

令和 4 年 5 月 30 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2021

課題番号：20K14404

研究課題名(和文) 強磁場下超音波計測を用いたp-f混成による電子ネマティック相と四極子秩序の研究

研究課題名(英文) High-field ultrasonic study of quadrupole ordering in electronic nematic state due to p-f hybridization

研究代表者

栗原 綾佑 (Kurihara, Ryosuke)

東京大学・物性研究所・特任研究員

研究者番号：00795114

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：パルス強磁場下超音波計測によりCeTIn₅とLaTIn₅ (T = Co, Rh, Ir)の弾性定数および超音波吸収係数を網羅的に測定し、磁場によって誘起される電子系の相転移と結晶対称性の破れを調べた。CeRhIn₅の電子ネマティック(EN)相では正方晶D_{4h}のB_{1g}対称性の弾性定数が異常を示した一方で、LaRhIn₅では異常が観測されなかった。この結果は、Ceの4f電子がEN相転移に寄与することを示している。他方、CeIrIn₅やLaIrIn₅はEN相を示唆する弾性異常は観測されなかった。これらの結果から、CeRhIn₅の2次元性が強いp-f混成の重要性を解明した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、約30Tという強磁場中で顕著に異方化する電子状態の起源を解明するため、60 Tまでの磁場を容易に発生できる非破壊パルス強磁場と、異方的な電子状態の観測に長けた超音波計測を組み合わせた物性測定を推進した。その結果、化合物中のどの電子が異方的な電子状態の実現に寄与するかを解明した。このような異方的な電子状態の起源は議論がつづいており、新たな学術的知見を獲得できた。また本研究で得た知見によって、例えば磁場を用いて電流が流れる方向を操作するような新しいスイッチングデバイス実現など、将来的な産業への寄与も期待できる。

研究成果の概要(英文)：We investigated field-induced ordering and crystal symmetry breaking using ultrasonic measurements under pulsed-magnetic fields in CeTIn₅ and LaTIn₅ (T = Co, Rh, Ir). In the electronic nematic (EN) ordering in CeRhIn₅, the elastic constant with the irrep B_{1g} of the space group D_{4h} exhibits an anomaly. In contrast, we could not observe such an anomaly in LaRhIn₅. These results indicate that 4f electrons in Ce ions play a key role in the EN phase. On the other hand, the elastic anomaly was not observed in LaIrIn₅ in addition to CeIrIn₅. Therefore, we concluded that the in-plane anisotropy of the p-f hybridization between Ce-4f and In-5p electrons contributed to the field-induced EN phase transition in CeRhIn₅.

研究分野：強相関電子系の超音波計測

キーワード：強相関電子系 電子ネマティック相 電気四極子 結晶対称性の破れ 超音波計測 非破壊パルス強磁場

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

従来 CeRhIn₅ は、系統物質の CeCoIn₅ や CeIrIn₅ と合わせ重い電子超伝導体として注目され、静水圧力による反強磁性秩序の抑制、フェルミ面の変化と 4f 電子の遍歴化、および超伝導が注目された。その量子状態は、Ce³⁺ の 4f 電子に由来する結晶場で理解され、基底状態 $|\Gamma_7^{G\pm}\rangle$ と第一励起状態 $|\Gamma_7^{L\pm}\rangle$ は、二次元的なドーナツ状の $|J_z = \pm 5/2\rangle$ と三次元的なヨーヨー状の $|J_z = \pm 3/2\rangle$ を用いてそれぞれ $|\Gamma_7^{G\pm}\rangle = \alpha|J_z = \pm 5/2\rangle + \sqrt{1-\alpha^2}|J_z = \mp 3/2\rangle$ と $|\Gamma_7^{L\pm}\rangle = \sqrt{1-\alpha^2}|\pm 5/2\rangle + \alpha|\mp 3/2\rangle$ であると理解された。また、第二励起状態は $|\Gamma_6^{\pm}\rangle = |\pm 1/2\rangle$ と記述される[1]。これら量子状態は時間反転対称性で縮退したクラマース二重項であり磁気双極子をもつため、 $T_N = 3.8$ K の反強磁性秩序に寄与する。他方、双極子より高次の多極子である電気四極子はそれぞれの量子状態間のみ行列要素をもつため絶対零度まで秩序化せず、空間群 D_{4h}^1 の結晶対称性の低下も生じない。

ところが近年、 $B^* \sim 30$ T の強磁場中で新奇な電子状態と対称性の破れが報告された。 T_N 以下の 2.5 K 以下において、結晶の [001] 周辺の方に磁場を印加すると、正方晶では等価な電気抵抗 $R_{[100]}$ と $R_{[010]}$ 、および $R_{[110]}$ と $R_{[1-10]}$ がそれぞれ非等価になることが指摘された[2]。一方で、強磁場磁化には B^* での異常が現れず[3]、電気的な自由度の寄与が示唆されていた。また B^* 以上の磁場で、低磁場相では見られない de Haas-van Alphen (dHvA) 振動数の出現が報告されたことから[4]、CeRhIn₅ では電子ネマティック相が実現し、正方晶の結晶対称性 D_{4h}^1 よりも電子系やフェルミ面の対称性が顕著に低対称化している可能性が議論された。そこで重要なのは、二次元的なドーナツ状の波動関数 $|J_z = \pm 5/2\rangle$ のウェイトが大きい 4f 電子の波動関数であり、面内 In-5p との混成効果であるとされた。しかしながら、 B^* での磁歪が観測されたことから[5]、電子系のみならず結晶対称性の破れの可能性も示唆されていた。

Reference : [1] T. Willers, *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **112**, 2384 (2015). [2] F. Ronning, *et al.*, Nature **548**, 313 (2017). [3] T. Takeuchi, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **70**, 877 (2001). [4] L. Jiao, *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **112**, 673 (2015). [5] P. F. S. Rosa, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **122**, 016402 (2019).

2. 研究の目的

CeRhIn₅ で明らかにされた電子ネマティック相では、結晶の z 軸まわりの 4 回回転操作 C_4^{\pm} が失われるが空間反転操作 I は保存される。それゆえ群論的には、電子状態の低対称化を特徴づける最低次の自由度は座標の 2 次関数の電気四極子 O である。特に、 D_{4h} 群に属する CeRhIn₅ での低対称化は既約表現 B_{1g} や B_{2g} を活性表現とする相転移として理解でき、同じ対称性の電気四極子 $O_{x^2-y^2}$ や O_{xy} の秩序として記述できる。

そこで本研究計画では、図 1 に示すように超音波測定によって電子ネマティック相を特徴づける相転移の活性表現を明らかにし、電気四極子による秩序と結晶対称性の破れを実験的に解明することを目的とした。

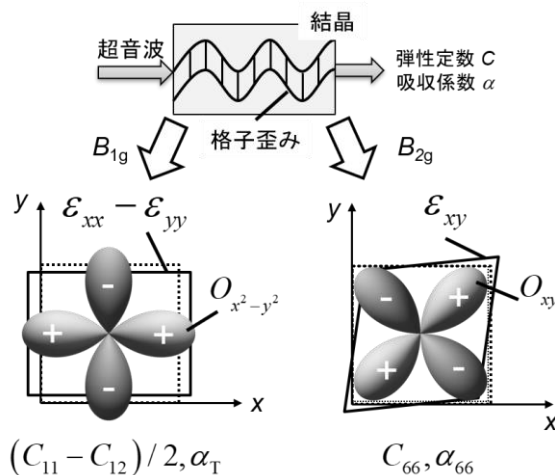


図 1. 超音波で観測できる D_{4h} 群の既約表現 B_{1g} と B_{2g} の電気四極子，歪み，弾性定数，超音波吸収係数。

3. 研究の方法

本研究計画では CeTIn₅ ($T = \text{Rh, Co, Ir}$) に加え、その系統物質であるが 4f 電子を含まない LaTIn₅ を取り上げ、 $p-f$ 混成により実現する電子ネマティック相と対称性の破れを追求する。主な測定手法は超音波であり、 $B^* \sim 30$ T の高磁場中で発現する電子ネマティック相を捉えるためには 60 T までの強磁場を約 40 ms の間に発生可能なパルスマグネットを使用する。

本研究主要な測定手法である超音波は、その伝搬方向 q と変位方向 ξ をうまく選ぶことで、結晶が属する群の既約表現 Γ に従う歪み α を誘起できる。それゆえ、既約表現に従う電気四極子との線形結合が許されるため、電気四極子の応答と秩序化を直接観測できる強力な実験手法である。

本研究計画の遂行には、高精度・高速超音波測定と磁場角度依存性が重要である。先行研究から、CeRhIn₅ の B^* での磁歪が 1×10^{-6} の微小変化と明らかにされ、弾性応答も微小である可能性が高く高精度測定が必須となる。また、CeRhIn₅ の量子振動は kT 領域で顕著であり、パルス磁場の発生時間 ~ 40 ms の長さも相まって、高い時間分解能での音響 dHvA 振動測定の必要性が予想される。それゆえ、現在申請者が物性研究所のパルス強磁場下超音波計測で実現している弾性定数分

解能 $10^{-4}\sim 10^{-5}$ を定常磁場下で実現される $\sim 10^{-6}$ まで高精度化し、かつ時間分解能を 1.25 GS/s から向上させることが重要である。

以上の観点から、 CeTIn_5 ($T = \text{Rh, Co, Ir}$) の超音波測定を遂行する。 CeTIn_5 は正方晶であるため、測定可能な縦波弾性定数 C_{11} と C_{33} 、および横波弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ 、 C_{44} 、 C_{66} と、その超音波吸収係数 α_T の強磁場依存性を網羅的に測定し、相転移の活性表現を決定する。また、 CeTIn_5 の音響 dHvA 振動を測定し、 B^* 前後でのフェルミ面とサイクロトロン有効質量を決定する。

加えて、磁場によって増強される $4f$ 電子と伝導電子との混成効果を調べるため、近藤効果により絶縁体化する Yb 化合物に着目し、磁場誘起絶縁体-金属転移における弾性応答の知見を CeTIn_5 系に feedback する。

4. 研究成果

(1). CeRhIn_5 における結晶対称性の破れと四極子秩序の観測

本研究計画の予備実験として、 CeRhIn_5 の強磁場下超音波計測を進めた。その結果、図 2 に示すように、電子ネマティック秩序の秩序変数が既約表現 B_{1g} に属する電気四極子として記述できることを解明した。さらに、電気四極子と群論的に許される格子歪みの結合により、電子系のみならず格子系の対称性も低下する結晶対称性の破れが生じていることを明らかにした。また $(C_{11}-C_{12})/2$ において、 B^* 前後での音響的量子振動を観測でき、電気四極子秩序に伴うフェルミ面の変化を観測できた。これら成果を *Physical Review B* に投稿し、R. Kurihara et al., *Phys. Rev. B* **101**, 155125 (2020) として掲載された。研究計画採択前の出版となったが、本研究計画遂行のために重要な予備実験の研究成果であるため、本研究課題の成果として記述した。

(2). LaRhIn_5 と LaIrIn_5 の電子ネマティック秩序の検証

CeRhIn_5 の $4f$ 電子が磁場誘起電子ネマティック秩序に寄与するかどうかを検証するため、 $4f$ 電子をもたない LaRhIn_5 と LaIrIn_5 の強磁場超音波計測を遂行した。その結果、両物質ともに、60 T までの磁場範囲で磁場誘起電子ネマティック秩序に由来するような弾性異常は観測されなかった。この結果は、電子ネマティック秩序に $4f$ 電子が寄与することを示唆するものである。

他方、 LaRhIn_5 に関しては、近年議論されている Berry 位相 π をもつ極小フェルミ面に由来する音響的量子振動を観測できた。この結果は、超音波によるディラック電子系の観測という発展途上の物理を開拓するきっかけになると考えられ、本研究課題による重要な研究成果の 1 つとなった。今後は、量子振動の詳細を調べフェルミ面の形状や起源の解明を目指す。

(3). CeIrIn_5 における磁場誘起電子ネマティック秩序の検証とメタ磁性・Lifshitz 転移の弾性異常の観測

CeRhIn_5 における面内 p - f 混成と電子ネマティック秩序の実現を検証するため、面間に広がった波動関数をもつ CeIrIn_5 に着目して超音波測定を遂行した。その結果、60 T までの磁場範囲で特定の既約表現に属する弾性定数にのみ異常が現れるような実験結果は得られなかった。これは、 CeIrIn_5 においては磁場誘起電子ネマティック秩序が生じないことを示すものであり、 CeRhIn_5 における電子ネマティック秩序への面内 p - f 混成の寄与を示唆する成果である。

他方、これまでの研究で明らかにされていた 42 T でのメタ磁性と 28 T での Lifshitz 転移において、すべての弾性定数に両転移に対応する弾性異常が現れた。これまでは両転移を 1 つの物理量で観測した実験結果はなく、本研究課題の成果である。特に、メタ磁性に関しては縦波弾性定数が顕著な弾性異常を示したことから、全対称の既約表現 A_{1g} と関係する Ce 価数の異常の可能性を見出した。この研究成果は 2022 年に開催される LT29 Sapporo で発表予定である。また、本

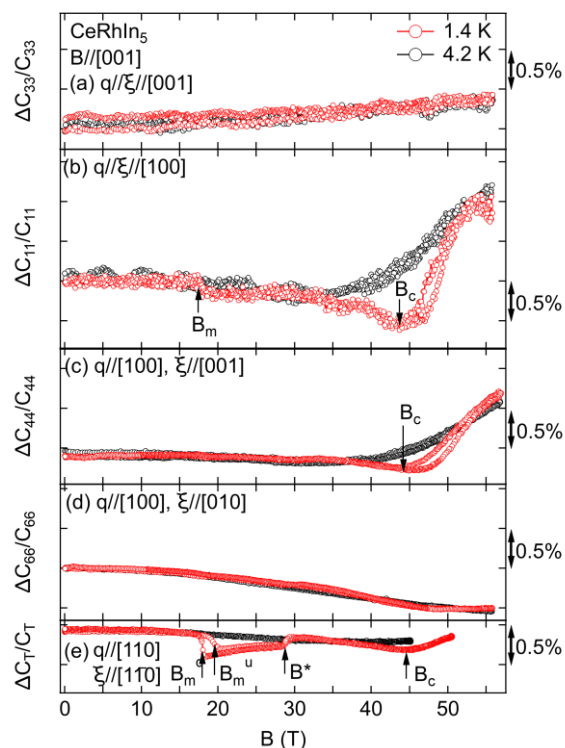


図 2. CeRhIn_5 の弾性定数の強磁場依存性。

1.4 K での結晶対称性の破れと関係した既約表現 B_{1g} の弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ において、 $B^* = 28$ T で顕著に磁場誘起電子ネマティック秩序に対応する異常が観測できた。

研究成果を英語論文としてまとめている。

(4). 磁場によって増強される $4f$ 電子と伝導電子との混成効果の検証

YbB_{12} の磁場誘起絶縁体-金属転移における近藤効果 (Yb - $4f$ 電子と伝導電子との混成) の寄与と弾性異常を解明するため、ドイツ・ドレスデン強磁場施設との国際共同研究として強磁場超音波測定を遂行した。その結果、磁場誘起絶縁体-金属転移に伴い、体積弾性率が減少することを明らかにした。この結果は Yb イオンの価数変化を示唆するものであり、磁場による混成効果の変調を示すものである。このことから、磁場による $4f$ 電子と伝導電子との混成のチューニングが一般的に起こりうることを明らかにした。 YbB_{12} の研究は当初の研究計画にはなかったが、 CeRhIn_5 における磁場による p - f 混成の増強を実証するうえで有効な知見となり、重要な研究成果と言える。これら成果を *Physical Review B* に投稿し、R. Kurihara et al., *Phys. Rev. B* **103**, 115103 (2021) として掲載された。また、日本物理学会や国際会議での研究発表を行った。

また、ドレスデン強磁場施設における ^3He 冷凍機を用いたパルス磁場下超音波計測の技術を学ぶことができ、物性研究所で同様の計測システムを構築できた。これにより、日本国内では初めてとなる 500 mK 以下における 60 T パルス強磁場超音波計測の環境構築に貢献でき、重要な成果といえる。

(5). 高精度・高速超音波計測システムの構築

本研究課題の遂行にあたり、従来では垂直分解能 8 bit 、サンプリングレート 1.25 GSa/s であった強磁場下超音波計測システムについて、 12 bit - 2.5 GSa/s に改良した。その結果、高精度な音響的量子振動の測定など重要な実験結果が得られた。このシステムを記述するコードを、個人ホームページで公開した。

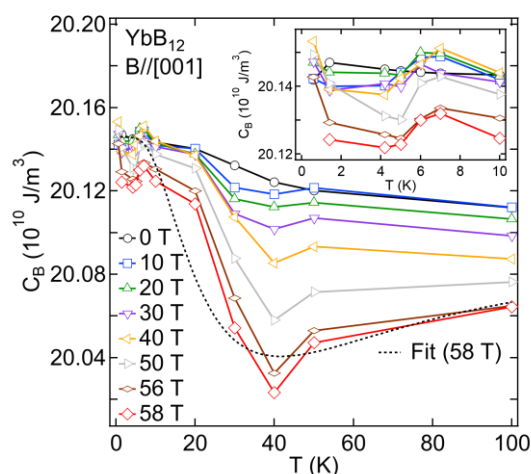


図 3. YbB_{12} の体積弾性率 C_B の磁場中温度変化。Fit はバンドギャップを考慮した 2 バンドモデルに基づく弾性定数の解析結果。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Kurihara R., Miyake A., Tokunaga M., Ikeda A., Matsuda Y. H., Miyata A., Gorbunov D. I., Nomura T., Zherlitsyn S., Wosnitza J., Iga F.	4. 巻 103
2. 論文標題 Field-induced valence fluctuations in YbB12	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-14
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.103.115103	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 栗原綾佑
2. 発表標題 パルス強磁場下超音波計測によるYbB12の体積弾性率と価数揺らぎの研究
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 栗原綾佑
2. 発表標題 パルス強磁場下超音波計測によるCeRhIn5の電子ネマティック相と音響ドハース効果
3. 学会等名 日本物理学会2020年年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ryosuke Kurihara
2. 発表標題 High field ultrasonic study of YbB12
3. 学会等名 ARHMF2020（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ryosuke Kurihara
2. 発表標題 High-Field Ultrasonic Study of CeIrIn5
3. 学会等名 29th International Conference on LOW Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
ドイツ	HLD-EMFL	HZDR	