

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601  
 研究種目：若手研究(B)  
 研究期間：2010～2011  
 課題番号：22740217  
 研究課題名（和文）圧力・磁場誘起秩序相を示す重い電子系イッテルビウム化合物の物性研究  
 研究課題名（英文）Pressure and magnetic field induced quantum criticality in Yb-based heavy fermion compounds  
 研究代表者  
 松林 和幸（MATSUBAYASHI KAZUYUKI）  
 東京大学・物性研究所・助教  
 研究者番号：10451890

研究成果の概要（和文）：200 文字

本研究では圧力誘起磁気秩序を示す重い電子系イッテルビウム化合物に焦点を絞り、高圧や磁場印加で誘起される磁気秩序相の磁気的な性質やその量子臨界性に着目した研究を行った。新たに開発した高圧下・磁場中比熱用圧力セルを用いて、圧力誘起磁気秩序を示す YbCo<sub>2</sub>Zn<sub>20</sub> の圧力・温度・磁場相図を得ることに成功した。また価数揺動物質 YbNi<sub>3</sub>Ga<sub>9</sub> に対しては約 9 GPa において圧力誘起強磁性秩序を示すことを発見した。

研究成果の概要（英文）：

In recent years, one of the most interesting topics is the ground state properties of heavy fermion metals located at or close to a quantum critical point (QCP). To obtain the new insights on the quantum critical behavior in Yb-based heavy fermion systems under pressure and magnetic field, we have developed new type of high pressure cell. Combined pressure- and magnetic-field-tuned specific heat measurements reveal a novel phase diagram in YbCo<sub>2</sub>Zn<sub>20</sub>. We also found the pressure-induced ferromagnetic order in YbNi<sub>3</sub>Ga<sub>9</sub>.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2011 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

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：重い電子系、量子臨界現象、圧力、磁場、低温、磁性

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系化合物の研究において、圧力や磁場をコントロールパラメータとした多重極限環境は磁気秩序や超伝導の発現・消失を誘起するなど、バラエティーに富む数奇な物性現象の舞台となっている。重い電子系における高圧力を用いた量子臨界現象の研究

の多くはセリウム系化合物を中心として展開されてきたが、セリウムと電子・ホール対称性を持つイッテルビウム(Yb) (3 価のセリウムは 4f 軌道に電子が 1 つあるのに対して、3 価のイッテルビウムでは 4f 軌道に 1 つのホールを有する電子配置をとる)を含む化合物との比較は大変興味深い。イッテルビウム

系化合物に対する圧力効果は磁気的な電子状態を安定化させるように働くため、重い電子状態の形成による非磁性基底状態を示す物質に対しては圧力によって磁気秩序相が誘起されることが期待される。しかし、多くのイッテルビウム化合物では、セリウム化合物と比較して純良な試料を得ることが難しいことや、圧力誘起磁気秩序を示す臨界圧力が高いといった実験的困難さのため、その本質は未解明である。

## 2. 研究の目的

最近、我々は  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  が約 1.5 GPa で圧力誘起磁気秩序を示すことを初めて見いだした。この臨界圧力はこれまで知られている圧力誘起磁気秩序を示す Yb 系物質の中で最も小さく、格好の研究対象物質であると言える。さらに最近の研究結果によれば、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  はわずか 0.6 T でメタ磁性を示すことが報告されている。従って、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  は常圧・ゼロ磁場において圧力・磁場といった外場で制御される相転移およびクロスオーバーを示す臨界領域近傍に位置するという点でとてもユニークである。本研究では  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  における詳細な磁場-温度-圧力相図を得ること、さらに熱力学的な温度依存性を観測することによりその量子臨界現象に関して新たな知見を得ることを目的として研究を行った。

また、Yb 系における圧力誘起磁気秩序を示す物質例はそれほど多くないことから、Yb 系の新物質に対して 10 GPa 級の高圧力までの物性測定を行うことで、圧力誘起相転移を示す新規物質の開拓を目指した。

## 3. 研究の方法

### (1) 銀系新材料を用いた高圧下・磁場中比熱測定装置の開発

$\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  において高圧下で誘起される反強磁性転移と磁場中におけるメタ磁性の関係性を明らかにするために、高圧下かつ磁場中での測定が可能な比熱装置の開発に取り組んだ。従来の断熱法による高圧下比熱測定を磁場中測定へと拡張しようとした場合の問題点としては、銅ベリリウム製の圧力セルによる核比熱が大きなバックグラウンドとして寄与することであった。そこで核比熱の寄与が小さく、圧力セルの材料としても十分な強度がある銀-パラジウム合金に着目し、圧力セルと測定装置の開発に取り組んだ。その結果、本研究の対象物質である  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  の圧力誘起磁気秩序を観測するのに十分な実験精度の構築に成功した(最高発生圧

力:1.6 GPa, 測定最低温度:100 mK, 外部磁場:3 T)

### (2) 小型キュービックアンビルセルを用いた多重極限環境下での物性測定法の開発

10 GPa 級の超高压領域における極低温域での精密物性測定を行うために、高い静水圧性を有するキュービックアンビルセルの改良に取り組んだ。従来型の装置の長所である大きな試料空間と高い静水圧性を損なうことなく小型化に成功し、液体  $^3\text{He}$  冷凍機との組み合わせることで 0.45 K までの冷却が可能となった。さらに最低温度付近に長時間保持可能な循環運転にも成功した。また、測定方法に関しては、交流法比熱や交流磁化率測定をより高精度に測定できる実験環境・手法を確立した。

## 4. 研究成果

### (1) $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ における圧力誘起反強磁性とメタ磁性クロスオーバー

従来の電気抵抗測定に加えて高圧下における比熱・交流磁化率・中性子散乱実験を行ったことで、圧力誘起磁気秩序が反強磁性秩序相であることを実験的に明らかにした。Yb 系の圧力誘起磁気秩序を示す系に対して、高圧下において磁気ブラッグピークの観測に成功したのは本研究が初めてである。また、新たに開発に成功した高圧下・磁場中比熱測定からは、メタ磁性クロスオーバーを示す臨界磁場が加圧とともに低磁場へとシフトすることを見だし、圧力・温度・磁場の 3 次元相図の作成に成功した。磁場中における比熱の温度依存の解析の結果、メタ磁性を示す臨界磁場近傍では比熱が  $C/T \propto -\ln T$  よりも強い発散傾向を示すことを見いだした。今後はより詳細な解析や理論モデルとの比較を行うことで、非従来型の量子臨界状態として新たな展開が期待される。

### (2) $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$ における圧力誘起強磁性

新たに研究を着手した物質系として、 $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  および  $\text{YbNi}_3\text{Ga}_9$  の純良単結晶試料における高圧下物性測定にも取り組んだ。前者においてはその磁気転移温度が加圧によって減少するというイッテルビウム系では例の少ない現象を、後者では約 9 GPa 以上の高圧域において圧力誘起強磁性秩序相を発見した。 $\text{YbNi}_3\text{Ga}_9$  における高圧下交流磁化率測定からは、臨界圧力近傍における 2 相共存的な振る舞いが観測され、圧力誘起強磁性秩序は 1 次転移的に出現することを指摘した。

## 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 17 件)

1. R. Yamanaka, K. Matsubayashi, Y. Saiga, T. Kawae, Y. Uwatoko  
“ Heat Capacity Measurement of Heavy Fermion  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  under Magnetic Field ”  
accepted in J. Phys. : Conf. Ser. (2012) (査読あり)
2. T. Hirayama, K. Matsubayashi, T. Yamashita, S. Ohara, K. Munakata, Y. Uwatoko  
“ Pressure-induced Suppression of the Antiferromagnetic Transition in  $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  Single Crystal ”  
accepted in J. Phys. : Conf. Ser. (2012) (査読あり)
3. T. Mito, T. Koyama, K. Nakagawara, T. Ishida, K. Ueda, T. Kohara, K. Matsubayashi, Y. Saiga, K. Munakata, Y. Uwatoko, M. Mizumaki, N. Kawamura, B. Idzikowski, and M. Reiffers  
“ Mechanism of Field Induced Fermi Liquid State in Yb-Based Heavy-Fermion Compound: X-ray Absorption Spectroscopy and Nuclear Magnetic Resonance Studies of  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  ”  
J. Phys. Soc. Jpn. **81** 033706 (2012) (査読あり)
4. K. Matsubayashi, K. Munakata, M. Isobe, N. Katayama, K. Ohgushi, Y. Ueda, N. Kawamura, M. Mizumaki, N. Ishimatsu, M. Hedo, I. Umehara, and Y. Uwatoko  
“ Pressure-induced changes in the magnetic and valence state of  $\text{EuFe}_2\text{As}_2$  ”  
Phys. Rev. B **106** 024502 (2011) (査読あり)
5. K. Matsubayashi, Y. Saiga, T. Matsumoto, Y. Uwatoko  
“ Pressure-induced variation of Kondo behavior on the heavy fermion compounds  $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$  (T = Co, Rh, Ir) ”  
J. Phys. : Conf. Ser. **200** 012112 (2010) (査読あり)
6. K. Matsubayashi, M. Hedo, I. Umehara, N. Katayama, K. Ohgushi, A. Yamada, K. Munakata, T. Matsumoto, Y. Uwatoko  
“ High-Pressure Ac Specific Heat Technique with Cubic Anvil Apparatus ”  
J. Phys. : Conf. Ser. **215** 012187 (2010) (査読あり)
7. T. Mito, T. Koyama, K. Nakagawara, T. Ishida, K. Ueda, T. Kohara, K.

Matsubayashi, Y. Saiga, K. Munakata, Y. Uwatoko, M. Mizumaki, N. Kawamura  
“ Magnetic Field Effect on Yb-Based Heavy Fermions near Magnetic-Nonmagnetic Transition ”  
Acta Physica Polonica A **118** 870 (2010) (査読あり)

[学会発表] (計 20 件)

1. 平山貴士, 松林和幸, 山下哲郎, 大原繁男, 上床美也 “ 価数揺動物質  $\text{YbNi}_3\text{Ga}_9$  における圧力誘起強磁性 ” 日本物理学会第 67 回年次大会 2012 年 3 月 27 日 関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス
2. 山中里奈, 松林和幸, 上床美也, 河江達也 “ 重い電子系物質  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  の圧力下・磁場中における量子臨界性 ” 日本物理学会第 67 回年次大会 2012 年 3 月 27 日 関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス
3. K. Matsubayashi “ Pressure-and Magnetic Field-induced Quantum Critical Phenomena in Yb-based Heavy Fermion Compounds ” International workshop on heavy fermions : TOKIMEKI 2011 2011 年 11 月 23 日 大阪大学
4. 松林和幸, 山中里奈, 才賀裕太, 河江達也, 上床美也 “ 重い電子系物質  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  における圧力・磁場中相図 ” 日本物理学会 2011 年秋季大会 2011 年 9 月 23 日 富山大学五福キャンパス
5. T. Hirayama, K. Matsubayashi, T. Yamashita, S. Ohara, K. Munakata, Y. Uwatoko “ Pressure-induced Suppression of the Antiferromagnetic Transition in  $\text{YbNi}_3\text{Al}_9$  Single Crystal ” Strongly Correlated Electron Systems Conference 2011 年 8 月 30 日 Cambridge UK
6. K. Matsubayashi, R. Yamanaka, H. S. Suzuki, K. Munakata, Y. Uwatoko “ Low Temperature Properties of a Low Carrier Heavy Fermion  $\text{YbPtSb}$  ” Strongly Correlated Electron Systems Conference 2011 年 8 月 31 日 Cambridge UK
7. R. Yamanaka, K. Matsubayashi, Y. Saiga, T. Kawae, Y. Uwatoko “ Heat Capacity Measurement of Heavy Fermion  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  under Magnetic Field ” Strongly Correlated Electron Systems Conference 2011 年 9 月 2 日 Cambridge UK

8. 山中里奈、松林和幸、上床美也、河江達也 “ 銀系新材料を用いた高圧・磁場中比熱測定装置の開発 ” 第 51 回 高圧討論会 2010 年 10 月 20 日 仙台市戦災復興記念館

9. 松林和幸 “ High Pressure and Magnetic Field Effect on Heavy Fermion Compound  $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$  ” 重い電子系国際会議 (ICHE2010) 2010 年 9 月 19 日 首都大学東京

10. 松林和幸 “  $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$  (T=Co, Rh, Ir) における圧力下物性 ” 新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ～希薄 f 電子格子系の新しい秩序～ 2010 年 8 月 2 日高知大学

[図書] (計 1 件)

1. 松林和幸, 松本武彦, 上床美也, 辺土正人 “ 静水圧下の低温物性測定技術 ” 日本物理学会誌, **66** 423-429 (2011) (査読あり)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

松林 和幸 (MATSUBAYASHI KAZUYUKI)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号 : 10451890

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号 :

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号 :