

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25400361

研究課題名(和文) 極低温熱電係数測定から探る遍歴メタ磁性

研究課題名(英文) Low temperature thermoelectric study on metamagnetism

研究代表者

町田 洋 (Machida, Yo)

東京工業大学・理工学研究科・助教

研究者番号：40514740

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：f電子系を舞台にした磁化が狭い磁場範囲で急激に増大する遍歴メタ磁性現象を対象に、遍歴準粒子の低エネルギー励起に敏感なゼーベック係数、ネルンスト係数に代表される熱電係数を用いて、遍歴メタ磁性の機構の解明を目指して研究を行った。その結果、重い電子系遍歴メタ磁性化合物のYbCo₂Zn₂₀において巨大な熱電係数を見出し、この現象の背後に強くバンド依存した電子相関効果の存在を明らかにした。また巨大な熱電係数がメタ磁性磁場に向かって急速に抑制されることから、この特異な電子相関とメタ磁性との密接な関わりについても明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Metamagnetism in itinerant f-electron systems has been studied by means of low-temperature thermoelectric coefficients. In the heavy-fermion metamagnet YbCo₂Zn₂₀, the Seebeck coefficient is found to be gigantic, which is among the largest known for metals. An application of magnetic field gives rise to a dramatic reduction of the large Seebeck coefficient towards the metamagnetic field. In addition to a low Kondo energy scale, the presence of an extremely low energy scale possibly originated from antiferromagnetic correlation and its peculiar band dependence are likely sources of the enhanced thermoelectric responses. Moreover, a field collapse of such an intriguing correlation is intimately related to the metamagnetism.

研究分野：低温物理

キーワード：遍歴メタ磁性 重い電子系 熱電係数

1. 研究開始当初の背景

磁化がある磁場で急激に増大するメタ磁性現象は、重い電子系の CeRu_2Si_2 、 UPt_3 、 URu_2Si_2 や CeCu_6 のみならず、遍歴 d 電子系の $\text{Su}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ や MnSi など強相関電子系物質に広く見られる普遍的な現象である。これらの系では、非従来型の超伝導や量子臨界現象およびそれに起因した通常の金属とは異なる非フェルミ液体的振る舞いなどが観測されており、これらのエキゾチックな物理現象と遍歴メタ磁性との密接な関係が存在する。そのため、これらの興味深い物理現象の理解には、遍歴メタ磁性の理解が必須である。しかしながら、これまでの精力的な実験的・理論的研究にもかかわらず、遍歴メタ磁性の機構について全ての実験結果を統一的に説明可能な解釈は未だ得られておらず、物性物理学分野における解決されるべき重要な課題として残されている。

これまで提案されてきた遍歴メタ磁性の機構として、重い電子系を例にとると、1) f 電子の局在 非局在転移、2) 磁気揺らぎの変化、3) フェルミ面のトポロジーの変化(リフシツク転移)などが挙げられる。これらの提案を踏まえて遍歴メタ磁性現象の理解の鍵となるのは、メタ磁性を境にした遍歴電子の低エネルギー励起構造とフェルミ面の変化を詳細にとらえることである。この目的に合う代表的なプローブである比熱は、磁場中では巨大な核比熱の寄与のため電子比熱係数の見積もりが容易ではない。一方、フェルミ面の情報を得る上で強力なドハース・ファン・アルフェン (dHvA) 効果の実験は、メタ磁性近傍では揺らぎの増大に伴い電子の有効質量が急激に増大するとともに、電子の散乱頻度も急増するために精度の高い測定は困難となる。また、メタ磁性磁場が低い系に対しては、測定が非常に困難である。このような実験的制約のために、遍歴メタ磁性の機構を解明し得るに足る十分な情報が得られていないのが現状であった。

2. 研究の目的

上記の状況を鑑み、本研究ではゼーベック係数などの熱電係数をプローブとして用いて、メタ磁性に伴う低エネルギーの電子状態の変化を敏感に捉え、遍歴メタ磁性の起源に迫ることを目的に研究を行った。

3. 研究の方法

ゼーベック係数の最大の特徴は、遍歴電子の寄与のみ測り、その低エネルギー励起に敏感であり、極低温下では状態密度の良いプローブである点にある。加えて、ゼーベック係数は定義上、遍歴電子の状態密度のエネルギー微分に比例するためフェルミ面のトポロジーの変化にも敏感である。このような特徴をもつゼーベック係数を用いて、上記のプローブでは実験的制約により得られないメタ磁性の発現の鍵となる電子状態の変化を捉

えることを試みた。

4. 研究成果

重い電子系 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ におけるメタ磁性とバンド依存した電子相関効果

近年、多バンドの存在が物性に重要な役割を果たすことが明らかになってきている。中でも重い電子系では電子相関の強さがバンド毎に異なり、有効質量にバンド間で大きな差異が生じることがしばしば起こるため、この多バンドの効果が顕著に現れることが知られている。その最も特徴的な例がマルチギャップ超伝導であり、この場合バンド毎に大きさの異なる超伝導ギャップをもつことになり、小さなギャップをもつ有効質量の軽いバンドの寄与によって準粒子の低エネルギー励起の異常な増大がもたらされる。本成果では、多バンド効果の観点からメタ磁性の研究を行い、極低温でのゼーベック係数をプローブとして、電子相関のバンド依存性とメタ磁性との関連を調べた。

実験対象とした物質は $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ である。この物質の特徴は、電子比熱係数が 8 J/molK^2 と巨大であり非常の重い電子状態が低温で形成される点にある。このことはこの系が、わずか 1 GPa の小さな圧力下で実現する磁気量子臨界点のごく近傍に位置すること由来し、系に特徴的なエネルギースケールが非常に抑えられているためと考えられている。実際にこの系の近藤温度は種々の実験から $1\text{-}3 \text{ K}$ 程度と、多くの重い電子系のそれと比較して 1 桁程度小さい。もう一つの特徴はメタ磁性が起こることであるが、そのメタ磁性磁場が 0.6 T と他の重い電子系メタ磁性物質のそれと比較して $1\text{-}2$ 桁程度小さい。この小さなメタ磁性磁場は他の重い電子系メタ磁性物質とは異なり、汎用的な超伝導マグネットで発生できる磁場範囲にあり、詳細なメタ磁性の研究を可能にしている。

得られたゼーベック係数は温度の降下に伴い顕著な増大を示し、最低温付近では $S/T \sim 200 \mu\text{V/K}^2$ と非常に大きな値をとることが分かった。磁場を印加するとこの大きなゼーベック係数は急激に抑制され、高磁場では広い温度に亘ってゼーベック係数が温度に比例するフェルミ液体的振る舞いが観測されるようになる。フェルミ液体の極低温ではゼーベック係数と比熱の間には物質によらずユニバーサルな関係があることが知られており、両者の比 q は 1 のオーダーをとることが期待される。 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ においてこの比 q を見積もると興味深いことに、メタ磁性磁場より高磁場でかつ、およそ 0.3 K より高温では q は 1 に近い値をとるのに対して、メタ磁性磁場より低磁場かつ 0.3 K より低温では q が 1 から顕著にずれる振る舞いが観測された。ここで q のずれはその絶対値が大きくなる方向に生じており、比熱に比べゼーベック係数の増大がより顕著であることを示している。また q の増大は 0.3 K から起こっているが、

この温度スケールは磁場に換算するとおよそメタ磁性磁場に対応しており、温度と磁場が互いに関係した特徴的なエネルギースケールの存在を示している。

比熱よりも顕著な増大をゼーベック係数にもたらす起源は、この系特有の電子相関の強いバンド依存性にある可能性がある。比熱は一般的に重いバンドの状態密度によって支配されるが、ゼーベック係数は軽いバンドの寄与が支配的になり得る。また軽いバンドのフェルミエネルギー近傍に状態密度の強いエネルギー依存性をもたらす非自明な構造が存在すれば、比熱の増大を伴わずゼーベック係数のみ顕著な増大を示すこととなる。このようなバンド毎の有効質量の違いや状態密度のエネルギー依存性の際立った違いは同時に測定したホール係数やネルンスト係数からもそれぞれ示される。軽いバンドの状態密度に非自明な構造をもたらす起源は、重い電子系のメタ磁性の背後にある反強磁性的相関の存在が可能性として挙げられる。軽いフェルミ面上の波数ベクトル Q で結びつけられた電子状態にはたらく 0.3 K という非常に小さなエネルギースケールをもった反強磁性的相関により、ブリルアンゾーンは折り畳まれシャドウバンドが形成されることで状態密度に非自明な構造がもたらされているのではないかと推察される。0.3 K のエネルギースケールの存在は磁化率やホール係数の温度依存性におけるブロードなピークとしても示されており、反強磁性相関の発達と関連している可能性がある。またこのような小さなエネルギースケールで特徴付けられる状態は、弱い磁場で簡単に壊すことが可能である。したがってこの系のメタ磁性は、反強磁性的な相関がそのエネルギースケールに対応した磁場で抑制されることによって引き起こされている可能性がある。これに付随して軽いバンドの状態密度の非自明な構造が消失することにより、メタ磁性磁場より高磁場では q が 1 のオーダーであることから示される重いバンドのみに実質的に支配された、いわば普通の重い電子状態へ移行すると考えられる。

このようにして本研究では低エネルギーの準粒子励起に敏感でありながらバンド毎の情報も与え得る熱電係数を用いて、その顕著な増大からバンド依存した電子相関効果とメタ磁性との密接なかわりを初めて明らかにした。

結晶場基底状態に四極子自由度を有する $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ におけるメタ磁性とゼーベック係数の増強

これまでの f 電子系における遍歴メタ磁性の研究は Ce や Yb 化合物を中心とした結晶場基底状態に磁気双極子の自由度をもつ系を対象に行われてきた。一方、結晶場基底状態に磁気双極子の自由度をもたず、四極子自由度をもつ系における遍歴電子との混成

効果や、その帰結とした重い電子状態、遍歴メタ磁性に関する研究はこれまでほとんど行われていない。ところが最近このような研究に適する物質の開発が進み、研究の進展が見込まれる状況となってきた。

本研究では、結晶場基底状態に四極子自由度を有する立方晶 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ を対象に、極低温電気抵抗率、ゼーベック係数測定を行った。その結果、磁場の印加に伴い四極子秩序が抑制される 5 T 付近の磁場において、メタ磁性が引き起こされると共にゼーベック係数がゼロ磁場の 100 倍にも及ぶ顕著な増大を示すことを見出した。図にはゼロ磁場と 5 T でのゼーベック係数の温度依存性を示す。図に示されるとおり、5 T でのゼーベック係数は極低温で際立ったピークを形成し、ピークでの値は重い電子系のそれと比肩する大きさに到達する。興味深いことに同じ磁場域において比熱や電気抵抗率の T^2 の係数 A も顕著な増大を示しており、メタ磁性と絡んで四極子自由度に関連した、電子の有効質量が強く増強された新奇な多体状態が実現している可能性を見出した。

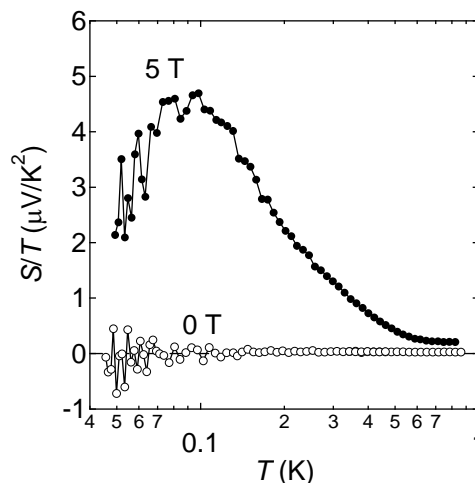


図 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ のゼロ磁場および 5 T でのゼーベック係数の温度依存性。

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 11 件)

Y. Machida, X. Lin, W. Kang, K. Izawa and K. Behnia,

Colossal Seebeck Coefficient of Hopping Electrons in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$,

Physical Review Letter **116**, 087003 1-5 (2016), 査読有,

DOI: 10.1103/PhysRevLett.116.087003

T. Yoshida, Y. Machida, K. Izawa, T. Onimaru, and H. S. Suzuki,

Non-Fermi Liquid Properties in a Cubic Pr-Based Compound PrPb_3 under Magnetic Fields,

Journal of Physics: Conference Series **683**,

012031 1-6 (2016), 査読有,
DOI:10.1088/1742-6596/683/1/012031
D. E. MacLaughlin, O. O. Bernal, L. Shu, J. Ishikawa, Y. Matsumoto, J.-J. Wen, M. Mourigal, C. Stock, G. Ehlers, C. L. Broholm, Y. Machida, K. Kimura, S. Nakatsuji, Y. Shimura, and T. Sakakibara, Unstable Spin-Ice Order in the Stuffed Metallic Pyrochlore $\text{Pr}_{2+x}\text{Ir}_{2-x}\text{O}_{7-\delta}$, *Physical Review B* **92**, 054432 1-12 (2015), 査読有,
DOI: 10.1103/PhysRevB.92.054432
M. Taupin, G. Knebel, T. D. Matsuda, G. Lapertot, Y. Machida, K. Izawa, J.-P. Brison, and J. Flouquet, Thermal Conductivity through the Quantum Critical Point in YbRh_2Si_2 at Very Low Temperature, *Physical Review Letter* **115**, 046402 1-5 (2015), 査読有,
DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.046402
M. L. Sutherland, E. C. T. O'Farrell, W. H. Toews, J. Dunn, K. Kuga, S. Nakatsuji, Y. Machida, K. Izawa, and R. W. Hill, Intact Quasiparticles at an Unconventional Quantum Critical Point, *Physical Review B* **92**, 041114(R) 1-5 (2015), 査読有,
DOI: 10.1103/PhysRevB.92.041114
T. Yoshida, Y. Machida, K. Izawa, Y. Shimada, N. Nagasawa, T. Onimaru, and T. Takabatake, Common Anomalies of Transport Properties in $\text{PrTr}_2\text{Zn}_{20}$ ($Tr = \text{Ir, Rh}$) with Non-Kramers Doublet Ground State, *Physics Procedia* **75**, 529-536 (2015), 査読有,
DOI: 10.1016/j.phpro.2015.12.067
Y. Kitamura, T. Matsubara, Y. Machida, Y. Onuki, B. Salce, J. Flouquet, and K. Izawa, Development of Field Angle Resolved Specific Heat Measurement System for Unconventional Superconductors, *Journal of Physics: Conference Series* **592**, 012148 1-6 (2015), 査読有,
DOI:10.1088/1742-6596/592/1/012148
Y. Machida, T. Yoshida, T. Ikeura, K. Izawa, A. Nakama, R. Higashinaka, Y. Aoki, H. Sato, A. Sakai, S. Nakatsuji, N. Nagasawa, K. Matsumoto, T. Onimaru, and T. Takabatake, Anomalous Enhancement of Seebeck Coefficient in Pr-Based 1-2-20 System with Non-Kramers Doublet Ground States, *Journal of Physics: Conference Series* **592**, 012025 1-9 (2015), 査読有,
DOI:10.1088/1742-6596/592/1/012025
Y. Onuki, R. Settai, Y. Haga, Y. Machida, K. Izawa, F. Honda, and D. Aoki, Fermi Surface, Magnetic, and

Superconducting Properties in Actinide Compounds, *C. R. Physique* **15**, 616-629 (2014), 査読有, <http://dx.doi.org/10.1016/j.crhy.2014.06.005>
K. Izawa, Y. Machida, A. Itoh, Y. So, K. Ota, Y. Haga, E. Yamamoto, N. Kimura, Y. Onuki, Y. Tsutsumi, and K. Machida, Pairing Symmetry of UPt_3 Probed by Thermal Transport Tensors, *Journal of the Physical Society of Japan* **83**, 061013 1-8 (2014), 査読有, <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.061013>
T. Ikeura, T. Matsubara, Y. Machida, K. Izawa, N. Nagasawa, K. Matsumoto, T. Onimaru, and T. Takabatake, Anomalous Enhancement of Seebeck Coefficient in $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$, *JPS Conference Proceedings* **3**, 011091 1-5 (2014), 査読有, <http://dx.doi.org/10.7566/JPSCP.3.011091>

[学会発表](計 11 件)

町田洋、井澤公一、芳賀芳範、山本悦嗣、大貫惇睦、
 UBe_{13} の非フェルミ液体的電気伝導現象における圧力効果、
日本物理学会第 71 回年次大会、2016 年 3 月 19 日、東北学院大学(宮城県)
町田洋、畑中裕厚、井澤公一、芳賀芳範、山本悦嗣、大貫惇睦、
重い電子系超伝導体 UBe_{13} の非フェルミ液体的電気伝導現象、
日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 9 月 16 日、関西大学(大阪府)
Y. Machida, X. Lin, K. Izawa, W. Kang, and K. Behnia, Colossal Thermopower Deep Inside the SDW State of $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$, 20th International Conference on Magnetism (ICM 2015), July 9, 2015, Barcelona (Spain)
町田洋、井澤公一、Woun Kang, Xiao Lin, Kamran Behnia, 有機導体 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ の極低温ゼーベック係数、
日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 21 日、早稲田大学(東京都)
町田洋、吉田太地、井澤公一、長澤直裕、松本圭介、鬼丸孝博、高島敏郎、
 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ における非フェルミ液体的挙動と温度・磁場相図、
日本物理学会 2014 年秋季大会、2014 年 9 月 9 日、中部大学(愛知県)
Y. Machida, T. Ikeura, A. Nakama, R. Higashinaka, Y. Aoki, H. Sato, A. Sakai, S. Nakatsuji, N. Nagasawa, K. Matsumoto, T. Onimaru, T. Takabatake, and K. Izawa, Anomalous Enhancement of Seebeck Coefficient in Pr-based 1-2-20 System with Non-Kramers Doublet Ground States,

The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2014), July 7, 2014, Grenoble (France)

町田洋、池浦徹、井澤公一、長澤直裕、松本圭介、鬼丸孝博、高畠敏郎、電気抵抗率測定から探る $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ の電子状態、

日本物理学会 2014 年年次大会、2014 年 3 月 27 日、東海大学 (神奈川県)

町田洋、伊藤淳史、井澤公一、芳賀芳範、山本悦嗣、木村憲彰、大貫惇睦、

UPt_3 の熱ホール効果、

新学術領域研究「対称性の破れた凝縮系におけるトポロジカル量子現象」第 4 回領域研究会、2013 年 12 月 21 日、名古屋大学 (愛知県)

町田洋、伊藤淳史、井澤公一、芳賀芳範、山本悦嗣、木村憲彰、大貫惇睦、

UPt_3 における多重相超伝導-ウラン系超伝導における多重相超伝導の研究に向けて、

東京大学物性研究所・短期研究会「強相関電子系における局所対称性の破れと量子物性」、2013 年 11 月 27 日、東京大学 (千葉県)

Y. Machida, K. Izawa, D. Aoki, G. Knebel, A. Pourret, and J. Flouquet,

Thermoelectric Study of the Metamagnetic Phenomena in $\text{Ce}(\text{Ru}_{0.92}\text{Rh}_{0.08})_2\text{Si}_2$,

The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2013), August 8, 2013, Tokyo (Japan)

町田洋、

異方的超伝導体の熱輸送現象、

関西若手物性研究会、2013 年 6 月 22 日、大阪大学 (大阪府)

[図書] (計 1 件)

井澤公一、町田洋、

重い電子系超伝導体 UPt_3 における自発的に回転対称性の破れた超伝導、

固体物理 **49**, 345 (2014)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

町田 洋 (Machida Yo)

東京工業大学・大学院理工学研究科・助教
研究者番号：40514740