

機関番号：12601

研究種目：新学術領域研究（領域提案型）

研究期間：2008～2012

課題番号：20102007

研究課題名（和文） 多極子自由度に由来する秩序と揺らぎの研究

研究課題名（英文） Orderings and fluctuations originated from multipole degrees of freedom

研究代表者

榑原 俊郎 (SAKAKIBARA TOSHIRO)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：70162287

研究分野：強相関電子系

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：強相関系

1. 研究計画の概要

f 電子化合物では、非常に強いスピン・軌道相互作用の結果、複合自由度である多極子が形成される。例えば軌道自由度は電気四極子で表され、その秩序化は四極子転移と呼ばれる。最近、さらに高次の多極子である磁気八極子や電気十六極子の自発的秩序化が存在することが明らかになってきたが、これら多極子相はまだ実例が少なく、未解明な点が多い。本研究では新たな多極子相の探索を行い、その秩序変数を明らかにする。また多極子秩序という新たな秩序状態の存在は、それに伴う量子相転移現象や多極子による近藤効果という新しい問題を提示する。これらの可能性を実験的に明らかにする。

2. 研究の進捗状況

(1) 極低温マクロ測定：新しいカゴ状物質 $\text{PrT}_2\text{X}_{20}$ 系の低温磁性を調べ、その殆どが四極子自由度を有する Γ_3 型二重項基底状態を持つことがわかり、また低温で四極子秩序が観測された。充填スクッテルダイト化合物 $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$ の低温相三重項基底状態が Pr 核スピンと磁氣的結合状態を形成することがわかった。新物質 $\text{Pr}(\text{Cu}, \text{Ga})_{13}$ の低温磁性を調べ、 Γ_5 三重項基底状態を持つこと、また磁気秩序を示さず低温まで磁気モーメントの揺らぎが残っていることがわかった。

(2) 超音波音速測定： β 型パイロクロア酸化物 KOs_2O_6 ではラットリング転移 $T_p=7.5\text{K}$ へ向かって弾性定数が大きく軟化する現象を発見し、弾性モードの詳しい解析から T_p で立方晶から三方晶か斜方晶への結晶系の変化が示唆された。また $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ の弾性定数測定を行い、軌道揺らぎに起因する

巨大な弾性定数の軟化現象を発見した。この系の超伝導が軌道揺らぎによって媒介されている可能性を強く示唆している。56T までのパルス磁場中で弾性定数測定のできるシステムの構築を行い、ダイマー化合物 YbAl_3C_3 や八極子転移系 $\text{SmRu}_4\text{P}_{12}$ の強磁場磁気相図を得た。

(3) NMRによる多極子秩序の微視的観測：アメリカシウム化合物では世界初となる NMR 測定を AmO_2 において実施し、相転移の存在が示唆されていた 8.5K 付近で相転移の微視的な証拠を初めて得ることに成功した。多極子秩序が期待される。 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ において Al-NMR を実施し、核スピン緩和時間の測定から非磁性の結晶場基底を持つことが確認された。また低温で緩和率の増大と強い磁場依存性を観測した。この増大の起源は Pr の増強核スピン揺らぎ、もしくは多極子の揺らぎであると考えられる。

(4) 高圧実験：高い静水圧性を示すキュービックアンビルセルを用いて高圧下比熱測定を行うことに成功し、重い電子系物質 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ の温度・圧力相図を熱的測定によって明らかにした。その結果、約 30K 付近の未知の相転移は高圧下で 1 次相転移的に消失することを見いだした。

(5) 新物質開発：立方対称カゴ構造を内包する $\text{CeCr}_2\text{Al}_{20}$ 型結晶構造を持つ新しい化合物群について、公募研究とも連携して集中的に物質開発を行い $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$, $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$, $\text{PrCr}_2\text{Al}_{20}$, $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$, $\text{PrNb}_2\text{Al}_{20}$ など多数の化合物の合成に成功した。このうち、 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ では四極子秩序と共存する超伝導転移が発見された。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

(理由)

本研究課題は、f 電子の多極子に由来する新規物性を開拓することを目標としており、研究計画の柱として多極子自由度のみを有する立方晶 Γ_3 基底状態を持つ新物質の合成を掲げていた。これまでの研究から、一連の $\text{PrT}_2\text{X}_{20}$ 型化合物がこの性質を有することがわかり、多極子の秩序と揺らぎに関する新たな知見が次々と得られつつある。

4. 今後の研究の推進方策

大きな変更はない。公募班とも連携して、多極子自由度を有する新物質の開発と物性解明に努力する。加えて、領域内の他の計画班と連携して、Yb 系重い電子化合物の価数転移や、異方的超伝導のギャップ対称性の決定なども行う。

5. 代表的な研究成果

(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 82 件)

1. 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. 掲載決定 (査読あり)
2. T. Onimaru, K. T. Matsumoto, Y. F. Inoue, K. Umeo, T. Sakakibara, and T. Takabatake, Antiferroquadrupolar Ordering in a Pr-based Superconductor $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$, Phys. Rev. Lett. 掲載決定 (査読あり)
3. Y. Tokunaga, T. Nishi, S. Kambe, M. Nakada, A. Itoh, Y. Homma, H. Sakai, H. Chudo, NMR Evidence for the 8.5 K Phase Transition in Americium Dioxide, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 053705-1-4 (2010).
4. Y. Nakanishi, T. Fujino, K. Ito, M. Nakamura, M. Yoshizawa, Y. Saiga, M. Kosaka, Y Uwatoko, Elastic constants of the single crystalline Yb based heavy-fermion compound $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$, Phys. Rev. B **80**, 184418 (2009). (査読あり)
5. T. Morie, T. Sakakibara, H.S. Suzuki, H. Tanida and S. Takagi, Unusual Low Temperature Magnetization of a Cubic Γ_3 Non-Kramers Doublet Ground State Compound PrMg_3 -Evidence of a Hybridization Effect, J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 033705-1-033705-4. (査読あり)

[学会発表] (計 253 件)

1. S. Nakatsuji, Y. Matsumoto, K. Kuga, T. Tomita, N. Horie, Quantum criticality in the valence fluctuating β - YbAlB_4 , International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2010), 2010 年 6 月 29 日, Santa Fe, New Mexico, USA
2. Yasuyuki Shimura, Toshiro Sakakibara, Kentarou Kuga, Jung Young Cho and Julia Y. Chan, Low temperature magnetic properties of $\text{Pr}(\text{Cu,Ga})_{12.85}$, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2010), 2010 年 6 月 29 日, Santa Fe, New Mexico, USA
3. Yo Tokunaga, NMR studied of actinide dioxides, International conference "Pu futures 2010", 2010 年 9 月 21 日, Keystone, USA
4. 青木勇二, Sm スクッテルダイトにおける磁場に鈍感な重い電子状態, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010 年 9 月 24 日, 大阪府立大学
5. 七宮史崇, 吉澤正人, 三田村裕幸, 中西良樹, 小坂昌史, 榊原俊郎, 金道浩一, YbAl_3C_3 のパルス磁場中超音波測定, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010 年 9 月 23 日, 大阪府立大学