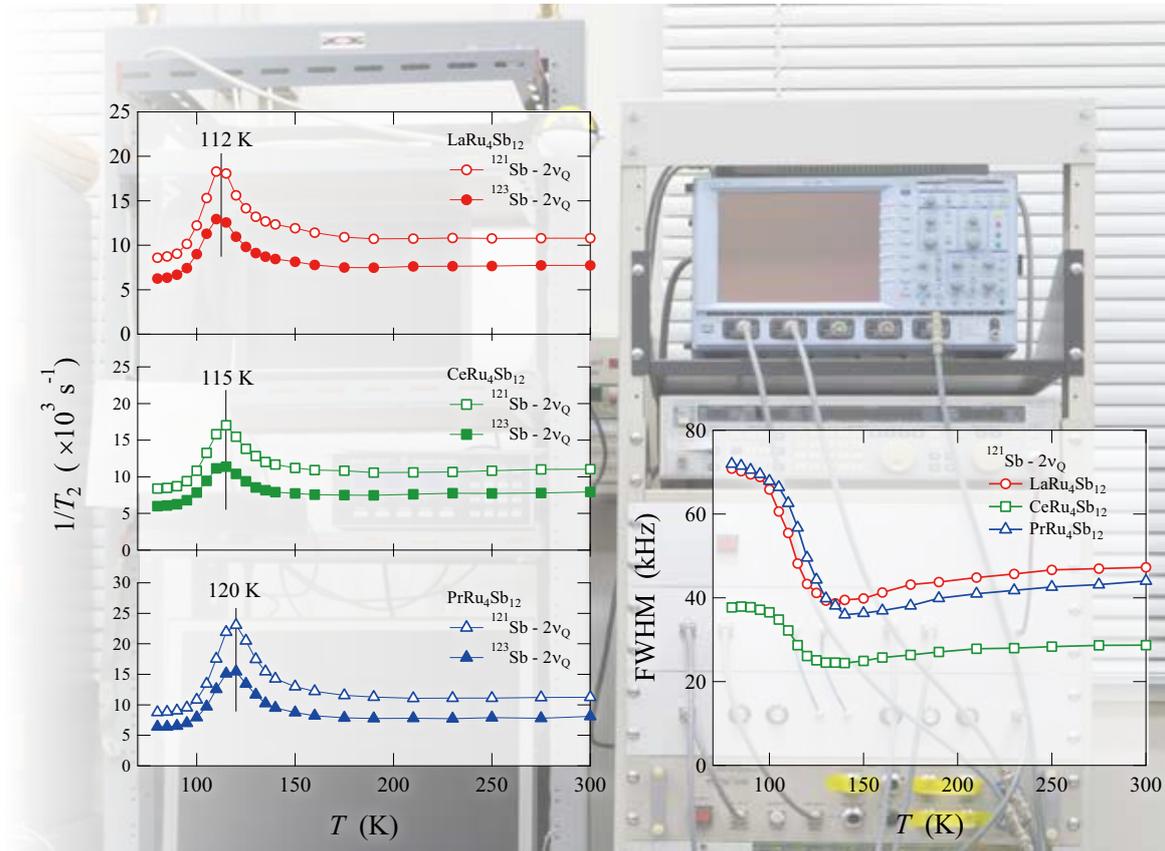


重い電子系の形成と秩序化

平成 20 年度～平成 24 年度 領域番号 2001

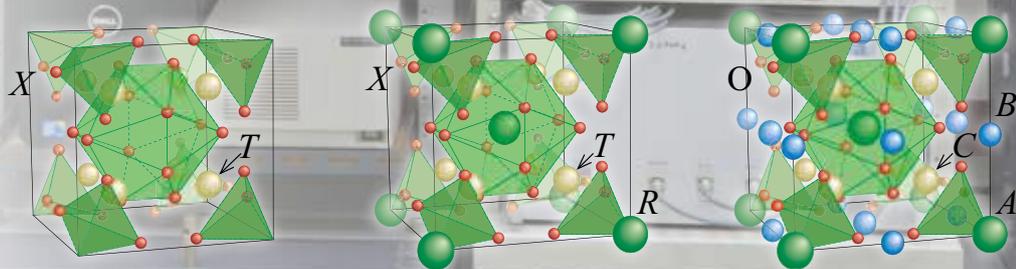


Vol. 5

NEWSLETTER

No.1

平成 24 年 9 月 発行



写真・図の説明 $1/T_2$ の温度依存性. すべての物質が 115K 付近でピークを示す (上左). $R\text{Ru}_4\text{Sb}_{12}$ ($R = \text{La, Ru, Pr}$) の NQR スペクトル線幅の温度依存性 (上右). Th 対称性を持つ結晶構造. 左からスクッテルダイト, 充填スクッテルダイト, A サイト秩序型ペロブスカイト構造 (下). 自作 NMR/NQR スペクトロメータ (背景). 詳細は本号「最近の研究から」セクションの「スクッテルダイト類似構造を持つ物質の NMR/NQR による研究」を参照.

重い電子系の形成と秩序化

評価委員からのメッセージ

Qua Vadis Heavy Fermion ?	秋光 純	1
Advances in the Innovative Research Area "Heavy Electrons"	Joe D. Thompson	3

トピックス

"隠れた秩序" に光を当てる	吉田 力矢	6
URu ₂ Si ₂ の隠れた秩序 - 最近の展開に触発された newcomer の視点 -	藤本 聡	9
Pr 内包カゴ状化合物で発現する多彩な相転移現象 超伝導、反強四極子秩序、構造相転移	鬼丸 孝博	13

最近の研究から

中性子散乱でさぐるウラン化合物の低温秩序相の一軸応力変化	横山 淳	16
スクッテルダイト類似構造を持つ物質の NMR/NQR による研究	與儀 護	18
4f 電子系の DMFT 電子構造計算 - DMFT 計算が LDA 計算と異なるフェルミ面を与える例	酒井 治	20
重い電子系における量子臨界点由来の新規超伝導相の核磁気共鳴法による研究	川崎 慎司	22
カゴ状化合物の局所フォノンと伝導電子の結合に対する超音波スペクトロスコピー	柳澤 達也	25

研究ノート

第一原理計算に基づく理論的アプローチの進展	池田 浩章	28
-----------------------	-------	----

コーヒーブレイク

Few Points	Jacques Flouquet	30
------------	------------------	----

海外便り

ゲルノーブルより	青木 大	33
----------	------	----

関連図書紹介

理論文献の分別利用ガイド	倉本 義夫	35
--------------	-------	----

国際会議報告

国際会議報告: ICM2012	小手川 恒	37
The fourth International Workshop on the Dual Nature of f-electrons 報告	関山 明	38

研究会報告

「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ - 超伝導、多極子の物理における最近の話題 -	榊原 俊郎	40
「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ - 重い電子系における格子・フォノンの役割 -	中西 良樹	43
	根本 祐一	
	吉澤 正人	

お知らせ

総括班会議について	堀田 貴嗣	48
領域情報	堀田 貴嗣	49
編集後記		50

Qua Vadis Heavy Fermion ?

秋光 純 青山学院大学大学院理工学研究科



筆者が、『上田「新学術領域研究」の船出を祝して』という文章を書いたのが昨日のような気もするが、もう来年3月で終了とのことである。歳月の速さに驚かざるを得ない。

さて、堀田さんから評価委員としてのコメントを頼まれ、評題を考えているうちにあることを思い出した。それは6月30日(土)、物性研OBと現役の方との話し合いを持つ機会があったことである。残念ながら、議論はかみ合ったとは言えなかったと思うが、終わった後に所員のある方からe-mailで「要するに『Qua Vadis^{*注}物性研?』ということですね」というコメントを頂いた。なるほど、うまいことを言われるなど思い、この題を拝借することにした。

我々がある分野を選択する時、(特に若い人は)その選択は偶然に支配されることが多いと思うが、選んだ以上はその分野の発展性、あるいは残された大きな問題は何かということをもつていつも考えてみる必要がある。まさに「Qua Vadis Heavy Fermion ?」ということであろうか。

それでは「重い電子系の物理の最近の発展」とは何であろうか。

それについては最近「重い電子系の物理の発展」と題する企画が石田憲二氏と堀田貴嗣氏によって雑誌「固体物理」に提案され、その企画が進行中である。これは取りも直さず上田新学術領域のある意味での集大成といっても良からう。

その目次をあげると(「はしがき」や「総括」を除く)

- I. 重い電子と量子臨界現象
- II. 物質開発と新現象

III. 新奇超伝導

IV. 多極子の物理の発展

の4項目に分かれている。これらはまだ原稿を読んではないので、詳しく述べることは出来ないが、そのkey wordをあげると

- 1) Doniachの相図と量子臨界性
- 2) 新物質(人工格子を含む)の開発とそれに伴う新現象、特に新奇超伝導
- 3) 多極子秩序、特にURu₂Si₂の「hidden order」の起源

等があげられる。

1)については筆者はある思い出がある。それは前記の文章の中で「例えば重い電子系の人達の頭から離れない図に「Doniachの相図」というのがある。この相図はhand-wavingな、概念的な相図であり・・・云々」ということを書いたが、これをある意味では定量的な(より深化した)相図に仕上げる必要がある。それについては最近JPSJに2つの論文が発表され、いずれもEditor's Choiceに選ばれている。

1つは東北大学の青木晴善氏を中心としたグループの研究でJPSJ **81** (2012) No.5に掲載されている。他は分子研の木村真一氏を中心としたグループの研究でJPSJ **81** (2012) No.4に掲載されている。

これらはいずれもDoniach相図の、より定量化を目指した研究である。前者はLaRu₂Si₂のLaを2%Ceに置き換えた合金において、近藤温度よりも十分高い温度領域で局在していたf電子が温度の降下と共に近藤シングレットを作ることによって次第に遍歴的となり、十分低い温度では遍歴する重い電子となっていることをド・ハース・ファン・アルフェ

*注) 余計なことかも知れないがこの言葉の意味を御存知ない方も多と思われるので若干解説させていただく。

時は皇帝ネロの時代、場所はローマでの出来事である。使徒の第一弟子ペテロがネロの压制下でローマを逃れ、弟子と2人アッピア街道を南下していた時である。突然光の中からキリストが現れ驚いたペテロが発した言葉が「Qua Vadis Domine? (主よ何処に行き給うや?)」。その時答えたキリストの言葉が「もし汝が私の民を見捨てるなら私はもう一度十字架に掛かる」という言葉であった。それを聞いたペテロは弟子に一言「ローマへ」と言ってもと来た道を引き返した。ローマへ帰ったペテロは磔で死ぬが主と同じでは恐れ多いと言って「逆さ磔」になって殉教した。(このことは福音書の「使徒行傳」(名訳として名高い塚本虎二訳(岩波文庫)では「使徒のはたらき」となっている)に書かれているがこれを基にして書かれた小説がシェンキビッチの「クオヴァデイズ」である。)

ン効果を用いて実験的に明らかにしたことである。これは今更という気がしないでもないが、誰もが信じていた Doniach の相図に定量的な基礎を与えた点で注目に値する。又後者は、Doniach の相図で量子臨界点を越えて、重い電子を形成する $c-f$ 混成が、反強磁性相でも残っているかどうか理論的な論争の一つであったが、 $CeIn_3$ を高圧下で調べた結果、磁性を持った状態で $c-f$ 混成により既に重い電子が存在することを見出した。これらは量子臨界点で何が起きているかを実験的に示した面白い仕事であるが、将来より一歩進んでこの近傍でなぜ超伝導などの面白いことが起きるかという点まで実験的に踏み込んでもらいたいものである。

2) については上田新学術領域だけのテーマではないが、カゴ状物質に閉じ込められた原子のインシュタインモード（いわゆるラットリング）、多極子秩序の果たす役割、最近京大の松田グループによって始められた人工 2 次元近藤格子における量子臨界制御、中辻氏らによる Yb 系の量子臨界現象、などの新しい物理が新物質作成により開かれつつある。超伝導に関しても空間反転対称性の破れに伴う超伝導の対称性の問題、FFLO 相や磁性と超伝導の本当の意味での共存状態の明確化など今後の発展が期待される。特に相容れないと思われていた強磁性と

超伝導の共存は筆者にとっても大きな驚きであった。

3) については、最近本グループを中心として大きな進展（特に理論的に）をみた URu_2Si_2 の hidden order についての最近の発展である。この文章を読まれる多くの読者が既にご存知のように、これは 20 年以上も解けない大きな“謎”である。これに対して最近、矢継ぎばやに、多極子を基礎にした新しいモデル、Harima-model, Thalmeir-Takimoto model, Kusunose-Harima model など上田新学術領域メンバーを中心として多くのモデルが提案され、つい最近では京大の池田氏を中心として 32 極子 model が提案された。遂にそこまで来たかと苦笑する人も多いと思われるがこれらは数多くの実験事実と理論グループの格闘の結果であり、単に多極子の数を増やしていったというものではない。これらの model がなんとか日本で検証されることを祈ってやまない。これら多くの成果は、日本特に上田新学術のメンバーが中心となって達成された成果であり、それだけでも本領域は初期の目的を十分達したといっても過言ではない。勿論本領域が終了しても研究は続いていくであろうが、この熱気をなんとか次の若手にバトンタッチしてってもらいたいものである。

以上、“上田「新学術領域研究」の終了を祝して”この文章をとじたい。

Advances in the Innovative Research Area “Heavy Electrons”

Joe D. Thompson Los Alamos National Laboratory



The MEXT project ‘Emergence of Heavy Electrons and Their Ordering’ has had since its start in 2008 the overarching goal of establishing new concepts of superconductivity and magnetism, understanding the electron-rattling state, and exploring exotic superconductivity and novel multipole ordering. To achieve its goals, this challenging program of discovery science has been organized around four themes: Fermiology, rattling, ordering and theory. By any measure, this project has been exceptionally successful, not only in achieving goals of each of its themes but more broadly by opening exciting new frontiers of research to the international materials physics community. Each member of this project should be proud of the numerous accomplishments and of the enduring impact they will have in shaping the course of future research on heavy electrons and their ordering. The discovery of new heavy-electron materials, resolving new and long-standing problems, and the development of new theory and new techniques are among the many achievements of this project. In a short note, it is impractical to summarize adequately even a subset of the most important of those accomplishments that have been reported in a remarkable 900+ papers (Fig. 1), but just a few of many possible highlights will be mentioned.

The observation of heavy-electron superconductivity in $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ is a significant discovery that embodies several goals of the project. This cage-structure compound forms in the cubic $\text{CeCr}_2\text{Al}_{20}$ structure-type in which the Pr-ion is enclosed in a highly symmetric cage of 16 Zn atoms. Because of this structure, the effect of crystalline electric fields is weak, and the ground state of Pr $4f^2$ is a non-Kramers Γ_3 doublet with quadrupole degrees-of-freedom. And, indeed, superconductivity at 0.05 K coexists with quadrupole order at 0.11 K. Not only is this the first example of superconductivity in a Γ_3 doublet, experiment and theory suggest that (antiferro)

quadrupole fluctuations play a crucial role in forming Cooper pairs. This discovery, combined with evidence for a quadrupolar Kondo effect in isostructural $\text{PrIr}_2\text{Al}_{20}$, are pioneering developments in the study of exotic superconductivity and multipole ordering. In addition to the magnetically robust heavy-electron state in cage-structure materials like these Pr-based 1-2-20 compounds, important roles of anharmonic oscillation, *i.e.*, rattling, have been investigated in detail both theoretically and experimentally. This area of research poses a challenge to find a new heavy-electron mechanism due to an electron-rattling interaction. Besides the possibility of a new mechanism of superconductivity, for example, in the family of β -pyrochlore oxides, and a new concept of the Kondo effect due to a vibrating magnetic ion, this rattling research holds promise for the development of new functional materials with a high thermoelectric power.

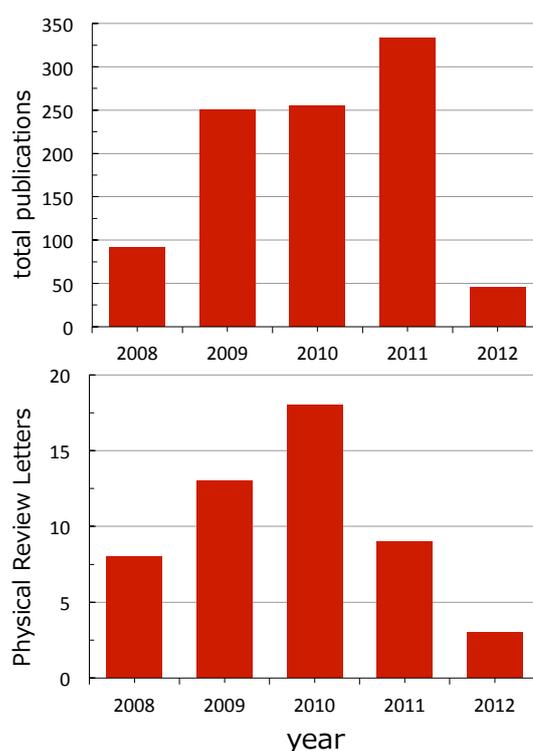


Fig. 1. Partial summary of publications from this project.

Before this project started, there was substantial experimental evidence, almost exclusively in Ce-based compounds, for a dome of unconventional superconductivity developing as a magnetic transition was tuned toward zero temperature. These experiments encouraged theorists to develop models of magnetic quantum criticality and for its possible role in producing superconductivity. A new path of inquiry, however, emerging from research in this project comes from the discovery of superconductivity in β -YbAlB₄ ($T_c=0.08$ K), which is exciting both because it is the first Yb-based heavy-electron superconductor and also because its superconductivity is ‘born’ out of an unusual quantum-critical normal state, without the need for tuning. Initial Shubnikov-deHaas studies revealed the Fermi-surface topology and direct evidence for $4f$ -electron participation in it; whereas, core-level spectroscopy quantified that participation by showing the $4f$ -configuration was strongly mixed valent (Yb^{+2.75}). Quantum criticality in such a strongly mixed valence material is highly unusual, but the transport and thermodynamic properties of β -YbAlB₄ are consistent with theoretical predictions, developed as part of this project, that quantum-valence criticality could be the origin of unconventional critical phenomena. Though this theory is very promising and accounts well for properties of this as well as other quantum-critical Yb- and Ce-based heavy-electron materials, alternative interpretations have not been ruled out and will continue to stimulate lively debate and study.

Another significant breakthrough is the successful layer-by-layer synthesis of artificial superlattices of Ce-based heavy-electron materials by molecular beam epitaxy. This advance provides a new control parameter—dimensionality—for exploring quantum criticality and unconventional superconductivity. Already, this unique capability has been used to show that the three-dimensional antiferromagnet CeIn₃ becomes quantum critical in two-dimensions and that heavy-electron superconductivity in CeCoIn₅ persists in films as thin as three and perhaps even one unit-cell thick. Preparation of artificial superlattices of heavy-electron materials has been a dream of several groups around the world and now has been realized.

Long-standing problems of the superconducting gap symmetry of UPt₃, the nature of the ‘hidden order’ phase in URu₂Si₂, the consequences of a lack of structural inversion symmetry on superconductivity, and superconductivity in ferromagnetic heavy-electron systems also have been addressed. One nearly 30-year old problem has been resolved by demonstrating clearly that the gap symmetry of UPt₃ is E_{1u} , and major progress has been made on other problems. As shown theoretically and experimentally, higher order multipole order almost certainly underlies the ‘hidden order’ in URu₂Si₂, but the rank of the relevant multipole remains controversial. Superconductivity in non-centrosymmetric compounds is a fascinating problem, with heavy-electron materials such as CeRhSi₃ and CeIrSi₃ being prime examples of the consequences of a Cooper-pair wavefunction with a mixture of spin-singlet and spin-triplet components. Significant progress has been made in developing new theoretical frameworks for understanding the origin and consequences of the complex wavefunctions but also in revealing experimentally the relationship or its absence to nearby orders and quantum criticality. Though there are only a few examples of ferromagnetic heavy-electron superconductors, these systems pose a special challenge to materials synthesis, characterization and theory. One question of particular interest is whether long-range ferromagnetic order coexists microscopically with superconductivity. This question has been answered from NQR studies on single crystals of UCoGe that unambiguously reveal the microscopic coexistence of both orders which arise from the same $5f$ -electrons, but interestingly the superconductivity is intrinsically inhomogeneous, possibly due to a self-induced vortices.

With the impressive suite of state-of-the-art theory, experiment and crystal growth developed to understand the emergence of heavy electrons and their ordering, it has been natural to apply these capabilities to explore and understand high-temperature superconductivity in iron-pnictides recently discovered in Japan. Like heavy-electron systems, superconductivity in the pnictides also often emerges in proximity to a broken symmetry. A key insight that has come from band-structure calculations as well as photoemission and dHvA measurements,

among many others, is that the multi-orbital character of the iron-pnictides is essential for a description of their physics. An insightful theoretical suggestion, which is based on this multi-orbital nature, is that quadrupolar fluctuations provide a unified description of both the near-by broken structural and spin symmetries and the emergence of superconductivity. This picture additionally predicts a multi-orbital quantum-critical point that favors an s^{++} gap symmetry, and it will be very interesting for experimentalists to distinguish the manifestations of this novel criticality from expectations of its more conventional forms.

Of course, the remarkable progress that has been made in exposing and understanding heavy electrons and their ordering would not have been possible without new

theoretical and experimental tools. Of several examples from experiment that could be cited, the development of MBE growth of heavy-electron heterostructures and of photoemission spectroscopy that now can probe electronic structure on the scale of the heavy-electron state are particularly noteworthy.

The exceptional accomplishments of this project, several of which were presented at the highly successful International Conference on Heavy Fermions 2010, have come from the dedication of all its participants, from students through principal investigators. Because of their creativity and hard work, the study of heavy electrons and their ordering is ensured to remain a vibrant area of discovery science for years to come.

“隠れた秩序”に光を当てる

吉田 力矢 東京大学物性研究所



はじめに

本新学術領域が対象とするトピックの一つに、 URu_2Si_2 における相転移の問題がある。 URu_2Si_2 は $T_{\text{HO}} \sim 17.5$ K において比熱に大きな跳びを持つ二次相転移を起こし、様々なマクロ物性に異常を示す¹⁻³⁾。この相転移の正体は、物質の発見から四半世紀以上たった現在でも謎のままであり、「隠れた秩序」として知られている。当初、中性子散乱により磁気モーメントが観測されたが⁴⁾、比熱の跳びで示されるエントロピーの変化を説明できず、大きな議論を呼んだ。今日では、このモーメントは外因性のものである事が支持され⁵⁾、エキゾチックな秩序の存在が示唆されている。

隠れた秩序を理解する上で、「相転移に伴い電子状態がどのように変化するだろうか？」という疑問が出てくる。実際、物質の発見当初からフェルミ準位におけるギャップ形成が示唆されてきた^{3,6)}。筆者は博士論文のテーマとして、近年大きく発展を遂げた角度分解光電子分光法 (ARPES) により、 URu_2Si_2 の隠れた秩序相転移に伴う電子状態の変化を“直接観測”する事に取り組んだ。本稿では、レーザーを用いた超高分解能 ARPES による成果を中心に^{7,8)}、関連する話題も含めて紹介する。

レーザーを用いた超高分解能 ARPES 実験

ARPES は、運動量に分解した電子状態（正確には、一粒子励起のスペクトル関数）を直接観測できる手法である。当初は銅酸化物高温超伝導体における超伝導ギャップ構造の直接観測を目標に発展を遂げた。ここ 10 年の間にも更なる高分解能化・低温化の努力がなされ、より小さいエネルギースケールの議論が可能になってきた⁹⁾。

レーザーを用いた光電子分光は 2000 年代前半に物性研・辛研究室で開発が行われ、当時新しく開発された非線形結晶 ($\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$: KBBF) と目的に適した高繰り返し擬似連続レーザーの登場により、一気に進歩したそうである。レーザー光電子分光装置

の開発経緯や詳しい解説は、開発者らによるレビューが詳しい^{10,11)}。

URu_2Si_2 の隠れた秩序において予想される電子状態の変化は $k_B T_{\text{HO}} \sim$ 数 meV と非常に小さく、ARPES による直接観測は長らく容易ではなかったと想像される。レーザー光を用いることで 1 meV を切るエネルギー分解能が達成されており、我々はレーザーによる超高分解能測定を URu_2Si_2 に対して行った。

隠れた秩序と電子状態の変化

図 1(a)-(g) に面内 [100] 方向に 7-25 K の範囲で測定した光電子の強度マップを示す。特に注目すべきはフェルミ準位から結合エネルギー $E_B \sim 10$ meV までの範囲で、 T_{HO} より下の温度 (7-15 K) では幅の狭い準粒子バンドがはっきりと観測されている。この準粒子バンドは T_{HO} より上の温度 (18-25 K) では観測されていない。EDC (Energy-Distribution Curve: 二次元データ上で光電子強度とエネルギーの関係を取ったスペクトル) を解析すると、準粒子バンドの強度が T_{HO} 以下でのみ現れ、温度降下に伴いその強度を増やしながらか高結合エネルギー側にシフトする様

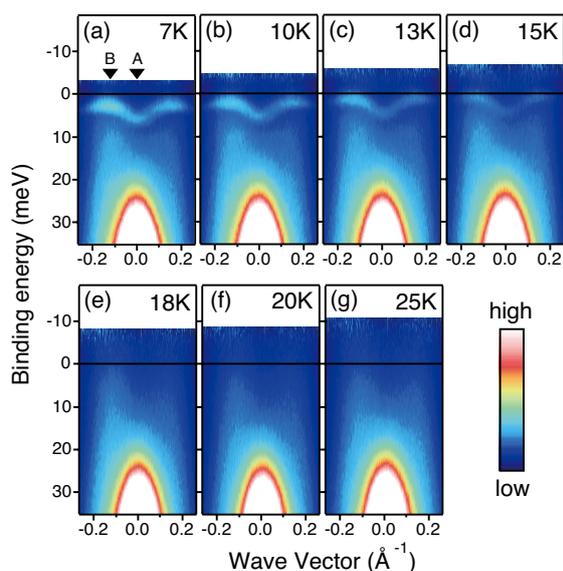


図 1 (a)-(g) [100] 方向において 7-25 K で測定された URu_2Si_2 における光電子の強度マップ(波数及びエネルギー依存性)。強度はフェルミ関数に分解能を畳み込んだもので規格化されている。

子も見られている。[110]方向においても同様の結果が得られ、重い準粒子バンドは転移温度以下でのみ観測されることが分かった。

URu₂Si₂で観測された重いバンドと隠れた秩序の関係について更なる知見を得るために、我々はU(Ru_{1-x}Rh_x)₂Si₂ ($x = 0.03$)という混晶試料の測定も行った。RuをRhで置換させた試料では隠れた秩序相が抑制され、反強磁性相が誘起されることが知られている¹²⁾。特に $x = 0.03$ の試料では、比熱の跳びが殆ど見られていない¹³⁾。この試料においてARPESを行うと、測定された強度マップは $x = 0$ 試料における常磁性相のものと良く似ており、7 Kにおいても重いバンドは観測されなかった。

以上の結果から、URu₂Si₂においてフェルミ準位近傍に観測された幅の狭い準粒子バンドは、隠れた秩序に特有の電子状態である事が示唆される。 T_{HO} 以下でのみ新しいバンドが観測される事の説明として、転移温度以下で電子状態の周期性が変化し、バンドの折り返しが起こっている事が考えられる。これは隠れた秩序相転移が格子の並進対称性を破る事を意味している。

スペクトル関数における微細構造

URu₂Si₂におけるARPESスペクトルをより詳細に測定すると、前項で述べた準粒子バンドだけではなく、二種類の微細構造が存在する事が分かってきた。図2に高いS/N比で測定されたARPESスペクトルを示す。図2(a)に示す[110]方向の角度分解スペクトルでは、結合エネルギー E_B が ~ 3 -6 meVと ~ 11 meVの所にピークが存在する。前者は先に述べた準粒子バンドであるが、11 meVの構造は新たに確認されたものである。この11 meVにおける構造は波数依存性を持たない。今後、この分散を持たない構造を“サテライト”と呼ぶことにする。また図2(a)に示す拡大図を見ると、 $k_{||} = 0.10 \text{ \AA}^{-1}$ では単一のピークを持っていたスペクトルが、 $k_{||} = 0 \text{ \AA}^{-1}$ により近い領域では分裂する様子が見られている。この分裂構造を以降“スプリット”と呼ぶ。同様の構造は[100]方向においても観測されている。

これを図2(b)-(b')で示した8 Kにおけるスペクトルと比較すると、スプリットの仕方は温度に寄って変化することが分かる(例えば、 $k_{||} = 0 \text{ \AA}^{-1}$ におけるスペクトル形状は変化している)。この変化は、

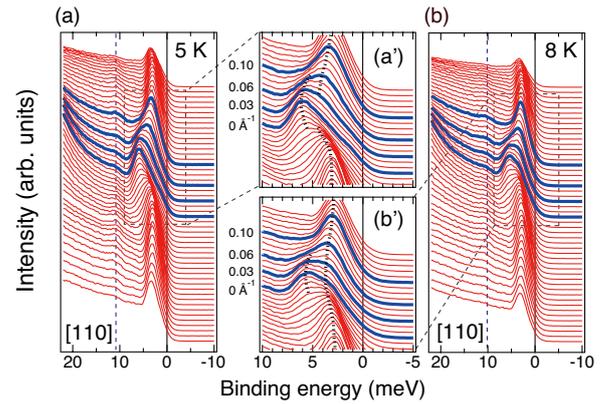


図2 [110]方向に対する高S/N角度分解スペクトル。

(a) 5 Kにおけるスペクトル。(a') 5 Kのデータにおいて、重いバンド近傍を拡大した図。(b) 8 Kにおけるスペクトル。(b') 8 Kのデータにおいて、重いバンド近傍を拡大した図。パネル(a)と(a')(b')の間の数値は $k_{||}$ を表す。

単に2つのバンドが存在する事では説明できず、混成の様なメカニズムでも理解できない。また偏光依存性測定では、スペクトル形状は偏光によらず変化しないことも明らかとなった。これらの結果はスプリットが単一の電子構造に由来する事を支持する。

図3(a)に[100]方向に対する角度積分スペクトルの温度依存性を示す。このデータでは、サテライトが温度降下に伴い、強度を増やしながら高結合エネルギー側へシフトする様子が見られている。図3(b)に示す二階微分スペクトルからメインピーク(準粒子バンド)とサテライトピークの位置を見積もり、温度に対してプロットしたのが図3(c)である。ピーク位置の差分を取ると、メインピークとサテライトピークのエネルギー間隔は温度に寄らず一定であり、両者に相関がある事が分かった。

以上で示した微細構造の振る舞いは、通常のバンドや混成の存在では説明が難しく、隠れた秩序相において存在する複雑な多体効果が起源であると予想される。スプリットに関しては、銅酸化物高温超伝導などで議論されている“キンク構造”に類似しており、隠れた秩序相における何らかの集団励起モードと電子の結合が起源となっている可能性がある。サテライトに関しては、(1)分散を持たない、(2)温度降下に伴い高結合エネルギー側にシフトする、といった特徴が特異であり、同様の構造が過去に観測された例は見当たらない。分散を持たないことから、隠れた秩序相において何らかの局在的電子状態が形成されていると考えられるが、単純な描像では温度変化を説明する事が難しい。今後理論的な解析も含めたアプローチが必要であると思われる。

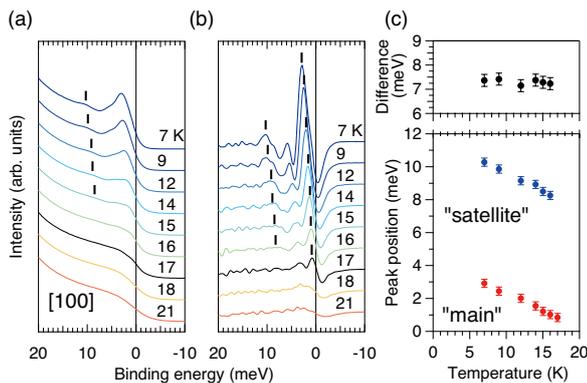


図3 (a) [100]方向に対する角度積分スペクトルの温度依存性. (b) (a)で示したスペクトルの二階微分. 強度には-1をかけてある. (c) メイン及びサテライトのピーク位置(下のパネル)と, それらの差分(上のパネル).

運命の出会い

「運命の出会い」は, いつ訪れるか分からない.

私が URu_2Si_2 について知ったのは, 修士論文を書き上げた直後の事である. その当時(2009年の春)に参加したアメリカ物理学会では URu_2Si_2 に関する特別シンポジウムが組まれていた. 興味本位で参加したシンポジウムであったが・・・その場ですっかり URu_2Si_2 の隠れた秩序に魅了されてしまい, ついには測定することになってしまった.

幸い試料を提供していただける事になったが, 放射性物質の扱いは自身も指導教官も初めてであり, 試料の劈開作業には特に気を使った. ARPESの実験では, 測定前に清浄表面を出す必要がある. 通常は, 超高真空用のエポキシ系接着剤で棒を試料に固定し, チェンバー内でその棒を押して試料を劈開する. 真空中で動かせるものはウォールスティックに取り付けられたヤスリくらいで, その限られた状況での一振りに全精力を込めるのである(最近まで気がつかなかったが・・・この原始的なやり方が, 他の実験家にとって新鮮に映る事もあるらしい). 放射性試料では, 劈開後の破片が他試料の破片と混ざったり, チェンバー内で行方不明になったりしてはいけないので, 試料の割り方にも気がついた. 初めて URu_2Si_2 の実験をした時には, 送って頂いた唯一の試料がうまく劈開されず, しかも試料のほぼ全体が真空チェンバー中に落ちてしまい, マシンタイムが一日で終わってしまう経験もした.

実験上の問題をクリアし, 初めて URu_2Si_2 の ARPES スペクトルを観測した時はとても感動した. それは, はっきりとスペクトルが見えただけでなく, 自身が初めて角度分解測定に成功した瞬間だっ

た事も大きく関係している(実は修士の時, 他の物質で角度分解測定にトライしていたが, それらには悉く失敗していた). こうして URu_2Si_2 は, 自身にとって記念すべきサンプルとなった.

おわりに

本稿の結果は, 超高分解能 ARPES が URu_2Si_2 の隠れた秩序を理解する上で有用であることを示した. しかしながら, 今回の結果は単一の励起エネルギーのみを使ったものであり, ブリルアンゾーンの一部しか測定できていない. 運動量空間の様々な点で測定するには, 励起光のエネルギーを連続的に変える必要がある. このような測定には放射光の利用が適しており, 三次元的な超高分解能 ARPES 測定に興味を持たれる.

本稿で紹介したレーザー ARPES の結果は中村祥明, 福井仁紀, 芳賀芳範, 山本悦嗣, 大貫惇睦, 大川万里生, Walid Malaeb, 辛埴, 平井正明, 村岡祐治, 横谷尚睦各氏との共同研究によるものです. 共同研究者の方々, そして議論やアドバイス等をして下さった方々に, この場を借りてお礼を申し上げます.

参考文献

- 1) T. T. M. Palstra *et al.*: Phys. Rev. Lett. **55**, (1985) 2727.
- 2) W. Schlitz *et al.*: Z. Phys. B: Condens. Matter **62** (1986) 171.
- 3) M. B. Maple *et al.*: Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 185.
- 4) C. Broholm *et al.*: Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 1467.
- 5) H. Amitsuka *et al.*: J. Magn. Magn. Mater. **310** (2007) 214.
- 6) J. Schoenes *et al.*: Phys. Rev. B **35** (1987) 5375.
- 7) R. Yoshida *et al.*: Phys. Rev. B **82** (2010) 205108.
- 8) R. Yoshida *et al.*: Phys. Rev. B **85** (2012) 241102(R).
- 9) S. Hüfner, ed., , Lecture Notes in Physics **715**, -*Very High Resolution Photoelectron Spectroscopy*- (Springer, Berlin Heidelberg, 2007).
- 10) 木須孝幸他: 表面科学 **26** (2005) 716.
- 11) T. Kiss *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **79** (2008) 023106.
- 12) M. Yokoyama *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 545.
- 13) S.-H. Baek *et al.*: Phys. Rev. B **81** (2010) 132404.

URu₂Si₂ の隠れた秩序 – 最近の展開に触発された newcomer の視点 –

藤本 聡 京都大学理学研究科



アクチノイド化合物 URu₂Si₂ は温度 17.5 K で明らかな熱力学的相転移の徴を示すが、その秩序変数は発見以来四半世紀以上経った今日でも「隠れた秩序」と呼ばれてその正体が明らかになっていない¹⁾。これまでに多くの実験・理論研究の積み重ねがあり、このニュースレターの読者の方の中には、この問題について私よりもはるかに詳しい専門家の方が多くおられるであろう。私などはごく数年前に大学からの帰宅途中にばったり出会った M 氏（ちなみに同じ宿舎の同じ棟に住んでいるのでばったりでもないのだが）から最近の実験の話の聞き、これに触発されて首を突っ込みはじめた新参者である。これまでの研究を俯瞰するなど到底私の力の及ぶところではない。しかし、近年の新たな研究の展開が、従来と違う視点の重要性を示唆しているように（あくまで素人なりに）感じられる。本稿では自分の理論の紹介に重きをおくのではなく、最近の実験・理論の展開を考慮して newcomer なりに問題点を整理し、現状と展望について考えることを目的としたい。といっても偏っていると叱責されそうな箇所もあるかと思う。議論を活性化させるための一つの提起であると思って読んでいただくと幸甚である。

遍歴か局在か？磁気異方性の議論とからめて

隠れた秩序の主役である U の 5f-電子が転移温度以上で空間的に局在しているのか、あるいは遍歴してフェルミ面を形成しているのかは、研究の出発点として押さえておかねばならない基本事項である。しかし、この点こそ研究者の間で一番意見の分かれるところでもある。局在描像では、結晶場分裂した局在 f-電子状態が伝導 d-電子と混成した近藤格子系を出発点に考える。この場合、特に磁気異方性の議論から 5f² 電子状態が有力とされている。他方、遍歴描像では、5f-電子の波動関数は空間的拡がり比較的大きく、d-電子と f-電子間の混成だけでなく、5f-電子間の強い混成によって通常のバンドが形成されていると考える。この場合には通常

の意味での f-電子レベルの結晶場分裂というのは意味がない。また、それぞれの描像の範疇でも、研究者によって「隠れた秩序」にいたるシナリオは様々である。たとえば、前者の局在描像の場合、最も conventional（というのは私見であるが）で以前からよく議論されているアイデアは、「隠れた秩序」を局在 f-電子の軌道（多重極）秩序と考えるものである²⁾。この場合（少なくとも普通に考えれば）、秩序化した f-電子は低温まで局在したままになり、f² 電子状態の近藤効果という厄介な問題も避けて通れる。また、他方、高温側では局在しているが、低温側で d-f 混成して遍歴化するというシナリオも、主にアメリカの研究者によって提案されているが、f² 電子状態の近藤効果は、それを格子にした場合何が起こるかについて未だ確立した理論はない。

さて、先にふれたように局在 f-電子描像の根拠として挙げられる有力なものとして、強いイジング的磁気異方性の存在がある。これが局在した 5f² 電子状態を仮定するとよく再現できるとされる。しかし、磁気異方性の大きさについては何の物理量で見るとよいかによって実験でかなりのばらつきがある。最も大きい 30 倍という異方性の根拠となっているのは、ド・ハース・ファン・アルフェン (dHvA) 振動の磁場方向依存性の実験結果³⁾に基づく議論である⁴⁾。これについては多少誤解があるように思われるので、ここで少し考えたい。一般に dHvA 振動の振幅には $\cos[\pi g m^*/(2m_0)]$ という因子がある。ここで g は g-因子、 m^*/m_0 は電子の有効質量の増強因子。dHvA 実験によると磁場を ab 面内方向から c 軸方向に傾けていったとき dHvA 振動が零点を 16 回切ることから、 $g m^*/m_0$ が $2 \times 16 + 1 = 33$ だけ変化していることがわかる。他方、有効質量の磁場方向依存性はほとんどなく $m^*/m_0 \sim 12$ くらいであることが別の測定で確認されている。もし c-軸方向の g-因子をイジング極限での $g=2.6$ にとると、磁気異方性は 30 倍程度ということになる⁴⁾。しかし、この議論には落とし穴がある。まず、注意したい点は先述

の dHvA 振動の観測結果が意味しているのは、磁場が c 軸方向の場合と ab 面内の場合とで gm^*/m_0 という量の「差」が 33 であるということである。つまり、ab 面内での g- 因子の大きさ次第で c 軸方向の g- 因子との「比」はいくらでも変わり得る。 m^*/m_0 はおよそ 10 程度なので、たとえばもし仮に ab 面内の g- 因子を 1 程度にとると、c- 軸方向の磁気異方性はせいぜい 4 倍程度ということになる。また、そもそも（言うまでもないが）dHvA 振動に現れる g- 因子はフェルミ面を形成している遍歴電子の g- 因子であり、これと局在 f- 電子描像をどう結びつけるのかは定かでない。さらに g- 因子は電子相関の繰り込みの影響を強く受けることも無視できない。それゆえ上記の議論で c- 軸方向の g- 因子の値を見積もる際、1 体近似の結果をそのまま適用できない。また、通常のフェルミ液体論で考えると m^*/m_0 と g- 因子の電子相関効果による増強は異なる。後者はスピン揺らぎの影響をもろに受けるので、 m^*/m_0 よりも磁場方向依存性が強いと期待される。以上のことをまとめると文献 4) 等で主張されている 30 倍にも及ぶイジング異方性はかなりの過大評価であり、現実の異方性はそれよりはるかに小さいと考えられる。他方、磁化測定では 10 倍程度の異方性（ただし転移温度近くでは 7 倍程度まで減少している）が観測されている¹⁾。現時点では f- 電子がフェルミ面を形成していることを出発点にして、これだけの異方性を定量的に再現した計算例はない。ただ、電気抵抗の温度依存性が示すピーク位置 ~60 K が有効的な f- 電子のバンド幅のスケールを与えているとすると、それよりはるかに高い温度 ~300 K で発達している磁気異方性が遍歴モデルで再現できなくても、遍歴シナリオを否定する強い根拠にはならない。また、最近の ARPES 実験によると、「隠れた秩序」の転移温度より少し高温側の 20 K で遍歴 f- 電子を仮定したバンド計算の結果とよく整合したバンド構造が

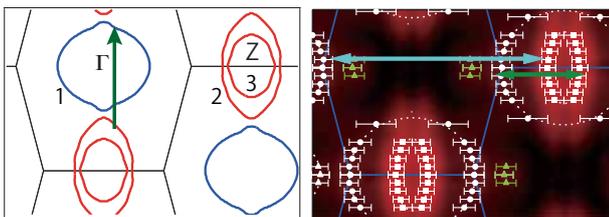


図1 (左) 遍歴 f- 電子描像のフェルミ面. (右) 非整合ネスティング・ベクトル (共に 5) より引用).

確認されている⁵⁾。このことから遍歴描像に立ったシナリオをまじめに検討することが必要であると思われる。

遍歴 f- 電子シナリオの現状と課題

遍歴 f- 電子描像に立つシナリオも以前から多くの研究者によって提案されているが、磁気トルク実験等⁶⁾の新しい展開を踏まえたシナリオが最近いくつか（筆者も含めて）提唱されている。これらのシナリオでは「隠れた秩序」をスピン密度波や超伝導のように f- 電子を含むフェルミ面の不安定性として理解しようとする。提案されている秩序変数は、研究者によって様々で「動的対称性の破れ」⁷⁾、「スピン・ネマティック密度波」⁸⁾、「32 極子秩序（先述の局在多極子秩序と区別して「32 極子密度波」と言った方がいいかもしれない）」⁹⁾などがある。しかし、いずれも共通しているのは、基本的な発現機構として通常の密度波のようにフェルミ面のネスティングが引き金になっており、相転移によってフェルミ面上にエネルギー・ギャップが開くという点である。遍歴 f- 電子描像のバンド計算によれば、ブリルアンゾーンの Γ 点を囲む電子フェルミ面と Z 点を囲む正孔フェルミ面が (001) をネスティング・ベクトルとして、よくネストしている。(図 1 左参照。文献 5) より改変して引用。緑色矢印がフェルミ面 1, 2 間の (001) ネスティング・ベクトル) このネスティングによる秩序化が「隠れた秩序」だと考えるのが、これらのシナリオの基本アイデアである。このように考えると以下に述べるように都合のいいことがある。この系は圧力下で (001) を秩序ベクトルとする反強磁性を示すが、dHvA 実験によれば、この高圧下での反強磁性状態と隠れた秩序状態とは、フェルミ面の形状がほとんど同じである。この

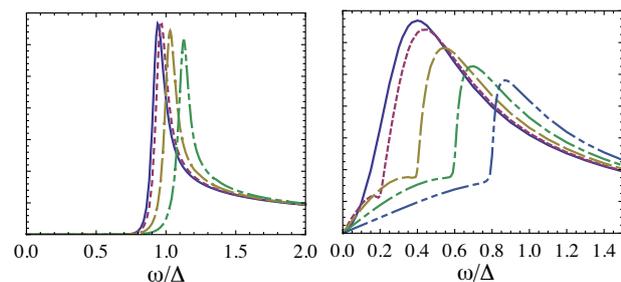


図2 (左) $\mathbf{Q}=(1.4,0,0)$ でのスピン構造関数の振動数依存性. 1 粒子ギャップと同じ大きさのスピンギャップが現れる. (右) $\mathbf{Q}=(001)$ でのスピン構造関数の振動数依存性.

ことは、両者がともに (001) を秩序ベクトルとするブリルアンゾーンの折りたたみを起こしていると考えたと辻褃が合う¹⁰⁾。また、これらのシナリオでは秩序状態でフェルミ面上に1電子スペクトルのエネルギー・ギャップが開くので、これは様々な観測量に現れるはずである。実際、最近の ARPES や STM の実験によると「隠れた秩序」の転移温度以下で1電子エネルギー・ギャップが開いているのが確認されており、そのギャップの大きさは概ね 4 meV 程度であるとされている¹¹⁾。転移温度 $T_c \sim 18$ K とギャップ $\Delta \sim 4$ meV ~ 40 K の比は、超伝導の BCS 理論や通常のスピン密度波の平均場理論での T_c とギャップの大きさとの比に近く、ネスティングによるギャップ形成というシナリオはこれらの実験結果をよく説明しているように思える。

ところで1電子エネルギー・ギャップが開くなら、中性子の非弾性散乱実験などでもスピン励起のエネルギー・ギャップとして観測できると期待される。スピン励起は2電子励起なので ARPES や STM で観測されているギャップの2倍の大きさのギャップが観測されるだろうと思いたくなる。ところが実際の中性子実験の結果はそうはなっていない。中性子実験によるとスピン励起には波数 $\mathbf{Q}=(001)$ の整合スピン揺らぎと $\mathbf{Q}=(1.4,0,0)$ の非整合スピン揺らぎが観測されているが、前者のエネルギーのピーク位置は 1.6 meV、後者のエネルギーは 4 meV 程度である¹²⁾。この実験事実と ARPES 等で見られる 4 meV の1電子エネルギー・ギャップは折り合いをつけることができるのだろうか。この点は、しかし、遍歴描像に立った場合の多バンド構造に着目すると解決することができる。まず後者の非整合スピン励起について考える。遍歴 f-電子のバンド構造の光電子分光の結果を文献 5) から引用したものを図 1 右に示す。この図で矢印を2つのフェルミ面間の非整合ネスティング・ベクトルを表している。これら2つのフェルミ面はバンド計算で得られているフェルミ面 2, 3 に対応していると考えられる。上述のシナリオによるとフェルミ面 2 には隠れた秩序相でギャップが開くが、フェルミ面 3 はそうではない。つまり、 $\mathbf{Q}=(1.4,0,0)$ のスピン励起はギャップの開いたフェルミ面と開いていないフェルミ面との間の励起であるため1粒子ギャップに対応した 4 meV のギャップが現れると考えれば、中性子実験の結果をよく説明

できる。このシナリオに基づいた $\mathbf{Q}=(1.4,0,0)$ でのスピン構造関数の計算例を図 2 右に示す。印加磁場の値を変えた場合のいくつかの結果を示している。図に見られるようにスピンギャップの大きさは印加磁場によってあまり変動しない。これも中性子実験の結果と一致している。次に波数 $\mathbf{Q}=(001)$ でのスピン励起について考えよう。この場合には、 $\mathbf{Q}=(001)$ で結びつけられる2つのフェルミ面には共にギャップが開いているので1電子ギャップの2倍の大きさのスピンギャップが観測されると期待されるが、実験では 1.6 meV という1電子ギャップよりもかなり小さいギャップが見えており、さらにこれの大きさが磁場に強く依存する。これを理解する1つの可能なシナリオは上述の1電子エネルギー・ギャップが波数空間で等方的ではなく、異方的であると考えることである。フェルミ面上において、 $\mathbf{Q}=(001)$ で強くネストしている波数での1電子エネルギー・ギャップの大きさが極小値に近いと考えると中性子実験の結果はよく説明できる。このシナリオに基づいたモデル計算の例を図 2 右に示す。磁場依存性の定性的な振る舞いを含めて実験をよく説明している。この計算例は文献 8) のノードのあるギャップのモデルに基づいているが、7), 9) のようにギャップのノードが無くても十分異方的であれば、同様のシナリオは可能であり、この点の詳細な検討が望まれる。以上の議論から遍歴シナリオにおいて重要な要素の1つは、多バンド系における異方的ギャップである。また、これは低温での超伝導転移にも面白い示唆がある。異方的ギャップは低温領域での磁気ゆらぎの存在を許す（実際、上述のように中性子実験で見えている）が、これがクーパ対の引力を生んでいるのではないか。このことは圧力下で反強磁性相に1次転移すると超伝導が消失することとも整合する。

おわりに

URu₂Si₂ の「隠れた秩序」の研究は近年の磁気トルク実験 6) や光電子分光実験 5), 10), 11) 等の発展によって新たなフェイズに入ってきており、従来とは異なる視点の重要性が示唆される。その一端として最近の遍歴 f-電子シナリオの可能性について議論した。新たなピースが増えて、その分、解決に向けて収束しているとはとても言い難いが、しかし面白みが増してきているのは確かである。この謎解き

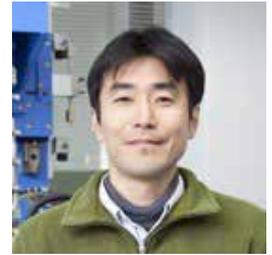
をもうしばらく楽しみたい。

参考文献

- 1) T. T. M. Palstra *et al.*: Phys. Rev. Lett. **55** (1985) 2727.
- 2) H. Kusunose and H. Harima: J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 084702; H. Harima, K. Miyake, and J. Flouquet: J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 033705; Santini and Amoretti: Phys. Rev. Lett. **72** (1994) 1027; A. Kiss and P. Fazekas: Phys. Rev. B **71** (2005) 054415; K. Haule and G. Kotliar: Nat. Phys. **5** (2009) 796.
- 3) H. Ohkuni *et al.*: Philos. Mag. B **79** (1999) 1045. ただし、この文献自体では磁気異方性が 30 倍もあるとは主張していない。
- 4) A. V. Silhanek *et al.*: Physica B **378-380** (2006) 373; M. M. Altarawneh *et al.*: Phys. Rev. Lett. **106** (2011) 146403; *ibid.*, **108** (2012) 066407.
- 5) I. Kawasaki *et al.*: Phys. Rev. B **83** (2011) 235121.
- 6) R. Okazaki *et al.*: Science **331** (2011) 439.
- 7) P. M. Oppeneer *et al.*: Phys. Rev. B **82** (2010) 205103; airXiv: 1110.0981; S. Elgazzar: Nat. Materials **8** (2009) 337.
- 8) S. Fujimoto: Phys. Rev. Lett. **106** (2011) 196407.
- 9) H. Ikeda *et al.*: Nat. Phys. **8** (2012) 528.
- 10) 「隠れた秩序」相でのブリルアンゾーンの折りたたみの実験観測の例としては R. Yoshida *et al.*: Phys. Rev. B **82** (2010) 20518 がある。
- 11) R. Yoshida *et al.*: Phys. Rev. B **85** (2012) 241102; P. Aynajian *et al.*: PNAS **107** (2010) 10383; Schmidt *et al.*: Nature **465** (2010) 570; Santander-Syro *et al.*: Nat. Phys. **5** (2009) 637.
- 12) C. Broholm *et al.*: Phys. Rev. B **43** (1991) 12809; F. Boudarot *et al.*: Phys. Rev. Lett. **90** (2003) 067203.

Pr 内包カゴ状化合物で発現する多彩な相転移現象 超伝導, 反強四極子秩序, 構造相転移

鬼丸 孝博 広島大学大学院先端物質科学研究科



はじめに

最近, カゴ状構造を持つ物質が示す物性が注目されている。特に充填スクッテルダイト化合物やパイロクロア酸化物, クラスレート化合物で見出された特異な超伝導や多極子秩序などの多彩な相転移現象とカゴ中の原子の大振幅非調和振動(ラットリング)との関係に関心が集まっている。われわれはこれまで, カゴ状物質における新現象の発現を目指して, 新しいタイプのカゴ状物質群である RT_2Zn_{20} (R: 希土類, T: 遷移金属) に着目し, 研究を進めてきた。構造的特徴は, R 原子が 16 個の Zn 原子で形成された対称性の高い 28 面体に内包されていることである¹⁾。そのため, 希土類原子が持っている局在 $4f$ 電子と伝導電子の混成効果は全体として増強され, 重い電子状態や近藤効果が発現する可能性が高い。また, R サイトの点群は立方晶系の T_d であり対称性が高いので, 結晶場基底状態の縮重度は大きくなり, 局在した $4f$ 電子の多極子が活性となり得る。我々はこれまでに, $4f^2$ 配位を持つ Pr^{3+} イオンが Zn のカゴに内包されている PrT_2Zn_{20} (T=Ru, Rh, Ir) において, 超伝導や四極子秩序, 構造相転移を見出した²⁻⁴⁾。本稿では, これら多彩な相転移に関するこれまでの研究について紹介する。

構造相転移

カゴ状物質 RT_2Zn_{20} では, その特徴的な構造に起因する構造の不安定性が物性に影響を与えていることが分かってきた。図 1 に RT_2Zn_{20} (R=Pr, La, T=Ru, Ir) の電気抵抗率の温度依存性を示す²⁾。 $PrRu_2Zn_{20}$ では $T_S=138$ K 付近に跳びがあり, 比熱でもピークが観測されることから, T_S の異常は相転移によるものである。なお, 非磁性の $LaRu_2Zn_{20}$ でも 150 K 付近で電気抵抗率と比熱に同様の異常があるので, この相転移は $4f$ 電子の磁性ではなく, この系に共通する結晶構造や電子構造が原因であると予想された。また, T_S 近傍には明瞭なヒステリシスがあるので, 相転移は一次と考えられる。一方,

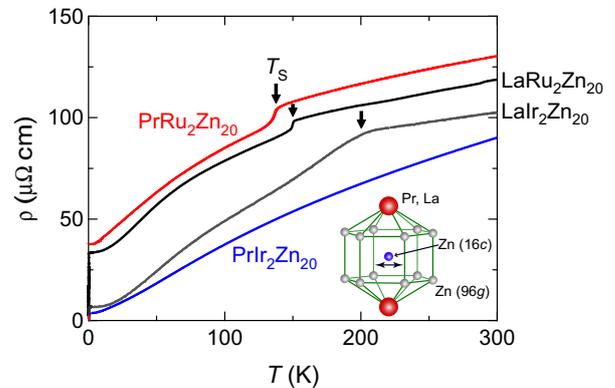


図 1 RT_2Zn_{20} (R=Pr, La, T=Ru, Ir) の電気抵抗率の温度依存性。 $PrRu_2Zn_{20}$ は $T_S=138$ K で構造相転移を示すが, $PrIr_2Zn_{20}$ は 560 K 以下で構造相転移を示さない。挿入図: RT_2Zn_{20} のカゴ状構造, Zn(16c) 原子は 2 個の希土類原子と 12 個の Zn(96g) 原子で作られた高対称なカゴに内包されている。

$PrIr_2Zn_{20}$ では 560 K 以下で同様の相転移はないが, 非磁性の $LaIr_2Zn_{20}$ では電気抵抗率に $T_S=200$ K で折れ曲がりがあり, 比熱でもピークが観測されている。

そこでまず, $PrRu_2Zn_{20}$ の T_S の上下における結晶構造の変化について調べるために, 電子線回折実験を行った^{2,4)}。 T_S 以下で $(2/3, 2/3, 0)$ とその等価位置で超格子反射が観測され, $[110]$ 方向に 3 倍周期で格子が変調していることが分かった。また超音波測定では, Γ_3 対称性の弾性定数 $(C_{11} - C_{12})/2$ モードが T_S 以下で明瞭なハード化を示し, 構造相転移による対称性の低下を支持する⁵⁾。さらに, $LaRu_2Zn_{20}$ と $LaIr_2Zn_{20}$ の $^{139}\text{La-NMR}$ 測定によると, いずれも T_S 以下で対称性の低下に伴う電場勾配が現れる⁶⁾。

この構造相転移に関して, 長谷川らによるフォノンバンドの第一原理計算から, RT_2Zn_{20} の特徴的なカゴ状構造に起因する構造の不安定性が指摘された⁷⁾。図 1 の挿入図のように, 16c サイトの Zn 原子は 2 個の希土類 R 原子と 12 個の Zn(96g) 原子で作られた高対称なカゴに内包されている。この 16c サイトの Zn 原子は上下に位置する R 原子と強く結合しているが, 周りの 96g サイトの Zn 原子との距離は 3.0 Å と比較的大きいため, R を結んだ直線と垂直な平面上で低エネルギー振動している。この

低エネルギー振動は、次のような実験で指摘されている。構造相転移を示さない $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ の超音波測定では、2 K 付近の周波数依存のあるスペクトルや C_{44} モードのソフト化が観測され、Zn 原子の低エネルギー振動の影響が指摘された⁸⁾。また、 $\text{LaRu}_2\text{Zn}_{20}$ と $\text{LaIr}_2\text{Zn}_{20}$ における ^{139}La の核スピン-格子緩和率 $1/T_1$ の T_s 付近での異常な増大は、Zn 原子の振動の凍結を示唆する⁹⁾。このように、この系の構造相転移においては、R 原子ではなく、16c サイトの Zn 原子の低エネルギー振動が重要な役割を担っていると考えられる。

結晶場基底状態：非磁性 Γ_3 二重項

次に、 $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ (T=Ru, Rh, Ir) の結晶場基底状態についてみてみよう。 $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ における Pr^{3+} の点群は立方晶系 T_d であるので、9 重に縮退した基底 J 多重項は結晶場効果により Γ_1 一重項、 Γ_3 二重項、そして Γ_4 と Γ_5 の三重項に分裂する。このうち、 Γ_1 一重項はそれ自体で非磁性の基底状態となりうる。 Γ_3 は非磁性の非クラマース二重項で、多極子である電気四極子 O_2^0, O_2^2 と磁気八極子 T_{xyz} の自由度をもつ。さて、 $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ (T=Ru, Rh, Ir) であるが、磁化率は降温とともに一定値に近づく Van-Vleck 常磁性の振る舞いを示すことから、結晶場基底状態は非磁性である。図 2 に磁気比熱の温度依存性を示す。いずれも 14 K 付近でピークを示し、このピークの高さは挿入図にある二重項-三重項モデルでよく再現できる⁴⁾。したがって、結晶場基底状態は非磁性 Γ_3 二重項である。 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ の基底 Γ_3 二重項については、磁化の異方性³⁾ や超音波実験⁸⁾、非弾性中性子散乱実験⁹⁾ でも確認されている。一方、 $\text{PrRu}_2\text{Zn}_{20}$ では、上記のように $T_s=138$ K で構造相転移が起こるので、Pr サイトの立方対称性は T_s 以下で破れ、 Γ_3 基底二重項の縮退は解かれるはずである。実際、図 2 に示した $\text{PrRu}_2\text{Zn}_{20}$ の磁気比熱は 4 K 付近で肩をもち、分裂した一重項-一重項のショットキー比熱 (図中の点線) として理解できる⁴⁾。

反強四極子秩序

$\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ (T=Ru, Rh, Ir) の結晶場基底状態は非磁性 Γ_3 二重項である。この縮退が低温でどのように解かれるのか調べるために、 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ の比熱を 0.06 K まで測定した。比熱は、図 2 のように

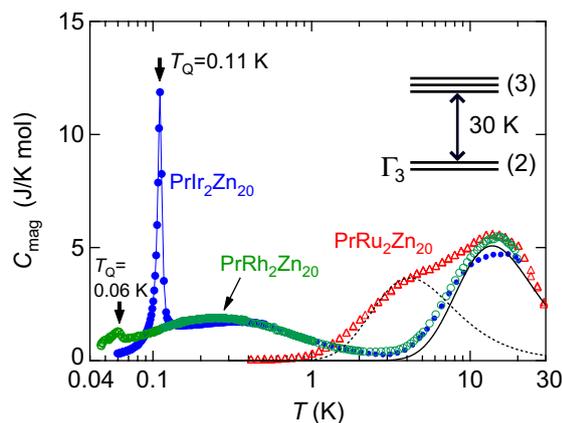


図 2 $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ (T=Ru, Rh, Ir) の磁気比熱の温度依存性¹⁶⁾。実線は、挿入図にあるように、結晶場基底状態を Γ_3 二重項、第 1 励起状態を三重項とし、それらのエネルギー差を 30 K として計算したショットキー比熱を表す。また、点線は、一重項と一重項のエネルギー差を 10 K として計算したショットキー比熱を表す。 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ と $\text{PrRh}_2\text{Zn}_{20}$ はそれぞれ $T_0=0.11$ K と 0.06 K で反強四極子秩序を示す。

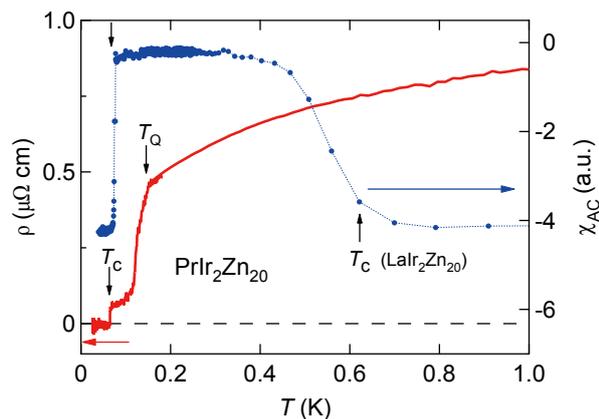


図 3 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ の電気抵抗率と交流磁化の温度依存性¹⁶⁾。電気抵抗率は反強四極子秩序を示す $T_0=0.11$ K で折れ曲がり、 $T_c=0.06$ K でゼロとなる。一方、交流磁化率は T_c 以下でマイスナー反磁性を示し、その反磁性シグナルの大きさが参照物質である $\text{LaIr}_2\text{Zn}_{20}$ と同程度であることから、バルクの超伝導状態であることが確認された。

$T_0=0.11$ K で明瞭なピークを示す^{3,4)}。 T_0 のエントロピーが Γ_3 二重項から期待される $R\ln 2$ の 20% 程度であること、また T_0 が磁場方向に対して異方的に変化することから、 T_0 は Γ_3 二重項で活性な多極子による相転移であることが予想された。磁化率では T_0 で明瞭な異常はみられず³⁾、また μSR 実験でも T_0 の上下で内部磁場の変化がないことから¹⁰⁾、この相転移の秩序変数は非磁性であると判断された。さらに、0.02 K までの超音波測定により、 T_0 以下で Γ_3 対称性の弾性定数 $(C_{11} - C_{12})/2$ モードがハード化し、四極子自由度が凍結していること、ま

た四極子間の結合定数が負になることが確認され、 T_Q で反強四極子秩序が起こっていることが明らかになった⁸⁾。また、T原子をIrから同じ価電子数を持つRhに置換したPrRh₂Zn₂₀でも、図2のように、比熱は $T_Q=0.06$ Kでピークを示し、 Γ_3 二重項の多極子による相転移を示唆する¹¹⁾。 T_Q の磁場方向に対する異方的な振る舞いも観測されており、PrIr₂Zn₂₀同様、反強四極子秩序が起こっていると考えられる。

超伝導

非磁性のLaを含むLaRu₂Zn₂₀とLaIr₂Zn₂₀において、それぞれ $T_c=0.2$ Kと0.6 Kで超伝導転移を見出した。また、4f²配位のPrイオンを含む系では、構造相転移を示すPrRu₂Zn₂₀は0.04 Kまで超伝導転移を示さないが、PrIr₂Zn₂₀は図3のように $T_c=0.05$ Kで抵抗ゼロと大きなマイスナー反磁性を示し、 T_c 以下でバルクの超伝導状態が実現している^{2,3)}。Pr³⁺イオンを含むカゴ状金属間化合物の超伝導としては、充填スクッテルダイトに続く2例目である。ここで興味深い点は、これら超伝導転移が反強四極子秩序の転移温度以下で起こっていることである。これらの系の結晶場基底状態は電気四極子が活性となる非磁性の Γ_3 二重項であり、 T_Q でのエントロピーが $R\ln 2$ の20%しかないことから、 T_Q 以下でも四極子揺らぎが残っている可能性がある。もしそうだとすれば、四極子揺らぎが超伝導対の形成に関与している可能性が高い。最近、PrRh₂Zn₂₀でも $T_c=0.06$ Kで超伝導転移が確認され、やはり反強四極子秩序相内に超伝導状態が存在していることが分かった¹¹⁾。今後、超伝導と四極子自由度の相関に関する系統的な研究によって理解を深めたい。

まとめと今後の展望

カゴ状化合物PrT₂Zn₂₀ (T=Ru, Rh, Ir)が示す構造相転移や反強四極子秩序、超伝導などの多彩な相転移現象に関する、これまでの研究について紹介した。構造相転移では、16cサイトのZn原子の低エネルギー振動が重要な役割を担っていることが分かってきた。構造相転移の転移温度上下における結晶構造やフォノン分散の変化を調べることで、構造相

転移の起源に迫ることができるだろう。現在、低温での単結晶X線構造解析と非弾性X線散乱実験を進めている。また、電子系に着目すると、PrT₂Zn₂₀ (T=Ru, Rh, Ir)におけるPr³⁺イオンの結晶場基底状態は、いずれも非磁性 Γ_3 二重項である。これまで基底 Γ_3 二重項をとる系はごくわずかであったので、本テーマにより、 Γ_3 二重項やそこで活性となる多極子に関して、新たな知見が得られる可能性が広がったと言えるだろう。実際、今回紹介した反強四極子秩序相内での超伝導状態の他にも、四極子自由度による近藤効果の可能性が指摘されており^{12,13)}、四極子自由度と伝導電子の混成効果による興味深い現象が見出されている。その一方で、PrIr₂Zn₂₀のdHvA測定の結果から見積られた有効質量は $1m_0$ 以下であることから、4f電子が強く局在していることが示唆される¹⁴⁾。いずれにしても、今後この系を中心として、圧力や磁場をパラメータにした極低温での精密測定や微視的手法による実験、さらには元素置換による系統的な研究により、多極子自由度と伝導電子やフォノンの間にどのような相関があるのかを明らかにしていく計画である。

参考文献

- 1) T. Nasch *et al.*, Z. Naturforsch. B **52** (1997) 1023.
- 2) T. Onimaru *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 033704.
- 3) T. Onimaru *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106** (2011) 177001.
- 4) T. Onimaru *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **24** (2012) 294207.
- 5) I. Ishii *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **273** (2011) 012136.
- 6) K. Asaki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 023711.
- 7) T. Hasegawa *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser., in press.
- 8) I. Ishii *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 093601.
- 9) K. Iwasa *et al.*, unpublished.
- 10) W. Higemoto *et al.*, Phys. Rev. B **85** (2012) 235152.
- 11) T. Onimaru *et al.*, unpublished.
- 12) A. Sakai and S. Nakatsuji, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 063701.
- 13) A. Tsuruta and K. Miyake, private communication.
- 14) M. Matsushita *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 074605.

中性子散乱でさぐるウラン化合物の低温秩序相の一軸応力変化

横山 淳 茨城大学理学部理学科



私は平成 23 年度より本新学術領域の公募研究班に加えていただき、表題のような内容の研究を行っています。それに至るまで、私は過去に「隠れた秩序」と呼ばれる秩序相をもつ URu_2Si_2 の一軸応力効果を調べてきまして¹⁾、その後、幾分時期を経て生じた疑問点や問題点、あるいは我々の実験技術の進歩などを反映して、この物質の謎に関してより具体的な情報を引き出せないかと思っていました。また、 f 電子が遍歴性や局在性のいずれの性質をもっている、結晶対称性が重要な系に対して一軸応力下で微視実験を行えば、他とは少し異なった視点をもつ面白い研究ができるのではないかという考えが以前よりあり、それらを踏まえこの課題研究を始めるに至っています。ところが、この研究のスタート直前に東日本大震災と原発事故があり、私がこの課題採択の連絡を受け取った時も、私の本拠地の水戸では様々な面で混乱していて、大学建物や実験室への立ち入りが制限されている状況でした。現在に至るまで、東海村の研究用原子炉が稼働しないなどなかなか困難な状況は続いています。可能な範囲で研究を進めています。そのような経緯と現状であります。今回は、 URu_2Si_2 と同じ結晶構造を持つ UPd_2Si_2 の不整合-整合反強磁性に対する一軸応力効果の研究成果を紹介いたします。

UPd_2Si_2 は ThCr_2Si_2 型体心正方晶の結晶構造を持つ物質です。磁気的な特徴としては、磁化などに c 軸を容易軸とする強い異方性を持ち、 $T_{\text{N}}=132$ K 以下で $5f$ モーメントが c 軸方向に偏極し $q_1 \sim (0,0,0.73)$ の秩序ベクトルを持つ不整合反強磁性秩序を、 $T_{\text{N}}=108$ K 以下ではそれに代わり $q_2=(0,0,1)$ をもつ整合反強磁性秩序を示します²⁾。さらに、 c 軸に磁場を印加するとこれらの相に置き換わり $q_3=(0,0,2/3)$ の磁気構造が安定化します。秩序相での電子比熱係数は $40 \text{ mJ/K}^2\text{mol}$ 程度あり、秩序モーメントは $2.3 \mu_B/\text{U}$ となっています。ウラン化合物ではしばしば、 $5f$ 電子の遍歴・局在の二重性が興味深い物性の土台となることがありますが、この物質

の多様な磁気秩序に関しては、まずは局在モーメントを出発点とし軸方向で相互作用が競合したモデル(いわゆる ANNNI モデル)でよく説明できることが提案されています。この点に関しては、競合する U サイト間相互作用を制御し、磁気不安定性の詳細や相互作用の起源を実験的に調べる有効な外部制御変数として、磁場の印加とともに格子を制御する一軸応力の印加が考えられます。そこで、磁気構造の変化や状況次第では磁気励起の分散が直接観測できると期待し、一軸応力下の中性子散乱実験を行っています³⁾。

一軸応力印加装置は、阪大の河原崎先生が開発された定加重式のもの⁴⁾を用い、今回は $[010]$ 方向 (a 軸方向) に 0.8 GPa まで印加しました。図 1(a)-(b) に示すのは、中中性弾性散乱実験で得られた、不整合および整合反強磁性相における反強磁性 Bragg 反射の一軸応力変化です。不整合反強磁性状態に関しては、Bragg ピーク位置 $Q_1=(1,0,\delta)$ の c 軸変調性分 δ が加圧とともに減少することが分かりました(図 1(a))。これは、秩序ベクトルが常圧の値 $q_1=(0,0,0.736)$ に比べ、 0.8 GPa の応力印加によって $(0,0,0.747)$ に変化し、整合ベクトル q_2 に近づく傾向にあることを示しています。 0.8 GPa の一軸応力下では弱圧に比べ Bragg ピーク幅が顕著に増大しているのは、応力の不均一性(おおよそ $\pm 0.2 \text{ GPa}$) に上記の q_1 の変化が畳み込まれたためと考えられます。経験的には、 $\sim 0.5 \text{ GPa}$ を超える加圧では圧力の不均一性が急激に増してしまいます。一方、整合反強磁性状態での Bragg ピークプロファイルに関しては、応力印加によって顕著な変化は見られませんでした(図 1(b))。

不整合反強磁性の秩序ベクトル q_1 についてもう少し見てみますと、図 1(c) に示しますように、 q_1 の c 軸成分の温度変化の様子は各応力下で大きくは変わらないものの、応力印加によって値が大きくなる方にシフトし、カスプが見られる温度も高温側にずれていきます。また、実験精度の範囲内では、すべて

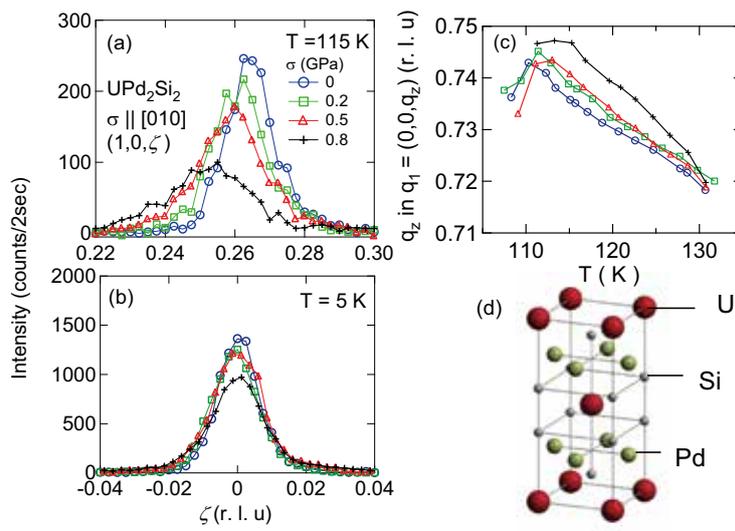


図 1: UPd₂Si₂ の一軸応力下における (a) 不整合反強磁性および (b) 整合反強磁性 Bragg ピークプロファイル. (c) には不整合波数の温度変化を, (d) には結晶構造を示す.

の応力レンジで不整合反強磁性内の q_1 の温度変化は連続的でした. これは, 実現している局在 U モーメント間相互作用のパラメータ範囲が連続的な変化をもたらしたのか, あるいは例えば遍歴的な要素など相互作用に何らかの新たな寄与があるのか, 今後の更なる微視実験が必要と思われます.

磁気 Bragg ピーク強度の温度変化から求めた不整合反強磁性の転移温度 T_{N1} および整合-不整合転移温度 T_{N2} に関しては, T_{N1} は応力印加によって変化しないのに対し, T_{N2} は応力印加とともに線形的に上昇します. このことは, 応力下では整合反強磁性がより安定になることを示唆します. 単純に両転移点の変化を外挿すると, 交わるのは 5.4 GPa 付近になります.

さて, 一軸応力を印加すると, 印加方向によって様々な格子歪みを誘起できます¹⁾. 正方晶の場合, [010] 方向の応力印加に対しては, x^2-y^2 型の正方晶対称性を破る歪みの他に, 体積歪みや格子定数比 c/a の歪みが誘起されることが期待されます. 今回見られた磁気秩序相の変化と歪みの関係を吟味するには, 他の応力方向に関する実験結果と比べる必要がありますが, まず一つ興味深い点として, 過去の UPd₂Si₂ の静水圧下での実験⁵⁾ では, 今回我々が得た応力-温度相図とよく似た圧力-温度相図が得られています. 通常, [010] 方向の応力を印加すると, c 軸の格子定数は伸びる (あるいはほとんど変化しない) のに対し, 静水圧の印加では c 軸の格子定数は縮みます. このことより, 単純には c 軸格子定数の変化より他の種類の歪みが磁気相互作用の競合に

重要な役割を果たしていることが期待されます. この系が c 軸に関して多様な磁気変調をしている状況から考えると, 面白い結果だと思います.

今回は最近の研究結果として, UPd₂Si₂ の反強磁性構造に対する一軸応力実験 (の途中経過) を紹介しました. この物質に限らず, 新奇物質やこれまで研究されてきた物質でも一軸応力効果を微視的に調べると, これまでと少し違った情報を得られると期待しています. もちろん, 最近関心を広く持たれている URu₂Si₂ に関しても, これまでの実験を踏まえ様々な観点から研究を進めています.

UPd₂Si₂ の研究に関する内容は, 中田崇寛君, 網塚浩先生, 天谷健一先生との共同研究成果に基づいています. 皆様には, この場を借りて感謝申し上げます.

参考文献

- 1) M. Yokoyama *et al.*: Phys. Rev. B **72** (2005) 214419; M. Yokoyama and H. Amitsuka: J. Phys. Soc. Jpn. **76** Suppl. A (2007) 136.
- 2) B. Shermine *et al.*: Phys. Rev. B **47** (1993) 8672; T. Honma *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **67** (1998) 1017; T. Plackowski *et al.*: Phys. Rev. B **83** (2011) 1017.
- 3) T. Nakada *et al.*: to be published in J. Phys. Soc. Jpn. Suppl.
- 4) S. Kawarazaki *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. **41** (2002) 6252.
- 5) G. Quirion *et al.*: Phys. Rev. B **57** (1998) 5220; H. Hidaka *et al.*: J. Phys.: Conf. Ser. **273** (2011) 012032.

スクッテルダイト類似構造を持つ物質の NMR/ NQR による研究

與儀 護 琉球大学理学部



はじめに

平成 23 年度から「スクッテルダイト類似構造を持つ物質の重い電子状態と新奇物性の核磁気共鳴による研究」という表題で A03 公募班に採択していただきました。本研究ではスクッテルダイト、充填スクッテルダイト、A サイト秩序型ペロブスカイト構造を持つ物質に着目し、その電子状態を NMR/ NQR により微視的な視点から明らかにすることを目指しています。

以下に、私たちの研究内容の一部を紹介したいと思います。

スクッテルダイト・充填スクッテルダイト・A サイト秩序型ペロブスカイト化合物の結晶構造

充填スクッテルダイト化合物などの結晶構造にカゴ構造を持つ物質について現在、精力的に研究が進められています。充填スクッテルダイト化合物の特徴は、 $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ や $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ など Pr, Sm を含む物質で重い電子超伝導や多極子秩序、新奇の重い電子状態などが生じる点です。図 1 に本研究で着目する 3 つの結晶構造を示します。これらはすべて立方晶 T_h , 空間群 $Im\bar{3}$ (No. 204) に属します。スクッテルダイト構造 (TX_3 , T : 遷移金属, X : プニコゲン) では 12 個の X 原子がカゴ構造を形成しその周りに T 原子が配置されています。そのカゴの中に原子を配置すると充填スクッテルダイト構造 (RT_4X_{12} , R : 希土類など, T : 遷移金属, X : プニコゲン) になります。そのカゴの周りにさらに原子を配置すると A サイト秩序型ペロブスカイト構造 ($\text{AB}_3\text{C}_4\text{O}_{12}$, A :

Na, Ca, 希土類など, B : Cu, Mn など, C : Ru, Ti など) になります。CO₆ 八面体をブロックとして図示すると、ペロブスカイト構造の一種であることが良くわかるのですが、充填スクッテルダイト構造との比較のため、A 原子が 12 個の O 元素に囲まれている様子がわかるように描いてあります。この構造の A サイトは充填スクッテルダイトの R サイトと同じ局所対称性を持ち、対称性の高い位置になっています。よって A サイトに希土類を配置した化合物は充填スクッテルダイト化合物のように多彩な物性を示すことが期待されます。

$\text{ACu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ ($A = \text{La, Nd}$) の NMR/ NQR で見た電子状態

A サイト秩序型ペロブスカイト化合物は充填スクッテルダイト化合物と同様に多くの化合物が存在します。重い電子という観点から見ると、この系では $\text{CaCu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ が希土類元素を含まないにも関わらず 85 mJ/(mol K²) の大きな電子比熱係数を持つことが報告されています¹⁾。本研究では金属的な電気伝導性を示す $\text{ACu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$, 特に A サイトに希土類元素を含む物質についてその電子状態の解明を目指しています。現在研究が進んでいる $\text{ACu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ ($A = \text{La, Nd}$) について紹介します。

$\text{LaCu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ は $\text{CaCu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ よりさらに大きな電子比熱係数 139 mJ/(mol K²) を持つ金属でこれまでに超伝導転移などは報告されていません。結晶構造から Cu サイトは 1 つしか無いので、⁶³Cu, ⁶⁵Cu に

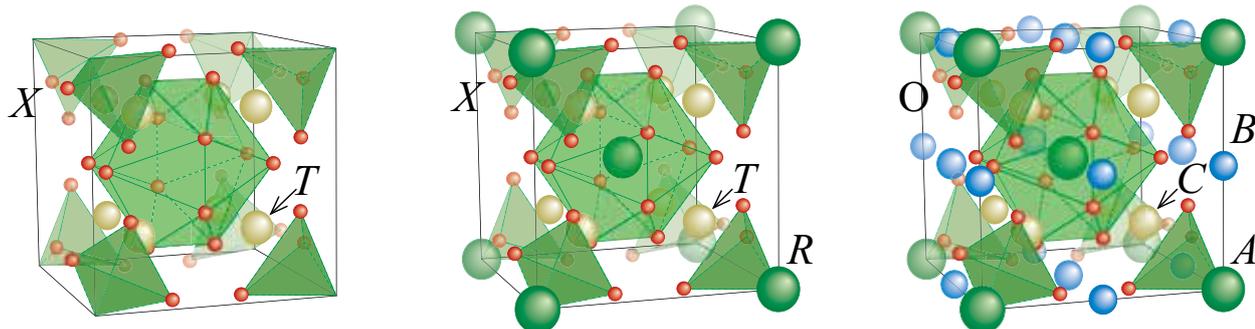


図 1: 左からスクッテルダイト構造, 充填スクッテルダイト構造, A サイト秩序型ペロブスカイト構造。

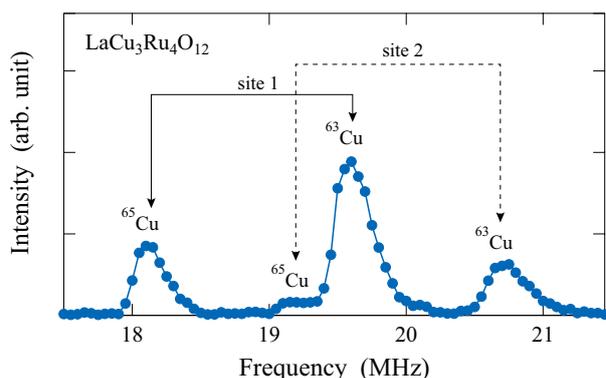


図2: $\text{LaCu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ の Cu-NQR スペクトル。

対応する2本のピークを持つNQRスペクトルが期待されます。しかし、図2に示すような複数のピークからなるスペクトルが得られました。これはCuサイトが少なくとも2サイトは存在することを示しています。また、Laサイトに有限の電場勾配が存在することを示唆するスペクトルがLa-NMRにより得られました。これらの結果は、結晶に何らかの歪みがある事を示しています。同様なスペクトルが $\text{NdCu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ のCu-NQRでも観測された事から、希土類元素を含む化合物では同様な歪みが生じると推測されます。この歪みは試料の合成法を変えるなどにより改善することが可能かもしれませんが、それは今後の課題となります。

さらに研究を進めるため、核スピン-格子緩和時間 T_1 を測定しました。 $\text{LaCu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ ではKorringa則($T_1T = \text{一定}$)が観測され、通常金属状態であることがわかりました。 $\text{NdCu}_3\text{Ru}_4\text{O}_{12}$ ではNdのスピンの揺らぎの発達により $1/T_1T$ は降温と共に増大し、約0.6 Kでピークを示しました。また、内部磁場の発生に伴うスペクトルの広がりも観測されたことから、この物質は約0.6 K以下で磁気秩序を示すことが微視的な視点から明らかになりました。

Pr化合物についても測定を進めるため、試料の合成が進行中です。公募研究終了までに何とか研究成果をまとめることができると考えています。

充填スクッテルダイト化合物の電荷揺らぎ

充填スクッテルダイト化合物において完全に解決しているとは言えない問題の一つに核スピン-スピン緩和率 $1/T_2$ の温度依存性があります。 $\text{ROs}_4\text{Sb}_{12}$ ($R = \text{La, Pr, Sm}$)の $1/T_2$ が120 K付近で発散的に

増大することが小手川らにより報告されています²⁾。 $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ や $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ ではより低温側にもピークが観測されています。120 K付近のピークは $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$ や $\text{RRu}_4\text{Sb}_{12}$ ($R = \text{La, Ce, Pr}$)でも観測され、その温度で線幅が急に増加することをこれまでに報告してきました^{3,4)}。また、電場勾配の揺らぎが T_2 においては支配的であることが明らかになっています。Sb核周りの電場勾配を通してこれらの異常が観測されることから、ラットリングによる電荷の揺らぎがその原因として考えられます。しかし超音波測定によると、これらの物質すべてがラットリングをするわけでは無い様なので、他の可能性も考えられます。現在のところ、Sbの作るカゴ自身にわずかな歪みが生じ、それによる電場勾配の揺らぎや不均一の増大が、線幅や T_2 の特異的な振る舞いの原因ではないかと考えています。

現在進めている80 K以下の測定の途中経過ですが、スペクトル線幅について物質による違いが見えてきました。80 K以下では線幅はほぼ一定になるCe系に対し、La, Pr系では温度依存性がある事がわかりました。今後、詳細を明らかにし、ラットリングとの関係を示す事ができればと考えています。

上記のことを調べるためには CoSb_3 などの充填されていないスクッテルダイトについて測定を行えば何か知見が得られるのではないかと考え測定を進めています。しかし、これらの物質は基本的に絶縁体で緩和時間がとても長く苦戦しています。

謝辞

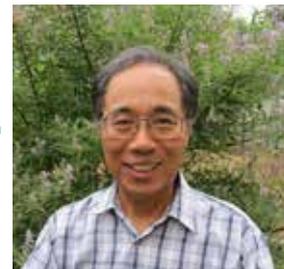
本稿で紹介した内容は琉球大の辺土正人、二木治雄、仲間隆男、首都大東京の佐藤英行、神戸大の菅原仁、新潟大学の武田直也、大阪大学の椋田秀和、北岡良雄、各氏との共同研究を基にしたものです。また、研究を進める上で多くの方に助言を頂いています。感謝いたします。

参考文献

- 1) W. Kobayashi *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 2373.
- 2) H. Kotegawa *et al.*: Phys. Rev. Lett. **99** (2007) 153408.
- 3) M. Yogi *et al.*: J. Phys.: Conf. Ser. **150** (2009) 042240.
- 4) M. Yogi *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) SA027.

4f 電子系の DMFT 電子構造計算 – DMFT 計算が LDA 計算と異なるフェルミ面を与える例

酒井 治 物質・材料研究機構



AuCu₃ 型 Ce 化合物 (CePd₃, CeRh₃, CeSn₃, CeIn₃) にたいする DMFT バンド計算を行ってきた¹⁾. 前3者ではフェルミ面構造は基本的に LDA 計算のものと一致していた. また, 他の物質に対する DMFT 計算でも LDA 計算と一致するのが通例であった. しかしながら CeIn₃ では LDA 計算と大きく異なる結果が得られ, DMFT 計算の結果により dHvA 実験の再現が可能か否か明らかにすることが課題となった. 本レポートはその結果の報告である.

CeIn₃ は常圧の下では $T_N=10$ K で反強磁性状態 (AF) に転移するが, $p=2.7$ GPa 程度の加圧により T_N は絶対零度まで減少し, また $T_c=2.1$ K で超伝導状態に転移するようになることが知られている²⁾. 常圧では典型的な局在 4f 電子系であるとされる. 圧力 $p=2.75$ GPa の場合の CeIn₃ につき, 図 1 は DMFT 計算の結果を RNB 描像で示したバンド構造を示す. RNB とは, 自己エネルギーの実部をエネルギーの 1 次関数で近似し, かつ虚部を無視して分散を見易くしたものである. 結晶場基底状態は Γ_7 , その状態空間内での近藤温度は 30 K, 結晶場励起エネルギーは 240 K と得られた. 4f バンドの幅は約 0.0005 Ry (0.007 eV) で LDA 計算によるバンド幅 0.02 Ry (0.3 eV) の 1/40 程度である. この値は, 相関効果による質量増大の値の逆数にほぼ等しい. 得られた特徴のひとつは Γ 点で Γ_7 バンドがフェルミエネルギーより低く位置し, 占有状態となっていることである. これにたいし, LDA 計算では Γ_7 がフェルミエネルギーより高く位置し, 非占有状態となっている³⁾. 攝待等の加圧下の dHvA 実験では a (振動数 1×10^4 T) と d (4.5×10^3 T) の閉じたふたつの特徴的ブランチが見出されている. 図 2 に別役等による LDA 計算でのフェルミ面構造を示す²⁾. Γ を中心にした孤立正孔面が生じ, これを周回する軌道が d であり, a は R 点を中心とした大きな電子的フェルミ面に対応付けられる.

図 1 の DMFT バンド分散で実験の解釈が可能であろうか? それにはまず, (1) 電子数のカウントは

正しく行われているか, (2) 結果は robust なものであるか, が問題となる. (1) について, 我々の近藤問題 solver は resolvent 法にたいする NCA を出発点としており, 近藤問題についての Friedel の和則を満たしてはいない. また, DMFT の解法において占有 k 状態と総電子数を結びつける Luttinger の和則を保障していない点の問題がある¹⁾. 正攻法からの解決は未だしである. 現在のところ, フェルミエネルギーは RNB での占有 k 状態数と総電子数を合わせるように定めている. 低温では結果としてそのようになるであろう. (2) については, 近藤共鳴の位置がフェルミエネルギーの変化に追従して動くためフェルミエネルギーと 4f バンドの相対位置は比較

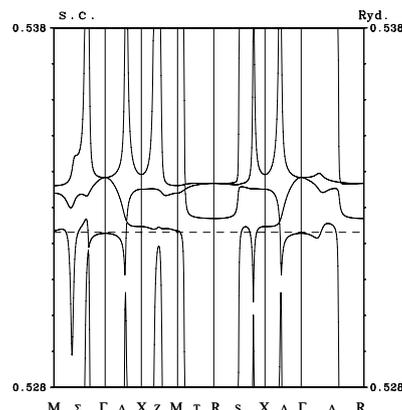


図 1 $p=2.75$ GPa での格子定数 ($a=8.7326$ a.u.) をもつ場合の CeIn₃ のバンド分散. 横軸は sc 格子の Brillouin zone の対称点と軸. 横破線はフェルミエネルギー (E_F). Γ 点で E_F の直下に位置するバンドは 4f Γ_7 バンドである.

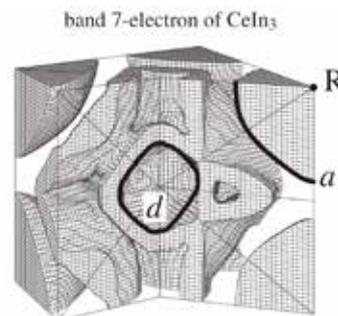


図 2 Betsuyaku-Harima による LDA バンド計算での CeIn₃ のフェルミ面. 電子領域にハッチがされている. d は Γ 点の正孔ポケットを周回する. a は R 点の電子ポケットを周回する.

的 robust である。図1の結果をもとに話を進めて良いであろう。神戸大播磨氏の協力を得て、フェルミ面構造、dHvA 信号の解析を行なった結果を示す。

図3に示すように、DMFT 計算では Γ 点を中心とする孤立した電子面が現れる。R点を中心とした大きな電子的フェルミ面の存在はLDAの結果と同様である。両者の間に複雑に連結した電子領域が現れる。DMFTバンドによる CeIn_3 のdHvA振動数の磁場方位依存性を図4に示す。略 1×10^4 Tと 4.5×10^3 Tの振動数を持つブランチは各々R点と Γ 点を中心とする電子pocketによる信号である。摂待等のa, dブランチによく対応し、DMFTバンド計算の結果によっても実験の解釈が可能であることを示す。各ブランチのサイクロトロン質量の角度依存性の実験結果もほぼ再現し、質量増大のバンド依存性を正しく与える。

図4ではa, dブランチ以外にも多数の信号が示されている。これらに対応するものは実験的にはまだ観測されていない。ただし、この部分は図3の Γ 点とR点の電子pocketの間隙に生じている複雑な形状の電子面からのものである。バンド分散の極めて詳細な部分に依存し、細かい点での実験との一致はあまり期待出来ない。

筆者の計算した例のうちで、DMFT計算によるフェルミ面構造がLDA計算によるものと大きく異なったものは CeIn_3 が初めてである。このケースでもDMFT計算はdHvA実験と矛盾しなかった。サイクロトロン質量も略再現する。 CeIn_3 は T_K が低いいため、LDA計算と一致する結果が得られなかったのかもしれない。この点に関しては他の物質を含め今後詰めるべき課題である。なお、DMFTの結果と

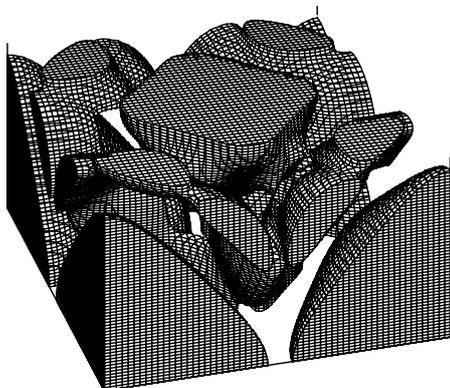


図3 DMFT 計算による CeIn_3 のフェルミ面構造。sc格子のBZを $z=0$ の xy 面で切っている。上面の中心とコーナーは各々 Γ 点とM点、下面のコーナーはR点である。 Γ 点を中心とする孤立電子面が存在する。

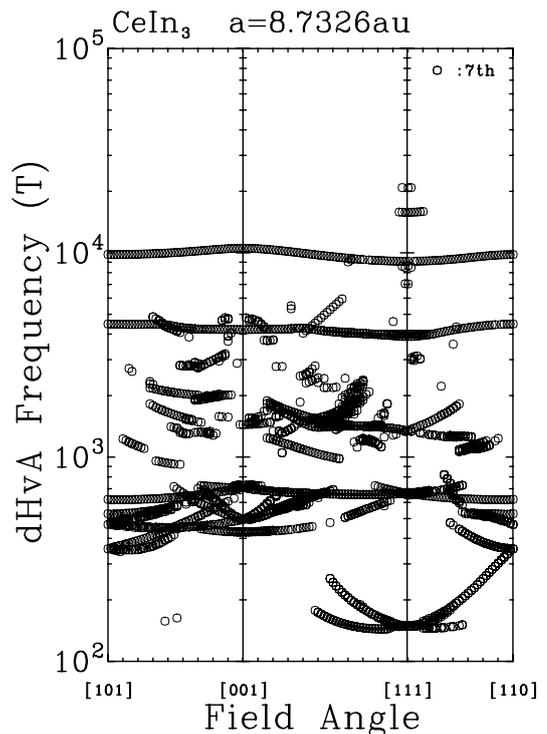


図4 DMFTバンドによる加圧下 CeIn_3 のdHvA振動数の磁場方位依存性。振動数 1×10^4 T (4.5×10^3 T)のブランチがa (d)ブランチに対応する。

同様なフェルミ面形状が鈴木・播磨のLDA+U with shifted 4f level 計算でも得られている⁴⁾。

CeIn_3 は常圧下ではAFに転移する。LDA+U的描像によりAFでの計算も行なった。非常に浅い4f占有状態を仮定する場合にdHvA振動数を再現する。 CeIn_3 のAF状態は典型的局在4f電子状態と考えられていたが、4fバンド性を併せ持つ可能性がある。4fの局在性を示す根拠とされたポジトロン消滅実験も質量増大を反映した強度補正を考慮すれば4fバンド描像と矛盾しない。

RNBバンド分散の結果からフェルミ面形状、dHvA信号を求めるには播磨氏のご協力が不可欠であった。また、作図の基礎プログラムは柳瀬章先生の作である。お二人に感謝するとともに、現在ご闘病中である柳瀬先生のご回復を祈ります。

参考文献

- 1) O. Sakai and H. Harima: J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 024717.
- 2) R. Settai *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn **74** (2005)3016.
- 3) K. Betsuyaku and H. Harima: J. Magn.Magn.Mater. **272-276** (2004) 187.
- 4) M.-T. Suzuki and H. Harima: Physica B **403** (2008) 1318.

重い電子系における量子臨界点由来の新奇超伝導相の核磁気共鳴法による研究

川崎慎司 岡山大学大学院自然科学研究科



はじめに

我々は、重い電子系化合物 $\text{CeRh}_{1-x}\text{Ir}_x\text{In}_5$ における、反強磁性量子臨界点由来の新しい超伝導相に着目し、その起源を明らかにするために、低温高圧下の NMR/NQR 法による研究を行っている。

本研究テーマは、これまでの長い研究の経緯があって提案したものであるため、ここでまずそれを振り返っておきたい。

重い電子系における、「量子臨界点と重い電子超伝導」については、1979年の CeCu_2Si_2 における重い電子超伝導発見以来¹⁾、重い電子系の中心的な研究テーマであり続けている。とりわけ1998年のケンブリッジ大学の反強磁性体 CeIn_3 及び CePd_2Si_2 における圧力誘起超伝導と非フェルミ液体の関係を指摘した報告²⁾と、2000年のロスアラモス研究所による反強磁性圧力誘起超伝導体 CeRhIn_5 の発見³⁾をきっかけとして実験的研究が飛躍的に進んだと理解している。しかしながら、低温や高圧という極限条件のために、一般に最も興味を持たれる量子臨界点近傍では、肝心の超伝導ギャップ構造に注目した実験がほとんどないのもまた事実である。

2000年ごろ、阪大北岡グループの大学院生であった著者は、たまたまこの一連の物質における圧力下 NMR/NQR 実験を研究テーマとする幸運に恵まれ、その後数年間にわたる日本物理学会や論文投稿における、激しい！！研究競争を、リアルタイムで体験させてもらった。実験データを出し続けるために、当時幾日も研究室に寝泊まりしたのをよく覚えている。当時の“様々な”重い電子系研究にまつわる経験が、現在の著者を支えているといっても過言ではない。

結局、NQR 実験 ($H = 0$) の結果だけで圧力相図を構築するのに時間がかかり^{4,5)}、博士論文提出に至るまで、これら CeIn_3 及び CeRhIn_5 の ^{115}In -NQR だけを測り続けることになった。

反強磁性と共存した“ギャップレス”超伝導

著者の博士論文の主要な結果の一つとして、2003

年に圧力誘起超伝導体 CeRhIn_5 ($P_c \sim 1.6 \text{ GPa}$, $T_c = 2.1 \text{ K}$) の量子臨界点近傍における反強磁性と超伝導の微視的な共存を報告した⁴⁾。当時 U 系においては、反強磁性と超伝導の共存は報告されていたが(図1挿入図)、Ce 系における明確な実験結果は初めての報告だったと記憶している。

図1に共存相 $P = 1.6 \text{ GPa}$ ($T_N = 2.8 \text{ K}$, $T_c = 0.9 \text{ K}$) における ^{115}In -NQR 緩和率 ($1/T_1$) の温度依存性を示す。 CeRhIn_5 の反強磁性と共存した超伝導状態に特徴的なことは、 T_c 以下で $1/T_1 \sim T$ の振る舞いを見せることである。これは、超伝導ギャップ内に残留状態密度が存在することを強く示唆する結果である(ギャップレス超伝導)。これは、一見すると d 波超伝導状態における不純物散乱の結果と疑いたくなる。しかし、この T_c 以下の振る舞いは、同じ試料をさらに加圧して共存相から離すと ($P = 2.1 \text{ GPa}$)、 d 波超伝導に典型的な $1/T_1 \sim T^3$ の振る舞いに変化することから、単純な不純物効果とは考えにくい⁶⁾。

すなわちこの結果は、 CeRhIn_5 の超伝導ギャップ構造が、高圧側の超伝導相と量子臨界点近傍の共存

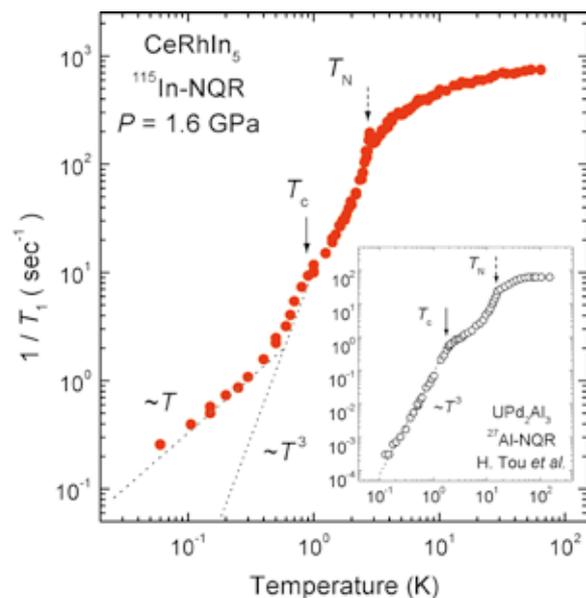


図1: CeRhIn_5 の $1/T_1$ の温度依存性。点線はそれぞれ $1/T_1 \propto T$, $1/T_1 \propto T^3$ を示す。挿入図は比較のために、同じく反強磁性と超伝導が共存する UPd_2Al_3 の緩和率を示している。

相において異なっていることを示唆する。この結果が本研究の出発点であり、10年の時を経て現在の研究につながっているのは感慨深い。

ユニバーサルな "ギャップレス" 超伝導?

こうしたギャップレス超伝導状態は、重い電子系以外に、鉄系超伝導でも見られる。

最近、鉄系超伝導体においても、反強磁性量子臨界点の重要性が明らかになりつつあるが⁷⁾、我々は鉄系超伝導発見当初から、反強磁性スピン揺らぎの重要性を指摘してきた⁸⁾。その中で、CaFe₂As₂という反強磁性圧力誘起超伝導体 ($P_c \sim 0.5$ GPa, $T_c \sim 5$ K) が、量子臨界点近傍でギャップレス超伝導を示すことを見出した⁹⁾。

図2にCaFe₂As₂の⁷⁵As-NQR緩和率の圧力依存性を示す。図から明らかのように、常伝導状態の緩和率には圧力依存性がほとんど見られないにも関わらず、 T_c 以下の温度依存性は大きく異なっている。低圧側（反強磁性相に近い、つまり量子臨界点に近い方）でギャップレス超伝導が実現していることが明らかである。

この実験は、同じ試料のゼロ磁場下での圧力変化を観測しており、この結果は、CeRhIn₅の場合と同

様、この物質の超伝導ギャップ構造が本質的に圧力変化していることを示唆する。

これは、反強磁性との共存相におけるギャップレス超伝導状態が物質に固有な特異現象ではなく、強相関電子系における“量子臨界点”という普遍性に伴う状態である可能性を示唆するものとして重要である。我々は、これが「量子臨界点由来の新奇超伝導相」という、電子的背景に依らないユニバーサルな物理現象であると考えている。

実験の現状

現在、常圧で量子臨界点近傍に位置する、反強磁性超伝導体CeRh_{0.5}Ir_{0.5}In₅ ($T_N = 3$ K, $T_c = 0.9$ K, $P = 0$)の低温高圧下¹¹⁵In-NQR実験に取り組んでいる。CeRhIn₅のRhサイトのIr置換効果は物理圧力と等価であり、CeRhIn₅の圧力下と同様のギャップレス超伝導が実現していることが我々の過去の実験から明らかとなっている¹⁰⁾。

この物質の超伝導ギャップ構造や常伝導状態の圧力変化を調べているところである。今のところ、本稿において結論を示せるほどの実験データは得ていないが、超伝導状態の残留状態密度が圧力変化することを確認した¹¹⁾。近い将来、このギャップレス超伝導状態と量子臨界点の関係を明確に示す結果をお見せ出来るよう、鋭意実験中である。

ギャップレス超伝導状態の起源

最後にこのギャップレス超伝導相の起源についてであるが、本研究で着目している量子臨界点近傍のギャップレス超伝導については、阪大三宅グループの伏屋氏がいち早く注目し、氏の博士論文で理論的な解釈を与えている¹²⁾。それは、 d 波超伝導の場合、量子臨界点近傍では強い反強磁性スピン揺らぎのために、奇周波数 p 波スピン-重項超伝導（ギャップレス超伝導）に転移するというものであり、量子臨界点にて最適化される超伝導状態という意味で、定性的に我々のこれまでの実験結果と一致している。現在、量子臨界点近傍のギャップレス超伝導相の起源の一つの候補と考えている。

まとめと今後の課題

本研究テーマは、系統的なNMR/NQR実験から、量子臨界点由来の新奇超伝導相を模索、提案してい

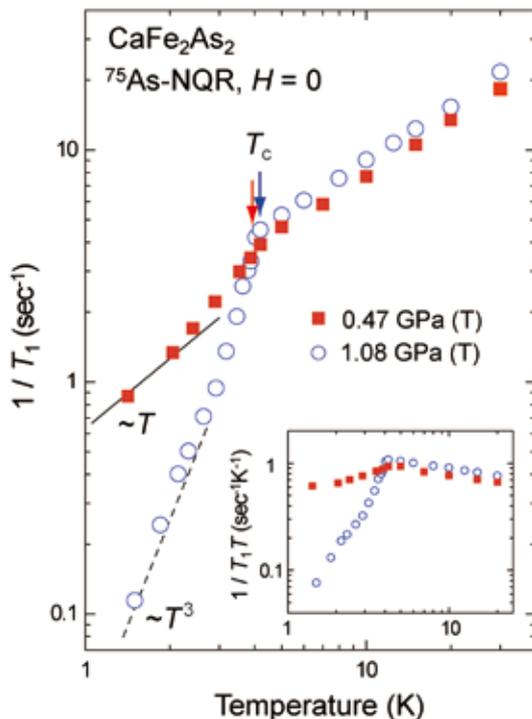


図2: CaFe₂As₂の $1/T_1$ の温度依存性。実線、点線はそれぞれ $1/T_1 \propto T$ 、 $1/T_1 \propto T^3$ を示す。挿入図は $1/T_1 T$ の温度依存性。常伝導状態は反強磁性スピン揺らぎを反映して、 T_c に向かって増大する。

る。メカニズムはどうであれ、これまでの系統的な実験結果を踏まえると、実験的には量子臨界点近傍でギャップレス超伝導状態が実現しているのは確からしい。また、それが“普通”ではなくて、系統的理解のためになんらかの新しいアイデアが必要であることも間違いない。

最近では他領域も巻き込んで新たな展開が見えつつある¹³⁾。慣れ親しんだ「重い電子系」発の、新しい物理開拓を夢見ている。

謝辞

本稿で述べた研究内容は、反り目 章，岡 利英，鄭 国慶（連携研究者），J. L. Sarrao, P. G. Pagliuso, N. O. Moreno, J. D. Thompson 各氏との共同研究である。学友でもある伏屋雄紀氏，そして三宅和正氏には長きに渡って有益な議論をして頂いており，この場をお借りして感謝申し上げたい。

参考文献

1) F. Steglich *et al.*: Phys. Rev. Lett. **43** (1979) 1892.

2) N. D. Mathur *et al.*: Nature **394** (1998) 39.

3) H. Hegger *et al.*: Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 4986.

4) T. Mito, S. Kawasaki *et al.*: Phys. Rev. Lett. **90** (2003) 077004, S. Kawasaki *et al.*: Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 137001.

5) S. Kawasaki *et al.*: Phys. Rev. B **77** (2008) 064508.

6) T. Mito, S. Kawasaki *et al.*: Phys. Rev. B **63** (2001) 220507.

7) T. Oka *et al.*: Phys. Rev. Lett. **108** (2012) 047001, and references therein.

8) S. Kawasaki *et al.*: Phys. Rev. B **78** (2008) 220506(R).

9) S. Kawasaki *et al.*: Supercond. Sci. Technol. **23** (2010) 054004.

10) G. -q. Zheng *et al.*: Phys. Rev. B **70** (2004) 014511.

11) S. Kawasaki *et al.*: unpublished.

12) Y. Fuseya, H. Kohno and K. Miyake: J. Phys. Soc. Jpn. **72** (2003) 2914.

13) 領域 6,8 合同シンポジウム「奇周波数クーパ対の物理」，日本物理学会第 67 回年次大会。

カゴ状化合物の局所フォノンと伝導電子の結合 に対する超音波スペクトロスコピー

柳澤 達也 北海道大学理学研究院



本ニュースレターに前回の私の記事が掲載されてから¹⁾、早いもので二年が経ち、その間に私の所属部局も若干変わりました。先の公募研究では充填スクッテルナイト化合物 $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ をはじめ、同系で最も高い T_c を持つ $\text{LaRu}_4\text{As}_{12}$ 、ウランを内包するクラスレート化合物 $\text{U}_3\text{Pd}_{20}\text{Si}_6$ 等のカゴ状化合物における超音波測定を行ってまいりました²⁻⁴⁾。今回再び公募研究に採択いただき、感謝申し上げますと同時に身の引き締まる思いがいたします。本稿では $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ の磁場に鈍感な重い電子状態と未解明の低温秩序の問題に焦点を当て、先の公募研究で得られた成果と最近行ったパルス強磁場下における超音波実験の進捗状況をご報告します。

磁場に鈍感な重い電子系 $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$

$\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ は充填スクッテルナイト化合物であり、比熱から大きな電子比熱係数 $\gamma \sim 820 \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-2}$ が見積もられている⁵⁾。この値は $H \parallel \langle 001 \rangle$ 方向の 32 T の強磁場下までほとんど変わらないことが報告されており、これ程までに磁場に鈍感な γ 値の振る舞いは、単なる g 因子の違いや、Ce や Yb 化合物で観られる従来型の磁気近藤効果では説明できない⁵⁾。しかしながら、本系において重い準粒子バンドは未だ観測されておらず、尚かつ、他の Sm 系化合物においても、磁場に鈍感な γ 値を持つものがいくつか見つかっているため⁶⁾、Sm 化合物に観られるこの磁場に鈍感な残留エントロピーが、エキゾチックな重い電子状態に起因するのかどうか定かではない。今後さらに実験的傍証が集まることによってその正体が浮き彫りになってくるかもしれない。

$\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ の超音波分散とラットリング

さて、図 1 に橙色で示した弾性定数 C_{11} は室温から単調に増加し、図中の縦点線の温度で二段のシヨルダー型の異常を示す。この弾性異常は超音波吸収を伴い、その周波数依存性が熱活性化型であり、尚かつ磁場に鈍感であることから $\text{ROs}_4\text{Sb}_{12}$ ($R = \text{La, Pr, Nd}$ 、

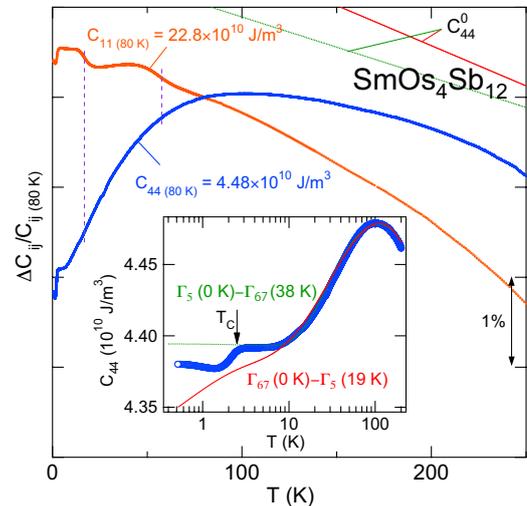


図 1 充填スクッテルナイト $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ の弾性定数 C_{11} と C_{44} の温度依存性。内挿図は C_{44} の温度依存性の温度軸を対数で表示しなおしたもの。緑と赤の曲線はそれぞれ T_b 群に於ける Γ_3 , Γ_{67} 結晶場基底状態を仮定した場合の四極子感受率のベストフィット。

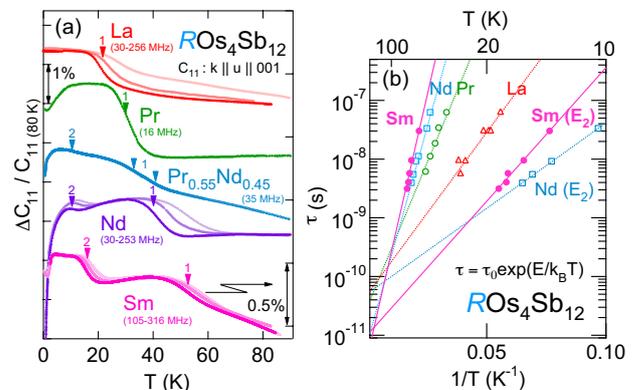


図 2(a) 充填スクッテルナイト $\text{ROs}_4\text{Sb}_{12}$ ($R = \text{希土類}$) の弾性定数 C_{11} の温度変化。下向き矢印は最低周波数において $\omega\tau \sim 1$ となる温度を示す。(b) 超音波分散から見積もったパラメータをアレニウスプロットで表示したものの。直線の傾きが活性エネルギーに対応する。

Nd) で観測されたものと同様のラットリングに伴う超音波分散であると結論できる。一方、弾性定数 C_{44} には超音波分散が観測されず、この明瞭なモード依存性は、 Γ_{23} 対称性のオフセンター（電荷）自由度と音響フォノンの結合を示唆する⁷⁾。

図 2(a) に $\text{ROs}_4\text{Sb}_{12}$ ($R = \text{La, Pr, Nd, Sm}$) の超音波分散を比較して示す。興味深いことに、La で観測さ

表1 充填スクッテルダイトにおけるアインシュタイン温度 θ_E , 電子比熱係数 γ と超音波分散から得られた活性エネルギー E_i , 特性時間 $\tau_{0,i}$ の比較.

Compounds	θ_E (K)	γ (mJ mol ⁻¹ K ⁻²)	E_1 (K)	$\tau_{0,1}$ (ps)	E_2 (K)	$\tau_{0,2}$ (ps)
LaOs ₄ Sb ₁₂	60.5	36~56	127	50	—	—
CeOs ₄ Sb ₁₂	—	92~180	—	—	—	—
PrOs ₄ Sb ₁₂	—	310~750	225	31	?	?
NdOs ₄ Sb ₁₂	39.0	520	337	7.5	67	51
SmOs ₄ Sb ₁₂	40.1	820	409	4.4	105	10
LaRu ₄ Sb ₁₂	72.8	47	—	—	—	—
LaFe ₄ Sb ₁₂	87.6	122	350	2.0	—	—
PrFe ₄ Sb ₁₂	—	~1000	360	3.0	—	—

れた1段のショルダー型異常が, Nd と Sm では2カ所の異なる温度領域で観測されることがわかる. 熱活性化型 (アレニウス型) の緩和時間を仮定した現象論的解析から, 活性エネルギー E_i と特性時間 $\tau_{0,i}$ が得られる⁸⁾. それらとアインシュタイン温度, 電子比熱係数を類似物質の諸値⁸⁻¹¹⁾と比較して表1に示した. ここで, ROs₄Sb₁₂系の活性エネルギー (低エネルギー側) がちょうどアインシュタイン温度の2倍程度の大きさをもっているようにみえる. この相関関係が果たして他の系に関しても成り立つのかどうかを今後検証する必要がある.

さて, カゴ状化合物に於いて低エネルギーのアインシュタインフォノンモードは光学的実験で一般的に観測されるが¹²⁾, 超音波分散はカゴを構成する元素の置換に非常に敏感であり, 観測されるかどうかはまちまちである. これは暗に超音波分散が観測される条件として伝導電子と局所フォノンとの結合が必要であることを示唆しているのではなからうか?¹¹⁾ もしそれらの間に新しいエネルギー散逸機構が存在すれば SmOs₄Sb₁₂の磁場に鈍感な電子比熱係数の起源としてラットリングに伴う局所電荷揺らぎと伝導電子との結合が現実味を帯びてくる.

未解明の低温秩序と多体効果

一方, 本系は $T_c = 2.5$ K で非常に弱い強磁性モーメント ($M_s \sim 0.087\mu_B$) を伴う秩序を起こすことがわかっている. そこで放出されるエントロピーは $R \ln 2$ の 1.6% であり, なんらかの多体効果により抑制されている可能性がある. 静水圧実験からは, 単純な強磁性秩序ではなく多極子秩序の可能性が指摘されている^{13, 14)}. 図1に青色で示す弾性定数 C_{44} は 100 K 付近から $1/T$ に比例する減少 (ソフト化)

を示すが, 20 K 以下で急激に抑制され, 低温で一定値に収束する. 図1の内挿図は2つの結晶場模型による解析結果である. 一見すると実験結果は Γ_5 二重項基底状態を仮定した四極子感受率のヴァン・ヴレック項の寄与で説明できそうだが, Γ_{67} 四重項基底状態の模型に $T^* = 20$ K の特性温度を持つ多体効果を考慮しても同様の結果が得られる. よって零磁場の弾性定数の温度変化から結晶場基底状態は判別できない. また, 丁度 T^* と同じ温度領域で Sm イオンの平均価数の温度変化が 2.76 価に収束することが, 共鳴 X 線散乱実験によって調べられていることから¹⁵⁾, Sm の価数揺動も, この多体効果に何らかの影響を及ぼしている可能性がある.

パルス強磁場下超音波実験

超音波で試料中に誘起される歪み場は磁場と直交するため, 磁場中での超音波測定は多極子やオフセンター自由度を分光学的に調べる上で強力なプローブとなる. 今回の公募研究の主題の一つとして SmOs₄Sb₁₂ の結晶場基底状態に決着を付けることを挙げた. そのため, ドレスデン強磁場センターにあるパルスマグネットを用いて $T \geq 1.5$ K, $H \leq 62$ T の低温・強磁場下における弾性応答を観測した. わざわざドイツまで行く動機は, 旨いヴァイツェンを堪能する為だけではなく (全く無いわけではないが), 150 ms 超のロングパルスを利用できることにある. 低温におけるパルス強磁場実験ではエディーカーレントによる温度上昇を避けるためにしばしば試料の磁場に対する断面積を削って対処するが, そうすると超音波測定の感度が落ちることになり, 両者はトレードオフの関係にある. また超音波実験のような数十 kHz の繰り返し周期の時間スケールを持

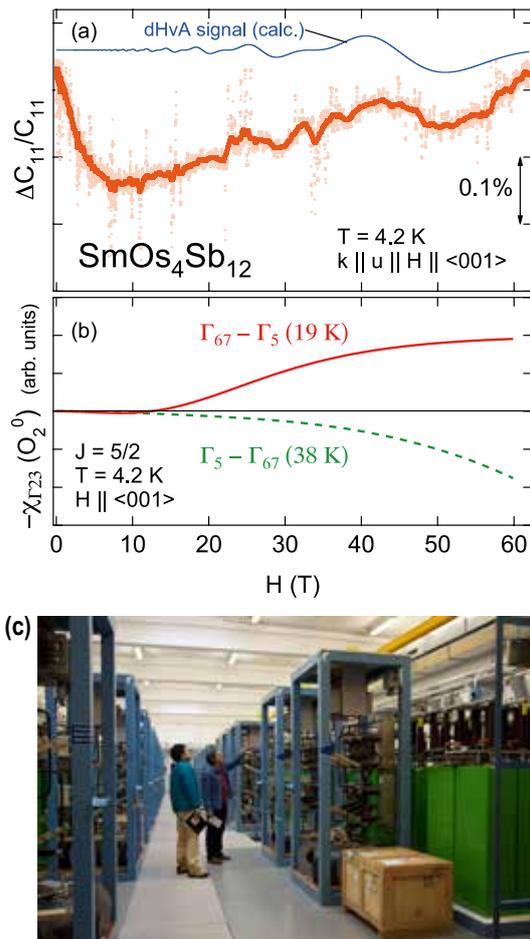


図 3(a) $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ の弾性定数 C_{11} の 4.2 K における磁場変化 (減磁過程). 青色の曲線は 68 T の dHVA 周波数を仮定した場合の音響 dHVA 振動の計算値. (b) 四極子感受率の磁場依存性. (c) Hochfeld-Magnetlabor Dresden(HLD) のキャパシタンスバンク (2.88 MJ \times 15, 1.44 MJ \times 4, 0.9 MJ \times 1, 0.5 MJ \times 1) 内部.

つ測定に於いてロングパルスならばエディーカーレントを抑えつつ十分なデータ点数を得ることができるため、一挙兩得という訳である。

図 3(a) に 30 MHz の縦波超音波で測定した 4.2 K に於ける弾性定数 C_{11} の磁場依存性 (減磁過程) を示す。10 T 付近で極小をとるが、これは静磁場下でも再現しており、低温秩序相の磁気密度が高い領域をひっかけたことによる磁気弾性効果であると考えている。10 T 以上の高磁場領域では音響ドハース・ファンアルフェン振動を繰り返しながら励磁と共にゆるやかに増大する傾向が観られた。弾性定数 C_{11} はバルクモジュラスと Γ_{23} 対称性の四極子感受率 $-\chi_{\Gamma_{23}}$ の和で表される。図 3(b) に $-\chi_{\Gamma_{23}}$ の磁場依存性を示す。 Γ_{67} 四重項基底の結晶場モデルでは磁場に

伴って増大し、 Γ_5 二重項基底では減少する明確な差違が現れることから、パルス磁場下における C_{11} の磁場依存性の結果は Γ_{67} 四重項基底を支持する。

立方晶系において Sm^{3+} ($J = 5/2$) の局在電子状態を仮定した場合、結晶場基底状態が Γ_{67} 四重項基底状態のときは 3 つの磁気双極子、5 つの電気四極子と 7 つの磁気八極子で計 15 の多極子自由度を有する。即ち、 $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ は、「多極子自由度」「オフセンター自由度 (ラットリング)」「価数揺動」の 3 つの量子自由度が、プニクトゲンの二十面体の作るカゴの中に詰まった非常に特異な系であることが再確認された。今後は、 $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ の静水圧下における超音波測定や、ラットリングに対する同位体効果の検証などを行う予定である。

本稿を書くにあたり、下記の方々 (敬称略) にご助言をいただきました。ここに感謝申し上げます。日高宏之 (北大理), 松平和之 (九工大理), 鈴木孝至 (広大先端), 石井勲 (広大先端), 赤津光洋 (HLD)。

参考文献

- 1) 新学術領域研究 重い電子系の形成と秩序化 News Letter Vol. 2, No. 2 (2009) 12.
- 2) T. Yanagisawa *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 043601.
- 3) T. Yanagisawa *et al.*: J. Phys.: Conf. Ser. **273** (2011) 012065.
- 4) T. Yanagisawa *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) SA105.
- 5) S. Sanada *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **74** (2005) 246; Y. Aoki, 日本物理学会 2010 年秋季大会 24pTA-7.
- 6) 例えば, $\text{SmCr}_2\text{Al}_{20}$: A. Sakai and S. Nakatsuji, Phys. Rev. B **84** (2011) 201106(R), または $\text{SmPt}_4\text{Ge}_{12}$: R. Gumenuik *et al.*, New J. Phys. **12** (2010) 103035, など.
- 7) T. Goto *et al.*: Phys. Rev. B **69** (2004) 180511.
- 8) Y. Nemoto *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) Suppl. A, 153.
- 9) K. Matsuhira *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 124601.
- 10) S. Tsutsui *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) Suppl. A, 257.
- 11) I. Ishii *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 084601.
- 12) M. Udagawa *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) Suppl. A 142.
- 13) H. Kotegawa *et al.*: Physica B **403** (2008) 772.
- 14) T. C. Kobayashi *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) SA034.
- 15) M. Mizumaki *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007) 053706.

第一原理計算に基づく理論的アプローチの進展

池田 浩章 京都大学大学院理学研究科



第一原理計算を巡る最近の潮流

重い電子系に限らず，“もの”を研究対象にする我々にとって、物質の電子構造を理解することは、その“もの”の性質を理解する上で欠かす事はできない。その意味において、密度汎関数理論 (DFT) に基づく第一原理バンド計算は、最初になすべき重要なステップであると言える。最近、計算機の急速な発達もあって、第一原理計算を基礎として電子相関の効果を取り込もうとする動きがようやく実を結び始めたように思われる。たとえば、DFT+U や DFT+DMFT(動的平均場)、そして、ここで紹介するワニエ関数による方法は、現在、手に入る有効な第一原理に基づく研究手法である。これらの計算手法の発展は、実験的研究と理論的研究の溝を埋め、いまや定量的な比較を可能にしつつある。

このような中、だれもが使えるバンド計算のパッケージが配布されていることは重要なことである。これまでバンド計算といえば、一部の専門家にしか使用できなかったが、その気になれば、今では誰でも容易に計算可能である。特に、ウィーン工科大学が配布している WIEN2k は、マニュアルもしっかりしており、ウェブベースの GUI も使いやすい¹⁾。ここでは、この WIEN2k を使用する上でのチェックポイントとその発展として wien2wannier²⁾ から Wannier90³⁾ に至るプロセスを概観しよう。何かのご参考やきっかけになれば、幸いである。

WIEN2k によるバンド計算

大学院の修士学生まで阪大基礎工学部の望月・鈴木研究室に在籍していた私は、Linearized augmented plane wave (LAPW) 法によるバンド計算を用いた研究を行っていた。対象としていた系は、NiAs 型の FeSe や FeS、空孔をもった超格子 Fe₂Se₃ である。実に、最近発見された鉄系超伝導体の親戚で、自分がここまで世界的にフィーバーする高温超伝導体のすぐ近くを計算していたかと思うと少し感じ入る所がある。その後、しばらくご無沙汰であっ

たが、自分が使っていた頃に比べて、第一原理計算が随分使いやすくなってきたようなので、再び使い始めたのが、3年前のことである。

バンド計算と一言と言っても、その種類は大別して2系統、all electron と呼ばれるものと擬ポテンシャルと言われるものがある。自分が修士学生の頃に使っていた LAPW 法というのは前者の方法に属し、その発展版をパッケージ化して配信しているのが WIEN2k や KANSAI であり、擬ポテンシャルに属するものには ABINIT や VASP などがある。私の場合は LAPW 法になじみがあったのと f 電子系を念頭においていたので、WIEN2k を使い始めた⁴⁾。

基本的には、結晶パラメータを入力、あとはマニュアルにしたがって、適宜、パラメータを微調整する。昔の LAPW 計算では、マフィンティン近似を使っていたので、そのサイズ依存性などにかなり気を配る必要があったが、WIEN2k にコードされている full potential の計算では、この点はかなり改善されている⁵⁾。むしろ、計算上の注意点は、WIEN2k がいろいろなパラメータを自動的に決めてくれるため、ミスに気づきにくいということかもしれない。少なくとも構造ファイル case.struct を XCrySDen や VESTA で読み込んで、実際に意図した結晶構造になっているかどうかくらいはチェックすべきであろう。最後に、状態密度やバンド構造など欲しいデータを計算して終了である。実際に計算に用いたコマンドの履歴は :log の中にある。

WIEN2k から有効模型を構築

さて、次に WIEN2k の結果に基づいて有効模型を構築しよう。まずはどの辺りのバンドをターゲットとするかを決め、それがどのような軌道成分から構成されているかを知る必要がある。その詳細は case.output2 から得ることができる。次に、wien2wannier によって、Wannier90 の計算に必要なブロッホ関数間の重なり積分、ブロッホ関数とワニエ基底の試行関数の重なり積分を計算する。これら

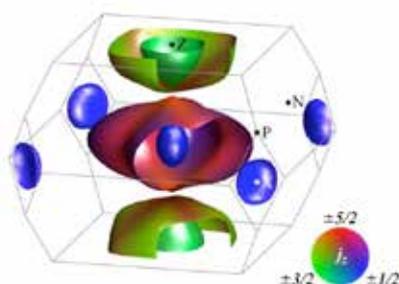


図1 J_z 成分で色分けされた URu_2Si_2 のフェルミ面。

は、`case.mmn` と `case.amn` に保存される。Wannier90 はこれらの行列要素を元にしてバンド計算で得られたブロッホ関数からワニエ関数への変換を行う⁶⁾。

具体的な手順

1) まずは Brillouin zone 全体におけるブロッホ関数の情報を取り出すため、系の対称性を考慮せずに `lapw1` を走らせる必要がある。ここでは、`wien2wannier` のヘルプにしたがって、`init_w2w` を実行しよう。このとき `case.struct` が `case.ksym` にコピーされる。`case.ksym` では、NUMBER OF OPERATIONS を 1 に、その下の行列を単行行列に書き換える。続いて、`kgen` が実行されるので、まず、0 を入力、Specify 3 mesh-divisions (n_1, n_2, n_3) と聞いてくるので、例えば 8,8,8 とか入力してみる。すると、512 個の k 点が `case.klist` に生成されるので、ここで `init_w2w` を終了し、`lapw1` を実行する。

2) 次に、バンド構造と `case.output2` を参考に、どの辺りのバンドを抽出するかを決め、`write_w2win` を実行して `case.w2win` ファイルを生成する。

3) Wannier90 で使用する `case.win` ファイルを作成するため、`write_win` を実行する。Wannier90 のマニュアルを参照して、バンドの本数やワニエ軌道の数、エネルギー範囲を修正する。`projections` には `case.w2win` ファイルで指定したワニエ軌道と同じ数の軌道を指定する。

4) `write_w2wdef` を実行し、`w2w.def` を生成する。

5) 以上で準備が整ったので、`wannier90 -pp case` で `case.nmkp` を生成後、`w2wr w2w.def` を実行。バンド数が多くなると相当時間がかかるが、Wannier90 に必要な `case.amn`、`case.mmn` が生成される。最後に、`wannier90` を実行して終了。`case_band.dat` が `case.sphagetti_ene` の結果をうまく再現していれば OK である。軌道間の遷移積分の情報は `case_hr.dat` の中に出力されている。

この一連の作業によって第一原理計算で得られたバンド構造の実空間表示、つまり、tight binding model が手に入る。その利点の一つは、電子状態の情報を引き出し易いことである。例えば、フェルミ面を構成するバンドの軌道成分を引き出し、それを重みとしてフェルミ面を描いたりすれば、これまでの白黒フェルミ面と違って、格段にその情報量は増える。よくご存知のように、フェルミ面は「金属の顔」

と呼ばれるが、これまでは白黒で「顔の輪郭」だけしか分からなかったのが、今では「顔色」が分かるようになったと言える(図1)。このような情報が比較的容易に手に入れられるようになったのは、最近の進展の一つであろう。

今後の展望

我々は、最近、このような方法論に基づいて URu_2Si_2 の有効模型を構築、その遍歴模型に基づいて様々な相関関数を定量的に評価した⁷⁾。この成果は、重い電子系の研究において、いままで欠けていたパズルのピースを一つ埋めることができたのではないかと考えている。同様の処方箋は、これまでに培われてきた強相関系での数値計算手法と組み合わせることで、より定量的な理解を推進するであろう。実験との定量的な比較は、問題点をより浮き彫りにし、さらなる発展、ひいてはイノベーションに繋がると考えられる。また、物質依存性などが定量的に理解できるようになることは、マテリアルデザインの可能性を視野に入れて研究できるということである。まだまだ道半ばではあるが、楽観的に見れば、第一原理計算による新物質の創成、物性予測の有効な時代の幕開けに立ち会っているのかもしれない。今後の発展が期待される。

参考文献

- 1) 本家のウェブページ <http://www.wien2k.at/> にあるリンク集や <http://www5.hp-ez.com/hp/calculations/page23> など参照。
- 2) J. Kunes *et al.*: *Comput. Phys. Comm.* **181** (2010) 1888. http://www.wien2k.at/reg_user/unsupported/
- 3) A. A. Mostofi *et al.*: *Comput. Phys. Comm.* **178** (2008) 685. <http://www.wannier.org/>
- 4) 一般に、重い元素の計算は all electron の方が無難である。
- 5) もちろん全エネルギーの計算や収束の早さには効いてくるし、構造緩和などを行うときには注意が必要である。
- 6) ワニエ関数自身は、`case.mmn` と `case.amn` の2つのファイルが存在すれば構築できるので、バンド計算は WIEN2k である必要はない。
- 7) H. Ikeda *et al.*: *Nature Phys.* **8** (2012) 528.

Few Points

Jacques Flouquet CEA Grenoble



In this short letter, I give my feelings on quite different points in basic research: the key role of observation in experimental studies, the necessity to balance a network and individual originality, the grant selection process for young researchers, the importance of preserving your own Japanese way of life, the great ability of Japanese researchers in foreign laboratories and their difficulty to enjoy holidays.

1. Observation

Listening to lectures, the general impression may be that theoretical insights are the conditions for major discoveries. The reality is quite different since main breakthroughs even in SCES originate from a quick observation on an unexpected piece of tiny material inside a crucible. An illustrating case was the discovery of Ce 115 superconductivity which allowed huge progress on the interplay between magnetism and unconventional superconductivity.

Z. Fisk was surprised to find during a flux growth of some intermetallic compound a strange shiny crystal identified later as CeIrIn₅···, it took two years before a Los Alamos gentleman starts the characterization and the “DOE cavalry” with his general Joe rushes to the 115 mine for even better nuggets (CeRhIn₅ and CeCoIn₅). Today, the current believe is that the entrance into 115 territory was the fruit of deep thinking that inserting a TIn₂ block inside the CeIn₃ cubic structure will boost superconductivity by introducing a bi-dimensional character···. It is a real pity that the true story is by-passed as it may put the young in the wrong direction to a dogmatic instead of an optimistic approach to science ···, let us try something and observe. An interesting question is why clever experimentalists are often lucky···, why luck is not a random process? My message to experimentalist is : don't forget to pick up the unexpected object, to measure and to understand its behaviour with an open mind···, when you become tired, try to meet a positive theoretician.

2. Network and Originality

Of course, to develop a field and a sound network is a necessary route to get funding, a position and notoriety. I doubt that major discoveries will arrive if the initial route of the proposal is followed rigidly. So the great challenge is to be able to select a borderline researcher who will open real new frontiers which cannot be expected in the initial document. A great quality of the heavy fermion community is to have chosen a medium size with continuous developments notably by the successful discoveries of new materials (recently for Ce 115 superconductors, non centro-symmetric superconductors, for uranium ferromagnetic superconductors, exotic Ce or Yb non Fermi liquid, cage compounds···) . I am quite amazed that the interest in heavy fermions persists after more than three decades, even through the forced march of oversized armies on high T_c superconductors or now on pnictides. When I participate in large international conferences, I have the feeling that physicists of the other domains are quite positively impressed by the soundness of heavy fermion research···. The next challenge with the retirement of major SCES members is to find perspectives with a good balance between the resolution of identified problems and advances into unknown territories.

3. Grant selection for young researchers

One year ago, I participated in a panel of the European research council which delivers large grants for suspected bright young researchers (1.5 M Euros for Five years/ 46 grants in condensed matter). My main conclusion is that despite very serious work of the 12 committee members we hear mainly quite conventional approaches in the presentations of the young candidates which mimic either the program of their previous boss or treat an up-to-date subject. Among 80 selected candidates in the first run, only a very few show great originality and also a clear novel personality outside a nice music between experimental and theoretical challenges···. From this

experience, I have the feeling that to judge the capacity of a young researcher we need really to have specific criteria notably how the candidate has demonstrated his own originality which may be quite different to signing a paper in Nature or Science with his boss ... Unfortunately a one-week committee is too short a period to detect the new genius... However in the final 30 minutes oral presentation, it was quite easy to detect the strength or weakness of a project even if you are not an expert in the field. The main trivial advice is never use words if you don't dominate their significance: referees are dangerous animals who feel out the weak point of the prey.

4. Physical Society of Japan

The strength of the SCES clan in Japan is that it is mainly held in Universities with a close interplay between students and professors. Moreover the semester meeting of the physical society plays a major role in the motivation towards new results with freshly arriving master students. Basically the scientific information is delivered not only by the classical way of publications but via multiple oral presentations. At least in the field of SCES, the journal of the Physical Society of Japan is quite competitive by comparison to fancy appealing magazines. My personal feeling is that it is far better in term of soundness and robustness of the data. The world scientific community is very lucky that the scientific life in Japan has continued to preserve its own originality less oriented to fashion and pressure groups than the USA model. With the quasi-collapse of Russian publications, the Japanese case must be preserved and if possible enhanced towards the recent scientific development in Asia..., notably in China and Korea. In the strong international competition in order to attract excellent students, my Japanese colleagues must really improve their attractive power not only for postdoctoral fellows but also for master course students.

5. Japanese visitors

Japanese visitors have played a major role in the scientific development of my surrounding thanks to long term visitors but also recently by the short term visits of master course students through global excellence program. The Japanese physicist has an exceptional ability to find almost immediately his position in the group with

no specific aim to soon get the Nobel prize (illness quite common with Cambridge students). The real difficulty is (1) to push them to take holidays and (2) to help them to focus on an unique location instead of accumulating touristic hot spots. Finally there are a few Japanese phenomena who catch the good French habits such as two weeks holiday in Luberon with fresh Provence Rose Wine, Concerts at the Roman theatre in Orange and quick visits to a topless beach in the South East...

6. The retirement transition

My image of Japan university life is that the Professor keeps his full scientific power up to his first order retirement point where then his full activity inside the university stops. This drastic transition is reinforced by a large drop in salary associated often to the wife starting to complain. Her current idea is that to maintain a nice family life, a new busy position in a private university will be excellent..., at least for her. Wives of Japanese colleagues have become very strong on approaching this critical period, The poor professor arrives exhausted by a combination of various meetings necessary to declare a decision already well known and the accompanying drinking, to return to the normal life.

In French scientific life, the situation is quite different as usually you go through the retirement point via a large crossover transition which allows to preserve some office over one decade and also to maintain basically a pension at the level of your salary. The key issue is then to have a strong scientific interaction with your colleagues. Basically, it means to have make the choice to escape to any administrative duty. With this decision, you loose your power far before the critical transition by the combined effects (1) of a system not based on university life but on factory life with operating managers (2) of a status of researchers who enjoy to be independent. In my case, the paradox is to be completely ignored locally by the authorities (basically on national record I have ready disappeared) and to continue to be attractive abroad notably among young Japanese researchers. Entering now in the next seventh decade of life, my therapy is to interact with the young and to attack with them simple physical problems.

When I go to Japan, I have a very busy schedule with

interplay of retired friends and lively laboratory life in Osaka University. My last trip in April with Y. Miyako was devoted to Shikoku, the hot spots were the beautiful coast around Kochi, the walk of the henros along the Buddhist 88-temple pilgrimage road and the Dogo Onsen in Matsuyama. I realize also that the Japanese can decide to open a large museum just on one idea such as the Sakano-ueno museum on the book of Ryotaro Shiba ..., in reality a far cheaper monument than the ring of the CERN to verify the Higgs boson existence. I still need Japanese help to go far deeper in Shiba mind as this popular book is yet never translated.

7. Domo arigato

To conclude, I am glad to express my thanks to many friends and colleagues. J. Sakurai introduces me to Japan culture via his own view but also the rich and warm personality of his sister Mizuho and brother in law Osamu Funasaka. Y. Miyako drives me early on to the beautiful site of Koyasan and during decades through his nice driving to many places of Kansai, Hokkaido and recently Shikoku areas. K. Asayama pushes me to become a good expert of railways schedules and to increase my view of various Japanese universities thanks to his multiconnected NMR network and associated guest houses... He is still my teacher of Japanese history. K. Amaya follows me on the Japanese sea coast from Hagi to the top of Tottori dunes with K. Asayama as copilote they drive us to many Kyushu sites. Y. Kitaoka and K. Miyake were very kind

to maintain the collaboration between Grenoble and Osaka initiated with K. Asayama. The optimism of the first helps the students to climb up many summits; the second becomes my favourite theoretical doctor with kind secretaries acting as efficient nurses. Very often we miss the ring of the Hankyu train approaching Ishibashi. The visit to Y. Onuki laboratory is always a source of inspiration; I was very lucky in the last decade to interact with many of his collaborators (D. Aoki, Y. Haga, T. Matsuda, R. Settai), to hear his musical performance and also to see that his junior designed fishing net will participate to his new life in Okinawa. H. Harima helps me to follow the status of the deep slow writing of Pr. T. Kasuya, to participate in the skutterudite pilgrimage with the guide Pr. H. Sato; he is still very kind to help me to recover my way in the forest of reciprocal space. S. Kambe is now a mixture of french and Japanese citizen...; even it seems that his French way of speaking keeps tracks of Japanese grammar and his Japanese approach is not fully classical thinking slowly the French mind enters in his Japanese education. I was very lucky to collaborate with him at the hard time where I was a boss of the laboratory. K. Izawa is the mysterious case as without any French speaking he integrates all the positive points of the French life...; clearly he has additional extra sense. To finish, let me hope that my recent Japanese young collaborators in Grenoble find the opportunity of a fruitful scientific life in their homeland and that some revolutions will come from them..., like in Hagi just before Meiji period !!!



グルノーブルより

青木大 CEA-Grenoble, 東北大・金研



ポスドクとして2000年から2002年まで2年間、
 研究員として2007年から現在まで5年間、かれこ
 れ7年もフランスのグルノーブルに滞在していま
 す。今年の四月からは東北大・金研にポジションを
 得たのですが、グルノーブルのCEA（フランス原
 子力庁）にも籍を残しているの、しばらくの間は
 日本とグルノーブルの間をいったり来たりするつも
 りです。

私は、学生の頃から海外に行くのが大好きで、阪
 大の大貫研にいたときも液体ヘリウムの供給が止ま
 るからという理由をつけて、夏休みは一ヶ月間、東
 南アジアの国々やインドなどをあっちこっち旅行し
 て回っていました。研究室に外国人研究者がおりフ
 ラックス法による単結晶育成を教わったり、杉本良
 夫著『日本人をやめる方法』（なかなか刺激的なタ
 イトルですね）という本の影響もあって、博士の学
 位を取ったらどこでもいいから外国に行きたいと思
 うようになりました。

グルノーブルに行くことが決まったのは、全くの
 偶然です。当時出入りしていた原研・先端研に神戸
 振作さんがグルノーブルから戻って来て、彼からポ
 スドクを探しているという話を聞いたからです。今
 から考えると、グルノーブルという恵まれた研究環
 境の元に行けたのは、本当に幸運としか言いようが
 ありません。当時、イチローがアメリカ大リーグに
 行って活躍を始めたばかりだったので、私の心の中
 は「めざせ、物理界のイチロー」でした。そういえ
 ば、物理界の長嶋茂雄もいましたね。

フランスにいとまず最初に問題になるのが言葉
 です。7年もいれば、フランス語はペラペラだろう
 とよく言われるのですが、恥ずかしながら未だに上
 手くしゃべることができません。相手の言っている
 ことは大体分かるのですが…。そもそも、研究室に
 いるとフランス語をしゃべらなくてもなんとかかやっ
 ていけちゃうので、私のフランス語を話す能力は5
 年程前から低空飛行を続けています。たぶん、私の
 努力が足りないんでしょう。しかし、それ以上に、

フランス語で相手に何かを伝えるという、気迫とい
 うか気概のようなものが重要だという気がしていま
 す。その点、私のつれあいは、下手ながらも、臆せ
 ずにフランス語で意思を伝えようとするので感心し
 ます。マルシェのおじさんともすっかり顔なじみ
 で、ビズを交わして世間話をしたあとよくメロンと
 かキュウリとかをオマケしてもらっています。ちな
 みに、ビズというのは、女性と男性、あるいは女性
 同士が挨拶をするときに頬と頬をくっつけて2回
 「ちゅっ、ちゅっ」とする行為です。音をきちんと
 鳴らすのがなかなか難しいです。最初はやはり緊張
 します。S.W.さんはグルノーブルに来たばかりの
 ころ、喜んでいましたけど、私の家に貼ってあるビ
 ズ・マップによるとフランスでも地域によって回数
 が異なるらしく、例えばブルターニュ地方は4回も
 するそうです。フランス人はいつでもやっているの
 で、食事のときとか、髭もじゃのおじさんのときと
 か、風邪をひいてごぼごぼやってる場合とか、端か
 ら見ていてとても気になります。

さて、グルノーブルに来て、一番何が良かったか
 と問われると、やはり研究環境の良さ、そして生活
 環境の良さでしょう。研究環境の良さというのは、
 まず(1)多くの研究者が身近にいて物理を議論する
 環境が整っているということ。(2)重い電子系の物
 理の黎明期から続いている長い歴史。(3)CEAの極
 低温・超高压のグループ、強磁場施設のLNCMI、
 中性子散乱実験ができるILL、放射光施設ESRFな
 ど大きな研究所が集まっていること。(4)長い歴史
 に支えられた技術的なサポートの良さ。(5)雑用が
 少なく研究に集中してとりくめる体制、などが挙
 げられるでしょうか。

(1)に関して言うと、やはりJacques Flouquetの存
 在の大きさが際立っています。グルノーブルに何度
 も来ているリピーターの方々は納得すると思うので
 すが、Jacquesと話をしていると、ブラックジョーク、
 他人の罵詈雑言を含めていろいろコメントをもらい
 ます。いい加減なことを言っているなあ、と思うこ

ともしばしばですが、非常に重要な指摘もあります。指摘を受けると、自分でもう一度考え直すことにつながって考えを進化させることができます。彼から私が学んだことは、重い電子系の物理はもちろんですが、熱力学の大切さ、そして自分の頭で考えることの大切さです。

(4)については、まず、技官によるサポートが充実しているということが挙げられます。私たちのグループには、低温、機械工作、高圧技術、電子回路、試料育成、安全といったそれぞれの分野で少なくとも一人ずつ技官がいます。個人差はありますが、皆たいへん優秀で強力なサポートをしてくれます。たとえば、研究室にある冷凍機（その大半は希釈冷凍機）は、ほとんどが低温の技官による手作りです。おそらく研究者の数よりも希釈冷凍機の数の方が多いと思われます。低温に関して言うと、こちらには、温度計を読むための市販の抵抗ブリッジがほとんどありません。そのかわりに、ORPX2, TRMC2, MMR3 といった独自の装置が使われています。これらも、グルノーブルにある CNRS の技官らによって開発されたものです。機械工作にしてもしかり。手描で図面を持って行くと、見ている目の前でさっさと部品を作ってくれます。こういった技術サポートの手厚さは、Louis Néel あるいはさらに遡って Joseph Fourier らが築き上げていった科学研究の中心地としてのグルノーブルの歴史に支えられたものだと思います。

もちろん良いことばかりではありません。一番困るのが、皆やたらと長い休みを取ること。頼み事があっても、そのせいで仕事が中断あるいは忘れ去られてしまいます。夏休みですとスタッフでも2、3週間は当たり前前に休みを取りますし、さらにクリスマス、復活祭、11月の初め、2月から3月にかけては休みをとることがあります。だいたい学校

の休みに合わせて親も休みを取っているようです。人によっては、年休を貯めて6ヶ月近くも休んでいることがあります。これにはさすがに周りのフランス人も驚いていましたけど。しかし、フランス人がエライのは、こういった長い休みを躊躇せず当然の権利として取るということです。彼らは年休が残っていると「休みをとらなきゃいけない」といいます。権利というよりもむしろ義務だと思っているフシがあります。日本だと、周りに迷惑がかかるからと、躊躇しながら休みをとることが多いのではないのでしょうか。ちなみに日本人が休みを取らないというのは、よく知られていて、一生懸命仕事をするというときに、「典型的日本人のように」と付け加えれば一つのジョークになります。ですから「典型的」でない日本人が来ると非常に驚かれることになります（コーヒーブレークの J. Flouquet の記事参照）。

ところで、フランスの研究所でも、最近は研究者が競争的資金を獲得するように求められています。2005年から ANR という組織ができて日本の科研費に相当する制度が始まりました。ERC (<http://erc.europa.eu/>) というヨーロッパのグラントも2007年にスタートしました。国籍を問わず、EU 域内の研究所・大学をホスト機関として行う研究を助成する制度です。このうち starting grant という枠組みですと、博士の学位をとって2~7年の若手研究者に応募資格があります。5年間で最大200万ユーロ（約2億円）という大型予算です。私もこの予算を獲得して、ポスドク、博士課程の学生を雇い、冷凍機を購入したりしています。ERC の名声は EU 内できわめて高いので、これを持っていればどの研究機関でもウェルカムだと思います。ですから、ぜひ日本の若手研究者は ERC に応募してヨーロッパに来ていただきたいです。Welcome to Europe, and welcome back to Japan!

理論文献の分別利用ガイド

倉本 義夫 東北大学理学研究科



学問に王道はないが，脇道や間道はある．当初はよい道のように見えて途中から断崖にはばまれて進めなくなる道や，少々のヤブコギをすると短時間で展望が開ける道もある．本稿では，広い意味での強相関電子系理論，すなわち多体問題に関する文献の読み方について，ささやかな道案内をしたい．ただし本稿で紹介する具体的文献はわずかであり，しかも偏っていることをはじめにお断りする．標準的な教科書・専門書については，本ニュースレター Vol.2, No.1 にある佐宗哲郎氏の記事を参照してほしい．

さて床屋に行くと，たいがい週刊誌がおいてある．順番を待つ間にパラパラとめくると，私のようなミーハー志向の熟年には興味をそそる記事が多くある．読んでみると，センセーショナルな見出しとは裏腹に，内容は大したことの多いものが多い．しかし文章は，大方の物理屋の書いたものに比べて，はるかにわかりやすい．もちろん私はここで週刊誌の存在意義を論ずるものではない．言いたいことは，強相関物理学分野の論文を掲載する一部の雑誌には，このような週刊誌に似ているものがある，という観察である．

数年前にこれらの雑誌に次々に掲載された捏造記事は別として，今ではデータ自体の誤りの類は多くないと思う．ただし，その結果の解釈は奇想天外が旨とされ，間違っているものが多いように私には見受けられる．この原因はもちろん，記事のおもしろさが第一で，その根拠や真偽は二の次という編集方針にある．この点は床屋においてある週刊誌と酷似している．このような観察に，当該雑誌（や週刊誌）の編集者はもちろん同意しないだろうし，実質的な編集方針について私が確固とした根拠を示せるわけでもない．

強相関系の分野で日々蓄積される膨大な文献は玉石混淆であり，残念ながら玉は非常に少ない．通常の学術雑誌では，専門家の閲読が介在する．明らかに間違った論文や，議論に不備がある論文は修正を

要求されるか，掲載を拒否される．それに対して，物理学のプロを自負する人は，自力で本物と偽物を見分けられると信じている．このようなプロは，新しく興味ある結果が載っているような週刊誌記事に関心を示すし，閲読による選別に頼らず，プレプリントの段階で新しい成果を知りたいとも考えている．この要求に答える媒体として，最も有益なものはオンラインで誰でもアクセスできる arXiv，特に cond-mat だろう．ほとんどの理論の論文は，出版前にここからダウンロードできる．最近では，実験の論文もかなり登録されている．したがって，文献情報に関する限り，永らく大研究機関と大先生のみ与えられていた特権がなくなってしまった．

インターネットはさまざまな側面で社会を変えたが，学術情報へのかなり平等なアクセス可能性という点においても明確な相転移をもたらした．一方，初心者がプレプリントや興味本位の雑誌にある論文を読むときには注意と警戒が必要である．選別には身近にいる先達の助言が役に立つだろうが，本人のセンスが最も重要である．特に理論家をめざす人は日頃から文学や美術，あるいは音楽などでよい物に親しみ，本物とまがい物を見分けられるように自らの鑑識眼と審美眼を養っておくことが望ましい．

我々は日常生活において，時間をかけて吟味すべき情報と，短時間で要点を知るべき情報を分別して利用している．同様に，物理の文献を読む際にも，用途に応じた分別処理を行うべきである．原論文については，短時間で斜めに読むべきものがますます増えている，たまに昔の格調高い論文をじっくり読むと，心が洗われる気がするが，昔の論文や教科書ばかり読んでいると，猥雑な盛り場にも似た最前線の活気と緊張感は味わえない．逆に，最新の文献だけ読んでいると，興味が皮相的・近視眼的になりがちである．いうまでもなく両者のバランスが重要である．

若い人が十分な時間をかけて学ぶことに値する古典的な書物を，個人的な好みから数点のみ挙げよう．

まず本格的教科書としては何と言っても Landau-Lifshitz のシリーズ (Pergamon, 東京図書, 岩波書店) である。これを凌駕するものは未だに現れていない。万能の巨匠 Landau の弟子を志す若者には、シリーズすべてを理論ミニマムとしてマスターすることが要求されたという。シリーズのうちのどの本が好きか、ということで物理屋個人の性格が出るように思える。私自身は学部時代に「力学」と「場の古典論」のあまりの美しさに驚愕した。緊密でしなやかな論理の流れは Bach の音楽を彷彿とさせる。「流体力学」が最もよいというプロもいるが、私自身は残念ながらこれを読み通す学力と根気が欠けたままである。物性に近い分野では「量子力学」と「統計物理学」が好きである。はじめは多くの箇所を何と言っているのか見当もつかないが、ひと通り勉強してから読み直すと、他の本では全く触れていないか、あるいは間違っている点がさりげなく説明されていることに気づく。理論物理学とはこういうものか、と学生時代に読みつつも感嘆した。同時に、このように美しい世界で仕事ができたら、なんとすばらしいことかと研究者にあこがれ、曲りなりにも物理を生業として光陰矢のごとく今日に至ってしまった。

物性理論家の世界共通言語である松原グリーン関数の習得については、阿部龍蔵「統計力学」(東京大学出版会) がコンパクトさと内容の充実から第一に推奨される。煩雑さを切り捨て、要点を簡潔・明快に説明する筆致は、吟味された食材を手際よく仕上げた日本料理を連想させる。この本のスタイルは、アプリコソフ他「統計物理学における場の量子論の方法」(東京図書) とは対極にある。後者は私を含めて同世代の多くの理論志望者にとって定番の本であったが、雑多な食材をかき集めてこってりと調理した感がある。今読み返すとメタボを誘発しそうである。

より個別的な題材を扱った良書としては、現在

ではあまり知られていない Pines-Nozières "The theory of quantum liquids" (W.A.Benjamin) を挙げたい。周知のように Nozières は近藤効果で切れ味のよい議論を展開したが、この本でも、多体問題はこう扱うのだよ、というお手本が随所に銜いなく現れる。Landau の Fermi 流体に関しては、簡潔すぎる原論文を読んでもピンとこなかった私が、Pines-Nozières ですっきりと納得した記憶がある。

物性理論の和書の中で、中嶋貞雄編集「物性 II」(岩波講座現代物理学) は私が感動して読んだ本の筆頭である。とりわけ、豊沢豊教授の光学応答と素励起の記述は深い内容をわかりやすく述べている。私が大学院修士 1 年の時 (1972) には、豊沢先生の講義があり、その内容は本書に対応していた。ちなみに、同じ年には守谷亨助教授の磁性の講義もあった。誕生したての守谷・川畑理論には、通常の大学院講義では触れられなかったが、同年の物性若手夏の学校では、守谷先生の講義「磁性と電子相関」でそれに至る着想を解説してくれた。この講義は、磁性研究の歴史に関する該博な知識を背景にして、電子相関の概論から現在進行中の研究紹介に至るものであり、多体問題の魅力が溢れていた。

振り返ると、若い多感な時期に読んで感動した書物の影響は、人の一生にわたることを痛感する。真剣に取り組む本の選択には、人との出会いと同様に運命的な要素もある。私が若い頃に時間をかけて読んだ文献の中には、ほとんど陽の目をみないオタク的な書物や、ソ連の雑誌とくに JETP の論文も相当数あった。概ね、へそ曲がり red herring に惑わされたというべきところだが、中には掘り出し物もあった。古典的文献と床屋の週刊誌を組み合わせる適正割合は人ごとに異なるが、実際に多くの人々が読んで感動し、時代の試練にも耐えた書物や論文には、文学や音楽の古典と同様に相応の重みがある。

国際会議報告：ICM2012

小手川 恒 神戸大学大学院理学研究科



7/8～13の間、釜山(韓国)で開催された「International Conference on Magnetism 2012」に参加してきました。私を含め多くの方が初めての訪韓だったようで、我々にとって適切な(辛すぎない)飲食店を選ぶのに悪戦苦闘しながら過ごしてきました。中にはおなかの調子を壊した方もおられたようですが…。一部例外を除けば、食事は非常においしく満足で(しかも安い!)、個人的にはコンビニに売っていた生マッコリ「センタク」が大変気に入りました。釜山は会議場の周りや中心街は華やかで近代的ですが、昔ながらの市場も衰えることなく残っており、新旧が入り乱れている印象を強く受けました。そういえば Banquet のショー(韓国伝統舞踊とブレイクダンスの掛け合い)もそのようなコンセプトとなっていました。

さて、会議の方を振り返ると、まず Coleman らによる hastatic order や Balatsky らによる hybridization gap の話など URu_2Si_2 の hidden order に関する多くの発表がありました。また、Si がタイプの異なる量子相転移を次元性などで分類する global phase diagram を示しました。実験家も $YbRh_2Si_2$, $Ce_3Pd_{20}Si_6$, $YbPtBi$ などの振舞いをその相図上で説明しようとする試みが目立ちました。Ce 系では Kaczorowski らによる Ce_2PdIn_8 の超伝導の話題や、Maple らによる $CeCoIn_5$ に対する Yb 置換、Lu らによる $CeRhIn_5$ の圧力下における非バルクの texture 超伝導、常盤らによる $CeCoIn_5$ のエントロピーからの FFLO 状態に対する考察などがありました。強磁性体の方では Geibel らが $YbNi_4P_2$ 及び As ドープの系で強磁性の量子臨界点の存在を、バンド計算から示唆される 1 次元的なフェルミ面のために 2 次相転移が低温まで保たれるというシナリオで指摘しました。URhGe では Yelland らが、観測したフェルミ面はまだまだ小さいものの量子振動の観測と磁場誘起の Lifshitz 転移について報告しました。やはり Lifshitz 転移や Kondo breakdown などは最近のトレンドで、フェルミ面の変化の重要性を再認識させられる会議でした。ただ、これらキーワードが乱用されていた感もあり、直接観測できる量子振動実験の重要性を痛感した次第です。(ちなみに帰国後の 7 月下旬、菅原さんたちが記念すべき神戸大初の dHvA 信号を観測しました。)

毎度おなじみの参加者数ですが、大方の予想通り日本人がトップの 567 名、次いで韓国 505 名(ただし発表者は 7 割程度のようなので)、ドイツ 103 名と続いておりました。気になったのはドイツ以外のヨーロッパ各国の参加者の少なさで、abstract を提出したものの参加しない人の割合が半数程度でした(経済状況のせいだと思いますが…)。同じくアジア開催の来年の SCES に向けても気になるところです。来年の SCES と言えば、聞いたところによると若手賞(賞金あり)なるものが作られるそうです。残念ながら私はもう若手に入っていないようなので、さらに若い方にぜひ獲得を目指して頂きたいところです。Banquet でも韓国物理分野の最近の進展をアピールしていましたが、今後、同様の国際会議が開かれる機会も増え、また、おいしい生マッコリに出会えることを期待しています。



会議場となった BEXCO。2002 年ワールドカップの抽選会が行われるなど大きなイベントが開催されているらしい。



播磨先生、三宅先生とコプチャン(牛の小腸)をいただく。

The fourth International Workshop on the Dual Nature of f-electrons 報告

関山 明 大阪大学大学院基礎工学研究科



The Fourth International Workshop on the Dual Nature of f-electrons が 2012 年 7 月 4 日 (水) ~ 6 日 (金) に JR 姫路駅前のじばさんビルで行われた。私自身はこのワークショップ参加は今回が初めてだが、これまで 2006 年, 2008 年 (いずれも Santa Fe で開催), 2010 年 (Dresden で開催) に開催されている。今回は本新学術領域研究により組織及び支援され, ICM2012 のサテライトシンポジウムという位置づけでの開催であった。参加者 70 名程度でその大半は国内からの参加, 海外からは米国から 6 名, 欧州から 10 名, アジア (韓国) から 1 名の参加であった。個人的には姫路から近い (といっても車で 30 分はかかるが) SPring-8 でのビームタイム中の参加となり, 初日にはセッション終了後 SPring-8 と往復, 最終日終了後も SPring-8 に "戻って" 実験というような慌ただしい状況 (でも 2 日目夜はしっかり参加させていただきました) だったが実りあるものでもあった。以下個人的印象が中心になり恐縮だが本ワークショップについて報告する。

ワークショップは Zwicknagl 氏の主として U 5f 電子の電子相関を俯瞰した Keynote lecture で幕を開け, 初日は重い電子系超伝導, 超ウラン化合物, Flatland も含む Ce 系といったテーマで構成された。普段 4f 電子系の光電子を相手にしている私は, 重い電子系の準粒子成分を $z \sim (m^*/m_b)^{-1} \ll 1$ (m^* , m_b はそれぞれ有効質量, バンド質量) として観測にかかる 4f 成分の大部分が $1-z$ 成分ということもあり Dual Nature のうちの局在性に直面することが圧倒的に多いが, 5f 電子系の中心となる U 化合物でもやはり局在性が重要な役割を果たすという基本を再確認する Keynote lecture であった。一方で 4f 電子と 5f 電子では局在性が大きく異なることは, 例えば光電子スペクトル形状の雰囲気から U 系と Ce, Yb 系では随分違うことでも実感する。にもかかわらず共通の土台で議論でき, 本ワークショップ初日のように 4f 系と 5f 系の話と同時に聞いても違和感がないというのはよくよく考えてみれば不思議にも感じ

る。もっとも私自身は議論に参加というよりも何とか話についていくという状態であったが, その中で佐藤憲昭氏の U 化合物超伝導で「反強磁性と超伝導は競合するが強磁性と超伝導は共存できる」というフレーズが, 経験則的には知られていることではあるが印象に残った。また, 動的平均場理論に関連した成果では, この日最後に発表した Shim 氏の計算がある。氏は計算で得られた電子構造の温度依存性を動画でカラフルに紹介し, もっともな結果にもみえるが実際にはどうかというところは近い将来実験的にキチンと解明しなくてはと感じた。

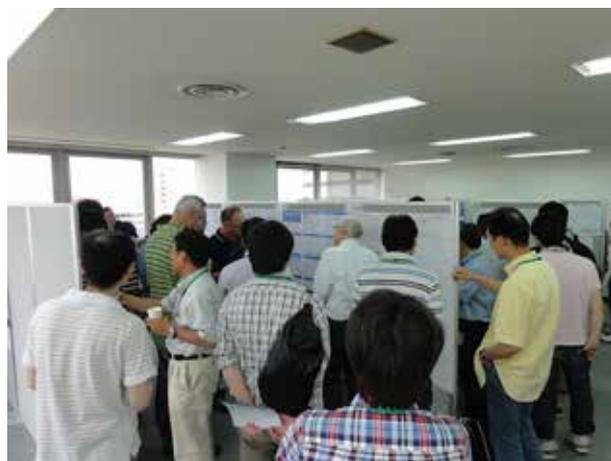
2 日目は URu₂Si₂ のみで構成されたプログラムだった。この系を研究対象としくこれまで傍観者のかつ単発的に話を聞くだけの (よって何となく聞き流しがちな) 私にとっては勉強になると共に色々考えるところが多かった。周知の通り URu₂Si₂ の "Hidden Order" (HO) は, 相転移自身は隠れている訳でもなんでもなく比熱や電気抵抗で極めて明瞭に (それも 25 年以上前に) 観測されている。また, 今号の記事にある吉田氏・横谷氏のレーザー ARPES や今回の発表であった Santander-Syro 氏の ARPES でも相転移による電子構造変化が最近観測されている。問題は, 相転移が生じてどんな相になっているのかが (当初は反強磁性だろうという見立てだった, と後で播磨さんから聞いた) 不明で, 何らかの秩序が起きていると考えるのが自然なはず



なのに実験的にその証拠が今のところ全く観測されていないことにある。総じて日本の研究グループはHOの起源を $5f$ 電子の広い意味での局在性に求めているのに対して米国のグループは遍歴性を前提とした研究展開をしている、というような印象をもったが、悪く言えば「それぞれが言いたい事を言っている」状態のようにも感じた。実験的にはARPESだけでなく芝内氏の発表した磁気トルク精密測定などでここ数年でも色々な情報が得られているが、見えた=分かったとは必ずしもならないところにDual Natureの醍醐味・面白さ、そして難しさが典型的に現れているのであろう。理論的にも楠瀬氏、池田浩章氏らの発表そして播磨・三宅・Flouquet氏らによる群論による考察等にあるように進展著しい。にもかかわらずHOの正体に対して百花繚乱のような様相をみせているのは、この日最後にMydosh氏が「何故今のところ他の物質では生じず URu_2Si_2 でしか生じていないのか？」と問いかけていたように、HOという現象が URu_2Si_2 でしか見つかっていないことが一つあるだろう。本当に一体何故他の系で見つからないのか不思議だ。もう一つ、これは私自身がこの系の物理に何の貢献もしていないことを棚上げすることだが、話を聞いていて気になったのは様々な理論が「実験したら定量的にどれくらいの強度で観測にかかるか」をうまく提示できていないことで、これではなかなか決着しないだろうと思ったものである。後で理論の方々から話を聞くと定量的な議論や予言は相当難しいとのことである。しかしそれでも物理の歴史的發展経緯をみればやはり最後は定量性が理論・模型の可否に決着をつけており、今後いかに定量的な議論に進めて行けるかが進展への鍵になるのではないだろうか？定量性という点では強度 z の準粒子成分も $1-z$ の局在成分も観測できるはずの光電子分光もなかなか進んでいない面があり、 z がどれくらいなのか m_b をどうとるかということも絡んで自明ではない。このあたりが精度はともかく定量的に判明すれば理論の助けにもなるのではないかと感じた。ものすごく大雑把な捉え方をすれば、局在性／遍歴性のどちらかにこの現象が起因するとしても準粒子成分と局在成分とは密接につながっており実験すればどちらの成分でもHOに関

連する効果が観測されるであろう。そうすると最後は定量性がものをいうはずである。この日最後は URu_2Si_2 に関するPanel Discussionという予定が結局Mydosh氏による URu_2Si_2 のレビューという趣きだったがこれはこれで論点が整理され分かりやすかったと思う。

最終日は午前中だけであり、ここ数年単結晶育成が目覚ましいYb化合物のセッションが中心であった。Vyalikh氏は数年前からYb化合物の非常に高分解能なARPESを報告しており、このエネルギーではどこまでバルクを見ているのかという問題が常につきまとう（Vyalikh氏もそれをよく認識している）ものの、改めて美しいデータを見せられると多に刺激される。日本のグループでは松波氏と保井氏がそれぞれ実験したビームラインの特性を生かしたYb化合物のARPESを報告した。最後のU化合物セッションに関しては、最後で気分的に疲れていたからか個人的には今ひとつピンとはこなかった。ポスター発表は27件だったが、これは初日及び2日目の両方に時間が割り当てられたため、ゆとりをもって見る事ができたのではないだろうか。小規模なワークショップならではの良さだと思う。



本ワークショップ期間中は梅雨ということもあり悪天候だったのは残念だったがこればかりは仕方がない。詳細なプログラムやワークショップ中の雰囲気伝える写真は<https://sites.google.com/site/dualnatureworkshop2012/home>にあるので興味をもたれた方は参照いただきたい。なおこのワークショップ、次回は2014年にSanta Feで開催される予定である。

「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ —超伝導、多極子の物理における最近の話題—の報告

世話人代表 榊原 俊郎 東京大学物性研究所



本領域 A03 班の主催による表題のワークショップが 2012 年 1 月 10 日～11 日の間、東京大学物性研究所にて開催された。既に半年以上が経過してしまっていたが、記憶を頼りにここに報告する。A03 班(秩序相班)は A03-001「新奇超伝導相の発見と解明」班および A03-002「多極子自由度に由来する秩序と揺らぎの研究」班からなるが、本ワークショップは両班合同によるもので、プログラムは A03-001 班代表の石田憲二氏と合同で作成した。

本領域申請時、A03 班の目標の 1 つとして多極子自由度に由来する重い電子状態と新奇超伝導の探索を掲げた。尤も申請当時は確かな見通しがあった訳ではなくタフな課題であると自覚していた。しかし本領域発足後、 $\text{PrT}_2\text{X}_{20}$ 系において多極子自由度のみを持つ Γ_3 非クラマース二重項基底状態が実現していて重い電子の挙動を示すこと、また超伝導も発現すること等が次々と見出され著しい発展を見せつつある。そこで今回のワークショップではまず $\text{PrT}_2\text{X}_{20}$ 系に関する現状報告と進展についてのセッションを組んだ。多くの新しい報告があったが、中でも $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ の熱電能の実験結果(桑井氏)は印象的であった。低温熱電能は重い電子状態の存在を判定する有効な実験手段であり、同じく Γ_3 基底を持つ PrMg_3 などでは低温で大きな C/T を示すものの熱電能は通常金属並に小さく、フェルミ準位での状態密度が大きいことが指摘されていた。しかし $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ では重い電子系で期待されるような非常に大きい熱電能が観測された。これは Γ_3 基底による重い電子形成を強力にサポートする結果であると期待している。

20 年来の難問であり本領域の重要課題の 1 つでもある URu_2Si_2 の隠れた秩序 (HO) については、実験理論合わせて 10 件の口頭講演を組み集中的に議論した。角度分解光電子分光や共鳴 X 線散乱、トンネル分光、NMR などあらゆる実験手段を駆使して HO に迫る努力が続けられている。フェルミオロジーからは秩序ベクトルが $(0, 0, 1)$ の可能性が高い(横谷氏, 山上氏)、共鳴 X 線散乱実験では反強四極子秩序の可能性を調べ尽くした(網塚氏)、また ^{29}Si の NMR からは時間反転対称性が破れているように見える(高木氏)ということである。一方、磁気トルク測定に加えてサイクロトロン共鳴の実験からも c 面内の 4 回対称性の破れを示唆する結果が得られ(芝内氏)、理論では第一原理計算に基づいた多極子相間の比較から 32 極子秩序が提案される(池田氏)など新展開があり、HO の解明に向けて重要な局面を迎えつつあるのではないかと期待している。

重い電子系の超伝導では、これも第一世代の物質である UPt_3 の特異な超伝導について、磁場中熱伝導度で観測された c 面内 2 回対称性から従来の様々な実験事実をほぼ矛盾なく説明できるギャップ対称性が提案され(町田氏)、重要な進展があった。ただし磁場中比熱の異方性には同じ温度磁場領域で c 面内 2 回振動が見えないことが報告され(橘高氏)、両者の不一致の理由の解明が求められる。他にも UCoGe における強磁性揺らぎと超伝導との相間(出口氏, 服部氏)や、 CeCoIn_5 と YbCoIn_5 の 2 次元人工超格子における超強結合超伝導(松田氏)または空間反転対称性の破れた超伝導の可能性(吉田氏)など、興味深い話題があった。

本ワークショップではこれらのトピックスを中心とする 25 の口頭講演および 37 のポスター講演が行われた。A03 班には 14 の公募研究があり、Yb 化合物における価数揺動や量子相転移など重要な研究課題もあったが、今回はその多くをポスター講演とさせていただいた。口頭講演は思い切ってトピックスを絞ったのでかなりマニアックなワークショップになった感があるが、全体会議では行えないような特色を出すことも計画研究班主催のワークショップとして重要ではないかと考えた次第である。正月休み明けの忙しい時期にもかかわらず 80 名を越える参加者があり、全体としては大変盛況であったと思う。講演してい

ただいた皆様, 特に URu₂Si₂ に関する実験および理論のまとめという難題を引き受けていただいた網塚氏と楠瀬氏, ならびにワークショップの準備と運営に係わっていただいた関係各位に感謝したい。

プログラム

日時: 平成 24 年 1 月 10 日 (火) 10 時~ 1 月 11 日 (水) 15 時 10 分

場所: 東京大学柏キャンパス

口頭発表会場: 物性研究所 6F 大会議室, ポスターセッション会場: 物性研究所 6F

1 月 10 日 (火)

- 9:00 榊原俊郎 (東大物性研) はじめに
座長: 榊原俊郎
- 10:10 鬼丸孝博 (広島大学先端) 非磁性二重項を持つ PrT₂Zn₂₀ (T=Ru, Rh, Ir) における多極子自由度と相転移
10:40 酒井明人 (東大物性研) PrTr₂Al₂₀ (Tr= Ti, V) における四極子と伝導電子の特異な混成効果
11:00 東中隆二 (首都大理工) 四極子自由度を持つ PrT₂Al₂₀ (T=Nb, Ta) の低温物性
11:20 桑井智彦 (富山大学理) PrV₂Al₂₀ の極低温熱電能
11:40 鶴田篤史 (阪大基礎工) 2 チャンネルアンダーソン格子模型における非フェルミ液体的振る舞い
-- 電気抵抗、比熱、磁化率の計算
Pr スクッテルダイトにおける df 混成と多極子相互作用
- 12:00 椎名亮輔 (新潟大工) Pr スクッテルダイトにおける df 混成と多極子相互作用
12:20 昼食休憩
座長: 網塚 浩
- 13:30 松田達磨 (原研先端研) URu₂Si₂ の試料依存性と輸送特性
13:50 横谷尚睦 (岡山大自然) URu₂Si₂ の高分解能光電子分光
14:10 山上浩志 (京産大理) URu₂Si₂ の遍歴 5 f バンドの形成とフェルミ面
14:30 金子真一 (東工大理工) URu₂Si₂ の極低温走査トンネル分光
14:50 休憩
座長: 大貫惇睦
- 15:10 高木 滋 (東北大理) URu₂Si₂ の単結晶 NMR と hidden order
15:30 芝内孝禎 (京大理) URu₂Si₂ の隠れた秩序 --- フェルミ面における回転対称性の破れ
16:00 網塚 浩 (北大理) URu₂Si₂ の隠れた秩序変数探査の現状と展望
16:35 全体討論
16:50 ポスター
18:30 懇親会

1 月 11 日 (水)

- 座長: 播磨尚朝
- 9:00 竹内徹也 (阪大理) 立方晶カゴ状物質 YbCo₂Zn₂₀ と PrIr₂Zn₂₀ の重い電子状態と四極子秩序
9:20 岩佐和晃 (東北大理) PrFe₄P₁₂ における全対称型秩序相の中性子散乱研究
9:40 倉本義夫 (東北大理) 遍歴・局在双方の電子が絡む複合電子秩序
10:00 池田浩章 (京大理) URu₂Si₂ の隠れた秩序 --- 第一原理計算に基づく解析
10:20 楠瀬博明 (愛媛大理工) URu₂Si₂ の隠れた秩序: 理論の現状と課題
10:55 休憩
座長: 松田祐司
- 11:20 出口和彦 (名古屋大理) 強磁性超伝導体における磁気秩序・超伝導の共存状態と相関の探索
11:50 服部泰佑 (京大理) UCoGe における強磁性スピン揺らぎが誘起するスピン三重項超伝導
12:10 広瀬雄介 (阪大理) 空間反転対称性のない LaNiC₂ のドハース・ファンアルフェン効果と超伝導
12:30 昼食休憩
座長: 石田憲二
- 13:30 町田 洋 (東工大理工) 熱伝導率の角度依存性からみた UPt₃ のギャップ構造
13:50 橋高俊一郎 (東工大理工) UPt₃ の極低温回転磁場中比熱
14:10 松田祐司 (京大理) 人工 2 次元近藤格子のエキゾチック超伝導
14:40 吉田智大 (新潟大自然) スピン・軌道相互作用のある多層系超伝導体におけるエキゾチック FFLO 超伝導相
15:00 石田憲二 (京大理) おわりに
15:10 研究会終了



ポスター講演

- P01 家 哲也 (京大理) NMR から見た鉄系超伝導体 $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ における磁性と超伝導の秩序変数の相関
- P02 吉澤正人 (岩手大工) 鉄系超伝導体における構造不安定性と超伝導
- P03 松本洋介 (東大物性研) 価数揺動系 α -, β - YbAlB_4 における異方的な重い電子形成
- P04 久我健太郎 (東大物性研) 重い電子系価数揺動物質 α - YbAlB_4 の鉄ドーブ効果と磁場中低温物性
- P05 Eoin O'Farrell (東大物性研) Hall effect measurements of the valence fluctuating heavy fermions β - YbAlB_4 and α - YbAlB_4
- P06 洪辰杓 (東大物性研) 価数揺動系 α -, β - YbAlB_4 の異方的磁気抵抗
- P07 曾根啓太 (東大物性研) 価数揺動量子臨界物質 YbAlB_4 の熱膨張
- P08 大原繁男 (名工大) 元素置換による YbNi_3X_9 ($\text{X}=\text{Al}, \text{Ga}$) の基底状態の制御
- P09 宮崎亮一 (首都大理工) 近藤格子反強磁性体 YbNi_3Al_9 の比熱および磁気熱量効果測定
- P10 本多史憲 (阪大基礎工) 量子臨界点における $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ ($\text{T}: \text{Rh}, \text{Ir}$) の重い電子状態
- P11 町田洋 (東工大理工) 重い電子系 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の熱電応答
- P12 志村恭通 (東大物性研) $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ の極低温磁化と磁気相図
- P13 徳永 陽 (原研先端研) $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ における Al-NMR の研究
- P14 中西良樹 (岩手大工) $\text{RTr}_2\text{Al}_{20}$ ($\text{R}: \text{Pr}, \text{Sm}$ Tr: V, Ti) の超音波音速測定
- P15 田中斗志貴 (日大学総合基礎) 高圧下における $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ ($\text{Tr}=\text{V}, \text{Ti}$) の四極子秩序
- P16 山中隆義 (京大理) カゴ状超伝導体 $\text{A}_x\text{V}_2\text{Al}_{20}$ の NMR/NQR を用いた研究
- P17 長澤直裕 (広島大先端物質) 非磁性基底二重項をもつ $\text{PrRh}_2\text{Zn}_{20}$ の多極子相転移
- P18 石井 勲 (広島大先端物質) $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ ($\text{T}=\text{Rh}, \text{Ir}$) における四極子効果とラットリング
- P19 笹原拓也 (新潟大自然科学) $\text{RT}_2\text{Zn}_{20}$ の低温物性 ($\text{R} = \text{Tm}, \text{Sm}; \text{T} = \text{Co}, \text{Ru}$)
- P20 青木勇二 (首都大理工) $\text{SmTi}_2\text{Al}_{20}$ における磁場に鈍感な相転移および近藤効果
- P21 穴田泰士 (新潟大自然科学) カゴ状物質 $\text{R}_5\text{Co}_6\text{Sn}_{18}$ ($\text{R}=\text{Tb}, \text{Ho}, \text{Er}, \text{Tm}, \text{Lu}$) の物理的性質
- P22 武田直也 (新潟大工) 幾何学的フラストレート系 $\text{Ce}_6\text{Ni}_6\text{P}_{17}$ の低温物性
- P23 川村幸裕 (室工大) $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ の圧力下における X 線回折
- P24 池田陽一 (岡山大自然科学) 重い電子超伝導体 CeCu_2Si_2 における価数転移の探索— Ni 置換効果の研究
- P25 松本裕司 (原研先端研) $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ の電子状態と磁性
- P26 淀野晋 (新潟大自然科学) $\text{La}_{1-x}\text{Ce}_x\text{Os}_4\text{P}_{12}$ の超伝導
- P27 青木優也 (東大物性研) 重い電子系超伝導体 CeIrIn_5 の比熱の磁場依存性と超伝導ギャップ構造
- P28 北川俊作 (京大理) 二次元重い電子系物質 $\text{Ce}(\text{Fe}_{1-x}\text{Ru}_x)\text{PO}$ ($x=0, 0.25$) における ^{31}P -NMR
- P29 下澤雅明 (京大理) $\text{Ce}_{1-x}\text{Yb}_x\text{CoIn}_5$ のエピタキシャル薄膜の作製と評価
- P30 丸山大輔 (新潟大自然科学) スピン軌道相互作用を入れた多層系超伝導
- P31 酒井治 (物材機構) DMFT 計算による CeIn_3 と CeSn_3 のフェルミ面構造とサイクロトロン質量
- P32 関根ちひろ (室工大工) As 系新充填スクッテルライト化合物の高圧合成と低温物性
- P33 伊賀文俊 (茨城大理) 軽希土類十二ホウ化物の高圧合成
- P34 加瀬直樹 (東大物性研) $\text{Y}_5\text{T}_6\text{Sn}_{18}$ ($\text{T}=\text{Rh}, \text{Ir}$) の角度分解磁場中比熱測定による超伝導ギャップ構造の研究
- P35 田端千紘 (北大理) 放射光 X 線を用いた URu_2Si_2 および UPd_2Si_2 の構造解析
- P36 利根川翔 (京大理) サイクロトロン共鳴測定による隠れた秩序相下におけるサイクロトロン質量の面内二回対称性の解明
- P37 軽部皓介 (京大理) ^{27}Al -NMR を用いた UCoAl におけるメタ磁性臨界現象の研究

「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ — 重い電子系における格子・フォノンの役割 —

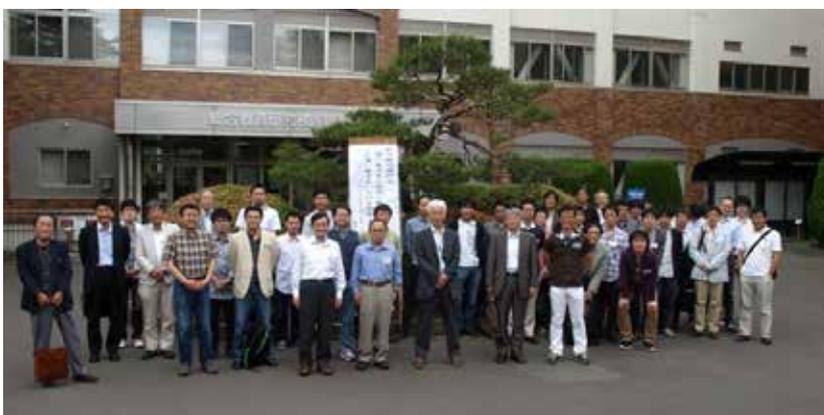
世話人 中西良樹 岩手大学大学院工学研究科
根本祐一 新潟大学大学院理学研究科
吉澤正人 岩手大学大学院工学研究科



新緑の候、2012年6月9日(土)、10日(日)の両日、岩手大学(北桐ホール総合教育研究棟)にて標記ワークショップが開催された。参加人数54名(内発表者:33名)の方々自然豊かな北の大地に足を運んで頂いた。本研究会の主たる目的は、重い電子系の形成と秩序にフォノンがどのように関与し、電子と格子が織り成す多彩な物性を展開しているのかを「電子格子相互作用」をkey wordとして各方面の実験手段、理論計算の専門家の方々最新の研究結果をもとにして説明して頂き、共通認識、共通理解の合意形成を図るところにおいた。もう一つ大きな意義として、本領域研究のリーダーである上田和夫先生が開会の挨拶で触れられたように、2011年3月11日の東日本大震災後、初めて研究会を被災地である東北地区で開催したことにある。間接的ではあるが研究者による被災地への支援に繋がり、主催者にとってもメンタル面で大きな励みとなった。

これまで、強相関電子系では各種特性温度が低いことも要因となりフォノンの役割が露(あらわ)に表舞台へと現れる機会は少なかった。しかしながら籠状物質をはじめとする特異な結晶構造を有する系、あるいは近藤効果とRKKY相互作用が拮抗する量子臨界点近傍では、電荷の揺らぎに端を発する電子格子相互作用が増大しフォノンの果たす役割が大変重用視されつつある。ラットリング、多極子秩序、これらに加え、ごく最近ではネマティック秩序という新概念も強相関系に導入され益々深い理解と関心が示されている。こうした強相関電子系を取り巻く最近の趨勢・動向をもとに以下のプログラム編成を行なった。

紙面の都合上、印象に残った講演を中心に、本研究会を簡単に振り返ってみたい。1日目午前最初のセッションAでは籠状物質として最近精力的に研究がなされている1-2-10系・1-2-20系に関する研究報告がなされた。まず1-2-10系では $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ を支配する相転移について説明された。 $\text{CeFe}_2\text{Al}_{10}$ のFeサイトをRu, Co, Mnで置換



し、系の d 電子数を変化させることで重い電子系から近藤半導体までの一連の変遷を基礎輸送特性測定(電気抵抗、帯磁率、比熱測定)の結果を基に紹介され、この系の相転移が近藤半導体を舞台に生じていることを結論づけた。そして、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ のCeサイトを非磁性Laで置換した系の回転磁化測定では、この系で出現する相転移がフェルミ面に強く関係していることを、磁化測定に出現するメタ磁性転移のLa依存性から指摘された。更に、この系のメタ磁性転移に伴う格子歪み(磁歪)が大きいことと、顕著なLa濃度依存性から磁気弾性効果の重要性を述べられた。一方1-2-20系では $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ 系についてゲストイオンであるPrの非調和振動に関する最近の報告がなされた。超音波測定、第一原理計算を基に籠の巨大振幅振動に関する報告がなされた。特筆すべき点はゲストイオンではなくそれを取り囲む籠のダイナミクスである。この系の結晶構造は見方を変えるとPrイオンを16個のZnが取り囲む形状とは別に、16cサイトのZnが2個のPrイオンと12個のZnからなる籠に内包された形状に見ることが出来る。このZn(16c)の巨大振幅振動に起因した超音波分散結果と、それを強く指示する第一原理計算の報告がなされた。特に、

ゲストイオンと $Zn(16c)$ が強く結合しており、これまで“ゲストイオンが籠内で緩く結合している”と臆げながら認識していた概念に大きな改変を余儀なくされる報告であった。つまり、原子間結合に起因した大きな異方性がラットリングに存在する。また比較的高温（約 400 K）でヒステリシスを伴った弾性定数の異常が確認され、明瞭な構造相転移も報告されている。 $Zn(16c)$ の巨大振幅振動が高温側の相転移に深く関わっていると考えられる。

セッション B では多極子・量子臨界現象を中心に最近のトピックスを実験・理論両面から紹介された。Pr 系化合物を中心に非クラマース二重項に関する多極子秩序および多極子揺らぎに関する報告がなされた。PrMg₃ に関して、 $(C_{11} - C_{12})/2$ の温度変化で 30 K 付近に明瞭な極小値が出現する。非クラマース二重項と第一励起状態である Γ_4 三重項をもとに電気十六極子揺らぎの重要性を指摘し、この振る舞いを説明した。更にこれまでフォノンの役割が軽視されがちであった極低温領域で、弾性定数の温度変化に明瞭な超音波分散を発見し、ラットリングの機構とは異なる、この系独特の散逸量子状態形成の存在を指摘した。価数揺動、ラットリングとは大きく時間・エネルギースケールが異なる極めて小さいスケールの励起エネルギー、遅い緩和時間を有した量子状態の形成を提案している。局在 4f 電子が伝導電子と磁気的一重項を形成するのと同じ様に、格子と非クラマース準位が、格子に依る擬似的な近藤一重項を形成する可能性を提言した。極低温電子系での格子の新たな役割を実験事実とともに鋭く指摘した点で、格子の周期性と格子近藤一重項の関係等、今後の展開が楽しみな研究トピックスである。また、理論研究では充填スクワテルライト化合物 PrRu₄P₁₂ の輸送特性（電気抵抗）を高温側から Pr の電荷揺らぎ、磁気揺らぎ、そして低温側では非等価な 2 つの Pr サイトのうち一方の三重項縮退に起因した揺らぎと Pr の核スピン揺らぎの組み合わせによる効果をもとに、実験結果を見事に説明する教科書的な発表がなされた。更に PrRu₄P₁₂ と PrFe₄P₁₂ の低温物性の相違を *d-f* 混成相互作用の大きさの違いから説明された。つまり PrFe₄P₁₂ では *p-f* および *d-f* 混成相互作用がスピンパイエルス効果を形成し複雑な電荷秩序（多極子秩序）の発現に重要な役割を果たしていると考えられるという。また、量子臨界点近傍の価数に関する詳細な理論研究も紹介された。同じ希土類サイトに伝導電子と *f* 電子が占有した際に生じるクーロン斥力 U_c を用いて、これまで報告されている Ce あるいは Yb 化合物のいくつかの圧力温度相図を価数転移が有限温度で生じる系、絶対零度で生じる系、そして起こらない系と分類し、 U_c でスケールした。近藤効果と RKKY 相互作用の拮抗のみを考慮した Doniach 相図も、理解が深まり拡張を余儀なくされる時期に来たのかも知れない。そんな印象を強く受ける発表であった。特に価数揺らぎの大きい、価数揺動系を説明する量子臨界点の相図を目にする時期も近いであろう。

初日午後のセッションでは、量子臨界点を説明する上で重要な key word である「ネマティック秩序」について鉄系超伝導を中心に発表がなされた。最近の研究で、“ネマティック”という言葉が学会、論文で用いられている方々を招待講演とし、その概念について詳細に説明して頂いた。

ネマティック相に関する最初の講演は Sr₃Ru₂O₇ で観測されているポメラニチュク不安定性と電気ネマティック相にまつわる実験結果及び物理的解釈の紹介であった。このネマティック相を、超音波を用いた弾性定数で観てやろうという試みである。そもそもネマティック相は回転対称性が破れた秩序（並進対称性は破れていない）であるため正方晶系にも関わらず *c* 面内の *x-y* 方向で各種輸送特性において異方性が生じる。 $(C_4$ 対称性が失われる。) この著しい特徴と起源を弾性特性の面から詳細に明らかにされた。特に横波弾性定数に顕著な差異が生じる。伝搬方向の異なる 2 つの横波弾性定数 $(C_{11} - C_{12})/2$ 、 C_{66} に対して前者には低温で弾性定数のソフト化が生じ、後者では生じない。また超音波吸収に対しても前者には大きな増大が観測される一方で後者では変化がない。弾性定数に現れる、電気ネマティック相に起因した特徴的な振る舞いの一例である。また Ru 系に関する理論研究の報告もなされた。Ru の 4*d* と O の 2*p* 軌道間のエネルギー差と遷移を取り扱った *d-p* 模型と 4*d* 軌道間の遷移（ホッピング）を扱う Hubbard 模型を組み合わせスピン反対称 *p* バンドによる Fermi 面の変形を議論した。

更に、こうしたネマティック相の特徴を有する系として銅酸化物超伝導、Fe 系超伝導、そして URu₂Si₂

が報告されている。特に Fe 系超伝導である $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ 系では超伝導転移温度直上で顕著な異方性が結晶軸 a, b 方向の電気抵抗の温度変化に現れる。一軸圧力下の各種物性にもその違いが観測されており、本来なら期待出来ない正方晶の c 面内で顕著な異方性が出現している。この異方性が出現する領域（ネマティック相）を相図上で見ると反強磁性相—構造相転移と超伝導相を覆う形で現れていることが分かる。つまりこれらの相転移は c 面内で各種物理量に異方性が出現するネマティック相内で生じている。次に問題となるのが、このネマティック相の起源である。講演ではスピン起源および軌道起源の立場から議論を展開し、最終的には Fe 間の結合方向に配列した電氣的な秩序が有力であると結論づけた。

理論研究では、長年の謎である URu_2Si_2 の隠れた秩序に関する講演があり、ランク 5 までを考慮した解析から三十二極子秩序のネマティック相が出現する可能性を指摘された。そして Fe 系超伝導の超伝導発現機構に関してスピン揺らぎ、軌道揺らぎの立場からそれぞれの感受率を導出し、対形成の相互作用を議論した。前者の場合、フェルミ面のネスティングが大変重要で斥力相互作用であるのに対し、後者ではネスティングは必須ではなく符号も引力相互作用であることを述べている。また、軌道揺らぎに起因した重い電子系形成に関する理論研究の報告もなされた。ヤーン・テラーフォノンと結合した 2 軌道 Hubbard 模型、周期 Anderson 模型の局所軌道揺らぎを動的平均場理論で扱った研究である。これは外部磁場に鈍感な重い電子系の理解に有益な示唆を与えるものであり、軌道揺らぎが重い電子系形成に重要な役割を果たす可能性を強く示してくれた。このように多軌道 Hubbard 模型における軌道揺らぎ、スピン揺らぎが、重い電子系、ネマティック秩序、超伝導形成機構を理解する上で極めて重要な指南書となっていることも疑う余地は無い。

2 日目午前最初のセッション E では、格子とフォノンの応用面について講演をして頂いた。まず、製造業における廃熱を熱電変換材料で電気として回収することでエネルギーの節約（二酸化炭素の削減）に貢献出来る、高効率熱電変換材料の開発に関する講演をして頂いた。実用化が期待される系として自動車エンジンの廃熱利用、地熱発電（北海油田）の利用を例に紹介された。さらに従来材料である希少金属 Te や有害金属 Bi を用いない新しい熱電材料として充填スクッテルダイト、クラスレート化合物をはじめとする籠状物質が有力であることを示された。熱電変換材料の優劣を決める性能指数を上げるにはフォノングラス、エレクトロンクリスタルで象徴される物質開発が不可欠である。Ba-Ga-Sn 系クラスレート化合物はその第一候補であるが、 p 型、 n 型のキャリア制御が難しく、キャリアの種類、数で物性が大きく変化してしまう。詳細かつ豊富な実験データと長年にわたる経験の蓄積が実を結び、産総研との共同開発により Ba-Ga-Sn 系 ($\text{Ba}_8\text{Ga}_{16}\text{Sn}_{30}$) の熱電モジュールの開発に成功した。今後の更なる高性能化と製品化が大いに期待される。基礎物性研究が産業界へセンセーショナルな巻き起こしたもう一つの代表例として Si の原子空孔軌道に関する研究が挙げられる。極低温領域で Si の弾性定数を測定すると温度の逆数に比例した弾性定数のソフト化が観測される。この起源が原子空孔から形成される巨大電気四重極子に起因するため、ソフト化を解析することで原子空孔の密度を見積もることが可能となる。産業用の Si は純度がいわば命であり、この原子空孔密度の値は、企業によっては喉から手が出る程欲しいデータでもある。基礎研究の重要性を世の中に知らしめた最重要研究の一つである。工業的な利用にはまだ至っていないが、今後の展開が期待される系についても紹介があった。一般に希土類化合物の各種相転移温度は数 K 程度に多く存在する。この転移温度が高くなることで応用面への期待も膨らむ。異常に高いキュリー温度を有する Ce 化合物 CeRh_3B_2 はその一つである。これに付随した高い強磁性転移温度を示す近藤格子化合物 $\text{CeRu}_2\text{Al}_2\text{B}$ および $\text{PrRu}_2\text{Al}_2\text{B}$ が報告された。 CeRh_3B_2 の転移温度には及ばないが両者とも 20 K 近い転移温度を有する。その形成機構に大きな関心を持たれる。理論研究では格子振動起源で創出する多彩な超伝導、異常比熱の紹介がなされた。特に前者に関しては、Fe 系超伝導をはじめとする量子臨界点近傍で出現する超伝導に関して、 $\text{odd-}\omega$ 超伝導の可能性を指摘するものである。従来の分類では超伝導の対称性に時間を取り込んでいないが、時間を取り込んだ拡大版で（より一般的な）議論を展開すると偶・奇の違いに伴う新しい（けったいな？）超伝導が発現しうる。空間、スピンに対して（偶、偶）および（奇、奇）の関

数が形成しうる。これまでも ${}^3\text{He}$, CeCu_2Si_2 , CeRhIn_5 で odd- ω 超伝導の可能性が指摘されているが, Fe 系超伝導, ラットリングを含む自由度起源の超伝導でもこの odd- ω 超伝導の可能性が指摘された。

2日目のセッションFおよびGでは, 包括的なラットリングに関する講演が行われた。充填スクッテルダイト, β 型パイロクロア化合物, クラスレート化合物, 希土類ヘキサボライド等, 現在籠状物質として精力的に研究が行われている物質について, これまでの review から最新のデータまで紹介があった。中でも特筆すべき報告は, β 型パイロクロア化合物 KOs_2O_6 の dHvA 測定とそのバンド計算によるフェルミ面の決定である。最大有効質量比 26 の重い電子が観測された。f電子を持たない化合物でこれ程まで質量増強(質量増強因子 $\lambda = 5 \sim 8$) されている系は他に例がない。電子格子相互作用起源で, ここまで質量増強される実験結果に会場の参加者の多くが驚嘆し, 強い関心を抱いた。この解釈として, 質量増強がバンドに依存せずフェルミ面全体でほぼ一様に生じていることからラットリング起源を提案している。物性研究者の間では, 強相関係の研究分野に対してある種のやり尽くされた感が満ち, 新トピックス探索の困難さを口にされる方もいる。しかし, この結果は, これまでの電子-電子相互作用に加え, 電子格子相互作用起源の強相関係分野が新しい物性研究基盤として発展する高い可能性を如実に示していると考えられる。

以上, 本研究会で印象的であった講演内容について紹介した。今回の研究会を振り返り, これまで強相関電子系研究ではどちらかという脇役視されがちであった電子格子相互作用が, これだけ積極的に主役を演じ, 新奇量子現象の源になっている実験結果と理論予測を目の当たりにし, 強相関電子系研究の深遠さを感じた方も多かったと思う。本研究会が, 今後の強相関研究分野発展に寄与出来ることを切に願い, 報告書を締めくくる。

〈文責: 中西良樹〉

プログラム

日時: 平成 24 年 6 月 9 日 (土) 9 時 ~ 10 日 (日) 15 時

場所: 岩手大学北桐ホール 総合教育研究棟 (教育系) 2F

6 月 9 日 (土) 登壇者 (所属) 「題名」 講演時間 + 質疑応答時間

9:00 開会の挨拶 上田 和夫 (東京大学物性研究所) 10

セッション A 1-2-10 系・1-2-20 系【座長 松村政博】

9:10 (A-1) 西岡 孝 (高知大学理学部) 20+5 「 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ の相転移を支配するものは何か？」

9:35 (A-2) 田山 孝 (富山大学工学部) 20+5 「 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ および La 希積系の磁場角度分解熱膨張」

10:00 (A-3) 石井 勲 (広島大学先端物質科学研究科) 20+5 「新奇超伝導体 $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ ($T = \text{Ir, Rh}$) における四極子秩序とラットリング」

10:25 (A-4) 長谷川 巧 (広島大学総合科学研究科) 20+5 「1-2-10 系と 1-2-20 系のラマン散乱測定と格子振動の計算」

セッション B 多極子・量子臨界現象【座長 青木勇二】

11:00 (B-1) 根本 祐一 (新潟大学自然科学研究科) 20+5 「Pr 化合物における多極子効果」

11:25 (B-2) 椎名 亮輔 (新潟大学工学部) 20+5 「Pr スクッテルダイトにおける cf 混成, 多極子相互作用, 電気伝導」

11:50 (B-3) 中西 良樹 (岩手大学工学研究科) 20+5 「圧力下超音波測定で探究する量子臨界点近傍の電子状態」

12:15 (B-4) 渡辺 真仁 (九州工業大学基礎科学研究系) 20+5 「局所相関の強い遍歴電子系における新しい量子臨界現象」

12:40 — 13:40 昼食

セッション C ネマティック・鉄系超伝導 1【座長 後藤 輝孝】

13:40 (C-1) 鈴木 孝至 (広島大学先端物質科学研究科) 20+5 「 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ におけるポメラランチュク不安定性と電子ネマティック相」

14:05 (C-2) 笠原 成 (京都大学低温物質科学研究センター) 20+5 「鉄系超伝導体における電子ネマティック秩序」

14:30 (C-3) 池田 浩章 (京都大学理学研究科) 20+5 「 URu_2Si_2 の 4 極子相関」

14:55 (C-4) 吉岡 由宇 (大阪大学基礎工学研究科) 20+5 「 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ の Nematic 相におけるスピン反対称

Pomerancuk 不安定性」

セッションD ネマティック・鉄系超伝導2【座長 三宅 和正】

15:30 (D-1) 大成 誠一郎 (名古屋大学工学研究科) 20+5 「鉄系超伝導体における軌道揺らぎおよび超伝導発現機構」

15:55 (D-2) 山田 武見 (新潟大学理学部) 20+5 「軌道-格子結合と電子相関の協力効果による鉄系超伝導と重い電子」

16:20 (D-3) 紺谷 浩 (名古屋大学理学部) 20+5 「鉄系超伝導体における軌道揺らぎと弾性異常」

16:45 (コメント) 吉澤 正人 (岩手大学工学研究科) 10

16:55 - 17:45 ポスターセッション (北桐ホールロビー)

19:00 懇談会 (ビアパブベアレン)

6月10日 (日)

セッションE 物質科学のハブとしての格子とフォノン【座長 鈴木 孝至】

9:00 (E-1) 高島 敏郎 (広島大学先端物質科学研究科) 25+5 「ラットリングの熱電材料への応用」

9:30 (E-2) 後藤 輝孝 (新潟大学自然科学研究科) 25+5 「局在から遍歴する電子系の電気四極子」

10:00 (E-3) 三宅 和正 (大阪大学基礎工学研究科) 25+5 「強い格子振動の新しい側面」

10:30 (E-4) 菅原 仁 (神戸大学理学研究科) 25+5 「新物質探索の現状とこれから」

11:00 (コメント) 播磨 尚朝 (神戸大学理学部) 10

セッションF ラットリング1【座長 岩佐 和晃】

11:20 (F-1) 筒井 智嗣 (高輝度光科学研究センター) 20+5 「カゴ状物質の低エネルギー・ブランチにおける電子・格子相互作用」

11:45 (F-2) 寺島 太一 (物質・材料研究機構) 20+5 「ラットリング超伝導体 β パイロクロア酸化物の電子状態研究」

12:10 - 13:10 昼食

セッションG ラットリング2【座長 根本 祐一】

13:10 (G-1) 柳澤 達也 (北海道大学理学研究院) 20+5 「希土類充填スクッテルダイトにおける超音波分散の内包イオンによる変化」

13:35 (G-2) 岩本 慧 (東北大学理学研究科) 20+5 「I型クラスレート $\text{Ba}_8\text{Ga}_{16}\text{Ge}_{30}$ の異常なフォノンスペクトル」

14:00 (G-3) 岩佐 和晃 (東北大学理学研究科) 20+5 「希土類充填籠状物質としての RB_6 ($R = \text{Gd}, \text{Dy}$) におけるフォノンソフトニング」

14:25 (コメント) 堀田 貴嗣 (首都大学東京理工学研究科) 10

14:35 全体コメント 上田 和夫 (東京大学物性研究所) 10

14:45 閉会

ポスターセッション

(P-1) 川村 幸裕 (室蘭工業大学) 「 $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$ ($T = \text{Ru}, \text{Os}$) の圧力下における X 線回折」

(P-2) 塩尻 泰広 (室蘭工業大学) 「構造不規則 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ 合金の磁気的性質」

(P-3) 松村 政博 (高知大学理学部) 「AI-NQR による $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$ ($T = \text{Ru}, \text{Os}, \text{Fe}$) の新奇相転移の研究」

(P-4) 武田 直也 (新潟大学工学部) 「 $\text{RRu}_2\text{Zn}_{20}$ の磁性と伝導」

(P-5) 田村 大 (岩手大学工学研究科) 「籠状物質 $\text{SmV}_2\text{Al}_{20}$ の超音波を用いた弾性定数の研究」

(P-6) 松井 一樹 (室蘭工業大学大学院) 「非充填スクッテルダイト化合物 TX_3 ($T = \text{Co}, \text{Rh}, \text{Ir}, X = \text{As}, \text{Sb}$) の高圧下結晶構造不安定性」

(P-7) シャラムジャン スマイ (岩手大学工学研究科) 「重い電子系超伝導 $\text{Rh}_{17}\text{S}_{15}$ における巨大弾性異常」

(P-8) 山川 洋一 (名古屋大学大学院理学研究科) 「鉄系超伝導体の不純物誘起ネマティック状態と電気伝導の理論研究」

(P-9) 竹澤 遼 (岩手大学工学研究科) 「鉄系超伝導体 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ における C_{33} 弾性特性の特異な振る舞い」

(P-10) 坂野 幸平 (岩手大学工学研究科) 「超音波測定における鉄系超伝導体 $\text{Fe}_{1.03}\text{Te}_{0.8}\text{Se}_{0.2}$ の弾性特性」

(P-11) 島中 大地 (岩手大学工学研究科) 「 $\text{TmB}_4, \text{CeB}_6$ 薄膜の MBE 法による作製と物性評価」

新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」 総括班会議について

領域事務担当 堀田 貴嗣 首都大学東京大学院理工学研究科



2012年度日本物理学会第67回年次大会において、定例の総括班会議を開催したので、以下に報告する。

第14回

日 時：平成24年3月27日（火）12時15分～13時30分

場 所：関西学院大学上ヶ原キャンパスCC会場

出席者：上田、三宅、播磨、横谷、高畠、藤、榊原、井澤、堀田

1. 新学術最終年度に向けて
2. SCES2013 について
3. ニュースレター発行について
4. 国際ワークショップについて
5. 来年度予定（研究会，ワークショップ）について
6. 平成23年度追加予算配分について
7. 連携研究者の追加について
8. 秋の学校テキスト掲載の「物性研究」発行について
9. 固体物理特集号について
10. 新学術ポストクの継続について
11. 平成23年度研究成果の報告について
12. その他，意見交換

なお、第15回総括班会議は平成24年9月19日に横浜国立大学で、第16回総括班会議は平成25年1月に東京工業大学大岡山キャンパスで、そして最終の第17回総括班会議は平成25年3月に広島大学で開催することを予定している。

領域情報

領域名称について：

日本語：重い電子系の形成と秩序化
 日本語略称：重い電子の秩序化
 英語：Emergence of Heavy Electrons and Their Ordering
 英語略称：Heavy Electrons

領域ホームページ：

<http://www.heavy-electrons.jp/>

今後の予定：

新学術ワークショップ「カゴ状構造に宿る強相関物性」

2012年9月26日（水）～28日（金）
 首都大学東京南大沢キャンパス

新学術ワークショップ「純良単結晶育成と重い電子系のフェルミ面」

2012年11月23日（金）～24日（土）
 琉球大学研究者交流施設（50周年記念館）

第6回物性科学領域横断研究会「凝縮系科学の最前線」

2012年11月27日（火）～28日（水）
 東京大学武田先端知ビル

第4回研究会

2013年1月12日（土）～14日（月，祝）
 東京工業大学大岡山キャンパス

関連する国際会議：

SCES2013

2013年8月5日（月）～8月9日（金）
 Hongo, Tokyo, Japan

SCES2014

2014年夏 Grenoble, France

ICM2015

2015年夏 Barcelona, Spain

SCES2016

2016年夏 Hangzhou, China

本新学術領域研究の補助を受けて得られた成果に対する謝辞の例：

本新学術領域研究の成果を論文などで出版する際には、次のような謝辞を入れてください。

[欧文例]

This work was supported by a Grant-in-Aid for Scientific Research on Innovative Areas "Heavy Electrons" (No. #####) of The Ministry of Education, Culture, Sports, Science, and Technology, Japan.

[和文例]

本研究は、文部科学省科学研究費補助金新学術領域研究「重い電子の秩序化」(No. #####)を受けて行われた。

#####には各課題の課題番号が入ります。

JPSJ オープンセレクト費の補助について：

本新学術領域研究の補助を受けて得られた成果で日本物理学会欧文誌 Journal of The Physical Society of Japan (JPSJ) に投稿したものについて、重要な論文については、オープンセレクトにするための費用を総括班で支出いたします。オープンセレクトにしたいという論文がございましたら、領域事務担当にご連絡ください。総括班において協議の上、オープンセレクトの手続きを行います。なお、JPSJ オープンセレクトについては、JPSJ ホームページをご覧ください。

データベース情報について：

新学術ホームページには、物質合成に役に立つHPの紹介：物質・材料研究機構の結晶構造データベースのリンク、特定領域研究「スクッテルダイト」のホームページへのリンク、結晶場・多極子に関する便利なホームページへのリンクなど、皆様の研究のお役に立ちそうな情報を掲載しています。ホームページ左側にあるメニューの「関連情報」からお進みください。また、情報をお寄せ頂ければ、許諾条件等の確認の後、掲載あるいはリンクをいたしますので、領域事務担当までお知らせください。

ニュースレター編集委員会：

委員長：井澤公一

委員：芳賀芳範，関山明，関根ちひろ，
 岩佐和晃，青木勇二，楠瀬博明

アドバイザー：播磨尚朝

事務担当：堀田貴嗣

編集後記

通算 8 号目となるニュースレターをお届けします。半年に 1 冊のペースで刊行しているので 4 年が経過したことになります。本領域も残すところ半年あまりとなり、今回は、本領域のこれまでの活動に対するメッセージが評価委員の先生方から寄せられています。その一方で、いつもながら気迫あふれる研究紹介、それに、会場の熱気すら伝わってきそうな研究会報告など、今回も盛りだくさんの内容となりました。

さて、今回のニュースレターの編集は、ロンドンオリンピックとほぼ同時期に行われました。日本代表はもちろん、スポーツ選手の運動能力の高さには驚くと同時に、人間の能力はどこまで伸びるのか？と思いを馳せます。さらに連想して、研究者は、身体能力をどのように研究に活かしているのでしょうか？もちろん、研究をする「体力」は必要ですね。私の場合、新物質が出来たとき、そこにウランが含まれているかどうか、見ただけで分かる事があります。有効質量の大きなキャリアによる反射率の変化を肉眼で感知していると、能天気には解釈しています。しかし、最も重要かつ、身につけたいのは、面白そうな事を嗅ぎ当てる嗅覚でしょうか。

(芳賀 芳範)

新学術領域研究（研究領域提案型）
重い電子系の形成と秩序化



<http://www.heavy-electrons.jp/>

NEWSLETTER Vol. 5 No. 1

平成 24 年 9 月 発行

発行責任者：上田 和夫
編集責任者：井澤 公一