

令和 3 年 6 月 11 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03537

研究課題名(和文) 重い電子系物質の強磁場物性と微視的電子状態

研究課題名(英文) Physical Properties at high magnetic fields and electronic states in heavy fermion system

研究代表者

海老原 孝雄 (Ebihara, Takao)

静岡大学・理学部・准教授

研究者番号：20273162

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：新奇な超伝導状態や非フェルミ液体状態などの特異な物性が発現する、量子臨界点の近傍に位置する非磁性の重い電子系物質では、磁場中でメタ磁性を示す場合があり、その発現メカニズムは、新奇超伝導などの特異物性の発現メカニズムと密接に関係すると考えられている。このメタ磁性メカニズムを解明することは、基礎科学的側面からも新たな超伝導開発といった工学的側面からも重要である。本研究での大きな成果は、強磁場中の比熱測定によって電子比熱係数の磁場依存性を明らかにし、熱力学的な基本式であるマックスウェル関係式によってよく理解できることを示すことで、メタ磁性メカニズムを明らかにするための基礎的な情報を得たことである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>の高純度試料を得ることに成功し、磁場中の比熱測定を通じて電子比熱係数が磁場依存性を持つことを明らかにした。電子比熱係数は、14テスラまで単調増大傾向を示す磁場依存性をもち、電子比熱係数と磁化率の磁場依存性を結ぶマックスウェルの関係式と呼ばれる熱力学的関係式でよく説明ができることが明らかになった。この結果、メタ磁性転移磁場である40テスラ近傍で比熱測定を行うための基礎的な情報が得られ、新奇超伝導体のメカニズム解明にもつながると期待される、非磁性の重い電子系におけるメタ磁性メカニズム解明への足掛かりを得た。

研究成果の概要(英文)：Exotic properties like unconventional superconductivity or non-Fermi-liquid state appear near the quantum critical point (QCP) at which the RKK and the Kondo interactions balance. Some non-magnetic heavy fermion system near QCP shows metamagnetism whose mechanism may relate the mechanism emerging unconventional superconductivity. Thus, it is worth to clarify the mechanism of metamagnetism in non-magnetic heavy fermion system and determine the electronic states at metamagnetism.

We observed temperature dependence of magnetic susceptibility and the low temperature specific heat at high magnetic field in high quality single crystal of YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>. The magnetic field dependence of Sommerfeld coefficient shows monotonical increase as magnetic field increases up to 14 T, which corresponds to the field dependence of magnetic susceptibility. The relation between field dependences of Sommerfeld coefficient and magnetic susceptibility is well explained by the thermodynamic Maxwell's relation.

研究分野：強相関電子物性

キーワード：重い電子系 強相関電子系 メタ磁性

### 1. 研究開始当初の背景

Ce あるいは Yb 元素を含む重い電子系物質では、4f 電子と伝導電子の相関に起因する近藤効果と磁気秩序が競合している。両相関の安定化温度がほぼ一致する量子臨界点では、量子力学的揺らぎが発達し、新奇な超伝導状態や非フェルミ液体状態などの特異な物性が発現する。量子臨界点の近傍に位置する非磁性の重い電子系物質では、磁場中でメタ磁性を示す場合があり、その発現メカニズムは、新奇超伝導などの特異物性の発現メカニズムと密接に関係すると考えられている一方で、メタ磁性メカニズムの詳細についてはまだ不明な点も多い。非磁性の重い電子系におけるメタ磁性は量子臨界性と密接に関わっているため、量子臨界点近傍で現れる様々な異常物性のトリガーとなる。非磁性の重い電子系物質におけるメタ磁性と超伝導発現との関連性は興味深く、メタ磁性近傍での磁化率や比熱などの諸物性の測定を通じて電子状態を研究することでその関連性を明らかにできるため、本研究のような研究が待たれていた。

### 2. 研究の目的

本研究では、非磁性の重い電子系物質におけるメタ磁性メカニズムを解明するため、非磁性の重い電子系物質  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$ 、 $\text{YbNi}_2\text{Ge}_2$ 、 $\text{CeFe}_2\text{Ge}_2$ 、 $\text{YbFe}_2\text{Ge}_2$  の結晶純良化と、これらの物質におけるメタ磁性近傍での磁場による微視的電子状態の変化を観測することを目的とした。

### 3. 研究の方法

本研究の期間では、上述の4種類の物質における高純度試料の合成を行なった。Ce系は融体引き上げ法の後にアニール法を用い、Yb系についてはフラックス法を主として用いた。その中でインジウム・フラックス法によって、早い段階に高純度試料が得られた  $\text{YbNi}_2\text{Ge}_2$  について、上限磁場7テスラの範囲内で温度領域0.5 Kから100 Kでの磁化・磁化率測定を行うとともに、上限磁場14テスラの範囲内で温度領域0.5 Kから10 Kでの比熱測定を行った。

### 4. 研究成果

本研究期間において、以下の二つの成果を挙げる事ができた。

- 1) インジウム・フラックス法により薄板状の  $\text{YbNi}_2\text{Ge}_2$  高純度試料を得ることに成功した。この試料を用いて、上限磁場が7 Tまでの範囲で温度2 Kにおいて磁化測定を行い、図1に示すように、異方性はあるものの単調増加する傾向が再現されることを確認した[1]。

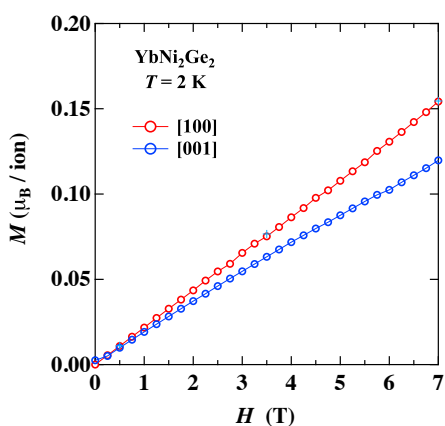


図1  $\text{YbNi}_2\text{Ge}_2$  の 2 K での磁化

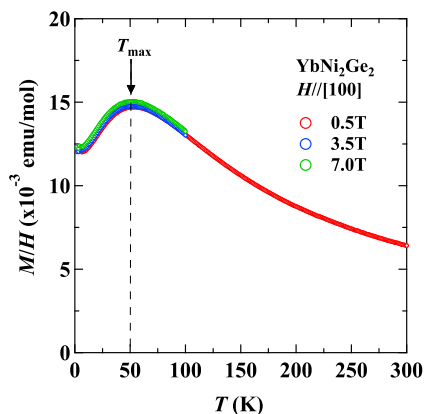


図2 磁化率の磁場依存性

図2に磁化率の磁場依存性を示す。50 K付近に見えるピークを $T_{\max}$ と定義し、各磁場での $T_{\max}$ を $M/H$ の $T$ での一回微分を取ることによって詳細に決定したところ、わずかではあるが低温にシフトしていることを明らかにすることができた。

図3(a)に比熱の磁場依存性を示す。磁場の上昇とともに、電子比熱係数 $\gamma$ を示す縦軸切片の位置が上方に移動していることがわかる。図3(b)には $\gamma$ の磁場依存性を示した。YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>の電子比熱係数は、0テスラでの127mJ/K<sup>2</sup>molから14テスラでの137 mJ/K<sup>2</sup>molまで、単調に増大する傾向の磁場依存性をもつことを明らかにできた。このような電子比熱係数の磁場依存性は、遍歴性の比較的高い5f電子を持ち超伝導やメタ磁性を示すUTe<sub>2</sub>においても見出されており、電子比熱係数と磁化率の磁場依存性を結ぶマックスウェルの関係式と呼ばれる熱力学的関係式  $(\partial\gamma/\partial H)_T = (\partial^2 M/\partial T^2)_H$  によく説明ができることが明らかになっている[2]。UTe<sub>2</sub>においてもメタ磁性より充分低い磁場では、磁場増大にともなって電子比熱係数は単調に増大する。

本研究を行った磁場は、YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>のメタ磁性転移磁場である40テスラの三分の一程度であるが、パラ磁性体(非磁性)でありながらメタ磁性を示すUTe<sub>2</sub>においても、メタ磁性転移磁場の三分の一程度の磁場で同様の振る舞いを示すことから、両物質のメタ磁性メカニズムが通底している可能性を示唆している。このため、YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>で観測された電子比熱係数が磁場依存性を示すメカニズムについて、より強磁場を用いた比熱測定を推進する必要性が生じた。この点について、近年、パルス磁石やハイブリッド磁石を用いた比熱測定が可能になりつつあり、CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>、YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>、CeFe<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>、YbFe<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>におけるメタ磁性近傍での電子状態の研究を、比熱測定的面から推進しうる環境が整いつつある。

以上のように、本研究では、非磁性の重い電子系における電子状態研究にさらなる発展をもたらす礎となる研究成果を上げることができた。

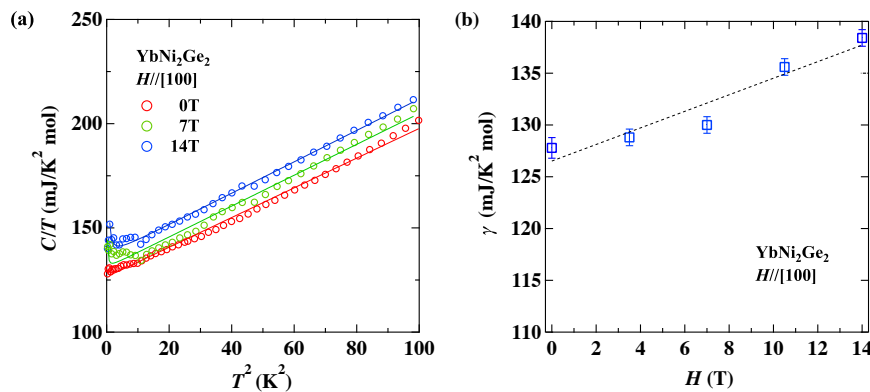


図3 (a)比熱の磁場依存性 と(b)電子比熱係数の磁場依存性

- 2) 先述した CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>、YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>、CeFe<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>、YbFe<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の4種類の試料のうち、CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> 試料は固相電解法による純良化で、残留抵抗値が $\rho_{\parallel c\text{-axis}}$  3~4  $\mu\Omega$  cm 程度 $\rho_{\perp c\text{-axis}}$  1~2  $\mu\Omega$  cm 程度の世界最高レベルの純度に達する試料を手に入れることに成功した。固相電解法を CeFe<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> にも適用して、今後更なる純良化を図ることにした。

[1] PHYSICAL REVIEW B **96**, 085127 (2017)

[2] Journal of the Physical Society of Japan **88**, 063706 (2019)

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 1件）

1. 著者名 Jatmika Jumaeda, Ebihara Takao, Miyake Atsushi, Tokunaga Masashi	4. 巻 30
2. 論文標題 Physical Properties of YbNi <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> at High Magnetic Fields	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 011118-1 -6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSCP.30.011118	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Aratani H., Nakatani Y., Fujiwara H., Kawada M., Kanai Y., Yamagami K., Fujioka S., Hamamoto S., Kuga K., Kiss T., Yamasaki A., Higashiya A., Kadono T., Imada S., Tanaka A., Tamasaku K., Yabashi M., Ishikawa T., Yasui A., Saitoh Y., Narumi Y., Kindo K., Ebihara T., Sekiyama A.	4. 巻 98
2. 論文標題 Revising the 4f symmetry in CeCu <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> : Soft x-ray absorption and hard x-ray photoemission spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 12113(R)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.98.121113	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8件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Jumaeda Jatmika, Takao Ebihara, Atsushi Miyake, Masashi Tokunaga
2. 発表標題 Physical Properties of YbNi <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> at high magnetic fields
3. 学会等名 International conference on strongly correlated electron system（国際学会）
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 筒井智嗣, 金子耕士, 海老原孝雄
2. 発表標題 RA12(R: 希土類)のX線非弾性散乱
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 小泉昭久, 片山大地, Jumaeda Jatmica, 松本紳, 時井真紀, 小林寿夫, 辻成希, 筒井智嗣, 海老原孝雄
2. 発表標題 コンプトン散乱測定による重い電子系化合物CeIn <sub>3</sub> の反強磁性相における電子構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 藤原秀紀, 近藤佑宥, 瀧本諭, 川田萌樹, 荒谷秀和, 中谷泰博, 中田惟奈, 久我健太郎, 木須孝幸, 山崎篤志, 東谷篤志, 門野利治, 今田真, 田中新, 玉作賢治, 矢橋牧名, 石川哲也, 保井晃, 斎藤祐児, 海老原孝雄, 関山明
2. 発表標題 直線偏光制御硬X線角度分解内殻光電子分光による正方晶強相関Ce化合物の4f基底状態対称性の研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 片山大地, Jumaeda Jatmica, 海老原孝雄, 松本紳, 時井真紀, 小林寿夫, 辻成希, 小泉昭久
2. 発表標題 コンプトン散乱測定による重い電子系化合物CeIn <sub>3</sub> の電子構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 Chao Dong, 今城周作, 小濱芳允, 松尾晶, 金道浩一, 海老原孝雄
2. 発表標題 CeCu <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> の強磁場比熱
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 櫻内利幸, 金井惟奈, 濱本諭, 藤原秀紀, 久我健太郎, 木須孝幸, 東谷篤志, 山崎篤志, 今田真, 田中新, 玉作賢治, 矢橋牧名, 石川哲也, 海老原孝雄, 関山明
2. 発表標題 角度分解内殻光電子線二色性による価数揺動物質YbNi <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> の4f基底状態対称性の決定
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2018年～2019年

1. 発表者名 金井惟奈, 濱本諭, 高野彩佳, 藤原秀紀, 木須孝幸, 田中新, 玉作賢治, 矢橋牧名, 石川哲也, 久我健太郎, 東谷篤志, 門野利治, 今田真, 海老原孝雄, 関山明
2. 発表標題 内殻光電子スペクトル線二色性による立方晶CeAl <sub>2</sub> における4f基底 - 励起状態対称性の観測
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2018年～2019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	松田 康弘 (Matsuda Yasuhiro)  (10292757)	東京大学・物性研究所・准教授  (12601)	
研究分担者	関山 明 (Sekiyama Akira)  (40294160)	大阪大学・基礎工学研究科・教授  (14401)	
研究分担者	徳永 将史 (Tokunaga Masashi)  (50300885)	東京大学・物性研究所・准教授  (12601)	

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			
米国	National High Magnetic Field Laboratory			