

## 超強磁場中性子・XMCDによる量子磁気偏極相の解明

Study of Quantum Magnetic Phases by High Magnetic Field  
Neutron Scattering and XMCD

野尻 浩之 (NOJIRI HIROYUKI)

東北大学・金属材料研究所・教授



### 研究の概要

本研究では、超強磁場中性子回折とX線分光に超低温環境を導入し、熱揺らぎを押さえた超低還元温度下で現れる磁場誘起量子相において、低次元量子系の特異量子状態の検証、遍歴-局在相関係の量子臨界状態の解明と電荷ゆらぎによる新型量子相転移の探求を通して、新分野:超強磁場量子ビーム科学を飛躍的に発展させる。

研究分野:物理学、磁性

科研費の分科・細目:物理学・物性II

キーワード: X線・粒子線、超強磁場、量子相転移

### 1. 研究開始当初の背景

絶対零度近傍の超低温において磁場や圧力で誘起される量子相転移は、本質的に量子揺らぎが相転移を支配するという点で、物性科学の焦点である。超強磁場下の量子相に関しては、これまでマクロ測定により秩序変数を間接的に議論することが殆どであったが、我々は、最近、世界に先駆けて中性子回折とX線分光(吸収・磁気円二色性)をパルス超強磁場下で実現し、相転移の秩序変数とその背後にある電子状態を直接捉えることを可能にしてきた。この達成を発展させ、絶対零度付近で起きる量子臨界状態に迫るために、超低温環境を導入し、熱揺らぎを抑制した超低還元温度下で、中性子・X線分光を実現することが求められている。

### 2. 研究の目的

本研究では、磁場誘起量子相の研究における以下の2つの課題を達成する。1つめは、低次元量子系において強磁場中で出現する特異量子状態の検証である。直交ダイマー  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の磁化プラトー相の磁気秩序を、40T-0.5K 中性子回折で検証する。2つめは、遍歴-局在相関係の量子臨界状態における多極子秩序状態の解明と電荷ゆらぎによる新しいタイプの量子相転移の探求である。f電子系の代表物質である  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の磁場誘起磁気秩序を解明し、電荷揺らぎによる新しい量子相転移の相図の検証を行う。さらに、展開研究として、核スピン緩和を利用した高次構造解析法の開発を目指す。

### 3. 研究の方法

本研究では、中性子回折により磁気秩序を直接観測し、磁気円二色性により軌道毎の磁気偏極および局在軌道と遍歴軌道の混成パラメータを直接決定することで、これらの強磁場相の性質を解明する。そのために、これまで達成した超強磁場量子ビーム実験技術をさらに高度化し、超低温環境の導入、スプリットコイル等の広散乱角対応コイル開発、高精度実験のための長時間パルス化、海外実験に対応するポータブル装置の開発を進め、国内外の量子ビーム施設で研究を展開する。

### 4. これまでの成果

本研究は、(1)超強磁場・超低温環境の実現をはじめとする技術開発および(2)それを利用した研究展開、の2段階からなる。これまでの主な達成事項をこの2つに分類して纏めると以下の通りである。

(1)技術的な達成事項:1)超低温用新方式クライオスタット開発、2)強磁場コイルの開発、3)高精度実験を可能にするパルス磁場の長時間化、(2)学術面での達成事項:1) $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の強磁場相の磁気構造の決定、2)Eu系の磁場誘起価数転移における価数と磁化の統一的な理解、3)Ce化合物の $\gamma$ - $\alpha$ 転移の磁場抑制効果の検証

これらの達成の意義は、以下の3つに纏められる。

1. 軟X線分光、XMCDおよび中性子回折において、従来の我々自身の世界記録を更新する40Tの実験を実現し、長時間化による精度向

上により、従来は測定が困難であったU系物質等における研究を可能にした。

2. 中性子回折を用いて、30年間磁気状態が未定であったURu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>系において、量子相転移点近傍の磁気構造の1つを決定し、その構造が磁気分散と対応する事を明らかにした。これは、40T超強磁場中性子回折という未踏実験技術と、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>系の量子相転移への応用という学術的研究課題が、噛み合った結果であり、内外で非常に注目されている。

3. 軟X線分光・XMCDにおいては、磁場誘起価数転移を示すEuNi<sub>2</sub>(Si<sub>0.18</sub>Ge<sub>0.82</sub>)<sub>2</sub>系をはじめとした実験を行い、従来の硬X線領域の実験で矛盾があった価数と磁化の関係を統一的に説明する理論の確立に貢献した。これは、4fを直接見る軟X線の強みを利用した結果である。超強磁場下の軟X線実験は、世界の他施設では未だ出来ておらず、独壇場である。

これらの研究は、国際的に高く評価、認知されており、超強磁場量子ビームという新分野を拓くものとなっている。

応用面では、超強磁場軟X線分光・XMCD技術は、希土類磁石の保持力機構の解明等の研究へ利用され、内外で注目される結果を出しており、その波及効果は高い。さらに、本研究の技術を応用したポータブルパルス磁場装置は、東北大学の研究成果移転制度を利用して英国へ有償供与され、今後、日本発の技術として広範な分野での普及が期待される。

## 5. 今後の計画

中性子回折実験においては、開発した中性子用の超低温環境を利用して現在進行中のURu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>の磁場誘起秩序状態に関する実験を推進し、未定の磁気構造の決定を行う。低次元量子系においては、直交ダイマー系SrCu<sub>2</sub>(BO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>のプラトの磁気構造の決定、アズライトや新カゴメ格子物質系の中性子回折等を進める。さらに、中性子核スピン偏極法の実証実験を行う。

X線分光実験に関しては、U化合物やCe系のX線分光実験をすすめ、量子臨界相における磁気偏極と電子状態変化を明らかにする。さらに、近藤ターンオーバー現象、パイライトの遍歴電子メタマグ転移や巨大磁場誘起磁歪物質等への展開実験を行う。

これらの成果の取り纏めを進めながら、新展開として自由電子レーザーを利用した実験に先鞭を付け、超強磁場量子ビーム科学分野の今後の発展方向を確立する。

## 6. これまでの発表論文等

論文 1. Recent Progress of the X-ray Magnetic Circular Dichroism Technique for Element-Specific Magnetic Analysis, T. Nakamura and M. Suzuki, J. Phys. Soc. Jpn. **82**(2013) 021006-1-20.

2. Magnetic Structure of Phase II in U(Ru<sub>0.96</sub>Rh<sub>0.04</sub>)<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> determined by Neutron

Diffraction under Pulsed High Magnetic Fields, K. Kuwahara, S. Yoshii, H. Nojiri他10名, Phys. Rev. Lett. **110**(2013) 216406-1-5.

3. Theoretical Analysis of Experimental Valence and Magnetization Data around the Field- and Temperature-Induced Valence Transitions of EuNi<sub>2</sub>(Si<sub>0.18</sub>Ge<sub>0.82</sub>)<sub>2</sub>: Unified Interpretation for the Results from Soft X-Ray Absorption, Its Magnetic Circular Dichroism, and Magnetostatic Measurements, A. Kotani and T. Nakamura, J. Phys. Soc. Jpn. **82** (2013) 044710-1-9.

4. Robust but Disordered Collapsed-volume Phase in a Cerium Alloy under the Application of Pulsed Magnetic Fields, J. P. C. Ruff, 他2名, H. Nojiri他2名, Phys. Rev. B **85**(2012) 024104-1-6.

5. Susceptibility Anisotropy in an Iron Arsenide Superconductor Revealed by X-Ray Diffraction in Pulsed Magnetic Fields, J. P. C. Ruff, 他3名, H. Nojiri他2名, Phys. Rev. Lett. **109**(2012) 027004-1-5.

6. Isothermal Switching of Perpendicular Exchange Bias by Pulsed High Magnetic Field, Y. Shiratsuchi, K. Wakatsu, T. Nakamura, 他2名, Y. Narumi他4名, H. Nojiri他1名, Appl. Phys. Lett. **100**(2012) 262413-1-4.

7. Soft-X-ray Magnetic Circular Dichroism under Pulsed High Magnetic Fields at Eu M<sub>4,5</sub> Edges of Mixed Valence Compound EuNi<sub>2</sub>(Si<sub>0.18</sub>Ge<sub>0.82</sub>)<sub>2</sub>, T. Nakamura 他2名, Y. Narumi, M. Hayashi, H. Nojiri他5名, J. Phys. Soc. Jpn. **81**(2012) 103705-1-4. 他9編解説 X-ray Spectroscopies in Pulsed High Magnetic Fields: New Frontier with Flying Magnets and Rolling Capacitor Banks, Y. Narumi, T. Nakamura他2名, H. Nojiri, SRN **25**(2012) 12-17. 他2件

招待講演 1. XMCD and Recent Progress in X-Ray Spectroscopies under Pulsed High Magnetic Field, H. Nojiri, The 11<sup>th</sup> International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation: SRI2012, 2012. 7.11, Lyon, France.

2. Neutron Diffraction and X-ray Spectroscopies in Pulsed High Magnetic Fields, H. Nojiri, The 10<sup>th</sup> International Conference on Research in High Magnetic Fields: RHMF2012, 2012.7.6, Wuhan, China.

以上の他、国際会議招待講演 13件、国際会議発表 17件、国内学会・研究会発表 49件

ホームページ等

<http://www.hfpm.imr.tohoku.ac.jp/>