
希土類元素の多極子自由度を利用したナノデバイスの開発 II

研究代表者 理工学研究部 (理学) 石川 義和

(1) プロジェクトの背景・目的

希土類金属を含む強相関電子系物質は、フェルミ面近傍に状態密度の高い状態が形成されることが一つの大きな特徴である。また、最近では、希土類元素の 4 f 電子に由来する磁気的双極子だけでなく、電気的 4 重極子や 8 重極子の発現が原因と思われる特異な性質が注目され、これによるエントロピーの増大、新しい相転移の出現等の特異な性質を利用した熱・電気ナノデバイスの可能性が指摘されている。

我々は、このような新しいナノデバイスの、特に、磁場との相乗効果を持つ新規デバイスの低温・強磁場等の極端条件下での物性解明と、新素材の創製・試作・加工および評価を行い、特許化、起業化につなげていくことが目標である。

(2) 研究成果

[PrCu₄Ag の四極子モーメントの寄与]

立方晶 PrCu₄Ag の単結晶試料の育成に成功し、主要な結晶 3 軸についての結晶磁気異方性の詳細な研究を行った。この物質は従来、単結晶試料の作製には成功していない。磁化、帯磁率、弾性定数の結晶異方性の詳細な研究により、多くの新しい知見を得た。磁気転移温度 T_N が 2.4K であり、1K 以下で核磁性による比熱の増大が見られ、基底状態は三重項の Γ_5 であるとした。しかし、 T_N までの磁気エントロピーが $R \ln 3$ の約 60% 程度しか回復しないこと、熱膨張の実験からは、約 10K より低温で結晶格子が膨張し、 T_N 以下の温度で再度、収縮する異常を見出した。また、低温 X 線の研究グループとの共同研究で、面間隔が数十度 K 以下の温度で増大し、 T_N 以下で急激に収縮することを明らかにした。更に、超音波実験の研究グループとの共同研究により、詳細な磁場中弾性定数の測定の実験を行った。超音波の研究では、 C_{11} 、 C_{44} 、 $C_{11}-C_{12}$ のモードにソフトニングが 40K~50K の高温から見出され、 Γ_5 基底状態が有する四極子モーメントの寄与であることを明らかにした。

[NdCu₄Ag の磁場中比熱]

立方晶 NdCu₄Ag の単結晶試料による詳細な実験から、NdCu₄Ag は T_N が 4.2K の反強磁性体であり、結晶場による基底状態は 4 重項の Γ_8 であることを明らかにした。低温磁場中比熱の実験から相図を作成し、反強磁性領域には 3 つの領域 AFMI, AFMII, AFMIII があることを示した。更に低温領域の熱膨張・磁歪の実験から、2K 以下の温度で更に複雑な相図が存在することを示唆した。これらの異常の原因は、4 極子の自由度を有する Γ_8 の基底状態が関与していることを示唆している。

[論文発表] 2010 年に発表された研究論文を以下に示す。

- “Magnetic and Thermal Properties in Cubic Single Crystal PrCu₄Ag”
S. Zhang, Y. Isikawa, T. Tayama, T. Kuwai, T. Mizushima, M. Akatsu, Y. Nemoto, T. Goto

- J. Phys. Soc. Jpn. 79, 114707-1-114707-8 (2010).
- “Magnetic Phase Diagram in NdCu₄Ag Single Crystal”
S. Zhang, T. Tayama, T. Mizushima, T. Kuwai, and Y. Isikawa
J. Phys. Soc. Jpn. 79, 043704-1-043704-4 (2010).
- “Thermoelectric Power of PrMg₃”
Y. Isikawa, K. Somiya, H. Koyanagi, T. Mizushima, T. Kuwai, T. Tayama
J. Phys.: Conf. Ser. 200, 012069 (2010).
- “Magnetic order and properties in heavy fermion (Ce_{1-x}Gd_x)Ni single crystal”
K. Yano, Y. Tajiri, K. Nishimura, T. Ohta, Y. Isikawa, and K. Sato
J. Phys.: Conf. Series. 200, 012237-1-012237-4 (2010).
- “Field induced phases in a GMR system TbNiSb”
K. Prokes, K. Katsumata, S. M. Shapiro, and Y. Isikawa
J. Phys.: Conf. Series. 251, 012023-1-4 (2010).

(3) プロジェクト成果（特許，起業，技術移転等）

今年度提案した特許を以下に示す。

特許願 平成22年9月2日 特願2010-197080

発明の名称：磁気冷却材料およびそれを用いた極低温生成方法

発明の概要：人工原子であるヘリウム3を用いないで希土類原子の電子スピンを利用して1K以下の極低温を簡便に生成する方法を提案した。

図1は、本プロジェクトで利用している極限環境先進材料評価システムPPMSに装着するPuckである。これを利用して本特願のデバイスを作成している。図2は、電子自由度による磁気冷却デバイスを利用した極低温領域での熱容量測定の実施例である。熱断熱の改良により基本的にはこのままのデバイスでより低温度が実現できる。



図1. PPMSのPuckに装着した極低温生成のためのデバイス。

整理番号:PG09S01JP 特願2010-197080 (Proof) 提出日:平成22年9月

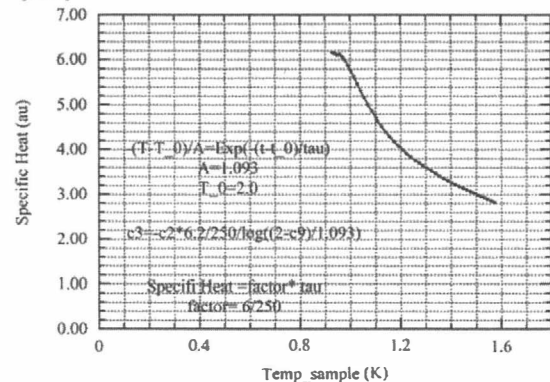


図2. このデバイスを使用して得られた極低温領域での熱容量の温度依存性。

(4) プロジェクト成果の応用・効果・構想（起業計画，市場での応用・効果，特許化構想）
希土類元素の4f電子の自由度は、磁気双極子、四極子、八極子の自由度があり、その自由

度を利用したデバイスの開発が可能である。我々は、前項で示した物質の基礎研究をもとに、低温度領域でよりエントロピーの増大の期待できる新しい物質群に挑戦している。

(5) 利用施設

- 極限環境先進材料評価システム： 利用内容は極低温、強磁場下での電氣的・磁氣的・熱的材料評価。測定の温度範囲は絶対温度0.5Kから300K。測定磁場は8テスラまで。利用頻度は約14日/月
- 高出力・高分解能X線回折システム： 粉末回折総合解析装置部、利用内容はCu-K α X線粉末回折による構造解析、または、単結晶試料による結晶方位の決定。利用頻度は約10日/月