

令和 4 年 6 月 16 日現在

機関番号：11301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2021

課題番号：19K23417

研究課題名(和文) 微視的プローブを包括的に用いた価数量子臨界現象に関する研究

研究課題名(英文) valence quantum criticality investigated by microscopic probes

研究代表者

谷口 貴紀 (Taniguchi, Takanori)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：70849950

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：価数に由来する量子臨界点を持つ候補物質 YnCu_4T ($\text{T} = \text{Ni}, \text{Au}$)に着目した。本研究を通して、大型の単結晶合成にそれぞれ成功した。そして、J-PARCと英国のRutherford Appleton Laboratoryにてミュオンスピン緩和法実験を行った。 YbCu_4Au について、近藤温度で電子状態が変化していることを明らかにし、電気抵抗の温度依存性を説明した。また、J-PARCにて YbCu_4Ni と YbCu_4Au の結晶構造を中性子回折実験で確認し、従来に提案されていた結晶構造の一部を変更した。これらの結果は、価数量子臨界現象を考える上の基礎となる情報である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

銅酸化物高温超伝導体や重い電子超伝導体に代表される超伝導について、多くは反強磁性スピン揺らぎの枠組みで量子臨界現象として説明されていることが多い。最近では、多極子揺らぎや強磁性揺らぎに起因する量子臨界現象の存在が指摘されており、新奇な物性探索のために盛んに研究がなされている。本研究では、電子の特徴の一つである価数に注目し、価数揺らぎと量子臨界現象の関係について調べた。そのため、まずは候補物質について単結晶合成を試み、大型のものを得ることに成功した。この成果により、多くの実験プローブを用いることにより、候補物質が示す量子臨界現象の起源を明らかにする基盤が確立した。

研究成果の概要(英文)：We focus on the candidate material YnCu_4T ($\text{T} = \text{Ni}, \text{Au}$) with a quantum critical point derived from the valence, and have investigated the electronic properties through some experiments such as single crystal growth, basic physical properties, and muon spin relaxation method and neutron diffraction. At first, we succeeded in synthesizing large single crystals. Using this single crystal sample, a muon spin relaxation experiment was performed at the Rutherford Appleton Laboratory (ISIS) in the United Kingdom. It was clarified that the electronic state changed at the Kondo temperature in YbCu_4Au , and the temperature dependence of the electrical resistance can be explained by this result. In addition, the crystal structures of YbCu_4Ni and YbCu_4Au were confirmed by neutron diffraction experiments at J-PARC (JRR-3), and some changes in the previously proposed crystal structures were found. These results are the basic information for considering valence quantum critical phenomena.

研究分野：強相関電子系

キーワード：強相関電子系 量子臨界現象 Yb化合物 ミュオンスピン緩和 中性子散乱 重い電子系

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

これまでスピン自由度が主流であった量子相転移の研究において、“価数”が新しい自由度として注目を集めている。しかし、価数由来の量子臨界性を示す候補物質が少ないこと、実験的研究手法が確立していないことが原因で、価数の臨界揺らぎによる新規物性が期待されるものの、その素性は明らかになっていない。本研究では、申請者が単結晶合成に成功した量子臨界性を示す YbCu_4Ni と YbCu_4Au を対象に、ミュオンスピン回転・緩和法(muSR)と中性子実験などの微視的プローブを包括的に用いることで、これらにより価数に由来した量子臨界現象の存在とその性質を明らかにする。

2. 研究の目的

本研究の目的は、 YbCu_4Ni と YbCu_4Au が示す量子臨界性の起源を明らかにすることである。そのために、申請者は単結晶育成に挑戦し、1g 以上の大型の単結晶試料を得ることに成功した。本研究では、この単結晶試料を用いて量子ビーム実験を行った。

3. 研究の方法

(1) 単結晶育成

筆者が所属する東北大学金属材料研究所の研究室にて、単結晶育成を行った。まずは融体固化法にて多結晶試料を作製し、Floating Zone 炉を用いて局所的に加熱することで単結晶化した(図 1)。

(2) 粉末中性子散乱

育成した単結晶試料を粉砕して、茨城県東海村にある Japan Research Reactor 3 (JRR-3)にて、東北大学が運営する粉末中性子回折装置 HRMES を使った実験を行う。試料管は筆者が所属する研究室で開発した V セルを用いる。

(3) muSR

育成した単結晶試料を粉砕して、英国の Rutherford Appleton Laboratory で理化学研究所の渡邊功雄博士と芝浦工業大学の Dita Puspita 博士の協力の下で、J-PARC にある Materials and Life Science Experimental Facility (MLF) で高エネルギー加速研究機構の幸田章宏博士の協力の下で muSR 実験を行う。試料は事前に粉末 X 線回折で評価を行ってから使用する。

4. 研究成果

(1) 単結晶育成

Floating Zone 炉を用いて局所的に加熱し、 YbCu_4Au と YbCu_4Ni の単結晶育成に成功した。 Yb は蒸気圧が低いために加熱に伴って Yb が消失することがこれまでの問題であった。今回はあらかじめ多結晶試料を合成してからの育成を行ったこと、局所的な加熱であるために Yb が消失する機会を減らしたことが質の良い単結晶育成につながった。図 2 に育成した単結晶の写真を示す。

(2) 粉末中性子散乱による結晶構造の同定

育成した結晶を粉砕し、粉末中性子回折実験を JRR-3 にて行った。その粉末中性子散乱パターンから、結晶構造の同定を行った。 YbCu_4Au は、提案されていた結晶構造であることを確かめた。その一方で、 YbCu_4Ni は図 3

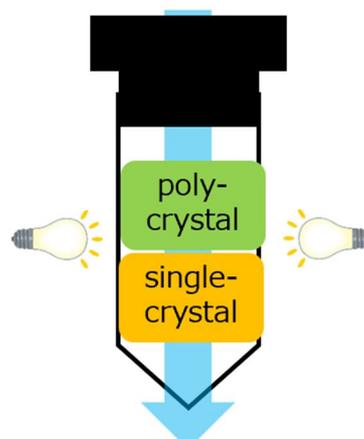


図 1. Floating Zone 法を用いて局所的に加熱する方法の概念図。



図 2. 単結晶 YbCu_4Ni の写真。

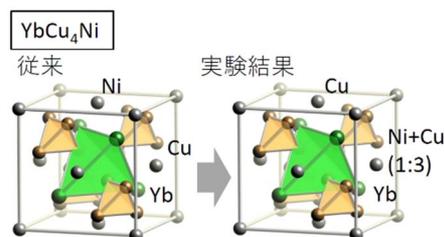


図 3. 粉末中性子回折実験から提案した YbCu_4Ni の結晶構造。

のように Cu と Ni でサイトミキシングしていることが分かった。この結果から、YbCu₄Ni がゼロ磁場で大きな電子比熱係数を持つ理由が 2 つ考えられる。一つ目は量子臨界性である。YbCu₅ は量子臨界性を示す物質として知られている。従って、近い結晶構造をもつ YbCu₄Ni も同様に量子臨界性を持つ可能性は十分に高い。二つ目は Kondo disorder である。Cu と Ni のサイトミキシングにより乱れが内包されている。加えて、UCu₄Ni では Kondo disorder が観測されているので、YbCu₄Ni も Kondo disorder を示すことは十分に考えられる。今後は横磁場 muSR と核磁気共鳴法を用いることで両者を決定する予定である。

(3) muSR 測定による磁気揺らぎの観測

育成した単結晶を粉砕し、muSR 実験を英国の Rutherford Appleton Laboratory と J-PARC にある MLF にて行った。YbCu₄Au は比熱で見出した逐次転移において、それぞれの相で時間反転対称性が破れていることが分かった。このことは、逐次転移において磁気構造の変更が行われていることを示唆する。YbCu₄Ni は大きな磁気揺らぎが低温まで発達することが分かった。今後は横磁場 muSR 測定を極低温で行うことで、muon Knight shift と緩和率を見積り、低温での電子状態を決定する予定である。

【論文】(計 4 件)

題目 : 139La-NMR Study of Spin Dynamics Coupled with Hole Mobility in T*-type La_{0.86}Eu_{0.86}Sr_{0.28}CuO_{4-d}

著者 : Takanori Taniguchi, Shunsaku Kitagawa, Kenji Ishida, Shun Asano, Kota Kudo, Motofumi Takahama, Peiao Xie, Takashi Noji, and Masaki Fujita

掲載雑誌名 : Journal of Physical Society of Japan, accepted (2022)

題目 : Magnetic refrigeration down to 0.2 K by heavy fermion metal YbCu₄Ni

著者 : Y. Shimura, K. Watanabe, T. Taniguchi, K. Osato, R. Yamamoto, Y. Kusanose, K. Umeo, M. Fujita, T. Onimaru, and T. Takabatake

掲載雑誌名 : Journal of Applied Physics, 131, 105002 (2022)

題目 : Ultra-low temperature NMR of CeCoIn₅

著者 : M. Yamashita, M. Tashiro, K. Saiki, S. Yamada, M. Akazawa, M. Shimozawa, T. Taniguchi, H. Takeda, M. Takigawa, and H. Shishido

掲載雑誌名 : Physical Review B, 102, 165154 (2020)

題目 : Search for the field-induced magnetic instability around the upper critical field of superconductivity in H || c in CeCoIn₅

著者 : T. Taniguchi, S. Kitagawa, M. Manago, G. Nakamine, K. Ishida, H. Shishido

掲載雑誌名 : JPS Conference Proceedings, 30, 011107 (2020)

【学会発表】(計 7 件)

発表表題 : Magnetic properties of Yb₁₄₁ system investigated by mu+SR

発表者名 : Takanori Taniguchi, Koutaro Osato, Yusuke Nambu, Yoichi Ikeda, Jun Gouchi, Yoshiya Uwatoko, Shunichiro Kittaka, Toshiro Sakakibara, Dita Puspita Sari, Isao Watanabe, Akihiro Koda, Masaki Fujita

会議名 : Materials Research Meetings (2021 年 12 月 13 日 ~ 16 日)

発表題目 : 重い電子系金属間化合物 YbCu₄Ni を用いた 0.2 K までの磁気冷凍の実証

発表者名 : 志村 恭通, 渡邊 寛大, 谷口 貴紀, 大里 耕太郎, 藤田 全基, 西原 豊政, 山本 理香子, 草ノ瀬 優香, 梅尾 和則, 鬼丸 孝博

会議名 : 日本物理学会 (第 76 回年次大会) (2021 年 3 月 12 日 ~ 15 日)

発表題目 : 重い電子化合物 YbCu₄Au の単結晶育成とその基礎物性

発表者名 : 谷口 貴紀, 大里 耕太郎, 池田 陽一, 南部 雄亮, 藤田 全基, 馬 翰明, 郷地 順, 上床 美也, 橘高 俊一郎, 榊原 俊郎

会議名 : 日本物理学会 (第 76 回年次大会) (2021 年 3 月 12 日 ~ 15 日)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3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 0件）

1. 著者名 Yamashita M., Tashiro M., Saiki K., Yamada S., Akazawa M., Shimozawa M., Taniguchi T., Takeda H., Takigawa M., Shishido H.	4. 巻 102
2. 論文標題 Ultralow temperature NMR of CeCoIn5	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 165154
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.165154	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 -

1. 著者名 Taniguchi Takanori, Kitagawa Shunsaku, Manago Masahiro, Nakamine Genki, Ishida Kenji, Shishido Hiroaki	4. 巻 30
2. 論文標題 Search for the Field-induced Magnetic Instability around the Upper Critical Field of Superconductivity in $H \parallel c$ in CeCoIn5	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 11107
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.30.011107	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 -

1. 著者名 Shimura Yasuyuki, Watanabe Kanta, Taniguchi Takanori, Osato Kotaro, Yamamoto Rikako, Kusanose Yuka, Umeo Kazunori, Fujita Masaki, Onimaru Takahiro, Takabatake Toshiro	4. 巻 131
2. 論文標題 Magnetic refrigeration down to 0.2 K by heavy fermion metal YbCu4Ni	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 013903 ~ 013903
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0064355	査読の有無 無
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7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 志村 恭通, 渡邊 寛大, 谷口 貴紀, 大里 耕太郎, 藤田 全基, 西原 亮政, 山本 理香子, 草ノ瀬 優香, 梅尾 和則, 鬼丸 孝博
2. 発表標題 重い電子系金属間化合物YbCu4Niを用いた0.2 Kまでの磁気冷凍の実証
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 谷口 貴紀, 大里 耕太郎, 池田 陽一, 南部 雄亮, 藤田 全基, 馬 翰明, 郷地 順, 上床 美也, 橘高 俊一郎, 榊原 俊郎
2. 発表標題 重い電子化合物YbCu ₄ Auの単結晶育成とその基礎物性
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takanori Taniguchi, Koutaro Osato, Yusuke Nambu, Yoichi Ikeda, Jun Gouchi, Yoshiya Uwatoko, Shunichiro Kittaka, Toshiro Sakakibara, Dita Puspita Sari, Isao Watanabe, Akihiro Koda, Masaki Fujita
2. 発表標題 Magnetic properties of Yb141 system investigated by mu+SR
3. 学会等名 Materials Research Meetings (国際学会)
4. 発表年 2021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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------