

平成 26 年 6 月 18 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：2012～2013

課題番号：24840013

研究課題名(和文)非クラマース系プラセオジム化合物における散逸量子系の研究

研究課題名(英文)Studies of dissipative state in non-Kramers system Pr-based compounds

研究代表者

荒木 幸治 (Araki, Koji)

東京大学・物性研究所・研究員

研究者番号：00635013

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円、(間接経費) 690,000円

研究成果の概要(和文)：PrMg3の超音波測定により、弾性定数(C11-C12)/2の磁気異方性を明らかにした。さらに熱膨張の結果から、低温でグリュネイゼン定数が小さいことから重い電子状態を形成していないことが分かった。またPrV2Al20の比熱・磁化測定を推進し、TQ = 0.73 Kで反強四極子秩序を示し、新たにT* = 0.61 Kに相転移があることを見出した。さらに磁場-温度相図を作成し、H || [100]にのみ高磁場相があることを明らかにした。平均場を用いた解析から高磁場相では秩序変数が電気四極子020から022に変化している可能性があることを提案し、八極子が重要であることを指摘した。

研究成果の概要(英文)：Ultrasonic measurements on PrMg3 reveals that the magnetic field dependence of elastic constant (C11-C12)/2 shows strong magnetic anisotropy. We obtained small Gruneisen constant of 5 for PrMg3 at low temperatures from low-temperature thermal expansion measurements. This result implies that PrMg3 has sermonic quasiparticles with small density of states. We have also performed specific heat and magnetization measurements on PrV2Al20. Our measurements reveals that PrV2Al20 exhibits two-phase transition at TQ = 0.73 K and T* = 0.61 K at zero field. We describe a T-H phase diagram in the three principal directions. It should be emphasized that high field phase exists in only [100] field direction. We proposed that the high field phase is due to the switching from the electric quadrupole 020 phase to 022 phase assisted by the octupole moment.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性II

キーワード：非クラマース二重項 多極子 四極子秩序 超音波 磁化

1. 研究開始当初の背景

希土類化合物における磁性の研究は、局在4f電子が持つ磁気双極子を伝導電子によって遮蔽する近藤効果と、安定化させようと伝導電子を媒介とした局在電子間に働くRKKY相互作用との競合を理解することで、国内外問わず強相関電子系の物理として著しく発展してきた。しかし最近では、強相関電子系の多様な物性を理解するには、磁気双極子に加えて、強いスピン軌道相互作用により現れる電気四極子、磁気八極子、電気16極子などのスピンと軌道が複合化した「多極子」が本質的に重要であることが次第に認識されつつあるが、その物理は発展途上にある。近年、磁気双極子を持たず多極子（電気四極子、磁気八極子）のみを有する非クラマース二重項 Γ_3 が結晶場基底状態であるPr化合物が示す特異な低温物性に興味を持たれている。 Γ_3 二重項は電気四極子を持ち、PrPb₃に見られるように低温で四極子秩序を示すのが通常である。他方、PrMg₃は20 mKの低温まで四極子秩序を示さず、その基底状態の解明が重要課題となっている。研究代表者は、PrMg₃の弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ とその超音波吸収係数 α が200 mK付近で超音波の周波数に依存する超音波分散を世界で初めて見いだした。この現象は熱活性化型の緩和時間を仮定したデバイ分散式で再現され、 Γ_3 二重項の電気四極子が格子と強く結合したパイブロンニック状態が、相転移を示さずに低エネルギー励起が極低温まで残存する散逸量子系を形成していると考えられる。これは、対称性を破る四極子秩序や伝導電子との混成による重い電子の形成、四極子近藤状態のシナリオとは異なる概念であり、格子結合による散逸量子系の新しい物理が発展すると確信し、本研究の着想に至った。

2. 研究の目的

本研究では、非クラマース二重項 Γ_3 基底であるPrMg₃とその希釈系 $(\text{Pr}_{0.03}\text{Lu}_{0.97})\text{Ag}_2\text{In}$ を取り上げ、超音波計測による超音波分散の観測を推進し、さらに極低温・強磁場下に於ける比熱、磁化率、及び熱膨張係数に現れる散逸量子系に起因した振る舞いとその特性温度を明らかにする。これにより、格子振動との結合による散逸量子系の解明を進め、全く新しい多極子の物理を開拓する。さらに新たに発見された Γ_3 基底物質であるPrV₂Al₂₀の低温物性を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

非クラマース二重項 Γ_3 基底である格子系PrMg₃とその希釈系 $(\text{Pr}_{0.03}\text{Lu}_{0.97})\text{Ag}_2\text{In}$ を取り上げ、超音波計測を駆使した弾性定数とその超音波吸収係数の精密測定を行い、超音波分散

を観測することで散逸量子系の動的応答を解明する。またPrMg₃の極低温・強磁場下に於ける磁化率とこの系で未着手の熱膨張測定を行い、散逸量子状態が示す温度・磁場依存性を明らかにするとともに新たな知見を得る。

新たに発見されたPrV₂Al₂₀の極低温・強磁場に於ける比熱・磁化測定を行い、低温物性と磁場温度相図を明らかにする。

4. 研究成果

(1) PrMg₃の散逸量子状態における弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ の磁気異方性

PrMg₃の弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ の極低温・強磁場下での超音波実験を進めた。その結果、磁場方向 $H \parallel [110]$ では、 $(C_{11}-C_{12})/2$ が単調に減少することが明らかになった。これは結晶場効果を考慮した標準モデルでは理解できない。また、磁場方向 $H \parallel [001]$ では、 $(C_{11}-C_{12})/2$ は単調に増加する。この弾性定数の大きな磁気異方性は、散逸量子状態に起因した特異な現象である可能性があり、PrMg₃の基底状態の解明に向けて重要な結果が得られた。

(2) PrMg₃の極低温・強磁場下におけるキャパシタンス法を用いた磁化測定

PrMg₃の磁化率が、低温に下げるにつれてCurie的に増大し、10 K以下で非クラマース二重項基底から期待されるvan Vleck的な振る舞いから外れ、 $-\log T$ の異常な温度依存性を示すことを明らかにした。さらに、磁場方向 $H \parallel [001]$ 下での4f電子の真の磁化率は、低磁場では測定最低温度(~100 mK)まで緩やかに上昇するのに対して、10 T以上の強磁場下では飽和する傾向が観測された。磁場中で散逸量子状態が消失している可能性を示唆する結果が得られた。

(3) PrMg₃の極低温・強磁場下における熱膨張測定

熱膨張係数 α/T は温度降下にしたがって増大し、300 mK付近でピークを示し、 $T=0$ Kに向かつて減少していく。熱膨張係数が比熱と同様の振る舞いを示すことが分かり、グリュエーナイゼン定数が低温で $\Gamma \sim 5$ に収束することを明らかにした。これは、PrMg₃では4f電子と伝導電子との混成が大きくないことを示唆しており、熱電能の結果と一致することが分かった。

(4) $(\text{Pr}_{0.03}\text{Lu}_{0.97})\text{Ag}_2\text{In}$ の弾性定数測定

非クラマース二重項基底に起因した弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ のソフト化を観測することに成功した。測定最低温度20 mKでもソフト化が続いていることから縮退はまで残っていると考えられ、どのように $R\ln 2$ のエントロピーを放出するのか興味深い。今後、磁場中も含め

磁化・比熱及び超音波実験などの詳細な研究が必要である。

(5) PrV₂Al₂₀の極低温・強磁場における比熱・磁化測定

比熱測定を行った結果、ゼロ磁場で $T_0 = 0.73$ Kに四極子秩序に起因した異常に加えて、新たに $T^* = 0.61$ Kに鋭いピークを観測した。また、磁化の磁気異方性が $M_{[111]} > M_{[110]} > M_{[100]}$ を示すことから、結晶場準位が Γ_3 二重項(0 K) - Γ_5 三重項(~40 K)であることを明らかにした。磁場中の比熱・磁化測定から立方晶主要三軸の磁場-温度相図を作成し、磁場方向 $H \parallel [100]$ にのみ高磁場相があることが分かった。二部分格子モデルを仮定した平均場計算を行った。その結果、[100]方向の高磁場相では秩序変数が電気四極子 O_2^0 から O_2^2 に変化している可能性があり、 Γ_5 型の磁気八極子の相互作用が重要であると考えられる。

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 2 件)

- ① Ute Löw, Sergei Zherlitsyn, Koji Araki, Mitsuhiro Akatsu, Yuichi Nemoto, Terutaka Goto, Uli Zeitler, and Bruno Lüthi
“Magneto-Elastic Effects in Tb₃Ga₅O₁₂”
J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 044603(1-10), 査読有
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.044603>
- ② Hironori Yamaguchi, Hirotugu Miyagai, Tokuro Shimokawa, Kenji Iwase, Toshio Ono, Yohei Kono, Naoki Kase, Koji Araki, Shunichiro Kittaka, Toshiro Sakakibara, Takashi Kawakami, Kouichi Okunishi, and Yuko Hosokoshi
“Fine-Tuning of Magnetic Interactions in Organic Spin Ladders”
J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 33707(1-4), 査読有.
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.033707>

[学会発表] (計 12 件)

- ① 荒木幸治、榊原俊郎、鈴木博之、谷田博司、高木滋
「PrMg₃の熱膨張測定」日本物理学会第69回年次大会、2014年3月28日、東海大学(神奈川県)
- ② 荒木幸治、志村恭通、加瀬直樹、榊原俊郎、酒井明人、中辻知
「カゴ状化合物 PrV₂Al₂₀の極低温磁化と反強四極子秩序」日本物理学会2013年秋季大会、2013年9月26日、徳島大学(徳島県)

- ③ 山口博則、小野俊雄、木田孝則、萩原政幸、大久保毅、松尾晶、金道浩一、荒木幸治、橋高俊一郎、榊原俊郎、細越裕子
「4倍周期磁気構造を持つ新規一次元磁性体の低温物性」日本物理学会2013年秋季大会、2013年9月28日、徳島大学(徳島県)
- ④ 谷口貴紀、吉田誠、荒木幸治、瀧川仁、榊原俊郎、辻本真規、酒井明人、中辻知
「金属間化合物 PrT₂Al₂₀(T = V, Ti)のNMRによる研究」日本物理学会2013年秋季大会、2013年9月26日、徳島大学(徳島県)
- ⑤ Koji Araki, Yasuyuki Shimura, Naoki Kase, Toshiro Sakakibara, Akito Sakai, and Satoru Nakatsuji
“Magnetization and Specific Heat of the Cage Compound PrV₂Al₂₀” Strongly Correlated Electron Systems 2013、2013年8月8日、東京大学(東京都)
- ⑥ 荒木幸治、志村恭通、加瀬直樹、榊原俊郎、酒井明人、中辻知
「カゴ状化合物 PrV₂Al₂₀の極低温磁化と比熱」日本物理学会第68回年次大会、2013年3月27日、広島大学(広島県)
- ⑦ 吉澤正人、シャラムジャン・スマイ、坂野幸平、中西良樹、三田村裕幸、荒木幸治、榊原敏郎、金道浩一、本間佳哉、山本悦嗣、松田琢磨、芳賀芳範、大貫惇睦
「URu₂Si₂のパルス磁場中の超音波測定」日本物理学会第68回年次大会、2013年3月26日、広島大学(広島県)
- ⑧ 山口博則、宮外浩嗣、小野敏雄、下川統久朗、川上貴資、志村恭通、加瀬直樹、荒木幸治、橋高俊一郎、榊原俊郎、細越裕子
「強磁性鎖から成る新規梯子格子磁性体の低温物性」日本物理学会第68回年次大会、2013年3月26日、広島大学(広島県)
- ⑨ 荒木幸治、志村恭通、加瀬直樹、榊原俊郎、酒井明人、中辻知
「PrV₂Al₂₀の極低温磁化と比熱」重い電子系の形成と秩序化」第4回研究会、2013年1月13日、東京工業大学(東京都)
- ⑩ 荒木幸治、榊原俊郎、志村恭通、後藤輝孝、根本祐一、赤津光洋、三本啓輔、鈴木博之、谷田博司、高木滋、Shadi Yasin、Sergei Zherlitsyn、Joachim Wosnitzer
「非クラマース二重項基底を持つ PrMg₃の極低温磁化」日本物理学会2012年秋季大会、2012年9月20日、横浜国立大学(神奈川県)
- ⑪ 栗原綾佑、荒木幸治、三本啓輔、赤津光

洋、根本祐一、後藤輝孝、小林義明、佐藤正俊

「超音波による鉄ヒ素超伝導体 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}$ の電気四極子効果」日本物理学会 2012 年秋季大会、2012 年 9 月 20 日、横浜国立大学（神奈川県）

- ⑫ 根本祐一、池田佳生、三本啓輔、赤津光洋、阿野元貴、荒木幸治、後藤輝孝、黒瀧直哉、中野智仁、武田直也
「超音波による $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ の結晶場と多極子秩序の解明」日本物理学会 2012 年秋季大会、2012 年 9 月 19 日、横浜国立大学（神奈川県）

[その他]

ホームページ

<http://sakaki.issp.u-tokyo.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

荒木 幸治 (KOJI ARAKI)
東京大学・物性研究所・特任研究員
研究者番号：00635013

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し