

平成 21 年 6 月 4 日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19740208

研究課題名(和文) TmTe による反強四極子秩序相での磁場誘起反強磁性構造の解明

研究課題名(英文) Clarification of Field induced Antiferro-Magnetic Structure in Anti-Quadrupole Ordered phase.

研究代表者

氏名(アルファベット) 富田 崇弘 (TOMITA TAKAHIRO)

所属機関・所属部局名・職名 東京大学・物性研究所・特任研究員

研究者番号 20437502

研究成果の概要：

軌道(四極子モーメント)は直接磁場とは結合しないため、その軌道(電気四極子)の整列により制限された磁気モーメントが作る反強磁気構造を強磁場パルス ESR で観測することを試みた。このとき、反強四極子秩序を示す唯一の絶縁体である TmTe で間接的に四極子秩序の測定をおこなった。この結果、常磁性状態には、大きな軌道角運動量に起因すると思われる十分幅広い信号が観測され、四極子秩序と思われる転移のような振る舞いも観測された。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,800,000	0	1,800,000
2008 年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	420,000	3,620,000

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：強相関係

## 1. 研究開始当初の背景

軌道縮退を持つ 4f 電子系は、低温で軌道とスピン自由度の結合を反映する軌道秩序を生じる。このとき、格子変形を伴わない軌道整列が起きている事が実験的に観測されている。これは、4f 軌道の広がりが狭く格子との結合も小さいためと考えられるが、軌道整列の本質についてはよく知られていない。この軌道(電気四極子)整列には、同種軌道間で起こる強四極子秩序(FQ)と異種軌道間

で整列する反強四極子秩序(AFQ)場合がある。特に後者は CeB<sub>6</sub>、TmTe、PrPb<sub>3</sub>、DyB<sub>2</sub>C<sub>2</sub>、PrFeP<sub>12</sub>などで見られ、その軌道秩序に特徴的(磁場誘起反強四極子秩序、軌道秩序と磁気秩序の分裂)な振る舞いを示すことから秩序化のメカニズムについて盛んに研究が行われてきた背景がある。近年、反強四極子秩序を示す物質の殆どが金属であることから、その起源が伝導電子を媒介とした RKKY 型の間接的交換相互作用であると思われる。し

かし、1998年、正方晶化合物のTmTeにおいて、初めて**絶縁体**にも関わらず**反強四極子秩序**が観測されたことから、**反強四極子秩序を示す唯一の絶縁体**として軌道秩序のユニバーサルなメカニズムを探るべくこのTmTeの研究が必要となった。この物質はCeB<sub>6</sub>などと同様に軌道自由度（軌道縮退）のほかにスピン自由度（クラマース縮退）を持つため、反強四極子秩序（ $T_0=1.8$  K）より低温で反強磁性秩序（ $T_N=0.4$  K）が存在する。更に、中性子散乱の実験から、四極子秩序相内で磁場と共に反強磁性が安定化する振る舞いが観測されたことから、**反強四極子秩序相での磁場誘起反強磁性構造**を示す事が始めて明らかとなった。これは、軌道とスピンの結合を特徴づける唯一の局所的な観測結果であり、反強四極子相での磁場中における電気四極子モーメントと磁気二極子モーメントの相関関係を知る上で重要な手掛かりである。更に、申請者は2000年にTmTeによる最初の磁化測定を行ない[T. Tomita et al, Physica B 281&282, 574-575, 2000]、絶縁体の反強四極子秩序の低温、高磁場側の振る舞いを詳細に調べ、反強四極子秩序相の磁場温度相図を完成させた。更に、圧力下の実験から四極子相互作用を意図的に変化させた結果、平均場理論の範囲で、この相図は、**単一の四極子間相互作用では説明できない事**を結論づけ、反強四極子秩序相での磁気二極子間の相互作用の重要性を提案した。

以上のことより、絶縁体の四極子相互作用と競合した二極子間相互作用に起因する反強磁性構造のメカニズムを理解することが、申請者の次の研究の目標である。

## 2. 研究の目的

本研究では、パルス強磁場 ESR 測定により絶縁体 TmTe の**(1)反強四極子秩序相における磁場誘起磁気構造**を明らかにし、同時に**(2)電気的**四極子の秩序化の発生寄与を**磁気的**二極子間相互作用とそこに隠れた**交換相互作用**により再評価することを目的とする。

## 3. 研究の方法

TmTeは磁性イオンTm<sup>2+</sup>がS=1/2の**不対電子**を持ち、しかも絶縁体であるが故ESR測定には金属（CeB<sub>6</sub>など）より適している。また、透過型のパルス磁場ESRの特性を十分生かしサンプル量を調節（増量）することで感度を上げられる**メリット**があり、**高感度の高周波、高圧力下の多彩な環境化でのESR測定も可能**である。これらESR測定は比較的専門性の高い測定技術であり追従が難しく、市販で販売されている**機材も少ない事**から、この物質の四極子相での磁場中磁気構造をESRで実験的に研究した報告例は国内外において**まだない**。また、この特異な振る舞いを示す反強四極子秩序相での四極子間相互作用の起源を唯一の絶縁体であるTmTeを利用して明らかにすることは、他の反四極子秩序の起源をも明らかにする上で重要な位置づけである。このため、ESRでの新しい研究手法を強力に推進する必要がある。本研究では、サブミリ波を測定手段としてTmTeの反強四極子相に現れる**磁場誘起反強磁性構造**の電子状態を直接観測する。そのESRによる線幅から、**四極子相内の磁気構造の原因であるスピン間に働く交換相互作用**を決定する。これによって、他の短距離相互作用の可能性（超交換相互作用など）を模索すると共に、ユニバーサルな反強四極子秩序の第一原理からの発現機構の解明を狙う。

図2には、CeB<sub>6</sub>の実験[S.V. Demishev et al, Phys.stat.Sol.24,R27-29,2005]から期待されるTmTeの反強四極子相でのESRシグナルであり、この共鳴をT<sub>N</sub>以上で観測する。このとき、実際の解析方法は**線幅=H<sub>D</sub>・H<sub>D</sub>/H<sub>E</sub>**（H<sub>D</sub>:交換相互作用とH<sub>E</sub>:磁気二極子間相互作用の**有効磁場**）により行う。つまり、四極子相の磁気二極子間相互作用H<sub>D</sub>が求めれば、交換相互作用を決定できる。

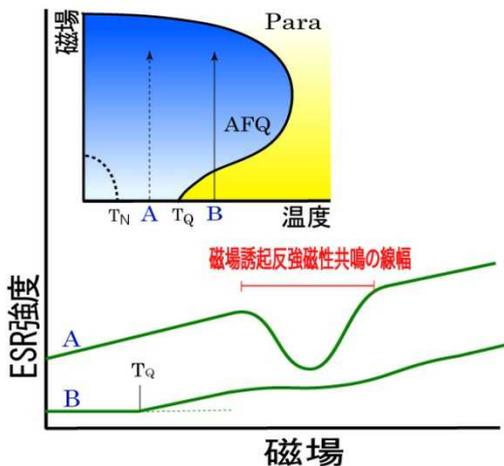


図 1 : CeB<sub>6</sub> から予想される TmTe の ESR  
[S.V.Demishev *et al*, Phys.stat.Sol.24, R 27  
- 29, 2005]

#### 4. 研究成果

サブミリ波を利用した ESR 測定は磁場変化で共鳴条件を探すため、パルス強磁場との相性が非常に良い事で知られている。このため、神戸大学・太田研究室のパルス磁場中 ESR 測定装置を使用し、ヘリウム冷凍機温度 1.5 K まで TmTe による測定を数回行った。本物質は絶縁体であるため、パルス磁場下でも低温での発熱の心配はない。この絶縁体試料にサブミリ波を入射し、その透過光を観測する ESR 実験方法（透過型 ESR）を用いて以下の事が分かった。常磁性相から四極子秩序転移付近にかけて連続して測定を行った結果（図 2）、常磁性状態におけるシグナルには、大きな軌道角運動量に起因する十分幅広い信号が観測された。更に、低温における四極子秩序相での ESR 信号を観測した結果、四極子秩序と思われる転移が見られたが、透過法では感度が足りないため、四極子秩序によるものかどうかを明確にすることができなかった。Tm<sup>2+</sup>イオンと同じ希土類強相関化合物系の Yb<sup>3+</sup>化合物（重い電子系 YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の他、YbAlB<sub>4</sub> など）では、キャビティーを用いた ESR 信号が観測されているため、本測定感度が必ずしも十分でなかったと思われる。本物質は低温

での磁化が増加するため、ESR のスピン強度も増大することが期待できる。このため、四極子反強磁性秩序、反強磁性秩序相内で、更に低温でのパルス磁場中 ESR 測定が必要であるとともに、キャビティーを利用した高感度測定の必要性もある事が分かった。

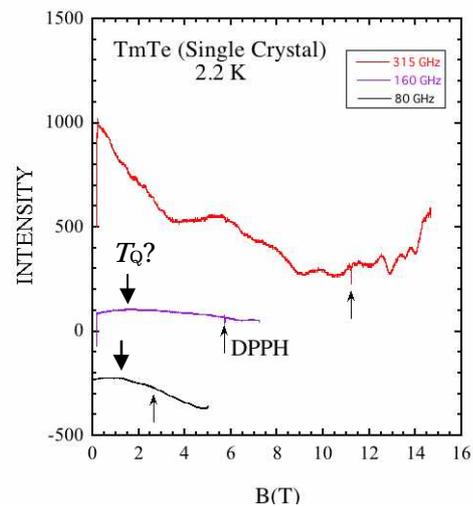


図 2 : TmTe の ESR 測定

#### 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)

以下、すべて査読あり。

W. Zhang, S. Okubo, M. Fujisawa, T. Tomita, H. Ohata, and H. Kiuchi, "High frequency ESR measurements of Co-delta chain" (25th International Conference on Low Temperature Physics (LT25)); Journal of Physics: Conference Series **150** (2009) 042243.

M. Tomoo, S. Okubo, T. Sakurai, T. Tomita, T. Fujisawa, H. Ohta, and H. Kiuchi, "Multi-frequency ESR study of S=1/2 frustration systems Zn<sub>x</sub>Cu<sub>4-x</sub>(OH)<sub>6</sub>Cl<sub>2</sub>" (Highly Frustrated Magnetism 2008); Journal of Physics: Conference Series **145** (2009) 012035.

富田崇弘, 「固体物理」 “超伝導粒界臨界電流の圧力の効果”, Vol. 43. No. 4, P51-60 (2008) アグネ技術センター

Takahiro TOMITA, James S. SCHILLING, Lihura CHEN, Boyd W. VEAL, and Helmut CLAUS, “Pressure-Induced Increase in  $J_c$  across Single Grain Boundaries in  $YBa_2Cu_3O_x$ ” Proceedings of Conference on Novel Pressure-induced Phenomena in Condensed Matter System (ICM satellite workshop in Fukuoka 2006); J. Phys. Soc. Jpn. **76**, (2007) Suppl. A, pp.118-119.

[学会発表](計 16件)

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “重い電子系  $YbAlB_4$ における圧力下の量子相転移と超伝導”, 日本物理学会第64回年次大会, (2009年3月27日-30日, 日本・立教学院池袋キャンパス(池袋)).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “重い電子系  $YbAlB_4$ の圧力下での相転移と非フェルミ液体的振る舞い”, 新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」, (2009年3月9日-10日, 日本・東京大学柏キャンパス(柏市)).

富田崇弘, 南部雄亮, 松本洋介, 中辻知, 前野悦輝, 松林和幸, 上床美也, 殿村宏史, “擬二次元三角格子反強磁性体  $FeGa_2S_4$ ,  $Fe_2Ga_2S_5$ の高压輸送現象”, 特定領域研究「フラストレーションが創る新しい物性」, (2009年1月7日-9日, 日本・東京大学物性研究所(柏市)).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “Superconductivity and Non-Fermi Liquid Behavior in  $YbAlB_4$  under Pressure”, 特定領域研究「異常量子物質の創製 - 新しい物理を生む新物質 - », (2009年1月5日-7日, 日本・東京大

学駒場キャンパス(目黒区)).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “重い電子系  $YbAlB_4$ における超伝導とスピン液体性? ”, 第3回トピカルミーティング「フラストレーションとスピン液体」, (2008年12月22日-23日, 日本・神戸大学百年記念館(灘区)).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “Transport Phenomena of Non-Fermi Liquid in  $YbAlB_4$  under Pressure”, スーパークリーン特定「研究成果報告会'08」, (2008年12月19日-21日, 日本・奈良県新公会堂(奈良市)).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “Pressure-Induced Phase Transitions of The Heavy-Fermion System  $YbAlB_4$ ”, International Symposium on Anomalous Quantum Materials 2008, (2008年11月7日-10日, 日本・東京大学本郷キャンパス(文京区)).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “重い電子系  $YbAlB_4$ における圧力下の非フェルミ液体性”, 日本物理学会2008年秋季大会, (2008年9月20日-23日, 日本・岩手大学(岩手)).

富田崇弘, “Pressure Dependence in Electrical Transport of Triangular Antiferromagnetic Insulators,  $FeGa_2S_4$ ,  $Fe_2Ga_2S_5$ ”, Highly Frustrated Magnetism 2008, (2008年9月7日-12日, Braunschweig (Germany)).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “重い電子系  $YbAlB_4$ における量子臨界性と超伝導” ,

スーパークリーン特定「若手夏の学校」,  
(2008年8月31日-9月2日, 日本・熱川ハイツ  
(熱川)).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “重い電子系  $\text{YbAlB}_4$ における圧力下の非フェルミ液体性”, 短期研究会「重い電子系研究の展開」,(2008年7月23日-25日, 日本・東京大学物性研究所 (柏市)).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “Yb系重い電子系新物質における圧力誘起相転移”, 特定領域研究「スーパークリーン物質で実現する新しい量子相の物理」研究会,(2008年5月9日-10日, 日本・東京本郷キャンパス).

富田崇弘, 久我健太郎, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, “重い電子系  $\text{YbAlB}_4$ における圧力誘起相転移”, 日本物理学会第63回年次大会,(2008年3月22日-26日, 日本・大阪、近畿大学本部キャンパス).

富田崇弘, 南部雄亮, 松本洋介, 中辻知, 前野悦輝, 松林和幸, 上床美也, 殿村宏史, “超高压下における擬二次元三角格子  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  と  $\text{Fe}_2\text{Ga}_2\text{S}_5$  の研究”, 第48回高压討論会,(2007年11月20日-22日, 日本・倉吉).

富田崇弘, 南部雄亮, 松本洋介, 中辻知, 松林和幸, 上床美也, 殿村宏史, “圧力下の擬二次元三角格子  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$  と  $\text{Fe}_2\text{Ga}_2\text{S}_5$  の伝導”, 物性研究所短期研究会,(2007年10月10日-12日, 日本・柏、東京大学物性研究所).

富田崇弘, 殿村宏史, 南部雄亮, 松本洋介, 中辻知, 前野悦輝, 松林和幸, 上床美也, “擬二次元三角格子を持つカルコゲナイド化合物  $\text{FeGa}_2\text{S}_4$ 、 $\text{Fe}_2\text{Ga}_2\text{S}_5$  の圧力依存性”, 日本物理学会・第62回年次大会,(2007年9月21日-24日, 日本・札幌).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

富田 崇弘 (TOMITA TAKAHIRO)  
東京大学・物性研究所・特任研究員  
研究者番号: 20437502

### (2) 研究分担者

なし

### (3) 連携研究者

なし