

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05175

研究課題名(和文) 強相関電子系物質におけるパリティ混成と電気磁気効果

研究課題名(英文) Parity mixing and electromagnetic effects in strongly correlated electron systems

研究代表者

松村 武 (Matsumura, Takeshi)

広島大学・先端物質科学研究科・准教授

研究者番号：00312546

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：反転対称性が破れた結晶構造をもつ磁性体では、電場によって磁化が現れたり、磁場によって電気分極が現れたりといった、異なるパリティ軌道間の混成(d-pやd-f)やジャロシンスキー・守谷相互作用を起源とする電気・磁気の非対角応答が発生する。本研究では、磁場誘起型電荷秩序を示すSmRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>における電気磁気効果、CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub>系化合物におけるトロイダルモーメントの観測、キラル磁性体におけるらせん磁気構造とキラル磁気ソリトン格子の観測を通じて、対称性の破れた系における各種秩序現象について共鳴X線散乱を主軸とするミクロな観測手段で詳しく調べた。

研究成果の概要(英文)：In magnetic materials lacking an inversion symmetry, unusual properties of off-diagonal responses take place, such as electric field induced magnetization or electric polarization induced by magnetic fields, which are originating in d-p and d-f parity mixing and Dzyaloshinskii-Moriya antisymmetric interaction. In this research, we have investigated microscopic ordered structures of three main substances using resonant x-ray diffraction. First, the electro-magnetic effects in SmRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub> exhibiting magnetic-field-induced charge order. Second, ordering of toroidal moments in the cycloidal magnetic structure of GdRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub>. Third, the formation of chiral magnetic soliton lattice in Yb(Ni,Cu)<sub>3</sub>Al<sub>9</sub>.

研究分野：強相関電子系物質の磁性

キーワード：強相関電子系 パリティ混成 共鳴X線散乱 キラル磁性 キラルソリトン格子

## 1. 研究開始当初の背景

電子のもつスピンと軌道の自由度は、物質の磁性と伝導に強く影響を及ぼすことから、強相関電子系物質を理解するための重要なキーワードとなっている。特に、電子の軌道状態は、d 電子系、f 電子系いずれにおいても、物質の磁気的な振る舞いを強く支配する。しかし、軌道状態そのものを直接観測することが困難であるがゆえに、いわば隠れた秩序変数として、近年の主要な研究対象となってきた。ただし、これらの自由度を考えると空間反転対称性が前提とされていることは、実は明瞭には意識されてこなかった。反転対称性が破れている場合、電場によって磁化が現れたり、磁場によって電気分極が現れたりといった、電気・磁気の非対角応答が発生する。その起源は、空間反転対称性の破れによって生じる、異なるパリティ軌道間の混成(d-p や d-f)、およびジャロシンスキー・守谷相互作用にある。対称性の破れのために一見複雑に見える非対角応答であるが、このメカニズムを理解する上で重要な概念となるのが、軌道・スピン・格子を含めた電子状態を奇パリティ多極子(トロイダルモーメントや磁気四極子)の概念であり、これによって非対角応答現象の理解が定性的には容易になる。しかしながら、現状では、それを実体のある物理量として実験的に観測し、マクロな物性と結びつける形で系統的に整理された状況まで達していない。

## 2. 研究の目的

本研究では、研究対象として取り上げる典型物質を選び、それを集中的に観測することで、確固たるマイクロ描像を描くことを目標とする。反転対称性がある系での電気磁気効果としては、充填スクッテルダイト化合物 **SmRu4P12** をとりあげる。電気的な効果により伝導電子系に電荷密度波が生じ、f 電子系には交替型結晶場秩序が生じることがわかっているが、電子密度が高いサイトでどちらの結晶場基底状態が実現しているのかという、最も基本的な知見を欠いたままである。これは、通常的手法で回折実験を行ったのではわからない。電荷と磁気散乱の間の干渉効果を駆使してこれを明らかにする。

伝導性をもつ物質での反転対称性の破れと電気磁気効果の関係を調べる対象として、**RRu2Al10 (R=Rare Earth)** をとりあげる。R=Ce では、f 電子と伝導電子との異常な混成

効果に起因する近藤効果と、わずか  $0.3\mu\text{B}$  の磁気モーメントで  $T_N=27\text{K}$  という高い転移温度をもつ反強磁性秩序で注目を集めている。マクロからマイクロまで多くの実験手法で研究されているが、奇パリティ多極子まで含めた局所対称性の空間配列構造という、異常な混成効果の本質にまでせまった実験はない。

挑戦的課題として、キラル磁性体における磁気ソリトン格子の観測を挙げる。磁気モーメントのらせん秩序が磁場下で長周期構造を組みながら連続的にほどけていく過程を円偏光共鳴 X 線で観測することで、ミクロな視点での描像を描く。

## 3. 研究の方法

我々がこれまで Spring-8 の日本原子力研究開発機構ビームライン BL22 で発展させてきた共鳴 X 線回折の先端的手法(完全偏光解析、磁場と極低温環境、磁場反転法)は共鳴 X 線回折の可能性をフルに活かしたものであり、各方面で実績を出している。この手法を主軸として、新たに奇パリティ多極子の観測へと展開する。上記の主要 3 テーマを集中的に研究して成果を上げることで、電気磁気非対角応答と奇パリティ多極子の共鳴 X 線回折による観測方法の開発にも結びつける。

## 4. 研究成果

**SmRu4P12** では、磁場によって伝導電子系に電荷密度波が生じることを、磁場誘起原子変位と磁場誘起平行反強磁性の観測から確定させた。**SmRu4P12** は  $T_{MI}=16.5\text{K}$  の反強磁性体であるが、 $T^*\approx 14\text{K}$  に別の転移が存在し、この中間相が磁場の印加と共に増強されていくという奇妙な振る舞いを見せる。その機構が長年注目を集めてきたが、最近、p-f 混成を起源とする CDW 不安定性に基づいた解釈がなされ、磁場中での共鳴 X 線散乱の結果、CDW 形成に伴って磁場誘起型の原子変位と、磁場と平行な反強磁性成分をもった磁気秩序が誘起されることが見出された。我々は、この相についてさらに詳細な研究を進め、磁場中中間相での結晶構造を同定した(図 1)。

解析の結果、磁場誘起電荷秩序相での結晶構造は、ゼロ磁場での **PrRu4P12** と同様、単純立方の空間群  $Pm-3$  型であることがわかった(常磁性相では体心格子の  $Im-3$ )。Pm-3 では、Ru の原子位置は Sm-1a まわりで  $(1/4+d, 1/4+d, 1/4+d)$ 、Sm-2a まわりで  $(1/4-d, 1/4-d, 1/4-d)$ 、P の原子位置は Sm-1a まわりで  $(0, y+du, z+dv)$ 、Sm-2a まわりで

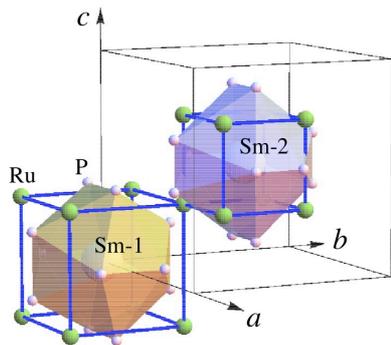


図 1 : SmRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub> 磁場中中間相での結晶構造

( $1/2, y-du, z-dv$ )と表され, Sm-1a まわりで膨張, Sm-1b まわりで収縮している.  $d, du, dv$  は磁場方向によって若干の変化はあるが, だいたい  $10^{-4}$  のオーダーで, PrRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub> と同程度である. さらに, 我々が BL22 で開発した超精密格子定数測定システムを使った測定により, 中間相での菱面体構造ドメインを詳しく調べた. その結果, 4 つある菱面体ドメインのうち中間相 (II 相) では 1 つしか見えないことがわかり, これは, 磁場と平行な反強磁性をもつドメインだけが選択されていることを示している.

GdRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> では, KEK-PF での共鳴 X 線回折により, 磁気モーメントが  $bc$  面内で回転しながら  $b$  軸方向に伝播するサイクロイド型磁気構造を形成することを見出した (図 2). しかも, この伝播ベクトルは秩序変数である磁気モーメントの成長に伴って温度変化することがわかった. 恐らく, 秩序形成によってギャップが伝導バンド上に生じることで, RKKY 型交換相互作用に変化が乗じたものと考えられる. Gd の磁気モーメントは  $S=7/2$  で表されるため, 異方性が弱いため, 本来の RKKY 相互作用の姿が現れたのではないかと考えている. また, 通常の E1-E1 共鳴では禁止されるはずの  $\sigma-\sigma'$  散乱が見出された. 我々はこれを, Gd サイトが反転中心にないことによって生じたトロイダルモーメントを, E1-E2 共鳴で観測したのと考えている.

挑戦的課題としてあげていた YbNi<sub>3</sub>Al<sub>9</sub> 系物質におけるキラルソリトン格子の観測ではめざましい成果が上がった (業績 1). 磁化

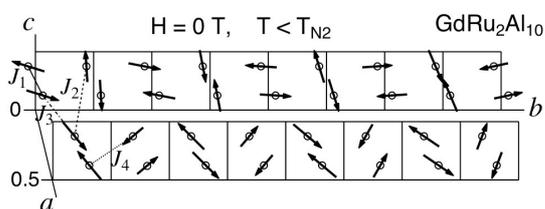


図 2 : GdRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> のサイクロイド型磁気構造

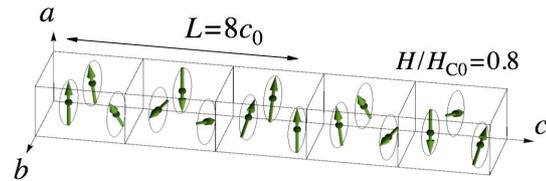


図 3 : Yb(Ni<sub>0.94</sub>Cu<sub>0.06</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>9</sub> で実現していることがわかったキラル磁気ソリトン格子

過程から存在が予想されていたキラル磁気ソリトン格子の観測に成功したのである. 右型・左型双方の結晶に対してらせん磁気構造を実際に観測し, その巻き方が逆になっていることを確認した. このことは, R32 という空間群をもつこの結晶において, 確かにジャロシンスキー・守谷型反対称相互作用が存在していることを示している. さらに, 磁場中に置いて, 高調波信号  $2q, 3q$  の観測にも成功し, これがキラル磁気ソリトン格子形成の直接の証拠となった. しかも, その磁場依存性が連続体モデルである sine-Gordon 近似とよく合うことがわかり, 短周期のらせんでどのようにしてキラルソリトン格子の形成が実現するのかという新たな問題を提起することになった.

以上より, 本研究で目標としていた対称性の破れた系における特異な秩序構造形成の観測について, 主要 3 課題の理解を大きく進展させることができたと考えている.

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者, 研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

1. "Chiral Soliton Lattice Formation in Monoaxial Helimagnet Yb(Ni<sub>1-x</sub>Cu<sub>x</sub>)<sub>3</sub>Al<sub>9</sub>", T. Matsumura, Y. Kita, K. Kubo, Y. Yoshikawa, S. Michimura, T. Inami, Y. Kousaka, K. Inoue, and S. Ohara, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 124702-1-12 (2017). 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.86.124702
2. "Temperature Dependent Cycloidal Magnetic Structure in GdRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> Studied by Resonant X-ray Diffraction", T. Matsumura, T. Yamamoto, H. Tanida, and M. Sera, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 094709-1-8 (2017). 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.86.094709
3. "Atomic displacements and lattice distortion in the magnetic field induced charge ordered state of SmRu<sub>4</sub>P<sub>12</sub>", T. Matsumura, S. Michimura,

- T. Inami, K. Fushiya, T. D. Matsuda, R. Higashinaka, Y. Aoki, and H. Sugawara, Phys. Rev. B **94**, 184425-1-10 (2016). 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.94.184425
4. "Kondo Effect in CeXc (Xc=S, Se, Te) Studied by Electrical Resistivity under High Pressure", Y. Hayashi, S. Takai, T. Matsumura, H. Tanida, M. Sera, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, and A. Ochiai, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 034704-1-7 (2016). 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.85.034704
  5. "Incommensurate-commensurate magnetic phase transition in SmRu2Al10", S. Takai, T. Matsumura, H. Tanida, and M. Sera, Phys. Rev. B **92**, 174427-1-10 (2015). 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.92.174427
  6. "Structural domain switching by magnetic fields in RA13C3 (R=Rare earth)", T. Matsumura, Y. Hayashi, S. Takai, T. Otsubo, S. Matsuda, and A. Ochiai, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 114712-1-7 (2015). 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.84.114712
  7. "Pr- and La-doping effects on the magnetic anisotropy in the antiferromagnetic phase of Kondo semiconductor CeRu2Al10", K. Yoshida, R. Okubo, H. Tanida, T. Matsumura, M. Sera, T. Nishioka, M. Matsumura, C. Moriyoshi, and Y. Kuroiwa, Phys. Rev. B. **91**, 235124-1-13 (2015). 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.91.235124
  8. "Anomalous magnetic phase diagram of CeTe under high pressure", H. Takaguchi, Y. Hayashi, T. Matsumura, K. Umeo, M. Sera, and A. Ochiai, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 044708-1-6 (2015). 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.84.044708

[学会発表] (計 29 件)

- 日本物理学会 第 72 回年次大会 (東京理科大学・野田キャンパス, 2018/3/22-25)
1. 「局所空間反転対称性の破れた Ce(Ru1-xRhx)2Al10 における電気磁気効果 II」: 22aK504-9, 鹿内奈南, 網塚浩, 齋藤開, 山本将隆, 日高宏之, 柳澤達也, 谷田博司, 松村武, 世良正文
  2. 「偏極中性子回折による SmRu4P12 の磁場誘起電荷秩序状態の研究」: 23aK504-12, 松村武, 李哲虎, 松田雅昌, 椎名亮輔, 筒井智嗣, 菅原仁
  3. 「CexLa1-xB6 : 圧力誘起多極子秩序相」: 24pK504-7, 世良正文, 国森啓介, 松村武, 谷田博司, 藤秀樹, 伊賀文俊, 近藤晃弘,

上床美也, 小林達生

- International workshop on emergent condensed matter physics (ECMP2018), 2018/3/5-6, Hiroshima University,
4. "Magnetic-field-induced charge density wave in the filled skutterudite SmRu4P12", T. Matsumura
- 日本物理学会 2017 年秋季大会 (岩手大学・上田キャンパス, 2017/9/21-24)
5. 「磁場中超音波測定による CeTe の四極子応答の研究」: 21pF21-7, 齋藤猛敬, 松盛泰明, 日高宏之, 柳澤達也, 網塚浩, 林佑弥, 松村武, 落合明
  6. 「CexLa1-xB6 IV 相出現の理由について」: 21pF21-8, 世良正文, 国森敬介, 副島慧, 松村武, 近藤晃弘, 谷田博司, 伊賀文俊
  7. 「局所空間反転対称性の破れた Ce(Ru1-xRhx)2Al10 における電気磁気効果」: 21pF21-11, 鹿内奈南, 齋藤開, 日高宏之, 柳澤達也, 網塚浩, 谷田博司, 松村武, 世良正文
  8. 「Yb(Ni1-xCux)3Al9 におけるらせん磁気構造とキラルソリトン格子の形成」: 23pF21-8, 松村武, 喜多要介, 久保光野, 吉川雄吾, 道村真司, 稲見俊哉, 大原繁男
- 日本物理学会 第 72 回年次大会 (大阪大学・豊中キャンパス, 2017/3/17-20)
9. 「近藤半導体 CeRu2Al10 及びその置換系の Hall 効果」: 19pL21-8, 山本昇由, 世良正文, 谷田博司, 松村武
  10. 「共鳴 X 線回折によるキラル磁性体 Yb(Ni, Cu)3Al9 のらせん磁気構造の観測」: 20pL42-6, 喜多要介, 松村武, 久保光野, 吉川雄吾, 道村真司, 稲見俊哉, 大原繁男
  11. 「GdRu2Al10 におけるサイクロイド型磁気構造の温度変化」: 20pL42-7, 松村武, 山本昇由, 谷田博司, 世良正文
- Core-to-core international meeting 2017/2/4-6, Takeo, Saga
12. "Observation of chiral magnetic structures in Yb(Ni1-xCux)3Al9 by resonant x-ray diffraction in magnetic fields",
- 日本物理学会 2016 年秋季大会 (金沢大学・角間キャンパス, 2016/9/13-16)
13. 「キラル磁性体 Yb(Ni1-xCux)3Al9 の格子定数の温度依存性」: 14aJD-7, 久保光野, 喜多要介, 吉川雄吾, 松村武, 大原繁男
  14. 「共鳴 X 線回折によるキラル磁性体 Yb(Ni, Cu)3Al9 のらせん磁気構造の観測」: 14aJD-8, 喜多要介, 松村武, 久保光野, 吉川雄吾, 道村真司, 稲見俊

- 哉, 大原繁男
15. 「Ce(RuRh<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の圧力効果 III 電気抵抗」: 15aJD-5, 谷田博司, 片岡真一, 山本昇由, 松村武, 世良正文, 北川健太郎, 西岡孝
  16. 「Ce(RuRh<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の圧力効果 IV 磁化測定」: 15aJD-6, 谷田博司, 片岡真一, 山本昇由, 立岩尚之, 松村武, 世良正文, 西岡孝
  17. 「近藤半導体 CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> 及びその関連物質のホール効果測定」: 15aPS-22, 山本昇由, 谷田博司, 松村武, 世良正文
  18. 「熱膨張測定による CeXc (Xc=S, Se, Te) の結晶場効果の研究」: 15pKE-13, 林佑弥, 松村武, 落合明

・日本物理学会 第71回年次大会(東北学院大学・泉キャンパス, 2016/3/19-22)

19. 「CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> における Ce-, Ru-サイト置換効果」: 21pBL-6, 中川史也, 谷田博司, 松村武, 世良正文, 西岡孝, 松村政博
20. 「Ce(Ru<sub>1-x</sub>Rhx)<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の圧力効果 II」: 21pBL-7, 谷田博司, 中川史也, 吉田康助, 松村武, 世良正文, 北川健太郎, 西岡孝
21. 「電気抵抗の磁場, 圧力応答による CeXc (Xc=S, Se, Te) の c-f 混成効果の研究 II」: 21pBL-11, 林佑弥, 松村武, 松林和幸, 上床美也, 世良正文, 梅尾和則, 落合明
22. 「磁場中共鳴 X 線回折によるキラル結晶 Yb(Ni, Cu)<sub>3</sub>Al<sub>9</sub> のらせん磁気構造の研究」: 21pBM-10, 松村武, 久保光野, 道村真司, 稲見俊哉, 大原繁男

・日本物理学会 2015 年秋季大会(関西大学・千里山キャンパス, 2015/9/16-19)

23. 「電気抵抗の磁場-圧力応答による CeXc (Xc=S, Se, Te) の c-f 混成効果の研究」: 17aPS-33, 林佑弥, 高井駿, 松村武, 世良正文, 松林和幸, 上床美也, 落合明
24. 「RAlGe (R=Ce, Pr, Nd) の異常な強磁性」: 17aPS-37, 宗重瑞稀, 松村武, 谷田博司, 世良正文
25. 「CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の磁気異方性への Pr, La ドープ効果」: 17pCD-2, 世良正文, 吉田康介, 谷田博司, 松村武, 西岡孝, 松村政博
26. 「CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> における Ru サイト置換効果」: 17pCD-4, 吉田康介, 谷田博司, 松村武, 世良正文, 西岡孝, 松村政博
27. 「Ce(Ru<sub>1-x</sub>Rhx)<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の圧力効果」: 17pCD-5, 谷田博司, 中川史也, 吉田康助, 松村武, 世良正文, 北川健太郎, 西岡孝, 松村政博
28. 「CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の異方的物性と結晶構造の考察」: 17pCD-6, 谷田博司, 中川史也, 吉田康助, 松村武, 世良正文, 西岡孝, 松村政博

29. 「RRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> (R=Sm, Gd) における格子不整合磁気秩序」: 17pCD-7, 松村武, 高井駿, 宗重瑞稀, 谷田博司, 世良正文

[図書] (計 1 件)

"Observation of Multipole Orderings in f-Electron Systems by Resonant X-ray Diffraction", T. Matsumura, p. 85-117, in "Resonant X-ray Scattering in Correlated Systems", Springer Tracts in Modern Physics 269, ed. Y. Murakami and S. Ishiara (DOI 10.1007/978-3-662-53227-0).

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://home.hiroshima-u.ac.jp/tmatsu>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

松村 武 (MATSUMURA TAKESHI)

広島大学・大学院先端物質科学研究科・准教授  
研究者番号: 00312546

### (2) 研究分担者

#### (3) 連携研究者

稲見 俊哉 (INAMI TOSHIYA)

量子科学技術研究機構・量子ビーム科学研究部門・グループリーダー  
研究者番号: 30354989

道村 真司 (MICHIMURA SHINJI)

埼玉大学・研究機構科学分析支援センター・助教  
研究者番号: 40552310

谷田 博司 (TANIDA HIROSHI)

広島大学・大学院先端物質科学研究科・助教  
研究者番号: 00452615

世良 正文 (SERA MASAFUMI)

広島大学・大学院先端物質科学研究科・教授  
研究者番号: 40196978

長尾 辰哉 (NAGAO TATSUYA)

群馬大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号: 00237497

田中 新 (TANAKA ARATA)

広島大学・大学院先端物質科学研究科・准教授  
研究者番号: 70253052

### (4) 研究協力者