

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 7 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2008～2011

課題番号：20340083

研究課題名（和文） 希土類化合物における量子スピン系の基底状態と相転移の研究

研究課題名（英文） Research on Ground State and Phase Transition of Quantum Spin System in Rare Earth Compound

研究代表者

落合 明 (OCHIAI AKIRA)

東北大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：90183772

研究成果の概要（和文）：

スピンと軌道が結合した全角運動量で記述される 4f 電子から構成される量子スピン系は、ほぼスピンのみで記述される d 電子量子スピン系に比して、いまだ多くの未知な部分を抱えている。本研究では、4f 電子スピン系の外場応答を調べ、例えば非フェルミ液体に見られるような  $-T \ln T$  に比例する比熱等のきわめて新奇な状態を見出した。そこには、4f 電子量子スピンの特徴が出現している可能性がある。

研究成果の概要（英文）：

The 4f-electron quantum spin system, which is an admixture of orbital and spin states being different from a pure spin state of the d-electron quantum spin system, is not fully understood yet. In this project, novel quantum states, such as  $-T \ln T$  behavior in the specific heat of  $\text{YbAl}_3\text{C}_3$ , were found by exploring the field-response of the 4f-electron quantum spin system. These anomalous behaviors may be relevant to the characteristic nature of the 4f-electron quantum spin system

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	5,400,000	1,620,000	7,020,000
2009 年度	3,800,000	1,140,000	4,940,000
2010 年度	2,800,000	840,000	3,640,000
2011 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
年度			
総計	14,100,000	4,230,000	18,330,000

研究分野：個体物性

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：磁性、量子スピン系、希土類化合物、幾何学的フラストレーション、強相関電子系

## 1. 研究開始当初の背景

次元性や幾何学的フラストレーションにより量子揺らぎが大きい量子スピン系の基

底状態とその量子相転移については、これまで d 電子系化合物を中心に様々な研究が進められ、新しい量子現象が多数観測され

ていた。同種の研究は、例えば結晶場で分裂した $S = 1/2$ と見做せる二重項基底状態を考えれば、4f 電子系化合物にも適用できるはずである。そこでは、伝導電子との混成という強相関4f 電子系の特徴を反映した「近藤効果が働いた量子スピン系」として金属量子スピン液体状態とでも呼ぶべき新奇な基底状態が発現する可能性もある。しかしながら、これまで4f 電子系磁性体を量子スピン系として研究するという観点にも欠けていた。

## 2. 研究の目的

4f 電子が量子揺らぎの大きな量子スピン系として振舞える環境に置かれたとき、どのような基底状態をとり、どのような相転移を起こすか明らかにする。これまでに見出された4f 電子量子スピン系については、その数は少ないが、基底状態はd 電子系の場合と同様に説明できる。しかし、外場により誘起される相転移についても同様であるかの確証は得られていない。本研究では、新規物質の探索により多くの4f 電子量子スピン系を開拓し、極低温条件下での外場の印加等により4f 電子量子スピン系がどのように変貌していくかを調べる。

## 3. 研究の方法

- (1) 4f 電子系化合物を探索し、磁性、伝導及び比熱等の基礎物性測定から新しい4f 電子量子スピン系を開拓する。
- (2) 得られた4f 電子系に、磁場や圧力を印加し、どのような相転移が生じるかを明らかにする。また、d 電子量子スピン系との差異を明らかにする。

## 4. 研究成果

### (1) 量子スピンダイマー系 $\text{YbAl}_3\text{C}_3$ の研究

この系で、磁場により誘起される新奇な磁性相を見出した。これはd 電子系の磁場誘起秩序相に似てはいるが、磁場-温度相図上で開いた相として存在し、低温まで続く無秩序な状態であると考えられる。 $-\ln T$  に比例する比熱等は強相関f 電子系の非フェルミ液体的振舞いに似ているが、有限の磁場範囲に広がって出現しているのが特徴的であり、f 電子量子スピン系の特徴が現れた新奇な相である可能性がある。

なお、この結果は(3)の結果の一部と併せ、次の「5. 主な発表論文等」の〔雑誌論文〕の①に示した「Quantum spin state in rare earth compound  $\text{YbAl}_3\text{C}_3$ 」の題名で Phys. Rev. B に掲載され、Editors' Suggestions に選ばれた。

### (2) 新規4f 電子量子スピン系物質の探索

#### ① $\text{RZn}_3\text{P}_3$ (R = 希土類)

この系列物質は、 $\text{YbAl}_3\text{C}_3$ と同じ結晶構造を有するが、構造相転移を起こさないため、三角格子によるフラストレーションを内在させた系である。この中の $\text{CeZn}_3\text{P}_3$ では、量子効果が顕著な $S = 1/2$ スピン系が実現しており、その磁性と複雑な磁気相図を明らかにした。

#### ② $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ と $\text{Yb}_2\text{Pt}_2\text{Pb}$

これらの物質では、Ybがシャストリー・サザーランド格子を作っている点に構造的な特徴がある。

$\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ は、二つの量子臨界点を持つ重い電子系物質と報告されている。元素置換による化学的圧力の印加実験を行い、近藤効果とRKKY相互作用の競合だけでなく、この系では幾何学的フラストレーションの関与も重要であることを明らかにした。さらに、一方の量子臨界点には、ダイマー形成が関与している可能性を指摘した。

$\text{Yb}_2\text{Pt}_2\text{Pb}$ では、磁場印加方向によって秩序状態が変化する磁場-温度相図を作成し、そこに磁場誘起による部分無秩序相を見出した。さらにその部分無秩序の出現機構は、磁氣的基底状態のKramers2重項の波動関数が軌道成分を含むため磁場印加に対して異方的であることと、この物質の構造上の特徴(シャストリー・サザーランド格子)が大きく関与していることを明らかにした。

### (3) 磁気秩序相が関与しない磁場と強弾性の交差相関の発見

$\text{RAl}_3\text{C}_3$  (R = 希土類) で、磁場印加による構造ドメインの制御が可能であることを磁化測定と磁場中X線実験により見出した。これはマルチフェロイック物質に見られる磁場と強弾性の交差相関と捉えることが出来るが、大きく異なるのは、常磁性状態でも可能である点であり、磁気秩序相が介在しないことにある。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 19 件)

#### ① Quantum spin state in rare earth compound $\text{YbAl}_3\text{C}_3$

K. Hara, M. Matsuda, E. Matsuoka, K. Tanigaki, A. Ochiai, S. Nakamura, T. Nojima and K. Katoh  
Phys. Rev. B, 84(2012)144415. (査読有)

#### ② Field-induced partially disordered state in $\text{Yb}_2\text{Pt}_2\text{Pb}$

A. Ochiai, S. Matsuda, Y. Ikeda, Y. Shimizu,

S. Toyoshima, H. Aoki and K. Katoh  
J. Phys. Soc. Jpn, 80(2011)123705. (査読有)

③Pressure-Induced Antiferroquadrupole Order in CeTe  
Y. Kawarasaki, T. Matsumura, M. Sera, and A. Ochiai  
J. Phys. Soc. Jpn, 80(2011)023713. (査読有)

④Multiple Magnetic Transitions in a Frustrated Heavy-Fermion Antiferromagnet YbAgGe under Magnetic Field and Pressure  
H. Kubo, K. Umeo, K. Katoh, A. Ochiai and T. Takabatake  
J. Phys. Soc. Jpn 79 (2010)064715. (査読有)

⑤Quantum spin system in *f*-electron compounds -YbAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> and its related compounds-  
A. Ochiai, K. Hara, F. Kikuchi, T. Inukai, E. Matsuoka, H. Onodera, S. Nakamura, T. Nojima and K. Katoh  
J. Phys.: Conference Series, 200(2010)022040. (査読有)

⑥Frustrated antiferromagnet YbAgGe under magnetic fields and pressures  
H. Kubo, K. Umeo, K. Katoh, A. Ochiai and T. Takabatake  
J. Phys.: Conference Series 200(2010)012098. (査読有)

⑦ Yb<sub>2</sub>(Pd<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Sn: interplay of geometrical frustration and Kondo effect in quantum spin system  
F. Kikuchi, K. Hara, E. Matsuoka, H. Onodera, S. Nakamura, T. Nojima, K. Katoh and A. Ochiai  
J. Phys. Soc. Jpn, 78 (2009)083708. (査読有)

⑧Field-dependent specific heat of Yb<sub>4</sub>As<sub>3</sub>: Agreement between a spin-1/2 model and experiment  
R. Matysiak, G. Kamieniarz, P. Gegenwart, and A. Ochiai  
Phys. Rev. B, 79(2009)224413. (査読有)

⑨Structural phase transition in the spin gap system YbAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub>  
T. Matsumura, T. Inami, M. Kosaka, Y. Kato, T. Inukai, A. Ochiai, H. Nakao, Y. Murakami, S. Katano, and H. S. Suzuki  
J. Phys. Soc. Jpn 77 (2008)103601. (査

読有)

⑩Pressure-induced release of magnetic frustration in a quasi-Kagome antiferromagnet YbAgGe  
H. Kubo, K. Umeo, K. Katoh, A. Ochiai, and T. Takabatake  
J. Phys. Soc. Jpn, 77 (2008)023704. (査読有)

[学会発表] (計 35 件)

①大前陽一、*f* 電子系量子スピン XY 型三角格子反強磁性体 CeZn<sub>3</sub>P<sub>3</sub> の NMR、日本物理学会 2012 年年次大会、2012 年 3 月 24 日、関西学院大学

②杉山友理、キャパシタンス式ファラデー法の高感度化及び YbAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> 微結晶の磁化測定(2)、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 23 日、富山大学

③落合明、Yb 系シャストリー・サザーランド格子化合物の秩序状態、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 22 日、富山大学

④大前陽一、*f* 電子系量子スピン XY 型三角格子反強磁性 CeZn<sub>3</sub>P<sub>3</sub> の秩序過程、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 22 日、富山大学

⑤松田沙織、ScAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> 型希土類化合物における磁場による格子変形の制御 II、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 22 日、富山大学

⑥田代大志、スピンギャップ系三角格子反強磁性体 YbAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> の <sup>27</sup>Al-NMR、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 21 日、富山大学

⑦田代大志、*f* 電子系量子スピン三角格子反強磁性体 YbAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> の <sup>27</sup>Al-NMR、日本物理学会 2010 年秋季大会、2010 年 9 月 25 日、大阪府立大学

⑧大前陽一、量子スピン XY 型三角格子反強磁性体 CeZn<sub>3</sub>P<sub>3</sub> の核磁気共鳴、日本物理学会 2010 年秋季大会、2010 年 9 月 25 日、大阪府立大学

⑨橘高俊一郎、スピンギャップ系 YbAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> の極低温磁化、日本物理学会 2010 年秋季大会、2010 年 9 月 25 日、大阪府立大学

⑩松田沙織、ScAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> 型希土類化合物における磁場と格子変形の交差相関、日本物理学会

2010 年秋季大会、2010 年 9 月 23 日、大阪府立大学

⑪小山田明、ダイマー物質  $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  の単結晶を用いた核磁気共鳴実験、日本物理学会 2010 年年次大会、2010 年 3 月 22 日、岡山大学

⑫落合明、 $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  の基底状態の磁場による変貌、日本物理学会第 65 回年次大会、2010 年 3 月 21 日、岡山大学

⑬原克哉、 $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  とその関連物質の磁性、日本物理学会 2009 年秋季大会、2009 年 9 月 28 日、熊本大学

⑭A. Ochiai, Quantum spin system in f-electron compounds - $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  and its related compounds-, ICM2009, 2009年7月28日, Karlsruhe (Germany)

⑮菊池文武、化学的圧力による  $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$  の磁性の変貌、日本物理学会第 2009 年年次大会、2009 年 3 月 28 日、立教大学池袋キャンパス

⑯原克哉、 $\text{ScAl}_3\text{C}_3$  型 Ce 化合物の磁性 II、日本物理学会第 2009 年年次大会、2009 年 3 月 28 日、立教大学池袋キャンパス

⑰山田篤、 $\text{CeZn}_3\text{P}_3$  の電気抵抗の圧力効果、日本物理学会第 2009 年年次大会、2009 年 3 月 27 日、立教大学池袋キャンパス

⑱小山田明、 $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  のスピンギャップ状態、日本物理学会 2008 年秋季大会、2008 年 9 月 23 日、岩手大学上田キャンパス

⑲菊池文武、 $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$  単結晶の純良化と置換による圧力効果、日本物理学会 2008 年秋季大会、2008 年 9 月 21 日、岩手大学上田キャンパス

⑳松村武、 $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  の低温相結晶構造とスピンギャップ形成、日本物理学会 2008 年秋季大会、2008 年 9 月 20 日、岩手大学上田キャンパス

[その他]

ホームページ等

<http://www.vlt.phys.tohoku.ac.jp/>

研究者番号：90183772

(2)研究分担者

青木 晴善 (AOKI HARUYOSHI)  
東北大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号：60362230

(3)連携研究者

( )

研究者番号：

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

落合 明 (OCHIAI AKIRA)  
東北大学・大学院理学研究科・教授