

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：18001

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540419

研究課題名(和文) 高圧下における重い電子系超伝導の価数ゆらぎ効果の研究

研究課題名(英文) Effect of valence fluctuation in heavy fermion superconductors under pressure

研究代表者

阿曾 尚文 (Aso, Naofumi)

琉球大学・理学部・准教授

研究者番号：40313118

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円、(間接経費) 1,230,000円

研究成果の概要(和文)：理論により価数揺らぎが量子臨界点近傍で起こることが指摘されている，重い電子系CeIrIn₅の単結晶試料を用いた極低温領域までの高圧力下物性測定を行い，量子臨界点近傍での反強磁性と超伝導に関する新たな知見を得た．

また，圧力誘起磁気秩序を示すYb系化合物で最も量子臨界圧力が低いYbCo₂Zn₂₀に着目し，置換系化合物の単結晶試料を育成することに成功し，圧力効果に関する新たな知見を得た．

研究成果の概要(英文)：In this investigation, we found new information of the relationship between superconductivity and antiferromagnetism in vicinity of quantum critical point by means of the physical properties measurements under pressure of a single-crystalline CeIrIn₅, in which it has been pointed out that valence fluctuation takes place near the quantum criticality point by theory,

Next, we focus on a pressure-induced antiferromagnet YbCo₂Zn₂₀ with the smallest quantum critical pressure in Yb-based heavy fermion compounds. We succeeded in the single-crystalline doped YbCo₂Zn₂₀ and found new information of its pressure effect.

研究分野：物理学

科研費の分科・細目：物性II

キーワード：重い電子 超伝導 価数揺らぎ 量子臨界点 低温物性 圧力磁化 中性子散乱

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系化合物では、圧力印可や元素置換等により磁氣的或は他の量子相転移が生じ、圧力誘起磁気相や超伝導等の新規な物性現象が現れる格好な研究対象となっている。

電子と正孔の類似性的観点により、理論・実験の両側面からしばしば Ce (4f 軌道に電子が 1 つ) と対比される Yb (4f 軌道に正孔が 1 つ) を含む化合物についても、圧力や磁場を制御変数とした磁気量子臨界現象の研究が精力的に行われ始め、三宅・渡辺らの理論グループにより、価数揺らぎが量子臨界点近傍で起こることが指摘され、Yb 系の量子相転移物質や、CeIrIn₅ のメタ磁性が価数揺らぎで生じることが理論により説明され始めた。

そこで、高圧下における重い電子系超伝導体の量子相転移と価数揺らぎ効果が、極低温下の物性測定にどのように現れるのか、或は中性子散乱によりどのように観測可能であるのかはまだ未解明の部分が多い。

2. 研究の目的

(1) CeIrIn₅ は常圧で常磁性を示し、 $T_{sc} \sim 0.4$ K 程度の温度で超伝導を生じる。加圧とともに T_{sc} は上昇し、2.5 GPa 付近で最大の 0.7 K 程度を示し、その後減少する。これに対し、通常量子臨界点で増大の傾向を示す比熱の圧力依存性はこれとは逆に常圧の値より加圧とともに減少する傾向を示す。以上より、この物質では、そもそもこの圧力に量子臨界点があるのか不明のままである。これに対し、価数揺らぎの理論によれば、特に CeIrIn₅ の常圧における磁場中メタ磁性転移とそれに伴う非フェルミ液体的振る舞いは、Ce の価数量子臨界点が磁場によって誘起されると指摘されている。そこで、本研究では圧力下輸送現象（電気抵抗、熱電能等）の研究により、価数量子臨界点・臨界価数転移の立場から、CeIrIn₅ の量子臨界点に関する新たな知見を得ることを目的とした。

(2) YbCo₂Zn₂₀ は約 1.5 GPa で圧力誘起磁気相を示す Yb 化合物である。この臨界圧力はこれまで報告された Yb 化合物中で最も小さい物質であり、格好の研究対象である。そこで、YbCo₂Zn₂₀ 中の適当な元素を別の元素で置換することにより、圧力をかけずに磁気相を示す単結晶試料を開発することは、圧力中の研究が難しい測定方法には有効な研究対象となる。そこで、この置換系の単結晶試料の開発を目指した。

(3) CeRhIn₅ の温度-圧力相図上で最も興味深い点は、加圧によって反強磁性転移温度が減少し、反強磁性相と超伝導相が交差する圧力で、一次相転移的に突然反強磁性相が消失す

ると指摘されている点で、これまでの他の圧力誘起超伝導体には見られない特徴である。しかし、ミクロな手段である中性子回折による検証はなされていない。また、我々の単結晶を用いた中性子回折では、磁気構造のスイッチングが 1.5 GPa で起きる。このスイッチングは超伝導転移温度に対応しているように見える。これらの量子相転移に関する 2 点について新たな知見を得ることを目指した。

3. 研究の方法

(1) 極低温物性測定用小型圧力セルの開発

Ce の磁気モーメントは大きくないため、Ce 系の微小磁気モーメントの圧力下磁化測定はほとんど無いと言ってよい。そこで、MPMS 磁化測定装置によりこれらが測定可能になるようなピストンシリンダー型圧力容器を試作し性能評価を行ったところ、有効磁気モーメントの圧力依存性の議論が可能となるような結果を得た。

(2) 極低温研究環境の構築

極低温各種物性測定のために、「ピコボルトメーター」を購入した。また、「超低雑音差動増幅器」や「電圧平衡型 V-I コンバーター」等も取得またはパーツ組合せ工作し、交流法による微小電気抵抗装置や磁化率測定装置も構築出来た。

4. 研究成果

(1) CeIrIn₅ の圧力下物性

In フラックス法により育成された CeIrIn₅ の単結晶試料を用いて、圧力中の各種物性測定を行った。

CeIrIn₅ の電気抵抗率は 8 GPa までの圧力の範囲で、*a* 軸、*c* 軸の 2 つの軸方向に電流を流して測定した。何れの圧力でも高濃度近藤効果的振る舞いを示し、その極大を示す温度は、圧力とともに単調な増加を示した。また、*a* 軸に熱流を流した圧力下 (2.2 GPa まで) の熱電能は 4-300 K の温度範囲で数十 μ V/K のオーダーを示し通常金属と比べて一桁大きな値をもつ重い電子系に特徴的な振る舞いであることが分かった。また、何れの圧力でも、熱電能は室温から降温とともに上昇し、30 ~ 50 K 付近に極大を示した後、ゼロに向かって減少する。その極大を示す温度は圧力に対して単調に増加を示した。電気抵抗と熱電能の極大温度はスケールでき、圧力により近藤温度が増大したと解釈した。

CeIrIn₅ の *a* 軸、*c* 軸の 2 つの軸方向に磁場引加した磁化率を 1.5 GPa まで圧力中で測定した。両方向で磁化率の絶対値は圧力とともに減少する。(但し、高温側では 1 割程度の減少であるのに対し、低温側では 2 割~4 割程度の減少となる。) 100 K 以上におけるキュリー-ワイス則の解析により有効ボーア磁子数を求めると、常圧での 2.4 μ_B の値に対し、1.5 GPa では、それぞれの軸方向に対

して, $2.4 \mu\text{B}$ (a 軸), $2.2 \mu\text{B}$ (c 軸) となった。また, ワイス温度は, c 軸方向では圧力に対してあまり変化が無かったが, a 軸方向で負の値の絶対値が増大することとなった。以上の磁気モーメントの観点からは, 高温側の局在モーメントに 1.5 GPa 程度の圧力では大きな影響を及ぼさないこと, 及び低温側ではより大きな圧力効果があることが示された。

CeIrIn₅ の極低温領域での電気抵抗の測定結果から, 電気抵抗率の係数 A やベキ乗 n や残留抵抗値 ρ_0 の圧力依存性を解析により求めた。なお, CeIrIn₅ は 0.4 K 以下でバルクな超伝導を示すが, 1.2 K 以下でフィラメンタリーな超伝導があるので, 磁場をかけて超伝導を壊した測定も行った。結果より, ρ_0 は顕著な圧力依存性を示さない。 A は低圧力では重い電子系特有の大きな値を持つが, 過去の報告と同様に圧力増加とともに小さくなる。また, n も過去の報告と同様に, 加圧とともに, 非フェルミ液体的振る舞いからフェルミ液体に近づくことが分かった。

(2) YbCo₂Zn₂₀ 置換系化合物の単結晶試料育成と物性測定

Yb 化合物の中で最も低い圧力で磁気秩序を示す化合物である YbCo₂Zn₂₀ に関して, 適当な元素を置換することにより化学圧力で磁気秩序を実現するために, Co 元素を Ni 元素に置換した単結晶を育成した。また, 予備的な実験ではあるが, Ni 置換とともに近藤温度が減少する傾向が見られ, 圧力効果と似た振る舞いであることが分かった。今後より詳細な各種物性測定がなされ, 進展が期待される。

(3) 中性子回折による CeRhIn₅ における反強磁性相と超伝導の相関

平成 23 年 3 月に起きた東日本大震災により, 日本原子力研究開発機構の研究用原子炉は平成 23 から 25 年度までの期間において, 稼働運転は実現せず, 極低温における圧力下中性子回折による研究を行うことは出来なかった。なお, 当該期間においては日本で中性子散乱研究が可能な大強度陽子加速器施設 (J-PARC) では極低温・圧力下での実験は十分に出来なかったこと, 外国での中性子散乱施設での研究も経費の面で不可能であったことを付記する。

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 9 件)

Hidekazu A. Tanaka, Naofumi Aso, Masato Hedo, Takao Nakama, Yoshinao Takaesu, Hiroki Iida, Noriaki Kimura, Haruyoshi Aoki: Thermoelectric power in single-crystalline CeRhSi₃, Journal of the Korean Physical Society, 査読有, Vol. 62, 2013, 2016-2018.

DOI: 10.3938/jkps.62.2016

N. Aso, M Takahashi, H Yoshizawa, H Iida, N Kimura and H Aoki: Neutron Diffraction in the Pressure-Induced Superconducting Antiferromagnet CeIrSi₃, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 400, 2012, 022003-1-4.

DOI: 10.1088/1742-6596/400/2/022003

Naofumi Aso, Masaki Takahashi, Hideki Yoshizawa, Hiroki Iida, Noriaki Kimura, and Haruyoshi Aoki, Spin Density Wave Ordering in CeIrSi₃, Journal of the Physical Society of Japan. 査読有, Vol. 80, 2011, 095004-1-2.

DOI: 10.1143/JPSJ.80.095004

[学会発表] (計 27 件)

阿曾尚文, 松林和幸, 上床美也, 吉沢英樹, YbCo₂Zn₂₀ の中性子散乱, 日本物理学会第 69 回年次大会, 2014 年 3 月 28 日, 東海大学湘南キャンパス

N. Aso, Y. Tamaki, Y. Takaesu, K. Uchima, M. Hedo, T. Nakama, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, K. Deguchi, N. K. Sato, Physical properties under pressure in a heavy fermion superconductor CeIrIn₅, The international conference on strongly correlated electron systems (SCES 2013), 2013 年 8 月 6 日, 東京大学伊藤国際学術研究センター

Naofumi Aso, Neutron scattering studies in non-centrosymmetric superconductors CeTSi₃ (T=Rh, Ir), The 12th Korea-Japan Meeting on Neutron Science, 2013 年 02 月 04 日, 琉球大学

Naofumi Aso, Y. Tamaki, Y. Takaesu, M. Hedo, T. Nakama, K. Uchima, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, Y. Ishikawa, K. Deguchi, N. K. Sato, Physical properties under pressure in a heavy fermion superconductor CeIrIn₅, The 19th International Conference on Magnetism (ICM 2012), 2012 年 07 月 09 日, Bexco, Busan, South Korea

阿曾尚文, 藤原哲也, 上床美也, f 電子系の高圧力下における中性子散乱, 第 52 回高圧討論会, 2011 年 11 月 10 日, 沖縄キリスト教学院

Y. Takaesu, N. Aso, Y. Tamaki, M. Hedo, T. Nakama, K. Uchima, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, Y. Ishikawa, K. Deguchi, N. K. Sato, Electrical Resistivity of a Heavy Fermion Superconductor CeIrIn₅ under High Pressure up to 8.0 GPa, 23rd AIRAPT International Conference on High Pressure Science & Technology (AIRAPT-23), 2011 年 9 月 29 日, Bhabha Atomic Research Centre, Mumbai, India

玉置優樹, 阿曾尚文, 高江洲義尚, 辺土正人, 仲間隆男, 松林和幸, 上床美也, 出口和彦, 佐藤憲昭, 単結晶 CeIrIn₅ の圧力下における磁化と輸送特性, 日本物理学

会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 24 日, 富
山大学

〔その他〕
ホームページ等
なし

6 . 研究組織

(1)研究代表者

阿曾 尚文 (ASO NAOFUMI)
琉球大学・理学部・准教授
研究者番号 : 40313118