

## 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25年 6月10日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22740218

研究課題名（和文） フライホイール電源を用いたパルス強磁場下における比熱測定の開発

研究課題名（英文） Development of specific heat measurements in pulsed magnetic field using Flywheel generator

研究代表者

近藤 晃弘（KONDO AKIHIRO）

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：00572819

研究成果の概要（和文）：本研究ではフライホイール発電機を用いてパルス強磁場下での比熱測定を開発することを第1の目的としたが、東日本大震災の影響により発電機の使用に制限が生じたため、計画を大幅に変更して近藤半導体  $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  ( $\text{T}=\text{Ru,Os}$ ) のパルス強磁場下での磁化・磁気抵抗測定を主に行った。その結果、この系では伝導電子と局在  $f$  電子の異方的な異方的な混成が重要な役割を果たしていることを見出すなど、 $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  系で出現する奇妙な相転移に関して多くの知見を得ることに成功した。

研究成果の概要（英文）：We primarily intended to develop the specific heat measurements in pulsed magnetic field using Flywheel generator. However, since the use of the Flywheel generator became limited because of the power restriction due to the Great East Japan Earthquake, we necessitated a change in the plan and performed the magnetization and magnetoresistance measurements of Kondo semiconductor  $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  ( $\text{T}=\text{Ru,Os}$ ) in pulsed high magnetic field. We found that an anisotropic large hybridization between the conduction band and the nearly localized  $4f$  shell plays an important role in this system.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
2012年度	600,000	180,000	780,000
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：強相関系、パルス強磁場、近藤半導体

## 1. 研究開始当初の背景

パルスマグネットを用いた物性研究は半世紀以上にも及ぶ歴史があり、現在も活発に研究が行われている。その中でも、マグネットを破壊せずに磁場を発生する非破壊型のパルスマグネットでは、現在では 60 T 程度の磁場が再現性よく容易に得られるようになっている。測定手段においても磁化、磁気輸送特性、磁歪、光学測定、さらには X 線回

折や中性子散乱など多岐にわたっている。

しかし、コンデンサー電源を用いた非破壊パルスマグネットのパルス幅は数～数十ミリ秒程度であるため、緩和現象に関わる比熱測定や NMR 測定など、定常磁場下での実験ではポピュラーな測定が困難であるという問題が生じていた。そのような中、東大物性研にフライホイール発電機が 2008 年に設置された。このフライホイール発電機を用いると

約 60 T の強磁場を秒オーダーの時間にわたって発生させることができるため、準定常磁場下での測定が可能となり、パルス強磁場下での比熱測定などの実現が期待されていた。

## 2. 研究の目的

日本ではフライホイール電源は 2008 年に設置されたばかりであるため、本研究の申請時点ではフライホイールを用いた測定は行われておらず、測定系の整備が不可欠であった。そこで本研究では、フライホイールの利点、特に準定常磁場の発生という点に注目し、パルス強磁場下での比熱測定系の構築を第 1 の目的とした。

さらに比熱測定系の開発後は、近年注目されている近藤半導体  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  について比熱測定を行い、 $T_0 = 27 \text{ K}$  で出現する奇妙な相転移の起源解明を目指した。

## 3. 研究の方法

### (1) パルス強磁場下での比熱測定系の開発

フライホイール電源により発生したフラットパルスを考慮すると、比熱測定は擬断熱法による手法が最も適していると考えた。しかしパルス磁場下では一回の測定時間が短く、定常磁場下での測定とは大きく異なる部分も多い。特に重要となるのは試料の温度計である。そこで、まずはパルス磁場下での比熱測定に適した温度計の選定を行っていき、理想的な測定環境を見出していくことにした。

### (2) $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ のパルス強磁場下物性測定

後述する様に、2011 年に発生した東日本大震災の影響により、本研究期間内でフライホイール発電機の使用が困難な状態が続いた。そこで、本研究の第 2 の目的である  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  の奇妙な相転移の起源解明のため、コンデンサー電源を用いたパルス磁場下での磁化、および磁気抵抗測定を行った。

## 4. 研究成果

本研究では比熱測定系の開発を第 1 の目的としていたが、研究 1 年目に起こった東日本大震災のため、フライホイール発電機の使用に大幅な制限が生じた。これはフライホイール発電機の消費電力が非常に大きいことに起因する。さらに、当初は研究期間内での完成が予定されていたフライホイール発電機専用のパルスマグネットについても、完成が大きく遅れてしまう結果となった。したがって、期間内に比熱測定系の開発が極めて困難な状況となってしまい、研究計画の大幅な変更を余儀なくされた。そこで、フライホイール発電機の使用に目処がつくまでの間、パルス磁場下での比熱測定を予定していた近藤半導体  $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  ( $T = \text{Ru, Os}$ ) の磁化・磁気抵抗測定をパルス磁場下で行った。その結果、

下記に示す様に多くの知見を得ることに成功した。

### (1) $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$ の強磁場磁化過程

$\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  は  $T_0 = 30 \text{ K}$  で相転移を示すことが Strydom により報告された[1]。研究初期の段階では、相転移の起源として磁気秩序や電荷密度波、構造相転移、Ce イオン同士による一重項形成が提案されていた。そこで、この相転移が磁気的なものであるかどうかを明らかにするため、パルス強磁場下での磁化測定を行った[研究業績⑤、④]。図 1(a)に  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  の  $T = 1.3 \text{ K}$  における  $H // a$  と  $H // c$  での磁化曲線を示した。磁化容易軸方向である  $H // a$  では、磁化は磁場増大に伴い増大していき、 $H_c^{I-II} = 40 \text{ T}$  以上で傾きが大きくなった。さらに磁場を加えると、 $H_c^p = 50 \text{ T}$  で常磁性状態への転移による折れ曲がりが見られた。この結果から  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  で見られる相転移は磁気的な起源によるものであることが明らかとなった。その後、Khalyavin により弾性中性子散乱の測定が行われ、反強磁性 (AFM) 秩序であることが明らかとなった[2]。ところが、同時に磁気モーメント ( $M_{\text{AF}}$ ) の向きが  $a$  軸ではなく  $c$  軸に平行であることがわかり、なぜ  $M_{\text{AF}}$  が容易軸方向を向かないのかという新たな問題が発生した。 $H // c$  での磁化曲線は、 $H = 4 \text{ T}$  でメタ磁性的な異常を示した後は磁場に対してほぼ線形的なふるまいを示す。本研究で得られた  $H // a$  と  $H // c$  の強磁場磁化過程は AFM 相での磁気異方性が小さい様にふるまうが、一方で常磁性領域では磁化率は大きな磁気異方性を示す。この様に  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  の AFM 秩序は単純なものではないことが強く示唆された。

また、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  と同様な相転移が  $T_0 = 29 \text{ K}$  で出現する  $\text{CeOs}_2\text{Al}_{10}$  についてもパルス強磁場下での磁化測定を  $H // a$  に対して行った (図 1(b)) [研究業績②]。  $T = 1.3 \text{ K}$  では、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  と類似した下に凸の磁化曲線が得られた。ただし  $H_c^{I-II} = 47 \text{ T}$ 、 $H_c^p = 52 \text{ T}$  であり、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  と比べると転移磁場は若干高くなっている。また  $H_c^p$  での磁化の大きさは  $0.9 \mu_{\text{B}}/\text{Ce}$  であり、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  の  $1.3 \mu_{\text{B}}/\text{Ce}$  より小さくなっている。これは  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  の方が Ce イオンの局在性がより強いことを反映している。さらに興味深いことに、 $\text{CeOs}_2\text{Al}_{10}$  では  $T_0$  より高い温度においても下に凸の磁化曲線が観測された。これは  $\text{CeOs}_2\text{Al}_{10}$  の  $T_{\text{max}} = 40 \text{ K}$  でのブロードなピークと対応していると考えられる。本研究で得られた磁化曲線と磁化率の結果から、 $\text{CeOs}_2\text{Al}_{10}$  では  $T_{\text{max}}$  以下でスピンギャップを伴う近藤一重項が形成され、 $T_0$  以下で近藤一重項と共存する AFM 秩序が実現するのではないかと考えた。また、 $H // a$  と  $H // c$  の  $T_0$  以下での磁化率の減少率を比較すると  $a$  軸の方が大きいことから、伝導電子と

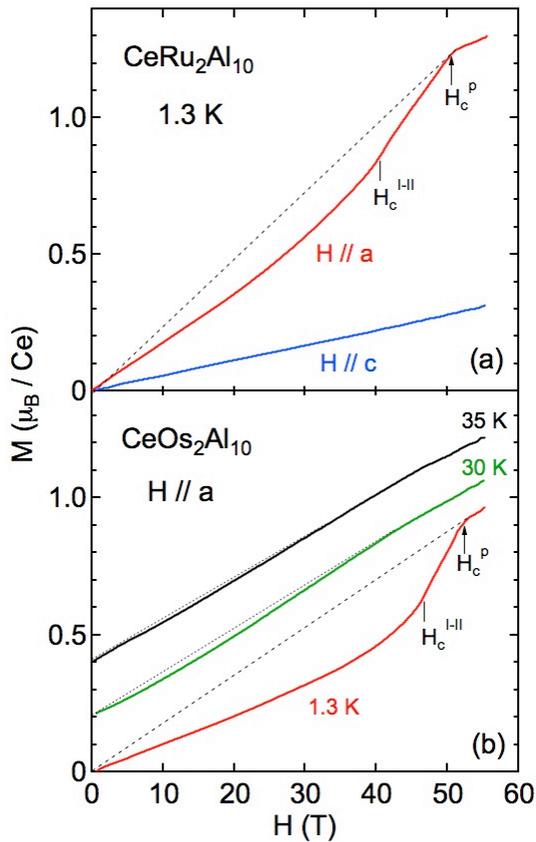


図 1

局在  $f$  電子との混成 ( $c$ - $f$  混成) が  $a$  軸方向に最も大きいために磁気モーメントが  $c$  軸方向に向いている可能性を指摘した。

### (2) $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ における量子振動の観測

$\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  は電気抵抗の温度依存性が熱活性化型の挙動を示すことから近藤半導体であると考えられている。しかし、 $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  は近藤半導体であるにも関わらず AFM 秩序を示す極めて希な物質であり、伝導電子の散乱機構や基底状態の電気的性質などは未知の部分が多かった。そこで  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  のパルス強磁場下での磁気抵抗測定を行った。図 2 は  $H // c$  における縦磁気抵抗である[研究業績④]。全ての温度領域で負の磁気抵抗を示すが、4.2 K 以下においては磁場に対して振動的なふるまいを観測した。解析の結果、この振動は Shubnikov-de Haas (SdH) 振動であることが明らかとなった。本研究により  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  の基底状態ではフェルミ面が存在する、つまり金属であることを初めて証明された。この結果は AFM 秩序の起源を明らかにする上で重要な役割を果たすと考えられる。観測されたフェルミ面の  $c$  軸に垂直な面の極値断面積は  $\sim 1.0 \times 10^6 \text{ 0e}$  となり、サイクロトロン有効質量は大雑把に  $2m_0$  と見積もられた。

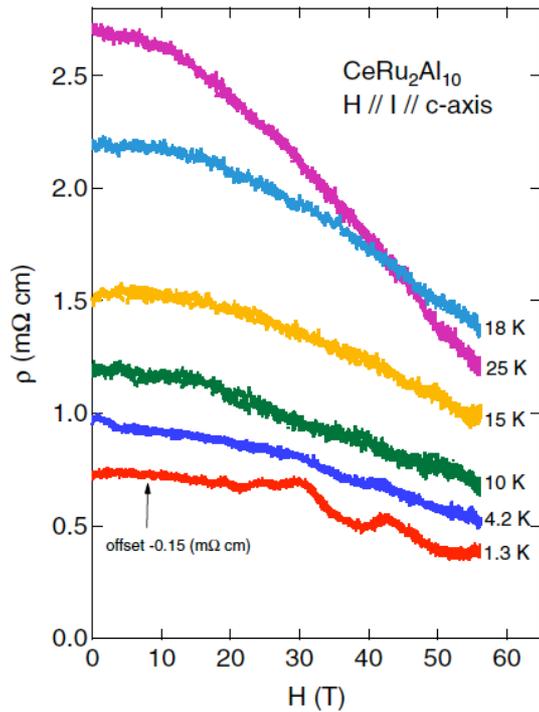


図 2

### (3) $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ の Rh 置換効果

ごく最近、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  の Ru を Rh で置換した  $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{Al}_{10}$  ( $x = 0.1, 0.2, 0.3$ ) の磁気的性質が小林らによって調べられ、 $M_{\text{AF}} // a$  の AFM 秩序を示唆する結果が得られた。基底状態の磁気的性質が Rh 置換により大きく変化した起源を把握するため、 $x = 0.05$  における磁化率および強磁場磁化過程の測定を行った。図 3 に  $x = 0$  と  $x = 0.05$  における磁化率の温度依存性を示す[研究業績①]。 $H // a$  では Rh 置換により 150 K から  $T_0 = 23 \text{ K}$  の範囲で磁化が大きくなり、Curie-Weiss 的なふるまいがより顕著となった。 $T_0$  以下になると磁化は急速に減少していき、平行磁化率の様な挙動を示す。一方  $H // b$  と  $H // c$  では、低温での磁性不純物による Curie-Weiss 的な増大を除けば、 $T_0$  以下では温度にほぼ依存しないふるまいが観測された。これらの結果は、 $x = 0.05$  においても  $M_{\text{AF}} // a$  の AFM 秩序が実現している可能性が極めて高いことを示唆している。また、図 4 に  $x = 0.05$  の  $H // a$  における磁化曲線を示した。 $T = 1.3 \text{ K}$  では、 $H_c^{\text{A-B}} = 13 \text{ T}$  までは下に凸の磁化曲線が観測され、さらに磁場を印加すると磁化はほぼ線形的に増大し、 $H_c = 42 \text{ T}$  で常磁性領域に転移する。これは  $H_c^{\text{A-B}}$  でスピントロップ転移が起こったことを示唆している。50 T での磁化の大きさは  $1.4 \mu_{\text{B}}/\text{Ce}$  であり、 $x = 0$  の  $1.3 \mu_{\text{B}}/\text{Ce}$  より大きくなっている。この結果は Rh 置換により Ce イオンの局在性が強まった、つま

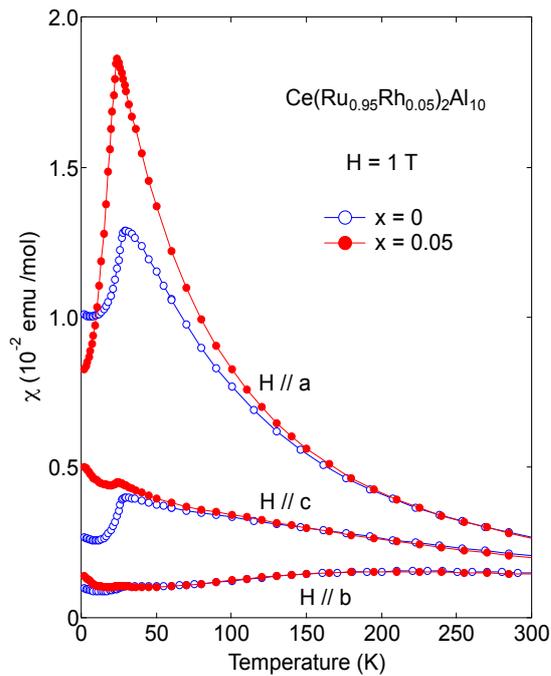


図 3

り  $c$ - $f$  混成が弱まったことを意味している。

$x = 0.05$  の磁化率および磁化曲線は  $M_{AF} // a$  の AFM 秩序が基底状態であること強く示唆している。これは常磁性領域での磁化率の異方性と矛盾しない。この結果を受け、 $x = 0.05$  の磁気的性質が分子場理論の範囲内で説明可能かどうかを詳しく調べた。分子場計算では 2 部分格子を仮定し、結晶場はごく最近 Strigari らによって決められた結晶場パラメータを採用した[3]。さらに異方的な交換相互作用を取り入れた。計算の結果、転移温度以下の磁化率の温度依存性や磁化曲線で現れるスピントロップ転移など、実験結果の大部分を再現することに成功した。以上の結果から、Rh 置換により新たに増えた  $4d$  電子が伝導バンドに寄与し、 $c$ - $f$  混成が抑制されたために磁気モーメントの向きが磁化容易軸方向に変化したと結論した。

最後にフライホイール発電機と比熱測定機の現状について述べる。震災後に行われていた電力制限は現在では大幅に緩和されたため、発電機は震災前と同様の頻度で運転できる状態まで回復した。これに合わせてフライホイール発電機用のパルスマグネットの開発も進んでおり、近い将来 45 T までの磁場が発生可能なマグネットが完成予定である。比熱測定系の開発も温度計の選定はすでに済んでおり、市販の  $RuO_2$  抵抗素子を採用することにした。現在、急ピッチで熱量計の作製をしており、準備ができ次第、フライホイール発電機を用いた測定テストを行う予定である。

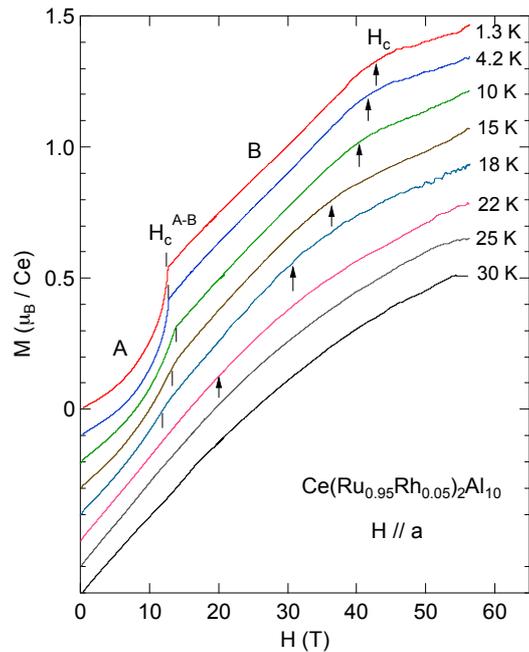


図 4

参考文献：

- [1] A. M. Strydom: Physica B 404 (2009) 2981.
- [2] D. D. Khalyavin et. al.: Phys. Rev. B 82 (2010) 100405.
- [3] F. Strigari et. al: Phys. Rev. B 86 (2012) 081105.

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 5 件)

- ① Akihiro Kondo, Koichi Kindo 他 7 名、Marked Change in the Ground State of  $CeRu_2Al_{10}$  Induced by Small Amount of Rh Substitution, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有、Vol. 82, 2013、054709-01-05  
DOI : 10.7566/JPSJ.82.054709
- ② Akihiro Kondo, Junfeng Wang, Koichi Kindo 他 7 名、High-field magnetization and magnetic phase transition in  $CeOs_2Al_{10}$ , Physical Review B, 査読有、Vol. 83, 2011, 180415(R)-1-4  
DOI : 10.1103/PhysRevB.83.180415
- ③ Akihiro Kondo, Junfeng Wang, Koichi Kindo 他 7 名、High-Field Magnetization and Magnetoresistance of  $CeRu_2Al_{10}$ , Journal of the Physical Society of Japan, 査読有、Vol. 80, 2011, SA047-01-03  
DOI : 10.1143/JPSJS.80SA.SA047

- ④ Akihiro Kondo、Junfeng Wang、Koichi Kindo 他 7 名、Magnetization and Magnetoresistance of  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$  under High Magnetic Fields along c-Axis、Journal of the Physical Society of Japan、査読有、Vol. 80、2011、013701-1-4  
DOI : 10.1143/JPSJ. 80. 013701
- ⑤ Akihiro Kondo、Junfeng Wang、Koichi Kindo 他 6 名、High-Field Magnetization of  $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ 、Journal of the Physical Society of Japan、査読有、Vol. 79、2010、073709-1-4  
DOI : 10.1143/JPSJ. 79. 073709

〔学会発表〕(計 6 件)

- ① 近藤晃弘、 $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  (T=Ru, Os, Fe) のパルス強磁場下での磁気抵抗・ホール効果 II、日本物理学会 第 68 回年次大会、2013 年 03 月 29 日、広島大学
- ② 近藤晃弘、 $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  (T=Ru, Os, Fe) のパルス強磁場下での磁気抵抗・ホール効果、日本物理学会 2012 年秋季大会、2012 年 09 月 21 日、横浜国立大学
- ③ Akihiro Kondo、Physical property of  $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  (T = Ru, Os, Fe) in high magnetic fields、The 10th International Conference on Research in High magnetic fields、2012 年 07 月 05 日、Ramada Plaza Optics Valley Hotel (中国 武漢市)
- ④ 近藤晃弘、 $\text{CeFe}_2\text{Al}_{10}$  の強磁場磁化過程、日本物理学会 第 67 回年次大会、2012 年 03 月 27 日、関西学院大学
- ⑤ 近藤晃弘、 $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  (T=Ru, Os) の強磁場物性 III、日本物理学会 2011 年秋季大会、2011 年 09 月 21 日、富山大学
- ⑥ 近藤晃弘、 $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  (T=Ru, Os) の強磁場物性、日本物理学会 2010 年秋季大会、2010 年 09 月 26 日、大阪府立大学

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

近藤 晃弘 (KONDO AKIHIRO)  
東京大学・物性研究所・助教  
研究者番号 : 00572819