

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13515

研究課題名(和文) 極低温、超高压下のSQUID精密磁化測定装置の開発とこれを用いた新奇量子相の研究

研究課題名(英文) Development of high precision SQUID magnetometer for measurements under high pressure and very low temperature and its application to the research on novel quantum phases

研究代表者

松本 洋介 (Matsumoto, Yosuke)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：90422443

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：常圧下の高感度SQUID磁化測定の更なる整備を行い、数十mKに至る極低温で、DC、および0.1 Hz以下に至る低周波を含むAC測定が可能になった。DC測定の感度は 10^{-8} emu以上を達成することができた。さらにピストンシリンダーセルを用いた高圧力下測定の準備をほぼ終了することができた。今後、圧力誘起量子臨界現象の研究等にこの装置が大きな威力を発揮することが期待される。一方で、常圧下のセットアップを用いて非磁性籠状物質PrV₂Al₂₀やカイラルスピン液体物質Pr₂Ir₂₀7、およびカゴメ格子反強磁性体Nd₃Sb₃Mg₂₀14の磁化測定を行い、重要な知見を得ることができた。

研究成果の概要(英文)：High precision SQUID magnetometer was developed, where we could measure DC magnetization and AC susceptibility even below 0.1 Hz of tiny samples down to a few tens mK. We achieved the sensitivity of 10^{-8} emu or higher for the DC measurements. In addition, we almost finalized the preparation of high pressure setup using a piston cylinder cell. This setup for high pressure high precision magnetization measurements will be quite useful for the studies of pressure induced quantum critical behavior and so on. On the other hand, using the set-up for ambient pressure measurements, the non-magnetic cage compound PrV₂Al₂₀, the chiral spin liquid compound Pr₂Ir₂₀7 and the Kagome antiferromagnet Nd₃Sb₃Mg₂₀14 were studied.

研究分野：低温物理。主に強相関電子系を対象とした、極低温における熱力学量の精密測定。

キーワード：磁化測定 フラストレーション磁性 多極子 軌道揺らぎ

1. 研究開始当初の背景

(1) 極低温における精密物性測定は、物理現象の本質を明らかにする上でしばしば重要な役割を果たす。その一つの顕著な例として、強相関電子系、中でもエネルギースケールの小さな f 電子系、における量子臨界現象の研究が挙げられる。ここでは磁場や圧力等のコントロールパラメータによって、その基底状態を精密に制御することが可能で、(磁氣的)量子臨界点近傍における非フェルミ液体や非従来型超伝導といった新奇な量子状態が盛んに研究されてきた。

(2) さらに近年においては、従来の磁氣的自由度に基づく枠組みを超えた、新たな量子臨界現象、およびこれに付随する新たな量子相の可能性も模索されている。中でも我々のグループが研究を進めてきた、非磁性結晶場基底状態を持つ籠状物質 $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ (Tr は Ti および V) は軌道秩序の量子臨界点を研究する上で最適の系として注目を集めている。実際に $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ においては、圧力によって軌道秩序が抑制されると同時に、重い電子超伝導が現れることが明らかになっており、その詳細な研究に期待が集まっている。

(3) また、 $\beta\text{-YbAlB}_4$ は価数揺動系であるにも関わらず、重い電子的な挙動を示し、さらには Yb 初の重い電子超伝導、チューニングのいらない量子臨界現象を示すなど、その特異な振舞いに注目が集まっている。特にチューニングのいらない量子臨界現象は、ある圧力範囲にわたって量子臨界相ともいべき新たな量子相が形成されている可能性を示しており、圧力下での熱力学量の精密実験が望まれている。

(4) 一方で、フラストレーション磁性体の新奇な量子相の研究においても、極低温精密測定は大きな役割が期待される。特に絶対零度まで磁気モーメントが秩序を示さない、量子スピン液体状態の実現と検証は、物性物理における長年の課題となっているが、近年、いくつかのケースで理論的に指摘されている、分数励起の観測など、興味深いテーマが数多くある。

(5) 極低温で期待されるこれらの新奇な現象は、しばしば試料に含まれる不純物によって、その本質を隠されてしまう。しかし、近年の試料合成技術の向上により、より本質的な測定が可能で、超純良試料が手に入る物質が数多く現れてきた。これにより、極低温における精密物性測定の重要性はさらに高まっている。しかしながら、高圧力下もしくは低磁場下における精密磁化測定は、ほとんど例が無いというのが現状である。

2. 研究の目的

(1) 上に述べた現状を打開し、強相関電子系の研究に新たな展開をもたらすべく、20 mK に至る極低温、10 GPa に到る超高压という複合極限環境下で 10^{-8} emu を超える感度を有する超精密 SQUID 磁化測定装置の開発を行う。

このような超精密測定装置はこれまでに例が無い、画期的なものである。

(2) この装置を用いた精密磁化測定によって、重い電子系における非従来型量子臨界現象、および非従来型超伝導や非フェルミ液体、さらにフラストレーション磁性体における新奇な量子相等を研究し、その起源を明らかにする。本研究では、超純良単結晶試料に対して圧力というクリーンなコントロールパラメータを用いることで、極低温における SQUID 精密磁化測定の威力を最大限に生かすことが可能である。

3. 研究の方法

(1) ^3He - ^4He 希釈冷凍機内に SQUID (超伝導量子干渉素子) を組み込むことで、20 mK に至る極低温領域で 10^{-8} emu を超える感度を有する超精密磁化測定装置を確立する。これに近年開発された 10 GPa 級対向アンビル超高压セルや従来型のピストンシリンダーセルを組み合わせることで、圧力下精密磁化測定に拡張する。

(2) この装置を用いて重い電子系における非従来型量子臨界現象、非従来型超伝導や非フェルミ液体、さらにフラストレーション磁性体における新奇な量子相等を研究する。特に、非磁性結晶場基底状態を持つ籠状物質 $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ (Tr は Ti および V) における、軌道秩序の量子臨界現象および軌道揺らぎによる新奇量子相の探索、価数揺動系 $\beta\text{-YbAlB}_4$ における量子臨界相、およびカイラルスピン液体物質 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の熱力学的特性の評価等を行う。これらの研究には我々のグループで合成した純良単結晶試料を用いることが可能である。

4. 研究成果

(1) まず常圧下の高感度 SQUID 磁化測定について、測定系の整備を行った。その結果、数十 mK に至る極低温で、DC および 0.1 Hz 以下に至る低周波を含む AC 測定を可能にすることができた。DC 磁化測定の感度はピックアップコイルの形状にもよるが、 10^{-8} emu 以上を十分に達成できることが分かった。さらにピストンシリンダーセル及び関連部品のデザイン、製作を行い、このセルを用いた高圧力下測定の準備をほぼ終了することができた。今後、高圧力下測定をさらに進めることで、 $\beta\text{-YbAlB}_4$ における量子臨界相の熱力学特性の確立や、その他の物質における圧力誘起量子臨界現象の研究といった進展が期待される。10 GPa 級対向アンビル超高压セルを用いたさらなる高圧下への拡張も今後の課題である。

(2) 一方、常圧化のセットアップを用いて非磁性籠状物質 $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ やカイラルスピン液体物質 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ 、およびカゴメ格子反強磁性体 $\text{Nd}_3\text{Sb}_3\text{Mg}_2\text{O}_{14}$ の磁化測定を行った。特に $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ においては、磁化の温度依存性の測定から、 Γ_3 非磁性結晶場基底二重項における

2 段の多極子転移に対応するわずかな異常を確認することができた。この 2 段転移の秩序パラメータは未だによく分かっていないが、軌道揺らぎが強いと考えられるこの物質においては、磁気八極子などのエキゾチックな秩序変数の実現の可能性も含めて、興味を持たれている。本実験結果によって、秩序変数の可能性について、有用な知見を得ることができた。また、カイラルスピン液体物質 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の DC 磁化測定および AC 帯磁率測定を行った。比熱測定、電気伝導度、ホール電導度測定を組み合わせることで、組成のわずかな変化と非従来型異常ホール効果の間に相関があることを明らかにした。この結果は、本物質で発見されたゼロ磁場かつ磁化ゼロでも現れる非従来型異常ホール効果の起源を探る上でも重要な知見となりうる。今後の更なる研究が望まれる。さらに、カゴメ格子反強磁性体 $\text{Nd}_3\text{Sb}_3\text{Mg}_2\text{O}_{14}$ の DC 磁化測定を行った。この物質では中性子散乱実験等から約 0.5 K でキャント磁性を伴うスカラーカイラル秩序が起きると考えられているが、ここで期待される強磁性成分を検出することで、この仮説をさらに補強することができた。

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 4 件)

- (1) P. Babkevich, M. Jeong, Y. Matsumoto, I. Kovacevic, A. Finco, R. Toft-Petersen, C. Ritter, M. Månsson, S. Nakatsuji, and H. M. Rønnow, “Dimensional Reduction in Quantum Dipolar Antiferromagnets”, *Physical Review Letters* **116**, 197202 (1-5) (2016), 査読あり, DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.116.197202>
 - (2) T. Haku, K. Kimura, Y. Matsumoto, M. Soda, M. Sera, D. Yu, R. A. Mole, T. Takeuchi, S. Nakatsuji, Y. Kono, T. Sakakibara, L.-J. Chang, “Low-Energy Excitations and Ground State Selection in Quantum Breathing Pyrochlore Antiferromagnet $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ ”, *Physical Review B* **93**, 220407(R) (1-5) (2016), 査読あり, DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.220407>
 - (3) H. Ryu, M. Abeykoon, E. Bozin, Y. Matsumoto, S. Nakatsuji and C. Petrovic, “Multiband electronic transport in $\alpha\text{-Yb}_{1-x}\text{Sr}_x\text{AlB}_4$ [$x = 0, 0.19(3)$] single crystals”, *Journal of Physics: Condensed Matter* **28**, 425602 (1-5) (2016), 査読あり, DOI: <https://doi.org/10.1088/0953-8984/28/42/425602>
 - (4) Takanori Taniguchi, Makoto Yoshida, Hikaru Takeda, Masashi Takigawa, Masaki Tsujimoto, Akito Sakai, Yosuke Matsumoto, and Satoru Nakatsuji, “NMR Observation of Ferro-Quadrupole Order in $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ ”, *Journal of the Physical Society of Japan* **85**, 113703 (1-4) (2016), 査読あり, DOI: <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.85.113703>
- 〔学会発表〕(計 12 件)
- (1) Yosuke Matsumoto, A. Magata, Y. Shimura, T. Tomita, R. Küchler, M. Brando, S. Nakatsuji, “Field Induced Quantum Criticality without Magnetism in $\alpha\text{-YbAlB}_4$ ”, SCES2016 (International conference on strongly correlated electron systems 2016) (Hangzhou, China), 2016/5/11.
 - (2) Yosuke Matsumoto, Masaki Tsujimoto, Takahiro Tomita, Akito Sakai and Satoru Nakatsuji, “Multipolar ordered states and heavy fermion superconductivity in $\text{PrT}_2\text{Al}_{20}$ ($T = \text{Ti, V}$)”(招待講演), J-Physics: 多極子伝導系の物理 平成 28 年度領域全体会議 (北海道大学(北海道札幌市)), 2016/5/28.
 - (3) 谷口貴紀, 吉田誠, 武田晃, 瀧川仁, 中村翔太, 榊原俊郎, 辻本真規, 酒井明人, 松本洋介, 中辻知, “NMR と極低温磁化測定からみた $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ の強四極子転移”, 日本物理学会 2016 年秋季大会 (金沢大学角間キャンパス(石川県金沢)), 2017/9/13.
 - (4) 眞方篤史, 松本洋介, 酒井明人, 辻本真規, 中辻知, “ $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ の低温熱膨張・磁歪における $4f$ 電子の寄与とその異方性”, 日本物理学会 2016 年秋季大会 (金沢大学角間キャンパス(石川県金沢)), 2017/9/13.
 - (5) 白椽大, 木村健太, 松本洋介, 左右田稔, 世良正一, D Yu, R.A. Mole, 竹内徹也, 中辻知, 河野洋平, 榊原俊郎, L.-J. Chang, 益田隆嗣, “ブリージングパイロクロア反強磁性体 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の低エネルギー励起と基底状態”, 日本物理学会 2016 年秋季大会 (金沢大学角間キャンパス(石川県金沢)), 2017/9/14.
 - (6) T. Tomita, K. Kuga, Y. Shimura, Y. Matsumoto, Y. Uwatoko, and S. Satoru, “Strange metal phase without magnetic criticality in heavy fermion superconductor $\beta\text{-YbAlB}_4$ ”, TPFC2017 (Topological Phases and Functionality of Correlated Electron Systems 2017) (東京大学柏キャンパス(千葉県柏市)), 2017/2/20.
 - (7) S. Suzuki, K. Takubo, K. Kuga, T. Tomita, Y. Shimura, Y. Matsumoto, H. Wadati, C. Bareille, S. Shin, S. Nakatsuji, “High temperature antiferromagnetism and Kondo insulating behavior in $\alpha\text{-YbAl}_{1-x}\text{Mn}_x\text{B}_4$ ”, TPFC2017 (Topological Phases and Functionality of Correlated Electron Systems 2017) (東京大学柏キャンパス(千葉県柏市)), 2017/2/20.
 - (8) Y. Nagaoka, Y. Shimura, A. Sakai, M. Tsujimoto, P. Gegenwart, Y. Matsumoto, A. Magata and S. Nakatsuji, “Field-Induced Quantum Critical Phenomena in $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ ”,

TPFC2017 (Topological Phases and Functionality of Correlated Electron Systems 2017) (東京大学柏キャンパス(千葉県柏市)), 2017/2/20.

- (9) A. Sakai, Y. Matsumoto, Z. Tian, and S. Nakatsuji, “ Anomalous Hall effect in nodal metallic spin ice $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ ”, TPFC2017 (Topological Phases and Functionality of Correlated Electron Systems 2017) (東京大学柏キャンパス(千葉県柏市)), 2017/2/20.
- (10) 酒井明人、松本洋介、Zhaoming Tian、中辻知, “フェルミノードを持つ金属スピンアイス $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ における異常な輸送特性”, 日本物理学会 72 回年次大会 (大阪大学豊中キャンパス(大阪府豊中市)), 2017/3/19.
- (11) 辻本真規、酒井明人、松本洋介、中辻知, “ 四極子自由度による重い電子系 $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ の多極子転移点以上における 2 チャンネル近藤効果 ”, 日本物理学会 72 回年次大会 (大阪大学豊中キャンパス(大阪府豊中市)), 2017/3/19.
- (12) 志村 恭通, Q. Zhang, B. Zeng, R. U. Schoenemann, D. Rhodes, 辻本 真規, 酒井明人, 松本 洋介, 榊原 俊郎, W. Zheng, Q. Zhou, L. Balicas, 中辻 知, “ 反強四極子秩序系 $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ の高磁場相と異方的磁気抵抗効果 ”, 日本物理学会 72 回年次大会 (大阪大学豊中キャンパス(大阪府豊中市)), 2017/3/19.

6 . 研究組織

(1)研究代表者

松本 洋介 (Matsumoto, Yosuke)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号 : 90422443