

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 4 月 18 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：2012～2013

課題番号：24840003

研究課題名(和文)希土類化合物における新奇な量子臨界現象と幾何学的フラストレーションの研究

研究課題名(英文)Research of novel quantum criticality and frustration effect on lanthanide compounds

研究代表者

壁谷 典幸(Noriyuki, Kabeya)

東北大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：70633642

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円、(間接経費) 630,000円

研究成果の概要(和文)：量子臨界点(量子揺らぎによって引き起こされる臨界点)を2点持つ特異な希土類化合物について、その起源を明らかにするための研究を行った。量子臨界点への到達の方法として圧力の印加と元素の置換を用いた。臨界揺らぎの情報を得る手段として圧力下物性測定手法の開発を行い、比熱測定装置を完成させた。圧力印加による量子臨界点へのアプローチでは、反強磁性転移と見られる電気抵抗の異常を見出した。また元素置換によるアプローチでは、量子臨界点の近傍に位置する単結晶試料の育成に成功し、低温で比熱が対数的に増大する振る舞いを見出した。

研究成果の概要(英文)：This Research is about quantum critical point (QCP), which is the critical point caused by quantum fluctuation. We have used pressure and substitution of element as the method of approach to the QCPs. To obtain the information of quantum critical frustration, we have developed a handmade heat capacity measurement system. On the approach to the QCPs by pressure, an anomaly of electrical resistivity associated antiferromagnetic transition is found. On the approach to the QCPs by substitution of the element, we have succeeded to make the single crystalline samples located at the vicinity of the QCP. the sample shows the logarithmic increase of the specific heat at low temperature region.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性

キーワード：量子臨界現象 フラストレーション 強相関電子系 希土類化合物 圧力下物性測定 元素置換系

1. 研究開始当初の背景

相転移が何らかの原因によって抑制された結果生じる量子臨界現象はそれに伴う新規な基底状態や非従来型の超伝導などの多様な性質を示す魅力的な研究対象である。

その一つの例として、RKKY相互作用(磁気秩序を生じさせる相互作用)と近藤効果(磁性を遮蔽し打ち消す効果)の競合が挙げられる。遍歴電子と局在電子の混成によって生じるこれらの効果の競合について精力的な研究が行われてきた。

もう一つの例として、主に遷移金属化合物において研究が行われてきた幾何学的フラストレーションの効果が挙げられる。この効果によって磁気秩序が抑制された結果、量子臨界現象や、より広い範囲における奇妙な基底状態が実現するのではないかと期待されている。絶縁体における幾何学的フラストレーションは既に多くの研究がなされており、近年では結晶中を遍歴する伝導電子への幾何学的フラストレーションの影響が注目されてきた。

研究開始当初までの研究によって、伝導電子の少ない希土類化合物における幾何学的フラストレーションの影響が注目されつつあった。伝導電子が少ないことで、それを媒介としたRKKY相互作用及び近藤効果の競合と、フラストレーションの影響が共存しているのではないかと考えられ、その結果として新規な量子現象の出現が期待されていた。

2. 研究の目的

本研究では、希土類化合物 $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ と関連物質に注目し、これらの物質が示す奇妙な相図と、その背後に潜むと期待されるRKKY相互作用と近藤効果の競合に対するフラストレーションの影響に迫るものである。

具体的には、 $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ の示す2つの量子臨界点における特徴的な揺らぎとその原因を明らかにすること、及び常磁性相および磁気秩序相の基底状態を明らかにすることを最終目的に設定し研究を行った。

$\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ の特徴的な点は、通常であれば1点である量子臨界点が2点あり、それらが1つのパラメータ(具体的には印加圧力)の調整のみによって到達可能である点である。これら2点の量子臨界点のうち、一方は従来のRKKY相互作用と近藤効果の競合によって理解できると考えられるが、もう一方についても同様の考え方で理解できるかは定かではない。さらに、この物質の示す半金属的な振る舞いと幾何学的フラストレーションのある結晶構造(具体的には、磁性を担うYb原子が“シャストリー・サザーランド格子”という構造を形成している。)を考慮すると、このような新規な相図を示す原因の有力候補としてフラストレーションが挙げられる。この物質の量子臨界点の特徴について研究を行うことで、近藤効果、RKKY相互

作用、フラストレーションが共に存在する状態に関する理解を進めると共に、それらによる新規な量子臨界現象という量子臨界の概念への新しい展望が開けるのではないかと期待して本研究を推進した。

3. 研究の方法

本研究を推進するにあたり、研究に必要な事項を以下の様に分類し、それぞれの要素について研究を推進した。

(1) 【純良単結晶育成方法の確立】

本研究の対象物質である $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ は、Yb元素の蒸気圧が高いことにより、結晶育成に困難が生じる。そのため、これまでの多くの研究は多結晶試料を用いた測定が主であった。本研究では、我々の研究グループで開発した密閉タングステン坩堝を用いた方法によって単結晶育成を行い、単結晶試料の育成を行った。また、我々の研究グループの結果から、パラジウム元素をニッケル元素に一部置換することにより、圧力と同様の効果が得られることが分かっていたため、これらの試料について、ニッケル量を細かく制御した試料の作成を行った。

(2) 【圧力下における熱物性測定技術の開発】

量子臨界点の起源に迫るためには、量子臨界点における特徴的な揺らぎを検出する必要がある。この揺らぎは多くの物理量に現れるため、複数の物理量で量子臨界点近傍における測定を行うことで揺らぎの量子臨界点の特徴を掘り出すことができる。研究開始時点では、圧力下電気抵抗測定および磁化率測定が可能であったが、このうち反強磁性秩序を示す本物質について有用な情報が得られる測定手法は電気抵抗のみであった。そのため本研究では圧力下比熱測定装置の開発を目指し研究を推進した。その手始めとしてより簡便な常圧での比熱測定装置の開発を行った。また、圧力下における比熱測定法として交流法を採用し、その予備実験を行った。

(3) 【参照試料の作成】

本研究では複数の量子臨界点を示す $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ について、その量子臨界点の起源を明らかにすることを目的としていた。その起源の候補として、希土類化合物において通常見られるRKKY相互作用と近藤効果の競合の他に、フラストレーションの効果を期待していた。しかしながらフラストレーションの効果による量子臨界点がどのような臨界揺らぎの性質を示すのかは明らかではなかった。そのため、そのような性質を示す典型物質を作成し、本研究の参照物質とした。具体的には $\text{Ce}_2\text{Pt}_2\text{Pb}$ の単結晶育成を行い、比熱、磁化、電気抵抗測定を行った。

(4) 【量子臨界点へのアプローチ】

試料作成と並行して、 $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ における圧力下測定を行った。まず、2点の量子臨界点へのアプローチを圧力のチューニングによって行った。1点目の量子臨界点は

約 1 GPa に位置しており、比較的容易に到達できた。2 点目の量子臨界点は約 4 GPa に位置しているため、我々の研究グループで使用している圧力セルを用いた到達は困難が予想されるが、予備実験として内径の小さな圧力セルを用いた限界圧力の測定を行った。この困難は当初から予想されたため、並行して元素置換による化学圧力を用いて量子臨界点へのアプローチを行った。具体的には先の項目で作成したパラジウム元素を原子半径の小さい同族元素であるニッケル元素で置き換えることで、高圧力と同等な状況を作り出した。

4. 研究成果

本研究によって得られた成果を研究方法の項目ごとに以下に示す。

(1) 【 純良単結晶育成方法の確立 】

密封タンクステン坩堝を用いた方法により、Yb₂Pd₂Sn の単結晶試料育成に成功した。より良い単結晶試料育成の方法を確立するため、ブリッジマン法を用いて温度や引下げの速度を調節したところ、一定温度で長時間保持することが適切であることが見出された。作成された試料のグレインサイズの増大を試みた結果、最大で 2mm 角程度の単結晶を得ることができた。

元素置換による化学圧力印可においては、パラジウム元素をニッケル元素に一部置換した試料の作成を行い、ニッケル量 5 %、8 % の単結晶試料を得た。これらと、あらかじめ作成されていたニッケル量 10 %、20 % の試料を合わせて元素置換による化学的圧力を用いた量子臨界点へのアプローチの準備とした。さらに、ニッケル量を 100 % にした試料の作成も試みたが、こちらは失敗に終わった。X 線回折実験から、ニッケル元素置換を行った試料は単結晶の大きさが比較的小さく、1mm 角程度もしくはそれ以下であることを確認した。また、結晶性はニッケルの増大と共に悪くなることも確認された。研究後期では、より純良な単結晶試料の育成のため、フラックス法を用いた試料作成の準備を行った。この方法による試料育成は今後の課題である。

(2) 【 圧力下における熱物性測定技術の開発 】

本研究の目的の一つである高圧力下の物性測定装置を開発するため、その手始めとしてヘリウム 3 冷凍機における比熱測定装置の開発を行った。作成した装置は最低到達温度約 0.5K、最高磁場 14T であり、比熱の測定は最高で 250K まで可能である。この装置に近い性能を持った装置は市販されているものの非常に高価（一千万円程度）であり、また 14T もの高磁場下での測定は不可能である。本装置の作成に要した費用は数十万円程度であるため、国民の貴重な財源による研究費を適切に運用できたと考えている。

(3) 【 参照試料の作成 】

本研究で期待しているフラストレーシ

ョンに起因した量子臨界点の特徴を探るため、本研究対象物質である Y₂Pd₂Sn と同様の結晶構造を持つ Ce₂Pt₂Pb の結晶育成を行い、単結晶育成に世界で初めて成功した。これまでの多結晶を用いた報告では、Ce₂Pt₂Pb はフラストレーション起源の量子臨界点近傍に位置する物質であると考えられてきた。これが本当であれば、本研究の参照物質として適切であると考えられた。しかしながら、我々の作成した単結晶試料において、比熱（本研究において作成された装置を用いた）、磁化、電気抵抗測定を行ったところ、約 3K において磁気秩序が発現することが見出された。この磁性についての考察を行うため、温度 磁場をパラメータとした磁気相図の作成を行った。また、この物質における磁気異方性から磁気秩序状態についての考察を行い、らせん磁性の可能性を指摘した。これらの結果にの論文を現在執筆中である。

(4) 【 量子臨界点へのアプローチ 】

本研究で作成した試料を用いて量子臨界点へのアプローチを行った。圧力印可によるアプローチでは、約 1 GPa において、希釈冷凍機温度までの電気抵抗測定を行い、反強磁性秩序に伴うものと考えられる異常を見出した。さらなる高圧における物性測定、及び圧力下比熱測定については、研究期間中に達成することは叶わなかったため、今後の課題となった。

一方で、化学圧力を用いた量子臨界点へのアプローチには大きな進展があった。作成に成功した試料を用いた電気抵抗測定及び比熱測定を行った結果、ニッケル量が 5 % の試料において比熱が測定温度下限まで $-T \ln T$ に比例して増大していく振る舞いを見出した。この振る舞いは、磁場に対して非常に鈍感であり、広い磁場範囲で量子臨界的な振る舞いを示すことを明らかにした。また、それぞれの試料において電気抵抗測定を行っており、ここからもニッケル 5 % の試料が量子臨界点近傍に位置すると考えられる結果を得ている。上記の結果についての論文を現在執筆中である。

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）

〔学会発表〕(計 7 件)

- (1) 佐藤直樹, 壁谷典幸, 中村慎太郎, 加藤健一, 野島勉, 落合明, 日本物理学会 第 69 回年次大会、2014 年 3 月 30 日、神奈川県
- (2) 壁谷典幸, 佐藤竜真, 木村憲彰, 落合明, 日本物理学会 2013 年秋季大会、2013 年 9 月 25 日、徳島
- (3) N. Kabeya, R. Sato, F. Kikuchi, N. Kimura, E. Matsuoka, K. Katoh, A. Ochiai, SCES2013、2013 年 8 月 6 日、東京
- (4) 壁谷典幸, 佐藤竜真, 菊池文武, 木村憲

彰,青木晴善,落合明、日本物理学会 第
68 回年次大会、2013 年 3 月 27 日、広島

6 . 研究組織

(1)研究代表者

壁谷 典幸 (Kabeya, Noriyuki)
東北大学・大学院理学研究科・助教
研究者番号 : 70633642

(2)研究分担者

無し

(3)連携研究者

無し