

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：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2014～2015

課題番号：26887013

研究課題名(和文)熱電測定法による2次元f電子系超格子の研究

研究課題名(英文)Thermoelectric effects in two-dimensional heavy fermion systems

研究代表者

下澤 雅明 (SHIMOZAWA, MASAAKI)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：40736162

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,900,000円

研究成果の概要(和文)：f電子系人工超格子のゼーベック・ネルンスト係数を低温・高磁場で測定可能なシステムの開発に取り組んだ。具体的にはまず、テスト用として幅広い温度領域で物性測定を行うことができるプローブの作製を行った。既存のDewarに12 Tの超伝導マグネットを取り付けて、高磁場で物性測定を行うことができるようにシステムの改造にも取り組んだ。また、10 mm × 5 mmのMgF2基板上に成長させた薄膜試料でもゼーベック・ネルンスト係数を測定できるセルの開発を行った。今後はこれらを組み合わせてゼーベック・ネルンスト係数の測定システムのテストを行い、さらにf電子系人工超格子の研究にも移っていく予定である。

研究成果の概要(英文)：We tried to develop measurements of thermoelectric effects in two-dimensional heavy fermion systems at low temperatures and high fields. Specially, we first made a test-probe for measuring physical properties in a wide temperature range. Next, for the high-field measurements, we equipped an existing Dewar with a 12 T superconducting magnet. In addition, we made up low-temperature cell for the measurements of Seebeck and Nernst effects in two-dimensional heavy fermion compounds that were grown on MgF2 substrate with the size of 10 mm × 5 mm. From now on, we will continue to launch our project and then move to the study of two-dimensional heavy fermion systems as soon as possible.

研究分野：超伝導

キーワード：強相関電子系 低温物性 超格子 物性実験

1. 研究開始当初の背景

(1) f 電子を持つ希土類元素やアクチノイド元素を含む金属間化合物では、伝導電子と f 電子が近藤効果で混成することによって狭いバンドが形成され、有効質量が自由電子の 100 倍以上重くなった「重い電子状態」が実現している。この重い電子系は、磁性、量子相転移現象、非従来型超伝導などの凝縮系物理学における主要なテーマを含んでおり、これまでに膨大な研究が行われてきた。ここ最近になって、我々が開発した分子線エピタキシー法による人工超格子の作製技術によって、従来の化学合成手法では実現できなかった 2 次元 f 電子系化合物の作製が可能になり、重い電子の 2 次元閉じ込めという新しい研究分野が拓かれようとしている。

(2) 最初に作製に成功した $\text{CeIn}_3/\text{LaIn}_3$ 超格子では、低次元化によって系を量子臨界点へと制御し、これまでで最も重い電子をもつ金属状態が実現していることが明らかになっている。また申請者は、 $\text{CeCoIn}_5/\text{YbCoIn}_5$ 超格子で 2 次元に閉じ込めた重い電子が新奇超伝導状態を実現していることを明らかにすると共に、 YbCoIn_5 層の厚みに空間変調を加えることで、空間反転対称性の破れを人工的に導入・制御することにも成功しており、空間反転対称性の破れによる超伝導状態への影響を系統的に議論することを可能にした。

(3) しかしながら、これらの超格子はいずれも基板上に薄膜として形成されるため、その物性評価は電気抵抗率、ホール係数測定などの基本的な手法に限られていた。さらにこれらの超格子は、 f 電子を 2 次元に閉じ込めるのに通常金属が使われているため、電気抵抗などの輸送係数測定では f 電子層の情報を選択的に得ることができなかった。したがって、基板の影響を受ける比熱や磁化測定を $\text{CeIn}_3/\text{LaIn}_3$ 超格子などに適用して重いバンドに由来した電子比熱やフェルミ面を観測することはできず、 f 電子の低次元化で系が量子臨界点に近づいた時に、どのように有効質量や重いフェルミ面などが変化するかを評価することは困難であった。

2. 研究の目的

(1) 本研究は、薄膜試料にも適用可能なゼーベック・ネルンスト係数測定を極低温・高磁場まで行い、重いバンド由来の電子比熱やフェルミ面を観測することで、2 次元 f 電子系化合物の電子状態を解明することを目的とした。これらの熱電測定は、「熱と電荷の両方を運ぶ素励起」だけを検出するので、絶縁体基板の影響を排除することができる。またこれらの手法は、電荷あたりの比熱が大きい f 電子層からの寄与を主に観測するため、 f 電子層に挟まれた金属層からの影響も排除

できる。このような特徴を持つゼーベック・ネルンスト係数測定を f 電子系超格子に適用することで、量子臨界点前後での有効質量や重いフェルミ面、量子揺らぎの強さなどの変化が明らかになり、 f 電子系超格子の新奇電子状態を解明することができる。

3. 研究の方法

(1) 低温・高磁場でゼーベック・ネルンスト係数を測定できるシステムを開発

いきなり希釈冷凍機を用いてゼーベック・ネルンスト係数測定のテストを行うと、実験の効率(時間・金額の両面)が良くない。そこでまず初めに、テスト用のプローブとして幅広い温度領域で物性測定を行うことができるプローブの作製に取り組む。

次に、既存の Dewar に 12 T の超伝導マグネットを取り付けて、高磁場の環境下で物性測定を行うことができるようにシステムの改造を行う。

10 mm × 5 mm の MgF_2 基板上に成長させた薄膜試料でもゼーベック・ネルンスト係数が測定できるセルの開発を行う。12 T の高磁場まで精度良く温度が読めるように校正も行う。

作製したテストプローブ、熱電測定用のセル、12 T マグネットを用いて、低温・高磁場の環境下でもゼーベック・ネルンスト係数を測定することが可能なシステムの構築を行う。

さらに、これらの測定システムを希釈冷凍機に搭載することで、0.1 K 以下の極低温でもゼーベック・ネルンスト係数を測定することができるように拡張する。

(2) f 電子系薄膜・人工超格子のゼーベック・ネルンスト係数測定

開発したシステムが機能していることを判断するために、 MgF_2 基板上にエピタキシャル成長させた CeCoIn_5 薄膜のゼーベック・ネルンスト係数を測定し、 CeCoIn_5 のバルク試料で得られている実験結果と一致していることを確認する。

また、膜厚を変化させた CeCoIn_5 薄膜でゼーベック・ネルンスト係数を測定することで、重い電子系化合物の界面による影響も調べる。

さらに、低温領域で f 電子系超格子のゼーベック・ネルンスト係数測定を行い、 f 電子の次元性による電子状態の変化を明らかにする。

4. 研究成果

(1) 薄膜試料にも適用可能なゼーベック・ネルンスト係数を低温・高磁場で測定可能な

システムの開発に取り組んだ。具体的にはまず初めに、テスト用のプローブとして幅広い温度領域で物性測定を行うことができるプローブの作製に取り組んだ。このプローブは、液体ヘリウムベッセル容器に直接入れて冷やすことが可能なので、ゼロ磁場の環境下でなら簡単にテストを行うことができる特徴を持つ。実際に自作したプローブ(図1)を用いてテストを行ったところ、1.5 K ~ 180 K の温度領域で長時間安定して測定することが可能であることが分かった。



図1：自作したテスト用のプローブ

(2)次に、既存の Dewar に 12 T の超伝導マグネットを取り付けて、高磁場の環境下で物性測定を行うことができるようにシステムの改造に取り組んだ。超伝導マグネットの磁場特性はホール素子で評価し、問題なく 12 T の高磁場まで印加することができることを確認した。

(3) 10 mm × 5 mm の MgF_2 基板上に成長させた薄膜試料でもゼーベック・ネルンスト係数が測定できるセルの開発を行った。今回用いた抵抗温度計 (RuO_2 , Cernox) は磁場中で抵抗値が変わってしまうので、磁場中の補正が必要不可欠である。そこで 12 T の高磁場まで精度良く温度が読めるように校正を行った。

(4) 開発を行ったゼーベック・ネルンスト係数の測定セルの動作を確認するために、金線の熱伝導率測定を極低温 (0.1 K 以下) まで測定し、Wiedemann-Franz 則が成り立つことを確かめた。12 T の高磁場中においても、Wiedemann-Franz 則が満たされていることは確認済みである。

(5) さらにそれを用いて、カゴメ格子フラストレート系ボルボサイトや、スピン液体候補物質である $\kappa-Hg(Cat-EDT-TTF)_2$, $Ba_3CuSb_2O_9$ の熱伝導率を高磁場中で測定することにも成功した。(4)(5)の結果から、開発した測定セルは、ゼーベック・ネルンスト係数を測定するのにも十分な性能をもつことが分かった。

(6) 本研究では、実際の試料でゼーベック・ネルンスト係数を測定する所まで到達することができなかった。しかし、上記に示したように測定システムはほぼ完成したので、これを用いて今後も研究を続けていく予定である。

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4件)

Masaaki Shimozawa, Swee K. Goh, Takasada Shibauchi, and Yuji Matsuda: "From Kondo Lattices to Kondo Superlattices", Reports on Progress in Physics **79**, 074503, IOP Publishing, 査読有, <http://dx.doi.org/10.1088/0034-4885/79/7/074503>

Uwe S. Pracht, Julian Simmendinger, Martin Dressel, Ryota Endo, Tatsuya Watashige, Yousuke Hanaoka, Masaaki Shimozawa, Takahito Terashima, Takasada Shibauchi, Yuji Matsuda, and Marc Scheffler: "Charge carrier dynamics of the heavy-fermion metal $CeCoIn_5$ probed by THz spectroscopy", Journal of Magnetism and Magnetic Materials **400**, 31-35 (2016), Elsevier, 査読有, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jmmm.2015.08.117>

Takayoshi Yamanaka, Masaaki Shimozawa, Ryota Endo, Yuta Mizukami, Hiroaki Shishido, Takahito Terashima, Takasada Shibauchi, Yuji Matsuda, and Kenji Ishida: "Interface between heavy fermions and normal electrons investigated by spatially

resolved nuclear magnetic resonance”, Physical Review B **92**, 241105(R) (2015), American Physical Society, 査読有り, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.92.241105>

M. Shimozawa, S. K. Goh, R. Endo, R. Kobayashi, T. Watashige, Y. Mizukami, H. Ikeda, H. Shishido, Y. Yanase, T. Terashima, T. Shibauchi, and Y. Matsuda: “Controllable Rashba Spin-Orbit Interaction in Artificially Engineered Superlattices Involving the Heavy-Fermion Superconductor CeCoIn₅”, Physical Review Letters **112**, 156404 (2014), American Physical Society, 査読有り, <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.156404>

〔学会発表〕(計 22 件)

花岡洋祐, 遠藤僚太, 戸田琳太郎, 下澤雅明, 笠原成, 常盤欣文, 芝内孝禎, 寺嶋孝仁, 松田祐司: 「重い電子系 CeRhIn₅/YbRhIn₅ 人工超格子を用いた量子臨界性制御」, 日本物理学会 2014 秋季大会, 2014 年 9 月 7 日, 中部大学(愛知県、春日井市)

山中隆義, 石田憲二, 下澤雅明, 遠藤僚太, 水上雄太, 宍戸寛明, 芝内孝禎, 寺嶋孝仁, 松田祐司: 「重い電子系超伝導の超格子 CeCoIn₅/YbCoIn₅ に対する NMR/NQR 測定」, 日本物理学会 2014 秋季大会, 2014 年 9 月 8 日, 中部大学(愛知県、春日井市)

M. Shimozawa, S. K. Goh, R. Endo, R. Kobayashi, T. Watashige, Y. Mizukami, H. Ikeda, H. Shishido, Y. Yanase, T. Terashima, T. Shibauchi, and Y. Matsuda: “Controllable Rashba splitting in heavy-fermion superconductor CeCoIn₅”, TQP2014 International Conference on Topological Quantum Phenomena, 2014/12/18, Kyoto University (Japan)

鈴木喜貴, 下澤雅明, 杉井かおり, 渡邊大樹, 上田顕, 森初果, 山下穰: 「量子スピン液体物質 κ -H₃(Cat-EDT-TTF)₂ における熱輸送特性」, 日本物理学会 第 70 回年次大会, 2015 年 3 月 24 日, 早稲田大学(東京都、新宿区)

杉井かおり, 下澤雅明, 渡邊大樹, 鈴木喜貴, 木俣基, Mario Halim, 松本洋介, 中辻知, 鳥塚潔, 上床美也, 山下穰:

「Ba₃CuSb₂O₉ の熱輸送特性」, 日本物理学会 2015 秋季大会, 2015 年 9 月 18 日, 関西大学(大阪府、吹田市)

M. Shimozawa, Y. Suzuki, K. Sugii, A. Ueda, S. Yamada, Y. Imai, K. Torizuka, Y. Uwatoko, H. Mori, M. Yamashita: “Anisotropic thermal conductivity of proton fluctuation-induced quantum spin liquid κ -H₃(Cat-EDT-TTF)₂”, APS March Meeting 2016, 2016/3/14, Baltimore, Maryland (USA)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等
研究室のホームページ
(<http://yamashita.issp.u-tokyo.ac.jp/>)

6. 研究組織

(1) 研究代表者
下澤 雅明 (SHIMOZAWA MASA AKI)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号: 40736162

(2) 研究分担者
()

研究者番号:

(3) 連携研究者
()

研究者番号: