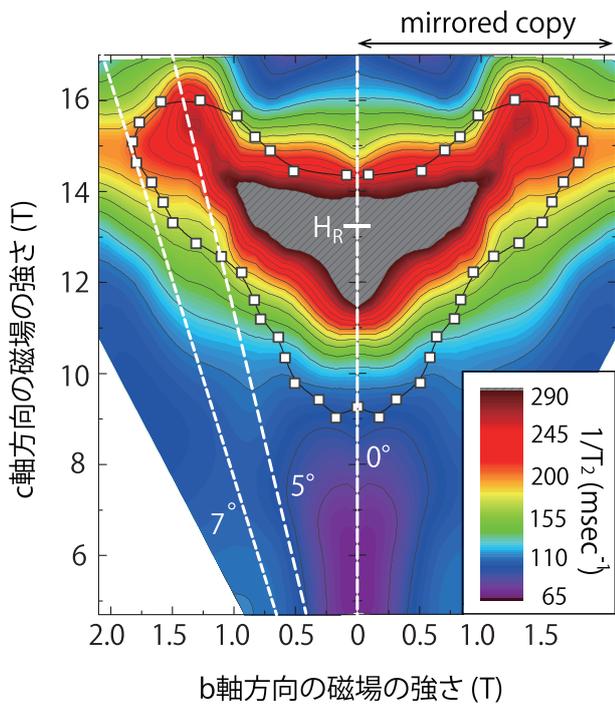


図2: URh_{0.9}Co_{0.1}GeのCo-NMRにより測定された1.6Kでの $1/T_2$ の値をbc面内の各磁場成分に対してプロットしたもの[9]。 H_R 近傍で発達する強磁性ゆらぎの分布の様子がわかる。白四角で囲まれた領域でリエントラント超伝導が出現する。

導については、 H_{c2} の異方性はそれほど大きくなく、この緩やかな磁場角度依存性は、有効質量の異方性を考慮することで大部分が理解できます。さらにURhGeの低磁場領域でNMR測定を行なっても、UCoGeで観測されたような、c軸磁場成分によるゆらぎの抑制は観測されません[7]。実は低磁場領域における強いゆらぎの抑制というのは、UCoGeに限った特徴なのです。

ではURhGeではなぜ強磁場で超伝導が現れるのでしょうか？このリエントラント超伝導の出現は、同じ磁場領域で起こる磁気的な相転移と密接に関係しています。通常、強磁性体に磁場を印加すると、強磁性状態はより安定化し、ゆらぎは抑えられます。しかしイジング性の強いURhGeに横磁場($H//b$)を印加していくと、スピンの向きがc軸方向を向いた強磁性状態はむしろ不安定になります。そして最終的には、臨界磁場 $H_R \sim 12$ Tで、スピンの向きがc軸方向からb軸方向へフリップします。これは量子相転移の典型モデルとして知られる、横磁場イジング模型のケースと良く似ています。URhGeの場合、 H_R での量子相転移は弱い一次転移で、有限温度(~ 4 K)に三重臨界点を持ちます[8]。

らによるUCoGeでのNMR実験です [6]。単結晶を用いてCo核の核スピン-格子緩和時間の磁場角度依存性を測定し、その結果、磁場をc軸方向にわずかに傾けるだけで、ゆらぎが急激に抑えられることを見出しました。ここで重要なのは、このゆらぎの抑制が磁場による H_{c2} の抑制と密接に関係していることです。図1のように、UCoGeのbc面内では $H//b$ 付近の狭い磁場角度領域でのみ高い H_{c2} が観測されますが、NMRが明らかにしたのは、まさにその領域にだけ強いゆらぎが存在し得るということです。このゆらぎはc軸方向に大きな成分を持っています。これはちょうどc軸を向いた磁化が伸び縮みするような縦ゆらぎに対応します。このゆらぎがc軸磁場成分によって強く抑制されるのです。

ではURhGeの H_{c2} の磁場角度依存性も、同じシナリオで理解できるのでしょうか？実はそうではありません。図1に見られるように、URhGeの低磁場側の超伝導

[6] T.Hattori *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 066403 (2012).
 [7] Y.Tokunaga *et al.*, arXiv:1910.00268 (2019).
 [8] S. Nakamura *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 094411 (2017).

我々はNMR実験から、この量子相転移点の近傍にどのような磁気ゆらぎが存在するかを調べました。その結果、 H_R 近傍では、強い**b**軸成分を持った縦型のゆらぎが発達していることが分かりました(図2) [9]。このゆらぎは**c**軸方向の磁場に敏感で、磁場を**b**軸方向から**c**軸方向へ傾けると急激に抑えられます。このとき重要なのは、このゆらぎの存在する領域が、まさに図1でリエントラント超伝導が出現する領域と重なることです。つまりURhGeにおいては、量子相転移に伴うゆらぎの増大が対形成引力を増強し、それによって超伝導が復活するのです。

リエントラント超伝導の出現に H_R 近傍のゆらぎが重要なことは、磁場を磁化容易面である**ab**面内に印加したNMR実験からも確認されました(図3) [10]。実験からわかったことは、磁化の最困難軸である**a**軸方向の磁場は、磁気的なゆらぎにはまったく影響を与えず、従って、**ab**面内で磁場角度を変えても、常に磁場の**b**軸成分が $H_R \sim 12$ T程度になる辺りでゆらぎが発散するということです。さらにそれに付随してリエントラント超伝導も出現します。全磁場は $H = H_a^2 + H_b^2$ で与えられるので、リエントラント超伝導は磁場角度が大きくなるほど、より高い磁場で現れるようになります。最終的に**ab**面内で H_c2 は30 Tを超えることとなります [11]。

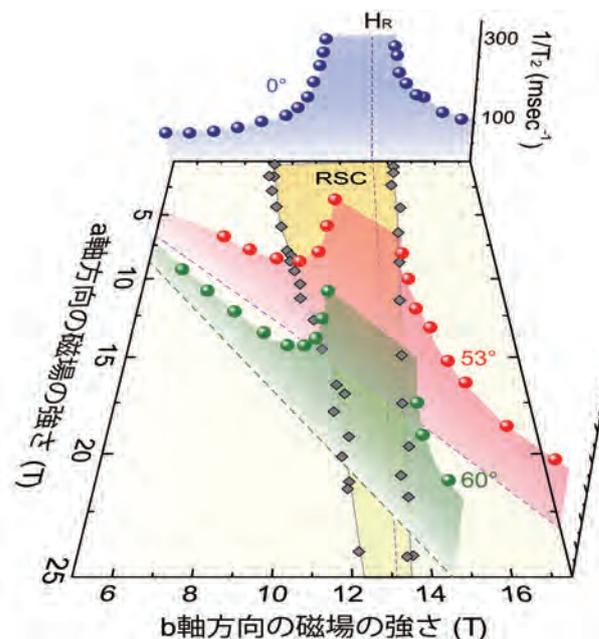


図3: **ab**面内で磁場を回転させた場合の、 $1/T_2$ の磁場依存性[10]。 $1/T_2$ の大きさがゆらぎの大きさに対応する。**a**軸方向の磁場成分に関係なく、**b**軸磁場成分の値が12-14 Tになるとゆらぎが増大し、同時にリエントラント超伝導(RSC)が出現する。

以上を踏まえて、**ab**面内で磁場角度を変えても、常に磁場の**b**軸成分が $H_R \sim 12$ T程度になる辺りでゆらぎが発散するということが分かります。さらにそれに付随してリエントラント超伝導も出現します。全磁場は $H = H_a^2 + H_b^2$ で与えられるので、リエントラント超伝導は磁場角度が大きくなるほど、より高い磁場で現れるようになります。最終的に**ab**面内で H_c2 は30 Tを超えることとなります [11]。

UCoGeとURhGeの違い

以上の結果を簡単にまとめると、UCoGeでは対形成の引力が比較的強く(= T_{sc} が高い)、元々高い H_c2 が期待できる状況です。一方でその引力を生んでいる強磁性ゆらぎは、**c**軸方向の磁場に対して極めて弱いため、高 H_c2 を実現するにはできるだけ**c**軸に垂直に磁場を印加することが重要となります。このことは、UCoGeでは**b**軸方向だけではなく、**a**軸方向に磁場を印加した場合でも、高 H_c2 が観測されることから分かります。一方、URhGeは元々の超伝導の対形成引力が弱く(= T_{sc} が低い)、そのままではあまり高い H_c2 は期待できません。ところが**H**//**b**方向に量子相転移

[9] Y. Tokunaga *et al.*, Phys. Rev. Lett. **114**, 216401 (2015).
 [10] Y. Tokunaga *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 201112(R) (2016).
 [11] F. Levy *et al.*, Nat. Phys. **3**, 460 (2017).

点があるため、その近傍で磁気ゆらぎ(主に**b**軸方向の縦ゆらぎ)が発達します。このゆらぎを利用して強磁場下でリエントラント超伝導が現れます。強磁性ゆらぎの磁場に対する応答の違いが、超伝導の H_{c2} 相図の違いに反映されているのが面白いところです。

ではその違いはどこからくるのでしょうか? ひとつ明らかなのは、UCoGeとURhGeを比べると、前者の方がより強磁性の量子臨界点に近い物質であることです。例えば図4は同じウラン配置を持つUTGe系化合物に対して、最隣接ウラン-ウラン間距離($d_{(U-U)}$)と磁気相転移温度をプロットしたものです[12]。この図から

UCoGeの方がより強磁性の量子臨界点近傍にあることがわかります。実際にUCoGeにわずかな圧力(~1.2 GPa)を印加するだけで、強磁性は完全に消失します。面白いのはURhGeで、この物質はむしろ強磁性と反強磁性の相互作用が競合するような領域に存在しているように見えます。磁気的なフラストレーションの存在が示唆されます。

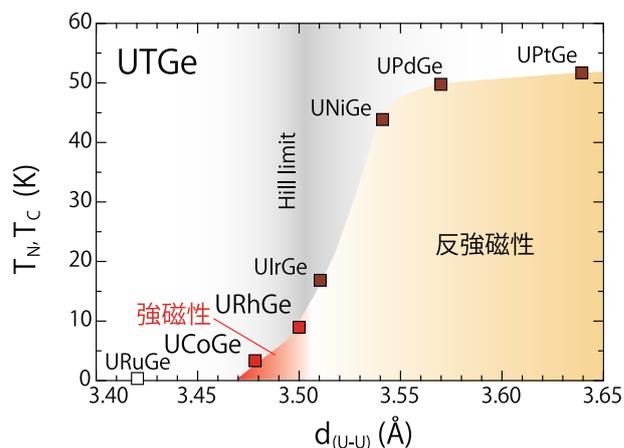


図4: 同じウランの配置を持つUTGe化合物における、最隣接ウラン間距離と磁気転移温度の関係 [12]。

巨視的測定および理論的考察

強磁性超伝導体における磁気ゆらぎと超伝導の対形成引力の変化は、熱伝導や磁化などの巨視的測定の解析からも示されています。例えばUCoGeにおいてWu *et al.*は、熱伝導の測定から H_{c2} の温度依存性を求め、それをBCS超伝導体の軌道破壊効果から期待される振舞いと比較して、超伝導対形成の引力の磁場依存性を求めています [13]。その結果はNMRで観測された強磁性ゆらぎの磁場依存性と定性的に一致しています。また最近、立岩らはUGe₂において、超伝導が出現する高圧下での磁化の振る舞いをスピンゆらぎの理論で解析し、磁気ゆらぎのエネルギー空間でのスペクトル幅に対応する T_0 の圧力依存性が、 T_{sc} の圧力依存性と一致することを示しています [14]。

強磁性ゆらぎによる超伝導の理論としては、FayとAppelによる先駆的な研究が知られています [15]。最近はさらに超伝導対形成引力の磁場依存性を取り入れた計算も行われています。URhGeについては、服部、常次が局在モーメントによる強磁性的XXZモデルを仮定し、横磁場による磁気転移に伴うソフト化したマグノンがスピン三重項超伝導を引き起こすというシナリオで磁場-温度相図をほぼ再現できることを示しています [16]。また最近は一次元

[12] M. Valiska *et al.*, Phys. Rev. B **92**, 045114 (2015).

[13] B. Wu *et al.*, Nat. Commun **8**, 14480 (2017).

[14] N. Tateiwa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **121**, 237001 (2018).

[15] D. Fay and J. Appel, Phys. Rev. B **22**, 3173 (1980).

Kondo格子モデルに拡張した計算も行われています[17]。一方、多田、藤本らは、イジング異方性を持つ強磁性ゆらぎの磁場依存性を考慮した H_c2 の温度依存性の計算を行い、UCoGeで観測されている H_c2 の各軸方向での特異な振る舞いを説明しています[18,19]。

UTe₂は新しいタイプの強磁性超伝導体?

さて、UTe₂です。この物質の超伝導は昨年11月末、米国のNISTおよびMaryland大のN. P. Butchを中心とするグループにより初めて報告されました [20]。その後すぐに東北大学の青木らによって追試が行われ、超伝導の詳細が報告されています [21]。 T_{sc} は1.65 Kとウラン系超伝導の中でも高く、 $T=0$ における H_c2 の値は全磁場方向でパウリ・リミットを超えています。 H_c2 の異方性は磁化の異方性と強く相関し、磁化困難軸(b 軸)方向では低温で異常な増大を示します。これらの振る舞いはすべて本稿で紹介した強磁性超伝導体と酷似しています。ところが面白いことにUTe₂は強磁性体ではないのです。常磁性体なのです。

本稿執筆時点で発見の報告から約半年が経ち、その特異な超伝導性が明らかになってきています。強磁場実験からは、35 T ($H//b$)にメタ磁性的な磁気転移が存在し、その近傍で超伝導が増強されるという、リエントラント的な振る舞いが報告されています [22-25]。さらに驚くべきことに、 b 軸から c 軸方向に磁場を30度ほど傾けると、40 Tから60 Tという異常に高い磁場領域で新たな超伝導相が出現します [25]。一方、極低温まで磁気的な秩序は確認されておらず [20,21]、これらの結果は、強磁性秩序がなくても強磁性的なゆらぎがあれば、本稿で紹介した「強磁性ゆらぎを介した磁場による対形成引力の制御」というコンセプトが成り立つことを示唆しています。我々が行なったNMR実験では、磁気ゆらぎが弱いイジング異方性を持つこと、また20 K以下の低温で磁化容易軸である a 軸方向に強い磁気的なゆらぎが発達していることが明らかになっています [26]。磁場や温度領域は違いますが、低温でのゆらぎは μ SR実験でも観測されています [27]。UTe₂が強磁性の量子臨界点に近い化合物であることが強く示唆されます。

UTe₂は常磁性状態でスピン三重項超伝導が実現している可能性が高く、さらに T_{sc} が1.65 Kと比較的高いため、希釈冷凍機がなくても到達可能です。今後、スピン三重項超伝導やトポロジカル超伝導の物理を調べる上でも、重要な系となるかもしれません。超伝導対の対称性を解明する実験もすでに始まっており、研究の進展が待たれます。

謝辞:ここで紹介したURhGeに関するNMRは、原子力機構先端研究センターの服部泰佑, グルノーブル強磁場研究所の H. Mayaffre, S. Krämer, M.-H. Julien, C. Berthier, M. Horvatić, 岡山大学理学部の荒木新吾各氏との共同研究です。本稿のニュースレターへの執筆をご提案いただいた編集委員の皆さまに感謝いたします。

-
- [16] K. Hattori and H. Tsunetsugu, Phys. Rev. B **87**, 0644501 (2013).
[17] K. Suzuki and K. Hattori, J. Phys. Soc. Jpn. **88** 024707 (2019).
[18] Y. Tada *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **449** 012029 (2013).
[19] Y. Tada *et al.*, Phys. Rev. B **93** 174512 (2016).
[20] S. Ran, *et al.*, arXiv:1811.11808 (2018).
[21] D. Aoki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 043702 (2019).
[22] W. Knafo, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 063705 (2019).
[23] A. Miyake *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 063706 (2019).
[24] G. Knebel *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 063707 (2019).
[25] S. Ran *et al.*, Nature Physics (2019).
[26] Y. Tokunaga *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 073701 (2019).
[27] S. Sundar *et al.*, arXiv:1905.06901 (2019).



ウラン系超伝導体の対称性と磁気応答 ~ UBe_{13} と $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ の超伝導をめぐって~

清水 悠晴 Yusei Shimizu

東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センター（大洗センター） 助教

ウラン系超伝導体について書く機会を頂いたので、これまでの研究生活のことも触れつつ、これまで最も力を注いできた UBe_{13} を中心にお話したい。ウラン系超伝導には、異常な磁気応答や非従来型の超伝導対称性・相図を持つものが存在するため、超伝導基礎研究の対象として非常に面白く、これまでに発見されている超伝導体の中でも最も不思議だと個人的には思う。ウラン系非従来型超伝導の発現機構は何か？という謎に少しでも近づきたいと思い、それらの超伝導特性を調べてきた。非従来型ウラン系超伝導研究は、 UBe_{13} [1]、 UPt_3 [2]、 URu_2Si_2 [3]の発見に始まる。その後反強磁性と超伝導が共存する UPd_2Al_3 [4]、 UNi_2Al_3 [5]、強磁性と超伝導が共存する UGe_2 [6]、 $URhGe$ [7]、 $UCoGe$ [8]が発見された。また最近アメリカグループから UTe_2 が発見され[9]、盛り上がりを見せている[9,10]。注目すべきは、ウラン系にスピン三重項超伝導の有力候補が多数あることである。磁性と超伝導が共存する系 [4-8]では、磁性とクーパー対形成が関わっていると考えるのは自然だが、一方で UBe_{13} のように磁性がないのに非従来型超伝導を起こす物質は、その発現機構という意味ではベールに包まれている。 UBe_{13} の電子比熱係数は $C/T \sim 1.1 \text{ JK}^{-2}\text{mol}^{-1}$ と巨大であるが、2 Kで近藤コヒーレンスに関連した異常を見せ、約0.85 Kで $150 \mu\Omega\text{cm}$ ほどもある電気抵抗が非フェルミ液体のまま突然ゼロ抵抗になる[1,11]。まさに強相関電子系の極限のような系である。小さな結晶の中で一体何が起きているのだろうか？

UBe_{13} における超伝導の発見は1983年のH.R.Ottらの論文に遡る [1]。実のところ、 UBe_{13} の超伝導については、Ottより8年前のBucherらの論文に記述がある[12]。しかし、彼らは観測した超伝導の本質に気づかず、ウランのフィラメント超伝導であるとした。ウラン単体の超伝導は従来型だが[13]、6Tもかけても消えないことが当時の背景ではかなり異常だったようである。 UBe_{13} に関する研究は30年以上も精力的に行われており、夥しい数の論文が存在する。1980年代当初、 T_c 以下で比熱[14]やNMRスピン格子緩和率[15]が冪の温度依存性を示すこと、NMRナイトシフトが T_c で不変であること[16]から、ギャップにノードを持つスピン三重項超伝導の可能性が提案された。超伝導対称性に関して統一的な見解がなく、超伝導相内に B^* と呼ばれる謎の異常があることが報告されていた[17]。もう一つの大きな謎は、 $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ における超伝導特性である。温度(T)-Th濃度(x)相図において、多重超伝導(A~D相)が観測されており、極めて奇妙な形をしている[18,19](図1)。面白いことにTh濃度が $0.019 < x < 0.045$ の領域(図中B相)で超伝導転移点 $T_{c1} \sim 0.6 \text{ K}$ 以下の $T_{c2} \sim 0.4 \text{ K}$ に二つ目の転移が比熱に現れる[18]。さらに T_{c2} 以下で μSR 実験から微弱的な内部磁場($\sim 0.01 \mu_B/U$)が観測されている[19]。この奇妙な二段相転移が時間反転対称性の破れた超伝導秩序変数を

[1] H. R. Ott *et al.*, Phys. Rev.Lett. **50**, 1595 (1983).

[2] G. R. Stewart *et al.*, Phys. Rev.Lett. **52**, 679 (1984).

[3] W. Schlabitz, *et al.*, Z. Phys. B **62**, 171 (1986); T.T.M. Palstra *et al.*, Phys. Rev. Lett. **55**, 2727 (1985); M.B. Maple *et al.*, Phys. Rev. Lett. **54**, 477 (1985).

[4] C. Geibel *et al.*, Z Phys. B Condens. Matter **84**, 1 (1991).

[5] C. Geibel *et al.*, Z Phys. B Condens. Matter **83**, 305 (1991).

[6] S. S. Saxena *et al.*, Nature (London) **406**, 587 (2000).

[7] D. Aoki *et al.*, Nature (London) **413**, 613 (2001).

[8] N. T. Huy *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 067006 (2007).

[9] S. Ran *et al.*, Science **364**, 684 (2019).

[10] D. Aoki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 043702 (2019).

[11] Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. B **92**, 241101(R) (2015).

[12] E. Bucher *et al.*, Phys. Rev. B **11**, 440 (1975).

[13] J.C. Ho *et al.*, Phys. Rev. Lett. **17**, 694 (1966).

[14] H.R. Ott *et al.*, Phys. Rev. Lett. **52**, 1915 (1984).

起源とするのか[20]、或いは超伝導と共存する反強磁性を起源とするのか[21]、長年の未解決問題だった。UBe₁₃には未開の山のような不思議な魅力があり、それが研究の動機になってきた。

UBe₁₃の研究を始めたのは、北大網塚研在籍時である。主にこの物質の極低温磁化測定を行うことで、超伝導相内の磁気応答や超伝導対称性を探求した。原研の芳賀さんに貴重な純良単結晶を提供してもらい研究を始めた。解析によって超伝導反磁性成分を取り出すと、その磁化成分が磁場 B^* で極小を示す、という非常に奇妙な振舞いを観測した[22]。また常磁性効果を調べるため比熱・磁化から求めた $\kappa_2(T)$ は、常磁性効果の存在を示唆し、s波超伝導とは明らかに違う異常なものだった[23,24]。さらに最も神秘的に感じていたU_{1-x}Th_xBe₁₃の謎に迫りたいと思いついた。Beが猛毒だから、と始め網塚先生には反対されたが、物理の面白さを説明し北大でもBe化合物を合成する許可を頂いた。柳澤さんたちと協力しAl-flux法で希土類RBe₁₃や多くのU_{1-x}Th_xBe₁₃を作ったが、一筋縄ではいかず、比熱二段転移試料育成には成功しなかった。しかし、報われるか否かより、自分の中に生じた問いに対し、自発的・体験的に追求していくことが重要だった、と後になって思う。

北大の次にはグルノーブルに渡った。D3の時に参加したケンブリッジでのSCESで青木大さんと知り合い、博士研究員として雇ってもらうことになったのである。言葉も知らない異郷の地に行くには不安がなかったわけではないうが、CEA-Grenobleでは極低温実験やウラン化合物研究が盛んだったので期待を持って渡仏した。しかし、フランス独特の書類の多さ、バカンスで滞る手続きの難儀にはよく悩まされた。CEAでのテーマは、flux法でのウラン試料合成だったが、残念なことにポスドクであった自分にはそもそもウラン化合物育成の許可が下りなかった。そのため極低温測定のほうに専ら集中した。Daniel Braithwaiteにダイヤモンドアンビルセル(DAC)を学びUBe₁₃や遍歴強磁性体URhAlの圧力効果に力を入れた。器用ではない自分には180 μ m以下の極小試料に4端子を付けるのは至難の業だったが、修行の成果かそのうち慣れた。しかし極小UBe₁₃にスポットする際、試料が割れてしまうことが度々あった。端子を付けた試料はダニのようで、自分の不器用さのためか、静電気のためかよくどこかに飛び跳ねていき、いつも探すのに苦労した。最も困難だったのは、抵抗端子と金属ガスケットの絶縁だ。絶縁にはアルミナとスタイキャストの混合物を作り、オープンで焼き固めるのだが、これが中々上手くいかない。Danielはチューイングガムのような硬さだ、と言う。その感覚を理解するのは難しく、一つセッティングを仕上げるのに約一週間もかかっていたが、DACをクランプした際に試料から端子がとれてしまうのは日常茶飯事だった。失敗の繰返しは毎回絶望的だったが、それをリセットするには気分転換を要した。週末グルノーブル市街を一望できるバステューユによく走りに行き、冬はスキーに毎週のように行った(写真)。また、芸術先進国であるフランスでは美術館がとても充実して

[15] D.E. MacLaughlin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **53**, 1833 (1984).

[16] C. Tien and I. M. Jiang, Phys. Rev. B **40**, 229 (1989).

[17] F. Kromer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81**, 4476 (1999).

[18] H.R. Ott *et al.*, Phys. Rev. B **31**, 1651(R) (1985).

[19] R.H. Heffner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **65**, 2816 (1990).

[20] M. Sigrist and T. M. Rice, Phys. Rev. B **39**, 2200 (1989).

[21] B. Batlogg *et al.*, Phys. Rev. Lett. **55**, 1319 (1985).

[22] Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 217001 (2012).

[23] Y. Shimizu *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 093701 (2011).

[24] Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 024502 (2016).



写真1. (左) タ方バステューユから眺めたグルノーブル市街。Alpe D'huez (高度約3000m) にて。(右) オルセー美術館とロダン美術館 (パリ)、『Le Penseur』(Rodin) の前で。

いた。絵画や彫刻などの芸術に触れることは、疲弊した心を潤すには大事だった。それは芸術による癒しという意味ではない。近代芸術を創った芸術家たちの独自の感性や、写実主義にあるような情性を捨て自己を打ち開いていったその精神的エネルギーに心が揺さぶられたのである。本業の方は中々進まなかったが、毎回新たな工夫・改善を施していけば上手くいくことがあり、Danielと協力し一気にデータを取った。He駆動式低温加圧システムを開発したBernard Salceは既にCEAを退職していたが、特任の職員として在籍し、よく一緒に測定した。仲間とフランス語を楽しげに話す原研の神戸さんもCEAに数か月滞在していた。語学も研究生生活を楽しく過ごすには大切だと感じた。週

一でAlliance Françaiseの語学学校に行ったが、それでは全然足りなかった。毎日10単語覚えれば一年で3000語以上覚えてしゃべれるはずだ、と単細胞な私の考えであったが、問題は日本語にも英語にもない音や90種類近くもある動詞活用の多さだった。フランス語のテレビを見、本や新聞を読み、フランス語は殆ど毎日やった。研究所で英語は通じたが、敢えて使わないようにした。当時博士課程だったTristanは席が隣で遍歴強磁性体URhAlの圧力効果や遍歴メタ磁性体UCoAlの一軸圧効果を共同研究したが[25,26]、彼とはしょっちゅう世間話をし、よく飲みに行っては文法を気にせず雑談をした。一見研究とは関係ない仏語だったが、できないことに一からチャレンジしていくことは、新しい自己の発見だった。また、フランス独特の文化や言語からは今まで知らなかった視点に気づかされることがあった。言葉や食文化はフランス人のアイデンティティとして深く根付いており、とくに言葉により仲良くなったことが度々あった。移民の国、フランスでは言葉や文化といったものが人々を繋いでいるように思われた。彼らは私の下手くそなフランス語を笑わず、真剣な目で聞いてくれたのが印象的だった。重要なのは発音云々ではなく、何を言いたいのか、だったのだ。充実した滞仏二年間だったが研究結果を世に出すには時間がかかってしまった。Jacques FlouquetやJean-Pascal Brison、Daniel Braithwaiteは私の論文原稿に関してたくさん議論してくれURhAlやUCoAlの結果は比較的早く論文になったが、 UBe_{13} の論文はあれやこれや考えているうちに、とうとうお蔵入りしてしまった。殆ど雑談になってしまったので、そろそろ真面目な話に戻ろう。

日本に帰国し物性研特任研究員として榊原研に所属した。柏では多くの助教・学生が夜遅くまで切磋琢磨しており良い刺激を受けた。榊原先生と橘高さんを始め、親切な研究室の人々のおかげでポストドクという不安定な時期を乗り越えることができた。榊原研ではエキゾチック超伝導対称性の研究が精力的に行われていたので、興味の方向

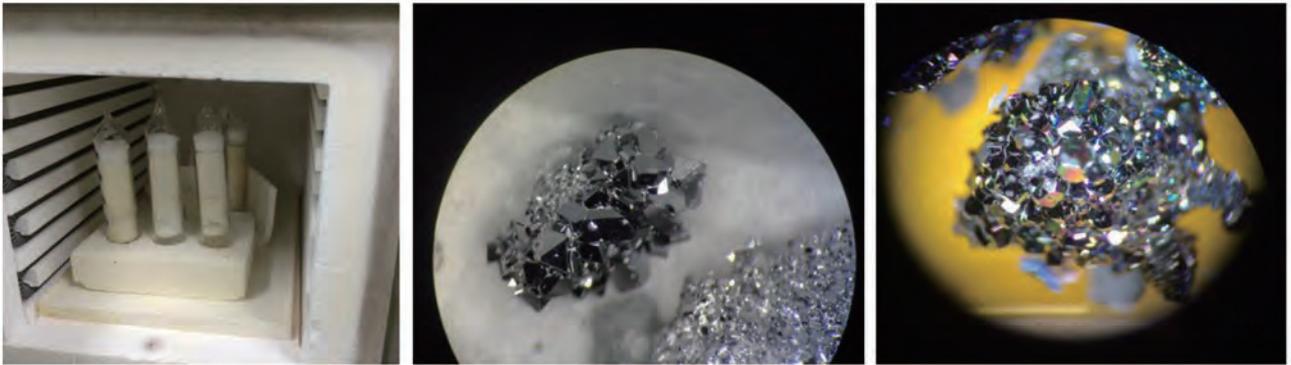


写真2. UBe₁₃系の単結晶育成仕込みと得られた結晶。

が合致し、UBe₁₃はどのような超伝導対称性を持つのか?という疑問を中心に取り組んだ。驚いたことに、極低温比熱の磁場中角度依存性の実験結果は、ノードをもつ超伝導体に見られる $C(H) \propto H^{0.5}$ 的な振舞い[27]ではなく、フルギャップ的な準粒子励起構造を強く示唆した [28]。UBe₁₃の H_{c2} はPauli limitを大きく超えるため、s波超伝導では説明できない。実際、立方晶のスピン三重項超伝導状態にも A_{1u} 対称性や $E_u(2z k_z - x k_x - y k_y)$ など、フルギャップをもつギャップ関数は存在する[29]。また、バンド計算からは(非常に小さい電子面を除いては)<111>方向にフェルミ面がないため[30]、<111>方向にポイントノードを持つ可能性もある。

この系の超伝導を理解する上で立ちはだかるのは、やはり $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ の多重相図である。 $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ は非常に試料依存性が大きく、純良単結晶を得ることがとても難しい。最近の報告にもあるようにfluxのAlが結晶内部に混入し試料依存性に影響を及ぼしてしまうようである[31]。現在、金研大洗センターに就いているが、物性研所属時から共同利用を通して大洗でも $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ 系単結晶育成を重点的に行ってきた。特にAl-flux法で $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ (x量をいくつか変えて) 試料を作りまくったが、明確な二段転移を示すサンプルはなく、転移がなまってブロードな一つの転移しか示さないものばかりだった。希望を持って測るもダメ試料ばかりで、Camusの小説に出てくるシーシュポスの神話がよく心に思い浮かんだ(重い大岩を山頂に持ち上げた途端に岩は転がり落ち、永遠に無益な労働を強いられる主人公と、あらゆる不条理?に面する現代人を重ね、人生の意味を問う、という話)。毎回賭ける、いや、もはや遊ぶ?のような心境で、馬鹿になって測りまくった。輝く結晶一つ一つを眺めたときの感動は、いろんな苦悩を打消し、無心にさせる(写真2)。全部測ってみたいとすら思うが時間が許さない。何個測っても、良い試料にはなかなか巡り会えない。違うTh組成も含め、百個以上測定しただろうか。ラウエ写真も何枚撮ったか知れない。これでは神戸さんがいつか言ったドーピング蟻地獄に陥ってしまう。すぐに解決しては詰まらないと開き直り、別の角度からの

[25] Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 125115 (2015).

[26] Y. Shimizu *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 023704 (2015).

[27] Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **117**, 037001 (2016).

[28] Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **114**, 147002 (2015).

[29] E. Blount, Phys. Rev. B **32**, 2935 (1985).

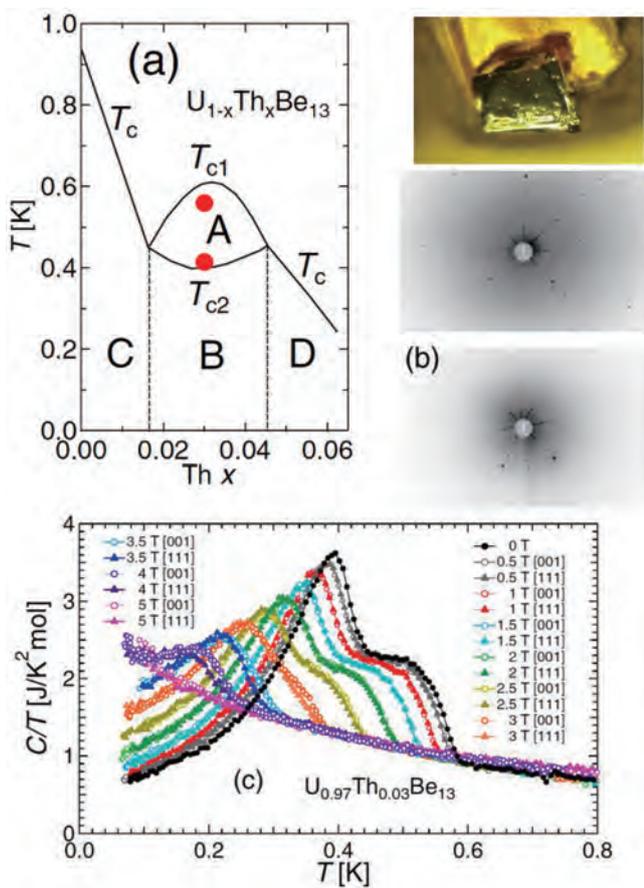


図 1. (a) $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ の超伝導相図 [17-19,32]。 (b) 単結晶 $U_{0.97}Th_{0.03}Be_{13}$ と Laue Spot。 (c) 同試料の比熱の温度依存性 ($H//[100], [111]$) [32]。

に明確な二段転移を示したのである! [図1(c)]。二段転移試料の育成方法は未確立であるが、かくして情熱と幸運? により得られた小さな虎の子結晶を使い、極低温測定を行った。多結晶に対する先行研究からは明らかでなかった重要事実は、「高温 $T_{c1} \sim 0.6$ K 転移と低温 $T_{c2} \sim 0.4$ K 転移が全く違う磁場中異方性を示す」ことである。これは $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ の二段転移が不均一な超伝導ではなく、本質的に対称性の異なる秩序状態が T_{c1} と T_{c2} で実現していることを示唆する [32]。先行研究では $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ における「 T_{c2} での転移は SDW 転移で、母物質の B^* はその前兆である」と言われていた [34]。しかし、 $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ における $T_{c2}(B)$ は『等方的』で、 UBe_{13} に対して比熱で観測した B^* の『異方的な』振舞いとは明らかに違う [32,35] (図 2)。つまり UBe_{13} の B^* 異常と $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ の T_{c2} 転移は全く異質のものである。

アプローチも並行して行った。そもそも先行研究の $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ の二段転移は偽物ではないかと疑ったが、後にわかるように、やはり本質であり、先人の偉大さに感嘆するのだった。これまでアーク溶解した UTh 合金を Be, Al と一緒に坩堝に入れ、石英管に封じ切って単結晶を育成していた (写真 2)。この方法では、別の個体はもちろん、結晶内部ですら Th 濃度が数% の誤差で仕込み値と異なっている可能性があることに気づいた。というも、同じ単結晶から切り出した試料ですら転移点が違うことがあったのだ。単結晶が多結晶よりも均一・純良であるとは限らないのである。そこで $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ 多結晶アーク溶解を試み、先行研究のような試料が得られるか試した。蒸気圧の高い猛毒 Be (+放射性 UTh) で真っ黒になったアーク炉を掃除するのは危険作業であったが、ルーチンにはない緊張感があった。危険に直面した方が、心が燃焼するのだ。均一多結晶を作るのが当初の目的だったが、顕微鏡で観察するとボタン表面に小さな単結晶が析出していた。それを切り取り、X線を撮ると結晶方位が揃っており衝撃だった [図1(b)]。しかもその単結晶は比熱

[30] K. Takegahara and H. Harima, *Physica B* **281-282**, 764 (2000).; T. Maehira *et al.*, *Physica B* **312-313**, 103 (2002).
 [31] H.M. Volz *et al.*, *Philosophical Magazine* **98**, 2003 (2018).; A. Amon *et al.*, *Sci. Rep.* **8**, 10654 (2018).

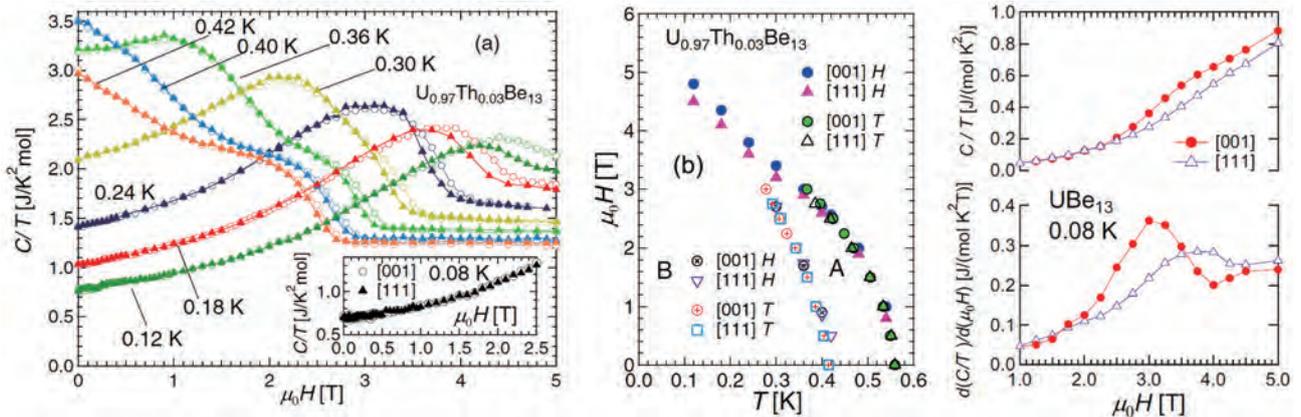


図 2. $U_{0.97}Th_{0.03}Be_{13}$ における比熱の磁場依存性 ($H//[100], [111]$) と得られた H - T 相図 ($H//[100], [111]$)。外側の高温の転移 (T_{c1}) のみ異方的となる [32]。母物質 UBe_{13} における比熱の磁場依存性 ($H//[100], [111]$)。異方的な B^* 異常の振舞いが見られる [35]。

それでは、 $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ における低温の T_{c2} 転移は磁気転移なのか？ 或いは超伝導秩序変数に関する異常なのか？ 極低温直流磁化の温度依存性からは、反強磁性転移を示すような振舞いは T_{c2} (超伝導領域) で観測されなかった [32]。さらに中性子散乱によっても反強磁性秩序は観測されていないため [36]、 $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ の二段転移は超伝導対称性に関する相転移である可能性がもっともらしい。さらに極低温比熱の磁場角度依存性からは、母物質と同様にフルギャップ的な準粒子励起が観測された [32] (図 2 挿入図)。 μ SR の先行研究も踏まえると [19]、 $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ (図 1 の B 相) は T_{c2} 以下ではフルギャップのかつ時間反転対称性の破れた超伝導が実現していると考えるのが自然である。実際、 E_u 対称性であれば、フルギャップの対称性 $2z k_z - x k_x - y k_y$ やポイントノードをもつ $z k_z - y k_y$ 、及びそれらの線形結合 $x k_x + \varepsilon y k_y + \varepsilon^2 z k_z$ ($\varepsilon = e^{i(2\pi/3)}$) ($\langle 111 \rangle$ にのみポイントノード) の組み合わせにより $U_{1-x}Th_xBe_{13}$ 多重相図を説明できる [32, 33]。しかし、 E_u 縮退モデルでは $x = 0.03$ 付近でなぜ超伝導転移が極大 (図 1) になるのか、またなぜ限られた Th 濃度区間でのみ縮退が破れるのか疑問が残る。最近、 UBe_{13} に対し超高压 10 GPa までの超伝導・常伝導の圧力依存性を調べ 6 GPa で超伝導相が消失するという、長らくお蔵入りしていた CEA で行った実験の論文を出した [37]。 H_{c2} は常圧から高圧にかけて Pauli limit が効くような振舞いから orbital limit 的な振舞いになる。面白いことに、 H_{c2} の全圧力依存性がスピン三重項超伝導 E_u 対称性のみでは説明がつかず、 A_{1u} 対称性との混合状態によって説明できる [37] (図 3)。常圧下では A_{1u} が優性であると考えれば、比熱のフルギャップ的な振舞いも説明する。また A_{1u} には等方的に常磁性効果が効くので、母物質に対して得られている κ_2 の振舞いも説明する [23, 24]。このように UBe_{13} では常圧下と高圧下で A_{1u} と E_u の縮退が起こっており、一方で格子定数が母物質よりも大きく負の圧力に対応する Th 置換系

[32] Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 100505(R) (2017).
 [33] K. Machida, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 033703 (2018).
 [34] F. Kromer *et al.*, Phys. Rev. B **62**, 12477 (2000).

[35] Y. Shimizu *et al.*, J. Mag. Mag. Matt. **400**, 52 (2016).
 [36] A. Hiess *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 064531 (2002).

の低温B相では $A_{1u} + iE_u$ などのnon-unitary状態が実現している可能性もある。 $A_{1u} - E_u$ 混合状態はこれらが偶然縮退しているということであり[38]、ペアリングが複数存在することを意味する。実際になぜそのような超伝導の基底状態が実現するのかを考えるには、非フェルミ液体と超伝導の関わりが重要である。図3の温度-圧力相図をみると、非フェルミ液体状態の有無が UBe_{13} の超伝導の発現機構と密接に関わっているのは明らかであり、その理解のためにはさらなる研究が必要である。また、 B^* 異常という奇妙な磁気異常が超伝導相内

でのみ観測されることから、この現象は超伝導に付随した現象であると考えられるが[22,24]、超伝導の秩序変数と関わった異常なのか、超伝導相内でのみ起こる何らかの秩序相なのか、未だ不明である。残された課題は尽きない。

気づけば解説記事というより雑談の多い記事になってしまった。論文的解説は書いていると眠くなってくるので、時間軸で自分の研究を振り返ってみた。自分の性格のためか道草の多い研究だったが、ちょっとした遊び心が新たな解決の糸口になったり、研究には一見関係ないことが原動力になることもあった。寛大な心で支えてくださった方々に深く感謝したい。この記事では橘高俊一郎、榊原俊郎、町田一成、中村翔太、芳賀芳範、網塚浩、柳澤達也、青木大、本間佳哉、仲村愛、Daniel Braithwaite、Jean-Pascal Brison、Bernard Salce、(敬称略)との共同研究 [24,32,37]を中心に述べた。また、進行中の研究結果に関する共同研究者の方々、また有益な議論をして頂いた星野晋太郎、横山淳、藤秀樹各氏(敬称略)に感謝したい。

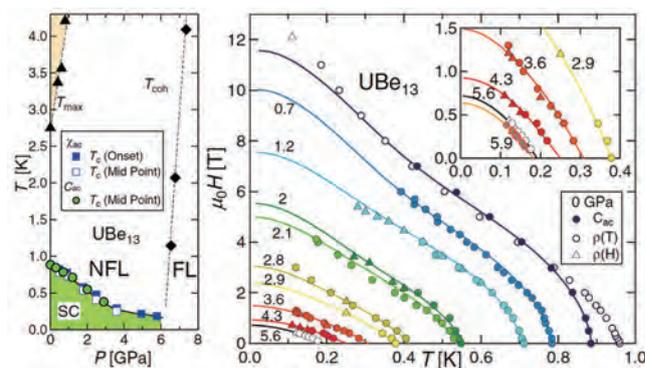


図3. UBe_{13} における超伝導の温度-圧力相図。6GPa付近で超伝導が消失する[37]。 H_{c2} の圧力実験結果とスピン三重項混合 $A_{1u} - E_u$ 状態による再現結果[37]。

[37] Y. Shimizu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **122**, 067001 (2019).

[38] I. A. Fomin and J-P. Brison, J. Low. Temp. Phys. **119**, 627 (2000).



カイラル磁性：実験の立場から

大原 繁男

名古屋工業大学大学院 工学研究科 物理工学専攻

1. はじめに — 分野の常識を持つ

私たちは研究に際し「分野の常識」を持つ必要があります。佐藤英行先生は「得られた実験結果の検討において、関連分野の常識の備えと執拗さが、大事です」と記されました[1]。この助言を読んだ頃、私は奇妙な磁化曲線に遭遇しており、それがカイラル磁性によるものと気づいたとき、このことを痛感しました。

初学者にとって分野の常識を持つことは容易ではありません。そんなときに役立つのが、ニュースレター

や夏の学校のテキストだと思えます。ここではカイラル磁性の解説を試みますが、私も初学者にすぎません。しかし、私が分野の常識を持とうとして、体験したこと、学びつつあること、考えていることを紹介すれば、みなさんの役に立つと考えて執筆を引き受けました。カイラル磁性については優れた解説がすでに多数あります[2]。この解説をきっかけに学んでいただくと幸いです。

そもそもカイラリティ、日本語で対掌性、とは何でしょう。何が面白いのでしょうか。結晶構造が対掌性を持ち、それが磁性と結びついたとき、さらには伝導と結びついたとき、面白い物理が予想されます。しかし焦らずに行きましょう。デカルトは「裸足になった自分の両足を見下ろして、笑い出さない者は、ユーモアのセンスに欠けているのか、対称性ということが分かっていないかのどちらかだ」と言っています[3]。私はユーモアのセンスには自信があるので、対称性が分かっていないようです。対称性から始めましょう。

2. 対象物の対掌性と対称性 — ソンケ群

対掌性をもつ結晶はソンケ群(Sohncke space group)と呼ばれる空間群に属しています。図1は結晶空間群が対掌性の観点からどのように分類されるかを示したものです[4]。対掌性とは何でしょう。手のひら(掌)のように、鏡に映した像(鏡像)が元の像(原像)と一致しないこと、という答えが多いでしょうか。このことを対称操作から整理します。

図2(a)のように座標を置き、 xy 面を鏡映面とする鏡映操作($m=\bar{2}$)を行列 M_{xy} で表すと、式(1)中の 3×3 行列になります。これにより、鏡映操作は z 座標だけを反転させることがわかります。つまり鏡像は、よくある誤解として左右が

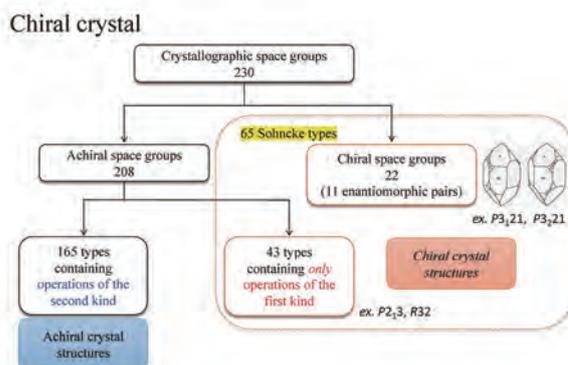


図1 ソンケ群

[1] 佐藤英行, 重い電子系の形成と秩序化ニュースレター, **5** (2), 6 (2013).

[2] 例えば, J. Kishine and A.S. Ovchinnikov, Sol. Stat. Phys. **66**, 1-130 (2015); Y. Togawa, Y. Kousaka, K. Inoue, and J. Kishine, J. Phys. Soc. Jpn., **85**, 112001 (2016); また、『固体物理』誌には本稿に係るわかりやすい解説が多数掲載されている。

[3] H. Brunner, 柳井浩(訳)『右?左?のふしぎ』丸善出版(2013)。

[4] http://reference.iucr.org/dictionary/Sohncke_groups. International Union of CrystallographyのOnline Dictionary of CRYSTALLOGRAPHYは結晶学の言葉の理解などに役立つ。

逆になるのではなく、前後が反転していると理解できます。

$$M_{xy} \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\cos \pi & \sin \pi & 0 \\ -\sin \pi & -\cos \pi & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} x \\ y \\ -z \end{pmatrix} \quad (1)$$

注目すべきは行列式です。鏡映も含め、回反操作の行列式は-1となり、第二種対称操作と呼ばれます。回転操作の行列式は1となり、第一種対称操作といいます。並進も加えると、第一種には並進とらせん、第二種には映進が加わります。対掌性をもつ物(Chiral, キラル, カイラルな物)に第二種操作を行なった後、第一種操作を用いても元に戻せません。つまり、第二種操作により、左右性が逆の状態に移ります。対掌性をもたない物(Achiral, アキラル, アカイラルな物)は、第二種操作を行なった後に第一種操作により元に戻せます。これにより対象物が対掌性を持つかどうか対称操作で調べられます[5]。図2のつつる人形は、(a)はカイラル状態、(b)はアカイラル状態です。

対掌性は結晶に限ったことではありません。対掌性をもつ物(例えば、空間群、結晶、分子など)には、左と右で表現される2つの状態(例えば、 $P3_121$ と $P3_221$ 、左旋性水晶と右旋性水晶、L-グルタミン酸とD-グルタミン酸など)が存在します。図1の理解に戻ります。230の結晶空間群の対掌性を吟味すると208のアカイラルと22(11対)のカイラル空間群に分類できます。さらに208のアカイラル空間群は第一種操作「のみ」をもつ

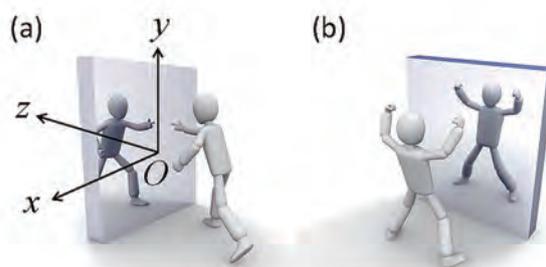


図2 鏡映操作

43の空間群と第二種も含む165の空間群に分けられます。この165の空間群に属する結晶は、対称操作に第二種を含むことから、アカイラル構造を持っています。残りの第一種対称操作のみをもつ65の空間群をまとめてソクケ群と呼び、ソクケ群に属する結晶は鏡像体が許されます。簡単には、空間群を国際記号で表したときに、数字しか含んでいなければソクケ群に属します。注意点は、カイラル空間群と言ってよいのは22(11対)の空間群だけであることです。

これで、結晶空間群が決定できれば、カイラル結晶かどうか判別ができる常識が身についたことになります。

3. 結晶の絶対構造の決定 — 裏も表も測る

新物質を発見した場合、その構造を決定することは極めて重要です。通常、X線を用いて結晶構造を測定しますが、カイラル結晶の場合は、異常散乱を用いて、その絶対構造(absolute structure)を決定する必要があります。

[5] ネスポロ・マッシモ, 日本結晶学会誌, **58**, 251 (2016).

[6] H. D. Flack and G. Bernardinelli, Acta Cryst. A55, 908 (1999).

[7] 齋藤喜彦, 日本結晶学会誌, 30, 25 (1988).

ます[6, 7]. 異常散乱と絶対構造の測定について説明します.

まず, 異常散乱について簡単に述べます. 元素のX線吸収スペクトルは波長とともに増大しますが, K端やL端といった吸収端で急激に減少します. 吸収端から離れた波長での散乱を正常散乱と呼びます. 吸収端近傍では入射X線が一部原子に吸収され, 異常散乱が生じます. 近年, 散乱X線強度を精度よく測れるようになり, 実験室系の単結晶X線回折装置において異常散乱の観測が可能になりました. 重要なのは, 正常散乱では原子散乱因子が実数であるのに対し, 異常散乱では複素数になることです.

原子により散乱されたX線の振幅と位相は式(2)の構造因子で与えられます. ある結晶面の表と裏からの反射

$$\begin{aligned} F(hkl) &= \sum_{j=1}^N f_j \exp\{2\pi i(hx_j + ky_j + lz_j)\} \\ F(\bar{h}\bar{k}\bar{l}) &= \sum_{j=1}^N f_j \exp\{-2\pi i(hx_j + ky_j + lz_j)\} \end{aligned} \quad (2)$$

を考えたいので, 指数 hkl と $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ について示しました. ここで f_j は原子散乱因子で, x_j, y_j, z_j は決定したい原子座標です. 正常散乱では, f_j が実数のため, 式(2)は互いに複素共役になり, 同じ強度になります. つまり, ある結晶面の表と裏からの反射強度は等しいというフリーデル則が成り立ちます. 異常散乱が寄与すると, f_j が複素数になることから, フリーデル則が破れる場合がでてきます.

右と左の結晶の方位の違いも含めた原子の配置のことを絶対構造といいます. 互いに対掌な原子配置があったときに, 適切な座標軸により, それぞれの原子座標は (x_j, y_j, z_j) (右結晶) と $(-x_j, -y_j, -z_j)$ (左結晶) にとることができます. 結晶が反転心をもつ場合は, 原子座標 (x_j, y_j, z_j) に対して反転操作した $(-x_j, -y_j, -z_j)$ に同じ原子が存在しますから, 異常散乱が影響してもフリーデル則は成立します. しかし, 反転心がない場合は, 異常散乱があるとフリーデル則は破れ hkl と $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ 反射に強度差が生じます. そこで hkl と $\bar{h}\bar{k}\bar{l}$ とを独立の反射として測定して構造解析をおこなうことにより, 絶対構造が決定できます.

異常散乱を考慮するために導入されたのが次式のFlackパラメータ x です[8,9]. Flackパラメータは, 測定

$$I(hkl) = (1 - x)|F(hkl)|^2 + x|F(\bar{h}\bar{k}\bar{l})|^2 \quad (5)$$

している反転心のない結晶の反転双晶を仮定し, 解析のために置いたモデル構造に対して構造が反転している体積の割合を x としています. $x=0$ であれば, モデル構造と一致しています. $x=1$ であれば, 測定している結晶はモデル

[8] H. D. Flack, Acta Cryst. **A39**, 879 (1983).
[9] 大場茂, 日本結晶学会誌, **47**, 285 (2005).

構造を反転した構造を持っています。Flackパラメータは、原子座標など他の構造パラメータと独立性があり、標準偏差も得られます。絶対構造を決める場合、その標準偏差が十分小さくなっているかどうかの確認が必要です。結晶の表も裏も十分なデータをとること、試料形状の影響が無視できるかどうかにも注意しなくてはなりません。このような注意を守れば、カイラル結晶の絶対構造を決定できるようになります。

私が冷や汗をかいた経験を紹介します。我々が研究している三方晶 YbNi_3Al_9 は空間群 $R32$ (No.155, D_3)に属すカイラル物質です。ある時、X線回折実験を後ろで見ていると測定していた学生が「あー、だめだ、六方のやつだ」と言うのです。説明を聞くと、仮測定をして、質の高い結晶かどうかを判別していくが、その際に六方晶と判定される試料がある、とのことでした。違う物質が混じっているのかと問うと、そうは思わないと言います。それならば測定して解析しなさい、と助言しました。結果、主軸を同じくして右結晶と左結晶が反転双晶を形成しており、Flackパラメータは約0.5となりました。その時まで学生が報告するFlackパラメータは1か0でしたから、 YbNi_3Al_9 では反転双晶はないと判断してしまっていたところでした。

4. 反対称相互作用と守谷ルール

カイラルな結晶構造に磁気モーメントが配置されると磁気構造にねじれが生じることがあります。図3は微視的な結晶構造対掌性と巨視的な磁気構造対掌性が反対称スピン軌道相互作用を介して結びつく概念図です。磁気モーメントが軸性ベクトルであることも大事な基礎知識です。

いよいよDzyaloshinskii-Moriya相互作用(DMI)[10,11]の話ですね、と言ってもらえると嬉しいのですが、正直なところ、DMIは直感的に理解しようとしても(少なくとも私には)歯が立ちません。そこで結晶磁気異方性から考えてみます。磁気秩序が生じると、磁気モーメントは磁化容易軸と呼ばれる結晶構造と関連づいた向きを持ちます。交換相互作用(ハイゼンベルグ相互作用)は等方的で対称相互作用(symmetric interaction)ですから、磁気異方性は交換相互作用からは生まれません。結晶磁気異方性は、磁気モーメントが結晶構造となんらかの結合をしていることを意味しています。一般に、格子と結合するのは電子の軌道です。結果、スピンと格子はスピン軌道相互作用

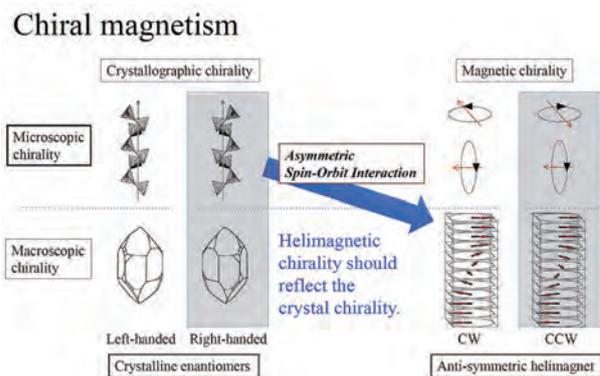


図3 結晶対掌性はどのように磁気構造に影響するのか

[10] I. E. Dzyaloshinskii, Sov. Phys. JETP **19**, 960 (1964); Sov. Phys. JETP **20**, 223 (1965); Sov. Phys. JETP **20**, 665 (1965).

[11] T. Moriya, Phys. Rev. **120**, 91 (1960).

用を介して格子と結合します。

この軌道の寄与は磁気相互作用にも異方性を与え、反対称相互作用 (antisymmetric interaction) が生じます。反対称相互作用は、一般にDMIと呼ばれ、二つのスピン S_A と S_B について、

$$D \cdot (S_A \times S_B) \quad (4)$$

と表すことができます。 D はDMベクトルと呼ばれる実ベクトルで、考えている2つの磁性イオンA, B間の対称性によってその有無と方向が決定されます。その大きさはスピン軌道相互作用に比例すると言ってよいと思いますが、せいぜい、1K程度のエネルギーしかありません。

反対称相互作用が磁気構造に影響するかは、次のいわゆる守谷ルール[11]で検証しなくてはなりません。

2つの磁性イオンA, Bの中点をCとしたとき、

- i) C点に反転中心があるときは $D = 0$ 。
- ii) C点を含むABに垂直な鏡映面があるとき、 D は鏡映面に含まれる。
- iii) ABを含む鏡映面があるとき、 D は鏡映面に垂直。
- iv) C点においてABに垂直な2回軸があるとき、 D はその2回軸に垂直。
- v) ABを軸とする n 回軸 ($n \geq 2$) があるとき、 D はABに平行。

DMIにより $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$ (ヘマタイト) の弱強磁性が説明されたと「一行」書いてある教科書をよく見ますが、簡単ではありません。 $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$ の空間群は $R\bar{3}c$ であり、反転心があります。 $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$ の弱強磁性を理解するには、単位胞内にある4つの鉄イオンのすべての対^{ついで}に対するDMベクトルの向きと大きさを仮定し、そこに磁気モーメントを配置して、考えなくてはなりません[12]。 $\alpha\text{Fe}_2\text{O}_3$ では、守谷ルールと照らして、DMベクトルは c 軸を向いています。 モーリン温度と呼ばれる260K以下では磁化容易軸が c 軸であるため、式(4)からわかるように、DMIは働きません。 モーリン温度以上では容易軸が c 面内に変わります。すると、DMIでエネルギーの得が出るような磁気モーメントの配列となり、傾角反強磁性秩序による弱強磁性が現れます。

DMIという言葉は広く使われていますが、私は安易な使用に抵抗感を持っています。例えばスピントロニクス分野では薄膜界面の反転対称性の破れによる界面DMIといった表現があります。これは、半導体表面の自由電子に対するラシュバ効果という言葉を経晶に対しても使うことと似ており、対称性は同じでも対象物の状態は異なるので気になります。希土類金属磁性体を考えてみると、強くLS結合した磁気モーメントについて磁気異方性の強い状

[12]安達健五,『化合物磁性 局在スピン系』裳華房 (1996).

態での反対称相互作用を考えることになり、磁気相互作用は伝導電子を介したRKKY相互作用です。これは α -Fe₂O₃とは異なる状況です。希土類金属磁性体においても結晶対掌性を反映した磁気構造が現れるのでしょうか。

5. 希土類金属間化合物YbNi₃Al₉のカイラル磁性

2012年3月2日の夕方に私は東京で寒気を感じていました。それは折しも降っていた冷たい雨のせいではなく、第43回化合物新磁性材料研究会「キラル磁性体の構造と磁性」に参加して、カイラル磁性体で観測される磁化曲線の「常識」を知ったからでした。その常識は、カイラルらせん磁性体のらせん軸に垂直に磁場を印加すると、反対称相互作用のために磁気モーメントが左右同じように回ることができず、カイラルソリトン格子(Chiral soliton lattice (CSL))と呼ばれる磁気超格子構造が現れ、独特の下凸の磁化曲線になる

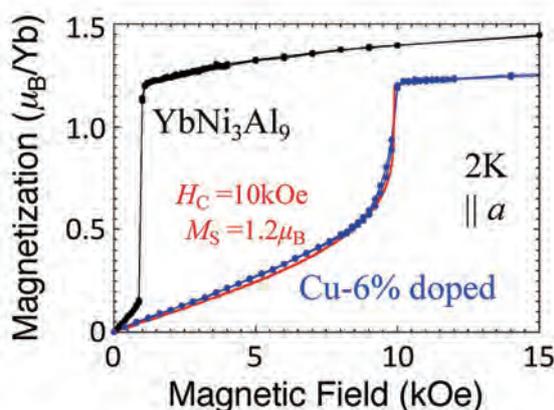


図4 YbNi₃Al₉およびCu6%置換試料の磁化曲線

というものでした[2]。図4はYbNi₃Al₉とNiをCuに6%置換した試料の磁気秩序状態(2K)における磁化曲線(磁場a軸)です[13]。Cu6%試料において下凸の奇妙な磁化曲線が現れていますが、CSLが形成される場合に現れる磁化曲線であり、赤線で示す岸根順一郎さん(放送大)による理論計算と一致します。同様の磁化曲線はカイラルらせん磁性体であるCrNb₃S₆においても観測されています[14]。当時博士後期課程の学生だった山下哲朗さん(現、日立化成)が磁化曲線をさして「なんですかね、これ」といったことを声まで覚えています。その疑問が解けた日でした。

YbNi₃Al₉はカイラル磁性体に違いない、と思いました。しかし、それを証明しなくてはなりません。磁気構造が対掌性を持つかどうかを磁化曲線から判断することは、もちろんです。YbNi₃Al₉が3.4K以下で伝播ベクトル $q=(0\ 0\ 0.8)$ のらせん磁性体となることは決定できていましたが、結晶の左右性と磁気構造の関係を調べるには、なんらかの偏極プローブを用いた測定が必要でした。

最初に、高阪勇輔さん(広島大(当時)、現大阪府大)とJ-PARCのBL-15 TAIKANで偏極中性子実験を行いました。中性子実験に用いた大きな試料では左右の結晶が混ざっており、結晶構造と磁気構造の関係は明らかにできませんでした。しかし、らせん磁気構造が左右対称ではなくどちらか一方に偏っていることまではわかりました。その後、松村武さん(広島大)が、円偏光を用いた共鳴X線回折により、結晶の右左と磁気構造のらせんの向きが1対1の関

[13] S.Ohara, S. Fukuta, K. Ohta, H. Kono, T. Yamashita, Y. Matsumoto, and J. Yamaura, JPS Conf. Proc. **3**, 017016 (2014).

[14] T. Miyadai, K. Kikuchi, H. Kondo, S. Sakka, M. Arai, Y. Ishikawa, J. Phys. Soc. Jpn., **52**, 1394 (1983).

[15] T. Matsumura, Y. Kita, K. Kubo, Y. Yoshikawa, S. Michimura, T. Inami, Y. Kousaka, K. Inoue, S. Ohara, J. Phys. Soc. Jpn., **86**, 124702 (2017).

係を持つことを立証し、 YbNi_3Al_9 がカイラルらせん磁性体であることが確定しました[15]. さらに、Cu置換した試料では、磁場中で磁気反射の高調波が観測されました。これはCSLの生成によるものと理解できます[15]. 中性子実験では大きくて、かつ、純粋に左右どちらかな結晶(enantiopure crystal)が必要なものに対して、放射光を用いた共鳴X線回折実験では結晶のある小さな部分について結晶構造と磁気構造を同時に測定できる強みが活きました。CSLを観測するには、ローレンツ電子顕微鏡法による実空間像の観察が有効[16]ですが、磁気秩序温度が低いことによる実験的な難しさから、実現できていません。

こうして YbNi_3Al_9 がキラル磁性体であることは立証できましたが、いろいろとよくわかっていません。

6. 希土類金属間化合物のカイラル磁性のこれから

希土類金属間化合物におけるカイラル磁性の特徴や今後の展開について、 $3d$ 遷移金属のカイラル磁性体の CrNb_3S_6 [14]や MnSi [17]と比較して述べたいと思います。図5は磁気モーメントの状態と磁気相互作用の視点から見た物質の状況です。 YbNi_3Al_9 やJ-Physicsの成果である立方晶 EuPtSi [18]では、磁気モーメントが局在しており、磁気相互作用が伝導電子を介した系になります。これは、 $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ を説明した絶縁体や活発に研究されているバンド磁性の MnSi とは異なる状況で反対称相互作用が働く物質が見つかったと言えるでしょう。DMベクトルの有無と向きについては、「対称性はウソをつかない」(岸根)の、守谷ルールは使えると考えられます。一方、DMベクトルの大きさ、すなわち、反対称相互作用の強さがどのように決定されるのかを解明する必要があります。また、スピン軌道相互作用によりスピン分裂したフェルミ面によるRKKY相互作用がどのような磁気構造を生じさせるのか、興味もたれます。

反対称相互作用の大きさとしては、らせん軸に垂直に磁場を加えた場合に、どの程度の臨界磁場で強制強磁性状態になるかが目安になります。これまでのカイラル磁性体では、その磁場は1T程度で、反対称相互作用の大きさは概ね1K程度にとどまり、物質系に依ら

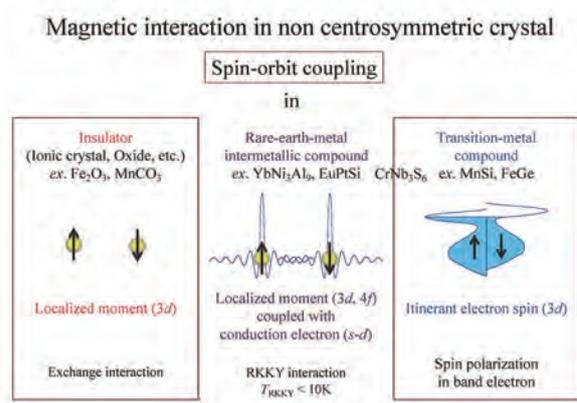


図5 希土類金属間化合物のカイラル磁性体の位置づけ

[16] Y. Togawa, T. Koyama, K. Takayanagi, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, Phys. Rev. Lett., **108**, 107202 (2012).

[17] Y. Ishikawa, K. Tajima, D. Bloch, M. Roth, Solid State Commun., **19**, 525 (1976).

[18] K. Kaneko, M. D. Frontzek, M. Matsuda, A. Nakao, K. Munakata, T. Ohhara, M. Kakihana, Y. Haga, M. Hedo, T. Nakama, Y. Ōnuki, J. Phys. Soc. Jpn., **88**, 013702 (2019).

なさそうです。これに対して、対称相互作用の目安として磁気秩序温度を用いると YbNi_3Al_9 と EuPtSi では数Kなのに対し、 CrNb_3S_6 は127K、 MnSi は29.5Kと一桁以上高くなります。このことが関係していると思われることに YbNi_3Al_9 と EuPtSi のカイラルらせん磁気構造の周期が CrNb_3S_6 や MnSi と比べると一桁短いことを挙げる事ができます。単純に考えると、カイラルらせん構造の周期は対称相互作用と反対称相互作用の比で決まります。反対称相互作用はあまり変わらないのに対して対称相互作用は一桁小さい結果、周期が短くなくてもよいのではないかと思います。

しかし、このことも単純ではありません。 YbNi_3Al_9 のCu6%置換試料では臨界磁場は10倍上昇し、CSLが明確に観測されます。つまり、反対称相互作用が強くなったと思われます。磁気秩序温度も3.4Kから6.4Kへと上昇しますが、2倍程度にとどまります。このことから、置換試料の方がらせん周期は短くなりそうですが、実際には長くなります[15]。そもそも、 YbNi_3Al_9 の磁性がなぜCu置換に敏感なのか、まだ解明できていません。Coで置換すると磁気秩序は抑制されることとNiとの電子数の違いから、 YbNi_3Al_9 の磁気相互作用はキャリア注入に敏感なのであろうと思われます。これがフェルミ面敏感に繋がるのであれば、RKKY相互作用におけるカイラル磁性の理解に役立つと考えています。

無機化合物におけるカイラルらせん磁性体はまだ数えるほどしか見つかっていません[2]。今後、物質を増やしていくことが必要です。しかし、例えば、機械学習で探査するにしても事例が少なすぎるかもしれません。私も新しいカイラル磁性体を求めて物質開発に取り組んでいきたいと考えています。しかし、それは容易ではなさそうです。例えば、 YbNi_3Al_9 とおなじ結晶構造をもつ磁性体は重希土類元素に対して作ることができ[19]、またAlをGaに変えても作れます。ところが、カイラルらせん磁性は今のところ YbNi_3Al_9 だけです。希土類金属間化合物は反強磁性になることも多く、また一軸異方性が強いとイジング磁性体や傾角反強磁性体になってしまいます[20-22]。カイラルらせん磁性の候補として、価数揺動から磁気秩序状態に圧力により調節した YbNi_3Ga_9 を挙げる事ができますが、立証には低温高圧下での偏極中性子散乱実験が必要です[23]。

希土類金属間化合物においてカイラルらせん磁気構造を生じるには、磁気モーメントがDMベクトルに垂直な面内にあり、かつ、自由に回転できることが必要です。 EuPtSi においてヘリカル構造やSkyrmion格子が生じる要因としてEuが $s_{7/2}$ と「S的」であることがあげられます。つまり、磁気モーメントが自由にまわることが重要です。軌道の寄与がなくては反対称相互作用が働かないのではないかと、という指摘はわかりますが、磁気異方性があれば反対称相互作用もあってよいくらいに私は考えています。おもしろい物質は絶妙な状態にある例の一つだと思います。

今後、どのような研究の展開が考えられるでしょうか。CSLやSkyrmion格子は磁壁の周期構造とみる事ができま

[19] T. Yamashita, S. Ohara, I. Sakamoto, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, SA080 (2011).

[20] H. Ninomiya, Y. Matsumoto, S. Nakamura, Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, K. Inoue, S. Ohara, J. Phys. Soc. Jpn., **86**, 124704 (2017).

[21] H. Ninomiya, T. Sato, Y. Matsumoto, T. Moyoshi, A. Nakao, K. Ohishi, Y. Kousaka, J. Akimitsu, K. Inoue, S. Ohara, Physica B, **536**, 392 (2018).

[22] I. Ishii, K. Takezawa, T. Mizuno, S. Kumano, T. Suzuki, H. Ninomiya, K. Mitsumoto, K. Umeo, S. Nakamura, S. Ohara, Phys. Rev. B, **99**, 075156 (2019).

[23] K. Umeo, T. Otaki, Y. Arai, S. Ohara, T. Takabatake, Phys. Rev. B **98**, 024420 (2018).

すし、希土類金属間化合物では強い伝導との相関が期待されます。例えば、磁気構造を電流で駆動することも期待できます[24]。収束イオンビーム(FIB)で小さく加工した YbNi_3Al_9 を用いた磁気抵抗の精密測定において、 CrNb_3S_6 [16]と同様に、磁気ソリトン生成に対応する磁気抵抗変化が観測されました[25]。 EuPtSi においても MnSi と類似した電流磁気効果が報告されています[26]。最近、 CrNb_3S_6 では非対称な電流磁気効果も観測されました[27]。磁気超格子であるCSLにおいて結晶格子との整合不整合の効果はないのでしょうか。 YbNi_3Al_9 のCu6%置換試料では、磁気伝播ベクトル $q=0.375c^*=(3/8)c^*$ でのピン止めが観測されていて注目されます[15]。

非弾性磁気散乱によるカイラルマグノンの観測にも興味もたれます。希土類金属のカイラル磁性体ではらせん周期が短いため、波数空間で磁気反射が核(格子)の反射から離れています。そのため、他の反射との分離がよく、小角散乱を用いなくても非弾性磁気散乱の観測が可能です。これは実験上の利点です。

結晶合成の立場からは、このような展開に備えて、大型かつ左右性の純度がよい結晶の育成手法の開発が求められます。 YbNi_3Al_9 については、結晶の大型化には成功しつつありますが、対掌性の制御はむずかしいです。希土類金属間化合物のカイラル磁性の研究はまだ始まったばかりです。今後も新しい物質が新しい物理を拓くことが期待されます。

最後になりましたが、支援と助言をいただいている、播磨尚朝先生はじめ、J-Physicsの方々、また共同研究者の方々にお礼申し上げます。特に、秋光純先生(岡山大)、井上克也先生(広島大)、岸根順一郎先生(放送大)、戸川欣彦先生(大阪府大)、大石一城先生(CROSS)、高阪勇輔先生(大阪府大)には、カイラル磁性の基礎から教えていただきました。この方々と第43回化合物新磁性材料研究会で出会わなければ、ここまでの研究はできませんでした。また、こんなカイラル磁性の研究会があるよと開催情報を私に教えてくださり、日々、根気よく議論してくださる同僚の壬生攻先生(名工大)に感謝いたします。

[24] F. Jonietz, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, A. Neubauer, W. Münzer, A. Bauer, T. Adams, R. Georgii, P. Böni, R. A. Duine, K. Everschor, M. Garst, A. Rosch, *Science* **330**, 1648 (2010).

[25] R. Aoki, Y. Togawa, S. Ohara, *Phys. Rev. B*, **97**, 214414 (2018).

[26] M. Kakihana, D. Aoki, A. Nakamura, F. Honda, M. Nakashima, Y. Amako, S. Nakamura, T. Sakakibara, M. Hedo, T. Nakama, Y. Ōnuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 023701 (2018), 023701.

[27] R. Aoki, Y. Kousaka, Y. Togawa, *Phys. Rev. Lett.*, **122**, 057206 (2019).

【お詫び】

本記事についてはVol.8印刷版に著者校正が反映されていないため、修正した内容を本Vol.8 Web版と Vol.9印刷版に再掲載しています。

(編集委員会)



カイラル磁性体の物理：理論の立場から

岸根 順一郎

放送大学 教授 (分子科学研究所 客員教授)

戸川 欣彦

大阪府立大学

Alexander Ovchinnikov

ウラル連邦大学

はじめに

つき合うほどにわからなくなる、という意味でカイラリティ (chirality) の概念ほど不思議なものはない。私は過去15年ほどカイラル磁性体のことをいろいろ調べてきたが、そもそも物質がカイラリティをもつだけでなぜあれほど多様な機能が生まれるのか、謎は募るばかりだ。本稿では、カイラル磁性研究についての個人体験にもとづき、カイラリティの謎と魅力について述べてみたい。真面目な?解説記事や論文[1-4]は最近いくつか書いたもので、本稿は気楽な雑談風を書くことをおゆるし願いたい (そうしないと解説記事の要約になってしまうので)。

カイラリティの役割

私の理解では、カイラリティが物理で果たす本質的役割 (能力) は二点にまとめられる。ひとつは「形態をダイナミクスに転換する能力」であり、もうひとつは「低対称環境によって運動の多様性を確保する能力」である。形態をダイナミクスに転換する、というのは要するに左右対称性が破れている、という単なる静的・構造的性質があるだけで、そこを通過する光や電子のダイナミクスが大きく影響を受けるといふことだ。しかも右か左か、という区別が直接ダイナミクスに顔を出す。次に、左右対称性が破れた形態は何らの対称性も持たない。これは、ネーターの定理によれば保存量がないことを意味する。保存量がないということは運動が縛られないということであり、この結果カイラルな環境を運動する粒子は運動の自由を謳歌できる。

ところで、量子ホール系やトポロジカル絶縁体のエッジカレントがカイラルであるという言い方がよくされる。カイラル超流動、カイラル超伝導という言葉も定着している。しかし、これらはいずれも「結果として運動の向きが左右いずれかに固定された」現象であって、現象の舞台そのものがカイラルであるわけではない。そもそも分子や結晶の形がカイラルだといろいろ面白いことが起きる、という事実は有機化学や生化学の分野で長らく議論されてきたテーマだ。生体分子のhomochiralityの起源は自然科学における最大の謎の一つである。ここでのカイラリティは結果でなくあくまで原因である。この意味で、最近では物理でも原因としてのカイラリティが注目されるようになったというべきだろう。

Dzyaloshinskii-守谷相互作用

私の学生時分、Dzyaloshinskii-守谷相互作用 (DMI) は特殊でマイナーな相互作用だった。芳田先生や金森先生の教科書には α -hematite の弱強磁性がこれで説明できることが書かれているが、ふーんそんなものがあるのかという程度で素通りしたものである。その相互作用がこの20年ほど磁性研究の表舞台に躍り出ている。今や

DMIについての解説は不要な時代である。宣伝めくが、DMIを冠した国際会議 (International Workshop Dzyaloshinskii-Moriya Interaction) が2011年以降、2年に一度サンクトペテルブルク近郊で開催されており、我々日本チームも運営に参加している。この会議では、狭義のDMIにとどまらず、広くスピン軌道結合 (SOC) が引き起こす物性が議論される。

DMIが重要視されるようになった背景には、SOCというこれまた昔は(大方の人にとって)マイナーな摂動に過ぎなかった効果の大ブレイクがある。これは本新学術領域の主題なので背景説明は不要だろう。SOCは、スピンという「スピノル空間の住人」を我々の空間の住人と結びつける唯一の手段である。

そもそもスピンとは何か?現代物理(とくに理論物理)は、時空対称性を群として捉え、その既約表現の基底(対称性適合基底)が張る空間が物理的に実現するはずだ、という信念のもとで発展してきた。しかし、既約表現の存在と対応する物理量の実在は別の話だ。ところが回転群の場合は面白いことが起きた。我々の棲む3次元空間の回転の群SO(3)は、回転を表すパラメータの数が3個(向きと角度)で、パラメータ空間はコンパクトだが単連結でない。となると、これを2重に覆うコンパクトで連結な被覆群があるはずだ。それがSU(2)である。そしてSU(2)の既約表現(半奇数スピン)の基底がスピノルである。ここまでは数学的な話だが、驚くべきことにそんな基底がほんとに実在していた。それがスピンである。「我々の空間は射影表現の基底としてのスピンを許す」あるいは「電子は3次元ユークリッド空間でなく複素2次元(実4次元)空間に棲んでいる」といえる。

SOCを通して、別の世に棲むスピンはこの世の結晶空間の対称性を“見る”。我々の立場からすると、SOCはスピンを操る「手」である。ここに、カイラリティという幾何学的性質が、SOCを通してスピンと結びつく舞台装置が準備される。

ところで、最近の物性物理の主戦場はトポロジカル物性など広い意味での「物質中の電磁気学」に回帰している。そこでは、試料端や界面での波動関数の位相の繋がり方が本質的であり、相互作用や乱れは二義的だ。境界や界面の低対称環境に由来する運動の多様性(波動関数の捻り)がバルクにどう跳ね返るか、といってもよいだろう。カイラル物質の研究は物質中で捻りの効いた(効かされた)波動関数に由来する電磁気学の問題である。ランダウ・リフシッツの教程に「連続媒質の電気力学」があるが、「連続カイラル媒質の電気力学」の探求はまだまだ未踏の領域なのである(これについては最後に戻る)。

カイラルソリトン格子

話をDMに戻す。この相互作用にはスピンを振る能力がある。強磁性交換相互作用に加えて、交替分布するDMベクトルがあれば弱強磁性が、一様分布するDMベクトルがあれば螺旋磁性(カイラル螺旋磁性)が現れる。螺旋磁性というと、交換相互作用のフラストレーションに起因する吉森型の螺旋磁性もよく知られている。しかし、吉森型の場合はスピン螺旋の右巻きと左巻きが縮退する。結果、DM型と見た目は同じでもダイナミクスが

全く異なる。DM型螺旋磁性の磁化過程を最初に論じたのはDzyaloshinskiiである。彼は1964年から65年にかけてこのタイプの螺旋磁性についての論文を3本書いた[5]。そして、この3部作の最後の論文で「ソリトン格子」の存在を予言した。DM起源のカイラル螺旋磁気構造に、螺旋軸に垂直な磁場をかけると螺旋構造とゼーマン

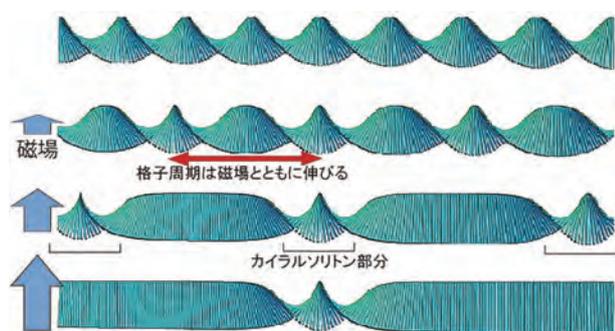


図1：カイラルソリトン格子の形成

相互作用による強制強磁性構造が競合する結果、螺旋1周期分（これをソリトンと呼んでいる）が周期的に並んだ秩序構造が顕れる。これがカイラルスピンソリトン格子（CSL）である(図1)。これはあくまで安定な基底状態であり、正真正銘の長距離秩序であってマクロコヒーレンスを持ち得る。

しかし、Dzyaloshinskiiが論文を書いた時代、この構造を実現する物質はまだ知られていなかった（実験に独立先行して理論予言するのがランダウス

クルのスタイルである）。そもそもカイラル螺旋磁気構造自体の実現例がなかったのである。この構造を実現するには二つの条件が必要だ。まず、1軸的なDM相互作用が必要である。次に螺旋構造を記述するには2次元の基底ベクトルが必要だ。つまり、既約表現として2次元(あるいは複素1次元)の基底を許す点群が必要だ。回転軸が2回どまりだと既約表現は1次元なので、3回以上の回転軸が必要になる。この条件を満たすのは、正方晶、三方晶、六方晶、立方晶の結晶である。さらに鏡面と反転心があってはならず、(もちろん)磁性を帯びないと話にならない。正方晶、三方晶、六方晶の場合は、DMベクトルが結晶主軸に沿って一方向に走り、これが磁氣的ならせん軸になる。我々はこのタイプをmono-axial chiral helimagnetと呼んでいる。立方晶系はDMベクトルが複数方向に走り得るので多様性(複雑さ)が増す。ここでは話を散らさないためにmono-axialのケースに的を絞る。

さて、ここまで分類して絞っても容易軸型の異方性があるとスピンはたちまちコリニアな強磁性に陥る。容易面型の異方性が強く、しかもその面に垂直にDMベクトルが走る必要がある。そのためには、SOC由来の磁気異方性が強すぎず、弱すぎず、言い換えれば軌道自由度が完全にクエンチもされず、さりとして高すぎず、といふかなり難しい要求をクリアする必要がある。こんな条件をクリアできる物質がそうそうないだろう、ということは容易に想像できる。

DMベクトルが一方向にのみ走る「1軸のカイラル螺旋磁性」の実例は、Dzyaloshinskii論文から20年近く後、宮台・守谷ら[6]によって報告された。カルコゲナイド層間化合物 CrNb_3S_6 である。最近になってこの物質の電子状態が徐々に明らかになり、上に挙げた条件が見事にクリアされていることが分かってきた。物質世界のミラクルとしか言いようがない。特に、Crを6配位で取り囲むSの結晶場対称性が点群 $D3d$ から神秘的なまでにわずか

な振じれを見せるなどは驚きである (Crから見たほぼ直線的な二つのSへ向けての角度が179.6度!)。この様子を図2に示す。

ところで守谷・宮台論文にはなぜかDzyaloshinskii 3部作のうち第1論文しか引用されていない。結果、第3論文で提唱されたCSLにも言及されておらず、実験的に見出された磁化カーブがCSL形成と整合することが見逃された。これは私の個人的理解であるが、この第3論文は(日本国内では)ほとんど世に知られておらず、現在でも(なぜか)電子版を入手する

のが困難である。おそらく、visibilityが低かったため見落とされたのだろう。私自身、カイラル磁性研究にのめり込んだきっかけは螺旋磁気構造に磁場をかけた際の磁化カーブを自分で計算してCrNb₃S₆の磁化曲線と見事に一致したことである。はじめ、これを自分が見つけたと完全に勘違いした。第3論文を知った時はショックだったが、Dzyaloshinskii論文では磁場の全域にわたる磁化(下に凸)の全景が示されていないのがせめてもの救いだった。いずれにせよ、Dzyaloshinskiiの偉大さを思い知った。

このあたりの話を2005年に青山学院の物性セミナーでしたところ、秋光先生が直ちに「いっしょにやりましょう」と言われた。「この年になると三つ子の魂がうずく」という趣旨のことを言われたのを覚えている。実際に秋光先生は白鳥紀一先生らと初期の螺旋磁性研究(ME効果によるchiralドメイン制御)を牽引された。昨年、白鳥先生とお目にかかる機会があり、当時の問題がまだまだイキていることを確認した。

その後、当時秋光研院生だった高阪勇輔さん(現、大阪府大、本領域メンバー)がこの物質の単結晶合成に成功した。カイラル物質の合成は「左右産み分け」を必要とする。これは難しい。高阪さんはこの課題と格闘し(今も格闘している)、さらに中性子回折で磁気構造のrefinementなどを精力的に進めた。理論の方では同世代のロシアの理論家であるAlexander Ovchinnikovさんと意気投合し、CSLが並進運動したり、伝導電子からのスピントルク転送で引きずり動かされる機構などを調べた[3]。

しかし、我々としてはCrNb₃S₆でCSLが実現しているはずだと確信していたものの実際に見た人がいない。2011年の夏ごろ、やはり実空間イメージが必要だということになり、その道のエキスパートである大阪府大の戸川欣彦さんにローレンツ電子顕微鏡での実証を持ち掛けた。数か月後、戸川さんから「見えましたよ」と連絡があった。CSLがホントにあった、ということで一同大興奮し、研究が勢いづいた[7]。

本ニュースレターで最隣接記事を書かれている大原繁男さん(名工大)から、Yb(Ni_{1-x}Cu_x)₃Al₉の磁化カーブを見せていただいたのは2014年のことである[8]。非常にきれいな下凸カーブで、しかもCSLの磁化公式とぴった

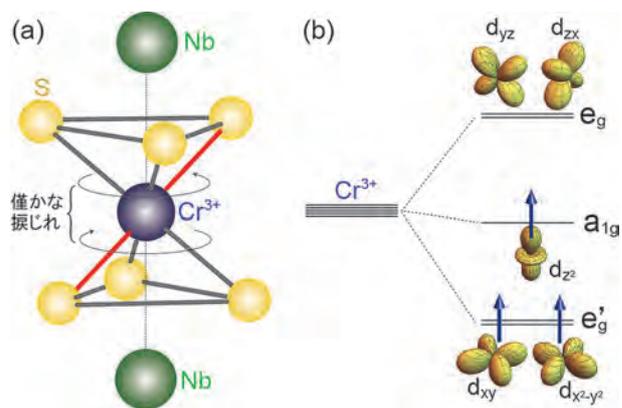


図2 : (a) CrNb₃S₆におけるCrS₆ブロックと(b)電子状態。ブロックの対称性はD3dをわずかに破るので、eg'の縮退も解けている。

り合うという。こうして、CSLの2例目が見つかった。松村武さん(広島大)らによる共鳴X線回折実験で、CSLに由来する高調波構造が見事に捉えられた[9]。すでに強調したように、カイラル螺旋磁性を実現するには非常に厳しい電子状態の条件をクリアしなくてはならない。電子状態の結晶場分裂とSOCが協奏し、コリニア磁気構造と螺旋磁気構造の間で微妙な競合が起きる。3dと4f系でCSLが実証されたことで、この繊細な電子状態そのものの研究も加速すると思われる。この点については以下でやや詳しく紹介する。

さらに、これらの系はいずれも(ほぼ)局在したスピンと伝導スピンの共存する系である。これらの間の(広い意味での)sd相互作用が引き起こす「磁気テクスチャと量子スピンの結合」も大変興味深い課題である。

スピンと軌道の分離

最近、CrNb₃S₆の電子状態に関する重要な進展があった。美藤正樹さん(九州工大)、大隅寛幸さん(理研SPRING-8)らは、この系でCr L_{2,3}端の軟X線磁気二色性を測定した。結果、SOC由来の軌道磁気モーメントと、スピン磁気モーメントを分離することに成功した[10]。総和則を用いた非常に繊細な解析により、Crの軌道磁気モーメントが全磁気モーメントの1%程度生き残っていることを検証した。これは、軌道自由度が少し生きていることの証左であり、この系の特異な磁気異方性を理解するうえで重要な手掛かりとなる。この結果は、獅子堂達也さん(ウィスコンシン大)による第1原理計算ともよく整合している。獅子堂さんは、Crのa_{1g}状態が完全に局在せずわずかなバンド幅を持つこと、このバンドがNbの4d軌道との混成に由来するものであることを早い時期に指摘していた。今回の成果は、これらの知見を踏まえてスピン自由度と軌道自由度が協奏してカイラル螺旋磁性が実現することを示したものと言える。

CSLの何が面白いのか

話をCSLに戻し、そもそもCSLの何が面白いのか、という点に触れておく。かつてアインシュタインはシュレーディンガーに向けて“if everything were linear, nothing would influence nothing”と言ったそうである。事実、「線型・対称・平衡」と三拍子揃った舞台は静寂である。量子力学は線形ヒルベルト空間の状態ベクトルについての理論であるが、ここから非線形古典現象を引き出す試みは現代物理の未解決問題の一つである。一方これらを片端から破る、つまり非線形・非対称・非平衡な舞台は賑やかである。CSLはまさにそんな舞台である。CSLは磁壁の周期的安定構造であり、磁気モーメントの分布は位置の関数として非線形になる(楕円関数で書かれる)。また、カイラリティは非対称そのものである。CSLはゼロ磁場での周期が数10ナノメートルというマイクロからマクロに立ち入る境界スケールに位置する。量子・古典クロスオーバー領域といってもよい。マクロとマイクロを直接結びつけるのは困難だ。たとえば外場で直接量子自由度を観ようとすれば、見た瞬間に自由度は古典化してしまう。しかし、マイクロとマクロの中間に一つ舞台を作り込むと、それを媒介してマイクロ自由度を操ることができ

る。CSLはそのような間接操作の舞台であると考えられる(図3)。

Phillip Anderson は、Basic Notions of Condensed Matter Physics の Sec. 4E Density waves, rigidity, frictionで電荷密度波やスピン密度波といったインコメ位相構造のsliding motionが“one of the deepest as yet unsolved problems of many-body physics”だと明言し、unsolvedの理由としてそうした位相構造の運動が実験的に「見える」量を運ばないからだと述べている(このAndersonのご神話は、私にとって学生時代以来の三つ子の魂である)。この点についてCSLは極めて有望だ。CSLが並進運動すれば、螺旋部分に内部変形が起きて磁化が発生し、これを「見る」ことができるはずだからである(まだ実験的な報告はない)。CSLは、多体問題の基本に触れる問題も提供するのである(多体問題の復権)。

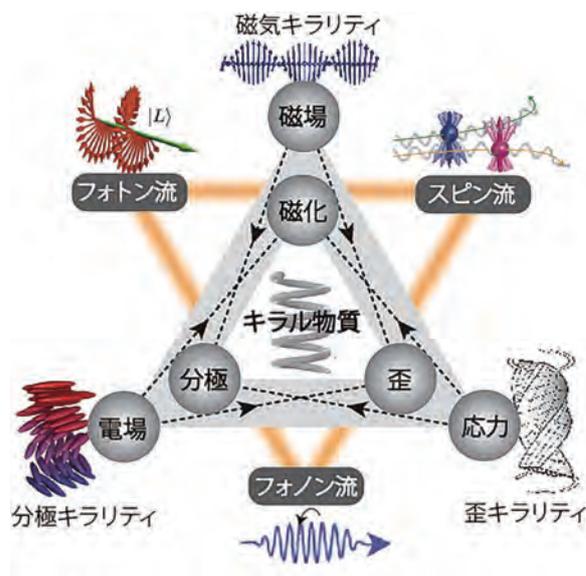


図3 カイラル物質を舞台とする交差相関

カイラリティの謎と今後の課題

カイラリティの概念が捉え難い理由は、その非局所性にあると断言できる。物質の構成要素を点に潰してしまつたら、左右の形も何もなくなってしまう。広がりのあるブロックを潰さずに残さないことにはカイラリティの概念は意味をなさない。ところが、この「非局所」という性質は量子論(特に場の量子論)と相性が悪い。実験的には、局所プローブでカイラリティを検出することはできない。

実際、この点は量子力学のパイオニアたちにも認識されていた。例えば、BornとJordanは「分子はクーロンの法則に従って相互作用する点電荷の集まりなので、ハミルトニアンはつねに反転対称性を持つ。よって、理論的には(カイラリティに由来する)光学活性など存在し得ないはずなのに、なぜか実際にはある。」と述べている(1930年)。また、Hundは「分子が持つ左右の形状がハミルトニアンの固有状態ではない、という事実は光学活性の存在と矛盾するよう見える。」と述べている(1927年)。要するに、どうも既存の量子論だけではカイラリティの概念は捉えきれないといっているのである。これを謎といわずになんというのか。

そもそも「螺旋」構造は回転と並進の結合が生み出すものである。回ると進み、進むと回る。この動きを媒介するのは非局所的なカイラル原子団である。例えば、この原子団が剛体のように回転する自由度を考慮すると、横波弾性波がやはり活性(左右偏波によって吸収係数が異なる)を示す。これは、従来の弾性論の枠組みを越える

問題である。

要するに、図3に示した交差相関の全貌を捉えたいというのが大きな目標である。その場合、磁性の存在は必ずしも本質的ではない。カイラリティの真骨頂は、左右対称性が破れているだけで電荷やスピンのダイナミクスが本質的な影響を受ける点である。量子論のパイオニアたちが感じていたモヤモヤした雲が、現在の物質観を通して晴れ渡っていくとすれば夢のような話である。

-
- [1] 岸根順一郎「現代物理のキーワード：Through the Looking-Glass：物質科学とChirality」日本物理学会誌2016年5月号
 - [2] 岸根順一郎「物質とchirality：磁性と光の視点から」固体物理2018年1月号、2月号
 - [3] J. Kishine and A.S. Ovchinnikov, *Solid State Physics* 66 (2015)1-130.
 - [4] Y. Togawa, Y. Kousaka, K. Inoue, and J. Kishine, *J. Phys. Soc. Jpn.* 85 (11), 112001 (2016).
 - [5] I. E. Dzyaloshinskii, *Sov. Phys. JETP* 19 (1964) 960; I. E. Dzyaloshinskii, *Sov. Phys. JETP* 20 (1965) 223; I. E. Dzyaloshinskii, *Sov. Phys. JETP* 20 (1965) 665.
 - [6] T.Moriya and T. Miyadai, *Solid State Commun.* 42, 209 (1982).
 - [7] Y.Togawa, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*108,107202(2012).
 - [8] S.Ohara, *et al.*, *JPS Conf. Proc.* 3, 017016 (2014).
 - [9] T.Matsumura, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* 86, 124702 (2017).
 - [10] M.Mito, *et al.*, *Phys. Rev. B* 99, 174439(2019)



琉球から広がる研究の輪

—キラル反強磁性体EuPtSiのスキルミオン相—

垣花 将司

琉球大学大学院 理工学研究科 博士後期課程修了 / 現: 株式会社 アクロラド

大貫 惇睦

琉球大学 理学部
客員教授

辺土 正人

琉球大学 理学部
教授

仲間 隆男

琉球大学 理学部
教授

*竹内 徹也

大阪大学 低温センター
助教

学部学生の頃はアメリカンフットボールに明け暮れていた垣花青年はやがて学問に目覚め、琉球大学大学院理工学研究科仲間・辺土研究室の修士・博士課程に進学し、そこで大貫先生とともに空間反転対称性が破れた主にd電子系物質のフェルミ面、超伝導、磁性の研究を始めた。それらの物質の中に立方晶キラル構造を持つウルマナイト化合物のNiSbSやPdBiSeがあった。[1] ウルマナイト化合物の結晶構造はスキルミオンの磁気構造を有するMnSiと同じ $P2_13$ (No.198)の空間群に属している。一方、空間反転対称性が破れた正方晶のユーロピウム化合物EuTGe₃ (T:遷移金属)の単結晶育成と磁性の研究も精力的に進めていた。[2] これら二つの研究が会流した線上にあったのがEuPtSiという物質だった。後に聞くとところによると、垣花氏は素朴な心優しい青年だが、当初はお世辞にも器用とは言えず学問的な素養もまだまだだった。先生方の厳しい指導に、自分への不甲斐なさから見かけによらず涙したこともあったという。そんな彼がめまぐるしく進展する最先端の研究に必死に食らいつき、最終的にEuPtSiにたどり着いて大きな成果を上げたのには大変な忍耐と努力があったのだろうと思う。[3] 博士課程の終盤には結晶構造を描いたりdHvAの角度変化から簡単なフェルミ面を描くプログラムを自作したり、自分で考えながら研究を進められるまでになった。博士課程で最も成長した学生の一人だそうだ。著者はそんな彼のがんばりを横目でチラチラ眺めていただけなの

で、本稿の依頼を受けた時、やはり自分が前面に出て(写真まで載せて!)記事を書くことはできないなと思い、彼を筆頭にこのような形にした。読者諸兄姉にはなにとぞご理解の程をお願いしたい。

EuPtSiは図1に示すようにEu²⁺イオンが三角形を形成し、その三角形がコーナーを共有するトリリウム(エンレイソウ)格子を形成するとして、スピンフラストレーションの観点からいくつかの理論的報告がある。[4-6] この結晶構造はMnSiと同じ $P2_13$ (No.198)の空間群に属しており、4回対称性は破れているが $\langle 111 \rangle$ 方向に関する3回対称性は保たれている。紙面の都合上この物質の先行研究に関して十分な文献を挙げられないが、琉球大学での研究とほとんど時期を同じくして多結晶試料での物性測定が報告され、

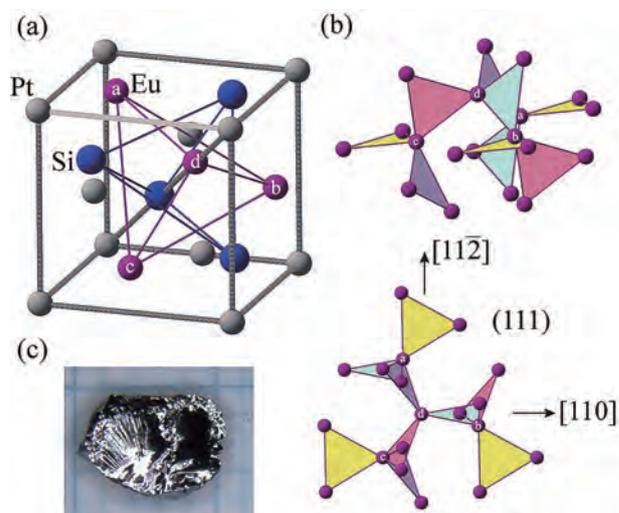


図1 (a) EuPtSiの結晶構造と (b) トリリウム格子および (c) 単結晶インゴット。

$T_N \approx 4.0$ Kで一次転移的に反強磁性転移することがわかっている。[7] 多結晶試料の $T = 2$ Kでの磁化は磁場印加に伴い直線的に単調に増大し飽和する。(従って多結晶試料でA-Phaseは見つかっていない。)

一方、琉球大学では苦勞の末にEuPtSiの単結晶試料の育成に成功し、磁化測定(信州大学)、電気伝導測定(琉球大学、東北大学)、極低温精密磁化測定(東京大学)、中性子回折(日本原子力研究開発機構)、共鳴X線散乱(京都大学)、NMR(琉球大学、日本原子力研究開発機構)などの精力的な研究が始まった。理由は定かではないが、まず $H // [111]$ での実験が先行して行われた。その結果の一部は前号のニュースレター(第7号)の垣花氏自身の記事にすでに紹介されているのでここでは割愛する。[8] 結果を相図としてまとめると図2(a)になる。特徴的なのはMnSiのA-Phaseのように反強磁性領域内で島のように浮かんだ色づけされた相が存在することである。この領域での磁気抵抗やホール抵抗が大きな異常を示すことからMnSiで見出されている磁気スキルミオンの存在が期待される。果たしてEuPtSiでも磁気スキルミオンが観えたのか、この後の金子氏の中性子回折実験、田端氏の共鳴X線散乱実験の報告にその答えがある。本特集では比嘉氏によるNMRの興味深い実験結果も報告される。

最近 $H // [001]$ の相図が比熱、磁化、熱膨張などの

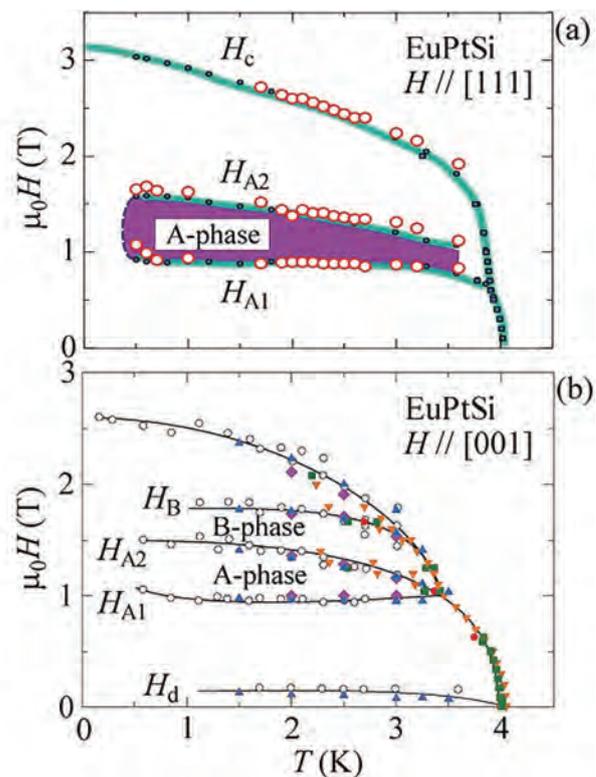


図2 EuPtSiにおける磁場 - 温度相図。

実験から明らかになった。[9](図2(b))ここではA-Phaseに加えてB-Phaseと名付けられた新たな相が見つかった。 $H // [001]$ のA, B-Phaseでも磁気スキルミオンが観えるのか否か、どのような磁気構造を持つのかは大変興味深いところである。EuPtSiの $H // [111]$, $H // [001]$ ではA-Phaseが存在する(厳密に同じ相か否かは不明だ)が、 $H // [110]$ と $H // [112]$ ではA-Phaseは観測されていない。一方、MnSiでは $H // [111]$, $[001]$, $[110]$ にA-Phaseが存在し異方性はほとんどない。[10] 異方性の問題も含めて、d電子系物質とf電子系物質の違いがどこに現れてくるのか、Eu以外の希土類元素を含む化合物でも磁気スキルミオンが形成可能なのか、今後の研究の益々の展開が期待される。

*本稿著者

[1] M. Kakahana *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 033701 (2015), J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 094711 (2015).
 [2] M. Kakahana *et al.*, J. Alloy. Compd. **694**, 439 (2017).
 [3] M. Kakahana *et al.*, J. Elec. Mat. **46**, 3572 (2017), J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 023701 (2018).
 [4] J. M. Hopkinson *et al.*, Phys. Rev. B **74**, 224441 (2006).

[5] S. Isakov *et al.*, Phys. Rev. B **78**, 014404 (2008).
 [6] T. E. Redpath *et al.*, Phys. Rev. B **82**, 014410 (2010).
 [7] D. G. Franco *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 014401 (2017).
 [8] 垣花将司 他, J-Physics News Letter **7**, 98 (2019).
 [9] T. Takeuchi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 053703 (2019).
 [10] A. Bauer and C. Pfleiderer, Phys. Rev. B **85**, 214418 (2012).



カイラル反強磁性体EuPtSiの共鳴X線散乱

田端 千紘

京都大学複合原子力科学研究所 助教

近年、MnSiなどのB20型合金を始めとする3d遷移金属化合物群において、トポロジカルなスピントクスチャの研究が盛んに行われている。スピが渦状に配列した磁気スキルミオンはその代表例として知られ、MnSiやFeGeなどにおいて渦状構造が周期配列したスキルミオン格子 (Skyrmion Lattice: SkL) 状態が実現していることが実験と理論の両面から示されてきた[1]。これまでSkLの研究の舞台は3d遷移金属系が主であったが、近年、MnSiと同じ空間群 $P2_13$ に属したカイラルな結晶構造をとるEuPtSiが新たなSkL系の候補物質として注目を集めている。最近の純良な単結晶試料を用いたバルク物性測定により、SkL状態に特徴的な有限温度・磁場でのみ安定化する相、所謂A相が本物質にも存在することが明らかになり[2]、中性子散乱ではSkL状態に典型的な六角形の磁気回折パターンが観測され[3]、巨視的・微視的両面の立場から本物質におけるSkL状態実現が示唆されている。しかしながら磁気周期長は格子定数の3倍程度と短く、格子定数の数10から数100倍の周期長を持つ典型的なSkL構造とは一見似ても似つかない磁気構造をとっているものと思われる。また、SkL状態は本質的にtriple-Q状態であるが、先の中性子散乱で観測された六角形の回折パターンが、single-Qのマルチドメイン状態による可能性も否定できない。そこで筆者らは、中性子散乱とは相補的な手法である共鳴X線散乱 (Resonant X-ray Scattering: RXS) によって、本物質の磁気秩序についてさらに詳細な微視的情報を得ようと考えた。

RXSは、試料中の特定の元素の吸収端エネルギーのX線を試料に入射した際に起こる、電子の内殻準位と非占有準位間の共鳴現象を利用した手法である。通常の

X線回折とは異なり、RXSでは散乱機構として共鳴散乱を利用するため、元素・軌道選択的に電子の周期配列についての情報を得ることができる。今回利用したEuの L_2 吸収端では $3p \rightarrow 5d$ の遷移プロセスによる散乱が主であるので、4f電子の磁気秩序によって生じる5d電子のspin偏極を捉えることになる。4f軌道を直接見ない散乱ではあるが、希土類元素のL吸収端では磁気秩序を反映した比較的強いRXS信号が期待でき、Sm, Eu, Gdなどの中性子吸収断面積が大きな磁性元素においては中性子散乱に対するアドバンテージを有する。磁気秩序がtriple-Qであれば高次の衛星反射が存在するが、そのような微弱な反射はEuを含む物質での中性子散乱では観測が困難である一方、RXSでは観測できる可能性がある。また、RXSのもう一つのアドバンテージとして高いQ空間分解能があり、秩序変数の温度・磁場依存性を精密に測定することが可能である。

実験は国内2箇所の放射光実験施設SPring-8のBL22XUおよびPhoton FactoryのBL-3Aにて、同タイプの回折計を用いて行った。[111]軸方向の磁場下におけるEuの L_2 吸収端での測定の結果、零磁場から弱磁場にかけての相では秩序波数 $\mathbf{q}_0 \sim (0, 0.20, 0.30)$ に対応する反射を、A相では秩序波数 $\mathbf{q}_A \sim (0.086, 0.202, -0.287)$ に対応するRXS信号を観測した。これは中性子散乱の報告[3]とよく整合している。今回のRXS実験の結果のハイライトとしては、A相で(111)面内の六角形の回折パターンに加えて、その1/100程度の微弱な反射強度をもつ2次の衛星反射の観測に成功した点にある(図1)。これはA相の磁気秩序が、磁場方向に垂直な面内で120度の角度をなす3つの秩序波数によって記述される、triple-Q秩序であることを示す

直接的な証拠である。これはまさにMnSiなどのSKLと同タイプの秩序であり、EuPtSiでのSkL状態の実現を強くサポートする結果が得られたといえる。

一方で、3d電子系SkLとは異なる性質もみられた。3d電子系SkLでは数100 Åという大きな周期長のために結晶格子との結合が弱く、磁場方向によって比較的自由に秩序の伝搬方向が変化するが、EuPtSiの場合は周期長が一桁小さく、磁場を[111]方向から僅か10度ほど傾けただけで磁気反射が消えてしまう(図2)。こういった短い周期長や結晶格子と強く結合した振る舞いはEuPtSiだけでなく複数の4f電子系化合物でも発見されており[4,5]、もしかすると4f電子系に共通した特徴なのかもしれない。この点を従来のスピン間交換相互作用とDM相互作用の競合のメカニズムで理解しようとする、3d電子系に比べてDM相互作用が相対的に強くなることになり、基底状態では軌道成分を持たない2価のEuの電子配置で実際にそれだけのDM相互作用が生じ得るかについては慎重な議論を要するだろう。理論的には幾何学的フラストレーションを起因としたSkL発現も提案されており、そこでは格子定数の2、3倍の比較的短い周期長と、スキルミオンとアンチスキルミオンが共存する短距離秩序相の存在が予想されている[6]。今回のEuPtSiにおけるRXS信号強度の詳細な温度依存性測定ではtriple-Q秩序がA相内で短距離秩序的になる振る舞いが観測されており、そのような新奇な秩序状

態が実現している可能性に期待が持たれる。現在、EuPtSiの磁気秩序のカイラリティを含めた詳細な磁気構造決定に向けて、RXSの偏光依存性の解析を進めているところである。

本研究は、松村武(広大院先端)、中尾裕則(KEK物構研PF)、道村真司(埼玉大研究機構)、垣花将司(琉球大院理工)、稲見俊哉(量研放射光)、金子耕士(原子力機構)、辺土正人、仲間隆男、大貫惇睦(以上、琉球大理)の各氏との共同研究であり、Journal of the Physical Society of Japan誌に掲載された[7]。

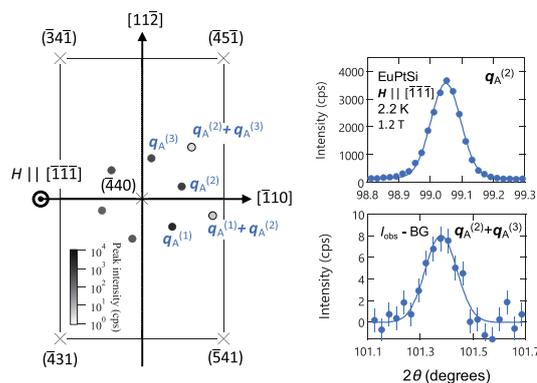


図1: EuPtSiのA相で観測された $(\bar{4}, 4, 0)$ 逆格子点周りのRXS逆折パターンの模式図(左)と衛星反射のピークプロファイル(右)。

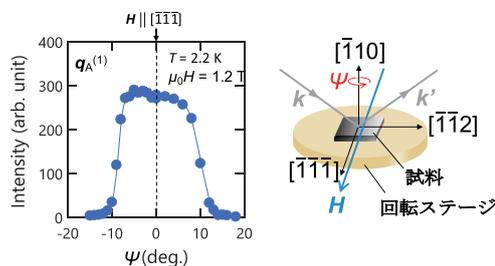
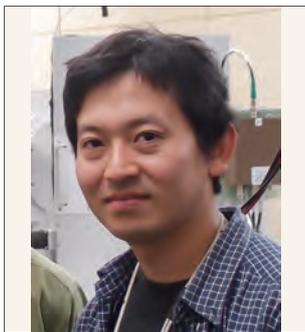


図2: EuPtSiのA相で観測されたRXS磁気反射強度の磁場角度依存性(左)と実験配置模式図(右)。

[1] N. Nagaosa and Y. Tokura, Nature Nanotechnology **8**, 899 (2013).
 [2] M. Kakihana *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 023701 (2018).
 [3] K. Kaneko *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 013702 (2019).
 [4] T. Matsumura *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 124702 (2019).

[5] T. Nakajima, private communication.
 [6] T. Okubo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 017206 (2012).
 [7] C. Tabata *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 093704 (2019).



単結晶中性子回折で探る EuPtSiの磁気スキルミオン格子

金子 耕士

日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 研究主幹

カイラリティを持つ立方晶化合物EuPtSiは、磁気スキルミオン格子を示す代表化合物MnSiと同じ空間群 $P2_13$ に属し、頂点共有の三角格子が3次元ネットワークを形成する構造をとる。Euイオンの価数については、磁気測定、Mössbauer分光などから2価であると報告され、 $S = 7/2$ の強いスピン磁性を持つと考えられる[1-3]。実際、 $T_N = 4.1$ Kで反強磁性秩序を示すことがバルク測定から報告された[2-3]。このゼロ磁場での磁気秩序については、 T_N での比熱異常が一次転移的な鋭いピークを持ち、解放される磁気エントロピーも $S=7/2$ で期待される量の半分に留まること、他のEu 2価の磁性体と比べて転移温度が低いことなどと合わせて、強いフラストレーションの影響下にあると考えられる。さらに特徴的なのは、[111]に磁場を印加したときの磁気相図において、有限磁場・温度領域にのみ現れる磁場誘起秩序相“A相”の存在である。A相については、MnSiとの類似性から磁気スキルミオン格子の形成が示唆された。磁気スキルミオンは磁場に垂直な面でのtriple- q 構造で記述されるため、MnSiでは中性子小角散乱で観測されたA相での6回対称の磁気散乱パターンが、磁気スキルミオン格子形成の1つの強い証拠として報告された[4]。今回、このA相を含めたEuPtSiの磁気秩序について微視的に明らかにすることを目的として、単結晶中性子回折実験を行った[5]。

震災以降現在に至るまで研究炉JRR-3は停止中のため、実験は米国オークリッジ国立研究所の高中性子束同位体炉HFIRに設置された広角中性子回折計WAND²、及びJ-PARCの物質・生命科学研究施設に設置された単結晶中性子回折計SENJUにおいて実施し

た。大型の2次元位置敏感検出器を備える両装置は、一度の測定で広い逆空間を一気に走査することが可能であるため、未知の磁気反射の探索に極めて有効である。

ゼロ磁場、0.3 Kで測定を行った結果を図1に示す。多くの磁気散乱ピークを $(H, K, 0)$ 散乱面に観測し、秩序波数が立方晶としては対称性の低い $\mathbf{q}_1 = (0.2, 0.3, 0)$ であることを明らかにした。この時の磁気散乱パターンとして特徴的なことは、結晶の対称性を反映し、ピークが $\mathbf{q}_1 = (0.2, 0.3, 0)$ 及びその巡回置換でのみ観測され、 $\mathbf{q} = (0.3, 0.2, 0)$ 及びその等価位置には存在しないことである。この結果は、使用した単結晶が単一のドメインからなることを示している。 \mathbf{q}_1 に対応する磁気構造について、通常は磁気散乱強度解析から情報を得るのが一般的であるが、Euは中性子の強力な吸収体であるため、信頼性のある定量的解析を行うことは困難である。そこで今回は、偏極中性子散乱を用いた。入射(もしくは散乱)中性子スピンを散乱ベクトルに平行(+)/反平行(-)に偏極させた時(x偏極)、スピンフリッパーを用いて入射スピン状態を反転させたときの強度の差分は、以下のカイラル成分に比例した強度を持つ。

$$I_x^+ - I_x^- \propto 4\mu_y\mu_z(\mathbf{e}_p \cdot \mathbf{e}_z)$$

ここで μ_y, μ_z は、磁気モーメントのうち、散乱ベクトルに垂直な散乱面内及び面直成分に対応し、 \mathbf{e}_p 及び \mathbf{e}_z が中性子スピン及びベクトルカイラリティに対応する単位ベクトルで、後者は2つのスピンの平行または反平行ではない非共線的な場合に現れる量で、らせん磁性などが該当する。WAND²に隣接する偏極中性

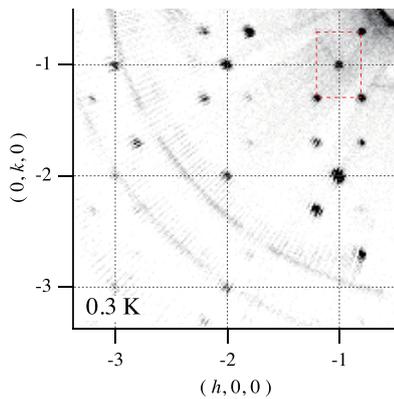


図1 0.3 Kにおける $(H, K, 0)$ 面の中性子散乱強度マップ。格子点周りに縦長長方形の磁気散乱パターンが見える。

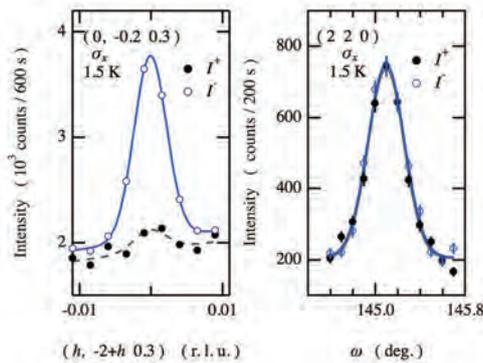


図2 1.5 Kにおける入射 x 偏極中性子散乱ピークプロファイル。(左) 磁気反射 $(0, -0.2, 0.3)$, (右) 核反射 $(2, 2, 0)$

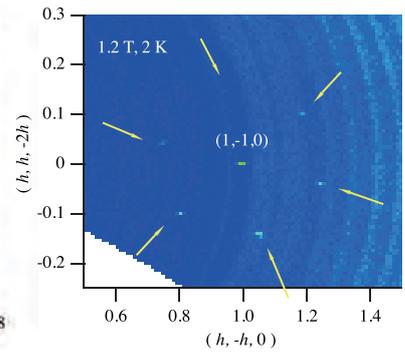


図3 1.2 T, 2 Kで測定したA相での印加磁場垂直面の中性子散乱強度マップ。核反射 $1, -1, 0$ 周りに6回対称の磁気散乱ピークが観測されている。

子三軸分光器HB-1において、入射中性子の偏極状態を反転させた時に得られたピークプロファイルを図2に示す。1.5 Kの磁気反射では、偏極状態に依存して強度が大きく変化していることが分かる。これは核反射で差分が見られないことと対照的である。偏極依存性をより詳細にみると、強度は殆ど中性子スピンの散乱ベクトルと反平行の I のみに偏っており、平行な I では殆ど強度がみられない。以上の結果は、磁気秩序ベクトルに垂直な面内でEuの磁気モーメントがらせん磁性をとっていること、かつそのらせん磁性が単一のカイラリティをもっていることで説明出来る(詳細については、[5]参照)。以上より、EuPtSiのゼロ磁場では、基底状態が $\mathbf{q}_1 = (0.2, 0.3, 0)$ で表されるらせん磁性であることを明らかにした。

続いて関心を集めるA相について、 $\mathbf{B} \parallel [111]$ の磁場中中性子回折実験をWAND²において行った。この時の水平散乱面は、直交する2つのベクトル $(1, -1, 0)$ 及び $(1, 1, 2)$ で定義される。2.0 Kで磁場を印加していった結果、A相に入った1.2 Tにおいて、磁場に垂直な散

乱面内に磁気ピークを観測した(図3)。磁気反射は、核反射 $1, -1, 0$ の周りで6回対称を持つ散乱パターンを形成し、その秩序波数は、 $\mathbf{q}_A = (\pm 0.09, \pm 0.20, \mp 0.28)$ と極めて低対称である。ここで特徴的な点は、観測されるピークは \mathbf{q}_A の等価な成分の内、循環及び符号の順序を保った6つ $\mathbf{q}_{A1} = (\pm 0.09, \pm 0.20, \mp 0.28)$, $\mathbf{q}_{A2} = (\pm 0.20, \mp 0.28, \pm 0.09)$, $\mathbf{q}_{A3} = (\mp 0.28, \pm 0.09, \pm 0.20)$ に限られ、それらのピークは全て磁場と垂直な散乱面内に存在していることである。言い換えると、磁場垂直散乱面以外では磁気ピークは観測されない、この6回対称の散乱パターンの出現は、前述の通りMnSiにおけるA相での結果と同様であり、EuPtSiのA相での磁気スキルミオン格子の形成を強く示すものである。

MnSiに代表される3d電子系では、中性子小角散乱によりらせん磁性、磁気スキルミオンの検出が行われている。これは格子点のごく近傍に磁気反射が観測されるため、周期長がMnSiでは180 Åととても長いことに起因している。この周期長は、らせん磁性から磁気

スキルミオン格子へと転移した際にも変化しないことが一つの特徴である。EuPtSiでは、通常の回折装置でも十分に核反射から分離されている。これはEuPtSiの磁気秩序の周期長が、 q_1 , q_2 ともに18 Å程度と短く、MnSiの1/10程度であることを反映している。またゼロ磁場の秩序構造についても、周期長や秩序波数こそ異なるものの、MnSi, EuPtSiともに磁性をもたせぬ磁性であり、A相に相転移する際に周期長が変化していない点も共通している。EuPtSiのもつ短い周期長については、他の4f電子系化合物でも報告されており、共通するメカニズムを反映している可能性がある。他の特徴として、A相の安定領域が比較的広い温度範囲に存在し、特定の印加磁場方向でのみ現れるなどの異方性が、等方的で転移点の極く近傍にのみ存在するMnSiとは対照的である。これに加え、極めて対称性の低い q_2 が安定化する起源も自明ではない。f電子系であるEuPtSiにおける磁気スキルミオン格子の発見は、新たな物質系はもとより、安定領域・異方性等多様な特性の発見へと繋がるもので、今後のさらなる研究の発展に貢献することが期待される。

本研究は、Matthias D. Frontzek, 松田雅昌 (Oak Ridge National Laboratory), 中尾朗子, 宗像孝司 (総合科学研究機構), 大原高志, 芳賀芳範 (原子力機構), 垣花将司, 辺土正人, 仲間隆男, 大貫惇睦 (琉球大) 各氏との共同研究である。

[1] D. T. Adroja *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, **89**, 375 (1990).

[2] D. G. Franco *et al.*, *Phys. Rev. B* **96**, 014401 (2017).

[3] M. Kakahana *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 023701 (2018).

[4] S. Mullhauser *et al.*, *Science* **323**, 915 (2009).

[5] K. Kaneko *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 013702 (2019),



比嘉 野乃花

日本原子力研究開発機構

NMRによるEuPtSiの磁気揺らぎの研究

我々はEuPtSiの磁気揺らぎについて明らかにするため、核磁気共鳴(NMR)とミュオンスピン緩和法(μ SR)による研究を進めています。NMRは原子核スピンをプローブとして、ミクロな視点から物質の性質を調べることができる実験手法です。NMRスペクトルとスピン磁化率に対応するナイトシフトの測定から電子系の静的な性質が、また核スピン-格子緩和時間 T_1 及びスピンエコー減衰時間 T_2 を測定からは電子系の動的な性質を明らかにすることができます。また本稿では詳しく触れませんが、我々が並行して実験を進めている μ SRでは、ミュオンスピンが物質中の電子スピンと相互作用し、歳差運動する過程を観測することにより、NMRより短い時間スケールの電子系のゆらぎの情報を引き出すことができます。

EuPtSiのような磁性体の常磁性状態では、磁性イオンEu²⁺上にある¹⁵³Eu核は、4f電子と強く結合しているため、核磁気緩和時間が非常に短くなり、一般にNMR信号の観測は困難です。しかし、磁気励起にギャップの開いた磁気秩序状態では緩和が抑えられ、かつ、磁性イオンと同一サイトにある利点として大きな内部磁場(～10-100 Tオーダー)を使うことができるために¹⁵³Eu核の観測が可能となります[1, 2]。EuPtSiでも同様の結果を期待して、最初に¹⁵³Eu核NMR信号探索を行いました。EuPtSiは転移温度が $T_N=4$ Kで、他のEu化合物と比べると低いため、希釈冷凍機を用いて転移温度より十分低い $T=78$ mKで測定しました。EuPtSiのメスバウアー分光によると、Euサイトにかかる内部磁場は $H_{int}^{Eu} = 25.6$ Tと報告されており[3]、それから±8 T程度の磁場範囲においてNMR実験を行いました。

実験を始めてすぐにとっても強いNMR信号を見つけ

たのですが、残念ながらその信号は強磁性体EuOからの¹⁵³Eu核NMR信号と判明しました。今回NMR測定に用いた試料は、磁化率など巨視的測定からはEuOの存在は確認できないような純良な試料でした。しかし、強磁性体のNMRでは主に磁区や磁壁振動によるNMR信号の増幅効果(最大で 10^5 倍)があるため、たとえ微量でもその信号は強く観測されます。このEuOの¹⁵³Eu核NMR信号が広い磁場・周波数範囲で存在したため、EuPtSiの¹⁵³Eu核NMR信号の検出はより困難となりました。

その後、温度や磁場の条件を様々に変え信号を探索しましたが、今のところEuPtSi由来の¹⁵³Eu NMR信号を観測することは出来ていません。他のEu化合物、例えばEuGa₄では転移温度(16 K)直下では揺らぎが強く¹⁵³Eu NMR信号は観測されていませんが、磁気秩序が十分発達した8 K以下では信号が観測されています[2]。EuPtSiでは他の化合物よりも低温まで揺らぎが強く残り、実験温度～78 mKでも¹⁵³Eu核の観測が難しい

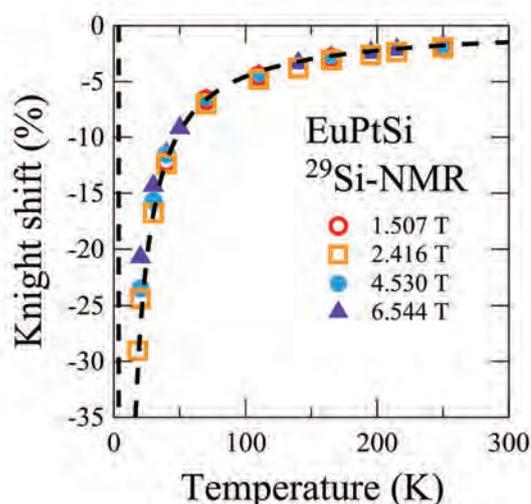


図 1. EuPtSi における²⁹Si核 NMR のナイトシフトの温度依存性

可能性が考えられます。

そこで、配位子位置にあり4f電子との結合の弱い²⁹Si核のNMR信号は観測できる余地があると考え、常磁性状態における²⁹Si核NMRを行いました。²⁹Si核は自然存在比が4.7%と低く、通常NMR感度が悪いいため、同位体を用いて試料中の²⁹Si核を約100%まで濃縮することで、²⁹Si核のNMR信号を観測するに至りました。

その多結晶試料を用いた²⁹Si核NMRによるナイトシフトKの温度依存性を図1に示します。後に示すように4f電子とEu核の間の超微細結合定数が負の値を持つため、温度を下げるにつれナイトシフトも大きな負の値を示します。点線で示すように、ワイス温度 $\theta_p = 4.0$ Kとしたキュリーワイス曲線で実験結果をよく説明することができます。約1.5, 2.4, 4.5, 6.5 Tと磁場を変えて測定を行いました。ナイトシフトに大きな磁場依存性はありませんでした。ナイトシフトはスピン磁化率に対応しており、磁化率 χ でプロットする

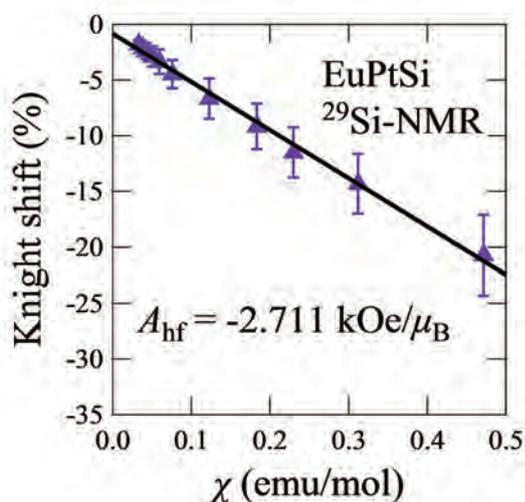


図2. EuPtSiにおける²⁹Si核NMRのK- χ プロット

と図2に示すように直線的な関係となります。その傾きから超微細結合定数を得ることができ、その値は $A_{hf} = -2.71$ kOe/ μ_B となりました。これは他のEu化合物の配位子サイトで得られているものと近い値となっています[4-6]。

残念ながら図1では10 Kまでのデータしかありません。これは²⁹Si核NMRでさえも、低温では信号の測定が困難となったためです。その原因は図3に示すように、スピン-エコー減衰率 $1/T_2$ が転移温度よりもはるかに高い温度から増大を始め、10 K以下ではエコーの減衰時間がスペクトロメータの限界値より短くなった(図3の灰色の領域)ためです。磁性体のNMR測定ではしばしば同様の現象は見られますが、通常は磁気揺らぎが増大する転移温度の近傍でのみ起こります。ところがEuPtSiでは転移温度よりも2倍以上の温度領域から強い揺らぎが発達しているように見えます。本ニュースレターの本間氏の記事にあるように、メスbauer分光[3]や比熱[7,8]、磁気測定[9,10]からも、同

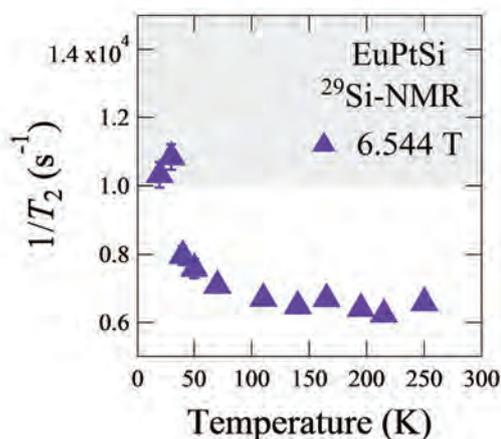


図3. EuPtSiにおける²⁹Si核NMRのスピンエコー減衰率の温度依存性。灰色の領域はNMR測定が困難な領域を示す。

じ温度領域で強い磁気揺らぎの発達が示唆されています。MnSiと同様、前駆現象としての強い磁気揺らぎを伴った、特異な一次相転移の機構が議論されています[7,10-12]。

今回の実験では、短い緩和時間のため、NMR法は測定できる温度・磁場領域が限られてしまうことがわかりました。このような場合、より短い時間スケールの磁性を観測できる μ SR法が有効です。そこで、今秋にスイス・ポール・シェラー研究所で μ SR測定を行う予定です。今後また新しい報告ができるように研究を進めていきたいと思えます。

本研究は徳永陽、酒井宏典、神戸振作、岡澤赳、伊藤孝、髭本亘（以上、原子力機構）、垣花将司、與儀護、大貫惇睦（以上、琉球大）各氏との共同研究として行われました。皆様にはこの場を借りて感謝の意を伝えたいと思えます。

-
- [1] A. Comment *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 014428 (2005).
 - [2] M. Yogi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn **82**, 103701 (2013).
 - [3] Y. Homma *et al.*, to be published in J. Phys. Soc. Jpn.
 - [4] H. Niki *et al.*, JPS Conf. Proc. **3**, 011015 (2014).
 - [5] H. Niki *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **592**, 012030 (2015).
 - [6] N. Higa *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 024405 (2017).
 - [7] D. G. Franco, *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 014401 (2017).
 - [8] T. Takeuchi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn **88**, 053703 (2019).
 - [9] M. Kakihana *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn **87**, 023701 (2018).
 - [10] T. Sakakibara *et al.*, to be published in J. Phys. Soc. Jpn.
 - [11] A. Bauer, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 177207 (2013).
 - [12] M. Janoschek, *et al.*, Phys. Rev. B **87**, 134407 (2013).



カイラル磁性体EuPtSiの一次転移と磁気揺らぎの ^{151}Eu メスバウアー分光による観測

本間 佳哉

東北大学 金属材料研究所 助教

B20型立方晶のMnSiでは、カイラル構造に由来するDzyaloshinskii-Moriya相互作用により転移点直下の磁場誘起のA相でスキルミオンと呼ばれる渦巻き状の磁気テクスチャーが形成されることが中性子小角散乱ならびにローレンツ顕微鏡で観測された。以来、磁気スキルミオンの研究は磁性物理ならびに磁性材料の中心的課題の一つに発展している。垣花・大貫らは最近、同じB20型立方晶に属するEuPtSiの純良単結晶育成に成功し^[1]、磁場中の磁気転移点から有限温度内で閉じたA相を含む特徴的な磁気相図を明らかにすると同時に、A相で巨大なホール抵抗を観測した^[2]。EuPtSiはf電子由来の新しいトポロジカル物質として俄かに注目をされている。我々はA相の真相に迫る前に、 ^{151}Eu メスバウアー分光を利用してEuPtSiの無磁場中でのヘリカル磁性への相転移について研究したのでここに紹介する。

まずはカイラルなB20型立方晶構造の特徴について図1に示す。(a)は市販の結晶描画ソフトにEuPtSiのcifファイルを読み込ませたデフォルトの表示に、Eu原子間を結合した図である。Eu, Pt, Siは比較的小さな単位胞($a_1 = a_2 = a_3 = 6.433\text{\AA}$)内にいずれも4原子ずつ詰まって扁平な4面体を形成している。立方晶にもかかわらず4回対称が失われており、比較的単純な構造に見える。次に少し工夫して、Eu原子を単位胞の中心に並進移動して最近接のEu原子間を結ぶと(b)になる。Eu間の結合からなる3つの三角形が、中心からいずれも右にねじれて連結したカイラル構造となっており、 $[111]$ が三回軸をなしている。カナダのHopkinsonらは^[3]、この形状が3枚の花弁が交互に重なり合うオンタリオ州のトリリウム草に似ていること

からトリリウム格子と名付けた。しかしトリリウム格子に秘められた特徴は1単位胞を見るだけでは不十分で、(c)に示すようにもう少し広い範囲で三角形の連結を俯瞰する必要がある。色で識別した (111) 面、 $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ 面、 $(\bar{1}\bar{1}1)$ 面、 $(11\bar{1})$ 面の3角形は複雑に連結をし、(d)に示す

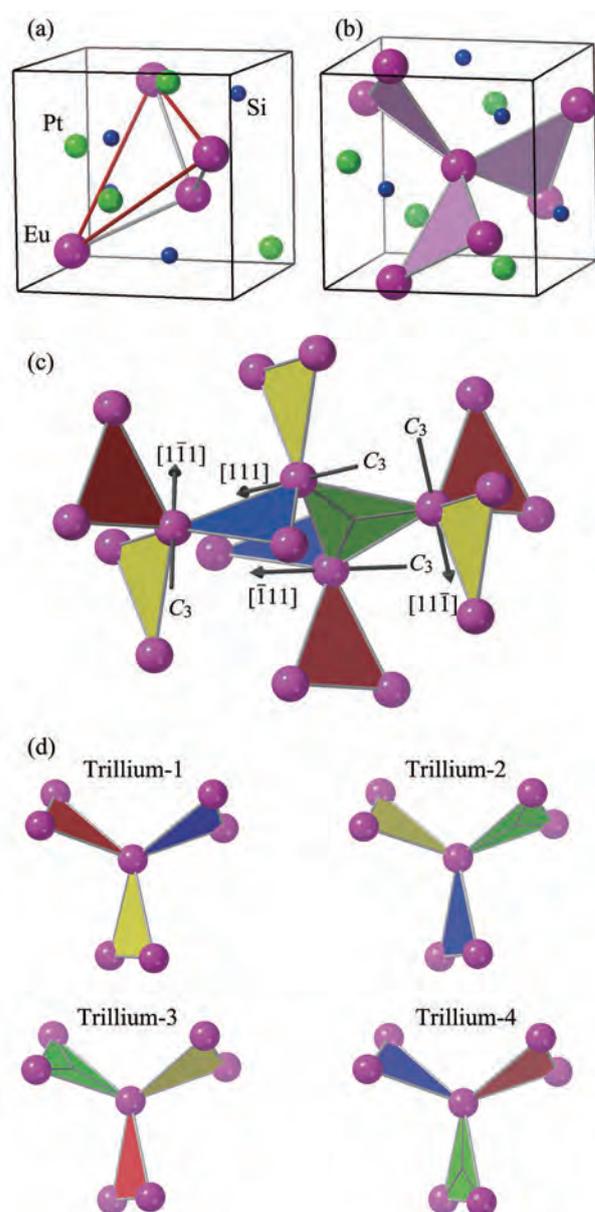


図1 EuPtSiの結晶構造

ような $[1\bar{1}1]$, $[111]$, $[\bar{1}11]$, $[11\bar{1}]$ の3回軸に対して4つの向きのトリリウムが存在する。つまり空間群 $P2_13$ のB20型立方晶では a_1 , a_2 , a_3 は等価ではなく、Eu原子は単一の原子座標で代表されるが、局所環境としては4種のサイトが存在する。単純にして複雑、それがトリリウム格子が興味深い磁性の母体となっている所以であろう。ここでは直感に頼ってEuPtSiの構造的特徴を述べたが、垣花によるEuPtSiを含むウルマナイト結晶の群論的な解説記事がWeb上で入手可能なので合わせて読んで頂きたい^[4]。

磁場誘起のA相の磁気構造や磁場方向依存性の解明が金子らによる中性子回折^[5]、田端らによる共鳴X線散乱^[6]、竹内らによる熱膨張測定^[7]で進んでいるが、EuPtSiは既に無磁場中で興味深い磁性を示す。垣花ら^[2]もしくはFrancoら^[8]による比熱測定では、 $T_N=4\text{K}$ で一次転移的なシャープなピークが観測されているにもかかわらず、 T_N までに磁気エントロピーは解放されておらず15K付近でやっと $R\ln 8$ に達する。図2は我々が測定した T_N 直下におけるEuPtSiの ^{151}Eu メスバウアースペクトルである。4Kのシングルラインからわずかに降下した3.8Kでは磁気分裂したスペクトルへと激変している。さらに中間の3.9Kではシングルピークと磁気分裂ピークを重ね合わせたスペクトルとなっており、EuPtSiの4Kにおける一次転移はミクロスコピックな視点からも明瞭である。ではなぜ T_N でエントロピーバランスが取れないのであろうか？図2にEuPtSiにおける ^{151}Eu メスバウアースペクトルの半値幅 G の温度依存性を示す。 Γ はメスバウアー核の励起準位の寿命に反比例する自然幅 Γ_{nat} に加え、格子系や内部磁場の空間的もしくは時間的ゆらぎに依存する。 Γ は降温

に伴い $T_{\text{FD}}\sim 8\text{K}$ で $2\Gamma_{\text{nat}}$ 程度から増強を始めて T_N で極大を示した後、ヘリカルな反強磁性状態においてもこの増強が不連続的に消失に転じるわけではなく、転移点直上と同程度のスロープで減少をする。つまり無磁場中のEuPtSiは降温に伴い、常磁性PM、磁気的な揺らぎが開始する前駆現象といえるFD、さらには磁気

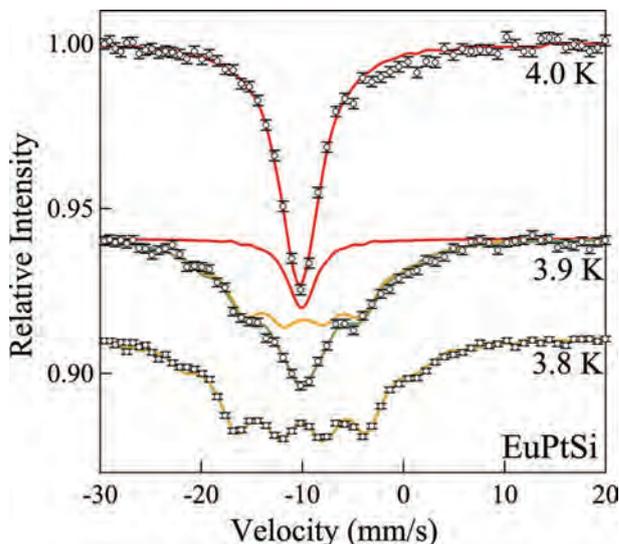


図2 EuPtSiの ^{151}Eu メスバウアースペクトル（転移点近傍）

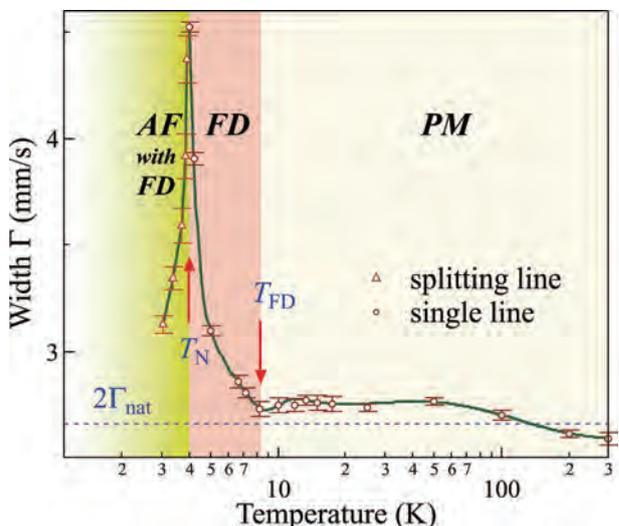


図3 ^{151}Eu メスバウアースペクトルの半値幅

的な揺らぎが残存した反強磁性AF with FDに区別することができる。EuPtSiでは転移点より高い温度から磁気相互作用が発達しているにもかかわらずトリリウム格子が妨げとなってなかなかスピンの整列することができず、揺らぎが極大となったところで初めて一次転移をするのであろう。この転移点以上での磁氣的揺らぎの発達、比嘉らによる μ SR実験においても観測されている^[9]。

MnSiのヘリカル磁性やカイラルな液晶相の出現前に空間的揺らぎが開始する前駆現象が知られているが、それは1K程度のごく狭い範囲で現れ、等方的な相とカイラル相の間の閉じた中間相と理解されている。しかし、EuPtSiでは T_N 以下でも磁気揺らぎが残存しており、前駆現象の出現温度範囲も広い。MnSiの前駆現象についてもその起源については未だ論争がある^[10,11]。最近、榊原ら^[12]は精密磁化測定により磁気履歴を観測し、4Kの磁気転移が一次転移であると同時に反強磁性相と常磁性相の間に磁気秩序の前駆段階となる中間相があることをマクロスコピックな測定から導き出している。今後、我々のメスバウアーの結果と磁化測定の結果の解釈のすり合わせが必要と考えて

いる。さらに詳しい実験結果は、JPSJに最近発表した論文を見て頂きたい^[13]。

本研究は、垣花将司氏、徳永陽氏、與儀護氏、中島美帆氏、仲村愛氏、清水悠晴氏、李徳新氏、Arvind Maurya氏、佐藤芳樹氏、本多史憲氏、青木大氏、天児寧氏、辺土正人氏、仲間隆男氏、大貫惇睦氏との共同研究である。またデータをまとめるにあたり複数の研究者のお知恵とご意見を求めた。その際の非礼を詫びると同時に、感謝を改めて申し上げたい。

令和元年7月8日から12日にかけてロシアで開催された「第5回ジャロシンスキー – 守谷相互作用とエキゾチックなスピン構造に関する国際ワークショップ」^[14]に参加する機会を得た。カイラル磁性の一流の先生方が集う会議で新参者の私が本研究成果を発表することが出来たことは大変光栄であった。会議をご案内下さった名古屋工業大学・大原繁男教授にこの場を借りてお礼を述べたい。また会議参加のための旅費はJ-Physics (領域代表: 神戸大学・播磨尚朝教授) によりご支援頂いたことを最後に明記する。

[1] M. Kakahana *et al.*, *J. Electron. Mater.* **46**, 3572 (2017).

[2] M. Kakahana *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 023701 (2018).

[3] M. Hopkinson and H.-Y. Kee, *Phys. Rev. B* **74**, 224441 (2006).

[4] 垣花将司, 琉球大学研究基盤センターだより, 創刊号, P.9, (2017). (http://www.irc.u-ryukyu.ac.jp/pdf/C-RAC_news2017.pdf)

[5] K. Kaneko *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 013702 (2019).

[6] C. Tabata *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 093704 (2019).

[7] T. Takeuchi *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 013702 (2019).

[8] D.G. Franco *et al.*, *Phys. Rev. B* **96**, 014401 (2017).

[9] 比嘉野乃花ら, “EuPtSiのNMRによる研究II” 17aS301-1, 日本物理学会第74回年次大会(2019).

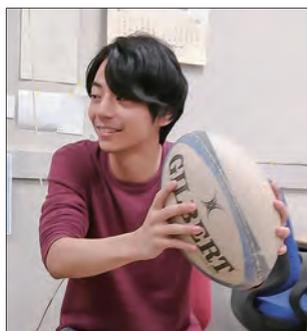
[10] A. E. Petrova & S. M. Stishov, *Phys. Rev. B* **94**, 020410 (2016).

[11] C. Pappas *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 047203 (2017).

[12] T. Sakakibara *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 093701 (2019).

[13] Y. Homma *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **88**, 094702 (2019).

[14] <https://oiks.pnpi.spb.ru/events/DMI-2019>



金属絶縁体転移から超伝導へ移り変わる Ru_{1-x}Rh_xAsの微視的電子状態

桑田 祥希

神戸大学 理学研究科

<p>小手川 恒 神戸大学 理学研究科</p>	<p>菅原 仁 神戸大学 理学研究科</p>	<p>櫻井 敬博 神戸大学 理学研究科</p>	<p>太田 仁 神戸大学 理学研究科</p>	<p>藤 秀樹 神戸大学 理学研究科</p>
--	---------------------------------------	--	---------------------------------------	---------------------------------------

2012年、RuAsが金属絶縁体転を示すこと、及びその基底状態がRuサイトのRh置換により超伝導に移り変わることが発見された[1]。Ru_{1-x}Rh_xAsの温度-Rh置換量相図は量子臨界点で起きる非従来型超伝導を想起させる形をしており、母物質であるRuAsの金属絶縁体転移をもたらす自由度と超伝導の関連性が注目されている。RuAsは $T_{MI1} \sim 250$ Kと $T_{MI2} \sim 200$ Kを通して金属絶縁体転移を示す(図1)。RuAsの T_{MI1} 以上の金属相における結晶構造は、MnP-typeと呼ばれ、ジグザグ構造を有する直方晶である。非共型空間群 $Pnma$ に属するこの構造は、圧力誘起超伝導体CrAsやMnPと同

じ構造であり、U系強磁性超伝導体のTiNiSi-type構造とも類似していることから、非共型空間群のジグザグ構造と超伝導の関係という観点でも興味を持たれる。本稿では、Ru_{1-x}Rh_xAsの超伝導と絶縁体相の関係について⁷⁵As-NQR測定により検証した結果を紹介する。

まずRuAsの金属絶縁体転移について現時点で分かっていることを述べる。RuAsは一種のバンド・ヤンテラー系と考えられ、鍵となる高温金属相でのバンド縮退が非共型空間群の対称性によって保護されている点に特徴がある[2,3]。我々の作製した単結晶を用いたX線回折から、基底状態では直方晶から単斜晶($P2_1/c$)に低対称化しており、金属相の結晶構造の周期に対して3倍の超格子(直方晶と単斜晶で軸の取り方が異なるため、ユニットセルとしては9倍)になっていることが分かっている[3]。この構造相転移によって鍵となるバンド縮退が解けることが分かったが、現状では超格子形成の理由は説明できていない。ネスティングの寄与は一つの可能性であるが、3次元構造をもつRuAsのフェルミ面に明確なネスティングはない。4d電子のスピン-軌道相互作用の寄与の有無も含めて、金属絶縁体転移の完全な理解のためにより詳細な研究が望まれる。

話をRh置換系に戻し、図2に示した $1/T_1 T$ の温度依存性を基に相転移に伴う揺らぎの振舞いについて述べる。Rhドーブにより⁷⁵As-NQRのスペクトルは顕著なブロードニングを示すが、 T_1 測定は全ての試料に対してスペクトルのピーク周波数で行った。まず、母物質の

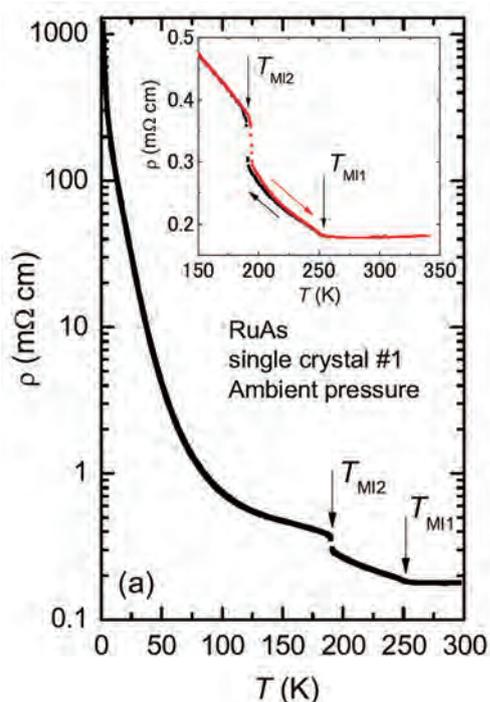


図1: RuAsの電気抵抗率 ρ の温度依存性。 $T_{MI1} \sim 250$ K, $T_{MI2} \sim 200$ Kを通して金属絶縁体転移が見られる。

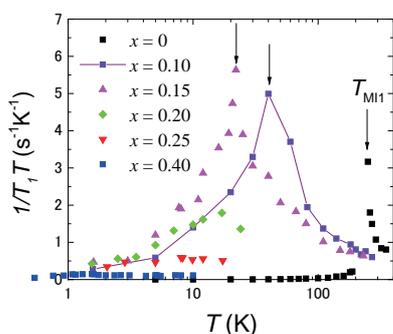


図2：Ru_{1-x}Rh_xAsの1/T_cTの温度依存性。

RuAsだが、 $T_{M11}=250$ Kで顕著な発散を示す。これは2次相転移の T_{M11} でAs核周囲に何らの臨界揺らぎが発達していることを意味する。As核は四重極緩和と磁気緩和の両方が可能なので、電気的な揺らぎか磁気的な揺らぎかを区別することはきないが、 μ SRで T_{M11} に顕著な磁気的異常が見えなかったことから、電気的な寄与が支配的だと思われる。現状ではその相転移の起源には未解明な部分はあるが、RuAsの2次相転移がRhドーピングによって抑制され量子臨界点となったところで超伝導が出現する、というのが一つのシナリオである。しかし、 ^{75}As -NQRでミクロに見た結果、状況は少し異なることが分かった。確かにRh置換量の少ない領域($x=0.10$, $x=0.15$)では転移温度の降下に伴い $1/T_c T$ のピーク温度の降下を確認できる。 $x=0.15$ では $1/T_c T$ の発散は20 Kまで降下しており、かつ明瞭である。しかし、 $x=0.20$ ではピークの温度はそれほど降下せず、むしろ揺らぎ自体が急速に抑制されている。 $x=0.25$ ではピーク構造は見えなくなり、 $x=0.40$ では

$1/T_c T = \text{const.}$ の通常の金属的な振舞となった。超伝導は $x=0.20$ 付近から観測され始め、我々の試料では $x=0.40$ で最適となる。つまり、金属絶縁体転移に付随する揺らぎが消失しつつある領域で超伝導が現れており、これは量子臨界点で誘起される超伝導の描像とは異なる。一方、 $x=0.40$ の低温の測定でコヒーレンスピークを観測した。これは、Ru_{1-x}Rh_xAsの超伝導は電子格子相互作用に駆動される従来型s波であることを意味する。結果をまとめると、Rh置換により250 Kに存在した臨界揺らぎを低温に降下させることは出来るものの、絶対零度に達する前に恐らくdisorderの影響が大きくなり、クリアな量子臨界性は見られなかった。そしてほぼ揺らぎが消失した領域でs波の超伝導が起きていることが分かった。

我々の今回の結果ではRu_{1-x}Rh_xAsの超伝導と金属絶縁体転移に起因する臨界揺らぎとの間に明確な関係は見られなかった。しかし一方で、250 Kで見えていた臨界発散が20 K程度まで温度降下していることは確認でき、量子臨界的な振舞まであと一歩という状況であることも確認できた。RuAsが持つような非共型の縮退に起因する不安定性が、圧力印加や化学置換により、量子臨界点に到達したときに何が起こるかは今後も興味ある対象であり、本実験はその実現可能性を示していると思う。その実現を目指し、我々はRuAsの類似構造を有する他の物質で、新奇量子相を求め、精力的に物性探索を行っている。

- [1] D. Hirai *et al.*, PRB **85**, 140509(R) (2012).
- [2] H. Goto *et al.*, Phys. Proc. **75**, 91 (2015).
- [3] H. Kotegawa *et al.*, PRM **2**, 05501(2018).
- [4] Y. Kuwata *et al.*, JPSJ **87**, 073703 (2018).



局所的に空間反転対称性の破れた結晶における奇パリティ多極子揺らぎと超伝導

石塚 淳

京都大学 理学研究科 特定研究員

柳瀬 陽一

京都大学
理学研究科

局所反転対称性の破れた系は、副格子に依存する反対称スピン軌道相互作用によって多彩な物性が現れることから、近年注目を集めている研究対象の一つである。トポロジカル結晶超伝導[1]、反強磁性エーデルシュタイン効果[2]などはその典型例であり、これまでに理論・実験の両面から精力的に研究がなされてきた。よく言われるように、大域的な空間反転対称性がある場合、超伝導の秩序変数は偶奇のパリティで明確に分類される。だからといって、「スピン三重項とスピン三重項は共存しない」というのは間違いで、局所反転対称性の破れた結晶では副格子の内部を見るとそれらの状態は共存している。それがどの程度の割合なのかは、詳細な計算が必要となるが、定性的な部分は超伝導の分類学の知識を使えばある程度はわかることが知られている[3,4]。

この系の興味深い特徴は、大域的な空間反転対称性を自発的に破る奇パリティ多極子秩序が定義できる点である。近年の研究により、 BaMn_2As_2 、 Sr_2IrO_4 、 $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ 、 SrTiO_3 といった物質において奇パリティ多極子の秩序が生み出す物性に注目が集まっている。一方、超伝導に目を向けると、奇パリティ秩序相の内側と外側でまったく異なる性質がある。奇パリティ秩序相の内側では、奇パリティ多極子と共存する超伝導であり、外側では奇パリティ多極子揺らぎを媒介とする超伝導とみなすことができる。

前者については、パリティのほかに時間反転やそれらの複合操作を破るか否かで峻別される。これまでに、

s+p波[5]、FFLO相[6]、ワイル超伝導[7]などの様々なシナリオが提案されているが、ここではその詳細に触れないことにする。後者については、2015年ごろにKoziiら[8]によって奇パリティの電気多極子揺らぎで奇パリティの超伝導が安定化するという理論提案がある。奇パリティ超伝導の探索という意味では、非常に魅力的に聞こえるが、彼らの手法は有効相互作用の波数依存性を無視する、最低次のダイアグラムのみを考慮する近似なので、どこまで正当性があるかは今後より多くの経験を積む必要があると感じている。また最近、同様の方法が磁気多極子揺らぎについても適用された[9]。それよると、結晶対称性を考えない範囲では奇パリティ超伝導は安定化しないようである。

このような研究に触発され、今回我々は局所反転対称性の破れた結晶における、磁気揺らぎが誘起する超伝導を明らかにした[4]。我々の知る限り、ミクロな観点から(1)副格子に依存する反対称スピン軌道相互作用と(2)磁気揺らぎに誘起される超伝導の両者に着目した研究はなされていなかった。そのため、できる限り標準的なモデルに良く知られた手法を適応するのがセオリーであると考えた。今回、反対称スピン軌道相互作用がゼロの場合に銅酸化物高温超伝導のハバード模型と同等とみなせるような2副格子モデルを採用した。その結果、この系が新奇超伝導の舞台となることを示すことができたので、本稿で紹介する。

1. モデル

我々が今回採用したモデルは、オンサイトクーロン相互作用と副格子に依存する反対称スピン軌道相互作用を含む2次元2副格子のハバード模型である[図1(a)]。反対称スピン軌道相互作用は、結晶点群が D_{4h} で副格子のサイトシンメトリーが D_{2d} [図1(b)]の場合に許される、 $k_x S_x - k_y S_y$ の対称性を持っている。このモデルは、(1)局所的な反転対称性の破れた構造、(2)スピン軌道相互作用、(3)奇パリティ磁気多極子揺らぎのすべてを内包するミニマム模型である。このモデルに乱雑位相近似を適用し、揺らぎや超伝導の性質について調べた。以下ではその結果について述べる。

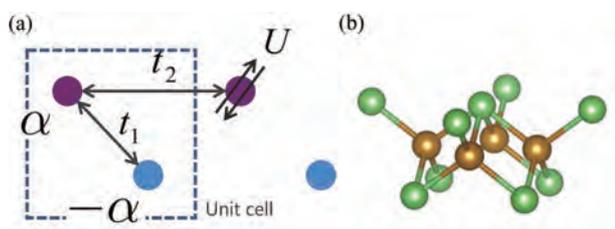


図1 (a)2副格子ハバード模型。(b) D_{2d} 型の反対称スピン軌道相互作用が現れる結晶構造。

2. 磁気揺らぎ

まず、スピン軌道相互作用がゼロでハーフフィリングの場合を考える。そのときは1副格子のハバード模型と同等なので、 $\mathbf{q}=(\pi, \pi)$ の反強磁性揺らぎが発達する。次に、スピン軌道相互作用を有限にした場合、2つの副格子は非等価になるため、ブリルアンゾーンが折り畳まれる。波数ベクトルは $\mathbf{q}=(0,0)$ となり、強的な多極子揺らぎへと変化する。磁気揺らぎの異方性を計算すると、c軸方向のイジング的な揺らぎが強い。この揺らぎは BaMn_2As_2 の磁気構造と対応している。群論によ

って多極子揺らぎを分類すると B_{2u} 表現であり、磁気四極子揺らぎと磁気十六極子揺らぎの成分をもつことがわかる。

3. 超伝導

超伝導の結果について説明する前に、空間反転対称性の破れた系の超伝導における選択則について紹介する[3]。これはフェルミ面の絵を描くと直観的に説明することができる(図2)。ここで重要なのは、副格子間でペアを組む場合、偶パリティのスピン三重項超伝導はスピン軌道相互作用によってすぐに破壊されるという点である。上述したモデルは単なるハバード模型なので、スピン軌道相互作用が無いとき安定になるのは d_{xy} 波超伝導である(軸の取り方が45度傾いていることに注意)。このとき、最近接のサイト間でペアを組むことは明らかなので、副格子間ペアということになる。したがって、この d 波超伝導はスピン軌道相互作用に対して非常にもろいということがわかる。

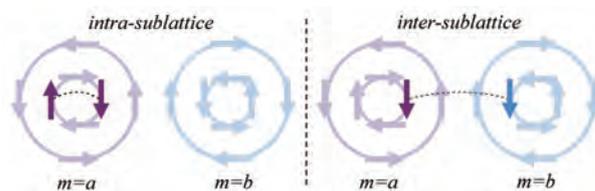


図2 二層ラッシュバ系のフェルミ面の模式図。副格子内ペアの場合(左図)、 $S_z=0$ のペアであるスピン三重項とgベクトルと平行なdベクトルが安定。一方、副格子間ペアの場合(右図)、 $S_z=1$ のペアであるgベクトルと垂直なdベクトルが安定。その他の超伝導はスピン軌道相互作用で抑制される。

スピン軌道相互作用が大きい場合に安定になる超伝導は何だろうか。今回の我々の計算により、奇パリティのスピン三重項超伝導が実現することが明らかになっ

た。図3はスピン軌道相互作用 α とクーロン斥力 U の相図であり、 A_{1u} 表現の $P+d$ 波が奇パリティ多極子揺らぎによって引き起こされている。この超伝導は、2次元クラスDIIIの Z_2 トポロジカル超伝導である。今、 α は最近接のホッピング t_1 で規格化されており、現実の物質と対応づけると $t_1 \sim 300 \text{ meV}$ である。興味深い特徴として、大域的に反転対称性を破る結晶構造では、この超伝導は安定化しない。つまり、揺らぎが奇パリティでないときには奇パリティ超伝導は得られないのである。

エキゾチックな超伝導やその発現機構は、超伝導研究の主要課題の一つであると考えられる。特に、今回

の研究と現実の物質との関連はたいへん興味深く、今後の進展が期待される。

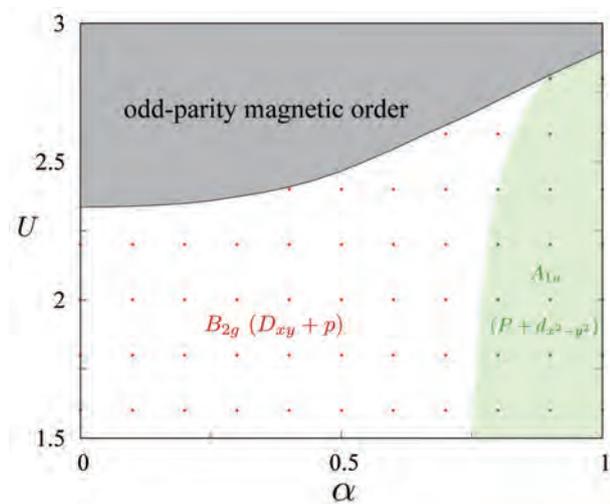
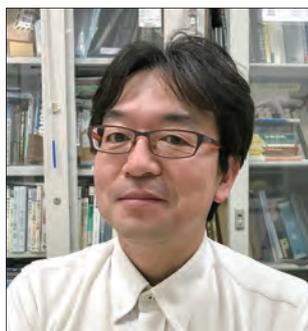


図3 得られた相図。縦軸はクーロン相互作用 U 、横軸は反対称スピン軌道相互作用 α 。

- [1] T. Yoshida *et al*, Phys. Rev. Lett. **115**, 027001 (2015).
- [2] Y. Yanase, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 014703 (2014).
- [3] M. H. Fischer *et al*, Phys. Rev. B **84**, 184533 (2011).
- [4] J. Ishizuka and Y. Yanase, Phys. Rev. B **98**, 224510 (2018).
- [5] Y. Wang *et al*, Phys. Rev. B **93** 134512 (2016).
- [6] S. Sumita *et al*, Phys. Rev. Lett. **119**, 027001 (2017).
- [7] S. Kanasugi and Y. Yanase, arXiv:1904.11113.
- [8] V. Kozii and L. Fu, Phys. Rev. Lett. **115**, 207002 (2015).
- [9] S. Sumita and Y. Yanase, private communication.



高結晶性2次元超伝導体における量子相転移

野島 勉

東北大学 金属材料研究所 准教授

齋藤 優*

東京大学
大学院工学系研究科

岩佐 義宏

東京大学
大学院工学系研究科

絶対0度近傍において、磁場や圧力等といった温度以外のパラメータ制御により引き起こされる量子相転移は、重い電子系をはじめとする様々な物質の磁気秩序相や多極子秩序相で数多く報告されており、J-Physicsでもなじみのある現象であろう。一方、超伝導相の量子相転移は、古くからアモルファスやグラニューレー薄膜といった乱れた2次元系における、超伝導体-絶縁体(S-I)転移において集中的に研究されてきた[1,2]。これは乱れの度合(試料厚さの逆数)、磁場 B やキャリア密度を制御すると、ある臨界値(量子臨界点)において、電気抵抗の温度依存性 $R(T)$ が、 $T \rightarrow 0$ Kで0に向かう超伝導的ふるまいから、無限大に向かう絶縁体的ふるまいに転移する現象であり、乱れによるクーパー対の局在化(粒子数ゆらぎの減少)に伴うコ

ヒーレンスの消失(位相ゆらぎの発散)、という不確定性に基づくモデル(いわゆるdirty bosonモデル)で理解されてきた。このモデルに従えば、 $T = 0$ Kで R が有限値となる金属状態は臨界点以外では全く存在しないことになり、実際、乱れた2次元超伝導体では、これを支持する報告例が多かった[2]。

しかし、近年出現してきた、電界誘起単結晶表面や劈開原子層単結晶を舞台とする高結晶性2次元超伝導体では、上記のdirty bosonモデルの描像が当てはまらないことが分かってきた[3,4]。これらの超伝導体では、広い面直磁場範囲において $T \rightarrow 0$ Kで電気抵抗が一定値に向かう、量子金属と呼ばれるふるまいを示す(図1(a))。これは極度な2次元性と少ない乱れ(弱い磁束ピンング)の複合効果により、磁束が量子クリ

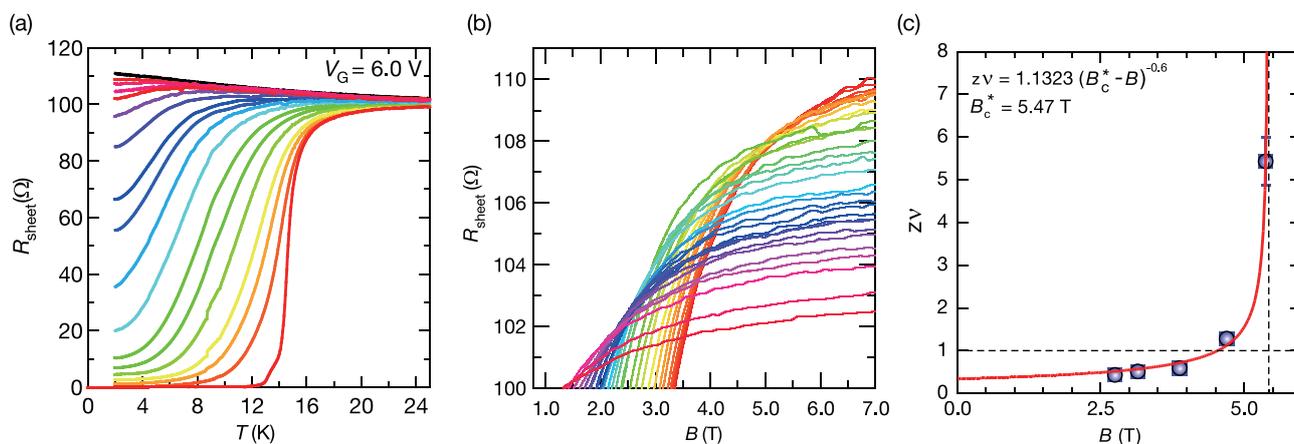


図1(a) ZrNCl-EDLTにおける面直磁場中での面電気抵抗の温度依存性(磁場は0-9 T)、(b)超伝導転移のオンセット近傍での磁気抵抗(温度は2-13 K)、(c)臨界指数 $z\nu$ の磁場依存性。Ref. [5]より転載。

* 現カリフォルニア大学サンタバーバラ校 博士研究員
[1] M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. **65**, 923 (1990).
[2] A. M. Goldman, Int. J. Mod. Phys. B **24**, 4081 (2010).

[3] Y. Saito *et al.*, Science **350**, 409 (2015).
[4] A. Tsen *et al.*, Nat. Phys. **12**, 208-212 (2016).
[5] Y. Saito, T. Nojima and Y. Iwasa, Nat. Commun. **9**, 778 (2018).

ープ(量子力学的な位相ゆらぎによる運動)をするためと理解される。そこでdirty bosonモデルにはない、広い磁場範囲にまたがる量子金属状態がどのような過程を経て常伝導相に量子相転移するかということが、新たな問題となった。最近、筆者らのグループは、電気二重層トランジスタ(EDLT)の手法によってZrNClやMoS₂の劈開単結晶表面に実現される、高結晶性2次元超伝導体において、従来のS-I転移とは異なるタイプの量子相転移とこれを含む磁場-温度 (B - T)相図を明らかにしたのでその内容を紹介する[5]。

図1(a)(b)に、様々な B および T で測定したZrNCl-EDLT(キャリア面密度: $4.8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$)の $R(T)$ および $R(B)$ の測定例を示す。図1(a)は、磁場の増加とともに約6Tで、量子金属状態から抵抗減少を伴わない弱局在金属状態へと連続的に移行することを示し、この時点で $R(T)$ の変化が従来のS-I転移[1]と違うことに気づく。特徴的なのは、図1(b)において、近い温度域にある $R(B)$ 曲線の交差磁場が温度の低下とともに高磁場側に移動することである。この多交差点を持つ現象は、量子臨界磁場においてすべての $R(B)$ 曲線が一点で交わる従来型の磁場誘起S-I転移[1,2]にはない、新たな臨界現象である(MoS₂-EDLTでも同様なふるまいが得られた[5])。

この特異な臨界現象を理解するために、 $R(T, B)$ のデータを下式に示す有限サイズスケールリングの手法で解析した。

$$R(B, T) = R_c f\left(\frac{|B - B_c|}{T^{1/z\nu}}\right) \quad (1)$$

ここで B_c は臨界磁場、 R_c は臨界面抵抗、 $z\nu$ は動的・静的臨界指数の積、 f はスケールリング関数である。通常の量子相転移では、系が一つの普遍性クラスに属することを反映して B_c 、 R_c 、 $z\nu$ の値は一定である。本系では、図1(b)の多交差的な現象を考慮して、交差点における磁場と面抵抗を漸近的な臨界値として解析を試みた。その結果、図1(c)に示すよう、臨界指数 z が磁場とともに絶対0度における臨界磁場 B_c^* に向けて $z\nu \sim (B_c^* - B_c)^{-0.6}$ の関係式に従いながら、発散的に増加するという特徴的な現象を得た。

上記のような臨界指数の発散は、Griffiths特異点を量子臨界点にもつ臨界現象として理解できる[6]。量子Griffiths現象は、乱れそのものが臨界性に直接影響する場合に起こり、以前より強磁性合金系等において観測されてきた[7]。そこでは従来の($z\nu$ が一定の)量子相転移とは異なり、臨界領域においてrare regionと呼ばれる比較的長いスケールの短距離秩序相の池が非秩序相とともに時間的に安定して混在する(理論的には d 次元系において $d\nu < 2$ の条件で起こる[8])。これを本系に当てはめると、 $B < B_c^*$ においてコヒーレンス長よりも十分大きなスケールの弱い超伝導相(量子金属相)の池が点在し、これが分布を変えながらやがて B_c^* で常伝導層相に転移する描像となる(図2(a)(b)参照)。

図2(c)に、本研究の $R(T, B)$ のデータ解析から得られた、総括的な B - T 相図を示す。本稿では詳細な説明を省いたが、 H_{c2}^{MF} は超伝導振幅の揺らぎ理論を用いて

[6] R. B. Griffiths, Phys. Rev. Lett. **23**, 17-19 (1969).

[7] S. Ubaid-Kassis *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 066402 (2010).

[8] T. Vojta, & R. Sknepnek, Phys. Status Solidi B **241**, 2118 (2004).

[9] S. Ullah & A. T. Dorsey, Phys. Rev. Lett. **65**, 2066 (1990).

[10] 野島勉, J-Physics ニュースレター No. 3, 09 (2017).

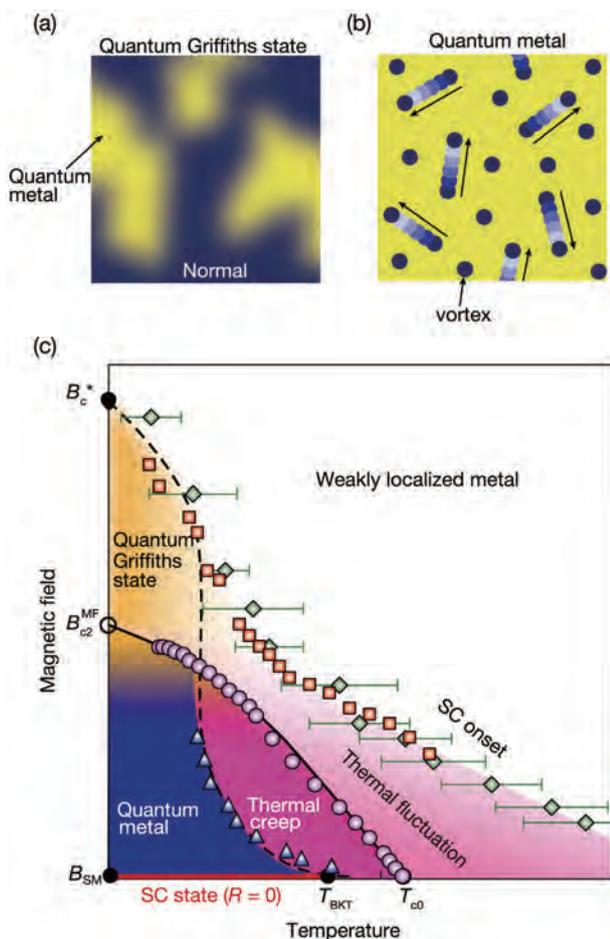


図2 (a) 量子Griffiths状態と(b)量子金属状態の概念図。(c)ZrNi-EDLTの実験から得られた、磁場-温度相図。 T_{c0} は超伝導転移温度、 T_{BKT} はBerezinskii-Kosterlitz-Thouless転移温度、ピンク丸は平均場の B_{c2} 、青三角は T_{cross} 、橙四角は $R(B)$ の交差磁場 B_c 、緑菱形は超伝導オンセット。Ref. [5]より転載。

解析した平均場の上部臨界磁場[5,9]、 T_{cross} は磁束クリープ理論を用いた解析で得られた、熱的クリープと量子クリープ相の境界である[3,5]。高結晶性2次元超伝導体においては、弱いピンングを反映して電気抵抗ゼロの真の超伝導状態は $B=0$ T近傍のBKT転移以下にしかないことに注意したい。有限な低い磁場中で温度を下げていくと、系は熱的振幅揺らぎ状態から、熱的クリープ(熱的位相揺らぎ)状態を通して、量子金

属(量子位相揺らぎ)状態にクロスオーバー的に移り変わる。低温で磁場を上昇させると、量子金属状態から量子Griffiths状態を経て、弱局在金属へと量子相転移することになる。

このようなGriffiths特異点を含む量子相転移の存在は、本系の極度に少ない乱れと深く関係する。コヒーレンス長に比べ、短い平均間隔で乱れが存在するダーティ系の場合、乱れの効果は量子臨界点近傍の大きな長さスケールでは空間的に均一となる。これが従来型のS-I転移をもたらすことになる。一方、乱れの平均間隔が ξ より長いクリーンな系の場合、 $T \approx 0$ Kでの時間相関の増大により、空間的には乱れの空間スケール程度で短距離秩序相の安定が可能となり、これがGriffiths状態をもたらすのであろう。試料中に残った僅かな乱れが量子相転移の臨界性に多大な影響を与えるわけである。よって図2(c)の B - T 相図は、乱れの少ない2次元超伝導体に普遍的に成り立つ可能性が高い。

EDLTによるクリーンな2次元超伝導体は、印可する磁場方向によって、極端に違う超伝導の2面性を提供する。以前のニュースレター3号の解説でも述べたよう[10]、面内磁場中では2次元系特有の反対称性スピン相互作用を反映した、常磁性極限臨界磁場の増強という「堅牢な超伝導」の側面を示す一方で、面直方向磁場では、上記のような量子ゆらぎが全面に顔を出す「か弱い超伝導」の側面を見せる。今後、EDLTだけに止まらない高結晶性2次元超伝導の研究の進展により、本研究で見出された新たな B - T 相図とこの2面性が2次元超伝導のスタンダードとなることを期待している。



パルス磁場下の超音波測定で浮き彫りにするURu₂Si₂の格子不安定性の対称性

柳澤 達也

北海道大学大学院理学研究院 准教授

<p>日高 宏之 北海道大学大学院 理学研究院</p>	<p>網塚 浩 北海道大学大学院 理学研究院</p>	<p>Sergei Zherlitsyn ドレスデン強磁場研究所</p>	<p>Joachim Wosnitza ドレスデン強磁場研究所/ ドレスデン工科大学</p>
<p>Marc Janoscheck ロスアラモス国立研究所</p>	<p>M. Brian Maple カリフォルニア大学 サンディエゴ校</p>	<p>青木 大 東北大学金属材料研究所/ CEA Grenoble (当時)</p>	

秩序変数・秩序波数共に未解明の「隠れた秩序 (HO)」を示すURu₂Si₂は、四半世紀以上も当該領域の研究者を悩ませると同時に魅了してやまない [1]。近年、磁気トルク・放射光X線・ラマン散乱、応力下における電気抵抗測定などの計測技術の向上により、HOにおけるB_{2g}(Γ₄)型の格子歪みを伴う電子系の4回回転対称性の破れが報告され [2]、それらに基づく新しい秩序変数の理論が林立した。同じ頃、格子歪みを伴わない高次多極子秩序を予言する理論も登場する。北大グループは独自に磁気トルク実験、並びに放射光実験の追試 [3]を慎重に行ってきたが、これまでのところHOによる4回対称性の低下は電子系・格子系共に確認できておらず、最近の²⁹Si-NMRと¹⁰¹Ru-NMRの結果もHOにおいて電子系の4回対称性が保持されていることを支持しており [4]、本系で凍結している自由度の対称性を議論する上での争点となっている。

超音波による弾性応答の観点からこの問題をみてみよう。超音波は熱力学量としての弾性定数を測定し、バルク結晶の格子不安定性を(それが強制的・反強制的に関わらず)歪み感受率として敏感に観測できる。一般に構造変化を伴う電子系の相転移においては(電子格子相互作用が極めて小さな状況でないかぎり)、電子系の対称性の低下に対応する格子不安定性が存在するため、対応する超音波モードは、相転移点に向かって温度降下と共に軟化(ソフト化)し、相転移

点でソフト化が停止する振る舞いが期待される。しかしながらURu₂Si₂ではB_{2g}(Γ₄)対称性のε_{xy}に対応するC₆₆モードに明瞭なソフト化は観測されていない。実験結果ではむしろそれと直交するB_{1g}(Γ₃)対称性の歪みε_v=ε_{xx}-ε_{yy}に対応する超音波モード(C₁₁-C₁₂)/2が常磁性相でソフト化する。これらの超音波測定の結果は、既に90年代に報告されており [5]、超音波測定の威力が軽視されているのではないかと私は懸念する。一方で、これまでの5f電子系に対する超音波による研究は圧縮率に対応する縦波超音波の解析が主であり、q=0の横波音響フォノン分散の傾きとしての音速にたいして、遍歴電子系がどのような変調をもたらすかを調べる為には、さらなる実験の蓄積が必要である。本研究の眼目は強磁場を用いてURu₂Si₂のc-f混成を制御し、本系が示す格子不安定性の対称性とHO相との関連性を浮き彫りにすることである。本稿では、ドレスデン強磁場研究所で行なった60 T級パルス強磁場下の超音波測定の進捗状況を紹介する。

ドレスデン郊外のひっそりとした森の中で実験する利点は、驚くべきノイズレベルの低さ(田舎だから?)と約200 msの長いパルス幅による高い測定精度である。図1(a), (c)にそれぞれ常磁性相とHO相においてパルス磁場を印加した際の弾性定数の磁場依存性と、図1(b)に磁場-温度相図を比較して示す。B_{1g}(Γ₃)対称性の(C₁₁-C₁₂)/2モードが他の横波モードC₄₄、C₆₆とは真逆の

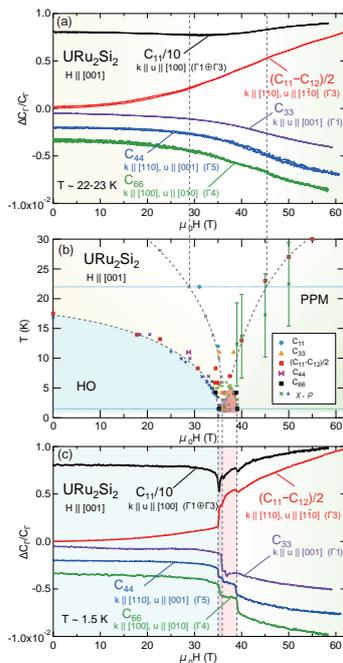


図1 URu₂Si₂の弾性定数の磁場依存性。(a) T = 22-23 K, (b) 磁場-温度相図、(c) T = 1.5 K。

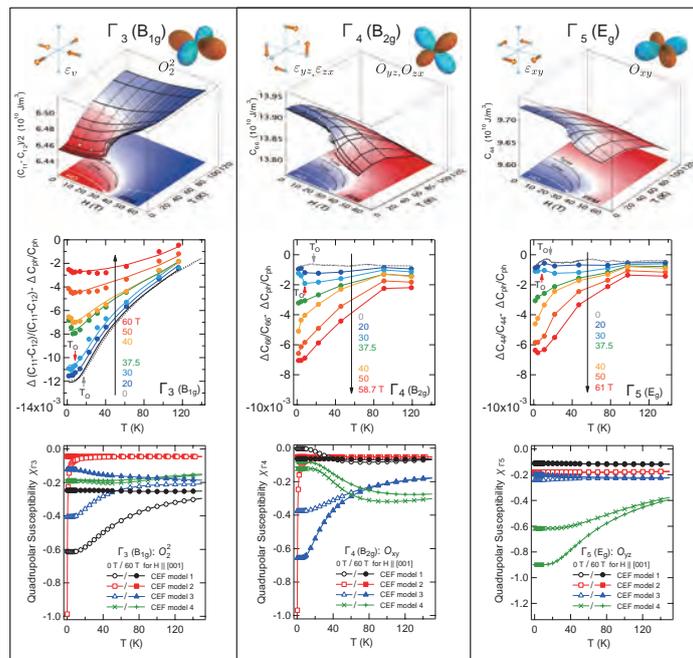


図2 (上段) 横波弾性定数(C₁₁-C₁₂)/2, C₆₆, C₄₄と磁場・温度の3次元プロット。(中段) 3次元プロットから得られた弾性定数の磁場中温度変化。(下段) 主要な4つの結晶場モデルによる四極子感受率の計算結果 [7]。

磁場依存性を示していることが判る。様々な温度点で行なったパルス磁場実験の結果を、一定磁場中の温度変化に焼き直し、それぞれの対称歪みに対応する弾性定数の大-小(硬-軟)を青-赤の3次元のカラープロットで示したのが図2(上段)である。B_{1g}(Γ₃)対称性の弾性定数が軟化している(赤色の領域)はc-f混成が特に強いHO相近傍の低温・低磁場領域と一致する。逆に磁場印加によりc-f混成が切れHOが崩壊する高磁場領域では、B_{2g}(Γ₄)とE_g(Γ₅)対称性の弾性定数が軟化する。f電子の局在性が増していると考えられるこの強磁場領域における弾性定数の温度変化にたいして、これまで提案されている結晶場模型を用いて四極子感受率による解析を試みたが、すべてを説明できる模型は見当たらない。そのため、これらの弾性応答を統一的に説明するような模型の構築が今後の課題である。

一方、結晶の4回対称性の低下を伴わない隠れた秩序変数の候補の一つとして、A_{2g}(Γ₂)型の反強十六極子秩序模型があるが[6]、そこで用いられるΓ₁-Γ₂(60K)-Γ₃(178 K)の結晶場模型(図2下段のCEF model 1)は少なく

とも(C₁₁-C₁₂)/2モードの温度・磁場依存性を広い範囲で模擬的に再現するようである。本研究ではc面内方向のパルス磁場実験も行い、反強十六極子秩序が磁場中で誘起する下位のランクの電気四極子の応答の観測を試みたが、今のところ測定精度内でその証拠は得られていない。本稿の誌面には限りがあるので、解析の詳細については原著論文を参照されたい [7]。

最後に後日談を。核燃料物資は法令の制約から簡単に日本国外に持ち出すことはできない。その為、今回米国と仏国で育成したウラン試料をドイツに郵送し、然るべき手続きをとって税関を通すことでようやく実験に漕ぎ着けた。本研究を通して私は日米欧3つのグループで別々に育成された単結晶を超音波で「鑑定」する機会を得た訳である。超音波エコーの美しさは残留抵抗比だけでは測られないメゾスコピックな結晶性の良否を如実に反映する。本研究で用いたURu₂Si₂はいずれも結晶性が良く、残留抵抗比による格子不安定性の差異はほとんど無かったことを最後に申し添える。

[1] J. A. Mydosh and P. M. Oppeneer, Rev. Mod. Phys. **83**, 1301 (2011).
 [2] 例えば, S. Tonegawa *et al.*, Nature Comm. **5**, 4188 (2014); S. C. Riggs *et al.*, Nature Comm. **6**, 6425 (2015).
 [3] C. Tabata *et al.*, Philosophical Magazine **94**, 3691 (2014).

[4] S. Kambe *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 235142 (2018).
 [5] K. Kuwahara *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn., **66**, 3251 (1997).
 [6] H. Kusunose and H. Harima, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 084702 (2011).
 [7] T. Yanagisawa *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 155137 (2018).



反強磁性金属EuMnBi₂における 磁気圧電効果の観測

塩見 雄毅

東京大学 大学院総合文化研究科

渡邊 光

京都大学 理学研究科
物理学専攻

増田 英俊

東京大学 工学系研究科
物理工学専攻

高橋 英史

東京大学 工学系研究科
物理工学専攻

柳瀬 陽一

京都大学 理学研究科
物理学専攻

石渡 晋太郎

東京大学 工学系研究科
物理工学専攻

私はスピントロニクス分野で見出されたスピン流に関する奇パリティ多極子効果を実験的に開拓することを目指して研究を行っています。ただ、今回紹介する成果[1]は本題のスピン流に関する成果ではなく、私がスピン流研究のなかで身に着けた動的変位測定技術を用いて達成されたものです。

スピン流とはスピン角運動量の流れであり、電子スピンはもちろん、スピン液体状態のスピン[2]や、超伝導ボルテックス[3]、核スピン[4]など様々な角運動量流がスピン流に成り得ることが示されています。一方、角運動量は力学の意味では物体の回転と関係していますので、角運動量流の格子系への緩和現象は、角運動量保存則により物体の回転を生み出すことを期待させます。そのようなスピン流と物体の回転運動を明らかにするために、私は前所属の研究室で磁性体カンチレバーの動的変位測定を、レーザードップラー振動計を利用して行っていました[5]。

レーザードップラー振動計は、振動する物体に照射したレーザーが反射するときに示すドップラー効果を利用して物体の振動速度を計測する手法です。FFTアナライザを用いた時間数値積分により、振動変位を得ることができるため、カンチレバーの共振周波数の測定や、圧電材料の特性評価などに用いられています。

私は上記のような経緯で、このレーザードップラー振動計を所有していました[6]。研究室を立ち上げて間もない中で柳瀬先生の磁気圧電効果に関する講演をJ-Physicsの研究会で聴講し、自分の実験技術で磁

気圧電効果の実験的観測を達成できるのではないかと考えて始めたのが今回紹介する研究になります。

磁気圧電効果[7,8]は、伝導系における圧電効果であり、奇パリティ多極子に由来する現象の一つです。圧電効果（電場により物体の変位が起きる現象）は、金属だと伝導電子によるスクリーニング効果の影響があるため、これまで絶縁体や半導体でしか観測されていませんでした。しかし、共同研究者の渡邊・柳瀬による磁気圧電効果の理論予測[8]によると、奇パリティ多極子の効果によって、磁性金属においてもスクリーニング効果の影響がなく圧電効果が誘起されることが指摘されました。

磁気圧電効果は、低対称性の磁性金属に電流を印加した際に歪みが生じる現象ですので、対象の試料に交流電流を印加したときに生じる動的変位を、レーザードップラー振動計で測定すればよいことになります。どの結晶方位に動的歪みが生じるかは、通常の圧電効果と同様に、対象試料の結晶対称性で決まります。

今回用いた反強磁性金属EuMnBi₂は、反強磁性相

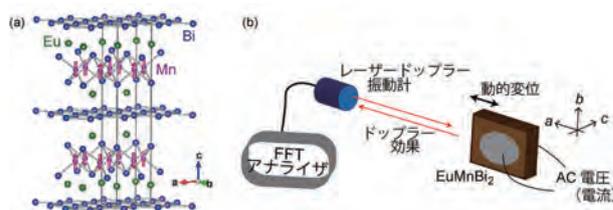


図1：(a)EuMnBi₂の結晶構造。(b)磁気圧電効果の測定系。試料は77 Kまで冷やした。

での対称性は理論論文[8]で磁気圧電効果のモデル物質として議論されている(Ba,K)Mn₂As₂と同じで、*c*軸方向に電流を印加した時に面内の[110]方向に歪みが生じることが期待されます。以上を参考に図1(b)のように測定系を構築しました。また、磁気秩序に伴う対称性の低下に起因する現象であるため温度変化の測定も重要となると考え、手持ちの液体窒素オプティスタットを用いて77 KまでEuMnBi₂における磁気圧電効果の測定を行いました。

図2に、77 Kにおける磁気圧電効果の測定結果を示します。FFTアナライザを用いて振動速度を時間に対して数値積分することで得られた動的変位の周波数スペクトルは、一般に、数値積分の影響で1/(周波数)に比例して低周波数で発散します。実際に、交流電流を印加していない動的変位スペクトルでは、低周波数で発散するバックグラウンド信号が得られています。一方、*c*軸方向に6 kHzの交流電流を印加すると、印加電流の周波数に一致する周波数に、動的変位信号が現れているのがわかります(図2(a))。この動的変位信号は、図2(b)に示すように、電流方向の*c*軸方向には生じません。これはEuMnBi₂の対称性から予測される磁気圧電効果の方向依存性と一致します。

磁気圧電効果は電流に線形な応答のはずであり、実際にEuMnBi₂において電流に応答して現れる動的変位信号が、電流値に比例して増大することも確

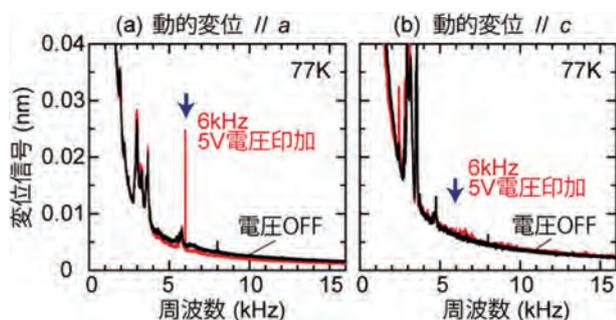


図2 : (a) *a*方向と(b) *c*方向の測定結果(77 K)。

認しました。さらにEuMnBi₂と同じ結晶構造で反強磁性のないEuZnBi₂においては、電流を印加しても動的変位信号は発現しませんでした。これらはEuMnBi₂において77 Kで観測した電流誘起の歪み信号が磁気圧電効果に由来することを示しています。

磁気圧電効果は、磁気秩序に伴う対称性の低下により起きるため、77 Kから温度上昇させると磁気転移点(314 K)に向かって信号が減少し消失することが期待されます。実際に温度依存性を測定したところ、図3に示すように温度上昇に対して単調に動的変位信号強度は減少し、200 K程度で消失することがわかりました。これは磁気転移点が314 Kであるのに対して十分に低い温度です。200 K以上で信号が消失する理由については、EuMnBi₂が層状結晶で伝導の異方性が非常に強く、*c*軸方向の輸送特性は200 K以上でホッピング伝導となるために、金属的な電気伝導が本質的な磁気圧電効果が見えなくなったと考えています。

以上のように、反強磁性金属EuMnBi₂で磁気圧電効果を初めて観測しました。しかしながら、温度変化において磁気転移との関係が不明瞭であるなど、まだわからない点があります。現在は、J-Physics内の共同研究で、異なる物質材料でも磁気圧電効果の研究を進め、現象の理解を深めようとしています。

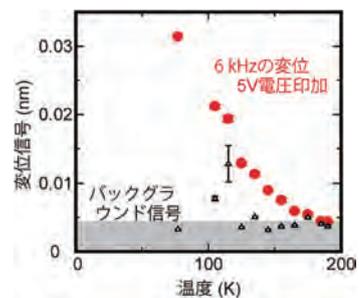


図3 : 磁気圧電効果信号の温度変化。

[1] Y. Shiomi *et al.* Phys. Rev. Lett. **122**, 127207 (2019).
 [2] D. Hirobe *et al.* Nature Phys. **13**, 30-34 (2017).
 [3] S. K. Kim *et al.* Phys. Rev. Lett. **121**, 187203 (2018).
 [4] Y. Shiomi *et al.* Nature Phys. **15**, 22-26 (2019).

[5] Y.-J. Seo *et al.* Appl. Phys. Lett. **110**, 132409 (2017).
 [6] Y. Shiomi *et al.* Adv. Electron. Mater. **4**, 1800174 (2018).
 [7] D. Varjas *et al.* Phys. Rev. Lett. **117**, 257601 (2016).
 [8] H. Watanabe and Y. Yanase, Phys. Rev. B **96**, 064432 (2017).



共鳴X線散乱による 電子軌道選択的な軌道混成状態の観測

中尾 裕則

高エネルギー加速器研究機構 准教授

田端 千紘

京都大学
複合原子力科学研究所

山崎 裕一

物質・材料研究機構

複数の原子からなるクラスター上に分布する電荷や磁気モーメントを組み合わせた拡張多極子という新しい概念が、本新学術領域の開始時に導入された[1]。特に奇パリティの多極子は、1原子だけでは出現せず、周りに配位した原子を考えることで初めて出現する。このような新たな見方から、電流磁気効果などの新たな物性の予見[2]、実験的な検証[3]が進んでいる。このように拡張多極子系では、周りに配位している原子との軌道混成が重要な役割を果たしているとも期待できる。ここで共鳴X線散乱は、原子の吸収端を利用することで、元素・軌道選択的に物性を支配している電子の秩序状態を解明できる手法であり、多極子秩序の観測手法[4]の1つでもある。しかしながら、配位した原子にも着目した共鳴X線散乱の研究は限られていた。今回、マンガン系人工超格子においてMn 3dと配位した原子であるO 2pの電子状態をそれぞれ観測したところ、系の伝導特性に対応した軌道混成状態の空間的な変調構造の観測に成功した[5]ので報告する。

ペロブスカイト型マンガン酸化物LaMnO₃ (LMO)とSrMnO₃ (SMO)を交互にエピタキシャル成長させた人工超格子(LMO)_n(SMO)_mは、LMO(Mn³⁺)とSMO (Mn⁴⁺)の積層構造によりMn価数が人工的に制御でき、多彩な電子秩序相が出現する系である。ここで着目するのはLMOとSMOを2層ずつ積層させた(LMO)₂(SMO)₂で、ほぼ同様の試料作製条件であるものの、図1に示すように絶縁性の良いSample 1と電気抵抗が低くなっ

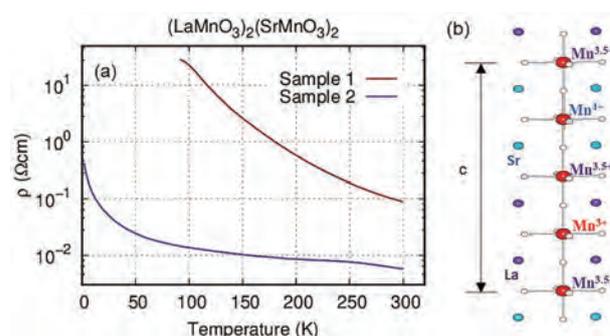


図1 (a) (LMO)₂(SMO)₂の2つの試料の電気抵抗の温度依存性と、(b) 結晶構造。

たSample 2が報告されている[6]。我々は、人工格子作製時の積層構造の精度の微妙な違いがLMO層とSMO層の界面でのMnの電子状態に影響し、電気伝導特性の違いが生じたと予想した。そこで、Mn K吸収端(1s → 4p遷移)での共鳴X線散乱によりMn価数の積層構造を評価した。図2(a)に、Mn K吸収端での散乱強度のエネルギー依存性を示す。図1(b)に示すようなLMO, SMOの積層構造で決まるMn価数の変調構造に対応し、吸収端近傍での散乱強度の変化が観測された。ただし予想とは異なり、2つの試料間の違いは小さく、どちらの試料も測定精度の範囲内で図1(b)に示すようなMn価数の積層構造となっていると、評価された。

この結果を受け我々は、どちらの試料もMn価数の変調構造は存在しているものの、絶縁性が高くMn 3dの電荷変調が主となっている試料と、Mn 3dとO 2pの軌道混成が大きくなり、O 2pの電荷変調が大きい状態へと変化した試料になっていると、あらためて予想した。この場合、Mn K吸収端での共鳴X線散乱では、Mn

4pの電子状態を観測しているため、O 2pとの軌道混成状態には鈍感であったと考えることができる。

そこで、Mn 3d, O 2pの電子状態を直接的に観測するため、軟X線領域にあるMn $L_{2,3}$ 吸収端 ($2p \rightarrow 3d$ 遷移)、O K吸収端 ($1s \rightarrow 2p$ 遷移)を利用した共鳴X線散乱実験を実施した。図2(b)に示すように、Mn $L_{2,3}$ 吸収端近傍で強い共鳴信号が観測された。ここで、吸収端から外れたエネルギーの散乱強度が1になるように強度を規

格化しており、Mn K吸収端と比較して非常に強い共鳴信号が観測されたことがわかる。さらに、そのエネルギースペクトルは2つの試料で大きく異なり、Sample 1の共鳴信号が強く観測されている。次にO K吸収端での結果(図2(c))を見ると、こちらもMn K吸収端と比較して非常に強い共鳴信号が観測されるとともに、今度はSample 2の共鳴信号が強く観測された。これらの結果は、電気抵抗の高いSample 1ではMn 3dの電荷変調が主であるが、電気抵抗が低いSample 2ではO 2pの電荷変調が主となっていることを直接的に示している。このように、Mn $L_{2,3}$ 吸収端、O K吸収端を利用した共鳴X線散乱により電子軌道選択的に観測することで、Mn K吸収端で分からなかった2つの試料の電子状態の違いを明確にすることができた。(何故、このような電子状態が現れたのか気になる方は原著論文[5]の方を参照ください。)

ここで示したように3d遷移金属酸化物では、3d電子と配位したO 2p電子の軌道混成状態が系の電気伝導特性を決める重要なパラメータである。同様に希土類化合物においても、f電子と配位した原子との軌道混成状態は、p-f混成とも呼ばれ、物性を支配している1つの重要なパラメータとなっている。今回の実験のような軌道混成に関わる電子軌道ごとの電子状態の研究が、強相関電子系の局在と遍歴の狭間で現れる新奇物性、そして拡張多極子系の物性の理解に繋がることを期待している。

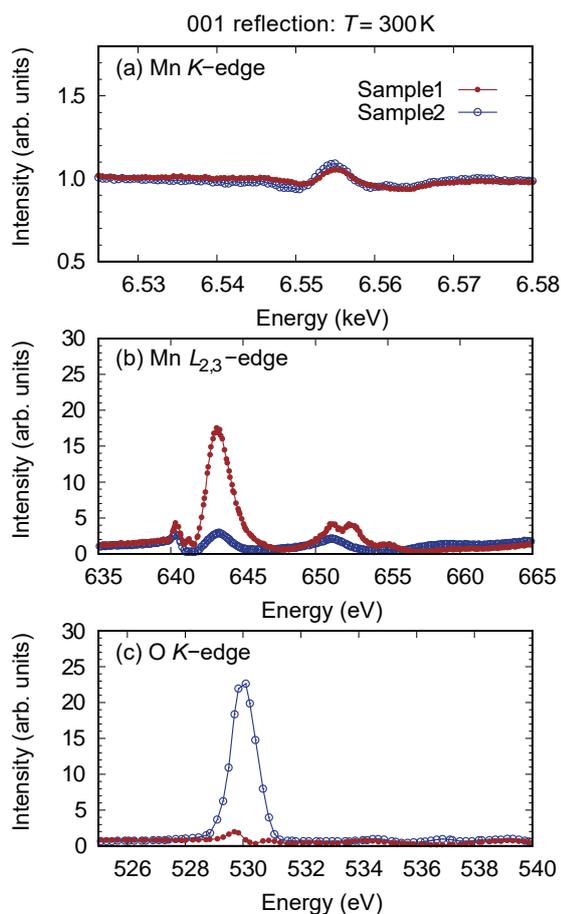


図2 各吸収端エネルギー近傍での001反射強度のエネルギー依存性。

[1] 楠瀬博明, J-Physics NEWS LETTER #2, 4 (2016).
 [2] 速水賢 他, 固体物理 **50**, 217 (2015).
 [3] 齋藤開 他, J-Physics NEWS LETTER #6, 69 (2018).

[4] T. Matsumura *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 021007 (2013).
 [5] H. Nakao *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 245146 (2018).
 [6] H. Nakao *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 024602 (2009).



正負両極性の巨大磁気抵抗効果を示す 遍歴反強磁性体BaMn₂Pn₂'s (Pn = As, Sb, Bi)

谷垣 勝己

東北大学 材料科学高等研究所 教授

Khuong K. Huynh

東北大学材料科学研究所

松下 ステファン 悠

東北大学理学研究科
物理専攻

小笠原 拓磨

東北大学理学研究科
物理専攻

萩原 政幸

大阪大学
先端強磁場科学研究センター

電子の有する磁気と電荷は物性の重要な要素である。最も簡単な枠組みの中では、磁性は磁場の線形応答として理解され、誘電率は電場応答としての物理量として取り扱われる。しかし、通常は電場の応答である電流と磁場の応答である磁気とが交差して相互に結びつく効果が存在して、そのような効果は電気磁気(Magnetoelectric effect: ME)効果と呼ばれる。磁気と電荷という二つの物理量は、多くの場合はスピン軌道相互作用(ζ_{SO})を介して強く結びついている。このような電気と磁気の交差現象の多くは、従来は静的な極限の物性として報告されている。静的な電気磁気効果の発現には、物質の空間反転対称性の破れが重要である事は良く知られていて、静的なME効果は物質の対称性との関係で議論が行なわれる。一方、電子が局在性極限から遍歴性極限に移行する際の電気磁気効果(動的ME効果)に関しては、これまであまり詳細な議論は行なわれていなかった。最近、Wadley等により報告された遍歴反強磁性金属(CuMnAs)の研究に注目が集まっている。この物質は、電流を流す事により電流と反強磁性の相互作用により分極電流が創出され、静的な電子スピン配列を磁気トルクにより変化させる事ができる興味ある物性が観測されている。このような物質では、時間反転対称性(TR)と空間反転対称性(SI)が同時に破れているPT(TR×SI)対称性を有する事から、PT対称性を有する遍歴系反強磁性体の物性に注目が集まっている。

私達の研究グループでは、鉄系超伝導物質の研究過程でBaFe₂As₂物質の研究を行ってきた。この物質

は、150 K付近で高温相である遍歴常磁性半金属から、低温相である反強磁性半金属へと電子相転移を示し、低温相では正孔と電子の多電子系ディラック電子状態を示す。私達は、この事実を物性理論家であるアブリコソフ(Abrikosov)が論文で予言したディラック電子の示す線形磁気抵抗を観測し[1]、その正確な解釈を移動度スペクトル解析という特別な手法により明確にした[2]。この物質の鉄元素をMn元素に置換したBaMn₂As₂が今回の研究対象物質である。

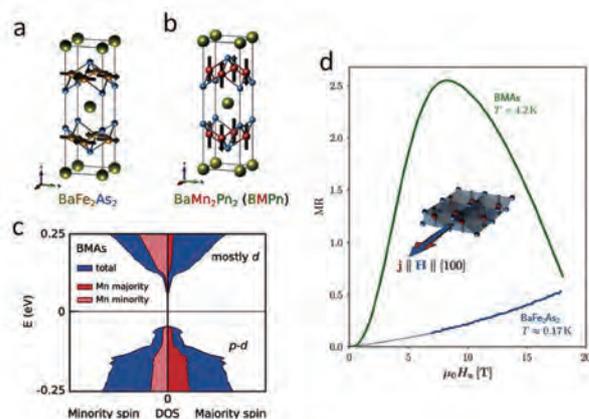


図1. 遍歴反強磁性物質 (a) BaFe₂As₂ と (b) BaMn₂As₂ の結晶構造とスピン配列、(c) BaMn₂As₂ のバンド構造、(d) BaFe₂As₂ と BaMn₂As₂ の磁気抵抗 (MR) 効果

BaMn₂As₂とBaFe₂As₂(図1)は両方とも正方晶系の遍歴反強磁性体であるが、局在系の反強磁性スピンの配列構造は大きく異なり、BaMn₂As₂の局在スピン配向は擬2次元伝導(ab)面に垂直であるのに対して、BaFe₂As₂の局在スピンは伝導(ab)面内に並行なスピン配向を有する。従って、対称性の観点からは、BaFe₂As₂はPT対

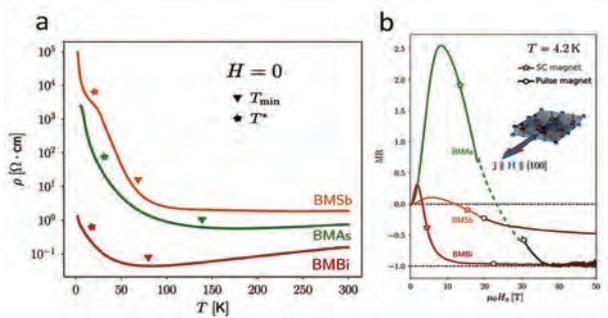


図 2. BaMn₂Pn₂(Pn:As,Sb,Bi) の a: 電気抵抗率 (ρ) の温度依存性と b: 磁気抵抗 (MR)。

称性を有さないのに対して、BaMn₂As₂はPT対称性を保持している。

最近、本物質系の磁気抵抗効果(MR)を詳細に研究した。BaFe₂As₂では、ディラック電子状態が存在するために線形磁気抵抗を含むが、正常な磁気抵抗効果が観測されるのに対して、BaMn₂As₂では、強磁場極限における負の巨大磁気抵抗効果を基本として、符号が切り替わる正負両方の磁気抵抗効果が観測された[3]。このPT対称性を有するBaMn₂As₂のMR効果は特異であり、電気伝導が金属的特性から絶縁体的特性に変化する温度(T_{\min})から負の磁気抵抗効果が著しく大きくなる。さらに低温(T^*)で、正孔の1バンド描像が電子バンドを含む2バンド描像に変化して、低磁場で正の磁気抵抗効果が観測される。正負両方の磁気抵抗は、高磁場極限ではどちらも負の磁気抵抗効果となり、高抵抗の絶縁体状態は元の金属状態へと再転移して低抵抗状態となる。この現象が負の磁気抵抗効果として観測される。

観測された磁気抵抗効果の角度依存性を調べた結

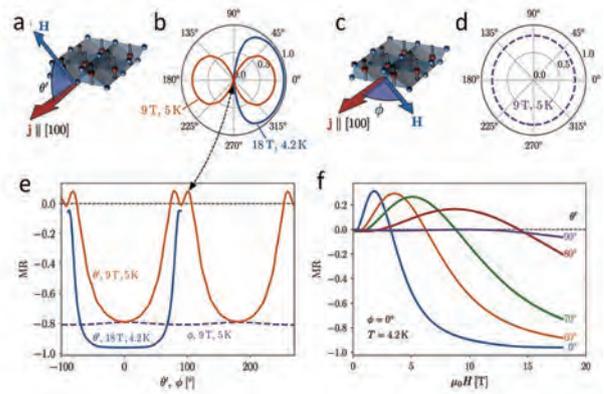


図 3. BnMn₂Bi₂ の磁気抵抗 (MR) の角度依存性 (a-e) と磁場 (B) 下での磁気抵抗 (f)。

果を図3に示す。磁場 B が配列スピンである反強磁性スピンの向きと垂直な場合に最大の負のMRが観測され、伝導面内では角度依存性は殆ど見られない。すなわち、MRは局在スピン配列に垂直に B を付与した場合に最大となる。このような角度依存性は、従来のMRでは見られない特徴のある角度依存性であり、 B によるスピン配列の乱れに伴う時間反転対称性の破れが負の磁気抵抗効果と深く関係している事を示唆している。

反転対称性(SI)の破れた遍歴反強磁性体に対する電気磁気効果は、Levitov等により1985年に最初に予測され、その後Edelstein等により研究が進展されている。PT対称性を有するBaMn₂Pn₂(Pn: As, Sb, Bi)に関する特異なMRIは、遍歴反強磁性における電気磁気効果と直結するものではないが、PT対称性を有する遍歴反強磁性体の動的電気磁気効果の研究への発展が期待される。

謝辞 本研究を進めるにあたり議論頂いた、東北大学大串研也教授およびJozef Stefan研究所Denis Arcon教授に感謝致します。

[1] K.K. Huynh, Y. Tanabe, K. Tanigaki, Phys. Rev. Lett. **106**, 217004 (2011).
 [2] K. Huynh, Y. Tanabe, T. Urata, S. Heguri, T. Kida, M. Hagiwara, K. Tanigaki, New Journal of Physics **16**, 0930621 (2014).
 [3] K.K. Huynh, T. Ogasawara, K. Kitahara, Y. Tanabe, S. Yu Matsushita, T. Tahara, T. Kida, M. Hagiwara, D. Arcon, and K. Tanigaki, Phys. Rev. B. **99**, 195111 (2019).



BiCh₂系層状超伝導体LaO_{0.5}F_{0.5}BiSSeにおける磁気抵抗の特異な面内異方性

星 和久

首都大学東京 物理学専攻 博士前期課程2年

木俣 基

東北大金研

後藤 陽介

首都大学東京

松田 達磨

首都大学東京

水口 佳一

首都大学東京

BiCh₂系超伝導体 (Ch = S, Se) は、2012年に発見された層状超伝導体であり、その結晶構造が銅氧化物系超伝導体や鉄系超伝導体と類似しているため、世界中でさかんに研究が行われてきました[1]。典型的なBiCh₂系超伝導体としてREO_{1-x}F_xBiCh₂ (RE = La, Ce, Pr, Nd) があります。このタイプの母物質 (REOBiCh₂) はバンド絶縁体ですが、OをFで置換することで、電気伝導層に電子キャリアをドーピングすることができ、超伝導が発現します。最大の転移温度は、LaO_{0.5}F_{0.5}BiS₂の高圧相 (高圧合成または高圧測定) において11 Kを記録しています。BiCh₂系超伝導体における超伝導発現機構の解明に向けた様々な研究が理論的・実験的に行われてきましたが、完全な解明には至っていません。熱伝導率測定[2]や μ SR[3]からは、フルギャップのs波超伝導が提案されていますが、最近の理論計算や角度分解光電子分光 (ARPES) の研究からは非従来型超伝導発現機構が提案されています[4,5]。また、我々はBiCh₂系超伝導体LaO_{0.5}F_{0.5}Bi(S,Se)₂におけるSe同位体効果の研究を行い、⁷⁶Seと⁸⁰Seを用いたそれぞれの試料間でT_cの変化が観測されず、フォノンを媒介としない非従来型超伝導の可能性を示唆する結果を得ました[6]。

さて、近年いくつかの非従来型超伝導体において、ネマティック状態が注目されています。ネマティックと

いう言葉の語源は、液晶分子における回転対称性が破れた状態がネマティック液晶と呼ばれていることに由来します。超伝導体においては、電子系の対称性が格子系のもつ回転対称性を破るときにネマティック状態と呼ばれます。例えば、鉄系超伝導体では、構造相転移温度より高温において生じる回転対称性が破れたネマティック秩序相に関する研究がさかに行われています[7]。さらに、ab面内に3回転対称性を有する結晶構造をとるトポロジカル超伝導体A_xBi₂Se₃ (A = Cu, Nb, Sr) では、超伝導状態における電気抵抗率やNMR、比熱、磁化の異方性の測定において、2回転対称性が観測されています。このように、超伝導ギャップ振幅が回転対称性を破った超伝導は、ネマティック超伝導と呼ばれています[8]。本研究では、BiCh₂系超伝導体におけるネマティック超伝導の可能性の検証にむけて、BiCh₂系超伝導体LaO_{0.5}F_{0.5}BiSSeにおける磁気抵抗の面内異方性を測定しました。

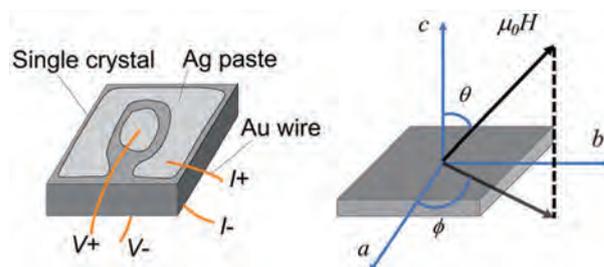


図1 本研究の測定セットアップ

[1] Y. Mizuguchi, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 041001 (2019).

[2] T. Yamashita *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 073707 (2016).

[3] G. Lamura *et al.*, Phys. Rev. B. **88**, 180509 (2013).

[4] C. Morice *et al.*, Phys. Rev. B. **95**, 180505 (2017).

まず、BiCh₂系超伝導体LaO_{0.5}F_{0.5}BiSSeの純良単結晶試料をフラックス法により育成しました。この単結晶試料を用いて、東北大学金属材料研究所強磁場超伝導材料研究センターにて磁気抵抗の面内異方性測定を行いました。15 Tという強磁場を用いた理由は、BiCh₂系超伝導体LaO_{0.5}F_{0.5}BiSSeにおける面内上部臨界磁場が30 T程度と高いためです。図1が本測定のセットアップであり、面間(c軸)の電気抵抗率を測定することで、面内異方性を検証しました。さらに、2軸ローテータを用いることで、精密に磁場を伝導面内に印加します。

図2は、面内角度 ϕ を90度で固定して磁場 $\mu_0 H = 15$ Tを印加したときの、 $T = 2.5$ Kにおける面間電気抵抗率のC最小になっているところが面内に磁場が印加されている状態を示しており、このときの電気抵抗率を ρ_{\min} とします。次に、面内角度 ϕ を10度ずつ変えて図2の測定を行い、 ρ_{\min} の面内角度 ϕ 依存性をプロットしました(図3)。 ϕ が90度、-90度のときに ρ_{\min} が最小となっていることがわかります。結晶構造は正方晶であるため、a軸方向とb軸方向は等価であるはずですが、特定の方向で磁場に対しての超伝導特性が高い(上部臨界磁場が高い)ことがわかります。つまり、結晶構造の有する

4回回転対称性を破る2回回転対称性が、磁気抵抗の面内異方性の測定により観測されたこととなります[9]。これは、BiCh₂系超伝導体が、ネマティック超伝導体である可能性を示唆する結果であり、今後よりいっそうの研究が求められます。トポロジカル超伝導体A_xBi₂Se₃ (A = Cu, Nb, Sr)では、熱力学量である磁化や比熱の測定によって結晶構造の有する面内回転対称性の破れ(ネマティック超伝導)が確認されているため、BiCh₂系超伝導体においても同様の測定からネマティック超伝導の確証を得たいと考えています。

最後に、本研究は東北大金研共同利用により推進しておりますので、この場を借りて金研共同利用関係者の皆様に感謝申し上げます。また、私は現在博士前期課程2年ですが、博士後期課程に進学予定です。J-Physicsで得られた本成果をさらに発展させられるよう、BiCh₂系超伝導体の超伝導面内異方性の起源解明にむけて研究に励みたいと思っています。

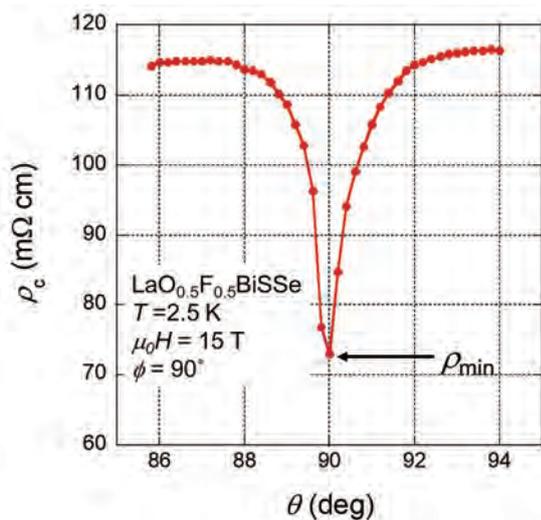


図2 面間の磁気抵抗 ρ_c の θ 依存性 [9]

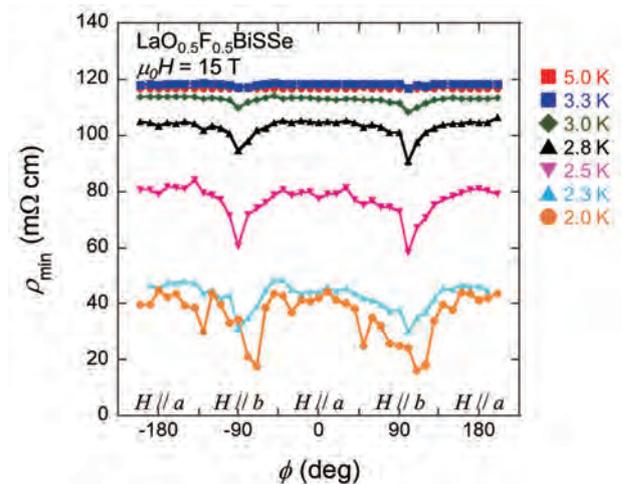


図3 磁気抵抗の面内異方性 [9]

- [5] Y. Ota *et al.*, Phys. Rev. Lett. **118**, 167002 (2017).
 [6] K. Hoshi *et al.*, Phys. Rev. B. **97**, 094509 (2018).
 [7] R. M. Fernandes *et al.*, Nat. Phys. **10**, 97 (2014).
 [8] S. Yonezawa, Condens. Matter **4**, 2 (2019).
 [9] K. Hoshi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 033704 (2019).



49èmes Journées des Actinides (JdA-2019) 会議参加記

田端 千紘

京都大学複合原子力科学研究所 助教

Journées des Actinides (JdA-2019)は、欧州で毎年開催されているアクチノイド系の国際会議である。物理・化学・応用の各方面からアクチノイド系の研究交流をじっくりと行うことができる貴重な機会であるだけでなく、欧州各地の風光明媚な「いい場所」で開催されるという点からも、大変魅力的な会議である。筆者は博士課程3年生の時にプラハで開催されたこの会議に初めて参加し、そこが現在も続けているカレル大学との国際共同研究の起点になったことから、個人的に大変思い入れがある。それ以来JdAにはしばらく参加していなかったが、今年は幸運にも会議参加のチャンスを得ることができた。

今年はイタリア・シチリア島西部に位置する小さな山岳都市、エリチェが開催地であった。町の中心部にはEttore Majorana Foundation and Centre for Scientific Culture (EMFSC) という、シチリア出身である高名な物理学者、Majoranaにちなんで名付けられた財団が運営する会議場があり、これまでに128のスクールと、140名のノーベル賞受賞者による講演が行われてきたという。このような歴史ある場所で本会議は開催され、71件の口頭発表と22件のポスター発表による活発な研究交流が行われた。

プログラム初日、オープニングでは、今年の3月に84歳でお亡くなりになったRobert Troc先生を偲ぶセッションが設けられた。Troc先生はアクチノイド分野において50年以上にわたり数多くの新物質を発見し磁性等の物性を報告してきており、ポーランドの実験物理学者のパイオニアの一人として知られる。筆者個人は直接ご本人にお目にかかったことはなかったが、ウラン化合物の基礎物性の文献の著者としてよく名前を目に



会議会場の入り口（上）と会場内部の様子（下）。

していた。JdAからはJdA life-time awardが2017年に贈られている。

このように少ししんみりとした中で会議がスタートしたが、研究発表のセッションになると一変、会場の雰囲気は非常に熱気に溢れたものになった。セッションは物理分野と化学分野、燃料関係の応用分野に大きく分かれており、それぞれの分野の特色をよく感じることができた。物理分野では主に金属間化合物がターゲットとなっており、新物質探索が精力的に行われている一方、 UGe_2 などの古株もじっくりと研究され続けているのが印象深かった。また、XAFSやXMCDな

ど放射光X線を用いた分光実験による研究報告が多いことが目にとまった。化学分野では錯体形成や応用上重要な化合物の合成方法などが主に論じられ、普段物理のコミュニティで過ごしてきた筆者にとっては新鮮な内容の発表が多く、知見を広げるという意味でJdAは大変良い会議であると改めて実感した。筆者が把握していないだけかもしれないが、日本でもこのように特定の物質系について物理分野と化学分野が一緒に行う会議があるといいなと思った。また今回のJdAでは、発表している研究者に若い人が多く、欧州でのアクチノイド分野のコミュニティの活発さが見て取れた。



コーヒーブレイクの様子。写真右手のガラス戸を開けるとテラスに出ることができる。

今回の日本からの参加者は筆者と、北大の網塚教授と網塚研M1の今さんの計3名だけであり、会場および会場周辺のいたる所で日本の知り合いと出くわすSCESなどの会議とは異なり、中々のアウェイ感を味わうことができ新鮮であった。(が、それはそれで少し寂しい気もした。)ほとんどが欧州の参加者であったが、中国と韓国からの参加者も何名かいた。



テラスからの眺め。

今回の会議プログラムは、時間帯の組み方が非常に特徴的であった。朝9時開始なのはまあ普通、昼食が12時45分からというのは日本人からしたら多少遅いかもかもしれないが、イタリアだと考えればこれも通常の範囲内である。面白いのは夕方以降で、セッションは18時20分に終わるのだが、その後夕食、と思いきや謎のフリータイムが20時まで設けられており、その後ようやく夕食である。イタリアでは夕食を遅い時間にとるらしいので、この点に関しては、そういう文化を反映しているのだろう。しかし驚いたのが、夕食後の21



会議初日のWelcome Partyの様子。古い石造りの建物の一室でこぢんまりと行われた。



エクスカージョンでの見学先のひとつ、ギリシャ神殿。

時30分からポスターセッションが行われるという点である。なぜ、夕方の1時間40分間のフリータイムにポスターセッションを入れないのか?と純粋に疑問であったが、「これがイタリアなのか」と無理やり納得して、23時までのポスターセッションを時差ボケによる眠気と闘いながらのりきった。夕食で皆ワインなど飲んできているのか、非常にリラックスした雰囲気の中、研究の議論自体はとても充実したものを行うことができたと思う(しかし眠かった)。

会議2日目の午後はエクスカージョンがあり、エリチェからバスで1時間弱ほど島の内陸に向かって走った所にある、古代ギリシャ時代の遺跡を見学した。神殿と競技場を見学したのだが、この2つが少し距離的に離れており、急な坂道を15分程歩いて移動する必要があった。美味しいイタリアンを食べ過ぎている我々にとってはいい運動になったが、翌日脚が筋肉痛になり、日頃の運動不足を痛感した次第である。また、会議3日目にはバンケットが街なかの小さなカフェレストランで催され、地元の美味しい料理とともに国際交流を楽しんだ。

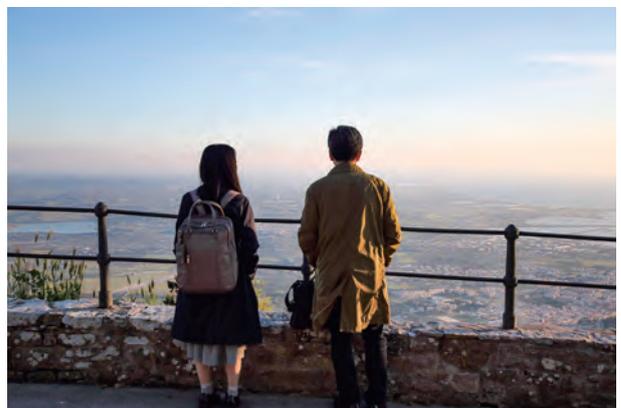


ポスターセッションの様子。



バンケットの様子。

最後に、今回の会議における滞在のハイライトとして、エリチェの街の美しさを挙げておく。街自体は非常に小さく、徒歩で容易に一周できるほどである。この小さな街は中世の面影をそのまま残しており、石畳の道を歩くと中世ヨーロッパにタイムスリップした気分を味わうことができた。町全体が位置する標高751 mの山の上からの眺望は特筆すべきものであり、雲が晴れて地中海まで一挙に見渡すことができたときは息をのむほどであった。特に会議場テラスからの眺めと、会議場そばの公園からの眺めは素晴らしく、他の会議参加者も挙って写真を撮影していた。



素晴らしい景色を堪能する今さんと網塚先生。

以上のように、会議それ自体は勿論のこと、美しい街と美味しい料理も堪能することができ、非常に充実したエリチェ滞在であった。海外旅行が初めてだという今さんも最後まで楽しく過ごせていたようである。来年はフランスのRennesから北西に100 kmほど離れたErquy(風光明媚な港町で、牡蠣が名産らしい)で開催されるとのことで、チャンスがあれば是非参加したいと思う。そこで良い研究成果が発表できるように、日々努めていきたい。



J-Physics地域研究会－北九州 研究会参加報告

本山 岳

島根大学大学院自然科学研究科 准教授

はじめに

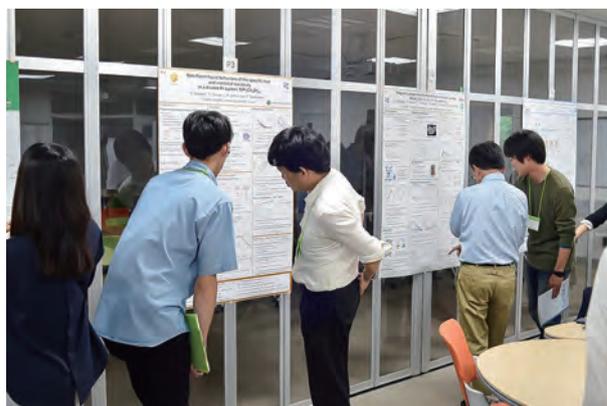
2019年6月7日から8日の2日間にわたり九州工業大学戸畑キャンパスのMILAiSにおいて、地域研究会の初回として先陣を切ってJ-Physics地域研究会－北九州が開催されました。教室には、発表スライドが多面に映し出されるスクリーンや機能的なテーブルなどが準備されており、懇親会の催されたレトロな雰囲気の残る門司港とは対照的なモダンで未来型な教室で和やかに研究会が行われました。円形に配置されたテーブルは活発なディスカッションを促進していたのではないかと思います。特別セッションは「5d 電子系における新物質と物性開拓」で、そのセッションはⅠ～Ⅲと充実しており集中的に議論されていました。



初日

初日に講演された5件の口頭発表と5件のポスター発表の、かつ、J-Physics地域研究会のハナとしての記念すべき最初の講演者は、本研究会のホストとして奔走されていた松平氏で、「5d 電子系における新物質と物性開拓」－Ⅰセッションの1番手として

講演をされました。ポスター発表では、播磨領域代表をはじめとした30名程の参加者の中で注目とプレッシャーを浴びながら、5名の期待の若手が講演を行いました。印象に残ったのは、それらの発表の結論や面白さの背景に、発表の表に出てこないデータが見え隠れし、その量の多さがヒシヒシと伝わってきたことです。



懇親会

懇親会は門司港にある地ビール工房で行われました。味わいの異なる3種の地ビールが絶え間なく供給され、それぞれの違いを繰り返し楽しみました。食事はジギスカン鍋だったのですが、北大の方、北大にゆかりのある方が納得する質の高いもので、日





の暮れ行く関門海峡で満たされた時間を過ごすことが出来ました。

2日目

2日目は11件の口頭発表が行われました。J-Physics地域研究会が催されることになり、試料育成を主戦場とする私にとって、「5d電子系における新物質と物性開拓」が特別セッションとなっている本研究会は最も魅力のあるものの1つでした。既知の興味深い構造からアレンジし新しいものを生み出し、これまであまり興味を抱かれなかった構造に新しい関係性を見つけ光を当てる講演者の姿勢に共感し、物質開発の新たな広がりや今後の新物質発見への期待を持つことが出来ました。



発表のあった5d電子系における物質探索では、バンド計算に基づきバンドの形状をこのようにしたい!このバンドをもう少しフェルミ面に近づけたい!と、試料屋と計算屋が手を取り合っており、まさに物質設計と呼ぶにふさわしく魅力的に感じました。

まとめ

今回、地域研究会—北九州ということで参加者には特別セッションのテーマの方の他には、九工大、広島大、岡山大と西日本の方が多く、その中に私(島根大)も仲間に入れてもらいました。J-Physicsといった一つのまとまった領域研究の中にも幅の広い研究があり、30名程度という人数の中で様々な議論に参加し有意義な時間を過ごすことが出来ました。

最後に、今回の研究会の準備に奔走された九工大の皆様と、News Letterの原稿を書くことを引き受けておきながらカメラを忘れたガラケー持ちの私に写真を提供して下さい下さった方々に紙面を借りて厚くお礼申し上げます。



J-Physics地域研究会—仙台 研究会報告

鈴木 通人

東北大学金属材料研究所 准教授

本研究会は2019年6月12日、13日の2日間に渡って、J-Physics地域研究会の一環として東北大学の片平キャンパスにて開催されました。私は6月28日、29日に本郷で開催されたJ-Physics地域研究会にも参加させて頂き、本稿は本郷の研究会の参加直後に執筆しています。本郷の研究会は30弱の講演が生まれ少しタイトなスケジュールでしたが、仙台の研究会は講演数が18と比較的小規模で、講演も議論を交えてのゆったりとしたもので、異なった雰囲気の研究會となっていたように思います。J-Physics地域研究会では開催場所ごとに特別セッションが組まれていますが、仙台の研究会では、昨年末に強磁性揺らぎとの密接な関係が認められる超伝導の実験報告があつてから非常に精力的に研究が進められている、ウラン化合物 UTe_2 の特別セッションが組まれました。

初日の午前から午後前半のセッションにかけてが UTe_2 の特別セッションとなり、東北大の青木大氏より、昨年末に超伝導の実験報告があつてから現在までの急速な進展が最新の実験成果とともに紹介され、その後、パルス強磁場による磁化測定からメタ磁性と超伝導の関係(東大物性研 三宅厚)、NMRによる強磁性揺らぎの異方性(京大 石田憲二)、熱伝導率測定によるSCギャップ構造とノンユニタリ状態の検証(阪大 細井優)、

LDA+ U 法による UTe_2 のフェルミ面の変化とトポロジカル超伝導の可能性(京大 石塚淳)、 UTe_2 の組成評価と角度分解光電子分光による電子構造(原研 藤森伸一)について最新の研究成果が報告されました。磁性やキャリア数、フェルミ面など、研究会開催時点でまだまだ不明瞭な点が多いですが、非常に早い研究展開のもと、大きな研究テーマへと発展していくことが期待されます。個人的に印象的だったのは、いくつかの講演で UTe_2 のバンド構造が示されましたが、第一原理計算の中で適用された近似の違いによってフェルミ準位近傍のバンドに違いがあり、実験家からいづれを参照すべきかわからないという意見(クレーム?)が出ていた点です。私自身もバンド計算を専門としていますが、よく知られているように現状のバンド計算手法の多くは化合物中の f 状態の予測が困難であり、伝導状態に f 軌道が絡んでいる場合、現状では、実験結果との整合性を多角的に検証していく中でもっともらしいフェルミ面を相補的に明らかにしていく必要があると考えています(もちろん、「第一原理的」な予測手法の研究も進展していますが)。また、講演や議論の中で、超伝導研究における生命線とも言える液体ヘリウム不足問題について言及があり、実験家の方々がこの難局を乗り切るために苦心されていたのが印





象に残りました。理論を生業としている私自身は直接的に影響を受けていませんが、このような状況が一刻も早く解消されることを願うばかりです。この他にも、午後前半のセッションではパルス中性子とパルス強磁場による URu_2Si_2 の磁場誘起SDW相の実験結果が報告され(東北大金研 木原工)、強磁性超伝導体 UCoGe のトポロジカル超伝導の理論(京大 大同暁人)についても発表がありました。

午後後半のセッションは拡張多極子に関連した発表がまとまったセッションとなり、東北大の大串研也氏から BaMn_2As_2 の磁気四極子秩序下における反強磁性ドメインの制御や異方的磁気抵抗効果に関する発表があった他、私からクラスター多極子の一般論と最近の応用研究に関する発表を行い、その後、昨年12月より私の研究グループと一緒に研究している柳有起氏から、クラスター多極子の理論を空間変調のある磁気構造に拡張する試みについて、発表がありました。

2日目は午前中だけのスケジュールでしたが、初日に比べてバラエティに富んだ内容の発表が生まれ、東北大金研の佐藤芳樹氏から新物質 UPt_5 の基礎物性と $d\text{HvA}$ 効果の測定、およびそのバンド計算との比較などの発表があった後、播磨尚朝代表から様々な希土類化合物・アクチナイドのバンド計算の結果を引き合いに、 f 電子系の電子構造とフェルミ面、スピン・軌道相互作用の大きさなどについて議論があり、 UPt_5 と1日目の特別セッションのテーマであった UTe_2 の電子構造についての発表がありました。琉球大の大貫惇睦先生

からは、近年新しいスカーミオン相の存在が注目を集めている EuPtSi について、磁場によって誘起される新しい相とそれらの性質についての発表がありました。

午前後半のセッションでは立命館大の池田浩章氏から f 電子系化合物の電子構造を第一原理的に決定する試みとして、 LDA+DMFT 法や QSGW 法といった最先端の第一原理計算手法による研究について、大阪大学の宮坂茂樹氏からは PdSe_2 の圧力下超伝導に関して、 Rh ドーピングや Te 置換の効果に関する実験について、弘前大の植木輝氏から SrPtAs の超伝導ペアリング対称性の理論解析について発表があり、研究会が終了しました。

初日の研究会終了後には物性の研究会としては少し珍しい、お洒落なイタリアンのお店で懇親会を開催しました。研究に関わること、関わらないこと問わず活発な意見交換が繰り広げられていたように思います。この記事に掲載しようと思っていた懇親会の写真を撮り忘れたのは、私の痛恨のミスです。最後に、本研究会の世話人は青木氏と私となっていました。私が行ったのはこの懇親会会場の予約と研究会の写真撮影くらいであり、研究会開催に向けた諸準備は青木氏を中心に、青木研の本多氏やマップさん、奥野さんらのご協力のもと行われました。ここに厚くお礼申し上げます。



研究会報告

J-Physics地域研究会一本郷

大槻 匠
 東京大学物性研究所 特任研究員

酒井 明人
 東京大学物性研究所
 助教

中辻 知
 東京大学物性研究所
 教授

6月としては珍しい台風3号が関東地方を去った2019年6月28日(金)、29日(土)の2日間に渡り、J-Physics地域研究会 - 本郷が東京大学本郷キャンパス理学部1号館206号館において開催されました。本会は、同年6月から7月にかけて各地で全5回開催された地域研究会シリーズの第3弾です。この地域研究会シリーズでは一部特別セッションを組んで集中的な議論が行われており、本会では「クラスター多極子物性」および「1-2-20系」と題した2つの特別セッションが設けられました。当日はこれらの話題を中心に、招待講演4件を含む28件の講演が行われ、参加者はのべ101名(28日46名、29日55名)でした。講演では後掲のとおり、物質開発・交差相関・量子現象・ダイナミクスなどについて、多極子の観点から多岐にわたる研究成果が発表され、J-Physicsが対象とするほぼ全てのトピックスが網羅されていました。またJ-Physics最終年度ということで、これまでの成果から最近の進捗状況まで包括的な報告がなされ、加えて今後解決すべき課題や目標についても建設的な議論がなされていました。

28名という多くの先生方にご講演いただくために非常にタイトなプログラムとなり、まだまだ話し足りない・議論し足りない方もいらっしゃると思いますが、休憩時間や懇親会も活用して濃密な時間となったのではないかと思います。講演者(敬称略)と講演題目は以下のとおりです。

6月28日(金)

セッション1 「1-2-20系」I

PrT₂Al₂₀ (T = Ti, V)における

圧力誘起重い電子超伝導と非フェルミ液体的挙動

松林 和幸 (電気通信大学)

四極子近藤格子系PrTr₂Al₂₀ (Tr = Ti, V)における

多極子秩序、非フェルミ液体、超伝導

酒井 明人 (東京大学物性研究所)

四極子近藤格子系PrTr₂Al₂₀(Tr = Nb, Ta, Mo, W)

における電気輸送特性

東中 隆二 (首都大学東京)

PrTi₂Al₂₀ の強四極子相における磁場誘起相転移

瀧川 仁 (東京大学物性研究所)

磁場角度の効果から探る

PrTi₂Al₂₀とPrIr₂Zn₂₀の多極子秩序相

橘高 俊一郎 (東京大学物性研究所)

セッション2 「1-2-20系」II

1-2-20系の超音波計測と最近の進展

中西 良樹 (岩手大学)





Fragile Super-Heavy Fermi Liquid in $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$

志村 恭通 (広島大学)

$(\text{Y,Pr})\text{Ir}_2\text{Zn}_{20}$ の弾性応答に観る対数的温度変化と

四極子近藤効果の連関 [招待講演]

柳澤 達也 (北海道大学)

セッション3

低温・高圧力下での ^{174}Yb 放射光メスバウアー分光法による $\beta\text{-YbAlB}_4$ の研究

小林 寿夫 (兵庫県立大学)

$\beta\text{-YbAlB}_4$ における磁気トロイダル双極子ゆらぎ

渡辺 真仁 (九州工業大学)

Eu系における価数ゆらぎと磁性について

椎名 亮輔 (琉球大学)

セッション4

有限濃度不純物2チャンネルアンダーソン模型における非フェルミ液体

鶴田 篤史 (大阪大学)

半金属伝導バンドを持つ近藤格子の非従来型超伝導

星野 晋太郎 (埼玉大学)

6月29日(土)

セッション5 「クラスター多極子物性」I

金属反強磁性体における電流誘起磁化測定の現状

網塚 浩 (北海道大学)

反強磁性金属 EuMnBi_2 における

Magneto-piezoelectric効果 [招待講演]

塩見 雄毅 (東京大学)

拡張多極子による秩序の解析と物性予測

楠瀬 博明 (明治大学)

$\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ における電気トロイダル四極子秩序

平井 大悟郎 (東京大学物性研究所)

セッション6

局在多極子系の第一原理計算による研究

鈴木 通人 (東北大学金属材料研究所)

新規立方晶Pr化合物 $\text{PrRu}_2\text{Sn}_2\text{Zn}_{18}$ の多極子秩序

脇舎 和平 (横浜国立大学)

低次元磁性体のスピンネマティック相

坂井 徹 (兵庫県立大学)

強相関ディラック系における磁場誘起量子臨界現象

多田 靖啓 (東京大学物性研究所)

セッション7 「クラスター多極子物性」II

Topological Phenomena in Magnetic Weyl Metals

富田 崇弘 (東京大学物性研究所)

カイラル反強磁性体中の八極子磁壁ダイナミクス

[招待講演]

大谷 義近 (東京大学物性研究所)

ノンコリニア反強磁性体における多極子のダイナミクス

[招待講演]

野本 拓也 (東京大学)

カイラル反強磁性体 Mn_3Sn の

超高速スピンドイナミクス

三輪 真嗣 (東京大学物性研究所)

X線磁気円二色性による Mn_3Sn の

拡張磁気八極子の観測の試み

中尾 裕則 (KEK物質構造科学研究所)

セッション8

Magneto-electric Effect Induced by

Magnetic Skyrmions

有馬 孝尚 (東京大学)

EuPtSi における1次転移とスカーミオン相

榊原 俊郎 (東京大学物性研究所)



J-Physics地域研究会－大阪 研究会報告

植木 輝

弘前大学大学院 理工学研究科 研究機関研究員

2019年7月16日－17日の二日間、大阪大学豊中キャンパス基礎工学国際棟シグマホールにて、「J-Physics地域研究会－大阪」が行われました。J-Physics地域研究会は、開催地近くの研究者が研究項目を超えて集まることを目的とした、横断的な研究会です。先月6月には北九州（2019年6月7日－8日）、仙台（2019年6月12日－13日）、本郷（2019年6月28日－29日）で地域研究会が行われ、今月7月はこの大阪の研究会の後に、札幌（2019年7月22日－23日）で最後の地域研究会が開催されます。

一日目

初日は、まず井澤先生（大阪大学）のOpening Remarkから始まり、青木先生（東北大金研）による UTe_2 に関するレビュー的な講演と続きました。 UTe_2 は最近発見された強磁性超伝導体で、スピン三重項超伝導体の候補物質として注目を集めており、現在集中的な研究が行われています。仙台で開催された地域研究会でも、 UTe_2 に関する特別セッションが組まれ、活発な議論が行われていました。青木先生の講演後、徳永さん（原子力機構先端研）の講演「 ^{125}Te -NMRによる UTe_2 のスピンゆらぎの研究」が行われました。そして、15分の休憩を挟み、仲嶺さん（京都大学）により、 UTe_2 の核磁気緩和率を測定し、マルチギャップモデルによるフィッティングを行った結果について、講演が行われました。その後、石塚さん（京都大学）の講演「 UTe_2 の電子状態とギャップノード」と続きました。初日午前のセッションはすべて UTe_2 に関する講演であり、 UTe_2 に関する多くの研究成果について知ることができました。

初日午後の最初のセッションは、小手川先生（神戸大学）による講演「 UGe_2 の強磁性臨界点近傍のNMRによ

る研究」、真砂さん（神戸大学）による講演「超伝導UCoGeの圧力下NQR」、そして、藤先生（神戸大学）による講演「 UPt_3 の常伝導・超伝導状態のPt-NMR」が行われました。藤先生は UPt_3 のペアリング対称性に対して、スピン軌道相互作用が強い方の理論と弱い方の理論があることを説明し、NMRの立場としては弱いスピン軌道相互作用の理論を支持する結果が得られているというお話をされていました。

初日最後のセッションは、石田先生（京都大学）による講演「 Sr_2RuO_4 の超伝導状態のナイトシフト」から始まり、最近、 Sr_2RuO_4 のナイトシフトが超伝導状態で減少するという、先行研究とは異なる測定結果が得られたことについて、詳しい説明がなされました。次に、角田さん（京都大学）の講演「波数基底の多極子揺らぎが媒介する異方的超伝導」が行われました。その後、細井さん（大阪大学）による講演で、ネマティック超伝導候補物質である $Sr_xBi_2Se_3$ に対して、超伝導が誘起するネマティックゆらぎの存在を調べるために、弾性抵抗測定を行った結果について報告されていました。そして、一日目最後の講演は、藤本先生（大阪大学）によ



Opening Remark（井澤先生）



集合写真（シグマホール）



休憩時間の様子

る講演で、ワイル超伝導体における負の磁気抵抗効果や、ネマティック超伝導体における電磁応答の理論について、お話をしていました。

懇親会は初日の夜、石橋駅の近くの洋風ダイニングてつというイタリア料理のお店で行われました。チーズやお肉料理がとてもおいしかったです。また個人的には、くじ引きで座る席が決められたので、普段あまりお話しできていなかった方々ともお話しできたのがとてもよかったです。二次会も行われ、研究に関する熱い議論から札幌－釧路間における特急列車のグリーン席の話まで聞くことができ、二次会もとても盛り上がっていました。

二日目

二日目午前最初のセッションは鉄系超伝導体の話題で、棕田先生（大阪大学）による講演「鉄系超伝導のインシピエントバンド制御による磁気揺らぎと超伝導」と小内さん（大阪大学）による講演「過剰電子ドーピングされたFe系超伝導体 LaFe_2As_2 におけるNMR/NQR」から始まりました。15分の休憩の後、金杉さん（京都大学）による講演「 SrTiO_3 における多軌道効果と強誘電超伝導」が行われました。その後、 SrPtAs のペアリング対称性に関する講演を植木が行わせていただきました。そして、このセッション最後の講演は三宅先生（大阪大学）で、「スピン軌道相互作用と電子格子相互作用の協奏による新しいスピン三重項超伝導」というタイトルで講演されました。三宅先生は非ユニタリー状態でのスピン三重項超伝導体の自発磁場の大きさなどについても議論されていました。

二日目午後のセッションは、菅原先生（神戸大学）による講演「価数揺動超伝導体 CeIr_2 のdHvA効果」から始ま

りました。菅原先生は CeIr_2 の電気抵抗、比熱、磁化率やdHvA効果の測定結果を LaIr_2 の測定結果と比較しながら説明されていました。そして、與儀先生による講演「Eu化合物の高圧下における磁気秩序の抑制と重い電子状態の形成」、Prassides先生（大阪府立大学）による講演「Emergent electronic phenomena in intermediate valence rare-earth fullerides」が行われました。

最後のセッションは、角度分解光電子分光による研究の講演が行われました。まず、関山先生（大阪大学）による講演「角度分解内殻光電子線二色性の定式化といくつかの希土類化合物への応用」から始まり、濱本さん（大阪大学）による講演「立方晶Pr化合物の内殻光電子線二色性による4軌道対称性の決定」、そして、久我さん（豊田工業大学）による講演「内殻光電子スペクトル線二色性による YbAlB_4 の4軌道対称性決定と異方的混成効果」が行われました。そして、播磨代表によるClosing Remarkによって、この研究会は終了となりました。

まとめ

大阪の地域研究会では異方的超伝導の特別セッションが設けられ、全体的にも異方的超伝導に関する話題が多い研究会でした。1日目11件、2日目11件、全22件の口頭発表が行われました。講演時間は22分間、質疑の時間は8分間であり（青木先生による UTe_2 のレビューは講演30分、質疑10分）、どの講演も質疑において活発な議論が行われていました。休憩時間15分、昼食の時間は1時間15分と長めに設定されており、休憩時間にも多くの議論を行うことができました。

最後に、研究会をセッティングしていただいた世話人の先生方、秘書の皆様、大阪大学の学生の皆様に心から感謝を申し上げます。



速水 賢

北海道大学大学院理学研究院 助教

会議報告：J-Physics地域研究会 札幌

はじめに

2019年7月22日(月) - 23日(火)に北海道大学にて、「J-Physics 地域研究会 -札幌」が開催されました。31名が参加し、19件の口頭発表が行われました。

7月22日(月)

初日は、まず網塚先生(北海道大学)により研究会の趣旨説明がなされ、その後、本研究会のテーマである「金属磁性体における交差相関応答」に関するセッションが行われました。最初の網塚先生による講演では、電流誘起磁化現象が観測されたf電子系化合物UNi₄Bの反強磁性磁気構造に関する最新の実験結果が報告されました。その後、播磨領域代表(神戸大学)による講演および藤先生(神戸大学)による講演では、第一原理計算および¹¹B-NMRを用いた同物質の結晶構造および磁気構造に関する詳細な解析・実験結果が示されました。また中尾先生(KEK物構研)による講演では、X線磁気円二色性による磁気八極子の直接的な観測可能性が述べられ、Mn₃Snの実験結果が報告されました。

昼食休憩後、午後の最初のセッションでは、拡張多極子に関する理論研究の講演が行われました。まず筆者がマイクロな多極子を用いたスピン分裂バンド構造に関する講演を行いました。続いて、柳先生(東北大金研)による講演では、クラスター磁気構造に対する対称性適合基底の生成方法に関する講演が行われ、複雑な磁気構造に内在する高次磁気多極子の評価方法が示されました。その後、具体的な現実物質を念頭に置いた理論計算の結果が二名の学生により報告されました。まず八城氏(北海道大学)による講演では、CeCoSiの圧力下における圧力誘起相が、奇パリティ

イ多極子の一つである電気トロイダル四極子秩序に対応している可能性が報告されました。続く大岩氏(明治大学)による講演では、遷移金属ダイカルコゲナイドにホールドープを行うことにより、時間反転対称性の破れた超伝導が実現すると報告されました。

20分の休憩の後、若手研究者と学生による電流誘起磁化現象に関する最近の進展が報告されました。齋藤氏(KEK物構研)による講演では、非弾性中性子散乱による金属反強磁性体CeRh₂Si₂の磁気励起構造の実験結果が示され、電流誘起磁化現象を示す中間相の励起構造の特徴が述べられました。続いて、二名の学生、篠崎氏(島根大学)と高力氏(北海道大学)により、電流誘起磁化現象の測定結果および評価の際に注意すべき実験装置のセットアップについての報告が行われました。篠崎氏はCe₃TiBi₅、高力氏はCeRu₂Al₁₀における電流誘起磁化現象の結果を示し、そこから予想される奇パリティ多極子の候補を報告されました。次の下出氏(京都大学)による講演では、空間反転対称性の破れた磁性体のもとで現れる、温度勾配誘起磁化現象の理論的枠組みが示されました。とくに金属と絶縁体の両方に対する解析が示され、その定量的





な違いが報告されました。一日目最後の谷垣先生(東北大学)による講演では、 BaMn_2Pn_2 ($\text{Pn}=\text{As}, \text{Sb}, \text{Bi}$)の磁気伝導現象の報告がなされました。講演では、正と負の両方の磁気抵抗効果に関する詳細な議論がなされました。

7月23日(火)

会議二日目の午前前半は、 f 電子系化合物のセッションで、日高先生(北海道大学)の GdBe_3 におけるらせん磁性に関する講演からスタートしました。講演では、温度-磁場相図が示され、相互作用のフラストレーションに起因した複数のらせん磁気秩序相の発現が報告されました。水戸先生(兵庫県立大学)の反強四極子秩序相を示す CeB_6 のNMR測定に関する講演では、ゼロ磁場と磁場下では四極子モーメントの異なる振る舞いがみられるという結果が報告されました。大原先生(名古屋工業大学)の講演では、キラル化合物の磁性に関する報告が行われ、元素置換により、磁氣的相互作用が面直のイジング型から面内のXY型まで幅広く制御できることが報告されました。

午前後半の磁性体に関するセッションでは、井口先生(東北大学)から有機導体物質 α'' -(BEDT-TTF) $_2$ Rb $_{1.2}$ Co(SCN) $_4$ の電荷秩序と π - d 電子間の交換相互作用に由来した磁気誘電特性に関する報告がなされました。続いて、井原先生(北海道大学)の講演では、パルス強磁場中におけるNMR測定装置の開発及びその利点が報告されました。また、カゴメ反強磁性体 $\text{Li}_2\text{Cr}_3\text{SbO}_8$ に対する結果が報告されました。最後の柳澤先生の講演(北海道大学)では、 $\text{Y}_{1-x}\text{Pr}_x\text{Ir}_2\text{Zn}_{20}$ と UNi_4B に対する超音波測定の結果が報告されました。特に

$\text{Y}_{0.966}\text{Pr}_{0.034}\text{Ir}_2\text{Zn}_{20}$ では、非クラマース縮退系での四極子近藤効果に起因した弾性定数の温度依存性についての報告がありました。

最後に播磨領域代表によるClosing Remarksにより研究会の全プログラムが終了しました。今回の札幌での地域研究会は、北九州、仙台、本郷、大阪に次いで行われた最後の地域研究会であったため、全研究会を制覇した今氏(北海道大学)への表彰式が行われ、播磨領域代表から記念品が贈られました(注:播磨領域代表と網塚先生も全参加でした)。

おわりに

2日間の研究会を通じて、参加者の方々の電流誘起磁化現象をはじめとした多極子物性に関する学術的理解のみならず、懇談会や前夜祭を通じて、学生、若手研究者、先生方との親睦がより一層深まったように思います。それも、札幌ならではの爽やかな気候とおいしいジンギスカンや海鮮料理が一助になっているのももちろんのこと、はつらつとした学生らの姿勢や、なごやかな雰囲気を作ってくださった先生方の心遣い、さらには某I先生の昼食の豚丼がカラスにさらわれるハプニング、というような多様な要素の相関効果によるものなのだと実感しております。電流誘起磁化現象のさらなる理解においても多極子(電荷・スピン・軌道)自由度間の意外(予想外)な相関効果が重要なのではないかと考える今日この頃です。

最後になりましたが、今回の研究会を行うにあたりまして、北海道大学のJマテリアル研究室の皆様および八城氏には色々とお手伝いいただきました。紙面を借りて厚くお礼申し上げます。



The Kobe Experience

Khusboo Rana

PhD Student, Ames Laboratory & Iowa State University

Hideki Tou

Kobe University

Hisashi Kotegawa

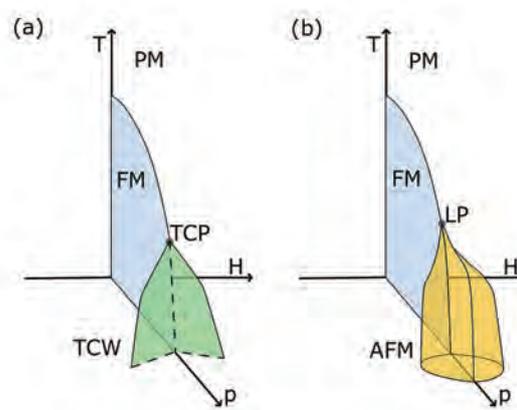
Kobe University

Yuji Furukawa

Ames Laboratory
& Iowa State University

Travelling to Tou-sensei's lab at Kobe University for nuclear magnetic resonance (NMR) experiments, for me meant, stepping outside the comfort zone of Furukawa-sensei's lab at Ames Laboratory. In particular, my J-Physics project was focused on doing NMR experiments under pressure with the guidance of Kotegawa-sensei. We experimented with the itinerant ferromagnetic (FM) crystals of LaCrGe_3 that were grown by Rahim from Professor Taufour's group at University of California, Davis.

Generally, in itinerant ferromagnets, the paramagnetic (PM)-FM Quantum Critical Point (QCP) is avoided through the emergence of either a tri-critical wing (TCW) structure or a modulated antiferromagnetic (AFM) phase. However, LaCrGe_3 was recently found to be rebellious since it exhibits both the TCW structure and AFM phase in its temperature-pressure-magnetic field (T-p-H) phase diagram. Through our NMR studies at ambient pressure, we categorized its magnetic fluctuations to be FM and 3-dimensional. In addition, we found a high degree of localization in the Cr 3d electrons and its spin fluctuations compared to other similar compounds. A paper with these novel findings has been published in *Physical Review B* [1].



Generic temperature-pressure-magnetic field (T-p-H) phase diagrams for clean itinerant ferromagnets. (a) Schematic T-p-H phase diagram with a tricritical wing (TCW) structure. The second order phase transition (solid line) becomes first order (dashed line) at a tricritical point (TCP). Under magnetic field, the TCW structure shown in green emerges from the TCP. (b) Schematic T-p-H phase diagram with an antiferromagnetic (AFM) phase in yellow. The AFM phase emerges from the Lifshitz point (LP) that is suppressed under H.

Furthermore, our study of this compound under pressure is also very interesting and currently in progress.

My stay at Kobe was blessed with friendship and wonderful experiences. One of my favorite experiences was climbing Mt. Maya; the dynamic view of Kobe in the back drop of Osaka bay was breath-taking. In addition, having several social gatherings such as yakiniku and nabe party with group members was good and helped me to assimilate into the unique Japanese lab-culture.

[1] K. Rana, H. Kotegawa, R. R. Ullah, J. S. Harvey, S. L. Bud'ko, P.C. Canfield, H. Tou, V. Taufour, Y. Furukawa, Magnetic fluctuations in the itinerant ferromagnet LaCrGe_3 studied by ^{139}La NMR, *Phys. Rev. B* **99**, 214417 (2019).



(From left) Tani-san, me, Kuwata-san, Takemu-san at the peak of Mt. Maya.



(From left) Aoyama-san, Kuwata-san, Ishizawa-san, Matsui-san at nabe party at lab.

Visiting University of the Ryukyus for the J-Physics Topical Tropical Workshop was also one of the highlights of my stay at Japan. Yogi-sensei and his students were kind enough to show us their NMR lab, specially the auto tuning system. It was also very interesting to attend several presentations at the workshop from numerous top physicists in the area of ferromagnetic quantum criticality. During the poster session, I was able to ignite some questions regarding our work on LaCrGe_3 at ambient pressure.

In hindsight, I had a character building experience in Japan. In the three months I made several friends,

which as Furukawa-sensei would say, is "an important aspect for a scientist". Furthermore, doing experiments under the guidance of Tou-sensei and Kotegawa-sensei, as well as watching group mates at Kobe University do their experiments has taught me that hard work, persistence, and team work are essential ingredients for shaping into a humble physicist. For this, I am utterly grateful towards the J-Physics program and feel lucky to be a small part of it.



(From right) Kotegawa-sensei, Higa-san, Tou-sensei, Harima-sensei, Furukawa-sensei, Ohta-sensei, Okubo-sensei, Inagaki-sensei, Iwanami-san and me at Shushinkan, Kobe.



日本物理学会学生優秀発表賞(領域8)を受賞して 「高対称線上における トポロジカル結晶超伝導ノードの分類」

角田 峻太郎

京都大学 大学院理学研究科 博士後期課程3年

今年3月、九州大学にて日本物理学会第74回年次大会が開催され、私は領域8のセッションで上記題目について口頭発表を行った。同領域では学生優秀発表賞が新設されたばかりであるが、今回、幸運にもその記念すべき(?)第1回の受賞者として選出して頂いた。本稿では受賞報告を兼ねて、発表の概要と今後の展望について述べる。

本研究は、大雑把に言えば「異方的超伝導に現れるノード構造をトポロジーによって特徴付けた」研究である。物質のトポロジカル相は近年急速に発展を遂げている研究テーマの1つである。トポロジカル数は絶縁体やフルギャップの超伝導体のようにギャップのあるハミルトニアンに対して定義されるものであるが、このトポロジカル数を対称性と次元によって分類する取り組みが精力的に行われてきた。まず、最も基本的なアプローチとして、オンサイトな対称性(時間反転対称性・粒子正孔対称性・カイラル対称性)に注目する方法が提案された。これらの対称性によって、あらゆる系はAltland-Zirnbauerクラス[1]と呼ばれる10個のクラスに分類され、次元を指定することでトポロジカル数の有無を判定することができる。これが有名な「トポロジカル周期表」である[2]。その後さらに、結晶対称性を考慮することで、周期表にはない新たなトポロジカル数が定義できる可能性が示唆された[3]。以降、結晶対称性がある場合のトポロジカル相の分類が様々な手法を用いて精力的に進められている[4]。

ここまで、ギャップのある系についての話をしてきたが、実はトポロジーはギャップレスなハミルトニアンについても有用なツールである。例えば、ブリルアンゾーン(BZ)内のある隣接する2つの領域でトポロジカル数に跳びが出たとすると、2つの境界にはそのトポロジカル数に保護されたギャップレス点(=ノード)が必ず存在する。このような例で有名なものはWeyl半金属であり、Weyl点というChern数に特徴付けられるギャップレス点(=ノード)が現れる。他にも、回転対称性をもつ

Dirac半金属では新しいトポロジカル数が定義され、(通常は不安定な) Dirac点が安定化するという例がある[5]。

では、超伝導の場合にはどうなるのかというのは自然な疑問であろう。実際、ギャップレス点(=ノード)をもつ異方的超伝導の例はいくつも知られている。この疑問への答えとして、これまで我々は、BZの鏡映(映進)面上に現れる線ノードとトポロジカル数の関係を明らかにしてきた[6]。一方、本研究では回転対称性に注目し、BZの回転軸上に現れるノード構造(図)をトポロジーの観点から完全に明らかにした[7]。その中でも特に面白い例は3回(6回)回転対称性をもつ軸上の分類である: そのような軸上では、バンドのもつ角運動量(j_z)の値に応じてノード構造やトポロジカル数が変化する。本発表や論文[7]では、SrPtAsやUPt₃といった超伝導体を例にその非自明な性質を示した。

一連の研究で超伝導ノード構造に関して一定の理解を得ることができたので、今後は少し切り口を変えた研究ができたらと考えている。(超伝導に限らず)様々な話を聞いて視野を広げたいので、本領域の方とは積極的に議論等させて頂ければ幸いである。

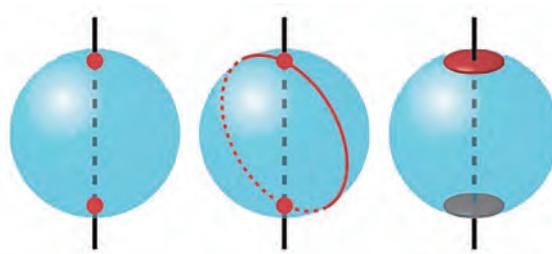


図: 回転軸上に現れる点ノード、線ノード、面ノード。

[1] A. Altland and M. R. Zirnbauer, Phys. Rev. B **55**, 1142 (1997).
[2] A. P. Schnyder *et al.*, Phys. Rev. B **78**, 195125 (2008); A. Kitaev, AIP Conf. Proc. **1134**, 22 (2009); S. Ryu *et al.*, New J. Phys. **12**, 065010 (2010).
[3] L. Fu, Phys. Rev. Lett. **106**, 106802 (2011).

[4] H. C. Po *et al.*, Nat. Commun. **8**, 50 (2017); B. Bradlyn *et al.*, Nature **547**, 298 (2017); K. Shiozaki *et al.*, arXiv:1802.06694. など.
[5] B.-J. Yang and N. Nagaosa, Nat. Commun. **5**, 4898 (2014).
[6] S. Kobayashi *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 180504(R) (2018).
[7] S. Sumita *et al.*, Phys. Rev. B **99**, 134513 (2019).



日本物理学会学生優秀発表賞を受賞して「Pr希薄系Y(Pr)Ir₂Zn₂₀の極低温磁化と非フェルミ液体的挙動」

山根 悠

広島大学 大学院先端物質科学研究科 博士課程後期3年

今年3月に開催された日本物理学会第74回年次大会(於九州大学伊都キャンパス)から、強相関電子系分野(領域8)において学生優秀発表賞が新設された。私は、15日の午後に上記題目で口頭発表し、幸運にも受賞者として選出していただいた。本稿では、その報告を兼ねて、発表の概要と今後の展望について述べる。

f^2 配位をとるPr³⁺やU⁴⁺を希薄に含む立方晶系では、伝導電子と電気四極子の混成による単サイトの四極子近藤効果の発現が期待される [1, 2]。本ニュースレター前号の研究成果の記事で紹介したように [3]、Pr希薄系Y_{1-x}Pr_xIr₂Zn₂₀ ($x < 0.05$)の磁気比熱を温度で割ったC_m/Tは0.08 < T < 1 Kで $-\ln T$ に従い、電気抵抗率ρは√T依存性を示す [4, 5]。また最近、柳澤らの超音波測定によって、 $x = 0.034$ の弾性定数(C₁₁ - C₁₂)/2が1 K以下で $\ln T$ に従ってソフト化することが明らかにされた [6]。これらの結果は、単サイトの四極子近藤効果の発現を支持する。

そこで我々は、このPr希薄系のNFL状態における磁化率χ_mに着目し、磁場中での温度依存性について調べた。Coxらは、四極子近藤モデルの非交差近似による計算から、χ_mの変化は微小であると予想した [2]。一方、楠瀬らは、磁性イオンのポテンシャルと伝導電子のオンサイトのクーロン斥力を考慮し、χ_mが顕著な温度変化を示すことを指摘した [7]。本研究では、自作のキャパシタンス磁力計を³He-⁴He希釈冷凍機に設置し、Prが希薄である $x = 0.028$ の単結晶の磁化をT ≥ 0.1 K, B ≤ 9 Tの範囲でファラデー法により測定した。

図に、Y_{1-x}Pr_xIr₂Zn₂₀ ($x = 0.028$)のB || [100]における、

磁化を磁場で割ったM/Bの温度変化を示す。もともと磁場の弱いB = 0.5 Tでは、M/B (= χ_m)はT < 1 Kでほぼ一定となる。単サイトの四極子近藤効果が発現しているとすれば、それによるχ_mの異常は小さいと考えられる [8]。一方、B = 1, 2 Tでは、M/BはT < 1 Kで $-\ln T$ 依存性を示し、弾性定数の $\ln T$ でのソフト化と温度範囲を含めて符合する [6]。内挿図に示すように、磁気双極子J_zと電気四極子O₂⁰の期待値は磁場により共に増大する。したがって、磁場中でM/Bが $-\ln T$ 依存性を示すことは、四極子ゆらぎの成分が磁場誘起の磁気双極子を通じて磁化に現れた結果であると考えられる [8]。

今後の展開としては、結晶場の励起準位までを考慮した四極子近藤効果によって、今回の実験結果を説明できるのかに興味もたれる。また、本研究によって、Pr単サイトのc-f混成に起因した四極子近藤効果が明らかとなれば、格子系PrT₂X₂₀ (T: 遷移金属, X: Zn, Al)において観測されたNFL状態に対する理解が深まり、四極子自由度による量子相転移に関する研究への展開も期待される。

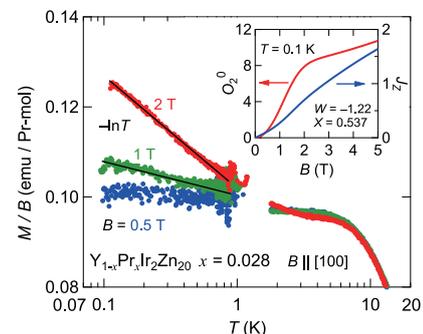


図. Pr希薄系Y_{1-x}Pr_xIr₂Zn₂₀ ($x = 0.028$)のB || [100]における磁化率M/B [8]。内挿図は、結晶場とゼーマン効果を考慮して計算したT = 0.1 Kでの磁気双極子J_z (青, 右軸)と電気四極子O₂⁰ (赤, 左軸)の磁場変化。

[1] D. L. Cox, Phys. Rev. Lett. **59**, 1240 (1987).

[2] D. L. Cox and A. Zawadowski, Adv. Phys. **47**, 599 (1998).

[3] 山根 悠, J-Physicsニュースレター No. **7**, 62 (2019).

[4] Y. Yamane et al., Physica B **536**, 40 (2018).

[5] Y. Yamane et al., Phys. Rev. Lett. **121**, 077206 (2018).

[6] T. Yanagisawa et al., Phys. Rev. Lett. **123**, 067201/1-5 (2019).

[7] H. Kusunose et al., Phys. Rev. Lett. **76**, 271 (1996).

[8] Y. Yamane et al., in preparation.



平成の30年間を振り返って

小堀 洋

千葉大学 名誉教授

今年大学を退職した人として、新学術領域 J-Physics Newsletter への寄稿を依頼されて、何を書こうか迷っているうちに原稿提出の締め切りが近づいてきました。

振り返るに、30年前の大阪大学基礎工学部の助手時代は研究面では忙しかったですが、今よりもゆったりとした時間が流れていた記憶があります。指導していただいた朝山先生もせかせかせした生活では無くて、結構長い時間を物理の議論に付き合ってくださいました。また、当時物性物理学科の中で研究室対抗のソフトボールの試合があり、隣の研究室の天谷先生や鈴木直先生あたりが真剣に‘対抗試合’にとり組んでおられました。

その後、放射光施設 (Spring-8) 絡みで兵庫県に設立された姫路工業大学・理学部 (現在: 兵庫県立大学・理学部) に助教授として異動しました。何も無かった山の中に、新しい街や沢山の研究施設、大学を作るのは大変なことです。バブルの時代だから出来たのかもしれませんが、これに参加出来たのは貴重な経験です。山の中の寂しい環境では在ったのですが、兵庫県の支援もあって研究環境として大変恵まれていました。ここで、色々なアクチナイド化合物の核磁気共鳴をもちいた研究に取り組むことができました。

その後、2002年に千葉大学理学部 (大学院理学研究科) に教授として異動しました。しばらく経つと国立大学では、国の財政難の影響を受けた国立大学の法人化がおこなわれ、法人化に伴い国からの運営費交付金が毎年1%削減にされ初めました。これは大変な事態であり、今までずっと苦しめられています。あまり教員数が多くない千葉大学理学部で一番困ったのは、運営費の削減に伴う教員数の減少です。

昔から大学教員には、いわゆる「雑務をしない教員」が存在したみたいですが、教員数に余裕があるときは大した問題にはなりません。むしろ「特色ある教員」として評価されていたかもしれません。しかし、このご時世、大学・学内・学部の運営は、ぎりぎりの人数の‘常識ある’教員の奮闘でこなされているのが現状です。何処の大学でも同じかもしれませんが、とにかくマンパワーが不足しています。「雑務をする教員」をこき使うのも限界です。

大学内には期限付きポストの教員・研究者がいます。しかし、五年程度の期限付きポストのポスドクの方々には、大学運営面の仕事は頼めません。以下は私の私見ですが、現在のポスドク制度は本人のキャリアパスに悪影響を与えている場合が多い。また優秀な修士課程の院生が、苦勞するポスドクを見て博士課程進学をやめる場合すらあるとっております。日本を良くしようとして始めた「ポスドク一万人計画」は完全な失敗作です!初めからポスドクを人として扱っていない日本の悪しき官僚主導の計画。ポスドク数を増やすくらいなら、期限なしの助教の数を増やして、かつ大学間の教員の流動性を高めたほうがずっと良い。現在の国立大学の状況では、流動性が高まるのではなく、逆に運営費交付金の減少で (内部昇格人事が増加して) 教員の流動性が減少しています。大学間の教員流動性の減少は深刻な問題です。大学間の過度の競争を煽るくらいなら、もっと流動性の確保に予算を使ってほしい。

読売新聞の教育ネットワークに京都大学学長の山極寿一先生の国立大学法人化に関する面白い記事があります。

(以下、山極先生の文章)

「国立大学法人化は失敗だった。文科省と国立大学が一体となって取り組んできた教育研究の質の向上を切り離し、単なる財政問題として処理した。国の財政が悪化している。その責任を法人化して各大学法人に押しつけたのだ。はっきり「失敗」だと認めてもらわないと、これからの大学改革はできない。(引用終わり)

<https://kyoiku.yomiuri.co.jp/torikumi/jitsuryoku/iken/contents/40-2.php>

ぜひ読んでください。早く政策の失敗を認めて軌道修正するほど損害は少ない。

新学術領域J-Physicsの科研費は、過度な「選択と集中」も無く、多極子・超伝導・磁性と幅広い分野で日本の大学院生、若手研究者のレベルアップに寄与したと思います。大きな予算は要らないが、継続した少額の研究運営資金が必要という、物性分野の一般的な要望に答えたバランスの良い新学術領域であったと思います。

以上、単なる現状のぼやきの文章になっていて恥ずかしいのですが、日本の長い歴史を考えたら、低迷する基礎研究力はたとえ時間が掛かってもいずれは復活すると思います。しかし、それは「選択と集中」ではなくて、むしろ「下手な鉄砲も数撃ちゃ当たる」方式で復活する。



寝ても覚めても

青木 大
東北大金研

そのニュースが入ってきたのは昨年11月24日の週末のことだった。石田憲二さん(京大)と中辻悟さん(東大)から同じ日にメールで連絡があった。アメリカで UTe_2 という重い電子系物質で超伝導が見つかり、上部臨界磁場は20Tを超えていて、おそらくスピン三重項超伝導だという。ショックだった。私は強磁性超伝導体を含むウラン化合物の物質探索を長年やっていて、新奇超伝導探索も重要な目標のひとつだからだ。それよりも何よりも、ほんの1、2ヶ月前まで同じウラン・テルル化合物である UTe_5 、 UTe_x などの単結晶育成を修士の学生さんとやっていたからだ。さらには、2006年ごろには、原子力機構のポスドク(当時)の池田修悟さんと東北大金研の大洗センターで UTe_2 の単結晶を作り、希釈冷凍機で極低温までの電気抵抗測定をやっていたからだ。目の前にお宝が転がっていたのに、みすみす逃してしまった。メールを受け取った時は、自宅で寝る直前のことだったと思うが、その日は胸がドキドキしてなかなか寝付けなかった。月曜日朝になって実験室のある管理区域で実験ができるようになると、すぐさま単結晶育成に取り掛かった。一つは化学気相成長法、もう一つはTeによる自己フラックス法である。化学気相成長法については、 UP_2 、 UAs_2 、 UO_2 、 U_3P_4 、 UTe_5 、 NpO_2 などですでに何度もやったことがあったので、手慣れたものである。原料とともにヨウ素を輸送材として細長い石英管に封入する。封入した石英管を横型の管状炉に入れて、爆発しないように徐々に温度を上げて予備反応した後、温度勾配をつける。1、2週間後には、高温側から低温側(場合によっては低温側から高温側)に原料が輸送されて、単結晶ができる。手製の横型管状炉は温度較正もふくめて準備はすでに整っていたので、すぐに単結晶育成に取りかかることができた。自己フラックス法でもやってみることにした。Teの融点、沸点がそれぞれ450度、990度なので爆発しないかが心配だった。原料が入ったアルミナルツボをTaチューブに封入して、さらに石英管封入することにした。自己フラックス法で育成した試料が、超伝導を示すことがわかったのが12月6日である。超伝導の一報が入って、約2週間後であった。気相成長法で育成した純良単結晶でバルクの超伝導を確認したのが、その5日後の12月11日であった。

すぐそこにお宝がありながら、他人にそれを取られてしまうのは本当に悔しいものである。私には過去にもそういう経験が何度かあって、たとえばURhGeのリエントラント超伝導のときもやはりそうだった。純良単結晶育成に取り組んでいたのだが、A. Huxleyたちの方が先に成功してリエントラント超伝導が見つかってしまった。UCoGeのときもそうだった。UCoGeはV. Sechovskyのレビューに常磁性であると書かれていて、油断していたらA. de Visserらが強磁性超伝導を見つけてしまった。

昨年末に UTe_2 の超伝導が見つかったから、私は寝ても覚めても UTe_2 のことで頭がいっぱいなのだが、その原動力の一つは、この悔しい気持ちにあるのかもしれない。もちろん、リエントラント超伝導でスピン三重項超伝導という物理自体が面白いことは間違いないのだが、私を掻き立てるものはその悔しさにあるような気がする。不純といえば不純ですね。でも、そういう情熱というか、いてもたってもいられない気持ちというのは、この仕事を続けていく上でわりと重要な気がするのですが、皆さんはどうでしょうか。歳をとって雑用に追われ小さな

心配事が多くなると、わくわくするような感覚が少しずつ薄れていくような気がする。UTe₂の件は、物理を始めた頃の純粋な気持ちを取り戻してくれることになった。そういう意味で言うと、私にとってときどきグルノーブルに行くことはとても重要である。Jacquesをはじめ、Georg, Jean-Pascal, Alex, Danielやその他大勢の仲間と自由な気持ちで話しができ、初心に帰った気持ちになる。UTe₂の一報が昨年末に入って、すぐに考えたことは日仏共同でこのプロジェクトを強力に進めようということだった。昨年12月中旬にグルノーブル行き、さっそく小さなミーティングを開いた。狭い部屋に10人以上の人が集まり、UTe₂の現状や今後について話し合った。写真はその時の様子である。熱気に溢れていて興奮に包まれたミーティングになった。UTe₂の興奮は、目に見える形でも現れていて、日仏およびアメリカからすでに20本以上が論文として投稿されている。フィーバーはまだ続く。

UTe₂の超伝導の発見でつくづく思うのは、物質探索の大切さである。とくにアクチノイド化合物の物性は多彩で、予想もしないお宝が転がっていることが多い。第一著者のSheng Ranによると、彼らはU₇Te₁₂の単結晶育成に取り組んでいて、偶然UTe₂の超伝導を発見したとのことである。物質探索は苦労が多くて報われないことも多いが、予想外のことが起きるからやっぱり面白いと思う。日本でも試料育成、物質探索に挑む若者が増えてくれるとうれしい。



2019年9月からの領域関連行事

第13回 物性科学領域横断研究会 (領域合同研究会)

日 時：2019年11月27日(水)～28日(木)

場 所：東京大学小柴ホール(東京都文京区)

J-Physics領域全体会議 (まとめの会議)

J-Physics共催

日 時：2020年1月6日(月)～8日(水)

場 所：神戸大学百年記念館六甲ホール(神戸市)

トピカルミーティング (強磁性超伝導) (計画中)

日 時：2020年3月第2週

場 所：CEA-Grenoble

日本物理学会 (第75回年次大会)

日 時/場 所：2020年3月16日(火)～19日(金) / 名古屋大学東山キャンパス(名古屋市)



謝辞記載のお願い

本領域の支援を受けて進められた研究の成果発表に際しては、以下の要領で謝辞 (Acknowledgement) の記載をお願いいたします。

記載例は次のとおりです：

【英文】：This work was supported by JSPS KAKENHI Grant Number JP15H05882 (J-Physics).

【和文】：本研究はJSPS科研費JP15H05882(J-Physics)の助成を受けたものです。

計画研究の課題番号と課題名の対応は以下の通りです：

- 15H05882 J-Physics:多極子伝導系の物理の研究総括
- 15H05883 局在多極子と伝導電子の相関効果
- 15H05884 遍歴多極子による新奇量子伝導相
- 15H05885 拡張多極子による動的応答
- 15H05886 強相関多極子物質の開発
- 15K21732 J-Physics:多極子伝導系の物理の国際展開

活動成果報告のお願い

以下の情報を随時メールで事務局までお知らせください。

論文 (著者名、タイトル、雑誌名、巻号、ページ、発行年、査読の有無)

著書 (著者名、タイトル、出版社、発行年)

国内・国際学会等発表 (発表者、タイトル、発表学会等名、場所、発表年月日、招待の有無)

アウトリーチ活動 (実施者、活動内容、場所、実施年月日)

NEWS LETTERへのご寄稿のお願い

J-Physics NEWS LETTERに記事の掲載を希望される方は各研究項目の編集委員までお知らせください。自信作の論文、参加された会議の報告、アウトリーチ活動など、まずは概要を所定のフォームに記載してお送り下さい。特集記事の企画も歓迎いたします。

連絡先 J-Physics事務局：steering@jphysics.jp

NEWS LETTER

J-Physics #08

Physics of Conductive Multipole Systems

September

編集後記

本号を無事出版できますことを心から嬉しく思います。質の高い記事を寄稿していただいた執筆者の方々、ご尽力いただいた編集委員の皆様、膨大な編集作業を担当していただいた渡辺さん、そのほか本号にご協力いただいた皆様に厚くお礼を申し上げます。

9月は物理学会、国際会議J-Physics2019、SCESと研究イベントが続き、多くの方が忙しく過ごされたのではないかと思います。個人的なことですが、私は10月も4つの研究会に参加しました。そういった事情も反映して本号は通常より遅い出版を迎えました。出版を楽しみにお待ちいただいた方々にお詫び申し上げます。本号も力のこもった解説記事や特集記事、熱気が伝わる研究会報告や若手の受賞報告など盛りだくさんです。どうぞお楽しみいただければ幸いです。

J-Physics領域は最終年度を迎えており、次号のニュースレターが最終号になります。通常運転のニュースレターは本号が最後です。この4年半の間に、本領域から面白い発見がたくさんでてきたと思います。その成果（にこれから半年間の成果を加えたもの）を持ってこのプロジェクトは評価されると思いますが、科学における意義はもっと長期的に現れるのではないのでしょうか。例えば、10年後20年後に花開いている研究の原点がこの領域にあったとか、この領域をきっかけに成長した方が大活躍をしている、などのようになっていけば素晴らしいのではないかと思います。決して簡単なことではありませんが、そのときを楽しみにして、私自身も頑張ろうと思います。

(Y.Y.)



J-Physics

多極子伝導系の物理
Physics of Conductive Multipole Systems

J-Physics : 多極子伝導系の物理

文部科学省科学研究費補助金「新学術領域研究」(平成27~31年度) 領域番号: 2704

新学術領域研究

「J-Physics : 多極子伝導系の物理」ニュースレター 第8号

2019年9月 発行

編集人 石田 憲二

発行人 播磨 尚朝

発行所 神戸大学大学院理学研究科 物理学専攻
TEL : 078-803-5628 / FAX : 078-803-5628/5770

事務局 北海道大学大学院 理学研究院 物理学部門
網塚 浩
TEL/FAX : 011-706-3484

領域ホームページ

<http://www.jphysics.jp/>