



## 磁気渦の中心で揺らぐ電気四極子

～スピンと電子軌道が結合した新しい量子情報素子の実現に期待～

### ポイント

- ・蜂の巣構造における渦状の磁気秩序の中心で、常磁性状態を保つ電気四極子の応答を観測。
- ・ウランを含む単結晶を極低温（ $\sim 0.04$  K）まで冷却し、強磁場下（ $< 28$  T）で弾性率を精密測定。
- ・極低温・強磁場領域まで磁場-温度相図を拡張し、高磁場に新しい秩序相を発見。

### 概要

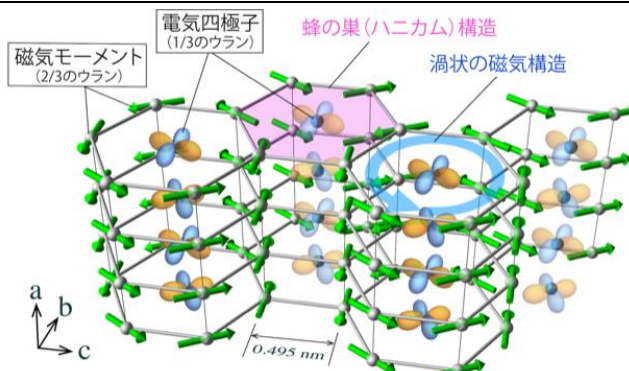
北海道大学大学院理学研究院の柳澤達也准教授，東北大学金属材料研究所，ヘルムホルツ研究センタードレスデン強磁場研究所（ドイツ），ドレスデン工科大学（ドイツ）及びカレル大学数物理学科（チェコ）の国際共同研究グループは、「蜂の巣構造」を持つウラン化合物が形成する磁気渦の中心で、秩序せず自由度を保ち続ける「電気四極子\*1」の存在を初めて捉えることに成功しました。

記憶素子の微細化や量子コンピュータの実現に向けて、新しい量子自由度が示すナノスケールの秩序構造が注目されています。その中でも磁気渦の研究は、磁化率や中性子散乱実験などの電子のスピン自由度を観測する磁気測定によってこれまで中心的に行われてきました。一方、電子の持つもう一つの自由度である「軌道自由度」に関しては、磁気的な自由度とは対称性が異なる電気的な自由度であるため、実験の難しさからあまり研究が進んでおらず、磁気渦中において電気的な自由度がどのように振舞っているのかが未解明の謎として残っていました。

今回研究グループは、金属化合物中の電子の軌道自由度を敏感に観測する精密超音波測定法と国内外の最先端の強磁場発生装置を組み合わせ、 $\text{UNi}_4\text{B}$ （U: ウラン，Ni: ニッケル，B: ホウ素）という物質が示す渦状の磁気秩序下で、電子の軌道自由度に由来する「電気四極子」を精密測定しました。

その結果、本物質の磁気渦と電気四極子の応答に強い相関があることが明らかになりました。本研究成果は、同様の磁気渦を示す物質の理解を進めるとともに、固体中の電子の持つ多様な量子自由度を制御し、それらを応用に結びつけた全く新しい量子情報素子の実現に向けた足掛かりになると期待されます。

なお、本研究成果は、米国の科学誌 *Physical Review Letters* 誌（オンライン版）に2021年4月12日（月）にオープンアクセスで掲載されました。



$\text{UNi}_4\text{B}$  の結晶構造と磁気渦の概念図

## 【背景】

放射性元素のウランは国際規制物資であるため、ウランを含む化合物は実験的な取り扱いが難しい上、ウランイオンの価数が不確定であることや、ウランが持つ 5f 電子系特有の局在性・遍歴性の二面性から、固体中におけるウランの電子状態の理論的な取り扱いは困難で、未だにその本質的な理解には至っていません。本研究で用いた金属反強磁性体 UNi<sub>4</sub>B は、その中でも電子の局在性が比較的強く、これまでは主に電子のスピン自由度の観測を通して磁気的な性質の理解が進んでいました。

本物質が示す反強磁性秩序は、結晶単位胞内の 2/3 のウラン（ハニカム構造の六員環を形成）のスピンの渦状に秩序し、残りの 1/3 のウラン（六員環の中心）のスピンの常磁性状態を保つという大変珍しい磁気構造を示すことが既に中性子実験から報告されていました（p.1 図）。近年発展した「多極子理論」の枠組みでこの現象を表現すると、この渦状の磁気構造は空間的に拡張された多極子の一つである磁気トロイダル双極子モーメント\*2 の強制的秩序とみなすことができ、その応答として電流を流すと磁化が誘起される新奇現象が予言されていました。

近年、研究グループは UNi<sub>4</sub>B に対して検証実験を行い、電流を流すと磁気トロイダル秩序相内で付加的に磁化が誘起される現象を世界で初めて観測しましたが、電子が持つもう一つの自由度「軌道自由度」の役割について解明できておらず、今回それを解明する実験を行いました。

## 【研究手法】

研究グループは、超音波測定により軌道自由度の応答を観測しました。固体中に入射された超音波は弾性波として伝播し、結晶格子に局所的な歪みを誘起し、その局所歪みは電子の軌道自由度に由来し、同じ対称性を持つ異方的な局所電荷分布の「電気四極子」と結合します。すなわち超音波の音速を精密に測定することで、固体のばね定数である「弾性定数」がわかり、その温度・磁場変化は固体中の電子が持つ電気四極子自由度の感受率として理解できます。法規制によりウラン化合物を国外輸出できないため、本研究では、北海道大学とカレル大学で別々に育成・評価した複数の UNi<sub>4</sub>B 単結晶試料を用いて、それぞれ日本国内とヨーロッパにおいて極低温・強磁場実験を行いました。

## 【研究成果】

図 1 は本研究で得られた横波弾性定数  $C_{66}$  の温度・磁場変化です。温度依存性（青色のデータ）は 30 K 以下で温度に反比例して軟らかくなる振舞い（ソフト化）を示しています。この振舞いは他の対称性には現れず、横波弾性率  $C_{66}$  のみがソフト化を示すという実験事実は、同じ対称性の電気四極子が活性であることを意味します。さらに秩序相内（ $T_N$  以下）で極低温までソフト化が続き、 $T^*$ （ $\sim 0.3$  K）で一定値に収束する実験結果は、局在電子模型を用いた理論で完全に再現できる（赤色の曲線）ことから、渦状の磁気秩序下でも一部のウランは依然として常磁性状態を保ち、p.1 図のように「磁気渦の中心で電気四極子が揺らいでいる」ことを強く示唆しています。

さらに研究グループは、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設置されている世界最先端の 28 T 無冷媒ハイブリッド磁石\*3 とヘリウム 3-ヘリウム 4 希釈冷凍機を組み合わせ、45mK、28T までの強磁場領域の超音波測定に成功しました。図 2 の磁場依存性（緑色のデータ）では渦状の磁気構造が変化する 3 箇所（領域）の磁場領域で大きな弾性定数の増減が明確に観測されており、磁場中で四極子の応答が目まぐるしく変化していることがわかります。また本研究では  $H_2$  から  $H_3$  の強磁場領域にこれまでに報告されていない新たな秩序相（V 相）を発見しました。

一方、ヘルムホルツ研究センタードレスデン強磁場研究所（ドイツ）では、最高 60T のパルス磁場発生装置とヘリウム 4 冷凍機を組み合わせ、さらに広い磁場・温度領域で超音波測定を行いました。図 2 は全ての結果を磁場-温度相図としてまとめた図で、破線内の II 相は渦状の磁気構造を示すトロイダル秩序相です。赤～青のバックグラウンドのグラデーションは超音波で得られた弾性定数の「大～小（硬～軟）」の度合いを示しています。磁場方向を蜂の巣構造の六角形の面内にとり

90° 回転させると、*b* 軸に平行な磁場（図 3 左）と *c* 軸に平行な磁場（図 3 右）で色合いが異なることがわかります。すなわち四極子の応答が磁場方向によって全く異なっていることを示しています。また、*b* 軸に平行な磁場方向では、強磁場・極低温領域で *c* 軸に平行な磁場方向には存在しない V 相が現れます。各秩序相に青と赤のコントラストが生じていることから、本系の渦状磁気構造において電気四極子が重要な役割を果たしていることが結論できます。

### 【今後への期待】

電気四極子や拡張多極子が示す新規現象は、将来の機能性デバイスや量子情報素子開発への応用が期待できます。今回実証されたのはその基礎となる現象のため、今後はその物理をしっかりと構築することが重要です。また、本研究で採用した強磁場・極低温下における精密超音波測定の手法を様々な化合物に応用し、磁気相図の構築から新奇な量子現象の機構解明に役立てたいと考えています。

### 【謝辞】

本研究は、日本学術振興会「頭脳循環を加速する若手研究者戦略的海外派遣プログラム：核物質を含む化合物の強相関電子物性研究のための日米欧ネットワークの構築（研究代表者：網塚 浩）」、同科学研究費助成事業基盤研究 C（17K05525）、新学術領域（研究領域提案型）「J-Physics：多極子伝導系の物理」（15H05882）（研究代表者：播磨尚朝）、同計画研究班「C01：拡張多極子による動的応答」（15H05885）（研究代表者：網塚 浩）、同公募研究班「電流と格子回転・歪みによる複合共役場を用いた拡張多極子検出の試み」（18H04297）（研究代表者：柳澤達也）の一環として行われました。

### 論文情報

論文名	Electric quadrupolar contributions in the magnetic phases of UNi <sub>4</sub> B (UNi <sub>4</sub> B の磁気相における電気四極子の寄与)
著者名	柳澤達也 <sup>1</sup> , 松盛泰明 <sup>1</sup> , 斎藤 開 <sup>1</sup> , 日高宏之 <sup>1</sup> , 網塚 浩 <sup>1</sup> , 中村慎太郎 <sup>2</sup> , 淡路 智 <sup>2</sup> , Denis Gorbunov <sup>3</sup> , Sergei Zherlitsyn <sup>3</sup> , Joachim Wosnitzer <sup>3,4</sup> , Klára Uhlířová <sup>5</sup> , Michal Vališka <sup>5</sup> , Vladimír Sechovský <sup>5</sup> ( <sup>1</sup> 北海道大学大学院理学研究院, <sup>2</sup> 東北大学金属材料研究所, <sup>3</sup> ヘルムホルツ研究センタードレスデン強磁場研究所, <sup>4</sup> ドレスデン工科大学, <sup>5</sup> カレル大学数物理学科)
雑誌名	<i>Physical Review Letters</i> (米国物理学会誌)
DOI	10.1103/PhysRevLett.126.157201
公表日	2021 年 4 月 12 日 (月) (オンライン公開)

### お問い合わせ先

北海道大学大学院理学研究院 准教授 柳澤達也 (やなぎさわ たつや)  
TEL 011-706-4422 メール tatsuya@phys.sci.hokudai.ac.jp  
URL <http://sonicbangs.sci.hokudai.ac.jp/yanagisawa>  
東北大学金属材料研究所 助教 中村慎太郎 (なかむら しんたろう)  
TEL 022-215-2167 メール nakamura@imr.tohoku.ac.jp  
URL <http://www.hflsm.imr.tohoku.ac.jp/>

### 配信元

北海道大学総務企画部広報課 (〒060-0808 札幌市北区北 8 条西 5 丁目)  
TEL 011-706-2610 メール kouhou@jimu.hokudai.ac.jp  
東北大学金属材料研究所情報企画室広報班 (〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1)  
TEL 022-215-2144 メール imr-press@imr.tohoku.ac.jp

## 【用語解説】

- \*1 電気四極子 … 原子核と電子から構成されている元素は固体中や水溶液中に入るとイオン化し、最も外側を回る電子をいくつか放出する。残りの電子は原子核に束縛されており、特に金属化合物を構成するような原子番号の大きな（電子を多く持った）元素の持つ電子は原子核の周りに球状の電子雲を形成する。その球状電子分布は、数学的に様々な形の電荷分布の重ね合わせとして理解でき、専門的に表現すると「イオンが持つ局在電子の異方的な静電ポテンシャルを多重極展開する」となる。対称性を保つために、その次数は $2^n$ で展開され、それぞれ電気双極子、電気四極子、電気八極子、電気十六極子などと呼ぶ。電気四極子とは、そのうち4つの極を持つ蝶の羽のような形をした二次（ $n=2, 2^n=4$ ）の成分で、電子の軌道自由度に由来する二階のテンソル量として表現される。
- \*2 磁気トロイダル双極子モーメント … スピンが図3のように渦状構造を持つ時、 $T \propto \sum_i r_i \times S_i$ （ $r_i$ は中心からの距離）で定義される多極子の一つである「磁気トロイダル双極子モーメント  $T$ 」が有限となり、その符号は時間反転及び空間反転操作で反転する。UNi<sub>4</sub>Bの渦状磁気構造はこの磁気トロイダル双極子モーメントが一様（強的）に揃った秩序状態であると考えることができ、そのような秩序下では対称性の破れを反映した電気磁気効果が発現することが理論的に予想されている。
- \*3 28 T 無冷媒ハイブリッド磁石 … 大口径超伝導マグネットの内側に大電力型水冷銅マグネットを配置し組み合わせた超強磁場を定常的に発生できるマグネット。世界で数カ所に設置されているハイブリッドマグネットは、その運転に膨大な液体ヘリウムを使用するため時間的制約が多く一定磁場の長時間保持が困難だが、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の有するハイブリッドマグネット（図4）は世界で唯一、液体寒剤を用いない無冷媒超伝導マグネットを使用しているため、長時間強磁場を保持しながら極低温実験が可能。

## 【参考図】

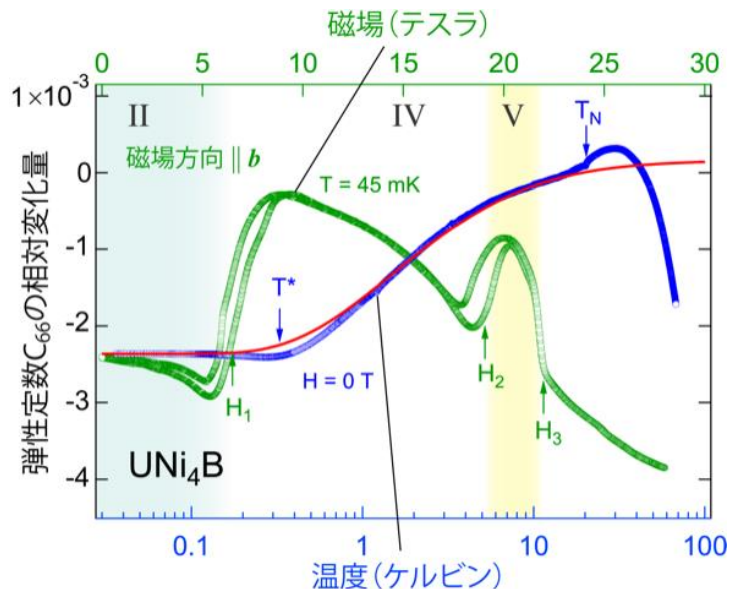


図1. UNi<sub>4</sub>Bの弾性定数  $C_{66}$ の零磁場における温度依存性（青：下軸）と45mKにおける磁場依存性（緑：上軸）を同時に表示している。赤い曲線は局在電子模型を用いた電気四極子感受率による解析結果。

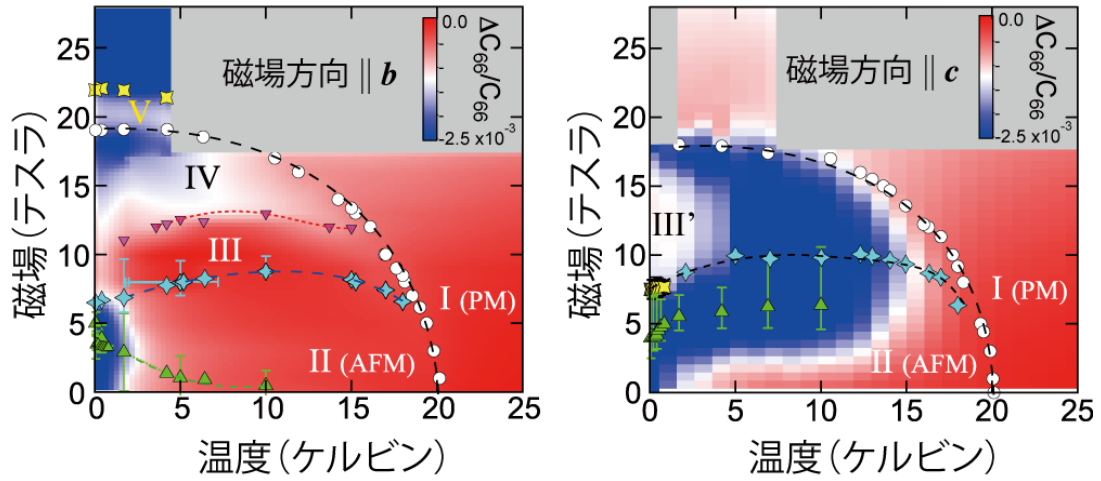


図 2. UNi<sub>4</sub>B の磁場—温度相図の比較：(左) 磁場方向が *b* 軸方向, (右) 磁場方向が *c* 軸方向。  
背景の「赤～白～青」のグラデーションは弾性定数の「大～中～小 (硬～軟)」の度合いを示す。

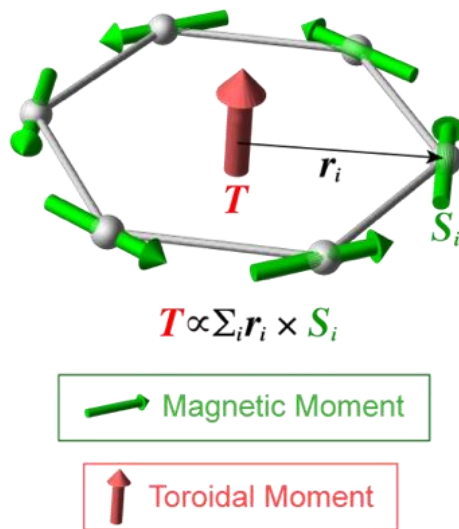


図 3. 磁気トロイダルモーメントの概念図。

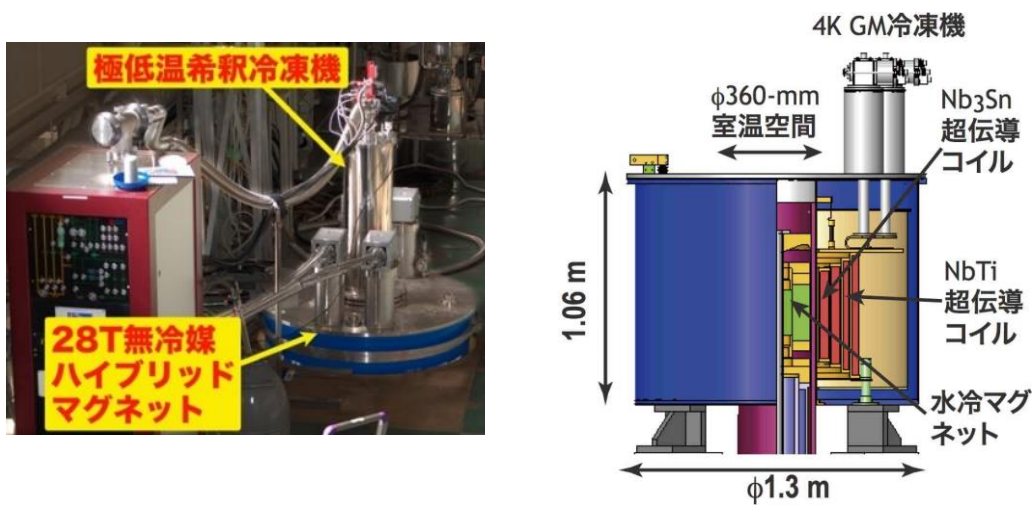


図 4. 本研究で用いた 28 T 無冷媒ハイブリッドマグネットと極低温希釈冷凍機。

参考 URL : <http://www.hflsm.imr.tohoku.ac.jp/> より。