

遍歴・局在双対性における多極子の秩序

愛媛大学大学院理工学研究科 楠瀬博明

神戸大学大学院理学研究科 播磨尚朝

1. はじめに

本稿の主題は重い電子超伝導体 URu₂Si₂ の隠れた秩序である。1985 年に $T_0 = 17.5$ K で明白な比熱異常を示す相転移が発見されて以来 [1,2,3], 25 年以上にわたる執拗な実験的・理論的探究をかわし秩序変数が同定されていないことは、本特集で詳述されているとおりである [4]。この問題が難しい主な要因は、ウランの 5f 電子軌道の拡がり具合と複数個の 5f 電子が絡む多体問題という点にある。5f 軌道は 4f 電子系と 3d 電子系の中間程度の拡がりをもつため、特徴的な温度 (近藤温度) は $T^* = 10^1$ - 10^2 K と Ce 系の 10 倍程度になり、結晶場、交換相互作用など (場合によってはスピン軌道相互作用も) 他のエネルギースケールと拮抗する状況が生まれる [5]。また、複数価電子配置のため局在的な描像と遍歴的な描像が繋がりにくい。このため、実験データの解釈や理論の立脚点を設定することが難しいのである。しかし、この困難は、これまでに培われてきた強相関電子系の基本概念が全く通用しないことを意味するのではなく、むしろ、その概念をより注意深く適用することを要求しているように思える。

「重い電子」という言葉は f 電子のランダウ準粒子的側面を強調したものであるが、本来、重い電子の特質はフェルミ準位近傍の遍歴性に着目するだけでは十分に理解できない。むしろ遍歴性と局在性という量子力学的二面性を同時に体得した系という認識に立ち、観測手段や温度エネルギー領域に応じて、どちらの側面が現れているかを問う必要がある [6]。この視点に立つと、特徴的エネルギーこそ Ce 系とは異なるものの、URu₂Si₂ は典型的な重い電子系のように見える。重要なことは、重い電子系における磁気・四極子など多くの多極子秩序が、遍歴性を獲得する途中の段階で起こる点である。

そこで以下では、まず、遍歴・局在双対性の視点から代表的な理論アプローチについて概観する。次に、低温・低エネルギー領域で磁性や超伝導を扱うのに適した遍歴・局在双対モデルの考え方について紹介する。これらは、すでに幾度も議論されてきたことではあるが、本稿に適した形で再度述べてみたい。これらの準備の下、近年、発展の著しい「多極子」について簡単な導入を行った後、遍歴・局在双対性に発現する多極子の秩序という視点から URu₂Si₂ の全体像を描くことを試みる。四半世紀の歳月は十分に長く、関連する研究を網羅的に取り上げるなどは著者の力量を遙かに超える。この点、予めお許し願いたい。

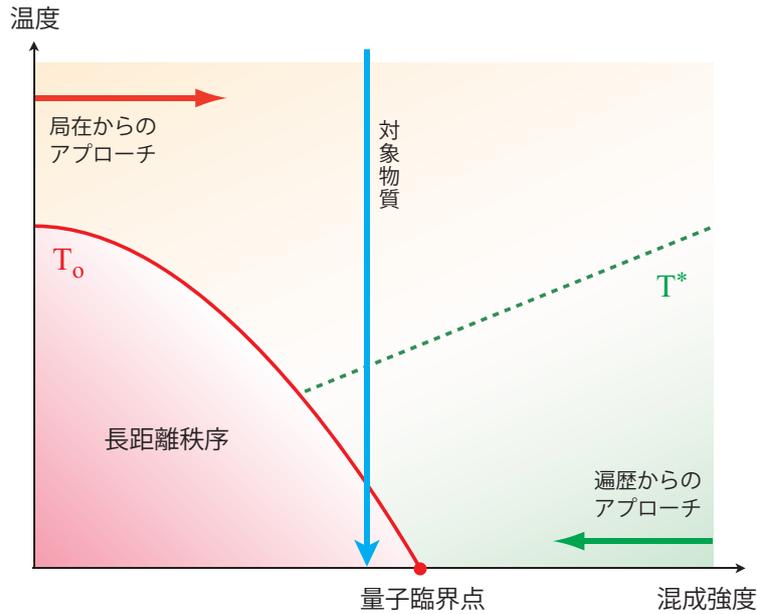


Fig. 1 ドニアック相図と2つの理論アプローチ.

2. 遍歴・局在双対性と多極子の秩序

2.1. 2つの理論アプローチ

問題をはっきりさせるために、まず、重い電子系の特徴と主な理論アプローチについて考えよう。第1図に混成強度と温度のいわゆるドニアック相図を示す [7]。本稿の対象である長距離秩序を示す重い電子系は、量子臨界点の近傍に位置する。十分高温で局在的な振る舞いを示すが、降温とともに特徴的な温度 T^* 付近から重い準粒子の形成が始まり、その形成途上 $T = T_0$ で長距離秩序を示す。このような遍歴・局在の二重性は強い局所相関の帰結であり問題の考察に不可欠な要素である。しかし、多体効果と物質の構造に起因する微視的詳細の両方を十分に考慮できる理論の構築は容易ではない。そこで、通常、「遍歴」または「局在」からのアプローチ (近似) が取られる。

「遍歴」からのアプローチは、バンド計算などで得られる波数空間での電子構造を基に、局所的なクーロン相互作用 U やフント結合 J_H を摂動的に考慮するもので、ドニアック相図の右下、低温かつ大きな混成強度からのアプローチといえる。物質固有の特徴、特に、フェルミ準位近傍の電子構造が詳細に取り入れられる利点がある。相互作用の取り込みには、低次の摂動、乱雑位相近似 (RPA) や揺らぎ交換近似 (FLEX) などが用いられるが、局所的な相関効果の取り込みには不十分な近似で、遍歴と局在の二重性格を記述できない [8,9,10]。そのため、このアプローチは、質量増強因子 z^{-1} や特性温度 T^* は外部パラメータとした、遍歴的な準粒子成分のみを記述する近似と考えるのが妥当である。原子内相互作用によって生じる多電子の結晶場状態を正しく記述できないため、例えば、高スピン状態を低スピン状態として扱うような不具合が生じる。

一方、「局在」からのアプローチは、局所相関を取り入れた局所多電子 (結晶場) 状態を基に、混成効果とそれに付随する多体効果を取り入れるもので、ドニアック相図の左上、高温かつ小さな混成強度からの

アプローチである。原子内相互作用が十分考慮されるために、高温の結晶場状態に起因する振る舞いが正しく記述できる。混成とそれに付随する多体効果を取り入れる代表的手法は動的平均場近似 (DMFT) である [11]。最近では、計算機能力の向上にとともに、バンド構造の詳細を取り入れる DFT+DMFT 法も急速に発展している [12,13,14]。DMFT では自己エネルギーの波数依存性を無視するため長距離相関が考慮されず、スピン (より一般には多極子) 密度の空間相関については平均場と同等レベルの扱いになっている [15]。長距離相関は量子臨界点近傍や超伝導の議論で特に重要であり、この意味で、DMFT は「局在」からのアプローチに属する。

現状では、どちらのアプローチも重い電子系を記述する上で完全に満足のいく手法ではない。近似手法として、どちらのアプローチがより良い記述を与えるかは、考えている状況による。 T^* より十分高温では、系は有効的に局在状態に近く「局在」アプローチがよい。一方、 T^* より十分低温では、重い準粒子で良く記述される状況になり、フェルミオロジー、低温の輸送現象、超伝導などの考察には「遍歴」アプローチが適している。

では、 $T < T^*$ で起こる多極子の秩序に対しても「遍歴」アプローチが適しているのだろうか？ 準粒子バンドが発達した状況では局在成分を忘れがちであるが、局在成分は 1 粒子スペクトルの大部分を占めていて消失するわけではない。ハイゼンベルグ模型において低エネルギー (交換相互作用 J のオーダー) のスピン自由度が重要であるように、遍歴・局在双対性を示す重い電子系では、準粒子が発達していても局在成分が主役を演ずる場合がある。以下で見るように、重い電子系の多極子秩序では、自発分極の大部分を局在成分が担うため、局在自由度の考察が不可欠である。実際、 $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{B}_6$, $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ などの典型的な多極子秩序は、局在模型を用いて良く理解されている [16]。超伝導の発生には、遍歴性 (電荷のコヒーレンス) が必須なのに対し、磁性の秩序にはスピン自由度のコヒーレンスのみ必要で、(電荷の) 遍歴性は必ずしも必要でない。このことは、ハイゼンベルグ模型で磁性は議論できても、超伝導の議論はできないことから明らかであろう。

2.2. 秩序状態の 1 粒子状態密度

重い電子の秩序における局在および遍歴自由度の役割を理解するには、1 粒子状態密度を考えるのが分かりやすいだろう。例として、 $T \ll T^*$ の十分低温で反強磁性秩序状態にある A サイトの 1 粒子状態密度の概念図を第 2 図に示す。フェルミ準位近傍のピークを担うのが遍歴的な準粒子であり、フェルミ準位から十分離れた 2 つのピークが局在的な性格を担うインコヒーレントな自由度である。図では遍歴部分を拡大して描いているが、実際には、スペクトル全体のうち遍歴部分の占める割合は $z \sim T^*/\epsilon_F \ll 1$ 程度であり十分小さい。残りの $1-z$ 程度のスペクトル強度は局在成分が担っている。

反強磁性秩序下では、遍歴部分は弱相関金属の反強磁性のように準粒子バンドの分極が交替磁化を担い、一方、局在成分は局在スピン系のようにスペクトル強度の移動により交替磁化を生み出している。全体として、重い電子系における反強磁性磁化は、局在成分がその大部分を担っている。実際、ハバード模型の 1 粒子状態密度の DMFT 計算では、そのようなスペクトル分布が得られている [11]。

遍歴成分と局在成分が担う秩序変数の対称性は、もちろん同じである。しかし、局在成分が秩序変数の大部分を担うという事情を考慮すると、あえて 2 流体的な見方を取ってもよいかも知れない。例えば、局

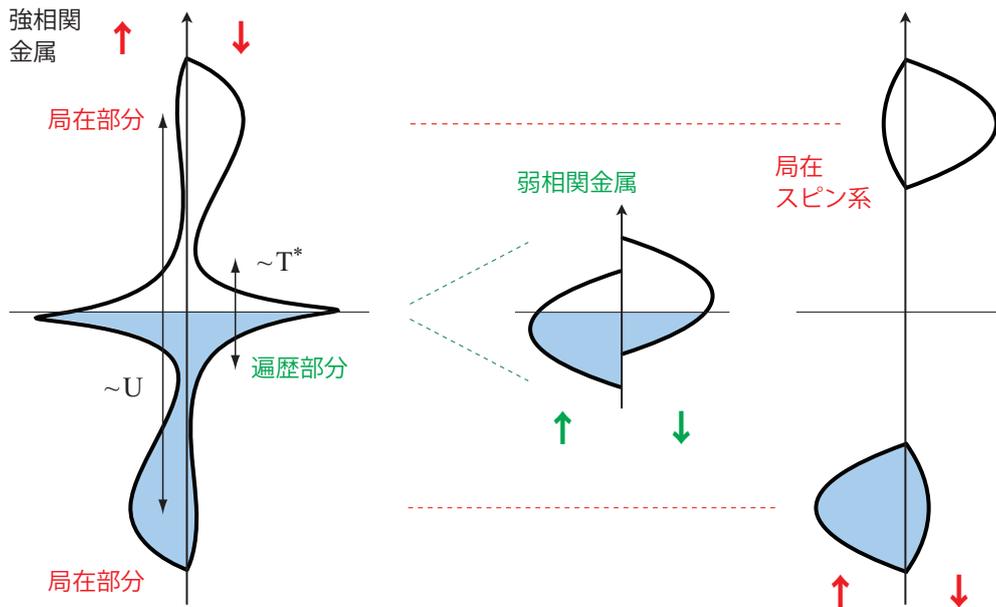


Fig. 2 反強磁性状態における強相関金属の遍歴・局在二重性、弱相関金属・局在スピンス系との状態密度による対比 (A サイト, $T \ll T^*$).

在成分の間の相互作用によって秩序が発生すると、秩序ベクトル \mathbf{Q} の内部場が生じる。この内部場により準粒子バンドの \mathbf{k} 成分と $\mathbf{k} + \mathbf{Q}$ 成分が混成し、 \mathbf{Q} で結ばれるフェルミ面上の波数にギャップが生じると考えるのである。もちろん、局在成分の間の相互作用には遍歴成分も関与するので、全体のつじつまが合うように秩序が発生する。フェルミ面のギャップ形成は、局在成分の秩序に引きずられて起こる場合もあるし、両者が協調的に起こる場合もある。後者の見方が顕著に現れている面白い例として、特異な金属絶縁体転移を示す $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$ がある [17, 18, 19, 20, 21, 22, 23].

以上のように、強相関金属における秩序にはインコヒーレントな局在成分の寄与が重要である。局在と遍歴の成分比バランスを欠いた理論は、片方の成分のエネルギー利得を過大評価することになり、注意が必要である。

2.3. 遍歴・局在双対模型

前節の見方を具現化した半現象論に、遍歴・局在双対模型 (duality model: DM) がある [6, 24, 25, 26]. 低温・低エネルギーの現象を考えるとき、高エネルギー自由度を消去して低エネルギーの有効模型を論じる、繰り込み群的思考法が有用である。その代表例は、 $T \ll T^*$ の十分低温で遍歴成分だけ残したフェルミ液体論である。DM では、 $T \lesssim T^*$ を対象に、フェルミ液体に行く前の段階で繰り込みを止め、局在成分を顕わに扱う余地を残している。

具体的には、アンダーソン格子模型の分配関数を経路積分表示して、 T^* 以上の高エネルギー自由度を消去した結果を、

$$Z = e^{-\beta F} = \int \mathcal{D}f^\dagger \mathcal{D}f \mathcal{D}\mathbf{S} e^{-\beta \mathcal{F}_{\text{DM}}(f^\dagger, f, \mathbf{S})}, \quad (\beta = 1/k_{\text{B}}T), \quad (1)$$

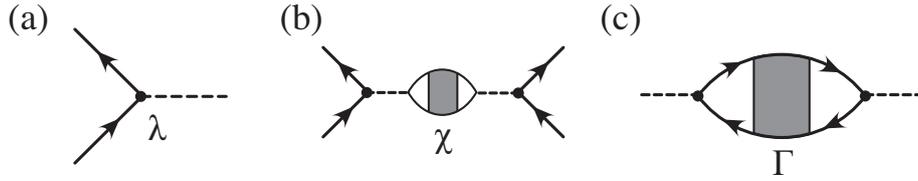


Fig. 3 遍歴・局在二重模型に含まれる相互作用：(a) 遍歴-局在結合，(b) 遍歴-遍歴相互作用，(c) 局在-局在相互作用．実線は遍歴成分，破線は局在成分（スピン密度）を表す．

のように書く．ここで， $f^\dagger(i\omega_n), f(i\omega_n)$ は， f 電子の松原振動数（エネルギー）が $|\omega_n| \lesssim T^*$ の遍歴成分，

$$S(i\epsilon_m) = \frac{1}{2} \sum_n \sum_{\alpha\beta} f_\alpha^\dagger(i\omega_n) \sigma_{\alpha\beta} f_\beta(i\omega_n + i\epsilon_m), \quad (\sigma \text{ はパウリ行列}), \quad (2)$$

は松原振動数が $|\epsilon_m| \lesssim T^*$ の低エネルギー・スピン励起自由度を表す． ω_n の和における主要な寄与はフェルミ準位から十分離れた成分から生じ，局在自由度を表現していることが分かる．これらの自由度を用いて有効作用を， $k = (\mathbf{k}, i\omega_n), q = (\mathbf{q}, i\epsilon_m)$ と略記して，

$$\mathcal{F}_{\text{DM}}(f^\dagger, f, S) = \frac{1}{2} \sum_q \left(\chi_L^{-1}(i\epsilon_m) - J_q \right) S_q \cdot S_{-q} - \sum_{k\alpha} f_\alpha^\dagger(k) G_f^{-1}(k) f_\alpha(k) - \lambda \sum_q \sigma_q \cdot S_{-q}, \quad (3)$$

と取る．第1項は局在スピン間の相互作用 ($\chi_L(i\epsilon_m)$ は動的な局所感受率， J_q は高エネルギーの寄与を繰り込んだ RKKY 相互作用)，第2項は遍歴成分（準粒子）からの寄与，第3項は遍歴成分のスピン密度を $\sigma_q \equiv \sum_{k\alpha\beta} f_\alpha^\dagger(k) \sigma_{\alpha\beta} f_\beta(k+q)$ として局在・遍歴間の相互作用を表す（第3図 (a)）．この作用が妥当なことは，不純物アンダーソン模型では確認されている． $\chi_L^{-1}(0), J_q, G_f^{-1}$ および λ は，すべて T^* のオーダーの量であることに注意する [24, 25, 26, 27]．仮に，モット絶縁体のように遍歴成分が無ければ局在スピンだけを含む作用になり，一方，弱相関金属では局在成分が十分分離しておらず，遍歴成分だけの作用となるだろう．

局在成分の積分 $\int \mathcal{D}S$ を実行して更に繰り込むと，フェルミ液体の有効作用 \mathcal{F}_{coh} が得られる（第3図 (b)）．特に，スピン揺らぎが発達している状況は，局在成分の動的スピン感受率 $\chi_s(q)$ を用いて近似的に，

$$\mathcal{F}_{\text{coh}}(f^\dagger, f) \simeq - \sum_{k\alpha} f_\alpha^\dagger(k) G_f^{-1}(k) f_\alpha(k) + \frac{\lambda^2}{2} \sum_q \chi_s(q) \sigma_q \cdot \sigma_{-q}, \quad (4)$$

のように表すことができるだろう．遍歴成分による重い電子の超伝導や「遍歴」スピン密度波の議論には，このような残留相互作用で表現した作用が便利であろう [28, 29]．

一方，磁性の議論には，先に $\int \mathcal{D}f^\dagger \mathcal{D}f$ を実行し，「局在」スピンの有効作用，

$$\mathcal{F}_{\text{spin}}(S) = \frac{1}{2} \sum_{qq'} \left[\left(\chi_L^{-1}(i\epsilon_m) - J_q \right) \delta_{qq'} + \lambda^2 \Gamma_{qq'}(S) \right] S_q \cdot S_{-q'}, \quad (5)$$

を用いるのが便利である（第3図 (c)） [30, 31, 32]．ここで， $\Gamma_{qq'}(S)$ は遍歴成分の分極に起因する寄与を表し，分極のエネルギーが T^* を上回ると準粒子描像が失われるため， S の大きい領域で急速に減少する関数と考えられる． Γ 項の寄与は，準粒子バンドがネスティング的な性質を持つとき特に重要で (URu₂Si₂

はその場合に当たる), RKKY 相互作用だけでは磁気秩序に至らない場合でも Γ 項の寄与により磁気秩序に至る場合がある。

$\mathcal{F}_{\text{spin}}$ を静的鞍点近似で評価すれば, 秩序変数 $\mathbf{S}_Q, Q = (\mathbf{Q}, 0)$ の関数として平均場近似のランダウ自由エネルギー F_{MF} が得られる。一方, (量子) 臨界点近傍で $\lambda^2 \Gamma_{qq'}(\mathbf{S}) \sim \eta \delta_{qq'} + g \sum_p \mathbf{S}_p \cdot \mathbf{S}_{-p+q'-q}$ (g はモード結合定数) のように展開し, 最良調和近似で $\int \mathcal{D}\mathbf{S}$ を評価したものが³, 強相関系に拡張された現象論的な自己無撞着繰り込み理論 (SCR) である [33, 34]。 $\delta \equiv \chi_L^{-1}(0) - J_Q + \eta$ は臨界点からの「距離」(逆相関長の自乗) を表し, 自己無撞着な取り扱いから決まる δ の温度依存性から臨界点近傍の特異な温度依存性が得られる^{*1}。DM の原論文では $\Gamma(\mathbf{S})$ の強い非線形性に着目して, \mathbf{Q} 以外のスピン揺らぎを調和近似で評価した状態方程式,

$$\left[\chi_L^{-1}(0) - J_Q - 2\lambda^2 \Pi_Q(\mathbf{S}_Q) \right] \mathbf{S}_Q = \mathbf{h}_Q, \quad \Pi_Q(\mathbf{S}_Q) = -\frac{1}{\beta} \sum_k \left[G_f(k)^{-1} G_f(k+Q)^{-1} - \lambda^2 |\mathbf{S}_Q|^2 \right]^{-1}, \quad (6)$$

を用いて, 微小自発磁化 ($\mathbf{h}_Q = 0$) やメタ磁性 ($\mathbf{Q} = 0$) の問題を考察している。

DM において, 系の微視的な特徴はパラメタ $\chi_L(i\epsilon_m), J_q, G_f(k), \lambda$ に含まれる。これらのパラメタおよび \mathcal{F}_{coh} や $\mathcal{F}_{\text{spin}}$ を第一原理的に導くことは今後の課題であろう。ここでは, 低エネルギーの有効模型における遍歴と局在の自由度の役割を汲み取って頂ければ十分である。

3. 多極子の秩序

これまでは簡単のため, 軌道縮退のない系のスピン自由度 (磁気双極子) だけを取り扱ってきた。しかし, f 電子系は強いスピン・軌道相互作用のために全角運動量 \mathbf{J} が大きく, また, d 電子系と比べて結晶場分裂が小さい。そのため軌道の自由度が特に重要となり, 四極子, 八極子など高次の多極子自由度が活性化する。多極子について詳細は諸解説に譲り [16, 35, 36, 37, 38], ここでは簡単にその特徴を述べる。本特集, 青木氏らの記事もあわせて参考されたい。

多極子とは一言で表現するならば, 角運動量成分 $|m\rangle$ の大きな遷移をともなう自由度のことである。自発的対称性の破れによって, 異なる $|m\rangle$ の混成した波動関数が発現するのが多極子の秩序である。例として, 混成波動関数 $|2m\rangle_c \equiv (|+m\rangle + |-m\rangle)/\sqrt{2}$ を考えてみよう。電気多極子 ($J = 4$; (a) $|0\rangle_c$, (b) $|2\rangle_c$, (c) $|4\rangle_c$, (d) $|6\rangle_c$) または磁気多極子 ($J = 5/2$; (e) $|1\rangle_c$, (f) $|3\rangle_c$, (g) $|5\rangle_c$) をともなう波動関数の例を第 4 図に示す。ランクが上がるにつれて, 角度方向の節の数が増えた波動関数になる。また, 偶数ランクは電氣的 (時間反転偶), 奇数ランクは磁氣的 (時間反転奇) である。これは, 反転対称性の帰結であり, 強誘電性など自発的な反転対称性の破れがあれば, 偶数ランクの磁気多極子や奇数ランクの電気多極子も一般に可能である。ランクが大きくなるほど波動関数の形状は微細になり, 回折実験による直接観測は急激に難しく

^{*1} ガウス分布の係数に, フェルミ液体の帰結である $\chi^{-1}(q) = \chi_L^{-1}(i\epsilon_m) - J_q + \eta \simeq \delta + Aq^2 + C|\epsilon_m|/|q|^{z-2}$ (z は動的臨界指数) の漸近型を用いる。

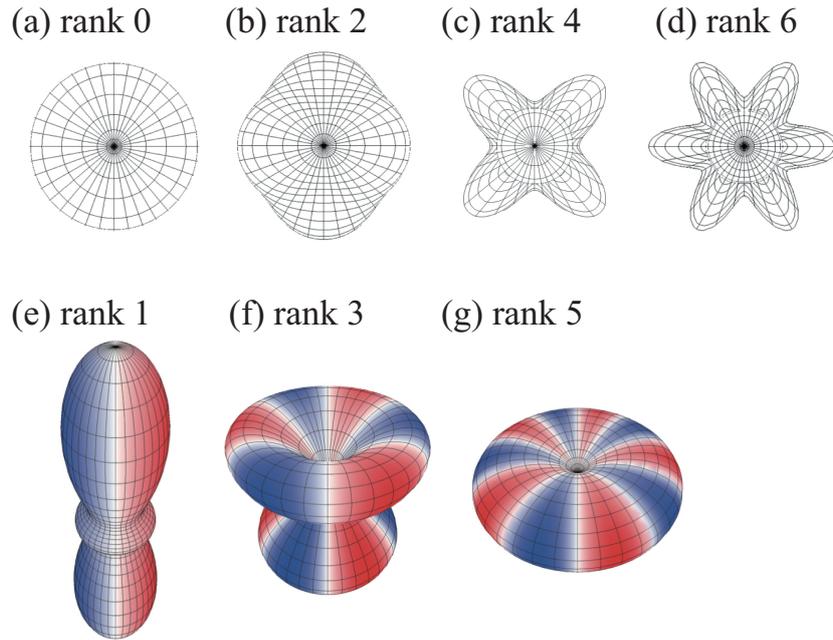


Fig. 4 多極子をともなう波動関数の例：(a)-(d) 電気多極子 ($J = 4$), (e)-(g) 磁気多極子 ($J = 5/2$). 波動関数の形状は電荷分布を, カラーマップは磁荷分布 (N 極:赤, S 極:青) を表す.

なる. 実際, ランク 3 以上の多極子秩序を直接観測した例は, 筆者の知る限り, 共鳴 X 線と中性子線による $\text{Ce}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{B}_6$ の反強磁気八極子 [39,40] と, 共鳴 X 線による CeB_6 の磁場誘起八極子 [41] のみである.

多極子の物理が単純な磁性と比べて一層面白い点に, 1 つの波動関数を介した多様な自由度の結合という側面がある. 例えば, 磁性の自由度だけでは時間反転対称性から禁止されるランダウ自由エネルギーの 3 次項も, 電気多極子ならば許されるし, 「磁気多極子 \times 磁気多極子 \times 電気多極子」のような電気と磁気の結合も結晶対称性と整合すれば可能である. 個々の多極子はランクに応じて異なるプローブに応答し, 場合によっては現在の実験手段では全く見えない, すなわち「隠れた」自由度である. 逆に, この「自由度の絡み合い」を利用すれば, 直接観測が難しい高次の多極子を間接的に見ることも可能になるし, 微視的な理解がさらに進めば, 多様な自由度の制御という観点からも新しい展開が期待できる.

前節の双対模型において, (3) 式の S や σ を局在多極子や遍歴多極子密度に一般化すれば, その考え方はそのまま有効である. 局在模型に基づく多極子秩序の多くの解析は, (5) 式の有効作用を平均場近似によって取り扱っているものと見なせる. 一方, 遍歴的な自由度が主要な状況では, (4) 式の有効作用によって多極子の密度波が生じる場合もあるだろう. 活性な自由度を絞り込むには, 局在自由度なら結晶場波動関数の性質を考察すればよく, 遍歴自由度ならフェルミ面を構成する波動関数のスピンと軌道依存性を調べればよい.

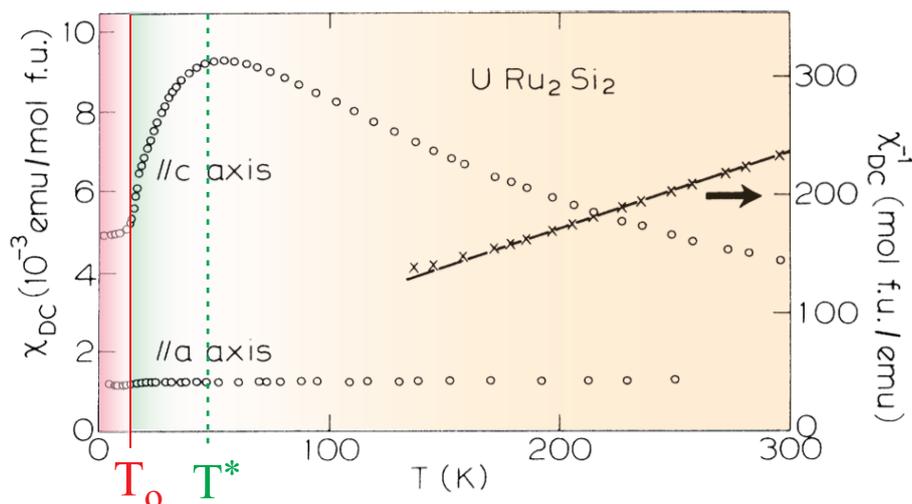


Fig. 5 磁化率の温度依存性と T^* , T_0 の関係 [54].

4. URu₂Si₂ への適用例

さて、いよいよ URu₂Si₂ について述べよう。隠れた秩序に対するアプローチは、5f 電子の (i) 局在成分に着目した局在多極子秩序 [42,43,44,45,46,47], (ii) 5f・伝導電子混成バンドの遍歴準粒子に着目した多極子密度波 [48,49,50], に大別される。d 電子系のように、(iii) 5f の直接混成によるバンド電子の密度波、という見方もあるかもしれない。他にも興味深い理論提案が多数あるが [51,52,53], 本節では、主に (i) の立場から隠れた秩序を考察する。

4.1. 特性温度 T^*

URu₂Si₂ の電気抵抗率 (5f 以外の寄与を差し引いたもの) は、降温とともに室温程度から近藤効果的な増大を示し、 $T^* \sim 50$ K 程度でピークを迎えた後、減少していく [1,2]。磁化率にはイジング的な強い異方性があり、c 軸磁化率 (容易軸) は T^* でピークを示すが、a 軸磁化率はヴァン・ブレックのほとんど温度によらない (第 5 図) [54]。²⁹Si-NMR の縦緩和時間は、 $T > T^*$ での局在的な振る舞い ($1/T_1 = \text{一定}$) から $T < T^*$ で遍歴的な振る舞い ($1/T_1 T = \text{一定}$) に変化する [55]。さらに $T = T_0$ での隠れた秩序の発生による一部フェルミ面の消失により、状態密度が減少する。以上の振る舞いから、 T^* は遍歴成分が発達し始める温度と理解でき、 T^* より十分高温の領域は局在的な描像で理解できるはずである。U サイトを非磁性の Th, La, Y で置換した系でも、U 濃度が 7% 以下の希釈領域に至るまで、 $T > T^*$ の磁化率に強い異方性が残っており [56,57], 局在描像の妥当性を示している。同程度の T^* と電子比熱係数 γ を持つ UPd₂Al₃ でも、 T_1 や面内磁化率 (容易面) に類似の温度依存性が見られる [58]。一方、遍歴性が強く T^* が大きい UNi₂Al₃ は、室温以下で既に遍歴的な振る舞いを示す [58]。典型的な重い電子 CeCu₆ は $T^* \sim 5$ K, $\gamma \propto 1/T^* \sim 1600$ mJ/mol K² であり [59,60], URu₂Si₂ は $\gamma \sim 160$ mJ/mol K² とスケールを約 10 倍すればほぼ整合する。

では、局在 5f 電子の状態は如何なるものであろうか？ T^* より十分大きい温度領域における磁化率の

フィッティングから、 $5f^2$ 配置 ($J = 4$) の $\Gamma_1^{(1)}$ (0 K)- Γ_2 (50 K)- $\Gamma_1^{(2)}$ (170 K)- $\Gamma_5^{(1)}$ (500 K) の結晶場スキームが提案されている [54]. 磁気双極子 J_x, J_y の行列要素は、1 重項の Γ_1/Γ_2 と 2 重項の Γ_5 の間にしかなく、これらが 500 K 程度離れているために、強いイジング異方性が生じるのである. さらに、この結晶場スキームの低励起部分は、同じ結晶構造の関連物質 PrRu_2Si_2 , UPt_2Si_2 やその希釈系と共通である [54,57,61,62].

もちろん、中性子非弾性散乱で結晶場励起が観測できれば物事は容易なのだが、残念ながら常磁性相では非常にブロードな励起しか見えない. 後述するが、秩序相に入ると比較的明瞭な分散のある磁気励起が観測されるようになる [63,64]. この理由で局在描像を否定する向きもあるが、 $5f$ 軌道の中間的な拡がりのため伝導電子との混成が比較的大きく、結晶場準位がブロードなためとも考えられる. さらに、非クラマース系に特有な結晶場 1 重項という事情も、結晶場励起をぼかす要因になっていると思われる. f^1 クラマース系の近藤効果は単独の結晶場準位だけでも起こるのに対し、結晶場 1 重項の近藤効果は必ず励起結晶場を巻き込んで起こるからである. 実際、近藤温度の目安 T^* と第 1 励起エネルギー $\Delta_1 = 50$ K は同程度の大きさである. Th 置換の U 希釈系では T^* 以下で非フェルミ液体的な振る舞いが観測されるが [65], $T^* \sim \Delta_1$ で近藤 1 重項と結晶場 1 重項が競合すると考えれば説明が付く [66,67]. 同様の原因で結晶場がブロードになる典型例として $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ がある. 常磁性状態では明瞭な結晶場励起は観測されないが、(多極子) 秩序相に入ると結晶場励起に対応した非弾性ピークが観測される [68]. 近藤効果と多極子秩序を考慮した理論計算でも [69]^{*2}, 秩序相に入ると結晶場励起に対応する非弾性ピークが現れることが示されていて、 URu_2Si_2 と状況は似ている.

最近、 $T = 20$ K の角度分解光電子分光 (ARPES) 実験で、フェルミ準位にかかる分散の大きい $5f$ バンドが観測されたとの報告があるので [70], ここで少しコメントしておく. 観測された $5f$ のバンド幅は 2 eV 程度と、 $3d$ 電子系のバンド幅に近い. この結果は (iii) の描像を支持するが、この描像では遍歴性の強い UNi_2Al_3 のような振る舞いが見られるはずで、バンド質量の 12 倍程度の質量増強因子 [71] や $T^* \sim 50$ K のエネルギースケール、強い磁気異方性などは容易に相容れず、隠れた秩序に関与しないバンドである可能性が高い. 類似の T^* を持つ UPd_2Al_3 の ARPES とも随分異なっており [72], 更なる検討が必要であると思われる.

4.2. 局在模型と反強 16 極子秩序

前述の磁化率フィッティングから提案されている結晶場スキームを採用すると、低温 $T \gtrsim T_0$ で活性な多極子の数は大幅に減り、磁気双極子 $S \equiv J_z$, 電気 16 極子 $\xi \equiv xy(x^2 - y^2)$, 磁気 32 極子 $\eta \equiv J_x J_y J_z (J_x^2 - J_y^2)$ の 3 つに絞られる. J_z 以外はランク 4 以上の高次多極子しか現れないのは、 Γ_1, Γ_2 の結晶場状態が $|0\rangle, |\pm 4\rangle$ の線形結合で構成されているため、正方結晶場の 1 つの帰結である. η は 170 K 程度離れた 2 つの Γ_1 の間にしか行列要素がなく、 $T_0 = 17.5$ K の秩序変数となるにはエネルギー的に不利である. さらに、 S と ξ はともに Γ_1 - Γ_2 間に行列要素を持ち、多極子演算子が同型の構造をもつ. J_z は高圧下で現れるタイプ I の反強磁性 ($Q = (1, 0, 0)$) の秩序変数であり [73], これに隣接する隠れた秩序相は同じ波数ベク

^{*2} f^1 系では、局在自由度のもつエントロピーを低温で準粒子の形成や秩序発生によって解放する. f^2 結晶場一重項の系は、混成による準粒子形成によらずともエントロピーを解放できる点で f^1 系とは定性的に異なる. [69] では、近藤 1 重項と結晶場 1 重項の (遍歴・局在) 混合秩序を提案していて興味深い.

トル \mathbf{Q} [74] の電気 16 極子秩序 ξ と考えるのが自然であろう。

反強磁性 (S) 秩序が生じると固有波動関数は $|\text{AFM}\rangle \sim a|\Gamma_1^{(1)}\rangle \pm ib|\Gamma_2\rangle + c|\Gamma_1^{(2)}\rangle$ のように複素数となり、時間反転が破れる (a, b, c は実数)。一方、反強 16 極子 (ξ) 秩序の場合、 $|\text{AFH}\rangle \sim a|\Gamma_1^{(1)}\rangle \pm b|\Gamma_2\rangle + c|\Gamma_1^{(2)}\rangle$ のように実数のままで時間反転は破れず、 c 軸に平行な面に関する鏡映対称性が破れる。

2 相間の転移は 1 次であるが、臨界圧での両相の転移温度はほぼ同じ、フェルミ面は互いに似通っている [75]。同型の構造をもつ多極子が同じ波数の秩序を起せば、どちらの相でも \mathbf{Q} で結ばれるフェルミ面上の波数にギャップが生じるので、この類似は納得がいく。このような見方は DFT+DMFT の計算結果に基づき、Haule-Kotliar によって提案された [46]。反強電気 16 極子秩序は、空間群 No. 128 ($P4/mnc$) の対称性に属し、常磁性状態 No.139 ($I4/mmm$) の部分群になっている。この対称性では Ru サイトの 4 回軸が失われるので、核四極子共鳴 (NQR) 周波数に変化が現れるはずであるが [76]、実験精度の範囲内で周波数に変化は見られず [77]、電場勾配が極度に小さい高次の多極子秩序と符合する [47]。別の可能性として、Ru-NQR 周波数に影響を及ぼさない No.136 ($P42/mnm$) 対称性の xy 四極子秩序があるが、共鳴 X 線散乱実験の結果は四極子秩序に否定的である [78,79]。

以上の考察を具体化するために、(5) 式に相当する最も簡単な交換模型、

$$H_{\text{ex}} = \sum_{\mathbf{q}} \gamma(\mathbf{q}) \left[J(p) S_{\mathbf{q}} S_{-\mathbf{q}} + D(p) \xi_{\mathbf{q}} \xi_{-\mathbf{q}} \right] - g_J \mu_B H \sum_i S_i + \sum_i H_i^{\text{CEF}}, \quad (7)$$

を平均場近似で取り扱う。相互作用の波数依存性 $\gamma(\mathbf{q})$ には、(5) 式に現れた遍歴成分の発達によるネスティングの寄与 Γ が含まれていると考える。実際には現象論的に、中性子非弾性散乱データと辻褃が合うように $\gamma(\mathbf{q})$ を決め (第 6 図)、強度 $J(p)$ と $D(p)$ に適当な線形の圧力依存性を仮定すれば、圧力-温度 [80] および圧力-磁場 [81] 相図の特徴が定性的に再現される [47,82,83]。通常、結晶場がぼけるほど混成が強いと、RKKY 相互作用は近藤効果に打ち勝てず秩序は起こらない [84]。URu₂Si₂ では、準粒子バンドが形成されるにつれてネスティングが強まる傾向があり [85]、RKKY 相互作用に準粒子分極からの大きな寄与が加わった結果、秩序に至っているようである。

圧力下で反強磁性相に入ると、中性子非弾性散乱の \mathbf{Q} 付近に存在した強い強度が突然消失する [86] (第 7 図)。強度が反強磁性相で消失する理由は、反強 16 極子秩序の立場では以下のように説明される [47,83,82]。散乱強度は、基底状態と励起状態の行列要素 $\langle 0|J_z|1\rangle$ に依存し、反強 16 極子秩序相では有限である。ところが、反強磁性相に入ると状態の組み替えが起こり $J_z(\mathbf{Q})$ を対角化する基底 (プライムで表す) となるため、非対角行列要素 $\langle 0'|J_z|1'\rangle$ は消失する。通常の磁性体では、 J_x や J_y も活性であるため、 J_z の秩序が生じても横成分によって励起が可能である。一方、URu₂Si₂ の特徴である強い磁気異方性 (J_x, J_y が不活性) の帰結として、中性子散乱で観測できる唯一の自由度 J_z が秩序によって縦成分となり強度が失われるのである。この事実は、隠れた秩序の秩序変数と強い磁気異方性が密接に関連していることを示しており、局在成分が重要であることの 1 つの証左と言える。

前例がない電気 16 極子秩序の直接観測は大変チャレンジングな課題であり、目下、精力的な実験が行われている。本特集、網塚氏、高坂氏らの記事を参照されたい。ここでは、外場によって低次の多極子を引き出すことを考えよう。対称性からランダウ自由エネルギーには、

$$\left[g_1 J_x(0) J_y(0) O_{22}(\mathbf{Q}) + g_2 \left(O_{xy}(0) O_{22}(\mathbf{Q}) + O_{xy}(\mathbf{Q}) O_{22}(0) \right) \right] \xi(\mathbf{Q}) + \dots, \quad (8)$$

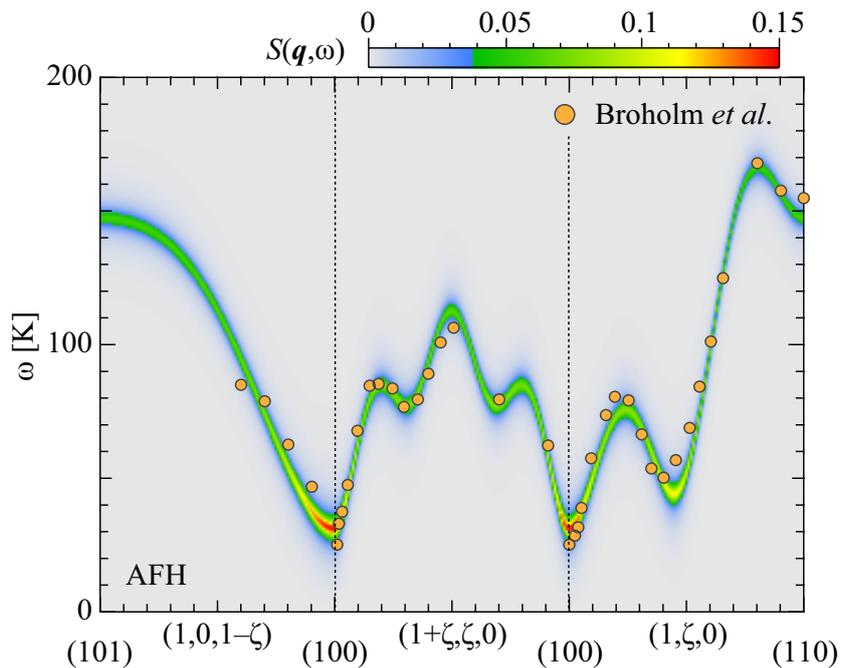


Fig. 6 中性子散乱強度マップ $S(q, \omega)$ の計算値 [反強 16 極子平均場近似+スピン波近似] と実験データの比較 [64].

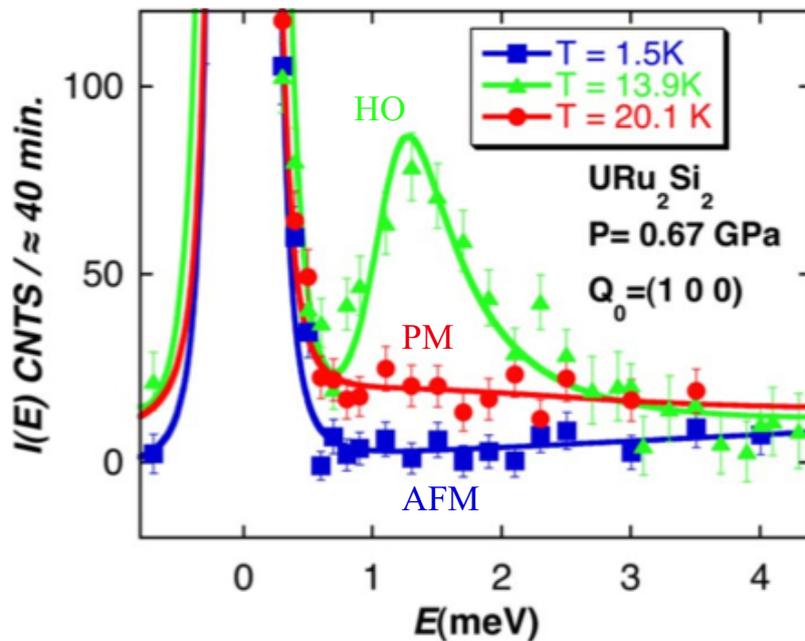


Fig. 7 $Q = (1, 0, 0)$ の磁気散乱強度 [86]. (赤) 常磁性相, (緑) 隠れた秩序相, (青) 反強磁性相. 非弾性ピークは隠れた秩序相だけ現れる.

が含まれるから、磁場を面内 ($\mathbf{H} \parallel [110]$) にかけてと反強四極子 $O_{22}(\mathbf{Q})$ が誘起されるはずである。また、 $[100]$ 方向や $[110]$ 方向の 1 軸圧をかけると、 45° ずれた反強四極子 $O_{xy}(\mathbf{Q})$ や $O_{22}(\mathbf{Q})$ が誘起される。もちろん、もともと不活性な四極子や面内の磁気双極子を介して不活性な多極子を誘起しているので、回折実験にかかる程の強度が得られるかは定かでない。しかし、誘起四極子の片鱗を捕まえることができれば、隠れた秩序の解明に向けて大きな前進になるだろう。まずは、反強 16 極子秩序が確実視される $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$ などの物質で直接観測を成功させ、経験とノウハウを蓄積する必要があるかと思う。

最近、微小な試料で磁気トルクの面内磁場角依存性に T_0 以下で 2 回振動成分が現れることから、4 回対称性が巨視的なスケールで自発的に破れている可能性が指摘されている [87]。2 回振動の振幅は試料サイズの増大とともに減少し mm^3 サイズの試料で消失するが、複数ドメインの寄与が相殺するためと解釈されている。また、サイクロトロン共鳴を用いたフェルミ面の有効質量にも面内磁場角に依存した共鳴線の分裂が観測されており、ドメインの存在と面内で異方的な有効質量というシナリオで解釈されている [88]。これらの結果と整合する対称性は、2 次元表現の E_g (Γ_{5g}) [89] または E_u (Γ_{5u}) である。 g/u は、時間反転対称性の偶奇を表す。電気四極子 O_{yz}, O_{zx} は E_g 表現に、面内磁気双極子 J_x, J_y は E_u 表現にそれぞれ属するので、対称性の観点からは、 $E_{g/u}$ 表現の秩序が発生すれば、これらのモーメントも有限になるはずである。しかしながら、回折実験ではその兆候は見られていない [78,79]。

磁気双極子の発生を回避する 1 つの可能なシナリオは、以下の磁気 32 極子秩序である [50]。遍歴秩序描像に立ち、秩序に関与するフェルミ面が主に $j_z = \pm 5/2$ のクラマースペアからなるとすると、この部分空間で磁気双極子は擬スピン σ_z 、磁気 32 極子は擬スピン σ_x, σ_y で表現され、それぞれ反強磁性相、隠れた秩序相 (第 4 図 (g)) の秩序変数と考えるのである。ただし、正方晶の物質では一般に、 $|\pm 5/2\rangle$ を含むクラマースペアは $|\mathbf{k}\pm\rangle \equiv \alpha_{\mathbf{k}}|\pm 5/2\rangle + \beta_{\mathbf{k}}|\mp 3/2\rangle$ となるはずで、面内磁化は $\sum_{\mathbf{k}}^{\text{FS}} \text{Re}(\alpha_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}}\beta_{\mathbf{k}}^*)$ に比例するので、フェルミ面上で常に $\beta_{\mathbf{k}} \approx 0$ となる必然性が明らかにされるべきである。また、 T^* 以下で見られる弾性定数 $(c_{11} - c_{12})/2$ のソフト化にも注意すべきである [90]。この事実は、遍歴成分が発達し始めると、特定の対称性 Γ_3 (O_{22} に対応) の 4 極子感受率だけが增大することを意味しており、フェルミ面には $|\mathbf{k}\pm\rangle$ 状態と $j_z = \pm 2$ だけ異なる $|\pm 1/2\rangle$ 状態も存在することを物語っている。

一方、局在成分の秩序という観点では、1 重項と 2 重項の結晶場準位が十分に離れている限り、 E_g および E_u に属する多極子は全て不活性となる。磁化率の強い磁気異方性はこの状況を要求するので、局在描像では E_g または E_u に属する秩序の可能性は低い。ただし、単純な局在モデルは、 T^* 以下で見られる減少する磁化率や弾性定数のソフト化をうまく記述できていない。いずれのシナリオにせよ、以上の実験事実と各理論との整合性について、より一層の検討が必要である。

4.3. 磁気励起子が媒介する超伝導

最後に、超伝導 ($T_c = 1.5 \text{ K}$) について述べる。隠れた秩序相と反強磁性相でフェルミ面が似通っているにもかかわらず、超伝導は前者とのみ共存することが知られている [91]。この事実から、隠れた秩序相でだけ存在する \mathbf{Q} 付近の massive な磁気励起 (磁気励起子) が超伝導を引き起こしていると想像される。磁気励起子が媒介する超伝導のシナリオは、 UPd_2Al_3 [92,93] や $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ [94] でも議論されている。

反強 16 極子秩序のシナリオに立つと、 $T_c \lesssim T \ll T_0$ での主要な揺らぎは c 軸感受率 $\chi_z(q)$ で記述され

ると考えられるので、(4) 式の相互作用部分は $(\lambda^2/2) \sum_q \chi_z(q) \sigma_q^z \sigma_{-q}^z$ と表現できるだろう。ここで、 σ_q^z は準粒子のスピンの z 成分。(7) 式をスピン波近似で取り扱おう (第 6 図)、中性子散乱実験データから $\chi_z(q)$ の情報が引き出せる。仮にフェルミ面は等方的だとして、相互作用自身はどの対称性のペアを好むかを調べてみる。 \mathbf{Q} 付近で $\chi_z(\mathbf{q}, 0)$ を、

$$\chi_z(\mathbf{k} - \mathbf{k}', 0) = \chi_z(\mathbf{Q}, 0) + \chi_0 + \sum_{\gamma} \chi_{\gamma} f_{\gamma}(\mathbf{k}) f_{\gamma}(\mathbf{k}')^*, \quad (9)$$

のように既約分解してみると、スピン 1 重項 E_g 対称性 (d_{yz}, d_{zx}) の引力が最大となり [83]、これには、面間の 8 つの最近接格子点のほかに、面内の最近接および次近接の 4 つの格子点との相関が主に寄与している。 $T < T_c$ では縮退が解け、時間反転の破れた $d_{yz} + id_{zx}$ のカイラル d 波が安定になる^{*3}。磁気励起は強い磁気異方性のため c 軸磁場だけに敏感で、これを媒介した超伝導と考えれば、3 次元的なフェルミ面にもかかわらず H_{c2} が 4 倍程度の異方性を示す [71] こととも整合する [83]。

実験的には、比熱 [95] や核磁気緩和率 [96] の温度ベキからラインノードの可能性が指摘されている。さらに、最近の熱伝導率 [97,98] と比熱 [99] の磁場角依存性実験は、ラインノードに加えてポイントノードの存在を示唆しており、その考察から上記のカイラル d 波が有力視されている。ただし、隠れた秩序下の URu₂Si₂ は補償された金属であり、電子バンドと正孔バンドが関与するマルチギャップ超伝導と考えられている。超伝導におけるフェルミ面の重要性は言うまでもなく、その構造を取り入れた微視的な計算が今後必要であろう。

5. おわりに

以上で、多極子秩序における遍歴・局在双対性の役割を概観することから始め、URu₂Si₂ の隠れた秩序について、局在の立場から 1 つの見方を紹介した。強い磁気異方性 [54] と反強磁性秩序での $\mathbf{Q} = (1, 0, 0)$ 非弾性ピークの消失 [86]、回折実験の現状 [78,79] から見て、低エネルギーで活性な自由度は J_z と中性子と結合しない高次の多極子、の 2 者にほぼ絞られたと見て良いだろう。URu₂Si₂ は、 $H_c \sim 36$ T 付近 (温度に換算して T^* のスケール) でメタ磁性的振る舞いを示し、隠れた秩序が消失するとともに新たな相が複数現れる [4,100]。また、Ru をわずか 4% Rh に置換しただけで隠れた秩序も超伝導も消失することが知られている [4,101]。このような脆弱性は PrFe₄P₁₂ でも見られていて [102]、遍歴と局在の狭間にある物質という両者の共通点との関連性が気になるところである。また、高圧反強磁性が置換効果に敏感かどうか興味深い。隠れた秩序の謎解きに、磁場・置換効果は、今後重要な手掛かりを与えてくれるのではないだろうか。

本研究は、文部科学省科学研究費補助金新学術領域研究「重い電子系の秩序化」(No. 20102002, No. 20102008) および科学研究費補助金・基盤研究 (C) (No. 23540414) を受けて行われた。本稿の内容に関し

^{*3}結晶の周期性まで考慮すると、 $c_x s_y s_z + i s_x c_y s_z \propto \sin(k_z c/2) [\sin(k_x + k_y) a/2 + i \sin(k_x - k_y) a/2]$ ($c_x = \cos(k_x a/2)$ etc.) である。

て多くの方々に教えを受けました，全員のお名前はあげきれませんが，特に URu₂Si₂ に関して，網塚浩，柳澤達也，横山淳，松村武，稲見俊哉，秋光純，松田祐司，芝内孝禎，横谷尚睦，藤森伸一，水戸毅，藤秀樹，井澤公一，大貫惇睦，青木大，Frédéric Bourdarot, Jacques Flouquet, Collin Broholm, 池田浩章，松本正茂，椎名亮輔，倉本義夫，大槻純也，星野晋太郎，服部一匡，上田和夫，三宅和正の各氏に，この場を借りてお礼申し上げたい。

References

- [1] T.T.M. Palstra, A.A. Menovsky, J. van der Berg, A.J. Dirkmaat, P.H. Kes, G.J. Nieuwenhuys and J.A. Mydosh: *Phys. Rev. Lett.* **55** (1985) 2727.
- [2] M.B. Maple, J.W. Chen, Y. Dalichaouch, T. Kohara, C. Rossel and M.S. Torikachvili: *Phys. Rev. Lett.* **56** (1986) 185.
- [3] J. Baumann: Ph.D. Thesis, University of Cologne (1985).
- [4] J.A. Mydosh and P.M. Oppeneer: *Rev. Mod. Phys.* **83** (2011) 1301.
- [5] 例えば，A.J. Freeman and G.H. Lander: *Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides* (Elsevier, 1985).
- [6] 倉本義夫: *日本物理学会誌* **46** (1991) 98.
- [7] S. Doniach: *Physica B* **91** (1977) 231.
- [8] 斯波弘行: *電子相関の物理* (岩波書店, 2001).
- [9] Y.M. Vilk and A.-M.S. Tremblay: *J. Phys. I* **7** (1997) 1309.
- [10] D. Sénéchal, A.-M.S. Tremblay and C. Bourbonnais: *Theoretical Methods for Strongly Correlated Electrons* (Springer, 2003).
- [11] A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth and M.J. Rozenberg: *Rev. Mod. Phys.* **68** (1996) 13.
- [12] G. Kotliar, S.Y. Savrasov, K. Haule, V.S. Oudovenko, O. Parcollet and C.A. Marianetti: *Rev. Mod. Phys.* **78** (2006) 866.
- [13] M. Imada and T. Miyake: *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 112001.
- [14] O. Sakai and H. Harima: *J. Phys. Soc. Jpn.* **81** (2012) 024717.
- [15] M. Jarrell: *Phys. Rev. Lett.* **69** (1992) 168.
- [16] Y. Kuramoto, H. Kusunose and A. Kiss: *J. Phys. Soc. Jpn.* **78** (2009) 072001.
- [17] C.H. Lee, H. Matsuhata, H. Yamaguchi, C. Sekine, H. Kihou, T. Suzuki, T. Noro and I. Shirovani: *Phys. Rev. B* **70** (2004) 153105.
- [18] K. Iwasa, L. Hao, K. Kuwahara, M. Kohgi, S.R. Saha, H. Sugawara, Y. Aoki, H. Sato, T. Tayama and T. Sakakibara: *Phys. Rev. B* **72** (2005) 024414.
- [19] S.R. Saha, H. Sugawara, T. Namiki, Y. Aoki and H. Sato: *Phys. Rev. B* **80** (2009) 014433.

- [20] T. Takimoto: J. Phys. Soc. Jpn. **75** (2006) 034714.
- [21] Y. Kuramoto, J. Otsuki, A. Kiss and H. Kusunose: Prog. Theor. Phys. Suppl. **160** (2005) 114.
- [22] R. Shiina: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) 083705.
- [23] R. Shiina: J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 104722.
- [24] Y. Kuramoto and K. Miyake: J. Phys. Soc. Jpn. **59** (1990) 2831.
- [25] Y. Kuramoto and K. Miyake: Prog. Theor. Phys. Suppl. **108** (1992) 199.
- [26] K. Miyake and Y. Kuramoto: J. Magn. Magn. Mater. **90&91** (1990) 438.
- [27] B.A. Jones, C.M. Varma and J.W. Wilkins: Phys. Rev. Lett. **61** (1988) 125.
- [28] Y. Yanase, T. Jujo, T. Nomura, H. Ikeda, T. Hotta and K. Yamada: Phys. Rep. **387** (2003) 1.
- [29] 三宅和正: 固体物理 **31** (1996) 745.
- [30] 永長直人: 物性論における場の量子論 (岩波書店, 1995).
- [31] 永長直人: 電子相関における場の量子論 (岩波書店, 1998).
- [32] Y. Kuramoto and N. Fukushima: J. Phys. Soc. Jpn. **67** (1998) 583.
- [33] T. Moriya and T. Takimoto: J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 960.
- [34] 守谷亨: 磁性物理学 (朝倉書店, 2006).
- [35] 楠瀬博明: 物性研究 **97** (2012) 730.
- [36] P. Santini, S. Carretta, G. Amoretti, R. Caciuffo, N. Magnani and G. H. Lander: Rev. Mod. Phys. **81** (2009) 807.
- [37] T. Hotta: Rep. Prog. Phys. **69** (2006) 2061.
- [38] T. Hotta: Phys. Res. Int. **2012** (2012) 762798.
- [39] D. Mannix, Y. Tanaka, D. Carbone, N. Bernhoeft and S. Kunii: Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 117206.
- [40] K. Kuwahara, K. Iwasa, M. Kohgi, N. Aso, M. Sera and F. Iga: J. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007) 093702.
- [41] T. Matsumura, T. Yonemura, K. Kunimori, M. Sera and F. Iga: Phys. Rev. Lett. **103** (2009) 017203.
- [42] P. Santini and G. Amoretti: Phys. Rev. Lett. **73** (1994) 1027.
- [43] A. Kiss and P. Fazekas: Phys. Rev. B **71** (2005) 054415.
- [44] K. Hanzawa and N. Watanabe: J. Phys.: Condens. Matter **17** (2005) L419.
- [45] K. Hanzawa: J. Phys.: Condens. Matter **19** (2007) 072202.
- [46] K. Haule and G. Kotliar: Nat. Phys. **5** (2009) 796.
- [47] H. Kusunose and H. Harima: J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 084702.
- [48] S. Fujimoto: Phys. Rev. Lett. **106** (2011) 196407.
- [49] F. Cricchio, F. Bultmark, O. Grånäs and L. Nordström: Phys. Rev. Lett. **103** (2009) 107202.
- [50] H. Ikeda, M.-T. Suzuki, R. Arita, T. Takimoto, T. Shibauchi and Y. Matsuda: Nat. Phys. **8** (2012) 528.
- [51] S. Elgazzar, J. Ruzs, M. Amft, P.M. Oppeneer and J.A. Mydosh: Nat. Materials **8** (2009) 337.
- [52] Y. Dubi and A.V. Balatsky: Phys. Rev. Lett. **106** (2011) 086401.
- [53] S. Hoshino, J. Otsuki and Y. Kuramoto: Phys. Rev. Lett. **107** (2011) 247202.
- [54] G.J. Nieuwenhuys: Phys. Rev. B **35** (1987) 5260.

- [55] T. Kohara, Y. Kohori, K. Asayama, Y. Kitaoka, M.B. Maple and M.S. Torikachvili: *Solid State Commun.* **59** (1986) 603.
- [56] M. Yokoyama, K. Tenya and H. Amitsuka: *Physica B* **312-313** (2002) 498.
- [57] A. Morishita, K. Matsuda, T. Wakabayashi, I. Kawasaki, K. Tenya and H. Amitsuka: *J. Magn. Magn. Mater.* **310** (2007) 283.
- [58] M. Kyogaku, Y. Kitaoka, K. Asayama, C. Geibel, C. Schank and F. Steglich: *J. Phys. Soc. Jpn.* **62** (1993) 4016.
- [59] Y. Ōnuki and T. Komatsubara: *J. Magn. Magn. Mater.* **63&64** (1987) 281.
- [60] K. Satoh, T. Fujita, Y. Maeno, Y. Ōnuki and T. Komatsubara: *J. Phys. Soc. Jpn.* **58** (1989) 1012.
- [61] R. Michalski, Z. Ropka and R.J. Radwański: *J. Phys.: Condens. Matter* **12** (2000) 7609.
- [62] A.M. Mulders, A. Yaouanc, P.D. de Réotier, P.C.M. Gubbens, A.A. Moolenaar, B. Fåk, E. Ressouche, K. Prokeš, A.A. Menovsky and K.H.J. Buschow: *Phys. Rev. B* **56** (1997) 8752.
- [63] C. Broholm, J.K. Kjems, W.J.L. Buyers, P. Matthews, T.T.M. Palstra, A.A. Menovsky and J.A. Mydosh: *Phys. Rev. Lett.* **58** (1987) 1467.
- [64] C. Broholm, H. Lin, P.T. Matthews, T.E. Mason, W.J.L. Buyers, M.F. Collins, A.A. Menovsky, J.A. Mydosh and J.K. Kjems: *Phys. Rev. B* **43** (1991) 12809.
- [65] H. Amitsuka, K. Kuwahara, M. Yokoyama, K. Tenya, T. Sakakibara, M. Mihalik and A.A. Menovský: *Physica B* **281&282** (2000) 326.
- [66] S. Yotsuhashi, K. Miyake and H. Kusunose: *J. Phys. Soc. Jpn.* **71** (2002) 389.
- [67] S. Nishiyama and K. Miyake: *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** (2011) 124706.
- [68] J.-G. Park, D.T. Adroja, K.A. McEwan, M. Kohgi and K. Iwasa: *Phys. Rev. B* **77** (2008) 085102.
- [69] S. Hoshino, J. Otsuki and Y. Kuramoto: *J. Phys. Soc. Jpn.* **80** (2011) 033703.
- [70] I. Kawasaki, S.-I. Fujimori, Y. Takeda, T. Okane, A. Yasui, Y. Saitoh, H. Yamagami, Y. Haga, E. Yamamoto and Y. Ōnuki: *Phys. Rev. B* **83** (2011) 234121.
- [71] H. Ohkuni, Y. Inada, Y. Tokiwa, K. Sakurai, R. Settai, T. Honma, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Ōnuki, H. Yamagami, S. Takahashi and T. Yanagisawa: *Philos. Mag. B* **79** (1999) 1045.
- [72] S.-I. Fujimori, Y. Saitoh, T. Okane, A. Fujimori, H. Yamagami, Y. Haga, E. Yamamoto and Y. Ōnuki: *Nat. Phys.* **3** (2007) 618.
- [73] H. Amitsuka, M. Sato, N. Metoki, M. Yokoyama, K. Kuwahara, T. Sakakibara, H. Morimoto, S. Kawarazaki, Y. Miyako and J.A. Mydosh: *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 5114.
- [74] R. Yoshida, Y. Nakamura, M. Fukui, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Ōnuki, M. Okawa, S. Shin, M. Hirai, Y. Muraoka and T. Yokoya: *Phys. Rev. B* **82** (2010) 205108.
- [75] E. Hassinger, G. Knebel, T.D. Matsuda, D. Aoki, V. Taufour and J. Flouquet: *Phys. Rev. Lett.* **105** (2010) 216409.
- [76] H. Harima, K. Miyake and J. Flouquet: *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** (2010) 033705.
- [77] S. Saitoh, S. Takagi, M. Yokoyama and H. Amitsuka: *J. Phys. Soc. Jpn.* **74** (2005) 2209.
- [78] H. Amitsuka, T. Inami, M. Yokoyama, S. Takayama, Y. Ikeda, I. Kawasaki, Y. Homma, H. Hidaka

- and T. Yanagisawa: *J. Phys. :Conf. Ser.* **200** (2010) 012007.
- [79] H.C. Walker, R. Caciuffo, D. Aoki, F. Bourdarot, G.H. Lander and J. Flouquet: *Phys. Rev. B* **83** (2011) 193102.
- [80] 例えば, G. Motoyama, N. Yokoyama, A. Sumiyama and Y. Oda: *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** (2008) 123710.
- [81] D. Aoki, F. Bourdarot, E. Hassinger, G. Knebel, A. Miyake, S. Raymond, V. Taufour and J. Flouquet: *J. Phys. Soc. Jpn.* **78** (2009) 053701.
- [82] K. Haule and G. Kotliar: *Europhys. Lett.* **89** (2010) 57006.
- [83] H. Kusunose: *J. Phys. Soc. Jpn.* **81** (2012) 023704.
- [84] 大槻純也, 星野晋太郎: 私信.
- [85] P.M. Oppeneer, J. Rusz, S. Elgazzar, M.-T. Suzuki, T. Durakiewicz and J.A. Mydosh: *Phys. Rev. B* **82** (2010) 205103.
- [86] A. Villaume, F. Bourdarot, E. Hassinger, S. Raymond, V. Taufour, D. Aoki and J. Flouquet: *Phys. Rev. B* **78** (2008) 012504.
- [87] R. Okazaki, T. Shibauchi, H.J. Shi, Y. Haga, T.D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Onuki, H. Ikeda and Y. Matsuda: *Science* **331** (2011) 439.
- [88] S. Tonegawa, K. Hashimoto, K. Ikada, Y.-H. Lin, H. Shishido, Y. Haga, T.D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Onuki, H. Ikeda, Y. Matsuda and T. Shibauchi: *Phys. Rev. Lett.* **109** (2012) 036401.
- [89] P. Thalmeier and T. Takimoto: *Phys. Rev. B* **83** (2011) 165110.
- [90] K. Kuwahara, H. Amitsuka, T. Sakakibara, O. Suzuki, S. Nakamura, T. Goto, M. Mihalik, A.A. Menovsky, A. de Visser and J.J.M. Franse: *J. Phys. Soc. Jpn.* **66** (1997) 3251.
- [91] E. Hassinger, G. Knebel, K. Izawa, P. Lejay, B. Salce, and J. Flouquet: *Phys. Rev. B* **77** (2008) 115117.
- [92] N.K. Sato, N. Aso, K. Miyake, R. Shiina, P. Thalmeier, G. Varelogiannis, C. Geibel, F. Steglich, P. Fulde and T. Komatsubara: *Nature* **410** (2001) 340.
- [93] K. Miyake and N. K. Sato: *Phys. Rev. B* **63** (2001) 052508.
- [94] M. Matsumoto and M. Koga: *J. Phys. Soc. Jpn.* **73** (2004) 1135.
- [95] K. Hasselbach, J. R. Kirtley and J. Flouquet: *Phys. Rev. B* **47** (1993) 509.
- [96] Y. Kohori, K. Matsuda and T. Kohara: *J. Phys. Soc. Jpn.* **65** (1996) 1083.
- [97] Y. Kasahara, T. Iwasawa, H. Shishido, T. Shibauchi, K. Behnia, Y. Haga, T.D. Matsuda, Y. Onuki, M. Sigrist and Y. Matsuda: *Phys. Rev. Lett.* **99** (2007) 116402.
- [98] Y. Kasahara, H. Shishido, T. Shibauchi, Y. Haga, T.D. Matsuda, Y. Onuki and Y. Matsuda: *New J. Phys.* **11** (2009) 055061.
- [99] K. Yano, T. Sakakibara, T. Tayama, M. Yokoyama, H. Amitsuka, Y. Homma, P. Miranović, M. Ichioka, Y. Tsutsumi and K. Machida: *Phys. Rev. Lett.* **100** (2008) 017004.
- [100] K.H. Kim, N. Harrison, M. Jaime, G.S. Boebinger and J.A. Mydosh: *Phys. Rev. Lett.* **91** (2003) 256401.

[101] F. Bourdarot: Dr. thesis, Université Joseph Fourier (1993).

[102] L. Hao, K. Iwasa, M. Nakajima, D. Kawana, K. Kuwahara, M. Kohgi, H. Sugawara, T.D. Matsuda, Y. Aoki, and H. Sato: *Acta Phys. Pol. B* **34** (2003) 1113.