

令和 3 年 6 月 7 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03509

研究課題名(和文) 超低温高磁場での回転機構を用いた歪測定によるf電子の新しい基底状態の展開

研究課題名(英文) Dilatometric measurements of clathrate rare earth compounds in ultra low temperatures in magnetic fields

研究代表者

阿部 聡 (ABE, Satoshi)

金沢大学・数物科学系・教授

研究者番号：60251914

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：希土類原子が対称性の高いサイトに位置し、3非磁性二重項電子基底状態を持つ希土類カゴ状物質の磁気基底状態を明らかにするため、極低温高磁場環境下において、キャパシタンス法による熱膨張・磁気歪測定を行った。その結果、反強磁性秩序と四極子秩序の共存、反強四極子秩序状態での核磁気秩序、反強四極子秩序相内部での磁場による状態変化、反強四極子秩序状態での超伝導状態など、四極子秩序状態における新規な現象の可能性を明らかにした。また、四極子秩序の磁場方向・結晶軸に磁気異方性測定に必要なローテータを用いた磁場角度分解歪測定装置の開発を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来は約50mK程度までに限られていた希土類金属間化合物の磁場中物性精密測定を、本研究では10mK以下まで拡張することにより、極低温高磁場多重環境における四極子秩序に起因する多彩な基底状態の新たな展開を行った。詳細な解明はまだ十分ではないが、四極子秩序状態における核磁気秩序や超伝導状態の出現、磁場による四極子秩序状態の状態変化など、新たな可能性を示した点は極めて学術的意義が大きく、新物質の探索への発展が期待され社会的意義も大きい。

研究成果の概要(英文)：We have investigate the magnetic ground state of clathrate rare earth compounds that the rare earth atom is located at the site of high symmetry in the crystal electric field. From the thermal expansion and magnetostriction measurements using the capacitive dilatometer and the susceptibility measurements using the ac impedance bridge at ultra low temperatures in intense magnetic fields, we have indicate the possibility of the coexistence of antiferromagnetic and antiferro-quadrupole ordering, the nuclear magnetic ordering in antiferro-quadrupole ordered state, new phase induced by the magnetic field in the quadruple ordered state, and the superconductive state in the antiferro-quadrupole ordered state. In addition, we have developed the rotating dilatometric measurement system for the investigation of magnetic anisotropy of the quadrupole ordered state.

研究分野：低温物理学

キーワード：低温物性 多重極限 四極子

1. 研究開始当初の背景

物性物理学において、多粒子系からなる系の基底状態や、その基底状態を形成する相互作用を解明することが重要な課題である。特に f 電子は多彩な基底状態を示すことから、秩序状態の磁場、圧力、物質の組成による変化から相互作用の機構の解明が精力的に行なわれ、また、新しい現象の発見が物性研究の飛躍的な進展をもたらしている。しかし、量子相転移とその近傍での臨界現象、四極子などの多極子自由度の秩序転移は、重要であるにもかかわらずより低温が必要となるため詳細な研究が十分に行なわれていない。温度・磁場に対する結晶歪の変化である熱膨張・磁歪は、エントロピー・磁化の圧力依存性に対応しているため、圧力により相互作用の拮抗が変わる量子相転移では量子臨界効果が顕著に現れる。また、磁気モーメントを持たない四極子秩序は磁氣的測定では検出できず四極子モーメントの対称性に対応した結晶歪測定が必要であるが、超低温では X 線回折や光学的な結晶歪測定は不可能であり、熱膨張・磁歪による結晶歪測定が極めて有効になる。さらに、回転機構を用いることで結晶歪の結晶軸・磁場異方性が測定可能となり、量子臨界現象・量子相転移および四極子秩序の詳細が解明できる。本研究の核心は、超低温でなければ実現できない f 電子秩序状態について高磁場かつ磁場方向を変化させた熱膨張・磁歪測定を行い、多彩な基底状態の発現機構を解明し、さらに新しい現象の発見を目指すことである。

2. 研究の目的

本研究の目的は、温度 10mK 以下、磁場 9T までの超低温・高磁場環境を用いることでこれまで実現できなかった秩序状態の研究を可能にし、熱膨張・磁歪の磁場方向依存性測定から、量子相転移点近傍での量子臨界現象の解明、四極子秩序の機構を明らかにすることである。量子相転移と四極子秩序は、どちらも秩序変数の揺らぎが本質的に重要であり、熱揺らぎが完全に抑制された超低温環境が不可欠である。量子相転移では相互作用の拮抗が圧力に強く依存するため、エントロピー・磁化の圧力依存性に対応する熱膨張・磁歪に著しい量子臨界効果が現れる。また、四極子秩序状態では四極子モーメントの対称性に対応した結晶歪に異方性が現れる。したがって、結晶軸と磁場方向を変化させた熱膨張・磁気歪測定は極めて有効な方向である。

量子相転移点近傍での新しい量子臨界効果の研究には、50mK 以下で $\Delta L/L \sim 10^{-8}$ の高感度歪測定が必要であるが、現時点では世界で本研究グループだけが実現できている。希土類カゴ状化合物 $\text{Pr}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ 、 $\text{PrPt}_2\text{Cd}_{20}$ 、 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ はゼロ磁場で 0.25 から 0.11K で反強四極子秩序状態をとり、より低温では、反強磁性秩序、強四極子秩序、変調した反強四極子秩序、超伝導転移等の多彩な秩序相が出現する可能性が指摘されている。本研究では、これらの希土類カゴ化合物について、従来より低温での物性測定を行い、低温秩序状態の温度圧力相図の結晶軸・磁場方向依存性を明らかにすることにより、四極子秩序の機構解明の進展を目的とした。

3. 研究の方法

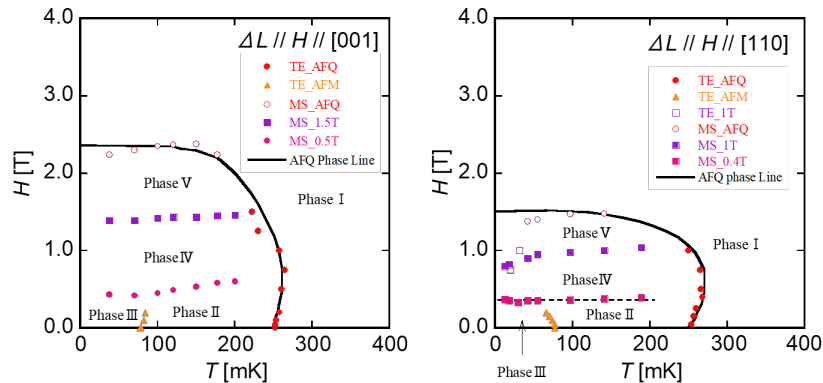
本研究では、これまでに構築した希釈冷凍機と超伝導マグネットによる極低温高磁場環境を用いて、希土類カゴ状化合物に対して、温度 10mK 以下、磁場 9T までキャパシタンス法により熱膨張率・磁歪係数の温度・磁場依存性の測定を行うことを基軸に据え、同時に、小型化した歪測定装置を搭載したピエゾローテータを低温高磁場環境に設置し、磁気角度分解歪測定システムを開発する。

4. 研究成果

本研究により得られた主な成果を以下に記す。

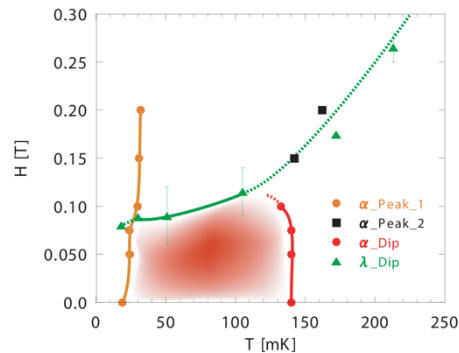
(1) 希土類カゴ状化合物である $\text{Pr}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$ は Pr 原子が対称性の異なる 2 種類のサイトに位置し磁気秩序と複数の四極子秩序が共存するため、我々はこれまでに、1mK までの交流帯磁率測定・熱膨張測定から、 Γ_5 サイトでは 70 mK で反強磁性秩序と 60 mK 以下での緩和機構の変化、 Γ_3 サイトでは 250mK で反強四極子秩序と 9mK で核磁気秩序を示すことを明らかにして

きた。本研究では[001], [110]方向について、10mK, 9T の超低温高磁場環境での熱膨張・磁歪測定を行い、反強四極子秩序相および反強磁性秩序相の温度・磁場相図を明らかにした。ゼロ磁場での反強四極子転移温度 $T_{AFQ} \sim 250\text{mK}$ と反強磁性転移温度 $T_{AFM} \sim 77\text{mK}$ 、反強四極子臨界磁場 $H_{AFQ-PP} \sim 2.2\text{T}$ [001], 1.5T [110]、は従来の結果と一致する結果を得たが、反強磁性転移温度が、[001]方向では磁場とともに上昇するが、[110]方向では磁場の2乗で減少し、両方向とも約 0.25T で消失することを初めて明らかにした。さらに、反強四極子相内で磁歪係数にブロードなピークと鋭いピークが現れることから、四極子秩序状態が変化する可能性を指摘した。



熱膨張・磁歪による $\text{Pr}_3\text{Cd}_{20}\text{Ge}_6$ の磁気相図

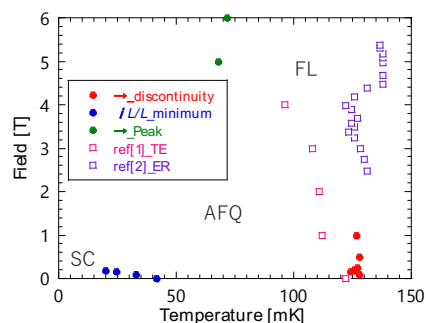
(2) 希土類カゴ状化合物のうち、 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ や $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ に代表される 1-2-20 系化合物は、より対称性の高い結晶構造から Pr 原子は非磁性 Γ_3 二重項結晶場基底状態となる。このため、磁気秩序は示さず $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ は $T_Q \sim 0.11\text{K}$ 、 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ は $T_Q \sim 2\text{K}$ で反強四極子秩序転移し、さらに、 $T_C \sim 0.05, 0.2\text{K}$ で超伝導転移することが報告されている。 $\text{PrPt}_2\text{Cd}_{20}$ は電気抵抗率や比熱測定から 0.16K で四極子転移を示唆する結果があるが、強制的か反強制的であるか明らかになっていないため、 $10\text{mK}, 9\text{T}$ の温度・磁場範囲で $\text{PrPt}_2\text{Cd}_{20}$ の [100] 方向の熱膨張・磁歪測定を行った。その結果、 $T_Q \sim 0.14\text{K}$ で反強的に四極子秩序転移を示し、約 0.1T の臨界磁場以上では四極子転移が消失することを明らかにした。さらに、 0.2T 以下では $20 \sim 30\text{mK}$ で熱緩和時間が著しく増加していることから、新たな状態変化が起こることを指摘した。さらに 4T 以上の高磁場では磁気歪係数に de Hass-van Alphen 振動が現われることを見出した。



熱膨張・磁歪による $\text{PrPt}_2\text{Cd}_{20}$ の磁気相図

(3) 希土類カゴ状 1-2-20 系化合物である $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ は $T_Q \sim 0.11\text{K}$ で反強四極子転移を示し、さらに $T_C \sim 0.05\text{K}$ で超伝導転移することが報告されているが、反強四極子秩序での残留エントロピーなど低温基底状態が未解決であるため、 $10\text{mK}, 9\text{T}$ の温度・磁場範囲で $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ の [001] 方向の磁場中における熱膨張測定を行った。その結果、熱膨張係数が不連続となるゼロ磁場における反強四極子秩序転移温度 $T_Q = 122\text{mK}$ 、 1T までの転移温度の磁場依存性は先行研究の結果と一致した。また、超伝導転移点近傍の約 40mK で熱膨張は極小を持ち、 0.17mT 以上の磁場中では消失することを初めて明らかにした。さらに、 1T 以下で 30mK 以下から熱緩和時間に著しい増大がみられ、緩和時間の温度・磁場依存性は核比熱では説明できず、この温度領域で

は電子比熱が著しく増大している可能性を指摘した。これらの結果から、希土類カゴ状物質 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ の低温秩序状態の磁気相図を 10 mK, 6 T まで大きく拡張し、さらに四極子秩序状態内部に新しい状態が存在する可能性を示した。



熱膨張・磁歪による $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ の磁気相図

(4) 希土類 Pr 化合物は四極子秩序、磁気秩序、超伝導など多彩な基底状態を示し、さらにこれらの低温秩序状態は結晶軸と磁場印加方向に強く依存し、その磁気異方性を明らかにすることは低温物性研究において極めて重要である。従来の測定では、測定ごとに試料取り付け方向を変え測定を繰り返す必要があった。本研究では、低温でピエゾローターを用いて測定装置を回転させ、磁場方向を変化させるシステムの構築を行い、ローターに搭載可能な小型歪測定装置、交流インピーダンスブリッジによる交流帯磁率測定装置を制作し、低温での動作試験を行った。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Sato W., Komatsuda S., Shimizu H., Moriichi R., Abe S., Watanabe S., Komatsu S., Terai T., Kawata S., Ohkubo Y.	4. 巻 100
2. 論文標題 Dynamic motion and freezing of polaronic local structures in a colossal-magnetoresistive perovskite manganite $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ detected with radioactive nuclei	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 184111 1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.100.184111	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Matsumoto K, Sekiguchi Y, Iwakami O, Ono T, Abe S, Ano G, Akatsu M, Mitsumoto K, Nemoto Y, Goto T, Takeda N, Kitazawa H	4. 巻 969
2. 論文標題 Thermal expansion and magnetostriction of clathrate compound $\text{Pr}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 012120 ~ 012120
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1742-6596/969/1/012120	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 中島彩加, 浅井桃花, 阿部聡, 松本宏一, 鬼丸孝博, 松本圭介, 山根悠
2. 発表標題 極低温におけるカゴ状化合物 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ の磁場中熱膨張測定
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 輪島裕樹, 島村一利, 阿部聡, 松本宏一, 岡本博之, 河江達也, 吉田靖雄
2. 発表標題 遷移金属カルコゲナイド Nb_3Te_4 の極低温磁化測定
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会（2020年）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 洪谷祥希, 杉山憲吾, 阿部聡, 松本宏一
2. 発表標題 エアロジェル中の液体4HeにおけるFast modeとSlow modeの研究
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮本惇也, 中島彩加, 阿部聡, 松本宏一, 広瀬雄介, 土塔寛, 摂待力生
2. 発表標題 超低温・高磁場下におけるカゴ状化合物PrPt ₂ Cd ₂₀ の熱膨張・磁歪測定II
3. 学会等名 日本物理学会(2019/3/14-17 九州大学)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 生方憲二郎, 阿部歩輝, 阿部聡, 松本宏一, D. S. NuzhinaA, A. S. SemakinA, I. V. RomanovaA, M. S. TagirovA
2. 発表標題 RLiF ₄ (R: 希土類)の磁歪、熱膨張の観測
3. 学会等名 日本物理学会(2018/9/9-12 同志社大学)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 宮本惇也, 松本宏一, 阿部聡, 広瀬雄介, 土塔寛, 摂待力生
2. 発表標題 低温・高磁場環境下におけるカゴ状化合物PrPt ₂ Cd ₂₀ の熱膨張・磁歪測定
3. 学会等名 日本物理学会(2018/9/9-12 同志社大学)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	松本 宏一 (MATSUMOTO Koichi) (10219496)	金沢大学・数物科学系・教授 (13301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------