

平成 30 年 6 月 3 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K17699

研究課題名(和文)パルス強磁場・圧力下物性測定によるCe1-2-10系新規秩序相の発現機構解明

研究課題名(英文) Study of the unusual antiferromagnetic order in Ce1-2-10 system using the non-destructive pulsed magnet under pressure

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では近藤半導体CeT₂Al₁₀(T = Ru and Os)における特異な反強磁性秩序の発現機構解明を目的として、パルス強磁場中での圧力下物性測定を行った。パルス強磁場中で使用可能なNiCrAl製のピストンシリンダー型圧力セルを新たに開発し、試料空間が直径3mmで最大55T、2GPaでの磁気抵抗測定が可能となった。この圧力セルを用いてCeT₂Al₁₀系の圧力下磁気抵抗を測定し、反強磁性秩序の形成とスピンギャップとの相関や、c-f混成と異方的な交換相互作用との関係など、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 have investigated the origin of the unusual antiferromagnetic order in Kondo semiconductor CeT₂Al₁₀ system (T = Ru and Os) at high pressure and high magnetic fields using the nondestructive pulsed magnet. We have developed a piston-cylinder-type hybrid pressure cell using the NiCrAl alloy for pulsed high magnetic field up to 55 T. A diameter of the sample space is 3mm and the maximum working pressure is 2GPa. Using this pressure cell, we have performed the high-field magnetoresistance of CeT₂Al₁₀ system and found the relationship between the formation of the antiferromagnetic order and the spin gap. We also found that the anisotropic exchange interaction plays an important role in the present system.

研究分野：非破壊パルス強磁場下における強相関f電子系物質の磁性と伝導の研究

キーワード：強相関電子系 近藤半導体 近藤絶縁体 パルス強磁場

1. 研究開始当初の背景

希土類元素を含む金属化合物では、f 電子と伝導電子との混成 (c-f 混成) によってエネルギーギャップが降温と共に形成され、半導体的な挙動を示す物質群が存在する。これらは近藤半導体と呼ばれている。近藤半導体は降温による c-f 混成の発達により f 電子の局在性が小さくなるため、磁気秩序を示さないことが一般的である。ところが、2009 年に発見された CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os$) は近藤半導体としての特徴を有するにも関わらず約 30 K で反強磁性 (AFM) 転移を起こす [1,2]。 CeT_2Al_{10} の AFM 秩序相は、転移温度 T_0 が約 30 K と高温であることや磁気モーメント (M_{AF}) が磁化容易軸の a 軸ではなく c 軸方向に配列するなど、通常の AFM 秩序として理解し難い点が多々存在するため、発見後から活発な研究が行われてきた [1-3]。

先行研究により AFM 秩序と異方的な c-f 混成との密接な関わりが導き出されたが [4]、異方的な混成効果のメカニズムを詳細に把握することは容易ではない。そのため、中性子散乱などの微視的手法による研究や、元素置換系の系統的な研究、圧力下物性測定による研究に加え、これらを組み合わせた研究が進められるようになった。しかし、AFM 秩序の臨界磁場は容易軸方向でも 50 T と非常に高いため、磁場中測定との組み合わせは活発に研究されておらず、強磁場中での測定を含めた多角的な研究が強く望まれていた。

2. 研究の目的

(1) CeT_2Al_{10} は研究初期の段階からスピンギャップの存在が確認されている。スピンギャップは c-f 混成と関係している可能性は極めて高いと推測されるため、臨界磁場などの圧力依存性を調べ、スピンギャップと AFM 秩序形成の起源解明を試みた。

(2) 本系の AFM 秩序は言わば"遍歴性"と"局在性"の間で起こる磁気秩序である。これらのバランスは T サイト置換や圧力により容易に崩れる。この様な環境下でさらに磁場効果を加えると新たなタイプの秩序が高磁場中で出現することが期待できる。そこで、元素置換した試料について強磁場・圧力下での測定を行い、新規磁場誘起相の探索を試みた。

3. 研究の方法

(1) まず、本研究の要となるパルス強磁場用の圧力セルの開発を行った。圧力セルはピストンシリンダー型、材質は NiCrAl 合金を採用した。NiCrAl は比較的電気伝導性が低くパルス磁場による発熱の影響を抑えられること、圧力セルの材質として一般的に使われている CuBe よりも高強度であり、より大きな圧力が得られるという利点がある。試料空間は内径 3mm となるように設計した。また、NiCrAl は焼結処理の仕方により硬度・韌性が変化するため、圧力セルを NiCrAl の 2 層構造とした。

(2) 圧力セルの作製後、パルス強磁場中での圧力下磁気抵抗測定を行った。はじめに $CeRu_2Al_{10}$ の a 軸方向に磁場を印加した場合を測定し、常圧で 50 T にある転移磁場が圧力でどのように変化していくかを調べた。その後は $CeOs_2Al_{10}$ や T サイト置換系の測定を行った。また、圧力下での強磁場磁気抵抗測定と並行して $CeRu_2Al_{10}$ の Fe 置換系について磁化測定を行い、スピンギャップと c-f 混成との関係を詳細に調べた。

4. 研究成果

(1) パルス強磁場用圧力セルの開発

近年、50 T 以上の強磁場領域に対応した圧力セルは国内外で精力的に開発が行われているが、その大半はダイヤモンドアンビル型やブリッジマン型であり、4 GPa 以上の高圧が得られる一方で試料空間が非常に小さく汎用性に乏しいという欠点があった。さらに、本研究で対象とした CeT_2Al_{10} は一般的な金属と比較すると機械的に脆く、微小なサイズへの整形は困難という問題を抱えていた。そこで、将来的な汎用性も考慮し可能な限り試料空間を広くした圧力セルの設計に取り組んだ。作製した圧力セルは 3. で述べたように NiCrAl 合金からなる 2 層式のピストンシリンダー型である。2 層式を採用した理由は、NiCrAl は高度を上げると韌性がなくなるという欠点を持っているためである。圧力発生効率を上げるため内層は高強度 (HRC 硬度 ~ 55) となるように、一方で加圧によるセルの破壊を防ぐため外層は強度あえて硬度を下げるように (HRC ~ 40) 熱処理を施した。その結果、3 mm の試料空間で最大 2 GPa までの加圧 (常用時) に成功した。

NiCrAl は電気伝導度が比較的低いとは言え、パルス磁場中に置かれれば急激な磁場印加によるジュール発熱の影響は無視できない可能性がある。そこで、本研究で構築したシステムについて発熱の影響を調べることにした。作製したピストンシリンダーの外径は 15 mm、パルスマグネットのボア径は 25 mm、パルス幅 35ms で最大 55 T の磁場を印加し、事前に磁場-温度較正を行った RuO_2 を圧力セルの試料空間内に置いて磁気抵抗を行ったところ、0 ~ 55 T までの過程で約 3 K の温度上昇を確認した (初期温度 4.2 K)。幸いにも、本研究で対象となる CeT_2Al_{10} は 10 K 以下で臨界磁場の大きさがほとんど変化しないため、この程度の温度上昇であれば臨界磁場の圧力依存性を求めることが可能であると結論した。

(2) $Ce(Ru_{1-x}Fe_x)_2Al_{10}$ の強磁場磁化過程

$CeFe_2Al_{10}$ は $T = Ru$ および Os とは異なり磁気秩序を起こさない一般的な近藤半導体である。磁気秩序を起こさない原因は $CeRu_2Al_{10}$ や $CeOs_2Al_{10}$ に比べて c-f 混成の強度が大きいためであると考えられている。Ru を Fe へ徐々に置換していくことにより c-f 混成強度

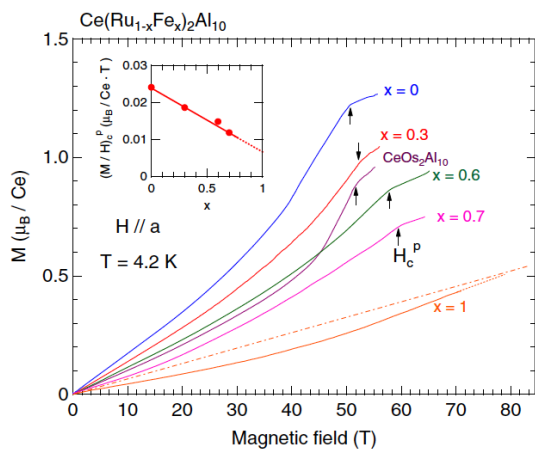


図 1

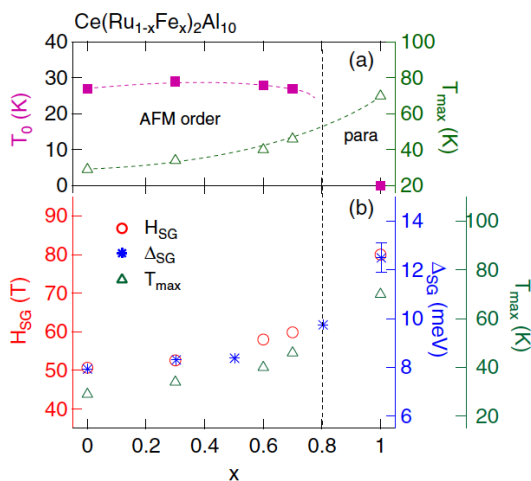


図 2

を調節できるのではないかと考え、T サイトの Fe 置換効果に関する研究は以前から行われていた[5,6]。そこで、c-f 混成強度が増すことにより磁化過程にどのような影響が現れるかを把握するため、a 軸方向における強磁場磁化測定を行った(図 1)。その結果、常磁性領域への転移磁場 (H_p^c) は $x = 0.5$ を超えたあたりから大きく高磁場側へシフトすることがわかった。図 2 に転移温度 T_0 、磁化率のピーク温度 T_{max} および H_p^c の Fe 濃度依存性を示す。 T_0 は $x = 0.5$ 付近まで緩やかに上昇した後に減少傾向となり、 $x \sim 0.8$ で一次転移的に消失する。一方で T_{max} は H_p^c と類似した Fe 濃度依存性を示す。これは H_p^c の大きさが c-f 混成強度と関係があることを示唆している。さらに興味深い点は、図 2 (b) に示したように非弾性中性子散乱によって得られたスピンギャップの大きさ Δ_{SG} と H_p^c の Fe 濃度依存性が極めてよい一致を示すことである。両者が増加率も含め酷似した関係であることから、 H_p^c がスピンギャップの大きさと相関があることが明らかとなった。これらの結果を基にして、 Δ_{SG} は AFM 秩序形成によって出現した異方性マグノンギャップと一重項形成に伴うギャップの成分から構成されている可能性を提案した。

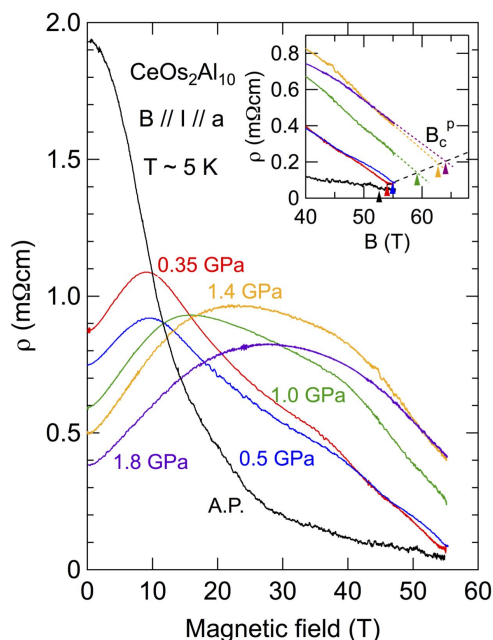


図 3

(3) CeT₂Al₁₀ の強磁場中圧力下磁気抵抗

CeRu₂Al₁₀ の Fe 置換系の結果から、c-f 混成強度を増大させる圧力効果によっても転移磁場 H_p^c は高磁場側にシフトしていくであろうと推測し、まず CeRu₂Al₁₀ の圧力下磁気抵抗測定を a 軸方向に対して行った。なお、測定の初期温度は 4.2 K とした。その結果、常圧で 12 T 付近にあったブロードなピークは加圧により高磁場側にシフトし、さらに常圧では 50 T であった H_p^c は 0.9 GPa まで加圧すると 52 T まで上昇することがわかった。さらに 1.3 GPa まで加圧すると H_p^c は約 55 T まで増大する。これらの結果は予想通り Fe 置換系の結果とコンシステントであり、スピンギャップと c-f 混成の大きさには何らかの関係があることを強く示唆する。同様に CeOs₂Al₁₀ についても測定を行った。その結果を図 3 に示す。常圧下の低磁場領域で見られる比較的大きな負の磁気抵抗は 0.35 GPa の加圧で消滅し、代わりに 10 T 付近にブロードなピークが新たに出現する。このような低磁場領域の挙動は CeRu₂Al₁₀ と類似していることから、加圧によってフェルミ準位近傍の電子状態が CeRu₂Al₁₀ と似た状態へと変化していることが予想される。このピークは加圧により高磁場領域へシフトしつつブロードさが強まっていく。一方、臨界磁場 H_p^c も加圧により高磁場側へシフトしている。常圧で 53 T であった H_p^c は 0.5 GPa で 55 T 付近にまで到達したため、これ以上の圧力下では H_p^c を直接同定することができなかった。そこで、40 T 以上の磁気抵抗の直線を外挿することで 0.5 GPa 以上での H_p^c を見積もった。その結果、 H_p^c は圧力に対してほぼ直線的に増大していくことがわかった。また、 H_p^c の圧力依存性は磁化率のピーク温度 T_{max} の圧力依存性[7]と増加率まで含めて概ねよい一致を示していることが明らかとなった。

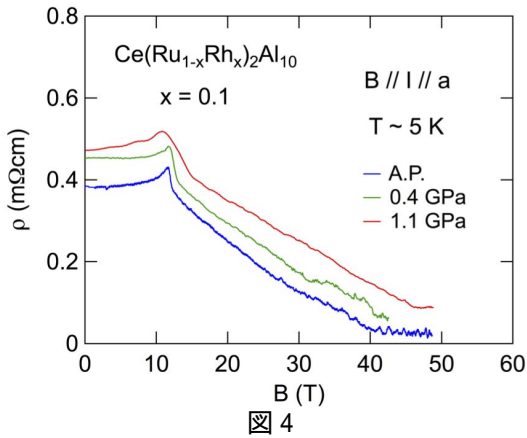


図 4

(4) T サイト置換系の圧力下磁気抵抗

CeT₂Al₁₀系では、T サイトを置換することにより磁気的な性質は大きく変化することがわかっている。(2)で述べた T = Ru の Fe 置換系以外にも、例えば Ru を Rh で 5%以上置換した系では Ce イオンの局在性が急速に高まり、さらに M_{AF} が常磁性領域の磁気異方性から期待される a 軸方向へ配列するようになる [8]。これは a 軸方向の異方的な c-f 混成が Rh 置換により急速に抑制されたためと考えられている。加えて、母物質で存在するスピンギャップも Rh 置換で容易に消失することがわかっており、CeT₂Al₁₀ 系での特異な AFM 秩序形成にスピンギャップが関与していることが示唆されている。(2) および (3) で明らかになったように、臨界磁場 H_p^c とスピンギャップの大きさ s_g は相関があるため、スピンギャップの消失した Rh 置換系での H_p^c が圧力によってどのように変化していくかをまず調べることにした。図 4 は Ce(Ru_{1-x}Rh_x)₂Al₁₀ (x = 0.1) の a 軸方向における圧力下磁気抵抗の結果である。CeRu₂Al₁₀ や CeOs₂Al₁₀ と同様に H_p^c は加圧により高磁場側にシフトして行くことがわかった。加圧による H_p^c の増加程度を把握するため、Rh をさらに置換した系 (x = 0.2) や Ce(Os_{1-x}Ir_x)₂Al₁₀ (x = 0.04) についてもパルス磁場中での圧力下磁気抵抗測定を行った。図 5 に本研究で行った CeT₂Al₁₀ 系における H_p^c の圧力依存性を示す。なお、臨界磁場は母物質の臨界磁場で規格化している。H_p^c は T サイトの置換量に関わらず母物質と同程度の割合で増加して行くことが明らかとなった。この結果は、加圧によってスピンギャップが増強されたため H_p^c が増大したということでは説明が困難であり、別の理由によって H_p^c が増大していることを意味している。

ここで、CeT₂Al₁₀ 系での異方的な交換相互作用に着目する。母物質では M_{AF} // c が実現しているため c 軸方向の交換相互作用 J_{ex}^c が何らかの理由で異常に大きくなっていると考えられているが、M_{AF} // a となった T サイト置換系においても依然として大きな値であると推測されている [8]。そこで、加圧によって異方的な c-f 混成が増強し、結果とし

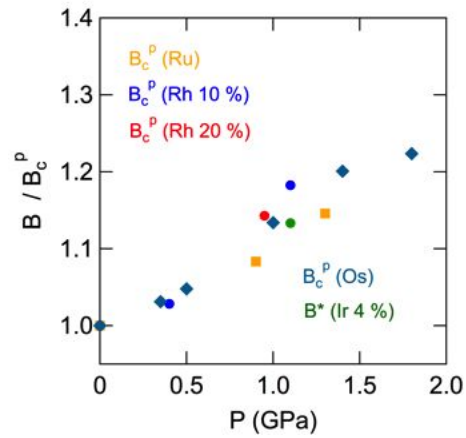


図 5

て T サイト置換に関わらず J_{ex}^c が増大したことが H_p^c 増大に起因しているのではないかと考えた。これを確かめるべく、異方的な交換相互作用を取り入れた 2 部分格子モデルによる分子場計算を行ったところ、J_{ex}^c のみを大きくすることで H_p^c は増大することがわかり、前述の仮定を支持する結果が得られた。したがって、CeT₂Al₁₀ 系における異常な AFM 秩序形成には c 軸方向の異方的な交換相互作用が重要な鍵となっていることが明らかとなった。

一方、今回の T サイト置換系での測定において新規秩序相の出現を探索したが、Ru の Rh 置換系や Os の Ir 置換系においては残念ながら新たな相を確認することができなかった。今後、Re 置換系や磁場方向を変えた測定などを行うことにより、新規秩序相が出現するかどうかを引き続き調べていく予定である。

< 引用文献 >

- [1] A. M. Strydom: Physica B 404, 2981 (2009).
- [2] T. Nishioka et. al.: J. Phys. Soc. Jpn. 78, 123705 (2009).
- [3] D. D. Khalyavin et. al.: Phys. Rev. B 82, (2010) 100405.
- [4] A. Kondo et. al.: Phys. Rev. B 83, 180415 (2011).
- [5] T. Nishioka et. al.: J. Phys.: Conf. Ser. 273, 012046 (2011).
- [6] D. T. Adroja et. al.: Phys. Rev. B 87, 224415 (2013).
- [7] K. Umeo et. al.: J. Phys. Soc. Jpn. 80, 064709 (2011).
- [8] A. Kondo et. al.: J. Phys. Soc. Jpn. 82, 054709 (2013).

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 1 件)

Akihiro Kondo, Koichi Kindo 他 5 名、

Fe Substitution Effect on the High-Field Magnetization in the Kondo Semiconductor $CeRu_2Al_{10}$, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有、Vol.86、2017、023705-01-05
DOI : 10.7566/JPSJ.86.023705

[学会発表](計 5件)

近藤晃弘、パルスマグネットを用いた近藤半導体 CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os, Fe$) の圧力下磁気抵抗 II、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017 年 09 月 22 日、岩手大学
近藤晃弘、パルスマグネットを用いた近藤半導体 CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os, Fe$) の圧力下磁気抵抗、日本物理学会 第 72 回年次大会、2017 年 03 月 19 日、大阪大学
近藤晃弘、近藤半導体 CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os, Fe$) における磁場誘起相の磁場方向依存性 II、日本物理学会 2016 年秋季大会、2016 年 09 月 15 日、金沢大学
近藤晃弘、近藤半導体 CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os, Fe$) における磁場誘起相の磁場方向依存性、日本物理学会 第 71 回年次大会、2016 年 03 月 21 日、東北学院大学
近藤晃弘、 CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os$) 置換系におけるスピンギャップの磁場効果 II、日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 09 月 17 日、関西大学

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