

平成30年6月7日現在

機関番号：10101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13509

研究課題名（和文）トロイダルモーメントを内包する金属磁性体における電流誘起磁気効果の検証

研究課題名（英文）Experimental Tests for Current-Induced Magnetic Effect in Magnetic Metals with Toroidal Moments

研究代表者

網塚 浩 (AMITSUKA, Hiroshi)

北海道大学・理学研究院・教授

研究者番号：40212576

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,800,000円

研究成果の概要（和文）：本研究の目的は、電子スピンの渦状配置に対応する「トロイダルモーメント」が秩序した金属磁性体に関して予言された新奇な電気磁気効果を実験で検証することにある。現実の強制的トロイダル秩序系の候補である層状ウラン化合物UNi4Bの単結晶について電流下での精密磁化測定を行った結果、電流強度に比例して一様磁化が生じることを観測し、理論予想が本質的に正しいことを証明した。一方で電流方向に対する磁化の応答方向が理論予想と単純には合致しない結果も得られ、本系の結晶および磁気構造を精密に再検討する必要があるという新たな課題も提起した。また、同様の電流誘起磁化現象を示す二つの反強磁性体を新たに見出した。

研究成果の概要（英文）：This project aimed at testing experimentally for a new electromagnetic effect that was theoretically predicted in a magnetic metal showing order of "toroidal moment", which corresponds to a vortex-like configuration of electron spins. We performed magnetization measurements under electric currents on a layered uranium compound, UNi4B, which was expected to be a realistic candidate for the theoretical prediction, and observed that uniform magnetization is induced in proportion to the strength of applied electric currents. The obtained experimental results have shown the essential validity of the theoretical prediction. However, we also found that there is an inconsistency between the theory and the experimental results regarding the current-direction dependence of magnetization, raising a new issue of reinvestigation of crystal and magnetic structure of this system. In addition to these, we found two new antiferromagnetic materials that show the similar electromagnetic effect.

研究分野：数物系科学

キーワード：トロイダルモーメント トロイダル秩序 電気磁気効果 電流誘起磁化 空間反転対称性 反対称スピ  
ン軌道結合 奇パリティ多極子 ウラン化合物

## 1. 研究開始当初の背景

電場で磁化を制御する、あるいは磁場で電気分極を制御する「電気磁気効果」の研究は、古くはキュリーの仕事[1]に遡るが、近年では巨大電気磁気応答を示す「マルチフェロイック物質」の発見[2]によって、基礎学術上の興味のみならず応用上の重要性からも活発な研究が行われている。

本研究が採り上げる「トロイダル秩序」もそのような電気磁気応答間の交差相関を示す状態の一つである。トロイダルモーメント ( $\mathbf{t}$ ) は、反転中心からの位置ベクトルと電子スピンのベクトル積の和によって定義され、電子スピンの渦状配置に対応する。この様なトロイダルモーメントが秩序化する例としては  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ [3]や  $\text{LiCoPO}_4$ [4]などが知られており、特徴的な電気と磁気の交差相関（電気磁気応答）が報告されている。しかし、本研究課題申請時の2014年の時点では、トロイダル秩序に伴う電気磁気効果の報告は全て絶縁体に関するもののみであり、金属について研究が行われた例はなかった。

これに対し同年、トロイダル秩序が金属中で生じた場合に、異方的な磁気輸送現象、並びに電流方向に依存する新奇な電気磁気効果（後述）が生じることが、速水らによって理論的に予言された[5]。そこで本研究では、この理論予想を実験で検証し、未開拓である高次の奇パリティ多極子に関する物理を発展させることを目的とした。

## 2. 研究の目的

上記の背景のもと、現実のトロイダル秩序系と見なされるウラン系層状化合物  $\text{UNi}_4\text{B}$  を用いて理論予想を定性的および定量的に検証すること、また、他の秩序構造を持つ反強磁性金属についても調べ、金属における電気磁気効果の理解を深め、現象の普遍性を追究することを目的とした。

## 3. 研究の方法

$\text{UNi}_4\text{B}$  は、初期の報告では六方晶（空間群： $P6/mmm$ , No. 191,  $D_{6h}^{17}$ ）の結晶構造をとると報告されている[6]。しかし、その後直方晶（ $Cmcm$ , No.  $D_{2h}^{17}$ ）である可能性が指摘され[7]、検証が必要な状況にある。ただし仮に直方晶であるとしても、六方晶の場合にウランイオンが組む三角格子の歪みはわずかであるため、ここでは簡単のため軸方向を示す際に六方晶の表記を用いる。

この物質は、約 20 K ( $\equiv T_N$ ) で  $2/3$  のウランにより反強磁性秩序が発生する。秩序したウランサイトのみに着目すると、ハニカム構造上のスピンの渦状に整列した配置とみなすことができ、理論[5]の舞台となるトロイダル秩序状態に対応する。

本研究ではまず、理論が予言する電流磁気効果の検証を行った。すなわち、電流を

[2-1-10]方向に流すと[01-10]方向に磁化が発生し、[0001]方向に流した場合には[11-10]方向には磁化は生じないはずである。この様子を高感度の量子干渉磁束計（Quantum Design社製 MPMS）を用いて観測する。試料には精密定電流電源を用いて $\pm 30$  mA程度の範囲で一定電流を流す。本研究の申請段階でテスト測定を行ったところ、電流誘起磁化の兆候があることを確認できたが、電流の作る余剰磁束やノイズのために通常の自動解析は機能しないことが分かっていた。そこで生の出力電圧信号まで立ち戻って磁化を解析する新たな解析手法を開発することとした。

研究成果の項目に詳細を記すが、 $\text{UNi}_4\text{B}$  について結晶構造および磁気構造の精密構造解析の必要があることが判明し、前者については高エネルギー加速器研究機構（KEK）放射光科学研究施設（PF）を利用した放射光 X線による単結晶構造解析を、後者についてはプラハ・カレル大学（チェコ共和国）およびブランウンシュヴァイク大学（ドイツ）との国際共同研究を新たに立ち上げ、純良大型単結晶の作製およびこれを用いた中性子回折実験を遂行した。また、神戸大学との共同研究として NMR 測定による解析を進めた。さらに、本系の高次多極子に関する基礎的な情報を得るために、ドレスデン強磁場研究所（HZDR）との共同研究として超音波弾性定数測定を行った。

$\text{UNi}_4\text{B}$  に対する実験の信頼性を検証すると同時に、反強磁性金属における電気磁気効果の普遍性を調べる目的で、2種類の反強磁性体  $\text{CeRh}_2\text{Si}_2$  および  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  を対照物質として選び、同様の手法で電流下磁化測定を行った。

## 4. 研究成果

先ず  $\text{UNi}_4\text{B}$  の電流誘起磁化については、幾つかの異なる試料形状を用いた慎重な測定において再現性が確認され、確かにこの現象が生じていることがわかった。また、誘起される磁化が電流密度に比例して増大することを確認し、電流誘起磁化の感受率を定量的に明らかにした。しかしながら同時に、誘起される磁化が電流の方向にほとんど依存しないことがわかり、電流と磁化の異方的な相関を予想する理論とは単純には一致しないことも明らかとなった。この原因としては、(i) 電流が試料内で局所的に意図した方向と違う方向に流れていない、(ii) ウランサイトで本質的に結晶軸方向とは異なる方向に電場勾配が生じている、(iii) 磁気構造が過去に報告されたものと異なる、の三つが少なくとも考えられる。(ii)と(iii)の可能性が有力と予想され、前項に記したように結晶構造および磁気構造の再検討に着手した。

$\text{UNi}_4\text{B}$  の結晶構造解析については、KEK PF およびより高強度のアドバンストリング（AR）施設を利用し、北大で作製した単結晶

について振動写真法を用いて行った。その結果、六方晶では明らかに回折像を説明できず、より低対称の  $Cmcm$  および  $Cmc2_1$  のいずれかの結晶構造であることがわかった。現時点の解析では  $Cmcm$  の方がより確からしい構造であるという結果となっている。今後さらに別グループによって作製された試料を用いて検証を進め、結論を出す予定である。

一方、国際共同研究として進めている  $UNi_4B$  の中性子回折実験については、プラハカレル大学、V. Sechovský 教授のグループに研究協力者が長期滞在し、フラックス法により  $^{10}B$  の濃度を高めた大型単結晶の作製に成功した。この単結晶を用いた中性子回折実験のマシントイムは現在申請中であり、現時点では粉末試料による予備実験を行った段階にある。過去の実験を再現する結果が得られているが、磁気構造解析には単結晶の実験が必須であり、ブラウンシュヴァイク大学、S. Süllo 教授のグループと共同で今後これを進める計画である。また、神戸大学、藤教授のグループとの共同研究として本系の単結晶に対する NMR を初めて行い、異常な磁気秩序を反映したスペクトルの顕著な異方性と特異な緩和の存在が見出され[8]、現在さらに詳しい測定が進行中である。

もう一つの国際共同研究としてドイツ HZDR にて実施した  $UNi_4B$  の超音波弾性定数測定では、横波モード  $C_{66}$  が常磁性相および秩序相の両方において顕著なソフト化を示すことがわかった。これはこの系の反強磁性秩序に  $\Gamma_5$  対称の電気四極子あるいは十六極子が関与していることを強く示唆する。強磁場中の詳しい測定から、本系の磁気相図を更新し、5f 電子状態についての議論を理論家と進めている。

対照実験については、35 K ( $\equiv T_{N1}$ ) で反強磁性転移を示し、さらに 24 K ( $\equiv T_{N2}$ ) で異なる磁気構造に転移する  $CeRh_2Si_2$  (空間群:  $I4/mmm$ , #139,  $D_{4h}^{17}$ ) [9]、並びに  $T_N = 27$  K の反強磁性体  $CeRu_2Al_{10}$  ( $C/mcm$ , #63,  $D_{2h}^{17}$ ) [10] を選んだ。いずれもグローバルな反転対称性を有しており、その状況は反強磁性秩序下で生じるスピン配列を考慮しても変わらないしたがって、これらの系では電流を流しても一様磁化は生じないはずである。すなわち、電流誘起磁化が観測されない例を示すことによって、 $UNi_4B$  に関する実験の正しさを確認することが本実験の狙いであった。しかし、大変興味深いことに、いずれの系でも電流印加による磁化の発生が観測された。

$CeRh_2Si_2$  では、 $T_{N1}$  と  $T_{N2}$  の間の反強磁性相においてのみ、電流を正方晶  $a$  軸方向に流すと  $c$  軸方向に磁化が誘起される振る舞いが観測された。電流を  $c$  軸方向に流したときには磁化は誘起されず、またいずれの電流方向においても電流と平行方向には磁化は観測されなかった。誘起磁化は電流の大きさに比例し、電流を反転させると磁化も反転した。 $CeRu_2Al_{10}$  でも、 $T_N$  以下で顕著に磁化が誘起

され、電流方向に対して異方的な振る舞いが観測された。誘起磁化の大きさは、いずれの系においても  $UNi_4B$  の場合と同程度であった。

これらの結果はトロイダル秩序に対する理論が単純には適合しない、電流誘起磁化現象が存在することを示している。一方で、 $CeRh_2Si_2$  において温度領域の違いで誘起磁化現象の有無が観測されたことから、実験が正しく行われており、現象は磁気構造に依存するものであるという確証が得られた。

この対照実験の結果をみて、 $UNi_4B$  について得られていた結果を *Journal of the Physical Society of Japan* 誌に公表した[11]。公表論文はその巻の注目論文 (Editors' Choice) に選出されるとともに、2018 年 3 月期のダウンロード数第 1 位を記録し、高い関心を集める結果となった。また、科学新聞 (2018 年 4 月 6 日) の紙面で記事「拡張多極子の新たな電気磁気効果を検証—北大 理論の正しさを示す」として採り上げられた。 $UNi_4B$  および対照物質  $CeRh_2Si_2$ 、 $CeRu_2Al_{10}$  のいずれにおいても電流誘起磁化異常が観測されたことから、トロイダル秩序を対象とした既存理論の枠を越えた議論の必要性が示唆される。本研究の遂行によって、反強磁性金属における新たな物質機能への関心が高まり、今後の関連研究の発展が期待される。

#### <引用文献>

- [1] P. Curie, *J. Phys. Theor. Appl.* **3**, 393 (1894).
- [2] T. Kimura *et al.*, *Nature (London)* **426**, 55 (2003).
- [3] V. J. Folen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 607 (1961).
- [4] B.B. Van Aken *et al.*, *Nature (London)* **449**, 702 (2007).
- [5] S. Hayami *et al.*, *Phys. Rev. B* **90**, 024432 (2014).
- [6] S. A. M. Mentink *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1031 (1994).
- [7] Y. Haga *et al.*, *Physica B* **403**, 900 (2008).
- [8] Y. Kishimoto *et al.*, *Physica B: Condens. Matter* **536**, 564 (2018).
- [9] S. Kawarazaki *et al.*, *Phys. Rev. B* **61**, 4167 (2000).
- [10] D. D. Khalyavin *et al.*, *Phys. Rev. B* **82**, 10045(R) (2010).
- [11] H. Saito *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **87**, 033702 (2018).

#### 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 2 件)

- ① H. Saito, K. Uenishi, N. Miura, C. Tabata, H. Hidaka, T. Yanagisawa, and H. Amitsuka, "Current-Induced Magnetization in

Antiferromagnetic Metals”, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 033702-1-5 (2018) 査読有.  
(Editors' Choice)  
DOI: 10.7566/JPSJ.87.033702

- ② Y. Kishimoto, H. Matsuno, H. Kotegawa, H. Tou, H. Saito, H. Amitsuka, Y. Homma, A. Nakamura, Dexin Li, F. Honda, and D. Aoki, “Magnetic anisotropy on the single crystal UNi<sub>4</sub>B probed by <sup>11</sup>B NMR”, Physica B: Condens. Matter **536**, 564 (2018) 査読有.  
DOI: 10.1016/j.physb.2017.07.063

〔学会発表〕(計 23 件)

- ① H. Amitsuka, H. Saito, N. Shikanai, M. Yamamoto, H. Hidaka, T. Yanagisawa, C. Tabata, H. Nakao, H. Tanida, T. Matsumura, M. Sera, “Tests for Magnetoelectric Effects on Antiferromagnetic Metals”, 21st International Conference on Magnetism (ICM2018) (2018). (Invited Talk)
- ② H. Amitsuka, “Current-Induced Magnetization in Antiferromagnetic Metals”, International Workshop: Novel Phenomena in Quantum Materials driven by Multipoles and Topology (2018). (Invited Talk)
- ③ 柳澤 達也, 齋藤 開, 日高 宏之, 網塚 浩, 中村 慎太郎, 淡路 智, D. Gorbunov, S. Zherlitsyn, J. Wosnitza, K. Uhlířová, M. Vališka, V. Sechovský, 「UNi<sub>4</sub>B の極低温・強磁場における超音波弾性応答」, 日本物理学会 2018 年年次大会 (2018).
- ④ 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, 「局所反転対称性の破れた Ce(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> における電気磁気効果 II」, 日本物理学会 2018 年年次大会 (2018).
- ⑤ 齋藤 開, 鈴木 悠介, 鹿内 奈南, 三浦 植幸, 日高 宏之, 柳澤 達也, 田端 千紘, 網塚 浩, 「金属反強磁性体 CeRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> における電流誘起磁化現象」, 日本物理学会 2018 年年次大会 (2018).
- ⑥ 網塚 浩, 「反強磁性金属における電気磁気効果の検証」, 新学術領域「J-Physics: 多極子伝導系の物理」2017 年度領域全体会議 (2018).
- ⑦ C. Tabata, H. Sagayama, H. Nakao, H. Saito, and H. Amitsuka, “X-ray Crystal Structure Analysis of Single-Crystalline UNi<sub>4</sub>B”, 新学術領域「J-Physics: 多極子伝導系の物理」2017 年度領域全体会議 (2018).
- ⑧ 網塚 浩 「UNi<sub>4</sub>B, CeRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の電流下磁化測定」, 新学術領域「J-Physics: 多極子伝導系の物理」C01-D01 合同トピカルミーティング (2018).

- ⑨ Tatsuya Yanagisawa, H. Saito, H. Hidaka, H. Amitsuka, S. Nakamura, S. Awaji, D. Gorbunov, S. Zherlitsyn, J. Wosnitza, K. Uhlířová, M. Vališka, V. Sechovský, “Elastic Response of the Vortices-type Magnetic Order in UNi<sub>4</sub>B”, J-Physics 2017: International Workshop on Multipole Physics and Related Phenomena (2017).
- ⑩ 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, 「局所反転対称性の破れた Ce(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> における電気磁気効果」, 日本物理学会 2017 年秋季大会 (2017).
- ⑪ 柳澤 達也, 松盛 泰明, 齋藤 猛敬, 齋藤 開, 日高 宏之, 網塚 浩, 「UNi<sub>4</sub>B のトロイダル磁気秩序における電流下超音波測定」, 日本物理学会 2017 年秋季大会 (2017).
- ⑫ 網塚 浩, 「拡張多極子系における電気磁気効果の検証」, 新学術領域「J-Physics: 多極子伝導系の物理」C01 トピカルミーティング — 拡張多極子研究の進展と課題 (2017).
- ⑬ 松盛 泰明, 門別 翔太, 齋藤 開, 日高 宏之, 柳澤 達也, 網塚 浩, 「UNi<sub>4</sub>B のトロイダル磁気秩序状態における磁場中弾性応答 II」, 日本物理学会第 72 回年次大会 (2017).
- ⑭ H. Saito, N. Miura, C. Tabata, H. Hidaka, T. Yanagisawa, H. Amitsuka, “Hall Coefficient Measurement on Toroidal Magnetic Ordered State of UNi<sub>4</sub>B”, International Conference of Strongly Correlated Electron Systems 2016 (SCES2016) (2016).
- ⑮ H. Saito, N. Miura, C. Tabata, H. Hidaka, T. Yanagisawa, H. Amitsuka, “Hall Coefficient in Toroidal Magnetic Ordered State of UNi<sub>4</sub>B”, 16th Czech and Slovak Conference on Magnetism (2016).
- ⑯ 松盛 泰明, 門別 翔太, 齋藤 開, 日高 宏之, 柳澤 達也, 網塚 浩, 「UNi<sub>4</sub>B のトロイダル磁気秩序状態における磁場中弾性応答」, 日本物理学会 2016 年秋季大会 (2016).
- ⑰ 網塚 浩, 「UNi<sub>4</sub>B のトロイダル秩序状態における異常 Hall 効果の結晶」, 新学術領域「J-Physics: 多極子伝導系の物理」2016 年度領域全体会議 (2016).
- ⑱ 齋藤 開, 上西 健太, 三浦 植幸, 田端 千紘, 日高 宏之, 柳澤 達也, 網塚 浩, 「UNi<sub>4</sub>B のトロイダル磁気秩序状態における電流磁気効果の検証 III」, 日本物理学会第 71 回年次大会 (2016).
- ⑲ H. Saito, K. Uenishi, N. Miura, C. Tabata, H. Hidaka, T. Yanagisawa, H. Amitsuka, “Test for electromagnetic effects on a toroidal magnetic ordered state of UNi<sub>4</sub>B”, 20th International Conference on Magnetism (ICM2015) (2015).

- ⑳ 齋藤 開, 上西 健太, 三浦 植幸, 田端 千紘, 日高 宏之, 柳澤 達也, 網塚 浩, 「UNi4B のトロイダル秩序が Hall 係数に与える影響」日本物理学会 2015 年秋季大会 (2015).
- ㉑ 網塚 浩, 「拡張多極子が導く新しい電気磁気効果」, 第 9 回物性科学領域横断研究会 (2015).
- ㉒ 齋藤 開, 上西 健太, 三浦 植幸, 田端 千紘, 日高 宏之, 柳澤 達也, 網塚 浩, 「UNi4B のトロイダル磁気秩序状態における特異な電流磁気効果及び Hall 効果の検証」, 第 9 回物性科学領域横断研究会 (2015).
- ㉓ H. Amitsuka, “A New Magnetoelectric Effect in a Toroidal Ordered State of UNi4B”, International Workshop on Anomalous Transport in Multipolar and Topological Materials (2015). (*Invited Talk*)

〔その他〕

ホームページ等

<http://phys.sci.hokudai.ac.jp/LABS/kyokutei/vlt/research/UNi4B.htm>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

網塚 浩 (AMITSUKA, Hiroshi)  
 北海道大学・大学院理学研究院・教授  
 研究者番号：4 0 2 1 2 5 7 6

### (2) 研究協力者

柳澤 達也 (AMITSUKA, Hiroshi)  
 日高 宏之 (HDAK, Hiroyuki)  
 齋藤 開 (SAITO, Hiraku)  
 鹿内 奈南 (SHIKANAI, Nana)  
 山本 将隆 (YAMAMOTO, Masataka)  
 中尾 裕則 (NAKAO, Hironori)  
 田端 千紘 (TABATA, Chihiro)  
 谷田 博司 (TANIDA, Hiroshi)  
 世良 正文 (SERA, Masafumi)  
 松村 武 (MATSUMURA Takeshi)  
 Vladimír Sechovský (SECHOVSKÝ, Vladimír)  
 Klára Uhlířová (UHLÍŘOVÁ, Klára)  
 Michal Vališka (VALÍŠKA, Michal)  
 Sergei Zherlitsyn (ZHERLITSYN, Sergei)  
 Jochen Wosnitza (WOSNITZA, Jochen)  
 Stefan Süllo (SÜLLOW, Stefan)