



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Crystal Growth and Experimental Tests for New Magnetoelectric Effects in Metallic Antiferromagnets [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	齋藤, 開
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第13126号
Issue Date	2018-03-22
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/69413
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Hiraku_Saito_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（理 学） 氏 名 齋藤 開

学 位 論 文 題 名

Crystal Growth and Experimental Tests for New Magnetoelectric Effects in Metallic Antiferromagnets

（金属反強磁性体における新しい電気磁気効果の実験的検証及び結晶育成）

空間反転対称性の破れた系は近年の物性物理学の主要なテーマの一つである。空間反転対称性の欠如はとりもなおさず結晶内の結晶場ポテンシャルに勾配があることを意味する。これが異なるパリティを持つ波動関数間の混成を引き起こし、特異な物性として現れる。これまで空間反転対称性に関する研究は、結晶の点群対称性についてのみ議論されていた。近年、柳瀬らや速水らはイオンサイトで空間反転対称性のない系が、結晶全体が空間反転対称性を保っていたとしても、自発的に強的な秩序を引き起こし得ることを理論的に明らかにした。副格子依存した局所的な結晶場電場が同じく副格子依存したイオンサイト上の反強的な電荷や磁気密度分布の配列と結合は、複数のサイトに跨った拡張された多極子の強的な秩序としてみなすことができる、というものである。この拡張多極子は奇パリティのものも許され、その秩序した多極子に応じて、バンドの非対称な分裂、ゼロ磁場での Hall 効果、金属における電流による磁化誘起など、種々の新奇物性が予言されている。これらの理論はこれまで通常の反強磁性体とされていた物質が多極子研究の舞台になり得るといふ、パラダイムシフトを引き起こす可能性を秘めており、実験的な検証が急務となっている。我々はこれらの理論のうち、速水らが提案した金属系におけるトロイダル秩序に関する報告に注目し、候補物質である UNi_4B 、参照系と期待した CeRh_2Si_2 において電流下の磁化測定を行った。国際共同研究の一環でチェコ共和国のカレル大学、V. Sechovský 教授の研究室に滞在し、 UNi_4B と UAu_2Si_2 の単結晶育成を行った。

UNi_4B は 20.4K で反強磁性秩序を示す。ここでは U の歪んだ三角格子のうちハニカムを為す $2/3$ が秩序し、面内に寝た磁気モーメントが渦状の配列をつくることが中性子実験から提案されている。この磁気構造は $\mathbf{t} \propto \sum_i \mathbf{r}_i \times \mathbf{S}_i$ ($\mathbf{r}_i$:位置ベクトル、 $\mathbf{S}_i$:磁気モーメント、

$\vec{t}$ イオンサイト) で定義される $\vec{t}$ の強的な秩序と見做せる。理論からは $\vec{t}$ に垂直な電流による直交方向への磁化誘起、 $\vec{t}$ に平行な電流による $\vec{t}$ の増幅、または抑制が予測されている。実験では、磁気構造から期待される $\vec{t}$ に垂直、平行のどちらの電流においても、それに直交した方向での磁化誘起が観測された。電流、磁場、温度の依存性の詳細な測定と表面効果に関する検証を踏まえ、この現象が系に本質的で磁気秩序に伴って現れていると結論づけた。理論との不整合は、磁気構造、結晶構造に関する不確かさや結晶中の電流伝播方向の問題が影響している可能性が考えられ、正しく比較検証するためにはこれらの解決が必要である。しかしながら、本研究は金属系における電気磁気効果が存在することを明らかにした、という点で理論の本質的な部分の正しさを支持するものである。

CeRh_2Si_2 の電流下磁化測定は、磁気秩序を持ち且つ電流誘起磁化をもたない系を実験的に示すことで、 UNi_4B の実験に対する参照系とすることと実験の立場から電流誘起磁化の条件を演繹することを目的としている。 CeRh_2Si_2 は ThCr_2Si_2 型の正方晶 (対称性: $I4/mmm$, No. 139, D_{4h}^{17}) の結晶構造を持つ。この構造は Ce イオンサイトが空間反転対称性を持つ。本系は低温で 2 つの反強磁性秩序を持つ。 $T_{N1} = 36\text{K}$ では Ce の磁気モーメント c 軸を向き、伝播ベクトルは $\mathbf{q}_1 = (0.5, 0.5, 0)$ である。 $\mathbf{q}_1$ は Ce が反転中心となるため空間反転対称性を破らず、系のバルクの電気磁気効果は期待できない。一方、 $T_{N2} = 24\text{K}$ 以下では、加えて $\mathbf{q}_2 = (0.5, 0.5, 0.5)$ が現れる。磁気構造は、 $\mathbf{q}_1$, $\mathbf{q}_2$ のドメイン構造とふたつの結合した $4\text{-}\mathbf{q}$ 構造かで決着がついていない。しかし、 $\mathbf{q}_2$ が Ce イオンサイトの空間反転対称性を破るため、電気磁気効果は有限になり得る。本系の結晶、磁気構造に関する理解をもとにした予測に反し、実験では T_{N1} と T_{N2} の間で、且つ a 軸方向への電流印加でのみ、 c 軸方向への磁化の誘起が観測された。この振る舞いの原因は、結晶と磁気構造の対称性から Ce サイト由来とは考えられず、誘起磁化の大きさは表面 Ce によるものと期待するには大きい。可能性として、Ce サイトでの NMR 等の実験精度未満の歪みの存在、Rh サイトでの磁気密度分布の存在、結晶のモザイクや磁気ドメインに由来する界面の寄与が可能性として考えられる。起源の解明には電流下の微視的測定が不可欠である。この実験結果は理論で期待されているよりもさらに広範な金属反強磁性体において、電流誘起磁化が観測されうることを示している。

我々はさらに UNi_4B の結晶、磁気構造の単結晶中性子回折実験の再試を目的とした国際共同研究を実施した。 UNi_4B 及び UAu_2Si_2 の単結晶育成はその一環として行われたものである。中性子実験に耐える大きく結晶性の良い試料を得るため、 UNi_4B で従来行われていた Czochralski 引き上げ法ではなく、光学炉を用いた Floating Zone 法により結晶育成を行い、育成条件の最適化を行った。育成中の試料を静的な状態で保つことが結晶性の向上に不可欠であることを明らかにし、試料の移動速度 1 mm/h 及び試料の回転なしの条件で

UNi₄B、UAu₂Si₂ とともに良質で $\phi 4 \times 10$ mm 程度の巨大な単結晶試料の育成に成功した。UNi₄B については、U が不純物として持つ C と Ni が U と結合し、結晶内に不純物相として残ってしまうという問題が依然としてあるが、磁化測定からこれが非磁性であることは明らかにしている。これらの単結晶試料の育成成功は国際共同研究を大きく加速させる成果を導き、UNi₄B の中性子回折実験のみならず、UAu₂Si₂ の中性子回折実験、両物質のパルス磁場中での超音波による弾性率測定や磁化測定へと発展している。