

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26610100

研究課題名(和文) 準結晶におけるボース凝縮と量子臨界相の探索

研究課題名(英文) Search for Bose condensation and quantum criticality in quasicrystal

研究代表者

佐藤 憲昭 (Sato, Noriaki)

名古屋大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30170773

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文)：準結晶は通常の結晶とは異なる独特の構造を持つが、その電子状態は未解明である。本研究課題の目標は、準結晶を特徴づける可能性のある「量子臨界相」の探索とボース凝縮(超伝導など)の探索である。本研究の結果、準結晶と同じ局所構造を持つ近似結晶が加圧とともに量子臨界点に近づくことが明らかとなった。これは、加圧に対し鈍感な準結晶とは質的に異なることを示し、準結晶で発見された量子臨界状態が量子臨界相にあることを強く示唆するものである。また、蔡型クラスターを持つ近似結晶で初めての超伝導体を発見した。一方、超伝導を示す準結晶相の発見には至らなかった。準結晶が超伝導を示しにくい理由の解明は今後の課題である。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this project is twofold; the search for quantum critical phase and Bose condensation (such as superconductivity) in quasicrystal. For the former purpose, we obtained a result suggesting the existence of the quantum critical phase in quasicrystal via the investigation of high-pressure magnetic properties of the relevant approximant crystal. For the latter purpose, we succeeded in finding new approximant superconductors with the Tsai-type cluster, but failed to find a new superconducting quasicrystal. We also found that while the superconductivity occurs in the Al-Mg-Zn approximants, it does not in the quasicrystal. To resolve this origin remains to be resolved in the future.

研究分野：強相関電子物性

キーワード：準結晶 近似結晶 量子臨界現象 超伝導

1. 研究開始当初の背景

1980年代に準結晶が発見されて以来、幾何学的構造に関する研究が大きく進展し、準結晶特有の性質(フラクタル性など)が明らかになってきた。これに対し、電子構造に関しては、深い理解が得られているとは言い難い状況が続いている。例えば、1次元準結晶については、準結晶特有の「臨界状態」が存在すると理論的に予想されているが、実験的には不明である。現実に存在する3次元系では、理論的にも臨界状態の存在は不明のままである。このように、準結晶の幾何学は通常の結晶と質的に異なるものの、電子状態において結晶との相違があるかどうかは未解明の重要な問題である。

このような状況にあって、我々のグループは、Au-Al-Yb系準結晶において量子臨界現象が発現することを見出した。これと同じ局所構造をもつ近似結晶は、通常の結晶と同じような重い電子状態を示すものの、量子臨界現象は示さない。このことから、この量子臨界性は準結晶固有の臨界状態の帰結である可能性が高い。この理解が正しいかどうかを明らかにすることが重要である。

一方、磁気秩序を含め長距離秩序の発現を示す準結晶は数少ない。その理由の一つは、準結晶を特徴づける臨界状態が電子間の相関の形成(クーパー対の形成を含む)を妨げる可能性があるからである。そのほか、3元系準結晶に含まれる原子配置に関するランダムネスが長距離秩序の形成を阻んでいる可能性もある。いずれにせよ、超伝導という長距離秩序が準結晶で発現するかどうかは興味ある問題である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、次の2つである。1つは、Au-Al-Yb準結晶で見出された量子臨界現象の起源あるいはその性質(例えば量子臨界「相」であるか否か)を探るため、対応する近似結晶の圧力効果を調べるとともに、新たな量子臨界準結晶を探索する。もう1つは、超伝導のようなボース凝縮(あるいは遍歴的磁気秩序状態)を示す準結晶を探索することである。

3. 研究の方法

新物質探索においては、量子臨界物質Au-Al-Yb準結晶を出発物質とし、各構成元素を変えながら、準結晶あるいは近似結晶が存在するか否かを調べる。準結晶相あるいは近似結晶相が存在することが判明した場合には、単相性をよくしたうえで、その試料の温度を下げ、電気抵抗、磁化率、比熱を測定する。量子臨界性を示すようであれば比熱に異常が現れるはずであり、超伝導であればゼロ抵抗やマイスナー効果が観測されるはずである。また、磁場を印加しながら電気抵抗等を測定し、量子臨界状態の磁場下での安定性や、超伝導上部臨界磁場を測定する。得ら

れた結果を通常の結晶の場合と比較し、準結晶あるいは近似結晶の特徴が現れるかどうかを調べる。

量子臨界「相」の解明のためには、対応する近似結晶を加圧し、量子臨界点に近づくかどうかを調べる。具体的には、1ケルビン以下の低温まで試料を冷却し、交流磁化率の温度依存性を測定する。

4. 研究成果

蔡型クラスターを持つ近似結晶では初めての超伝導物質を2つ見出した。そのいずれもAu-Ge-Ybの3元素から成り立っているが、その比率が異なる。以下ではAGY(I)とAGY(II)と略記する。これらの低温物性(電気抵抗、磁化率、比熱)の温度依存性を図1に示す。図1(a)の電気抵抗を見ると、AGY(I)およびAGY(II)のいずれも絶対温度1ケルビン以下の極低温でゼロ抵抗を示すことが分かる。さらに、図1(b)に示した交流磁化率から分かるように、ゼロ抵抗となる温度以下で完全反磁性が観測される。これらより、超伝導転移が生じていることが明らかとなった。さらに超伝導のバルク性を見るため、比熱の測定を行った。その結果、図1(c)に示すように、大きな比熱異常が発見された。これより、超伝導が試料の体積全体で発現していることが明らかとなった。

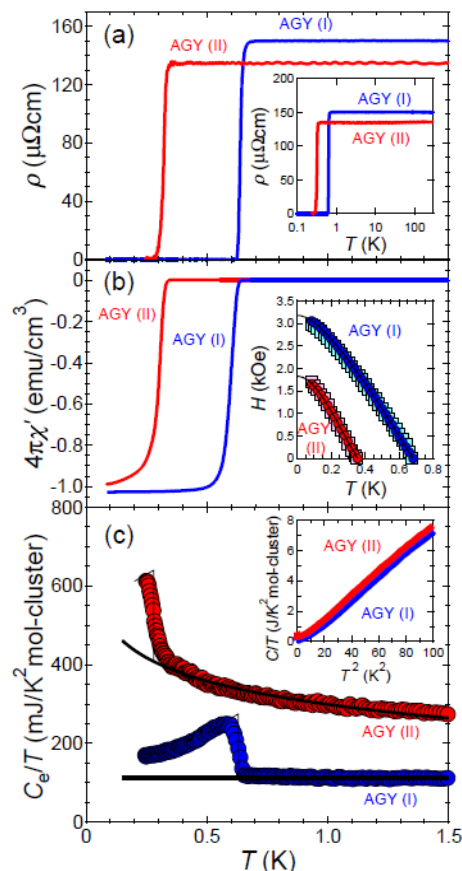


図1. Au-Ge-Yb系近似結晶の超伝導性。(a)電気抵抗の温度依存性。(b)交流磁化率の温度依存性。(c)電子比熱係数の温度依存性。

図 1(b) の挿入図には、AGY(I) および AGY(II) の上部臨界磁場の温度依存性が示されている。これらを重い電子系等と比べると、大きな相違があるようには見えない。

一方、図 1(c) の比熱の温度依存性を詳しく見ると、AGY(I) と AGY(II) の低温での振る舞いが異なることに気付く。前者は、電子比熱係数 C/T (C は比熱、 T は温度) が一定であるのに対し、後者は温度が下がるにつれ上昇する。この後者の振る舞いは、この近似結晶が重い電子系であることを示唆する。

AGY(I) と AGY(II) の相違は、クラスター構造の相違に帰着される。結晶構造解析の結果を図 2(a) に示す。蔡型クラスターの最も内側の原子種が AGY(I) と AGY(II) とで異なっていることが判明した。即ち、前者では Au 原子が中央サイトを占めているが、後者では Yb 原子が占有している。高温の磁化率を解析すると、この Yb 原子は磁性を持っている可能性が高く、重い電子現象の原因となっている可能性がある。これを明らかにするのは今後の課題である。

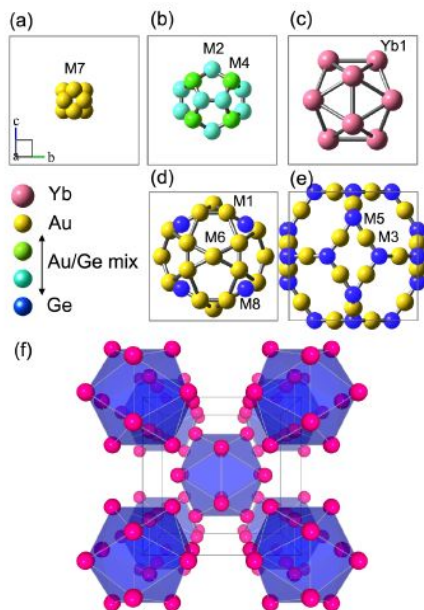


図 2 . (a) から (f) は蔡型クラスターを構成する原子群。

上に示した結果は近似結晶に対するものである。この組成の近辺に準結晶相が存在しないかを探したが、これまでのところ見出されていない。ただ、蔡型準結晶ではないが、異なるクラスター構造を持つ準結晶 (Zn-Mg-Al) が低温で超伝導を示すという報告がなされており、それが真実であれば、超伝導を示す準結晶が存在することになる。これまでの結果によれば、近似結晶は超伝導を示すものの、準結晶相は示さない。より詳しい研究が必要である。

量子臨界性を示す準結晶の探索に関する成果は以下のものである。まず、Ag-In-Ce 系近似結晶 (およびその姉妹物質) が常圧において、降温とともに磁化率や電子比熱係数が増大することを見出した。しかし、0.3 ケル

ビン程度の極低温においてスピングラス的な異常を示すことも見出した。この系が量子臨界現象を示すかどうかを明らかにするため、加圧によりスピングラス転移温度を絶対零度まで下げを試みる必要がある。これは今後の課題として残されている。一方、その周辺組成に準結晶相があるかどうかを探っているが、現時点では見出されていない。これらの研究と並行して、Yb 系準結晶の探索も行っている。その結果、ごく最近、量子臨界性を示す可能性のある準結晶を見出した。これを確かめるための実験が進行中である。

量子臨界「相」の解明のため、Au-Al-Yb 近似結晶の高圧下物性を計測した。その結果、(外部磁場が無い場合) 低温の交流磁化率は加圧とともに大きく増大することを見出した (図 3 参照)。これを詳しく解析したところ、2 GPa (=20 kbar) 付近に量子臨界点があることが判明した。これは通常の重い電子系の性質と類似のものであり、準結晶とは質的に異なることが分かった。これより、準結晶の異常が通常の「点」ではなく、線上に分布していることが明確となった。これは、量子臨界点ではなく量子臨界相として存在することを強く示唆する。

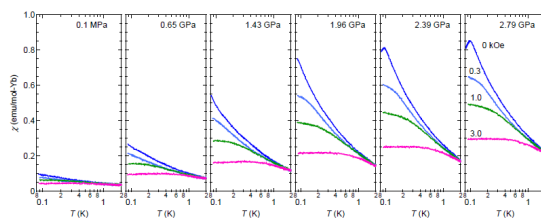


図 3 . Au-Al-Yb 近似結晶の高圧下における交流磁化率の温度依存性。

一方、磁場の印加に対しては、準結晶や重い電子系と同じように、小さな磁場で磁化が大きく減少する。これは、臨界圧力が存在するのは対照的に、臨界磁場がゼロであることを意味する。また、価数揺らぎによる量子臨界性で期待されるスケールリング則が成り立つことも明らかとなった。このように、準結晶を近似結晶あるいは重い電子系と比較することにより、準結晶固有の性質を浮かび上がらせることに成功を収めた。

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 5 件)

- 1 . K. Deguchi, M. Nakayama, S. Matsukawa, K. Imura, K. Tanaka, T. Ishimasa, and N. K. Sato,

“Superconductivity of Au-Ge-Yb

Approximants with Tsai-Type Clusters”

- J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 023705 (2015).
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.84.023705>
 査読あり (Editor's choice に選ばれる)
2. K. Deguchi, M. Nakayama, S. Matsukawa,
K. Imura, K. Tanaka, T. Ishimasa, and
N. K. Sato.
 “Crystal Structure of Superconducting 1/1
 Cubic Au–Ge–Yb Approximant with
 Tsai-Type Cluster”
 J. Phys. Soc. Jpn. **84** (2015) 015002.
 DOI: 10.7566/JPSJ.84.015002
 査読あり
3. M. Nakayama, K. Tanaka, S. Matsukawa,
K. Deguchi, K. Imura, T. Ishimasa, and
N. K. Sato.
 “Localized Electron Magnetism in the
 Icosahedral Au–Al–Tm Quasicrystal and
 Crystalline Approximant”
 J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 024721 (2015).
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.84.024721>
 査読あり
4. S. Matsukawa, K. Tanaka, M. Nakayama,
 S. Kunikata, K. Deguchi, K. Imura,
T. Ishimasa and N.K. Sato.
 “Transport Properties of the Au-Al-Yb
 Quasicrystal and Approximant under
 Hydrostatic Pressure”
 ACTA PHYSICA POLONICA A **126** (2014)
 527.
 DOI: 10.12693/APhysPolA.126.527
 査読あり
5. K. Tanaka, Y. Tanaka, T. Ishimasa,
 M. Nakayama, S. Matsukawa, K. Deguchi,
 and N.K. Sato.
 “Tsai-Type Quasicrystal and Its Approximant
 in Au-Al-Tm Alloys”
 ACTA PHYSICA POLONICA A, **126** (2014)
 603.
 DOI: 10.12693/APhysPolA.126.603
 査読あり
6. 出口和彦, 佐藤憲昭, 石政勉
 “Tsai型クラスターをもつAu-Ge-Yb近似結
 晶の超伝導 - 準結晶と結晶をつなぐ物質
 で発現した超伝導 -
 固体物理 **50**, No. 9, 25 (2015).
 査読あり
- [学会発表](計 21 件)
1. 中山美佳, 松川周矢, 山下冬馬, 野部晃平,
井村敬一郎, 出口和彦, 佐藤憲昭, 田中克
 昌, 石政勉
 “Yb系近似結晶の結晶構造と物性”
 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 10 日
2. 野部晃平, 松川周矢, 中山美佳, 山下冬馬,
井村敬一郎, 出口和彦, 石政勉, 佐藤憲昭
 “Ag-In-Yb系準結晶及び近似結晶の希土類
 元素置換効果”
 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 8 日
3. 山下冬馬, 野部晃平, 中山美佳, 松川周
 矢, 井村敬一郎, 出口和彦, 佐藤憲昭, 石
政勉
 “2 元系準結晶 $Zn_{88}Sc_{12}$ における電気抵抗率
 測定”
 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 8 日
4. 佐藤憲昭
 “Yb系準結晶および近似結晶の非従来型
 量子臨界現象”(招待講演)
 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 8 日
5. 野部晃平, 松川周矢, 中山美佳, 山下冬
 馬, 神谷京佑, 井村敬一郎, 出口和彦,
石政勉, 佐藤憲昭
 “Ce系近似結晶の量子臨界現象”
 日本物理学会第 70 回年次大会、早稲田大
 学、2015 年 3 月 21 日
6. 松川周矢, 中山美佳, 山下冬馬, 野部晃
 平, 神谷京佑, 出口和彦, 井村敬一郎,
石政勉, 佐藤憲昭
 “Au-Al-Yb準結晶及び近似結晶の量子臨界
 性に対する磁場効果”
 日本物理学会第 70 回年次大会、早稲田大

- 学、2015年3月22日
7. S. Matsukawa, M. Nakayama, T. Yamashita, K. Nobe, K. Kamiya, K. Deguchi, K. Imura, T. Ishimasa, N. K. Sato
 “High-pressure effect on low-temperature properties of the approximant crystal to magnetic Au-Al-Yb quasicrystal”
 20th. International Conference on Magnetism, Barcelona, Spain, July 5-10
 8. N.K. Sato, S. Matsukawa, T. Nobe, K. Imura, K. Deguchi, T. Ishimasa.
 “Quantum critical behavior in quasicrystals and approximant crystals” (invited)
 20th. International Conference on Magnetism, Barcelona, Spain, July 5-10, 2015
 9. Kazuhiko Deguchi, Mika Nakayama, Shuya Matsukawa, Keiichiro Imura, Katsumasa Tanaka, Tsutomu Ishimasa, and Noriaki K. Sato
 “Superconductivity of Icosahedral Yb Approximants with Tsai-type Clusters”
 20th. International Conference on Magnetism, Barcelona, Spain, July 5-10, 2015.
 10. 神谷京佑, 山本晃生, 松川周矢, 國方翔太, 野部晃平, 山下冬馬, 出口和彦, 井村敬一郎, 竹内恒博, 佐藤憲昭
 “Al-Mg-Zn 準結晶・近似結晶の極低温物性研究”
 日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、2015 年 9 月 16 ~ 19 日
 11. 野部晃平、松川周矢、山下冬馬、井村敬一郎、出口和彦、石政勉、佐藤憲昭
 “CeCu_{6-x}Au_x及びCe系近似結晶における量子臨界現象の研究”
 日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、2015 年 9 月 16 ~ 19 日
 12. 出口和彦, 松川周矢, 井村敬一郎, 佐藤憲昭, 石政勉
 “Au-Al-Yb準結晶における量子臨界現象とスケールリング”
 日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、2015 年 9 月 16 ~ 19 日
 13. 松川周矢、山下冬馬、野部晃平、神谷京佑、出口和彦、井村敬一郎、石政勉、佐藤憲昭
 “Au-Al-Yb準結晶及び近似結晶の圧力下交流磁化率測定”
 日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、2015 年 9 月 16 ~ 19 日
 14. Kazuhiko Deguchi, Noriaki Kensho Sato and Tsutomu Ishimasa
 “Quantum criticality and superconductivity in icosahedral Yb quasicrystals and approximants”
 Toyota RIKEN International Workshop on “Strongly Correlated Electron Systems: Open Space between Heavy Fermions and Quasi-crystals”
 November 17-19, 2015, Nagoya, Japan
 15. Shuya Matsukawa, Kazuhiko Deguchi, Keiichiro Imura, Tsutomu Ishimasa, and Noriaki K. Sato
 “High-pressure effect on low-temperature properties of the Au-Al-Yb quasicrystal and approximant crystal”
 Toyota RIKEN International Workshop on “Strongly Correlated Electron Systems: Open Space between Heavy Fermions and Quasi-crystals”
 November 17-19, 2015, Nagoya, Japan
 16. K. Namba, S. Matsukawa, K. Imura, K. Deguchi, T. Ishimasa, K. Tanaka, and N. K. Sato
 “DC magnetic susceptibility measurement of quasicrystals and approximant crystals in the Au-Sn-R (R: Pr, Nd, Sm, Gd, Tb, Yb) system”
 Toyota RIKEN International Workshop on “Strongly Correlated Electron Systems: Open Space between Heavy Fermions and Quasi-crystals”
 November 17-19, 2015, Nagoya, Japan
 17. K. Kamiya, A. Yamamoto, K. Namba,

- S. Matsukawa, S. Kunikata, K. Nobe,
T. Yamashita, K. Imura, K. Deguchi,
T. Takeuchi, N. K. Sato,
“Possibility of superconductivity in Mg-Zn-Al
quasicrystal and approximant crystals”
Toyota RIKEN International Workshop on
“Strongly Correlated Electron Systems:
Open Space between Heavy Fermions and
Quasi-crystals”
November 17-19, 2015, Nagoya, Japan
18. T. Yamashita, K. Nanba, K. Kamiya, K. Nobe,
S. Matsukawa, K. Imura, K. Deguchi,
N. K. Sato, T. Ishimasa
“Specific heat of the icosahedral quasicrystal
Zn₈₈Sc₁₂ and its periodic 1/1 approximant
Zn₆Sc”
Toyota RIKEN International Workshop on
“Strongly Correlated Electron Systems:
Open Space between Heavy Fermions and
Quasi-crystals”
November 17-19, 2015, Nagoya, Japan
19. K. Nobe, S. Matsukawa, T. Yamashita,
K. Imura, K. Deguchi, T. Ishimasa,
M. Matsunami, N. K. Sato
“Quantum critical behavior of CeCu_{6-x}Au_x and
Ce-based approximant crystal”
Toyota RIKEN International Workshop on
“Strongly Correlated Electron Systems:
Open Space between Heavy Fermions and
Quasi-crystals”
November 17-19, 2015, Nagoya, Japan
20. 神谷京佑・井村敬一郎・出口和彦・山本
晃生・竹内恒博・佐藤憲昭
“Al-Mg-Zn系準結晶・近似結晶における超伝
導
日本物理学会(2016年)第71回年次大会、
東北学院大学、2016年3月19日~22日
21. 難波慶介, 松川周矢, 井村敬一郎, 出口
和彦, 田中克彦, 石政勉, 中村洋子, 山田
庸公, 蔡安邦, 佐藤憲昭
“蔡型クラスター構造を持つAu-Sn-R (R:希
土類元素)系の近似結晶と準結晶の物性研

究”

日本物理学会(2016年)第71回年次大会、
東北学院大学、2016年3月19日~22日

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐藤 憲昭 (SATO, Noriaki)
名古屋大学大学院理学研究科・教授
研究者番号：30170773