

会場 F

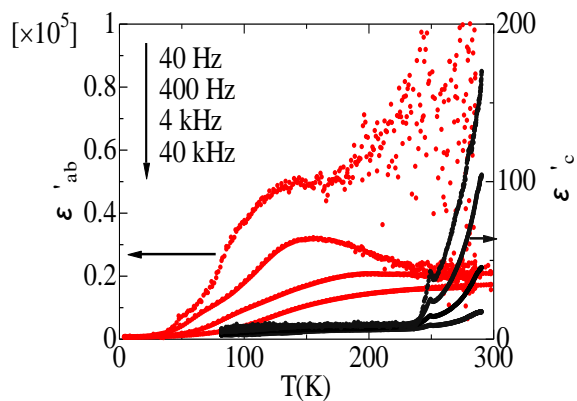
領域 7, 8, 9

F-1 絶縁体組成 Bi2212 の誘電特性と不純物置換効果

佐賀大院工系^A, 東北大金研^B 雪竹央乃^A, 真木一^A, 西崙照和^B, 小林典男^B

銅酸化物高温超伝導体はモット絶縁体にキャリアをドーブした系である。このとき、モット転移近傍でどのように金属的性質が現れるかは未解明である。複素誘電率は絶縁体金属転移近傍の電気的性質の変化を検知できるので、モット転移の特徴を調べる有効な手段だと考えられる。そこで、我々は Bi2212 の絶縁体組成域 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{DyCu}_2\text{O}_8$ (Dy-Bi2212) の単結晶試料を作製し、複素誘電率測定を行っている。図は CuO_2 面内と面間 (c 軸) のそれぞれの方角で測定した誘電率 (実部) の温度依存性である。面間方向の誘電率は、230 K 程度以上の高温で電荷キャリアの動きを反映して増大する¹。一方、 CuO_2 面内では低温から 10^4 もの巨大な誘電率を観測した。この誘電異方性からは 2 次元

的な誘電カタストロフィや不均一空間電荷分布が連想され、たいへん興味深い。当日は、印加電圧依存性や不純物置換効果などの詳細を報告する。¹ M. Maki et al., JPSJ 76 (2007) 044711.

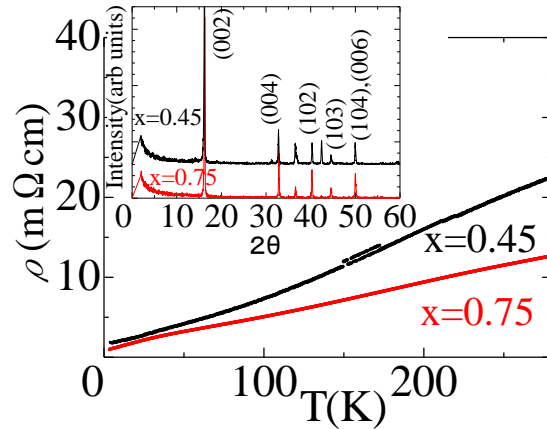


F-2 Na_xCoO_2 の電気抵抗率と熱起電力

佐賀大理工^A 高倉将一^A, 雪竹央乃^A, 真木一^A

Na_xCoO_2 は、 CoO_2 層と Na 層を積み上げた結晶構造をもつ。 x の値を変えると Co の形式価数が 3 価と 4 価の間で変化し、系には多彩で興味深い物性が現れる。 x が大きい領域では高い熱起電力が報告されており、熱電材料としての期待も高まっている。一方、 x の値に依存して CoO_2 の積層状態が変わり、 $x=0.9\sim 1$ では α 相、 $x=0.55\sim 0.67$ では β 相、 $x=0.3\sim 0.5$ 及び $0.7\sim 0.74$ では γ 相と呼ばれる構造が現れることが知られている。特定の濃度では、 Na 原子が規則的に配列する可能性も指摘されており、結晶構造が電子状態に及ぼす影響には興味もたれる。そこで本研究では、同一の結晶構造をもつ試料を作製し、その電気的性質を比較することにした。図は $x=0.45, 0.75$ の電気抵抗率 ρ の温度依存性である。挿入図の XRD

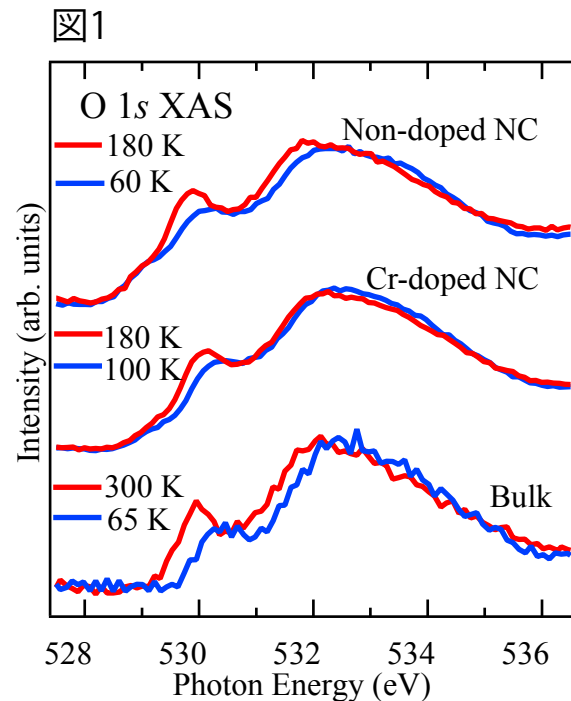
結果は両者が γ 相であることを示している。電気抵抗率は共に金属的であり、電子ドーピングの量が異なるにもかかわらず、同程度の値を示すことが分かる。当日は現在測定しているゼーベック係数の結果も含めて詳細を報告する。



F-3 V_2O_3 ナノ結晶の金属絶縁体転移

佐賀大院工^A, 九大総理工^B, 台湾 NSRRC^C, 弘前大院理工^D, 九大院工^E
糸山真央^A, 白石達也^A, 末廣智^A, 木田徹也^B, 石井啓文^C, 手塚泰久^D, 稲垣祐次^E, 河江達也^E, 石渡洋一^A

V_2O_3 ナノ結晶の金属絶縁体転移 (MIT) と化学ドーピングの関係を調べるために、サイズが約 20 nm のノンドーブナノ結晶と Cr を 1% ドープしたナノ結晶を液相合成して、その構造・電子状態・磁性を調べた。比較のために、 V_2O_3 バルクについても測定した。図 1 は KEK-PF-BL2C で測定した酸素 $1s$ 励起軟 X 線吸収 (XAS) スペクトルである。バルクでは MIT 前後の温度で測定したときに、吸収端のシフトが見られる。同様のシフトは、ノンドーブナノ結晶と Cr ドープナノ結晶にも見られる。これは、ノンドーブナノ結晶と Cr ドープナノ結晶における MIT の発現を示す。一方、ノンドーブナノ結晶と Cr ドープナノ結晶では、吸収端の直上付近に温度依存性がない成分も見られる。この成分はノンドーブナノ結晶に、より多く含まれる。詳細については当日報告する。



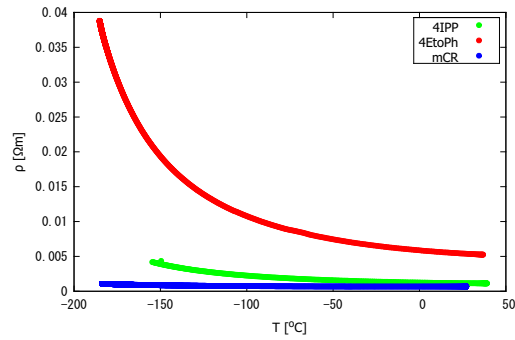
F-4 導電性高分子ポリアニリンの抵抗率・キャリア数の温度依存性 II

九州大学大学院理学府^A, 出光興産株式会社 先進技術研究所^B, 九州大学理学部^C
成清敬史^A, 花田智紀^C, 山田和正^A, 篠崎文重^A, 板東徹^B, 黒田憲寛^B, 中村浩昭^B

高分子ポリアニリンはスルホコハク酸エステルをドーピングすることによりキャリアが生成され導電性を示す。更に第2ドーパントを加えることにより大きく伝導率を変化させることができる。これまで我々は第2ドーパントとして m-cresol を選び、濃度を 0%~50% までを変化させ低効率 ρ のドーパント濃度依存性の電気測定を行ってきた。第2ドーパントの濃度が 1~10% の間で抵抗率は約 4 桁と大きく変化する。この一連の試料についてホール係数を測定しキャリア密度 n 、移動度 μ について調べてきた。

今回は異なるドーパントによる効果を調べる目的で 4EtoPh と 4IPP を選び実験を行った。図は各第2ドーパントの 5% における

$\rho - T$ を示したものである。同じドーパント濃度でも $\rho - T$ の振舞いが異なっていることが分かる。本発表ではこれら第2ドーパントの異なる 3 種類の試料について比較をし、それぞれのドーパント濃度依存性について測定結果及び考察について述べる予定である。

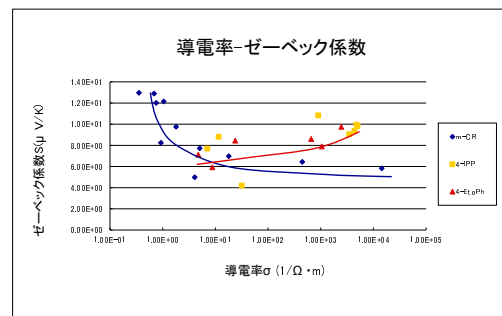


F-5 導電性高分子膜におけるゼーベック係数のドーパント依存性

九州大学理学部^A, 九州大学大学院理学府^B, 出光興産株式会社 先進技術研究所^C
花田智紀^A, 成清敬史^B, 山田和正^B, 篠崎文重^B, 坂東徹^C, 黒田憲寛^C, 中村浩昭^C

ポリアニリンはスルホコハク酸エステルをドーピングすることで導電性を持つ。さらに第2ドーパントとして m-CR をドーピングしその量を変えることでポリアニリンは異なった導電率を示すようになることをこれまで報告してきた。さらに、これらをドーピングした試料に対しゼーベック係数 S を測定した。 S は $\Delta V / \Delta T$ で定義され、試料の温度差を変えることでその両端の電圧が変化する。 S を測定することでキャリアの種類とキャリア密度に関する情報が得られ、その電気伝導について解明することができるためである。グラフは導電率とゼーベック係数の関係を表したもので、今回新たに測定した 4EtoPh は m-CR とは逆に導電率 σ に比例して S が増加しているようであるが、4IPP が一定

の変化を示すかどうかは不明である。今回の講演では前回測定した m-CR と 4EtoPh, 4IPP を比較し、キャリア密度とゼーベック係数の関係などについて報告する。



F-6

RPt₂Si₂ (R=Y,La,Lu) の超伝導と構造転移

九大院理^A, 東大物性研^B 永野雄太郎^A, 和田裕文^A, 光田暁弘^A, 荒岡信隆^A, 市原正樹^B, 磯部正彦^B, 上田寛^B

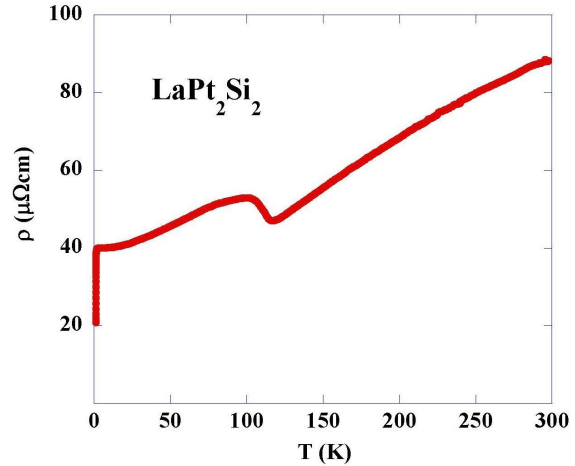
正方晶 CaBe₂Ge₂型構造 (空間群 *P4/nmm*) を持つ YPt₂Si₂, LaPt₂Si₂ は $T_c \sim 2\text{K}$ 付近で超伝導を示す [1,2]。我々は同構造をもつ LuPt₂Si₂ でも新たに超伝導を観測した。図は我々が測定した LaPt₂Si₂ の電気抵抗の温度依存性を示したものである。

LaPt₂Si₂ の電気抵抗は基本的には金属的に振る舞うが、 $T^* \sim 100\text{K}$ で低温に向うにつれて僅かな電気抵抗の上昇が見られる。これは電荷密度波 (CDW) 転移の可能性が考えられる。電子-格子相互作用により格子歪がおこり CDW が形成される。その歪を観測するため、低温における粉末 X 線回折と電子線回折を行った。

低温における粉末 X 線回折では、 T^* 以下において格子が斜方晶に歪むことを示唆するピークの分裂を観測した。また電子線回折には T^* 以下でのみ超格子反射のスポットが観測された。当日は、これらの結果から CaBe₂Ge₂型構造における CDW と超伝導との関係を議論する。

[1] R. Ballestracci and G. Astier, C.R. Acad. Sci. Paris 286(1978) 109.

[2] D.Gignoux et al, Phys. Lett. A 117 (1986) 145



F-7

元素置換による新しい Eu 系価数揺動物質の探索

九州大学理学研究院物理学部門物性物理学^A, 九州大学理学研究院物理学部門物性物理学講^B, 九州大学理学部物理学科磁性物理学研究室^C 和田裕文^A, 光田暁弘^B, 合木悠佑^C

価数揺動を示す金属を適切に混合することによって、価数揺動状態の様子が大きく影響を受けることがあり、さらに希土類元素 Sm, Eu, Yb を含む化合物の中には温度、圧力、磁場などの外場に影響されるものがあることが知られている。

Eu は一般に化合物中で 4f 電子数が 7 個 (Eu²⁺:2 価) の状態と 6 個 (Eu³⁺:3 価) の状態で存在しており、ある種の化合物中では Eu の価数がこの 2 価と 3 価の間で移り変わり、2 価と 3 価の間の価数状態 (価数揺動状態) をとる場合があり、価数揺動を示す金属である。

この Eu 系化合物における価数揺動は強い温度依存性を示すことが特徴であり、また Eu 自体はその磁気モーメントが Eu²⁺, Eu³⁺ それぞれで $7\mu_B$, $0\mu_B$ となっており、価数揺動状態が磁場の影響を受ける化合物の中にはある。

その Eu 系化合物の一つとして価数揺動状態をもつ系である EuPd₂Si₂ (正方晶, CeAl₂Ge₂ 型構造) が挙げられ、この系では Pd を Au (~15%) で置換、または Si を Sn (~4%) で置換することにより価数揺動状態に大きな変化が生じることが報告されている。

そこで、EuPd₂Si₂ と同型構造で価数揺動状態をもつ系である EuCu₂Si₂ に注目し、この系の Cu を Au (0, 5, 10, 15, 20%) で置換し、それによる価数揺動状態への影響を調べた。

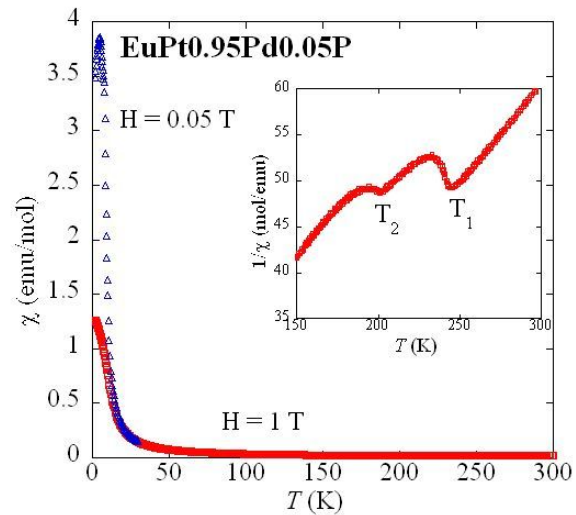
当日の発表ではその結果内容について詳しく述べる。

F-8 Eu-T-P(T=Ni,Pd,Pt)系の試料作製と磁性

九大理^A 梅田真史^A, 杉島正樹^A, 光田暁弘^A, 和田裕文^A

EuMP(M=Ni,Pd,Pt)は層状六方晶Ni₂In型構造をもち、いずれも価数転移を示す。M=Ptの場合、 $T_1=246\text{K}$ と $T_2=200\text{K}$ で一次の価数転移を、 $T_N=8\text{K}$ で反強磁性転移を示す。我々の研究で価数転移に伴いEu²⁺及びEu³⁺の層が規則的に積層する価数秩序を示すことが明らかになってきた。今回は、EuPtPのPtサイトにPdまたはNiを置換した試料の作製を試み、この物性に対する化学的圧力効果を調べることにした。現在のところ、Pd置換の試料作製に成功している。SEM-EDXによる組成分析から見積もられるPd置換量は1~3%である。図に磁化率の温度依存性を示す。2つの価数転移が観測されるがややブロードになっており、転移温度はあまり変化していな

い。一方、ネール点は $T_N=4.8\text{K}$ に低下する。講演では更に置換した試料の結果も報告する。



F-9 四極子秩序物質 PrPb₃ の磁場温度相図

九大院工^A, 物材機構^B, 広大院先端^C 牧山駿^A, 佐藤由昌^A, 稲垣祐次^A, 河江達也^A, 鈴木博之^B, 鬼丸孝博^C

AuCu₃型の立方晶構造を持つPrPb₃は非磁性 Γ_3 2重項の結晶場基底状態を持ち、 $T_Q=0.4\text{K}$ で反強四極子秩序することが知られている。この四極子転移温度 T_Q は磁気異方性を示し、その磁気相図は[100], [110], [111]の3つの結晶軸方向において大きく異なる。特に[110]磁場方向 $H=6\text{T}$ 以上において、低磁場相と異なる秩序パラメータをもつ高磁場秩序相が存在することが知られている[1]。また最近、[100]磁場方向で磁場中比熱測定を行った結果、[110]方向だけでなく[100]方向においても高磁場秩序相の存在を示唆する結果を得た[2]。

我々は今回、純良単結晶PrPb₃の[110]磁場方向で磁場中比熱測定を行い、[110]結晶軸方向における磁気相図を調べた。 T_Q の磁場依存性はリエントラントな振る舞いを示し、 $H=6\text{T}$ 以上で高磁場秩序相が出現することを確認した。また $H=0\text{T}$ において、 $T_Q=0.43\text{K}$ よりも低温の $T^*=0.25\text{K}$ で比熱異常が見られた。この T^* での異常は大きな磁気異方性を示し、[100]方向では $H=1\text{T}$ まで、[110]方向では $H=2.5\text{T}$ まで確認できるが、それ以上の磁場領域では1次転移と重なっていく。この異常の原因は分かっていないが、各結晶軸方向で異方性があることから四極子の異方性に起因するのではないかと考えている。

[1] T. Onimaru, et al., J. Phys. Chem. Solids 68 (2007), 2091.

[2] Y. Sato, et al., J. Phys. Soc. Jpn. 79 (2010), 093708.

F-10 四極子秩序物質 PrB₆ の多重極限環境下比熱測定

九大工^A, 九大院工^B, 広大先端^C 前場貞徳^A, 諸富大樹^B, 稲垣祐次^B, 河江達也^B, 世良正文^C

PrB₆ は約 8K 以下の低温領域で、温度、磁場、圧力、結晶方位に依存して多彩な秩序状態を示すことが、世良グループによる電気抵抗測定等の結果から明らかになっている [1][2]。常圧下では整合相と 2 種類の不整合相が温度-磁場相図に見られ、さらに両相互作用のバランスに直接関わる Pr-Pr 間距離に変化をもたらす圧力下においては、常圧下では見られない新しい正体不明の相 (A 相) も観測されている。そこで本研究では圧力下磁場中比熱測定により A 相の同定も含めた PrB₆ の物性解明を目指す。図 1 はゼロ磁場における PrB₆ の温度-圧力相図であり赤丸は我々の比熱測定の結果である。当日はより高圧の結果を加えて詳細な報告をする予定である。

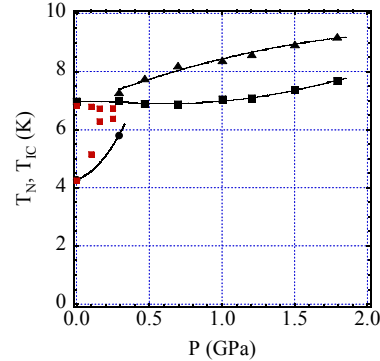


図 1 常圧下における PrB₆ の温度-圧力相図。

[1] S. Kobayashi et al. J. Phys. Soc. Jpn. 70 (2001) 1721.

[2] H. Iwakubo et al. Phys. Rev. B78 (2008) 12409.

F-11 Pr_xLa_{1-x}InAg₂ の極低温帯磁率測定

九大院工^A, 九大院理^B, 物材機構^C, 九工大院工^D 佐藤由昌^A, 牧山駿^A, 中村有花^B, 坂元康剛^A, 蓮尾斎彦^A, 稲垣祐次^A, 河江達也^A, 鈴木博之^C, 美藤正樹^D, 北井哲夫^D

近年, PrInAg₂ や PrMg₃ などの低温において非フェルミ液体的振る舞いを示す物質に興味向けられている。

我々は極低温における精密磁化測定を行うため, SQUID 磁束計用の ³He インサートを製作し, それを用いて Pr_xLa_{1-x}InAg₂ (x=1, 0.1) の帯磁率及び磁化測定を T=0.5K まで行った。x=0.1 における磁化率の温度依存性を図 1 に示す。帯磁率の温度依存性はどちらの濃度でも T=15K 以上で Γ₃ 基底の下での結晶場スキームでよく再現される。しかし一方で, 低磁場の H=0.25T において T=15K 以下では -ln T 依存性を示し, 非フェルミ液体的振る舞いを示す。また, 磁場を印加するにつれて -ln T 依存性が抑制され, H=7T において -T^{1/2} 依存性が現れた。

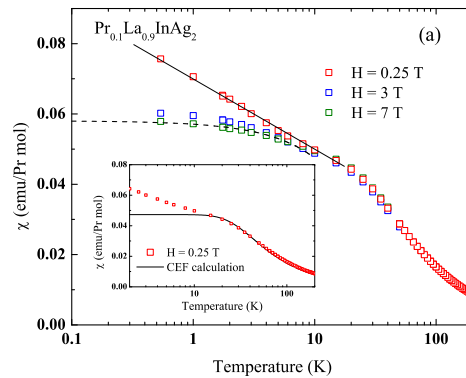


図 1. x=0.1 の帯磁率温度依存性. 挿入図は結晶場フィッティングによる計算(実線)との比較。

F-13 液体 ^4He 中における Au 原子サイズギャップ間のトンネル電流測定

九大院工^A, 金沢大教育^B 横田智彦^A, 中島尚也^A, 家永紘一郎^A, 稲垣祐次^A, 河江達也^A, 辻井宏之^B

近年、STM や MCBJ といった単原子接点の制御技術の向上により、分子架橋系に対するスピンと伝導電子の相互作用の研究が盛んに行われている。そこで我々は原子サイズギャップ間に ^4He と ^3He を介したトンネル電流測定を行うことで、 ^3He のもつスピンと伝導電子の相互作用についての探求を考案している。今回は装置作製及び予備実験として液体 ^4He 中での原子サイズギャップにおけるトンネル電流測定について報告する。原子サイズギャップ間に液体 ^4He を導入する為、下図の装置を作製した。装置は二重断熱管構造となっている。伸縮可能なペローズとピエゾ制御により、液体 ^4He を導入した内側断熱管内の試料を機械的に破断させ、原子サイズギャップを作製することが可能である (MCBJ 法)。トンネル電流測定の結果、真空環境下と比較して ^4He 由来と思われる異常が観測された。

F-14 マルチフェロイック物質 DyMnO_3 のナノスケールサイズ効果

九工大工^A, 福岡大理^B 濱本健太^A, 安藤祐規^A, 菊池雄介^A, 出口博之^A, 美藤正樹^A, 高木精志^A, 田尻恭之^B, 香野淳^B

マルチフェロイック物質 DyMnO_3 は、磁場により誘電率が大きく変化する巨大電気磁気効果で注目されている物質である。我々は DyMnO_3 のナノスケール結晶を作成し、磁性におけるサイズ効果を調べている。

図 1 は零磁場冷却における直流磁化の温度依存である。バルク試料においては $T = 5$ [K] 付近に Dy の秩序化によるピークが存在しているのに対し、ナノスケール試料においてはピークが見られず、Dy の秩序化が消失した。

この他にも交流磁化率測定、ESR 測定、直流磁化過程の測定を行った。その結果、ナノスケール試料において反強磁性転移温度の低下、磁気相互作用の変化、超常磁性による常磁性成分の増大というサイズ効果が見られた。当日は

IRM (等温残留磁化) と TRM (熱残留磁化) の磁場依存の実験結果も報告する予定である。

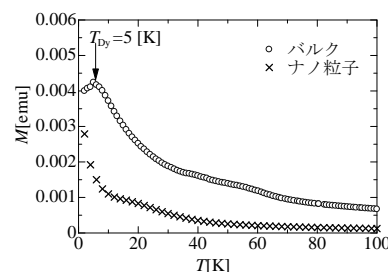


図 1 DyMnO_3 のバルクおよびナノ粒子の直流磁化の温度依存 (ZFC)

F-15 YBCO 超伝導セラミックスのカイラルガラス転移における臨界指数

九工大工^A, 京都工織大基盤科学^B, 徳島大総合科学^C 加藤康大^A, 吉田英志^A, 木太久遼^A, 出口博之^A, 美藤正樹^A, 高木精志^A, 萩原亮^B, 小山晋之^C

銅酸化物超伝導体のサブミクロンサイズのグレインの焼結体は、 0 結合と π 結合がランダムに配列したジョセフソン結合ネットワーク系とみなすことができる。この系の π 結合を奇数個含む π -リングによる超伝導ループ電流と XY スピン系のカイラリティが対応することにより、グレイン間において超伝導ループ電流の向きがランダムに凍結するカイラルガラス転移が予想されている。我々は $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ セラミックス試料についてガラス転移近傍での温度・磁場・周波数依存より静的および動的臨界指数を実験的に導出し、川村らの理論と比較検討を行った。交流磁化率測定より非線形磁化率を導出し、極大値を示す温度をカイラルガラス転移温度 T_{c2} とした。 T_{c2} の交流磁場の周波数依存を図に示す。図のように周波数依存はベキ乗則に従い、フィッティングより求められた臨界

指数 $z\nu$ の値は、6.2 となりカイラルガラスの理論値 7~8 と比較してやや小さい。他にも T_{c2} の磁場振幅依存や $I-V$ 測定より導出した抵抗率から求めた臨界指数の値についても予想される理論値との比較を行ったので報告する。

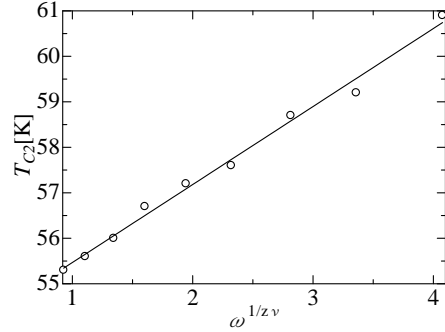


図 15 転移温度 T_{c2} の交流磁場周波数依存

F-16 30GPa を超える高圧領域での $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ の交流磁化率測定

九工大工^A 庄司和平^A, 今給黎匠^A, 長井宏輔^A, 美藤正樹^A, 出口博之^A, 高木精志^A

銅酸化物超伝導体の高圧力実験には非常に多くの研究報告がある。しかし超伝導転移を消失させるまで高圧力下での研究は、2011 年 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ における Muramatsu らの電気抵抗測定が初めてであった。彼らは 29 GPa まで圧力をかけ 25 GPa 付近で超伝導体から半導体的になったと報告している¹。我々は同様の研究を磁気測定の側面から実施しており、その途中経過を報告する。具体的には SQUID 磁束計 MPMS (Quantum Design 社製) と超小型 DAC (ダイヤモンドアンビルセル) を組み合わせた交流磁化率測定でマイスナー効果を追跡した。図 1 に各圧力下での交流磁化率の温度依存性を示す。今のところわずかな超伝導転移の減少が見られているだけである。

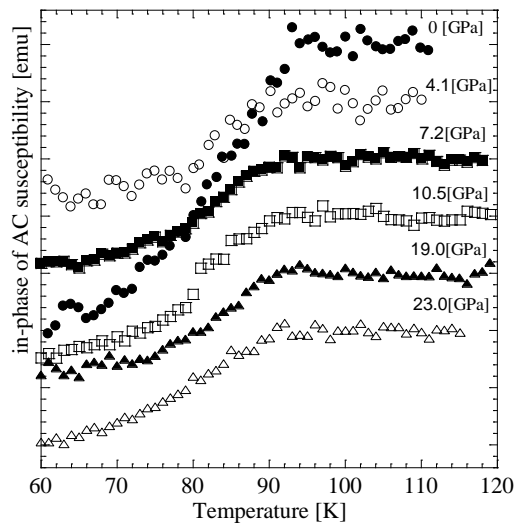


図 16 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ の高圧力下における交流磁化率の温度依存性

¹T. Muramatsu, D. Pham, and C. W. Chu, Appl. Phys. Lett. **99**, 052508 (2011)

F-17 銅酸化物超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ の高圧力下交流磁化率測定

九工大工^A, 物材機構^B, 名大院エネルギー理工^C, 東北大金研^D 今給黎匠^A, 長井宏輔^A, 庄司和平^A, 美藤正樹^A, 出口博之^A, 高野義彦^B, 吉田隆^C, 淡路智^D, 松本要^A

銅酸化物超伝導体の転移温度 T_c は、 CuO_2 面が積層構造を有していることから異方的な圧力効果が期待される。しかし、これまで行われてきた圧力実験のほとんどが静水圧力実験で、一軸圧力の中でもポアソン効果を許容しない一軸圧縮実験は未だ行われていない。J. J. Scholtz らは $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ 多結晶試料に対して静水圧力実験を行い、そこでの T_c の上昇率は 5.5 [K/GPa] であったと報告している¹。そこで今回、我々はより大きな上昇率を期待し $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ 単結晶試料を用いて、 c 軸に対して平行または垂直方向に圧縮させた一軸圧縮実験を行った。図1は、 c 軸に対して垂直に圧縮させた際の結果である。荷重値はピストンシリンダー型クランプセル

に加えた荷重をロードセルで読みとったものである。約 1.5 [GPa] までの領域で T_c の上昇率は 5.5 [K/GPa] を上回る 6.4 [K/GPa] を得た。

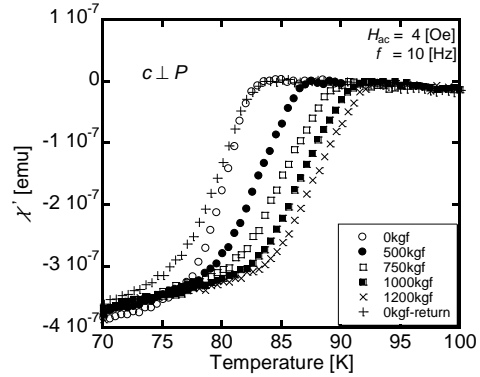


図1 $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ の各荷重における交流磁化率 χ' の温度依存性

¹J. J. Scholtz *et al.*, *Phy. Rev. B.* **45** (1992) 3077.

F-18 YBCO 超伝導セラミックスのカイラルガラス相におけるメモリ効果

九工大工^A, 京都工繊大基盤科学^B, 徳島大総合科学^C 芦田拓弥^A, 首藤充弘^A, 佐々木悠太^A, 出口博之^A, 美藤正樹^A, 高木精志^A, 萩原亮^B, 小山晋之^C

銅酸化物超伝導体のサブミクロンサイズのグレインの焼結体は、 σ 結合と π 結合がランダムに配列したジョセフソン結合ネットワーク系とみなすことができる。このようなセラミクスでは、グレイン内超伝導転移、グレイン間ガラス転移の2段階の相転移をすると予想されている。我々は $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ セラミクス試料について磁気測定を行い、グレイン間のカイラルガラス転移について調べている。今回、我々の試料がガラス相を形成していることを確認するため、スピングラス磁性体のスピングラス相で観測される磁気メモリ効果が YBCO 超伝導セラミックスのカイラルガラス相において観測されるか検証を行った。図1に ZFC 磁化、TRM 磁化のメモリ

効果の測定結果を示す。両者ともガラス転移温度 T_{c2} より低温の冷却時に停止した温度 T_s 付近で磁化に変化が現れ、メモリ効果が観測された。

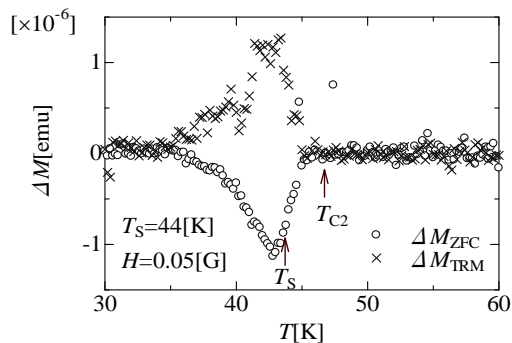


図1. TRM, ZFC 磁化のメモリ効果測定