

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25400375

研究課題名 (和文) フラストレーションによって誘起された4fホール系の圧力下量子臨界現象

研究課題名 (英文) Quantum critical behaviors induced by a magnetic frustration in 4f hole systems under pressures

研究代表者

梅尾 和則 (Umeo, Kazunori)

広島大学・自然科学研究支援開発センター・准教授

研究者番号：10223596

交付決定額 (研究期間全体) : (直接経費) 3,800,000 円

研究成果の概要 (和文) : これまでに開発してきた交流法熱量計を改良し、10GPaまでの比熱の絶対値測定可能な熱量計を開発した。

擬カゴメ格子系YbAgGeの磁気転移温度は、AgをAuで部分置換すると近藤温度が上昇するにも拘らず、磁気転移温度は上昇した。これらのことは、Auで置換することによる局所格子歪によって磁気フラストレーションが部分的に緩和したことを示唆する。また、 $T_N=4.2$ Kで反強磁性転移する三角格子系YbCuGeにおいて、三角格子が変形するa軸方向に0.15 GPaまで加圧した場合、 T_N は4.5 Kまで上昇した。この結果は常圧下で既に磁気フラストレーションによって T_N が抑制されていることを示唆する。

研究成果の概要 (英文) : We developed a low-temperature AC calorimeter for measuring the absolute value of specific heat under pressures up to 10 GPa.

In YbAgGe, Yb atoms form a quasi-kagome lattice in the hexagonal c-plane. With increasing x of YbAg_{1-x}Au_xGe, We found that the magnetic ordering temperature at 0.8 K increases up to 1.3 K for x = 0.11, while the Kondo temperature rises. These observations suggest that the magnetic frustration in the Yb sublattice is released by the atomic disorder in the nonmagnetic Ag-Ge sublattice. We have investigated the uniaxial and hydrostatic pressure effects on the antiferromagnetic order at $T_N=4.2$ K of YbCuGe with a triangular lattice of Yb ions. For P//a up to 0.17 GPa, where the Yb triangular lattice is distorted, the T_N increases up to 4.5 K. These contrasting responses indicate that the distortion under P//a releases the magnetic frustration and stabilizes the antiferromagnetic order in YbCuGe.

研究分野：低温高压物性

キーワード：高圧力 量子臨界現象 4fホール系 フラストレーション

1. 研究開始当初の背景

CeやYbを含む化合物では、RKKY相互作用と近藤効果が競合しているため、加圧によってそれらの競合状態を制御すれば、ある圧力で量子臨界点 (QCP) が出現する。QCPでは、低エネルギーの量子スピン揺らぎ、あるいは価数揺らぎが顕著となり、非フェルミ液体的挙動などの特異な物性が出現する。しかし、Ybの4f電子はCeに比べ局在性が強いので、Yb系とCe系の圧力効果は4f¹ホールと4f¹電子の対称性から期待される単純な鏡像関係にはならず、Yb系では、第二のQCP (P_{C2}) の出現が予測されていた。

また近年、三角格子やカゴメ格子等をもつ化合物の幾何学的フラストレーションに起因した特異な物性が盛んに研究されている。しかし、第二QCPの出現とフラストレーションの関連を明らかにした実験的証拠は未だ無い。

我々はf電子系金属間化合物におけるフラストレーションの影響を調べるため、擬カゴメ格子構造をもつYbAgGeの磁性を研究してきた。我々はこの化合物が常圧下で二段の磁気転移をT_{M1}=0.8 KとT_{M2}=0.65 Kで示すことを初めて報告した。さらに、中性子回折実験から、T_{M1}以下の磁気構造はフラストレーション効果から期待されるノンコリニャーナ120度構造であることを見出した。近藤温度が20 Kと比較的高く、常圧下での基底状態は量子臨界点 (P_{C1}) 近傍にある。最近、我々は第二のQCPがP_{C2}=16 GPa付近にあることを見出した。興味あることに、多くのCe系圧力誘起超伝導体と同様に残留抵抗がP_{C2}近傍で増大する。したがって、Yb系でもP_{C2}近傍の極低温で圧力誘起超伝導の出現が期待できる。

2. 研究の目的

本研究では、Yb化合物の磁気フラストレーションを圧力によって制御し、その際出現する量子臨界点での超伝導や非フェルミ液体的挙動を探索し、それらに対する磁気フラストレーションの影響を明確にすることを目的とする。このために、実験の圧力上限を20 GPaまで引き上げるだけでなく、一軸圧の精密な制御によって、磁気秩序相から非磁性相の広範囲にわたる領域を調べる。

3. 研究の方法

超高压下での超伝導探索のために、電気抵抗と比熱を圧力20 GPa、温度0.1 Kまで測定する。電気抵抗測定の圧力上限を20 GPaに上げるため、焼結ダイヤモンド製のアンビルを新たに用いた。比熱測定の圧力上限を引き上げるため、既存の交流法熱量計を改良した。

一軸圧誘起の量子臨界現象を調べるため、一軸圧力下における比熱と磁化を測定する。比熱測定には既設の交流法熱量計を用いた。磁化測定には既設のSQUID磁束計 (MPMS) を用いた。

4. 研究成果

(1) 比熱測定では、これまでに開発してきた

交流法熱量計をより高压下で測定できるように改良した。図1に試料部分の断面を模式的に示す。試料は圧力媒体として用いたIn (4.79 mg)に包まれている。今回はテストのため、Pb (3.31 mg)を試料とした。それらを厚さ0.05 mmのCu-Be板 (6.27 mg)で上下から包み込むように挟んだ。温度計とヒーターのチップ抵抗は加圧領域の外に出ているCu-Be板にワニスで張り付けた。試料部とアンビルとの熱的絶縁にはダイヤモンド粉末 (粒度1/4ミクロン)を用いた。アンビルの先端には深さ0.4 mmの窪みを付け、高压下で試料がはみ出るのを防いだ。

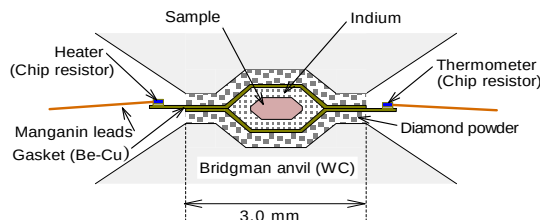


図1 交流法熱量計の試料部の断面図

図2に8.5tonまでの荷重を加えて測定したPb、Inとガスケットの比熱の温度変化を示す。常圧下では、7.2 Kと3.4 KにそれぞれPbとInの超伝導転移に起因した比熱の明瞭な跳びが観測された。加圧にともない、それらの比熱異常は低温側にシフトした。内挿図に示すようにPbの超伝導転移温度から見積もった発生圧力は、8.5tonの荷重で9.0 GPaであった。

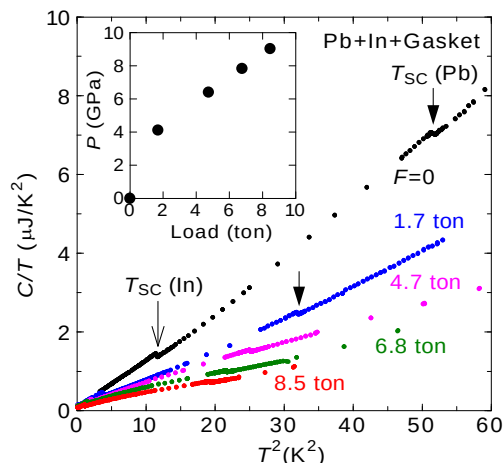


図2 圧力下におけるPbとInの比熱の温度変化

(2) YbAgGeの磁気フラストレーションの有無を確かめるため、Yb(Ag_{1-x}Au_x)Ge (x ≤ 0.11)の単結晶試料を作製し、その電気抵抗、磁化、比熱を測定した。その結果を図3と4に示す。図3(b)の内挿図に示すように、xを0.11まで増すと近藤温度が上昇するにも拘らず、図3(a)に示すように磁気転移温度は1.3 Kまで上昇した。さらに、図4に示すように、常磁性キュリー温度θ_pと磁気転移温度T_Mとの比|θ_p|/T_Mはxとともに低下した。これらのこと

は、AgをAuで置換することによる局所格子歪によって磁気フラストレーションが部分的に緩和したことを強く示唆する。

(3) 関連するYb化合物の研究として、 $T_N=4.2$ Kで反強磁性転移する三角格子系YbCuGeの磁気フラストレーション効果の影響を探るため、1.5 GPaまでの静水圧下および、0.15 GPa

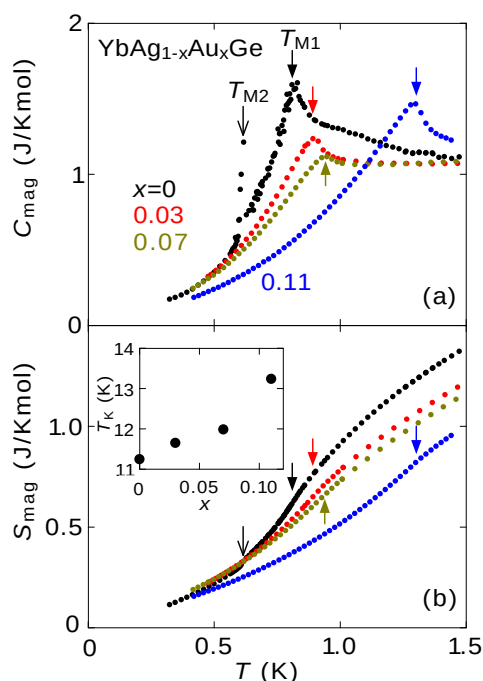


図 3. YbAg_{1-x}Au_xGe の比熱と磁気エントロピーの温度変化。内挿図は近藤温度 T_K の x 依存性

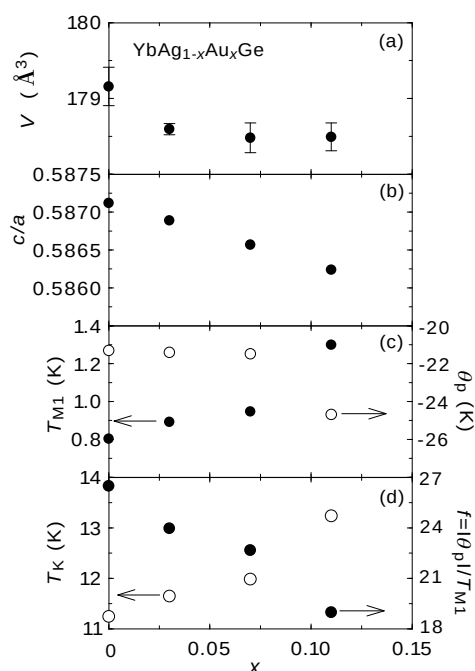


図 4. YbAg_{1-x}Au_xGe の単位胞体積，軸比， T_{M1} ， θ_p ，フラストレーションパラメータ $|\theta_p|/T_M$ ， T_K の x 依存性

までの一軸圧力下磁化測定を行った。その結果、静水圧下および三角格子が歪まない六方晶のc軸方向に加圧した場合では、 T_N は全く変化しなかったが、三角格子が変形するa軸方向に0.15 GPaまで加圧した場合、 T_N は4.5 Kまで上昇した。この結果は常圧下で既に磁気フラストレーションによって T_N が抑制されていることを強く示唆する。

(4) 価数揺動系YbNiGe₃の圧力誘起磁気秩序や超伝導の探索を行った。YbNiGe₃は2 GPa以上で超伝導が観測されるCeNiGe₃と類似の結晶構造をもつ。一方、高圧下X線吸収スペクトル測定から見積もったYbNiGe₃のYb価数は常圧の2.52価から8 GPaで2.8価まで急増した。したがって、8 GPa以上で磁気転移発現の可能性がある。そこで15 GPaまでの電気抵抗と磁化測定を行い、磁気転移の発現の有無を調べた。

加圧すると、 ρ の値は増加し、 $\rho(T)$ は上凸の曲線となった。このことは、近藤効果が室温以下で顕著になったことを示唆する。5 K以下の $\rho(T)$ はフェルミ液体的な温度 T の2乗に比例する振舞で再現できた。電子の有効質量の2乗に比例する抵抗の T の2乗の係数の値は10.2 GPaまで加圧すると0.85 GPaの約200倍に急増した。一方、磁化の温度変化には、磁気転移の兆候は14.7 GPaにおいても観測されなかった。

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 19 件)

1. Kazunori, Umeo, Alternating current calorimeter for specific heat capacity measurements at temperatures below 10 K and pressures up to 10 GPa Rev. Sci. Instrum. **87** (2016) 063901/1-7, 査読有, DOI: 10.1063/1.4952959
2. H. I. Tanaka, K. Suekuni, K. Umeo, T. Nagasaki, H. Sato, G. Kutluk, N. Nishibori, T. Takabatake, Metal-semiconductor transition concomitant with a structural transition in tetrahedrite Cu₁₂Sb₄S₁₃, J. Phys. Soc. Jpn. **85** (2016) 014703/1-6, 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.85.014703
3. 梅尾 和則, 高圧力・極低温下における交流法による比熱の絶対値測定, 高圧力の科学と技術, Vol. 25, No. 4 (2015), 283-291. 査読有, DOI: 10.4131/jshpreview.25.283
4. 梅尾 和則, 希土類化合物の圧力下における磁性-非磁性転移, 月刊化学工業, Vol. 66, No. 9 (2015), 653-661. 査読無
5. K. Wakiya, K. T. Matsumoto, T. Onimaru, K. Umeo, T. Takabatake, Ferromagnetic transition in a caged compound NdOs₂Zn₂₀ Phys. Procedia, **75** (2015) 511-515, 査読有,

- DOI: 10.1016/j.phpro.2015.12.064
6. K. Suekuni, H. I. Tanaka, F. S. Kim, K. Umeo, T. Takabatake, Glasslike versus crystalline thermophysical properties of the Cu-S based minerals: tetrahedrite and colusite, J. Phys. Soc. Jpn. **84** (2015) 103601/1-4, 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.84.103601
 7. H. Sato, Y. Utsumi, J. Kodama, H. Nagata, M. A. Avila, R. A. Ribeiro, K. Umeo, T. Takabatake, K. Mimura, S. Motonami, H. Anzai, S. Ueda, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, Electronic structure of YbNiX₃ (X=Si, Ge) studied by hard X-ray photoemission spectroscopy, Phys. Status Solidi C, **12** (2015) 620-623., 査読有, DOI: 10.1002/pssc.201400312
 8. K. T. Matsumoto, T. Onimaru, K. Wakiya, K. Umeo, T. Takabatake, Effect of La Substitution in PrIr₂Zn₂₀ on the Superconductivity and Antiferro-Quadrupole Order J. Phys. Soc. Jpn., **84** (2015) 063703/1-4. 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.84.063703
 9. H. Takaguchi, Y. Hayashi, T. Matsumura, K. Umeo, M. Sera, A. Ochiai, Anomalous Magnetic Phase Diagram of CeTe under High Pressure J. Phys. Soc. Jpn., **84** (2015) 044708/1-6. 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.84.044708
 10. 梅尾 和則, 10 GPa までの圧力下で比熱の絶対値測定が可能な交流法熱量計の開発, 固体物理, **49** (2014) 637-644. 査読無, DOI: <http://www.agne.co.jp/kotaibutsuri/kota1049.htm#no576>
 11. K. T. Matsumoto, T. Onimaru, Y. Obayashi, N. Nagasawa, K. Wakiya, K. Umeo, R. Tamura, K. Nishioto, T. Takabatake, La substitution effect on superconducting transition and doublet ground state in PrIr₂Zn₂₀ Jpn. Phys. Soc. Conf. Proc., **3** (2014) 011039/1-5. 査読有, DOI: 10.7566/JSPSC.3.011039
 12. Y. Shimada, N. Nagasawa, T. Onimaru, K. T. Matsumoto, K. Umeo, T. Takabatake, Suppression of superconductivity in PrRh₂Zn₂₀ by the substitution of Co for Rh, Jpn. Phys. Soc. Conf. Proc., **3** (2014) 011042/1-5. 査読有, DOI: 10.7566/JSPSC.3.011042
 13. K. Umeo, H. Kubo, T. Onimaru, K. Katoh, T. Takabatake, Release of the magnetic frustration in a quasi-kagome antiferromagnet YbAgGe by Au substitution Jpn. Phys. Soc. Conf. Proc., **3** (2014) 014005/1-6. 査読有, DOI: 10.7566/JSPSC.3.014005
 14. J. Kawabata, K. Yutani, K. Umeo, T. Takabatake, Y. Muro, Transition from a Kondo semiconducting antiferromagnet to a heavy-fermion antiferromagnet in Ce(Os_{1-x}Ir_x)₂Al₁₀ Jpn. Phys. Soc. Conf. Proc., **3** (2014) 012023/1-6. 査読有, DOI: 10.7566/JSPSC.3.012023
 15. J. Kawabata, T. Takabatake, K. Umeo, and Y. Muro, Suppression of antiferromagnetic order and hybridization gap by electron- and hole-doping in the Kondo semiconductor CeOs₂Al₁₀ Phys. Rev. B **89** (2014) 094404. 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.89.094404
 16. H. Sato, H. Yamaoka, Y. Utsumi, H. Nagata, M. A. Avila, R. A. Ribeiro, K. Umeo, T. Takabatake, Y. Zekko, J. Mizuki, J-F. Lin, N. Hiraoka, H. Ishii, K-D. Tsuei, H. Namatame, M. Taniguchi, Pressure-induced valence change of YbNiGe₃ investigated by resonant x-ray emission spectroscopy at the Yb L₃ edge Phys. Rev. B **89** (2014) 045112. 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.89.045112
 17. T. Onimaru, S. Tsutsui, M. Mizumaki, N. Kawamura, N. Ishimatsu, M. A. Avila, S. Yamamoto, H. Yamane, K. Suekuni, K. Umeo, T. Kume, S. Nakano, T. Takabatake, Simultaneous Pressure-Induced Magnetic and Valence Transitions in Type-I Clathrate Eu₈Ga₁₆Ge₃₀ J. Phys. Soc. Jpn., **83** (2014) 013701. 査読有, DOI: 10.7566/JPSJ.83.013701
 18. K. Wakiya, N. Nagasawa, K. T. Matsumoto, T. Onimaru, K. Umeo, T. Takabatake, Magnetic and Transport Properties of a New Caged Compound PrOs₂Zn₂₀ J. Korean Physical Society, **62** (2013) 2143. 査読有, DOI: 10.3938/jkps.62.2143
 19. D. D. Khalyavin, D. T. Adroja, P. Manuel, J. Kawabata, K. Umeo, T. Takabatake, A. M. Strydom, Change of magnetic ground state by light electron doping in CeOs₂Al₁₀ Phys. Rev. B **88** (2013) 060403(R). 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.88.060403
- [学会発表] (計 44 件)
1. 林慶介, 山田義大, 川端丈, 梅尾和則, 高島敏郎, 室裕司, 21pBL-2 近藤半導体 CeOs₂Al₁₀ の磁気転移と c-f 混成に対する一軸圧力効果, 日本物理学会 2016 年春季大会 (東北学院大学 泉キャンパス, 2016 年 3 月 21 日)
 2. 梅尾和則, 末國晃一郎, 高島敏郎, 7 GPa までの比熱測定による I 型クラスレート Ba₈Ga₁₆Sn₃₀ のラットリングの体積依存性, 第 56 回高圧討論会 (広島市アステールプラザ, 2015 年 11 月 11 日)
 3. 梅尾和則, 曾我部聖哉, 鬼丸孝博, M. A. Avila, 長谷川巧, 荻田典男, 宇田川眞行, 高島敏郎, I 型クラスレート Eu₈Ga₁₆Ge₃₀ の特異な強磁性に対するキャリア密度の効果, 日本物理学会 2015 年秋季大会 (関

- 西大学 千里山キャンパス, 2015 年 9 月 17 日)
4. 渡部大地, 梅尾和則, 荒木幸治, 加藤健一, 高島敏郎, 三角格子反強磁性体 YbCuGe の磁気フラストレーションに対する一軸圧効果, 日本物理学会 2015 年秋季大会(関西大学 千里山キャンパス, 2015 年 9 月 17 日)
 5. K. Umeo, T. Takabatake, Improved AC-calorimeter for measuring the absolute value of specific heat up to 10 GPa, Joint 25th AIRAPT International Conference and 53rd EHPRG Meeting on High Pressure Science and Technology (AIRAPT2015), Aug. 30-Sep. 4, 2015, Madrid, Spain
 6. 梅尾和則, 高島敏郎, 10 GPa までの高圧下で比熱の絶対値測定可能な交流法熱量計の開発, 日本物理学会第 70 回年次大会(早稲田大学 早稲田キャンパス, 2015 年 3 月 22 日)
 7. 梅尾 和則, 高島 敏郎, 第 55 回高圧討論会, 10 GPa までの比熱の絶対値測定が可能な交流法熱量計の開発(2014 年 11 月 22 日, 徳島大学)
 8. 梅尾和則, 菅野雄介, 松本圭介, 鬼丸孝博, 高島敏郎, 松林和幸, 上床美也, PrIr₂Zn₂₀ の超伝導転移と四極子転移の圧力効果, 日本物理学会 2014 年秋季大会(中部大学 春日井キャンパス, 2014 年 9 月 9 日)
 9. K. Umeo, Y. Sugano, K. T. Matsumoto, T. Onimaru, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, T. Takabatake, Pressure induced heavy-fermion state in a caged superconductor PrIr₂Zn₂₀, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2014) July 7 - July 11, 2014 Grenoble, France
 10. 曾我部聖哉, 飯塚剛, 梅尾和則, 鬼丸孝博, M. A. Avila, 筒井智嗣, 水牧仁一郎, 河村直己, 高島 敏郎, I 型クラスレート Eu₈Ga₁₆Ge₃₀ の特異な強磁性に対するキャリア密度と圧力の効果, 2014 年日本物理学会第 69 回年次大会(東海大学 湘南キャンパス, 2014 年 3 月 27 日)
 11. 梅尾 和則, M. A. Avila, 高島 敏郎, 10 GPa までの電気抵抗測定による YbNiGe₃ の圧力誘起磁気秩序の探索, 第 54 回高圧討論会(2013 年 11 月 14 日, 朱鷺メッセ 新潟コンベンションセンター)
 12. K. Umeo, H. Kubo, T. Onimaru, K. Katoh, N. Aso, T. Takabatake, Release of the magnetic frustration in a quasi-Kagome antiferromagnet YbAgGe by Au Substitution, The international Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013), Aug. 5-9, 2013, Ito International Research Center Conference, The University of Tokyo, Tokyo, Japan,
 13. 菅野雄介, 梅尾和則, 長澤直裕, 松本圭介, 鬼丸孝博, 高島敏郎, 内包カゴ状化合物 PrIr₂Zn₂₀ の超伝導転移と四極子秩序に対

する圧力効果, 2013 年日本物理学会秋季大会(徳島大学 常三島キャンパス, 2013 年 9 月 25 日)

14. 梅尾和則, 末國晃一郎, 小矢野幹夫, 高島敏郎, 硫化鉍物テトラヘドライト Cu₁₂Sb₄S₁₃ の金属-半導体転移の圧力効果 2013 年日本物理学会秋季大会(徳島大学 常三島キャンパス, 2013 年 9 月 27 日)

6. 研究組織

(1)研究代表者

梅尾 和則 (UME0, Kazunori)

広島大学・自然科学研究支援開発センター・准教授

研究者番号：10223596

(2)連携研究者

高島 敏郎 (TAKABATAKE, Toshiro)

広島大学・大学院先端物質科学研究科・教授

研究者番号：40171540