

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740220

研究課題名(和文) 強磁性量子相転移物質における圧力、磁場制御による量子臨界現象の研究

研究課題名(英文) Quantum critical behavior in pressure-induced ferromagnetic systems by tuning pressure and magnetic field

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円、(間接経費) 990,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では圧力や磁場によって磁気秩序相が生成、消失する量子相転移点近傍における異常物性の起源を明らかにすべく、臨界点近傍における価数変化やメタ磁性の発現に着目した研究を行った。その結果、 YbNi_3Ga_9 において圧力誘起磁気秩序相が出現する臨界圧力に向かってマージする価数クロスオーバーを見出した。また、臨界圧力近傍の常磁性領域において新奇なメタ磁性を発見した。

研究成果の概要(英文)：We investigated the pressure-induced valence change and metamagnetic behavior in the vicinity of a magnetic quantum phase transition tuned by pressure and/or magnetic field. We have revealed a characteristic pressure-induced Yb valence crossover within the temperature-pressure phase diagram of YbNi_3Ga_9 in the vicinity of the magnetic quantum phase transition. Moreover, a first-order metamagnetic transition is found below the critical pressure.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：重い電子系 量子相転移 圧力 磁場 メタ磁性

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系物質では、圧力や磁場により磁気秩序相が2次相転移的に生成・消失する量子臨界点近傍の領域において、量子的な揺らぎを反映した異常物性や非従来型超伝導などの数多くの興味深い物性が見出されており、精力的な研究が行われている。一方、本研究で対象としたf電子系物質やいくつかの遍歴強磁性体においては、相転移温度が低温へと抑制された際に2次相転移が3重臨界点を経て1次相転移へと変化することが報告されており、またその量子相転移近傍では非従来型の量子臨界現象が出現することが実験的、理論的に報告されていた。ただし、本研究において着目したイッテルビウム(Yb)系、ユーロピウム(Eu)系化合物における高圧力を用いた量子相転移の研究に関しては、その臨界圧力が高いことに起因して、量子相転移近傍の物性を詳細に研究した例はあまり多くない。また、その磁気秩序の1次相転移的な消失やその量子臨界現象には価数の不安定性が関係している可能性が理論的に指摘されていたが、高圧下における価数変化を直接的に調べた研究は殆ど例がない。

2. 研究の目的

圧力制御によって磁気的な量子相転移を示すYb系およびEu系化合物に着目し、静水圧性のよい圧力と磁場を複合的に組み合わせた極限環境下において精密物性測定を行い、量子相転移の次数と価数状態との関係、さらには臨界圧力近傍におけるメタ磁性の可能性を調べることにより、強相関電子系における量子臨界現象に関して新たな知見を得ることを目指した研究を行った。また、上記の目的を達成するために行った圧力装置の開発・改良により到達可能となった極限環境下において、新しいタイプの量子臨界現象と超伝導の探索を行うことも目標とした。

3. 研究の方法

10 GPa級の超高圧下においても静水圧性のよい圧力を発生可能でありながら³He冷凍機に搭載できる小型キュービックアンビルセル圧力装置を用いて、精密物性測定(電気抵抗、交流磁化率、交流比熱)を行った。また、圧下かつ磁場中において希釈冷凍機温度域までの測定が可能となるように、大容量の試料スペースと圧力セル自身のコンパクトさを兼ね備えた対向アンビル型圧力セルを開発した(高知大の北川氏との共同研究)。

また、価数状態を直接的に検出可能なX線吸収実験(SPring-8, BL39XU)を高圧下かつ低温において行い、バルク測定と分光測定とを組み合わせた包括的な研究を行った。

4. 研究成果

(1) YbNi₃Al₉における圧力誘起反強磁性-強磁性転移

YbNi₃Al₉の常圧における価数は2.9価であり、低温では反強磁性秩序を示すが、その詳細な磁気構造は明らかとなっていなかった。常圧において中性子回折実験を行った結果、磁気モーメントはa面内においては強磁性的にそろい、伝搬ベクトル $q=(0,0,0.8)$ をもたず磁気であることがわかった。さらに磁気転移温度の圧力効果を調べたところ、イッテルビウム系の磁気転移温度の圧力応答としては珍しく、反強磁性転移温度が急激に減少することを見出した。さらに圧力を印加すると、反強磁性秩序は強磁性秩序へと変化することを詳細な磁場中交流磁化率測定結果から明らかにした。これらの結果は後述のYbNi₃Ga₉(YbNi₃Al₉と同じ結晶構造をもつ)における圧力誘起磁気秩序相を議論する上で有益な情報を与える。

(2) YbNi₃Ga₉における価数クロスオーバーとメタ磁性

YbNi₃Ga₉の常圧におけるYb価数は約2.6価であり、非磁性基底状態をとる。高圧力下では価数の増大に伴って、磁気的な3価の状態が誘起されることが期待されるが、精密な電気抵抗、交流磁化率の測定から詳細な温度-磁場-圧力相図を得ることに成功した。その結果、YbNi₃Ga₉における圧力誘起磁気秩序は臨界圧力近傍の狭い圧力領域においては反強磁性秩序として出現し、さらに圧力を加えると強磁性へと変化することを見出した。また、バルク測定から得られた相図上にX線吸収実験から得られた価数をマッピングすることに成功し(図1を参照)、約2.8価の価数クロスオーバー領域が圧力誘起反強磁性秩序が1次転移的に出現する臨界圧力へとマージしていくことを明らかにした。さらに、臨界圧力よりもわずかに低圧の常磁性相においては、低温でメタ磁性が発現することを見出した。磁場依存性においてヒステリシスが観測されたこと、また磁場中における磁化率の温度依存では強い発散傾向が有限温度で観測されたことからメタ磁性は1次相転移であり、その相線は臨界点をもって終端することがわかった。各圧力における磁場-温度相図の詳細な解析から、メタ磁性の起源として価数転移およびこの系における特徴的な磁気異方性が関係している可能性を指摘した。上記の結果の一部に関する発表は、磁性に関する国際会議(ICM)においてベストポスター賞を受賞した。また、その主要な結果については論文を投稿中である。

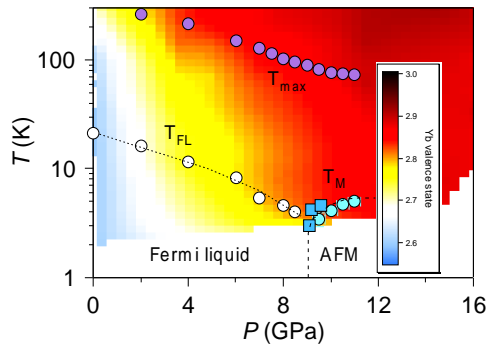


図1 YbNi₃Ga₉における温度-圧力相図と Yb 価数のカラープロット

(3) EuT₂As₂ (T=Co, Ni)における磁気秩序相の圧力効果

EuT₂As₂ (T=Co, Ni)における Eu の磁気秩序相の圧力効果を調べることで、1-2-2 系における相図の包括的な理解を目指した。EuNi₂As₂ においては 6 GPa 以上の圧力域では Eu の磁気秩序相が 1 次転移的に消失し、価数クロスオーバーを示唆する特性温度が高温・高圧へと移り変わることを見出した。また EuCo₂As₂ では約 3GPa 付近において Eu の反強磁性秩序が急激に消失すると同時に、Co の磁気秩序の出現を示唆する結果が得られた。これらの特徴的な臨界圧力は過去に研究を行った EuFe₂As₂ におけるものと比較して小さく抑えられおり、遷移金属サイトが異なることに起因する化学圧力効果として理解できることがわかった。また、Eu の磁気秩序の 1 次転移的な消失には Eu の価数変化が関係していることが強く示唆されるが、X 線吸収実験による直接的な検証は今後の課題として残されている。

(4) 開発および改良に成功した圧力セルを用いて得られたその他の成果

申請時の研究計画で予定していた上記の物質に加えて、低温で四極子秩序を示す PrTi₂Al₂₀ に対して高圧下物性測定を行った。その結果、四極子秩序が急激に低温へと抑制される圧力領域において比較的高い転移温度と上部臨界磁場を有する重い電子系超伝導を発見した。多くの重い電子系超伝導体では、磁気秩序が消失する臨界圧力近傍において超伝導が発現することから、スピンゆらぎが重要な役割を果たしていると考えられてきた。しかし、PrTi₂Al₂₀ の基底状態は多極子自由度しか持たないことから、そのゆらぎが超伝導のクーペペアの形成に寄与していると考えられ、新たな物質開発の指針として今後さらに発展すると期待される。

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 29 件)

“ Microscopic Evidence of a Crossover to a Low-Temperature Intermediate Valence State in YbCo₂Zn₂₀ ” T. Mito, H. Hara, T. Ishida, K. Nakagawara, T. Koyama, K. Ueda, T. Kohara, K. Ishida, K. Matsubayashi, Y. Saiga, Y. Uwatoko, J. Phys. Soc. Jpn. **82** 103704 (2013), 査読有り, DOI: <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.103704>

“ Pressure-induced Suppression of the Antiferromagnetic Transition in YbNi₃Al₉ Single Crystal ” T. Hirayama, K. Matsubayashi, T. Yamashita, S. Ohara, K. Munakata and Y. Uwatoko, J. Phys.: Conf. Ser. 391 012020 (2012), 査読有り, DOI:10.1088/1742-6596/391/1/012020

“ Low temperature properties of a low carrier heavy fermion YbPtSb ” K. Matsubayashi, R. Yamanaka, H. S. Suzuki, K. Munakata and Y. Uwatoko, J. Phys.: Conf. Ser. 391 012040 (2012), 査読有り, DOI:10.1088/1742-6596/391/1/012040

“ Heat Capacity Measurement of Heavy Fermion YbCo₂Zn₂₀ under Magnetic Field ” R. Yamanaka, K. Matsubayashi, Y. Saiga, T. Kawae and Y. Uwatoko, J. Phys.: Conf. Ser. 391 012078 (2012), 査読有り, DOI: [10.1088/1742-6596/391/1/012078](http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/391/1/012078)

“ Mechanism of Field Induced Fermi Liquid State in Yb-Based Heavy-Fermion Compound: X-ray Absorption Spectroscopy and Nuclear Magnetic Resonance Studies of YbCo₂Zn₂₀ ” 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, J. Phys. Soc. Jpn. **81** 033706 (2012), 査読有り, DOI: <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.81.033706>

“ Pressure-Induced Heavy Fermion Superconductivity in the Nonmagnetic Quadrupolar System PrTi₂Al₂₀ ” K. Matsubayashi, T. Tanaka, A. Sakai, S. Nakatsuji, Y. Kubo, and Y. Uwatoko, Phys. Rev. Lett. **109** 187004 (2012), 査読有り, DOI:10.1103/PhysRevLett.109.187004

“ 高圧力発生装置の小型化による物性測定環境の拡張 ” 松林和幸, 久田旭彦, 河江達也, 上床美也, 高圧力の科学と技術, **22** 206-213 (2012), 査読有り, https://www.jstage.jst.go.jp/article/jshpreview/22/3/22_206/_pdf

“ 容積効率にこだわった高圧セルによる 10 GPa 級 NMR 測定 ” 北川健太郎, 松林和幸, 後藤弘匡, 松本武彦, 上床美也, 八木健彦, 瀧川仁, 高圧力の科学と技術, **22** 198-205 (2012), 査読有り, https://www.jstage.jst.go.jp/article/jshpreview/22/3/22_198/_pdf

[学会発表](計 63 件)

“ 重い電子系物質における圧力・磁場誘起量子相転移 ” 松林和幸, 東京大学物性研究所 短期研究会「極限強磁場科学一場、物質、プローブのリンクから融合へ」, 2013 年 11 月 1 日, 東京大学物性研究所 (招待講演)

“ 希土類金属間化合物 RNi_3X_9 (R: 希土類金属, X: Al, Ga) のカイラル構造とその磁性 ” 大原繁男, 小林拓也, 福田智寿, 山下哲朗, 松本裕司, 山浦淳一, 宗像孝司, 田中斗志貴, 松林和幸, 上床美也, 南部雄亮, 宮崎亮一, 青木勇二, 日本物理学会 秋季大会, 2013 年 9 月 27 日, 徳島大学

“ 圧力誘起磁気秩序を示す $YbCo_2Zn_{20}$ および $YbNi_3Ga_9$ におけるメタ磁性の圧力効果 ” 松林和幸, 河江達也, 山下哲朗, 大原繁男, 北川健太郎, 上床美也, 日本物理学会 秋季大会, 2013 年 9 月 26 日, 徳島大学

“ Pressure-induced ferromagnetic order on $YbNi_3X_9$ (X=Al, Ga) ” K. Matsubayashi, T. Hirayama, Y. Uwatoko, T. Yamashita, S. Ohara, The International Conference on STRONGLY CORRELATED ELECTRON SYSTEMS 2013 年 8 月 6 日, Hongo, Tokyo, Japan

“ 中間価数物質 $YbNi_3Ga_9$ における圧力誘起強磁性秩序と価数クロスオーバー ” 松林和幸, 平山貴士, 山下哲郎, 大原繁男, 河村直己, 水牧仁一朗, 石松直樹, 北川健太郎, 上床美也, 渡辺真仁, 日本物理学会 第 68 回年次大会, 2013 年 03 月 28 日, 広島大学

“ X 線吸収・発光分光法による $YbNi_3Ga_9$ の Yb 価数の温度-圧力相図の作成 II ” 河村直己, 松林和幸, 金井典子, 林久史, 石松直樹, 水牧仁一朗, 山下哲郎, 大原繁男, 上床美也, 日本物理学会 第 68 回年次大会, 2013 年 03 月 27 日, 広島大学

“ 重い電子系物質の多重極限下比熱測定 ” 松林和幸, 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, 2012 年

11 月 23 日, 琉球大学, (招待講演)

“ Effect of Pressure on the $YbNi_3Ga_9$ Single Crystal ” T. Hirayama, K. Matsubayashi, Y. Yamashita, S. Ohara, N. Kawamura, M. Mizumaki, N. Ishimatsu, Y. Uwatoko, International Conference on Magnetism with Strongly correlated Electron Systems(SCES), 2012 年 07 月 12 日 Bexco, Busan, Korea

“ Valence Fluctuation Study by Using X-ray Absorption and Emission Spectroscopies at Yb L3-edge in $YbNi_3Ga_9$ (X=Al and Ga) ” N. Kawamura, K. Matsubayashi, H. Hayashi, N. Knai, M. Mizumaki, Y. Uwatoko, T. Yamashita, S. Ohara, International Conference on Magnetism with Strongly correlated Electron Systems(SCES), 2012 年 07 月 10 日 Bexco, Busan, Korea

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