

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25日現在

機関番号：13201

研究種目：若手研究（A）

研究期間：2009～2011

課題番号：21684020

研究課題名（和文）角度分解熱膨張測定による強相関電子系の研究

研究課題名（英文）Study of strongly correlated electron systems by means of angle-resolved thermal expansion measurements

研究代表者

田山 孝 (TAYAMA TAKASHI)

富山大学・大学院理工学研究部・准教授

研究者番号：20334344

研究成果の概要（和文）：

異方的超伝導、多極子秩序やいわゆる「隠れた秩序」などの新奇な秩序状態を探る新たな研究手段として、230mKから40Kまでの温度範囲における磁場角度分解熱膨張測定装置を開発した。開発した膨張計では、膨張計の取り外しをせずに試料交換を簡単に行うことができ、どのような形状の試料も測定可能である。膨張計の相対感度は1mmに対して $\Delta l/l=10^{-10}$ より良く、高感度である。この装置を用いて行った2つの強相関電子系HoSbとCeRu₂Al₁₀の実験結果について報告する。

研究成果の概要（英文）：

To investigate novel ordering such as unconventional superconductor, multipole ordering, and hidden order, we developed an angle-resolved magnetostriction measurement system in the temperature range from 230mK to 40K. The dilatometer developed here allows a easy mounting of the sample without removing the dilatometer, and the sample shape is unimportant for the measurements. The relative sensitivity is better than $\Delta l/l=10^{-10}$ for $l=1\text{mm}$. Applications to this system on the strongly correlated electron systems HoSb and CeRu₂Al₁₀ are presented.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
平成21年度	16,800,000	5,040,000	21,840,000
平成22年度	2,200,000	660,000	2,860,000
平成23年度	2,200,000	660,000	2,860,000
年度			
年度			
総計	21,200,000	6,360,000	27,560,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性Ⅱ

キーワード：強相関電子系、熱膨張、磁歪、超伝導、多極子秩序

1. 研究開始当初の背景

近年、強相関電子系の異方的超伝導ギャップのノード構造を探る実験手段として熱伝導や比熱の磁場角度依存性の測定が大きな成果をあげている。しかし熱伝導で得られた結論と比熱で得られたものが一致しないケースがある。このような場合、別の物理量の磁場依存性の情報があると問題解決に役立つことが期待される。また磁場角度分解物性測定は超伝導の研究だけでなく、希土類元素やアクチノイド元素を含んだ化合物で観測される多極子秩序や、いわゆる「隠れた秩序状態」などの新奇な秩序状態を探る有効な実験手段としても期待される。

2. 研究の目的

新たな磁場角度分解の物性測定装置としての熱膨張（磁歪）の磁場角度分解測定装置の開発と、その強相関電子系へ応用である。

3. 研究の方法

(1) 高感度膨張計の開発

熱膨張の測定法としては様々な方法があるが、本研究では測定感度が良いキャパシタンス法を用いた。通常、この方法では試料長の変化を平行板コンデンサーの電気容量の変化として測定し、測定する方向の試料の両端面を精度よく平行に加工する必要がある。そのため、加工が困難な小さな試料や柔らかい試料の測定は容易ではない。また一つの単結晶試料で様々な方向を測ることも難しく、試料依存性の大きい物質の測定にも適していない。

そこで本研究では、これらのキャパシタンス法の問題を克服するため、平行板コンデンサーの可動電極は試料に直接固定するのではなく、8本の燐青銅線で吊るようにした。そして試料はこの可動電極に接触させるだけで、試料の伸び縮みによって可動電極は固定電極と平行性を保ったまま動くようにした。このような構造によって、任意の形状をもつ試料の測定や、一つの単結晶試料で様々な方向の測定が可能となった。またこの膨張計では、冷凍機から膨張計を取り外さなくても試料交換をすばやく行うことができ、作業を効率的に行えるようになった。膨張計の相対感度については、試料長 1mm に対して $\Delta l/l=10^{-10}$ より良い高感度を実現することができた。

(2) 角度分解熱膨張測定装置の開発

角度分解熱膨張測定システムは、主にキャパシタンス式膨張計、スプリットペア型超伝導マグネット（米国 Cryomagnetics 社製）、ソープ式ヘリウム3冷凍機（英国 Oxford 社製, Heliox）、冷凍機用ローテーターから構成した。ヘリウム3冷凍機をローテーターによって精密に冷凍機の軸周りで回転させることにより、試料に印加する磁場方向を水平面内で連続的に変化させることが可能である。図1に測定の概念図を示す。試料の長さ(L)を測る方向は垂直方向(z方向)で、磁場の向きはそれに垂直な平面内(x-y平面)で回転する。測定機器はすべて計測用ソフトウェアによってコンピューター制御され、測定はほぼ全自動で行えるようにした。測定条件としての温度範囲は 230mK から 40K まで、最大磁場は 8 テスラ、角度範囲は 360° 以上、角度分解能は 0.01° で、精密な熱膨張（磁歪）の磁場方向依存性の測定が可能になった。

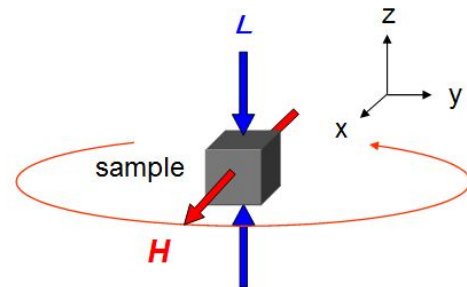


図1. 角度分解熱膨張測定概念図

(3) f 電子系化合物への応用

本研究では上記の装置を用いて、f電子系化合物HoSbとCeRu₂Al₁₀の角度分解熱膨張測定を行った。以下にそれぞれの物質について簡単に説明する。

金属間化合物 HoSb は立方晶 NaCl 型の結晶構造を持ち、5.4K で反強磁性転移を示す。この秩序状態に外部磁場を印加すると新しい秩序状態が現れる。この物質の研究は 30 年程前に最も盛んに行われたが、この磁場誘起秩序の起源について未だに詳しいことは明らかにされていない。そこで本研究では HoSb の純良単結晶試料の育成および磁気相図について詳しく調べた。

斜方晶 CeRu₂Al₁₀ は $T_0=27\text{K}$ で伝搬ベクトル $k=[100]$ 、磁気モーメントがc軸方向を向いた

反強磁性秩序 (A相) を示す。Ce原子間距離が大きいにもかかわらず転移温度がかなり高いことから、反強磁性転移の起源についてはまだ十分に理解されていない。また反強磁性状態では、c軸方向においてのみ磁場 $H^*=3T$ で1次のメタ磁性転移 (A-B転移) が観測される。このメタ磁性転移の起源についても明らかになっていない。本研究ではA-B転移の磁場角度依存性およびLa希釈効果について調べた。なお、測定に使用した単結晶試料は広島大学の世良正文教授らの研究グループに提供していただいた。

4. 研究成果

(1) 立方晶 HoSb の磁場誘起秩序の研究

我々はまずフラックス法による HoSb の単結晶試料の育成を行い、残留抵抗比が100近い高純度な単結晶試料の作成に成功した。この試料を用いて立方晶の主要な3方向の磁気相図を調べた。結果を図2に示す。[110]と[111]方向では磁場誘起秩序 (Q相) への転移温度が磁場とともに顕著な増大傾向を示すことがわかった。このような磁気相図は反強四極子秩序を示す化合物でよく見られることから、磁場誘起相は反強四極子秩序状態の可能性が考えられる。一方、[100]方向では磁場誘起相は1つではなく3相に分かれていることが明らかになった。また他の方位と比べると[100]方向のQ相はかなり狭いことから、Q相は反強四極子秩序で説明できるのかわかるとは明らかではなく、今後はより高次の多極子秩序の可能性も含め検討する必要がある。

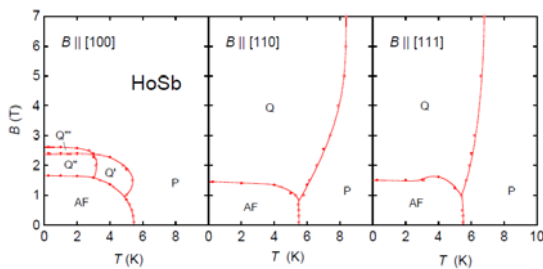


図2. HoSbの磁気相図。AFは反強磁性相、Qは磁場誘起秩序相、Pは常磁性相を表す。

(2) CeRu₂Al₁₀におけるメタ磁性転移の研究

CeRu₂Al₁₀は斜方晶の3つの主要軸の中でc軸方向においてのみ磁場 $H^*=3T$ で1次のメタ

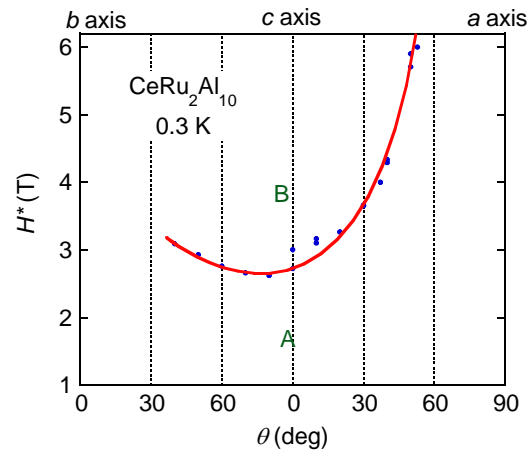


図3. CeRu₂Al₁₀の0.3Kでの H - θ 相図。A、Bは反強磁性相内での低磁場相、高磁場相を示す。

磁性転移 (A-B転移) が観測される。この0.3KでのA-B転移磁場 H^* の磁場方向依存性を詳しく調べた。結果を図3に示す。磁場の向きをc軸からa軸方向に変化させると、 H^* の値は急激に増大し、発散傾向を示すことが分かった。一方c軸からb軸方向に磁場の向きを変化させると、 H^* はわずかに増加しただけでありあまり変化せず、b軸とc軸のあいだの角度でA-B転移は消失し、臨界点をもつらしいことがわかった。この H^* の磁場角度依存性は、高磁場相 (B相) での反強磁性モーメントが磁化容易軸のa軸方向ではなく、磁化困難軸であるb軸方向に向いていると仮定すると自然に理解することができる。しかしなぜA相、B相ともに反強磁性モーメントが磁化容易軸であるa軸方向へ向かないのかはわかっておらず、今後の課題である。

次にCeをLaで置換したCe_{1-x}La_xRu₂Al₁₀の系において、La濃度 $x=0.03$ の結果は全体的に $x=0$ の結果とよく似ており、明瞭なA-B転移が確認できたが、La濃度がさらに2%だけ多い $x=0.05$ ではA-B転移はほぼ消失していることがわかった。この結果はA-B転移がLa不純物に非常に敏感であり、フェルミ面が関与した相転移であることを強く示唆している。この結果からも、この物質の反強磁性転移が単純な反強磁性転移によるものではないと考えられる。

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 13 件)

Y. Aoki, T. Namiki, S. R. Saha, T. Tayama, T. Sakakibara, R. Shiina, H. Shiba, H. Sugawara, and H. Sato, “f-Electron-Nuclear Hyperfine-Coupled Multiplets in the Unconventional Charge Order Phase of Filled Skutterudite $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$ ”, J Phys. Soc. Jpn. 80, 2011, 054704-1-7, 査読有.

K. Ohgushi, j. Yamaura, M. Ichihara, Y. Kiuchi, T. Tayama, T. Sakakibara, H. Gotou, T. Yagi and Y. Ueda, “Structural and electronic properties of pyrochlore-type $\text{A}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ (A = Ca, Cd, and Pb)”, Phys. Rev. B 83, 2011, 125103-1-6, 査読有.

T. Tayama, Y. Takayama, Y. Miura, S. Zhang, and Y. Isikawa, “Low-Temperature Magnetization of Antiferromagnet NdCu_4Ag ”, J. Phys. Soc. Jpn., 80, Suppl. A, 2011, SA064-1-3, 査読有.

S. Zhang, Y. Isikawa, T. Tayama, T. Kuwai, T. Mizushima, M. Akatsu, Y. Nemoto, T. Goto, “Magnetic and Thermal Properties in Cubic Single Crystal PrCu_4Ag ”, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 2010, 114707-1-8, 査読有.

H. Mitamura, T. Tayama, T. Sakakibara, S. Tsuduku, G. Ano, I. Ishii, M. Akatsu, Y. Nemoto, T. Goto, A. Kikkawa, and H. Kitazawa, “Low Temperature Magnetic Properties of $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Si}_6$ ”, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 2010, 074712-1-6, 査読有.

S. Zhang, T. Tayama, T. Mizushima, T. Kuwai, and Y. Isikawa, “Magnetic Phase Diagram in NdCu_4Ag Single Crystal”, J. Phys. Soc. Jpn. 79, 2010, 043704-1-4, 査読有.

Y. Machida, S. Nakatsuji, S. Onoda, T. Tayama, and T. Sakakibara, “Time-reversal symmetry breaking and spontaneous Hall effect without magnetic dipole order”, Nature 463, 2010, 210-213, 査読有.

Y. Isikawa, K. Somiya, H. Koyanagi, T. Mizushima, T. Kuwai, T. Tayama, “Thermoelectric Power of PrMg_3 ”, J. Phys.: Conf. Ser. 200, 2010, 012069, 査読有.

H. Mitamura, T. Sakuraba, T. Tayama, T. Sakakibara, S. Tsuduku, G. Ano, I. Ishii, M. Akatsu, Y. Nemoto, T. Goto and H. Kitazawa, “Magnetic properties of $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Si}_6$ at very low temperatures”, J. Phys.: Conf. Series. 200, 2010, 012118-1-4, 査読有.

[学会発表] (計 33 件)

高山弥生、“立方晶 HoSb の磁場誘起秩序”、日本物理学会第 67 回年次大会、2012 年 3 月 26 日、関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス

小森正大、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ の La 希釈系における磁場角度分解熱膨張測定、日本物理学会第 67 回年次大会、2012 年 3 月 27 日、関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス

小森正大、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ の磁場角度分解熱膨張、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 21 日、富山大学五福キャンパス

三浦唯、 PrCu_4Ag の極低温磁化と熱膨張、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 9 月 23 日、富山大学五福キャンパス

高山弥生、反強磁性体 SmIn_3 の低温磁化および熱膨張、日本物理学会第 66 回年次大会、2011 年 3 月 25 日、新潟大学五十嵐キャンパス

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田山 孝 (TAYAMA TAKASHI)

富山大学・大学院理工学研究部・准教授
研究者番号：20334344

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし