

令和 6 年 4 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K13870

研究課題名（和文）Yb141系が持つ価数とスピンの量子臨界現象の研究

研究課題名（英文）quantum criticality from valence and spin fluctuations in Yb141 system

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） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は価数ゆらぎとスピン揺らぎが共存する候補物質群であるYb141系に注目し、試料合成から複数のミクロ測定まで、多角的な研究を実施した。その結果、YbCu4NiとYbCu4Auの単結晶育成に成功した。YbCu4Niでは、巨大な電子比熱係数の起源はKondo disorderではなく、量子臨界性であることを決定することができた。YbCu4Auでは、二重臨界点が存在するという予想外の結果をえることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

最近の物理学の重要なテーマである異方の超伝導やスピン液体状態は、量子揺らぎに由来する臨界現象として議論されている。そのため、新奇物性探索に新たな量子臨界性を示す物質の探索がなされ、同一物質系における異なる自由度の量子臨界現象の発現が、臨界現象の理解の深化のために注目されている。しかし、多重極限環境下で量子臨界性は出現することが多いことが、研究の障害の一つになっていた。本研究では、量子臨界性を示す物質の探索を行い、新物質を含めて複数の量子臨界物質の決定を行うことができた。

研究成果の概要（英文）：In this study, we focused on the Yb141 system, a group of candidate materials in which valence and spin fluctuations coexist, and performed a multifaceted study ranging from sample synthesis to microscopic measurements. As a result, we succeeded in growing single crystals of YbCu4Ni and YbCu4Au. We determined that the origin of the huge electronic specific heat coefficient in YbCu4Ni is not the Kondo disorder but quantum criticality, and the bicritical point exists in YbCu4Au.

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 重い電子系

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

重い電子系では、局在スピン間相互作用と近藤効果が競合している。両者が拮抗する場合には、量子相転移と呼ばれる絶対零度での二次相転移が現れる。その臨界点近傍では、大きな量子揺らぎに起因して異常金属や異方的超伝導などの特異な物性が出現する。これまで、候補物質の豊かさと確立した観測手法の存在から、磁気的量子臨界現象が主な研究対象であった。しかし、新奇物性の探索と解明が活発な現在、新たな自由度による量子臨界現象が注目されている。その最有力候補として価数が脚光を浴びている。特に、近藤効果の強い重い電子系では、伝導電子と f 電子の斥力が、 f 電子の運動エネルギーと競合する場合に、電子の出入りによるイオンの価数揺動状態が実現し、価数起源の量子臨界現象が生じることが理論的に指摘されている。このように、スピンと価数由来の量子臨界現象は近藤効果が関係しており、両者は統一な枠組みで理解できると考えられている。しかし、異なる自由度の量子臨界現象を統一な学理とするには、同じ結晶構造で価数とスピンの量子臨界性を有する物質群を見出し、価数と臨界現象を結びつける観測手段を確立するという、2つの実験上の問題がある。そこで、我々はまずは候補物質である YbCu_4Ni と YbCu_4Au の単結晶育成に挑戦し、純良な単結晶を得ることができた。本研究では我々が合成したこれらの試料を用いて、基礎物性測定から複数のマイクロ物性測定を包括的に行い、これらの物質の臨界性を調べた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、 YbCu_4Ni と YbCu_4Au に対して純良な試料を合成し、それぞれの臨界性の起源を決定することである。

3. 研究の方法

試料の合成方法について、 YbCu_4Ni は文献 1 で、 YbCu_4Au は文献 2 で報告した。それぞれの物質について、実施した実験について下記に記す。

【 YbCu_4Ni 】

試料の純度を調べるために、粉末 X 線回折実験と粉末中性子回折実験を行った。粉末中性子回折実験は、JRR-3 の T1-2 AKANE と T1-3 HERMES で行った。電気抵抗測定は、2 K 以上は Quantum Desing 社の PPMS を用いて、2 K 以下は東京大学物性研究所との共同研究で希釈冷凍機を用いて、通常の ac 電気抵抗率を 4 端子法で測定した。磁化測定は、Quantum Desing 社の MPMS を用いた。 μSR 測定は、2 K 以上は Rutherford Appleton 研究所の RIKEN-RAL の ARGUS で、2 K 以下は J-PARC の MLF の S1 と D1 ラインで測定を行った。

【 YbCu_4Au 】

試料の純度を調べるために、粉末 X 線回折実験と粉末中性子回折実験を行った。粉末中性子回折実験は、JRR-3 の T1-2 AKANE と T1-3 HERMES で行った。電気抵抗測定は、2 K 以上は Quantum Desing 社の PPMS を用いて、2 K 以下は東京大学物性研究所との共同研究で希釈冷凍機を用いて、通常の ac 電気抵抗率を 4

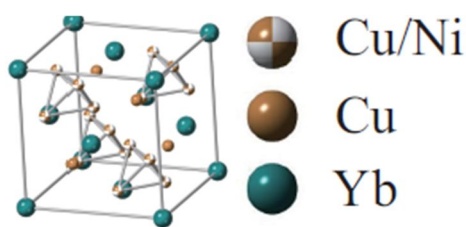


図 1. YbCu_4Ni の結晶構造[1].

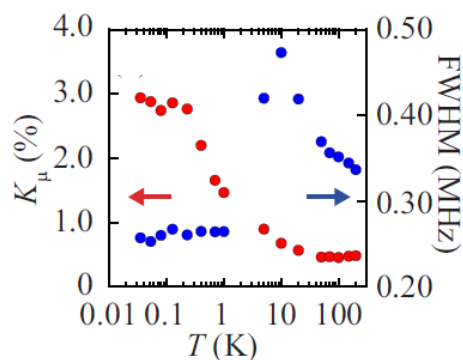


図 2. YbCu_4Ni の Knight shift とフーリエスペクトルの線幅の温度依存性 [1].

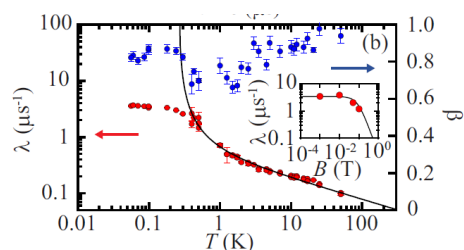


図 3. YbCu_4Ni の $I = \exp(-\lambda t)^\beta$ で LF のタイムスペクトルをフィッティングして得られたスピン緩和率の温度依存性[2]。挿入図はスピン緩和率の磁場依存性。

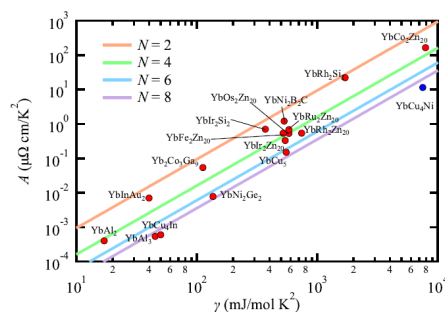


図 4. Yb 化合物の Kadowaki-Woods plot[1].

端子法で測定した。磁化測定は、Quantum Desing 社の MPMS を用いた。比熱測定は、2 K 以上は Quantum Desing 社の PPMS を用いて、2 K 以下は東京大学物性研究所との共同研究で希釈冷凍機を用いて測定した。 μ SR 測定は、2 K 以上は Rutherford Appleton 研究所の RIKEN-RAL の ARGUS で、2 K 以下は J-PARC の MLF の D1 ラインで測定を行った。XAS 測定は Spring-8 の BL39XU で測定した。NMR は東北大学金属材料研究所の強磁場センターで測定した。

4. 研究成果

我々は、 YbCu_4Au は常圧・ゼロ磁場で強磁性揺らぎを持った量子臨界物質で、 YbCu_4Au は ~ 1 T で二重臨界点を持つ物質であることを明らかにした。下記にそれぞれの詳細を述べる。

【 YbCu_4Ni 】

粉末中性子回折実験から、 YbCu_4Ni は先行研究で提案されていた結晶構造ではなく、本質的に結晶に disorder を含む構造(図 1)であることを決定した[1]。そのため、巨大な電子比熱係数の起源には、(i) Kondo disorder と(ii) 量子臨界性の 2 つの可能性がある。そこで、我々は両者の可能性を決定するために、局所的な磁場分布を調べることのできる TF- μ SR 測定を行った。Kondo disorder の場合、近藤温度が分布しているので、磁化率の増大に伴って局所磁場分布は増大する。今回、Kondo disorder の振る舞いとは逆に磁化率の増大に伴って局所磁場分布は減少した(図 2)。そのため、 YbCu_4Ni は量子臨界物質であると我々は結論づけた。さらに、LF- μ SR 測定から、 YbCu_4Ni が持つスピン揺らぎは強磁性的であることが分かった(図 3)。この強磁性揺らぎが価数揺らぎと関係があるのかは現在のところも明瞭な証拠は得られていない。さらに、Kadowaki-Woods plot から、 YbCu_4Ni は大きな縮減度を持った量子臨界物質であることも明らかになった(図 4)。

【 YbCu_4Au 】

粉末中性子回折実験から、 YbCu_4Au の結晶構造は先行研究の提案通りであることを確かめた(図 5)。さらに、磁場角度回転 NMR から、我々が測定に用いた単結晶はシングルドメインの純良な単結晶試料であることを確かめた。この単結晶を用いた比熱測定と電気抵抗測定から、 YbCu_4Au は逐次転移を示すことが明らかになった(図 6)。また、AKANE による粉末中性子回折実験から、中間相と低温相は 1 次転移であることが分かった(図 6)。2 T 以上では価数クロスオーバーが提案されていたが、XAS 測定では明瞭な Yb の価数変化は観測されなかった。そのため、 YbCu_4Au は価数揺らぎをもつ量子臨界物質ではないことが明らかになった。しかし、比熱測定により、 YbCu_4Au は ~ 1 T 近傍に二重臨界点を持つ希少な物質であることが分かった。今後の課題は、この二重臨界点近傍の電子状態を決定することである。

[1] K. Osato, T. Taniguchi* *et al.*, *Phys. Rev. B*, **109**, 024435 (2024).

[2] T. Taniguchi *et al.*, *submitted*.

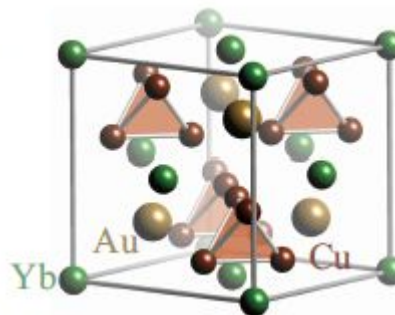


図 5. YbCu_4Au の結晶構造[2]。

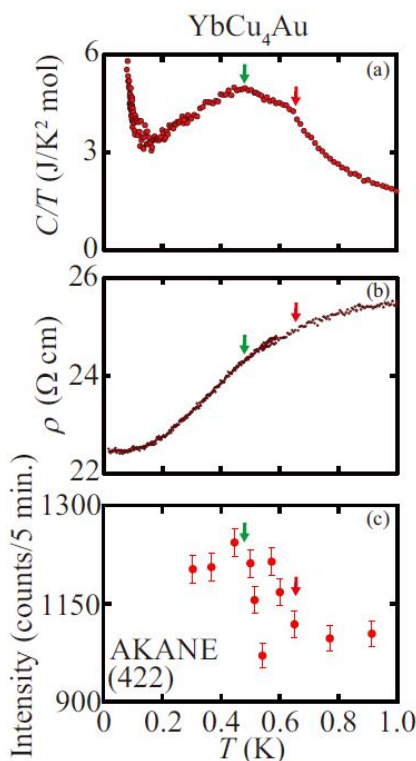


図 6. YbCu_4Au の(a) 比熱、(b) 電気抵抗、(c) NPD 強度の温度依存性 [2]。

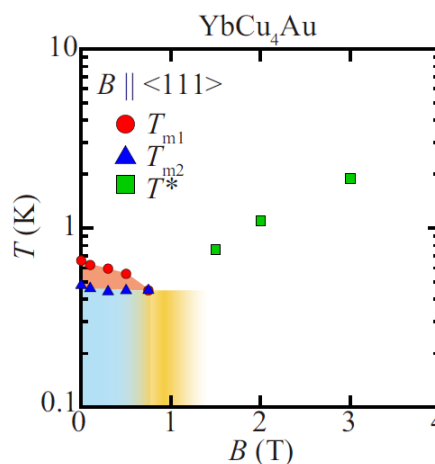


図 7. YbCu_4Au の温度 - 磁場相図 [2]。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 Taniguchi Takanori, Kitagawa Shunsaku, Ishida Kenji, Asano Shun, Kudo Kota, Takahama Motofumi, Xie Peiao, Noji Takashi, Fujita Masaki	4. 巻 91
2. 論文標題 139La-NMR Study of Spin Dynamics Coupled with Hole Mobility in T*-type La _{0.86} Eu _{0.86} Sr _{0.28} CuO ₄ -	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 74710
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.91.074710	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, Kitayama Shinnosuke, Okabe Hiroataka, Nakamura Jumpei G., Koda Akihiro, Ishikado Motoyuki, Fujita Masaki	4. 巻 92
2. 論文標題 Magnetic Instability of Pr ₃ Ru ₄ Sn ₁₃	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124703
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.92.124703	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 Osato Kotaro, Taniguchi Takanori, Okabe Hiroataka, Kitazawa Takafumi, Kawamata Masahiro, Hongfei Zhao, Ikeda Yoichi, Nambu Yusuke, Sari Dita Puspita, Watanabe Isao, Nakamura Jumpei G., Koda Akihiro, Gouchi Jun, Uwatoko Yoshiya, Fujita Masaki	4. 巻 109
2. 論文標題 Quantum criticality in YbCu ₄ Ni	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 24435
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.109.024435	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 -

〔学会発表〕 計13件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Kotaro Osato, Takanori Taniguchi, Hiroataka Okabe, Yoichi Ikeda, Yusuke Nambu, Jun Gouchi, Yoshiya Uwatoko, Dita Puspita Sari, Isao Watanabe, Akihiro Koda, Masaki Fujita
2. 発表標題 Muon spin relaxation study in heavy fermion compound YbCu ₄ Ni
3. 学会等名 6th International Conference on Functional Materials Science 2022（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yasukuki Shimura, Kenta Watanabe, Takanori Taniguchi, Kotaro Osato, Rikako Yamamoto, Yuka Kusunose, Kazunori Umeo, Masaki Fujita, Takahiro Onimaru, and Toshiro Takabatake
2. 発表標題 Adiabatic Demagnetization Refrigeration with Heavy-Fermion Metal YbCu ₄ Ni down to 0.2 K
3. 学会等名 The 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kenta Watanabe, Yasuyuki Shimura, Takanori Taniguchi, Kotaro Osato, Rikako Yamamoto, Yuka Kusunose, Kazunori Umeo, Masaki Fujita, Takahiro Onimaru, and Toshiro Takabatake
2. 発表標題 Magnetic refrigeration below 1 K using a Yb-based intermetallic compound YbCu ₄ Ni
3. 学会等名 The 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takanori Taniguchi, Kotaro Osato, Yusuke Nambu, Yoichi Ikeda, Jun Gouchi, Yoshiya Uwatoko, Shunichiro Kittaka, Toshiro Sakakibara, Dita Puspita Sari, Isao Watanabe, Akihiro Koda, and Masaki Fujita
2. 発表標題 Single crystal growth and magnetism of YbCu ₄ Au
3. 学会等名 The 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kotaro Osato, Takanori Taniguchi, Yoichi Ikeda, Yusuke Nambu, Jun Gouchi, Yoshiya Uwatoko, Dita Puspita Sari, Isao Watanabe, Akihiro Koda, Masaki Fujita
2. 発表標題 Quantum critical phenomena in heavy fermion compound YbCu ₄ Ni
3. 学会等名 The 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 谷口 貴紀, 大里 耕太郎, 岡部 博孝, 池田 陽一, 南部 雄亮, Dita Puspita Sari, 渡邊 功雄, 幸田 章宏, 藤田 全基
2. 発表標題 磁場誘起量子臨界性を示すYbCu ₄ AuのmuSRによる逐次転移の観測
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大里 耕太郎, 谷口 貴紀, 岡部 博孝, 池田 陽一, 南部 雄亮, 郷地 順, 上床 美也, Dita Puspita Sari, 渡邊 功雄, 幸田 章宏, 藤田 全基
2. 発表標題 中性子回折とミュオンスピン回転法による重い電子系YbCu ₄ Niの極低温磁性
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大里耕太郎, 谷口貴紀, 池田陽一, 南部雄亮, 郷地順, 上床美也, D. P. Sari, 渡邊功雄, 幸田章宏, 藤田全基
2. 発表標題 ミュオンスピン回転法からみたYbCu ₄ Auの量子臨界現象の研究
3. 学会等名 第142回金属材料研究所講演会
4. 発表年 2022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 Yb ₁₄₁ system investigated by mu+SR
3. 学会等名 Materials Research Meetings
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 渡邊寛大, 志村恭通, 谷口貴紀, 大里耕太郎, 梅尾和則, 藤田全基, 鬼丸孝博, 高畠敏郎
2. 発表標題 重い電子系金属間化合物(Yb _{1-x} Yx)Cu ₄ Niの比熱測定による磁気冷凍性能の評価
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 富田光太郎, 志村恭通, 渡邊寛大, 谷口貴紀, 梅尾和則, 藤田全基, 鬼丸孝博, 高畠敏郎
2. 発表標題 重い電子系磁気冷凍材料YbCu ₄ Niの大型化による低温の保持時間の延長
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 谷口貴紀, 大里耕太郎, 河村直己, 水牧仁一朗, 山中隆義, 開康一, 佐々木孝彦, 藤田全基
2. 発表標題 YbCu ₄ Auの高磁場電子状態
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 谷口貴紀, 北山慎之介, 岡部博孝, 中村惇平, 幸田章宏, 石角元志, 藤田全基
2. 発表標題 Pr ₃ Ru ₄ Sn ₁₃ の単結晶育成と磁気不安定性
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2024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
---------	---------