

磁性体におけるトポロジー・対称性の破れによる 異常電気磁気応答

東京大学総合文化研究科 小野瀬佳文

1 はじめに

遷移金属酸化物などの磁性体・強相関係の研究は、1986 年の高温超伝導の発見を契機に大きな盛り上がりを見せ、その後、マンガン酸化物をはじめとした他の遷移金属酸化物全般へと波及した。この過程では、超伝導、電荷・軌道整列といった多体ならではの協力現象が研究の中心であった。しかし、2000 年代に入ってスピン軌道相互作用に由来して起こる非自明な電気磁気現象に注目が集まるようになってきた。本講義では、このようなスピン軌道相互作用に由来する電気磁気現象の例として、磁気誘起強誘電体（マルチフェロイクス）やベリー位相誘起異常ホール効果を解説する。この講義では、主に大学院修士一、二年生を対象としているので物理系の学部卒業レベルの知識から出発して、上記の現象が理解できるような内容にするよう心掛けた。より進んだ理解には、これらの研究に関する優れた解説（例えば文献 [1, 2]）がすでに出ているのでそちらを参照してほしい。

2 磁気誘起強誘電体（マルチフェロイクス）

2.1 物質中の電磁気学と電気磁気効果

真空中の電磁気学は、 $\mathbf{E}$ と $\mathbf{B}$ の二つの場を用いた以下のマクスウェル方程式によって記述される。

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \rho / \epsilon_0 \quad (1)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (3)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{j} + \epsilon_0 \mu_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (4)$$

物質中では、媒質が持つ電気双極子と磁気双極子の影響を考慮することが必要である。電気双極子の密度を電気分極 $\mathbf{P}$ といい、磁気双極子の密度は磁化 $\mathbf{M}$ と呼ばれる。電気分

極の電磁場の影響は、分極を持つ媒質の表面など分極が空間変化した際の有効電荷によって表わされる。これを分極電荷 ρ_P という。また、磁化の影響は磁化の周りに回る電流としてあらわされる。これを磁化電流 $\mathbf{j}_M$ という。詳細は省くが、分極電流、磁化電流は

$$\rho_P = -\nabla \cdot \mathbf{P} \quad (5)$$

$$\mathbf{j}_M = \nabla \times \mathbf{M} \quad (6)$$

と表わされることが知られている。また、分極が変化すると分極電荷が変化し電流が流れるとみなすことが出来る。このような分極電流 $\mathbf{j}_P$ は、 $\nabla \cdot \mathbf{j}_P + \frac{\partial \rho_P}{\partial t} = 0$ を満たすことから、 $\mathbf{j}_P = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}$ と表される。さて、これら ρ_P 、 $\mathbf{j}_M$ 、 $\mathbf{j}_P$ を上記のマクスウェル方程式に代入すると、 $\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}$ 、 $\mathbf{H} = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} - \mathbf{M}$ を用いた以下のような物質中のマクスウェル方程式が得られる。

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho \quad (7)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (8)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (9)$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \mu_0 \mathbf{j} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (10)$$

ここでは、電流 $\mathbf{j}$ 、電荷 ρ は分極、磁化の影響を除いたものを表している。さて、ここまでの議論では分極 $\mathbf{P}$ 、磁化 $\mathbf{M}$ がどのように決まるかは述べていない。電場や磁場の下でこれらがどのような値になるかは、電磁気学というよりは物性物理学の問題になる。しばしば、 $\mathbf{P} = \chi_e \mathbf{E}$ や $\mathbf{M} = \chi_m \mathbf{H}$ または、 $\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E}$ や $\mathbf{B} = \mu \mathbf{H}$ のような比例則が用いられている。確かに比較的多くの物質がこのような比例則を示すが例外もある。例えば強磁性体の磁化は磁場に比例するような振る舞いは示さない。

磁場によって電気分極 (および $\mathbf{D}$) が変化し、電場によって磁化 (および $\mathbf{B}$) が変化する

$$D_i = \epsilon_{ij} E_j + \alpha_{ij} H_j \quad (11)$$

$$B_i = \mu_{ij} H_j + \alpha_{ji} E_j \quad (12)$$

のように表される電気磁気効果が現れる効果を示す物質もある。この電気磁気効果は古くはピエールキュリーによってその存在が予測されていたが [3]、1960 年代に Dzyaloshinskii が具体的に Cr_2O_3 の電気磁気効果を予測して [4]、それが実際に観測されている [5]。その後、多くの物質でこのような電気磁気効果が観測されている。このような電気磁気効果の有無や発生する電場磁場の向きなどを考える上では、次節で述べるような磁気点群の対称性を用いることが有用である。

2.2 電気磁気効果の対称性の規則

2.2.1 対称性と物質応答

物質の性質は何らかの作用に対する応答で特徴づけられるが、この関係は通常ベクトルやテンソルで与えられる。例えば、電気伝導は電場ベクトルに電気伝導度テンソルをかけると電流密度ベクトルが導かれる関係式 $\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E}$ で表わされる。このとき物質の伝導特性を決めるのは電気伝導度テンソルになる。このように、物質への作用を表すテンソル量と応答を表わすテンソル量を結ぶテンソル量を物性テンソルと呼ぶ。さて、物性テンソルには物質の対称性によってある程度その成分がどのように振舞うかを予測することが出来る。例えば、立方晶、正方晶、斜方晶のときには主軸を適当に選べば電気伝導度は以下のような形になる

$$\sigma_{\text{立方晶}} = \begin{pmatrix} \sigma & 0 & 0 \\ 0 & \sigma & 0 \\ 0 & 0 & \sigma \end{pmatrix} \quad (13)$$

$$\sigma_{\text{正方晶}} = \begin{pmatrix} \sigma_1 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_1 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_2 \end{pmatrix} \quad (14)$$

$$\sigma_{\text{直方晶}} = \begin{pmatrix} \sigma_1 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_2 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_3 \end{pmatrix} \quad (15)$$

この例は直観的にも明らかであるが、複雑な場合になればなるほど対称性の有用性は増してくる。以下では対称性がどのように物性テンソルを決定するか説明する。

2.2.2 テンソルの変換

座標の基本ベクトル $\mathbf{e}_i$ が回転によって

$$\mathbf{e}'_j = \sum a_{ij} \mathbf{e}_i \quad (16)$$

のような変換を受ける場合、ベクトル T_i は

$$T'_j = \sum a_{ji} T_i \quad (17)$$

のような変換を受ける。同様に、二階テンソル T_{ij} 、三階テンソル T_{ijk} 、四階テンソル T_{ijkl} は

$$T'_{kl} = \sum a_{ki} a_{lj} T_{ij} \quad (18)$$

$$T'_{lmn} = \sum a_{li} a_{mj} T_{nk} \quad (19)$$

$$T'_{mnop} = \sum a_{mi} a_{nj} a_{ok} a_{pl} T_{ijkl} \quad (20)$$

のようになる。

座標系の反転や鏡映などの変換の場合は注意が必要である。例えば、座標系の反転に対して位置ベクトル、運動量ベクトルは $\mathbf{r} \rightarrow -\mathbf{r}$ 、 $\mathbf{p} \rightarrow -\mathbf{p}$ のように変換を受けるが、角運動量ベクトルは $\mathbf{l} = \mathbf{r} \times \mathbf{p} \rightarrow \mathbf{l}$ となる。一般に反転や鏡映のような座標系を右手系から左手系に変換するような場合には、ベクトルは

$$T'_j = \lambda \sum a_{ji} T_i \quad (21)$$

$$\lambda = \pm 1 \quad (22)$$

のように変換する。 $\lambda = +1$ となるベクトルを極性ベクトル、 $\lambda = -1$ となるベクトルを軸性ベクトルという。同様に、二階テンソル T_{ij} 、三階テンソル T_{ijk} 、四階テンソル T_{ijkl} も

$$T'_{kl} = \lambda \sum a_{ki} a_{lj} T_{ij} \quad (23)$$

$$T'_{lmn} = \lambda \sum a_{li} a_{mj} T_{nk} \quad (24)$$

$$T'_{mnop} = \lambda \sum a_{mi} a_{nj} a_{ok} a_{pl} T_{ijkl} \quad (25)$$

のようになり、 $\lambda = 1$ のテンソルを極性テンソル、 $\lambda = -1$ のテンソルを軸性テンソルという。

2.2.3 ノイマンの原理

ノイマンの原理によれば、物性テンソルは結晶のもつ点群の対称性を持たなくてはならないということが要請される。点群というのは、回転や反転、鏡映といったある一点の周りに作用して、その点だけは不変に保たれる操作の集合のことである。結晶を不変に保つような、回転、反転、鏡映を集めた点群で結晶の対称性を分類することが出来る。

例として、直方晶 222 の場合を考えよう。この点群は、直交した 3 つの方向 (x 方向、y 方向、z 方向) 周りの 2 回回転 (180 度回転) で不変になる対称性である。群に属する

回転操作は三つの2回回転 C_{2x}, C_{2y}, C_{2z} と恒等操作だけである。行列で書くとこれらの2回回転操作は

$$C_{2x} = (c_{ij}^x) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (26)$$

$$C_{2y} = (c_{ij}^y) = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (27)$$

$$C_{2z} = (c_{ij}^z) = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (28)$$

となる。ノイマンの原理をもとに電気伝導度テンソル σ_{ij} がどのようなようになるか考えると、

$$\sigma_{ij} = \sum c_{ik}^x c_{jl}^x \sigma_{kl} \quad (29)$$

$$\sigma_{ij} = \sum c_{ik}^y c_{jl}^y \sigma_{kl} \quad (30)$$

$$\sigma_{ij} = \sum c_{ik}^z c_{jl}^z \sigma_{kl} \quad (31)$$

$$(32)$$

より、式 15 が得られる。

空間反転対称操作は次のような行列で表される。

$$I = (c_{ij}^i) = \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (33)$$

これを用いると、空間反転対称性のある結晶の場合、奇数次の極性テンソルと偶数次の軸性テンソルの物性テンソルは存在しないことが分かる。逆に言えば、空間反転対称性が破れた結晶においては、このような制約が破れるので通常の物質では表れない応答が生じる。このような応答の例が自然旋光や圧電性である。

2.2.4 時間反転操作と磁気点群

磁気秩序状態の対称性を議論するには、通常の点群では不十分で時間反転操作 R を考えなければならない。時間反転操作は文字通り時間の向きを逆にする操作で、この操作により電流、運動量、角運動量などが反転する。磁気秩序状態では、スピンや軌道の角運動量が作る磁気モーメントが時間反転操作によって反転することになるのである。回転、反転、鏡映などの操作に時間反転操作および時間変転操作と点群の対称操作を同時に行う操

作（例えば時間反転した後に2回回転など）よりなる群を磁気点群とよぶ。磁気点群により磁気秩序した物質の対称性を分類できる。

また、テンソルにも時間反転操作で不変な i テンソルと時間反転操作によって符号を変える c テンソルがある。 c テンソルの物性テンソルは時間反転対称性が破れた場合のみ有限になる。

2.2.5 時間反転・空間反転対称性の破れと電気磁気効果

電気磁気効果は、電場磁場の積に比例した自由エネルギーの項 $\Delta F_{ME} = \alpha_{ij} E_i H_j$ に由来しており、これにより、

$$M_i = \alpha_{ij} E_j \quad (34)$$

$$P_i = \alpha_{ji} H_j \quad (35)$$

が導かれる。 M_i は軸性 c ベクトル（一次テンソル）、 P_i は極性 i ベクトルなので、 α_{ij} は2階の軸性 c テンソルということになる。これが有限であるためには時間反転対称性と空間反転対称性が同時に破れている必要がある。

例えば、 GaFeO_3 では結晶構造が b 軸方向の正負で対称でなく有限の電気分極を持つ物質である焦電体（強誘電体と異なり電場で電気分極をコントロールすることが出来ないもの）であり、280K 以下ではフェリ磁性を示し c 軸方向に自発磁化を持つ。したがって時間反転対称性、空間反転対称性がともに破れた系になっている。このような場合には、有限の電気磁気効果が生じる [6, 7]。

2.3 逆ジャロシンスキー守谷機構によるスピン誘起強誘電体

電気磁気効果は、多くの場合、外場に比例した比較的小さな効果であったが、2003 年に木村、十倉らによりスピン誘起強誘電性が発見され [8]、磁性と誘電性がより強く結合しうることが認識された。この節では、主要なスピン誘起強誘電性の起源である逆ジャロシンスキー守谷機構によるスピン誘起強誘電性の概略を解説する。

2.3.1 ジャロシンスキー守谷相互作用

まず、もととなるジャロシンスキー守谷相互作用を説明しよう [9, 10]。次のような交換相互作用を一回、スピン軌道相互作用を一回使った二次の摂動エネルギーを考えよう。

$$H_{DM} = -\lambda \left[\sum_{n_1} \frac{\langle g_1 | \mathbf{L}_1 \cdot \mathbf{S}_1 | n_1 \rangle \langle n_1 g_2 | V_{ex} | g_1 g_2 \rangle + \langle g_1 g_2 | V_{ex} | n_1 g_2 \rangle \langle n_1 | \mathbf{L}_1 \cdot \mathbf{S}_1 | g_1 \rangle}{E_{n_1} - E_{g_1}} + (1 \text{ と } 2 \text{ を交換した項}) \right] \quad (36)$$

これは

$$H_{DM} = \mathbf{D} \cdot [\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2] \quad (37)$$

$$\mathbf{D} = -2i\lambda \left[\sum_{n_1} \frac{\langle g_1 | \mathbf{L}_1 | n_1 \rangle}{E_{n_1} - E_{g_1}} J(n_1 g_2, g_1 g_2) - \sum_{n_2} \frac{\langle g_2 | \mathbf{L}_2 | n_2 \rangle}{E_{n_2} - E_{g_2}} J(g_1 n_2, g_1 g_2) \right] \quad (38)$$

のように書くことができ、2つのスピンについて反対称な相互作用が与えられる。

このような相互作用を実際の物質で考えるときには、式 38 の摂動項を真面目に考えるよりも対称性の考察が有効である。一般にハミルトニアンは、結晶格子や分子などの対象としている系が持つ対称性を反映している。回転や鏡映などの対称操作に対して系が不変ならばハミルトニアンも不変になることが要請される。ジャロシンスキー守谷相互作用のハミルトニアン式 37 は、1 サイトと 2 サイトの交換すると符号が逆になる形をしており、もし 1 サイトと 2 サイトの midpoint が反転対称の中心になっていると $\mathbf{D} = 0$ になる。その他、磁性サイトを結ぶ線分を AB としその midpoint を C とするとき、 $\mathbf{D}$ ベクトルには以下のような対称性の規則がある。

1. AB に垂直で C を通る鏡映面があるとき $\mathbf{D} \perp AB$
2. AB を含む鏡映面がある場合には $\mathbf{D} \perp$ 鏡映面
3. C をとおり AB に垂直な 2 回軸がある場合には $\mathbf{D} \perp 2$ 回軸
4. AB を軸とする n 回軸 ($n > 2$) があるときには $\mathbf{D} \parallel AB$

2.3.2 らせん磁気構造

結晶がマクロな電気分極を持つ場合や鏡映対称性が破れたキラルな対称性を持つ場合、ジャロシンスキー守谷ベクトル $\mathbf{D}$ の空間的に一様な成分が存在する。このような場合、特定の軸周りにスピンの回転しているらせん磁気構造がしばしば現れる。

これを考えるために、次のようなハミルトニアンが働く一次元的配列をしている古典磁気モーメントの系を考えよう。

$$H = -J \sum_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + D \sum_{ij} \mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j \quad (39)$$

第一項は強磁性相互作用であり、第二項はジャロシンスキー守谷相互作用である。相互作用は最近接サイトでのみ働き、どの最近接サイト間でも相互作用の値は変わらないものとする。 $\mathbf{S}_i$ と $\mathbf{S}_j$ がなす角を θ とすると、二サイトの磁気モーメントのエネルギー E_{ij} は

$$E_{ij} = -JS^2 \cos \theta + DS^2 \sin \theta = -\sqrt{J^2 + D^2} S^2 \cos(\theta + \alpha) \quad (40)$$

ただし $\tan \alpha = -\frac{D}{J}$ である。 $\mathbf{D}$ に垂直な面内でスピンの $\theta = -\alpha$ だけ傾いた状態が最もエネルギーが低い。したがって、角度 α づつ磁気モーメントが回転するらせん磁性が安定化される。

一方で、ジャロシンスキー守谷相互作用が存在しなくても交換相互作用の競合によってらせん磁性は発現する。これを見るために、最近接では J_1 、次近接では J_2 の磁気相互作用が働く古典一次元系を考えよう。ハミルトニアンは次のようになる。

$$H = -J_1 \sum_{\text{最近接}} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - J_2 \sum_{\text{次近接}} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (41)$$

となる。ここで n 番目のサイトのスピンの x 、 y 、 z 成分を

$$S_n^x = S \cos(n\theta + \phi) \quad (42)$$

$$S_n^y = S \sin(n\theta + \phi) \quad (43)$$

$$S_n^z = 0 \quad (44)$$

とおく。ここで $\theta = 0$ ならば強磁性、 $\theta = \pi$ ならば反強磁性、それ以外ならばらせん磁性となる。この時のエネルギーは

$$E = -NS^2(J_1 \cos \theta + J_2 \cos 2\theta) \quad (45)$$

となる。

J_2 が正の場合には $J_1 > 0$ の場合強磁性、 $J_1 < 0$ の場合反強磁性となるが、 J_2 が負の場合で $J_1 < 4J_2$ のときにはらせん磁性になる。らせんの角度 θ_0 は $dE/d\theta|_{\theta=\theta_0} = 0$ より

$$\theta_0 = J_1/4J_2 \quad (46)$$

となる。

2.3.3 逆ジャロシンスキー守谷機構

相互作用の競合によってらせん磁性が安定化された場合に、ジャロシンスキー守谷相互作用の逆効果が働いて誘電分極を誘起する場合がある。図 1 は、 TbMnO_3 というマンガン酸化物の結晶の一部を取り出したものであり、マンガン原子と酸素原子がジグザグしたネットワークでつながっている。マンガンの磁気モーメントは相互作用の競合によって図 1(c) のようにらせん磁気構造を示すが、ジャロシンスキー守谷相互作用の逆効果により酸素イオンが変位する。これによって陽イオンの Mn^{3+} と陰イオンの O^{2-} のバランスが崩れ、電気分極が発現する [8, 11, 12]。

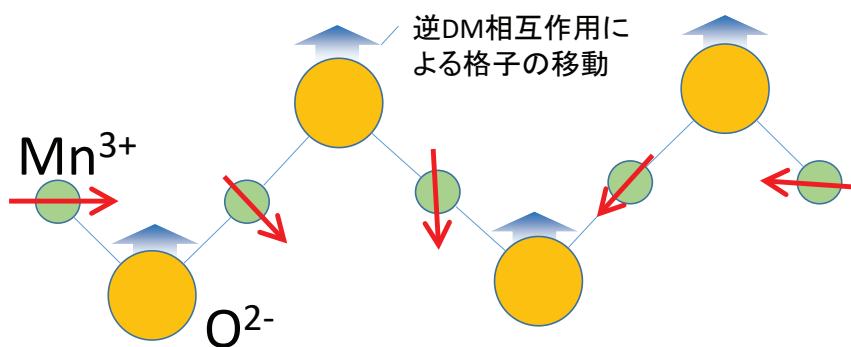
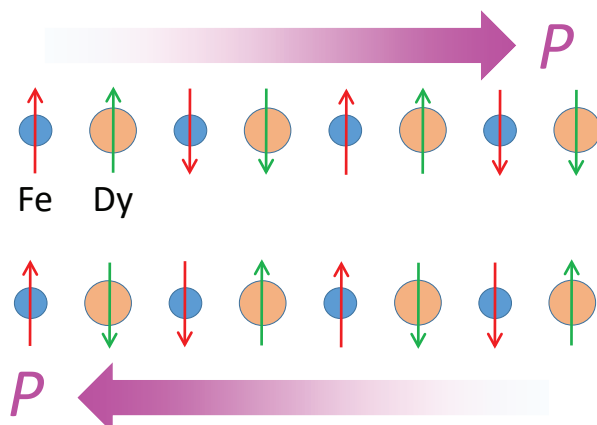


図 1 逆ジャロシンスキー守谷機構による強誘電分極の発生

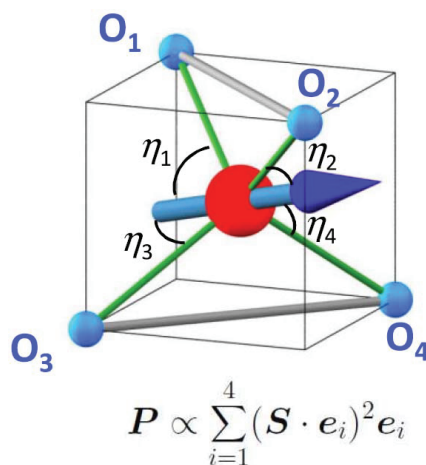
2.4 その他の機構のスピント起強誘電体

2.4.1 交換歪

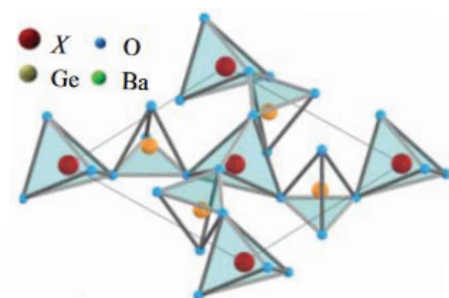
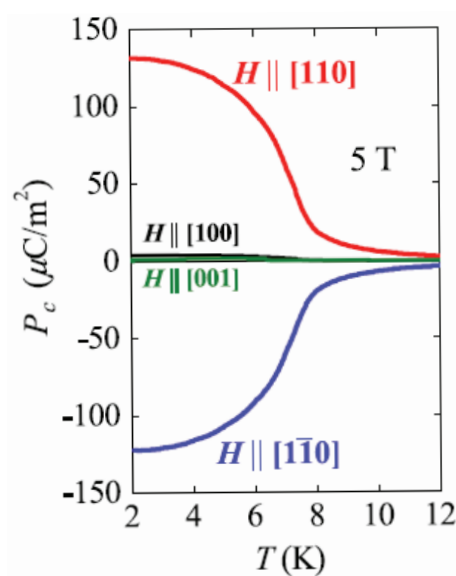
ジャロシンスキー守谷相互作用を介さなくてもスピンの整列によって強誘電性が生じることもある。 $JS_i \cdot S_j$ のようにスピンの内積で表される通常の磁気相互作用は一般に距離が近い程強い。このような相互作用の距離依存性のために、 $S_i \cdot S_j$ に依存した歪みが生じることがある。このような効果を交換歪という。交換歪は磁気秩序が起こればどんな磁気秩序状態でも存在するが、これによって電気分極が生じることはそれほど多くない。その数少ない例として DyFeO_3 を紹介しよう [13]。図 2 にはこの物質の低温強磁場における磁気構造を単純化したものを示す。この物質では、Dy と Fe が磁気モーメントを持っていて低温強磁場下では Fe と Dy がそれぞれ反強磁性に整列している。この場合に一つの Fe の左右の Dy のモーメントが、一方が平行に近く他方が反平行に近い磁気構造になっている。このため左右で対称性が崩れて誘電分極が発現する。

図2 DyFeO₃における低温強磁場の磁気構造

2.4.2 スピン依存混成機構

図3 スピン異存混成機構による CoO₄ 四面体における分極発生の概念図 [15]

磁性体の多くは磁性元素とその周りに存在する酸素などの配位子で構成される。この場合、磁性元素と配位子の軌道は、混成して結合軌道、反結合軌道を形成する。酸素イオンと遷移金属イオンの有効電荷は正確にはどのように軌道が混成するかによって依存している。スピン軌道相互作用が存在する場合、混成の度合いもスピン方向に依存することになり、結果として配位子の電荷量にスピン方向と結合方向のなす角 θ を用いて $\cos^2 \theta$ のような変調が現れる。したがって、一つの遷移金属にいくつかの配位子が配位していると、遷移

図4 Ba₂CoGe₂O₇ における結晶構造 [16]図5 Ba₂CoGe₂O₇ における磁場下の誘電分極の温度依存性 [16]

金属から i 番目の配位子を結ぶベクトルを $\mathbf{e}_i$ と表すとき、遷移金属と配位子からなるクラスターが持つ電気双極子は $\sum_i (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{S})^2 \mathbf{e}_i$ に比例する [14]。このような強誘電分極発現機構の例として、図3のような遷移金属と四面体位置に配位した4つの酸素からクラスターを考える [15, 16]。 $\mathbf{e}_i$ は $[111]$, $[11-1]$, $[1-11]$, $[-111]$ の4つの方向を向いている。スピンの $[110]$ 方向を向いているときには、 z 方向に電気双極子が向き、180度スピンを回転しても電気双極子は変化しないが、90度回転して $[1-10]$ 方向に向いているときには、 $[110]$ に向いた場合とは電気双極子が逆方向を向く。 $[100]$ もしくは $[010]$ 方向に向いたときには電気双極子は生じない。このようなスピンに依存する電気双極子（もしくは電気分極）発生のメカニズムをスピン依存混成機構と呼ぶ。

スピン依存混成機構による強誘電性の例として図 4 に示した $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ がある [15, 16]。この物質は頂点共有した CoO_4 、 GeO_4 の四面体および隙間にある Ba イオンからなる構造をとる。いろいろな方向に磁場を印加した場合の電気分極の温度依存性を図 5 に示す。上で述べた四面体クラスターの電気双極子とよく似た磁場方向依存性が観測されている。

3 ベリー位相誘起異常ホール効果

3.1 ベリー位相

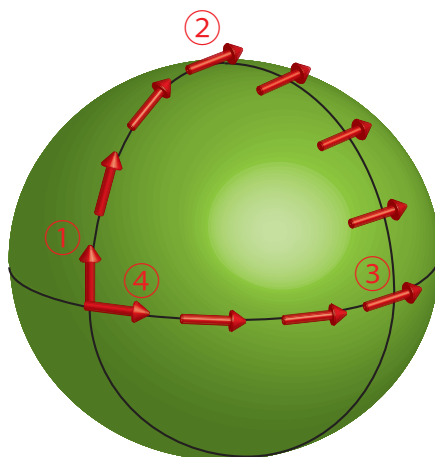


図 6 球面上の矢印の平行移動

曲率を持っている空間における運動は、非自明に見える場合がある。直観的にわかりやすい例は、図 6 のような球面上を平行移動する矢印である。1 → 2 → 3 → 4 のような閉曲線に沿って矢印が平行移動すると、元の位置に戻ってきたときに矢印の方向が回転しているのが分かる。これと類似の効果が電子状態においても起こる。ハミルトニアンがパラメータに依存しているとき、パラメータの断熱変化によって波動関数に位相が付く。この位相をベリー位相と呼ぶ [17]。以下、詳しくベリー位相を見ていこう。

パラメータ $X_1, X_2, \dots$ に依存したあるハミルトニアン $H(X_1, X_2, \dots)$ があり、電子の固有状態 $|\varphi_n\rangle$ と固有値 E_n が与えられているとする。これらもパラメータ $X_1, X_2, \dots$ の関数である。 $t = 0$ で電子は $n = m$ の状態にあるとし、このパラメータをゆっくりと

時間変化させることを考えよう。時刻 t での電子状態を

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n c_n(t) |\varphi_n(t)\rangle \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \int_0^t \tilde{E}_n(t') dt'\right) \quad (1)$$

とおく。ただし、

$$\tilde{E}_n(t) = E_n t - i\hbar \langle \varphi_n | \dot{\varphi}_n \rangle \quad (2)$$

$$|\dot{\varphi}_n\rangle = \frac{\partial}{\partial t} |\varphi_n\rangle \quad (3)$$

である。上記の式を時間依存するシュレディンガー方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi\rangle = H |\psi\rangle \quad (4)$$

に代入し、 $\langle \varphi_k |$ との内積をとると ($k \neq m$)、

$$\frac{d}{dt} c_k(t) = \sum_{n \neq k} \frac{\langle \varphi_k | \frac{\partial H}{\partial t} | \varphi_n \rangle}{E_k - E_n} \quad (5)$$

が導かれる。この右辺はハミルトニアンの変化が十分ゆっくりの場合には小さくなることを示すことが出来る。したがって、パラメータが変化しても量子数 m は保存し、

$$|\psi(t)\rangle = |\varphi_m\rangle \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \int_0^t \tilde{E}_m(t') dt'\right) \quad (6)$$

$$= |\varphi_m\rangle \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \int_0^t E_m(t') dt'\right) \exp(i\gamma_m(t)) \quad (7)$$

となる。ここで、上式2行目の第一の指数は通常の時間発展の位相である。一方、第二の指数因子

$$\gamma_m(t) = i \int \langle \varphi_m | \dot{\varphi}_m \rangle dt \quad (8)$$

は、 $\langle \varphi_m | \varphi_m \rangle = 1$ を時間微分すると $\langle \varphi_m | \dot{\varphi}_m \rangle + \langle \dot{\varphi}_m | \varphi_m \rangle = 0$ が導かれるので実数であることが示される。また、パラメータがベクトル $\mathbf{X} = (X_1, X_2, X_3, \dots)$ で表される空間上で閉ループをたどり、 $t = T$ で元の値に戻る状況を考えるとすると、

$$\gamma_m = i \int_0^T \langle \varphi_m | \dot{\varphi}_m \rangle dt = i \int_0^T \langle \varphi_m | \nabla_{\mathbf{X}} \varphi_m \rangle \cdot \dot{\mathbf{X}} dt \quad (9)$$

$$= i \oint \langle \varphi_m | \nabla_{\mathbf{X}} \varphi_m \rangle \cdot d\mathbf{X} \quad (10)$$

と表される。このような位相因子をベリー位相という。

3.2 スピンがつくるベリー一位相

スピンの量子化軸が変化するときのベリー一位相を求めてみよう。S=1/2 のスピンの (θ, ϕ) 方向に向いているときのスピン状態は

$$|\theta, \phi\rangle = \begin{pmatrix} \cos(\theta/2) \\ e^{i\phi} \sin(\theta/2) \end{pmatrix} \quad (11)$$

と表される。これからベリー一位相を求めると、

$$\gamma_m = -i \int_0^T \langle \theta, \phi | \frac{\partial}{\partial t} | \theta, \phi \rangle dt = \frac{1}{2} \int_0^T \dot{\phi} (1 - \cos \theta) dt \quad (12)$$

となる。 θ, ϕ 方向の単位ベクトルを $\mathbf{n}$ とすると、 $d\mathbf{n} = d\theta \mathbf{e}_\theta + \sin \theta d\phi \mathbf{e}_\phi$ である。これを利用して、上記のベリー一位相を $\mathbf{n}$ の変化として表わすと、

$$\gamma_m = \frac{1}{2} \int_0^T \dot{\phi} (1 - \cos \theta) dt = \frac{1}{2} \oint d\mathbf{n} \cdot \mathbf{a} \quad (13)$$

$$\mathbf{a} = \frac{1 - \cos \theta}{\sin \theta} \mathbf{e}_\phi \quad (14)$$

となる。ストークスの定理を用いると、

$$\gamma_m = \frac{1}{2} \int b_r dS \quad (15)$$

$$b_r = (\nabla \times \mathbf{a})_r = 1 \quad (16)$$

と表されることから、ベリー一位相 γ_m はスピン方向 (θ, ϕ) の軌跡が囲む立体角に比例することが示される。

3.3 アハラノフボーム効果との比較

アハラノフボーム (AB) 効果 [18] は量子力学では電磁場ではなく電磁ポテンシャルが重要な役割を果たすことを示した有名な効果ですが、この節では AB 効果とベリー一位相を比較することによりベリー一位相の電子のダイナミクスへの影響はどのようなものか考えてみよう。

図 7 に AB 効果の概念図を示す。電子線源から二重スリットを通った電子線が干渉縞を示している。電子の上経路と下経路の間にコイルが存在しており、コイル内部にのみ磁場を生じさせることが出来る。コイルは、電子波の伝搬を妨げない位置に置かれている。

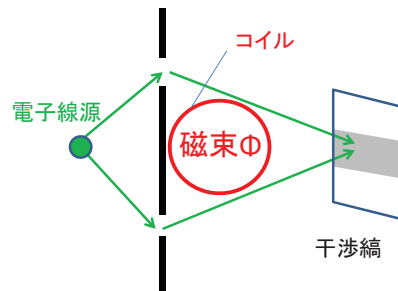


図7 アハラノフボーム効果

したがって磁場は電子線に働かないので電子の運動に影響を与えないように思えるが、実はそうではない。

ベクトルポテンシャルが存在する場合の電子の波動関数は

$$\psi = A \exp \left(i \frac{\mathbf{p}}{\hbar} \cdot \mathbf{r} + i \frac{e}{\hbar} \int \mathbf{A} \cdot d\mathbf{r} \right) \quad (17)$$

のように与えられる。通常の波動関数にベクトルポテンシャルの線積分に比例した位相項がついている。電子の干渉パターンのベクトルポテンシャルによる変化は上経路と下経路の位相差の変化であるので以下のように表される。

$$\begin{aligned} & \frac{e}{\hbar} \int_{\text{上経路}} \mathbf{A} \cdot d\mathbf{r} - \frac{e}{\hbar} \int_{\text{下経路}} \mathbf{A} \cdot d\mathbf{r} = \frac{e}{\hbar} \oint \mathbf{A} \cdot d\mathbf{r} \\ & = \frac{e}{\hbar} \int \nabla \times \mathbf{A} \cdot d\mathbf{S} = \frac{e}{\hbar} \int \mathbf{B} \cdot d\mathbf{S} \end{aligned} \quad (18)$$

電子はコイル内部の磁場の作用は受けなくても、コイルの外にも存在するベクトルポテンシャルによる位相変化が起こっていて、それによって干渉縞に変化が生じる。位相差の変化はコイル内部の磁束に比例している。上記のベリー位相の影響は、このような AB 効果による位相変化と類似している。したがってベリー位相は実効的な磁束として電子に作用することが推測される。

3.4 スキルミオン格子におけるホール効果

ベリー位相が実効磁場として作用すると非自明なホール効果として観測される。近年、磁性体においてベリー位相起源のホール効果の開拓が進んできた。強磁性体の異常ホール効果などの理解もベリー位相の概念を用いて進んでいる [19]。ここでは、ベリー位相の寄

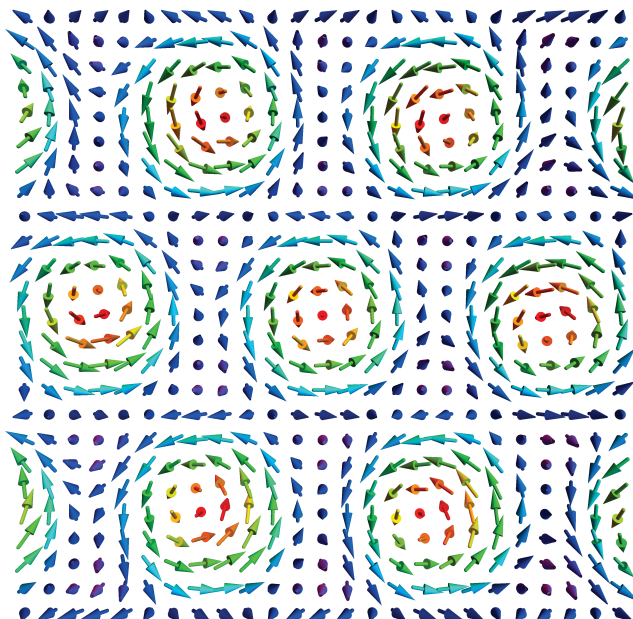


図8 スキルミオン格子

与が分かりやすい例として、スキルミオン格子におけるトポロジカルホール効果を説明しよう。

図8にスキルミオン格子を示す。スキルミオンとは渦状の磁気構造体で、スピンの方向が連続的に変化してなおかつすべての立体角を覆っているトポロジカルな磁気構造体である。スキルミオンが三角格子を組んだのがスキルミオンであり、近年 MnSi や $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ など鏡映対称性が破れたキラル磁性体において観測されている [20, 21]。上で述べたように、スピンが作るベリー位相はスピンが覆う立体角の大きさに比例しているので、スキルミオン格子においては、スキルミオンの密度に比例したベリー位相による実効磁場が期待される。実際、スキルミオン格子においてはベリー位相誘起のホール効果（トポロジカルホール効果）が観測されている [22, 23]。

4 マグノン励起におけるトポロジカル効果・対称性の破れの効果

4.1 強磁性マグノンにおけるジャロシンスキー守谷相互作用の効果

マグノンはスピンの歳差運動の波である。磁場中で歳差運動している磁気モーメントは、量子力学的に言えばスピンの量子数が1少ない状態に対応する。強磁性体中では、このような状態が交換相互作用によってサイトからサイトに伝搬していく。この描像は、強磁性相互作用を次のように書き直すとわかりやすい。

$$-J\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j = -\frac{J}{2}(S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+ + 2S_i^z S_j^z) \quad (1)$$

このようにかくと、スピンの量子数が1少ない「局在マグノン状態」に対して $S_i^+ S_j^-$ や $S_i^- S_j^+$ の項がいわばトランスファー積分として働き、これを伝搬させている描像が分かる。局所的な反転対称性が破れていると、交換相互作用に加えてジャロシンスキー守谷相互作用 $\mathbf{D} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$ が存在する。 $\mathbf{D}$ ベクトルが z 方向を向いているとして、これを以下のように書き換えてみよう。

$$D(\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)_z = i\frac{D}{2}(S_i^+ S_j^- - S_i^- S_j^+) \quad (2)$$

この式から、マグノンはジャロシンスキー守谷相互作用もマグノンのトランスファー積分として働くことが出来るが、この場合は純虚数の行列要素になっている。これによりマグノンに位相が与えられることになる。このようなジャロシンスキー守谷相互作用の位相の効果が現れた現象が、以下で述べるマグノンホール効果 [24, 25] とマグノンの非相反伝搬 [26] である。

4.2 マグノンホール効果

この節では、パイロクロア構造を有する強磁性絶縁体で起こるマグノンホール効果について述べよう [24, 25]。パイロクロア格子は頂点共有した正四面体からなる構造である。四面体の辺の midpoint では、反転対称性がないので図 9(a) のようなジャロシンスキー守谷ベクトル $\mathbf{D}$ が存在する。これによりマグノンに位相変化が生じる。ある閉ループを局在マグノンがたどる際に有限の位相を獲得するならば、それは実効磁束として働くことになる。図 9(b) には、パイロクロア構造の (111) 面におけるジャロシンスキー守谷相互作用

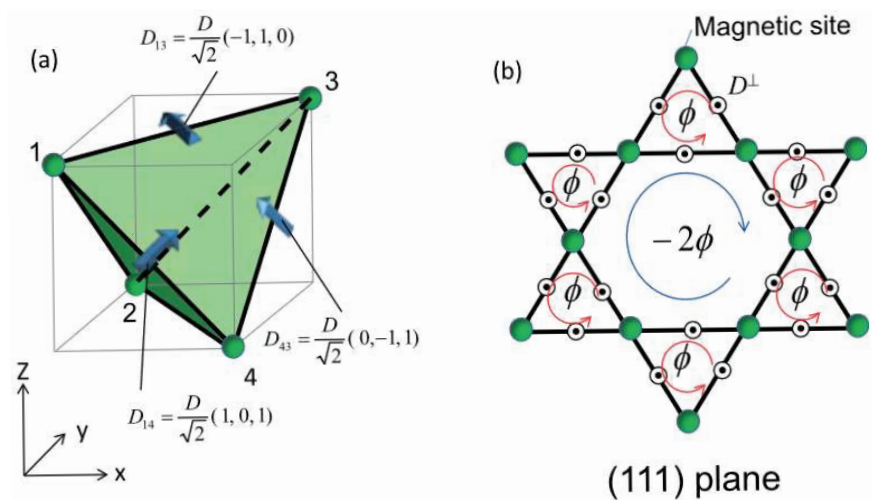


図9 (a) 四面体上のジャロシンスキー守谷ベクトル $\mathbf{D}$ 。(b) パイロクロア構造 (111) 面上のジャロシンスキー守谷ベクトルによる仮想磁束。[25]

による実効磁束を示す。パイロクロア構造の (111) 面はいわゆるカゴメ格子になっており、三角形と六角形からなるが、この三角形は $+\phi$ 、六角形 -2ϕ の磁束を持つ。これらの磁束は、単位格子全体の和はゼロになるが、三角形と六角形の非等価性より波数空間で有限のベリー位相が生じホール効果が起こることが理論的に示唆されている。

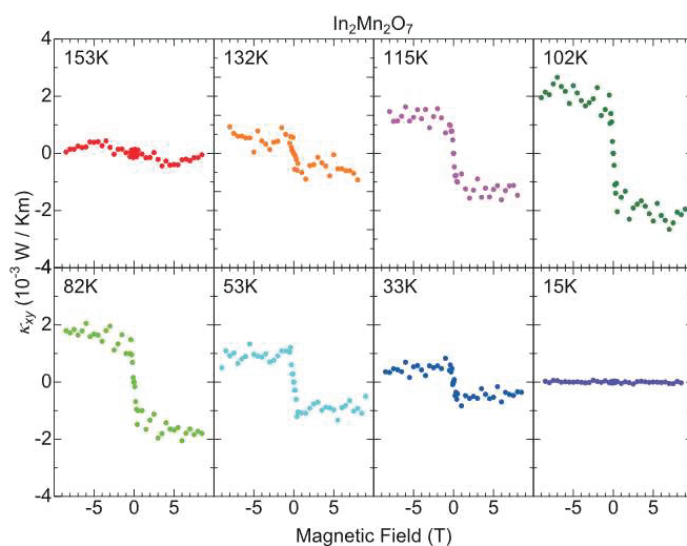


図10 $\text{In}_2\text{Mn}_2\text{O}_7$ における熱ホール伝導度 [25]

このようなジャロシンスキー守谷相互作用によって起こるマグノンのホール効果は、実験的には熱のホール効果として観測されている。熱流は伝導キャリア（電子、ホール）やフォノン、マグノンによって担われるが、絶縁体の場合キャリアの寄与がないので熱流は電氣的に中性なフォノンとマグノンによって担われる。これらの中性粒子にはローレンツ力 $\mathbf{F} = q(\mathbf{v} \times \mathbf{B})$ は働かないので、普通のホール効果は起こらないが、ベリー位相によるホール効果なら起こってもよい。逆に言えば、絶縁体で熱流のホール効果が起これば、中性の粒子による非自明なホール効果が起こっている証拠になる。図 10 には $\text{In}_2\text{Mn}_2\text{O}_7$ における熱ホール伝導度の磁場依存性を示す。 $T_C = 130\text{K}$ 以下で確かに有限のホール効果が観測されている。詳細な温度、磁場依存性の解析よりこのホール効果はフォノンではなくマグノンのホール効果によることが確認されている。

4.3 空間反転対称性が破れた強磁性体におけるマグノンの非相反伝搬

上では、ジャロシンスキー守谷相互作用による位相が閉ループで有限に残る場合にホール効果が起こることをみたが、結晶全体の空間反転対称性が破れた場合は何が起こるだろうか？この場合、一様なジャロシンスキー守谷相互作用が存在することになる。したがって、空間反転対称性が破れた強磁性体においては一樣で複素数のマグノントランスファー積分が存在する。この複素数のトランスファー積分は非対称なマグノン分散を生じる。この場合、 $+k$ のマグノンと $-k$ のマグノンの縮退が破れた非相反なマグノン伝搬が発現する。

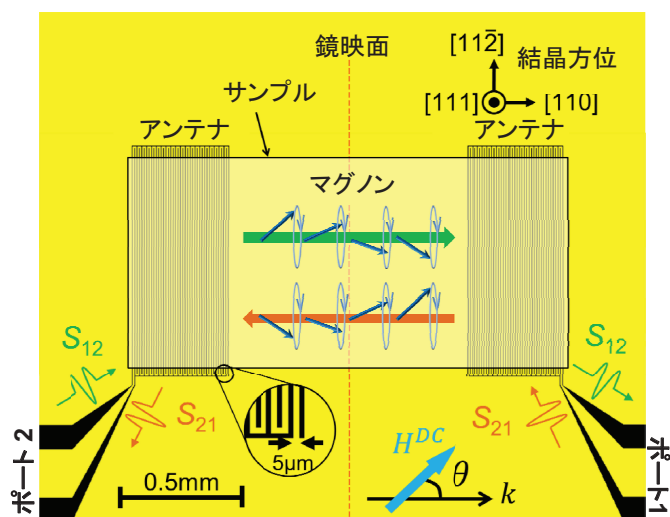


図 11 マグノン非相反伝搬の実験配置図 [26]

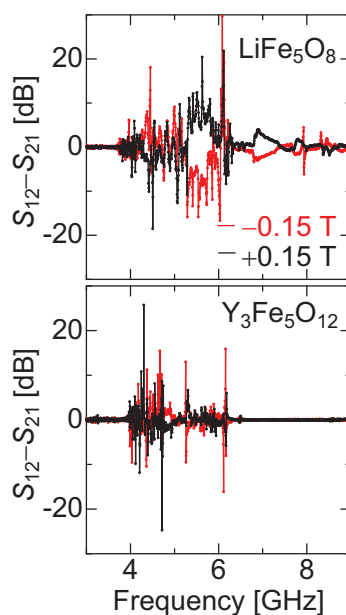


図 12 マグノン伝搬による透過強度の非相反性 [26]

最近、空間反転対称性が破れた強磁性体 LiFe_5O_8 において非相反なマグノン分散が実験的に観測された [26]。この実験は、図 11 に示したような実験配置で行われている。マイクロ波コプラナー回路の上に単結晶サンプルが置かれており、サンプル中の $+k$ マグノン伝搬によってマイクロ波信号が右から左に伝わり $-k$ のマグノンによって左から右にマイクロ波信号が伝わるようになっている。このマイクロ波信号の差が非相反性になる。図 12 にマグノン伝搬によるマイクロ波透過強度の非相反性 (右から左の透過強度と左から右への透過強度の差) を示す。上段が LiFe_5O_8 の結果で下段が参照物質の空間反転対称な $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ の結果を示している。 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ では、非相反性は観測されないが、 LiFe_5O_8 では 5-6 GHz 付近に有限の差が生じている。この非相反性は空間反転対称性が破れによるジャロシンスキー守谷相互作用によって誘起されたと考えられる。

5 おわりに

以上、磁性体において対称性の破れやトポロジによって引き起こされる電磁気現象を、筆者のなじみ深いものを中心に概観した。このトピックの面白さが少しでも伝われば幸いである。

上記の内容の多くは、筆者が東大物工の講師として十倉好紀先生が主導するプロジェク

トに参画した際の研究成果やそれを得る過程で学んだ知識をもとにしている。十倉先生、理論の研究を牽引されている永長直人先生、およびプロジェクトのメンバーの方々に感謝する。また、最後に紹介したマグノンの非相反伝搬の結果は、東大総合文化に移ってから得られたものである。研究の中心となった大学院生の井口雄介君に感謝する。

参考文献

- [1] 有馬孝尚「マルチフェロイクス—物質中の電磁気学の新展開—」 共立出版
- [2] 永長直人 「物質中の宇宙論—固体中電子の見る時空」(その1)~(その5) 固体物理
2006年12月号、2007年1月号、2007年8月号、2007年12月号、2008年2月号
- [3] P. Curie, J. Phys. **3**, 393 (1894).
- [4] I. Dzyaloshinskii, Zh. Exp. Teor. Fiz. **37**, 881 (1960).
- [5] D. Astrov, Sov. Phys. JETP **11**, 708 (1960).
- [6] G. T. Rado, Phys. Rev. Lett. **13**, 335 (1964).
- [7] T. Arima *et al.*, Phys. Rev. B **70**, 064426 (2004).
- [8] T. Kimura *et al.*, Nature **426**, 55 (2003).
- [9] I. Dzyaloshinsky, J. Phys. Chem Solids, **4**, 241 (1958).
- [10] T. Moriya, Phys. Rev. **120**, 91 (1960).
- [11] H. Katsura, N. Nagaosa, and A.V. Balatsky, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
- [12] I.A. Sergienko and E. Dagotto, Phys. Rev. B **73**, 094434 (2006).
- [13] Y. Tokunaga *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101**, 097205 (2008).
- [14] T. Arima, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 073702 (2007).
- [15] H. Murakawa, Y. Onose, S. Miyahara, N. Furukawa, and Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. **105**, 137202 (2010).
- [16] H. Murakawa, Y. Onose, S. Miyahara, N. Furukawa, and Y. Tokura Phys. Rev. B **85**, 174106 (2012).
- [17] M.V. Berry, Proc. Roy. Soc. London. Ser. A **392**, 45 (1984).
- [18] Y. Aharonov and D. Bohm, Phys. Rev. **115**, 485 (1959).
- [19] N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A.H. MacDonald, and N.P. Ong, Rev. Mod. Phys. **82**, 1539 (2010).
- [20] S. Mühlbauer *et al.*, Science **323**, 915 (2009).
- [21] X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J.H. Park, J.H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, and Y. Tokura, Nature **465**, 902 (2010).

- [22] A. Neubauer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102**, 186602 (2009).
- [23] Minhyea Lee, W. Kang, Y. Onose, Y. Tokura, and N. P. Ong, Phys. Rev. Lett. **102**, 186601 (2009).
- [24] Y. Onose, T. Ideue, H. Katsura, Y. Shiomi, N. Nagaosa, and Y. Tokura, Science **329**, 297 (2010).
- [25] T. Ideue, Y. Onose, H. Katsura, Y. Shiomi, S. Ishiwata, N. Nagaosa, and Y. Tokura, Phys. Rev. B **85**, 134411 (2012).
- [26] Y. Iguchi, S. Uemura, K. Ueno, and Y. Onose, Phys. Rev. B **92**, 184419 (2015).