

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 26 日現在

機関番号：18001

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400365

研究課題名(和文) 中性子散乱によるYb化合物の量子臨界現象の研究

研究課題名(英文) Studies on quantum critical phenomena in Yb compounds by neutron scattering

研究代表者

阿曾 尚文 (ASO, Naofumi)

琉球大学・理学部・教授

研究者番号：40313118

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、高圧下における重い電子系Yb化合物の量子相転移と磁気及び価数揺らぎの効果を研究する課題であり、圧力誘起量子相転移を示す YbCo₂Zn₂₀ 及びその置換系物質の単結晶試料育成とその物性研究(主に中性子散乱)を行い、量子臨界点近傍の情報を得ることを研究目的とした。
置換系物質の単結晶試料育成を行った結果、幾つかの元素では一様に置換され、またそうでない元素もあり、物性測定によると正負の両方向の化学圧力効果が観測された。また、幾つかの元素置換では、Ce系化合物で見られたような、Yb サイトにおける高濃度近藤効果から不純物近藤効果への移り変わりに似た現象を観測できた。

研究成果の概要(英文)：This work is to study the quantum phase transition and the effect of magnetism and valence fluctuation in heavy electron Yb compounds under high pressure and particularly to grow single crystals of YbCo₂Zn₂₀ (showing pressure-induced quantum phase transition) and its substitution materials and to get some information on quantum critical points in Yb compounds by means of physical properties measurements (mainly neutron scattering).
As a result of growing single crystals of substitution substances, some elements are uniformly substituted, some elements are not. According to its physical property measurements, chemical pressure effects in both positive and negative directions were observed. In addition, with some element substitution, we could observe a phenomenon similar to the transition from the dense Kondo effect at the Yb site to the impurity Kondo effect as seen in the La substituted Ce compounds.

研究分野：物理学

キーワード：重い電子 Yb化合物 近藤効果 量子臨界点 単結晶試料 中性子散乱 YbCo₂Zn₂₀ 置換効果

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系化合物では、圧力印加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のメタ磁性等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、Yb 系化合物の量子相転移物質において、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のが現状であり、Yb 系化合物の基本的な情報・知見を得ることが求められている。

2. 研究の目的

本研究では、強相関電子系で生ずる磁気量子相転移に焦点を当て、高圧下における重い電子系イッテルビウム(Yb)化合物の量子相転移と磁気及び価数揺らぎの効果を極低温度における物性測定(主として中性子散乱研究)により明らかにすることを研究の目的とする。具体的には、以下の目的を掲げた。

(1) 圧力誘起量子相転移を示す YbCo₂Zn₂₀ 及びその置換系物質の純良単結晶試料の探索・開発

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探索・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。

(2) YbCo₂Zn₂₀ で観測される圧力誘起磁気相の磁気構造の決定

YbCo₂Zn₂₀ の圧力誘起磁気相の磁気構造決定のため、圧力中中性子回折実験が行われ磁気反射を観測したものの、反射点の少なさと強度が弱いため磁気構造の決定には至っていない。そこで、上記(1)の YbCo₂Zn₂₀ の置換系物質の探索により、元素置換による圧力効果(化学圧力)で磁気相が観測できたならば、磁気構造を決定するため中性子回折実験を行う。

(3) YbCo₂Zn₂₀ で量子臨界点近傍の磁気揺らぎの特徴を中性子散乱研究により実験的に明らかにすること

上記(2)で磁気構造が決定されれば、それを基礎にして、量子臨界点近傍の磁気揺らぎの特徴を実験的に明らかにできる可能性がある。Yb 化合物の磁気揺らぎの特徴を、セリウム(Ce)化合物のそれと比較検討することにより、Yb 化合物の量子相転移がどのような機構で生じるのかの知見を得ることとする。

3. 研究の方法

(1) YbCo₂Zn₂₀ 及びその置換系物質の単結晶試料育成とその評価

中性子散乱実験用の YbCo₂Zn₂₀ の大型単結晶試料(50 g)はフラックス法により育成した。また、置換系物質についても、基本的には類似の条件にてフラックス法により、新規に購入したマッフル電気炉、管状炉等により育成した。

育成した試料は、学内の ICP 発光装置による組成分析や、SEM 等による表面分析による試料の均一性の検証を行った。X 線粉末回折による結晶構造の確認、格子定数による正負の化学圧力の有無を確認した。問題ない試料は、磁化率、電気抵抗、比熱等の測定により、その物性を評価した。

(2) 中性子散乱による YbCo₂Zn₂₀ 及びその置換系物質における中性子回折及び中性子散乱による研究

中性子回折及び中性子散乱は、国内外の中性子実験施設で行うことを計画したが、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 26 から 28 年度までの期間において、稼働運転は実現しなかった。また、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)では極低温での実験は十分に出来なかった。以上により、米国オークリッジ研究所で中性子散乱実験を行った。

4. 研究成果

(1) 圧力誘起量子相転移を示す YbCo₂Zn₂₀ の置換系物質の純良単結晶試料の探索・開発とその物性測定

Co 元素を Mg, Fe, Ni, Cu, Rh, Ir の各元素で、Zn 元素を Au, Ag, Cu, Ga, Cd の各元素で、Yb 元素を Lu 元素置換することを試みた。基本的には磁気秩序相が極低温で観測された置換系試料は無く、以下に被置換元素ごとに述べる。

Co 元素位置置換系

Co 元素を Fe, Ni, Cu, Rh, Ir の各元素

で置換した。この中で Ni 元素置換系では、約 50 % の仕込み量まで単結晶試料が育成されるが、ICP 発光による元素分析ではその約 3 分の 1 程度にしか置換されない。Ir 元素置換系では 100 % まで置換可能であるが、ICP 発光による元素分析では育成した試料内で多少濃度に広がりが見られる。Rh 元素置換系もおそらく Ir 元素置換系と同様になると思われるが、10%程度まで置換できている。その他の Mg, Fe, Cu 系については数%程度で置換できなくなり、単結晶も小さくなる傾向にある。また、多くの置換系では負の化学圧力効果と考えられるが、Ni 元素では格子定数にほぼ変化がない。

また、電気抵抗測定、磁化測定、比熱測定を各置換系について行い、近藤ピーク温度（多くは 2K 程度）よりも十分高温では、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の結果とほぼ同じ振る舞いであり、試料が育成されていることを支持した。Ni 元素置換系では、極低温までの電気抵抗の測定により、近藤ピークの出現する温度が Ni 元素置換とともに減少し、約 5 ~ 7% の仕込み量のところで量子臨界点に似た振る舞いを示すことが分かった。一方で、非磁性試料の電気抵抗を差し引く解析から、Ce 系物質の La 置換系で見られた「高濃度近藤効果から不純物近藤効果への移り変わり」に類似する現象も新たに明らかになった。この移り変わりの現象が、少ない置換量で生じるため、この原因の特定は今後の課題である。

なお、Ir 元素置換系では、近藤温度のエネルギースケールが元素置換とともに連続的に増大することを見出した。

Zn 元素位置置換系

Cu, Ga, Cd の各元素で置換することを試みた。数 % 程度で置換できなくなり、単結晶も小さくなる傾向にある。また、Ga, Cd 置換系では負の化学圧力効果と考えられるが、Cu 置換系では正の化学圧力効果の可能性が有る。

電気抵抗測定、磁化測定、比熱測定により、Ga, Cd 置換系では近藤ピーク温度（多くは 2K 程度）はごく微量の置換で、不純物近藤効果的な振る舞いに变化する。化学圧力効果から有望な Cu 置換系がもっとも結晶性が悪いため、極低温物性での近藤ピークの議論ができない現状にある。結晶育成の方法をより検討する必要がある。

Yb 元素位置置換系

Yb 元素を非磁性である Lu 元素で置換し、基本的には 100 % まで置換可能である。ICP 発光による元素分析では育成した試料内で多少濃度に広がりが見られる。格子定数は置換とともに僅かに減少する。

電気抵抗測定、磁化測定、比熱測定からは、Yb 低濃度の試料でも巨大な電子比熱係数を維持しているうえ、Ce 系化合物で見られたような、Yb サイトにおける高濃度近藤効果

から不純物近藤効果への移り変わりに似た現象を観測できた。

(2) 中性子散乱による $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ 及びその置換系物質における中性子回折及び中性子散乱による研究

磁気秩序相が極低温で観測された置換系試料を育成できなかったため、中性子回折による $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の圧力誘起磁気相の磁気構造の決定はなされなかった。

$\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の大型単結晶試料を用いた中性子散乱実験を行った。圧力中誘起磁気秩序相の磁気波数ベクトルも既知であるため、この波数ベクトルを中心にして磁気励起の探索した。そのエネルギーが波数にはよらない 0.8 meV 付近の結晶場励起及び 3 meV 程度以下の準弾性散乱（近藤揺らぎ）を観測した。それらの散乱強度には波数依存性があることが初めて分かった。これらに加え、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の圧力誘起磁気相の波数ベクトルに対応する波数に依存する磁気励起の探索を試みたが、オークリッジ研究所の冷中性子源三軸分光器の中性子強度が十分でないことと、希釈冷凍機が不調であったため 100 mK 以下まで冷却できなかったことが原因である。（日本国内なら遂行可能なテーマであり、国内研究用原子炉の運転再開が強く望まれる。）

上記により、当初の計画であった Yb 化合物の量子相転移の理論との比較は難しいものとなった。

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 2 件)

R. Kobayashi, H. Takamura, Y. Higa, Y. Ikeda, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, H. Yoshizawa, and N. Aso: “Zn-site Substitution Effect in $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ ”, IOP Conference Series: Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 807, 2017, 012009-1-5.
DOI: 10.1088/1742-6596/807/1/012009

T. Kawasaki, K. Kaneko, A. Nakamura, N. Aso, M. Hedo, T. Nakama, T. Ohhara, R. Kiyonagi, K. Oikawa, I. Tamura, A. Nakao, K. Munakata, T. Hanashima, and Y. Ōnuki: “Magnetic Structure of Divalent Europium Compound EuGa_4 Studied by Single-Crystal Time-of-Flight Neutron Diffraction”, Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, Vol. 85, 2016, 114711-1-5.
DOI: 10.7566/JPSJ.85.114711

〔学会発表〕(計 20 件)

阿曾尚文, 久手堅貴太, 津堅涼, 玉城豪士, 小濱徳史, 高村治希, 比嘉泰之, 小林理気, 松林和幸, 上床美也, 重い電子系化合物 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の Zn サイトの置換効果 II, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 15 日, 金沢大学 (石川県金沢市)

與儀護, 通事樹, 仲嶺元輝, 嶺井泉史, 比嘉野乃花, 盛島真羽, 久保田史洋, 上原弘敬, 二木治雄, 比嘉泰之, 小林理気, 阿曾尚文, 重い電子系化合物 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ における元素置換効果と圧力効果に関する NQR による研究, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 15 日, 金沢大学 (石川県金沢市)

N. Aso, Y. Higa, R. Kobayashi, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, H. Yoshizawa, A. A. Aczel and T. Hong, Neutron Scattering Study in Single-Crystalline $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2016), 2016 年 5 月 10 日, Zijingang Campus, Zhejiang University, Hangzhou, China

R. Kobayashi, H. Takamura, Y. Higa, Y. Ikeda, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, H. Yoshizawa, and N. Aso, Zn-site Substitution Effect in $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2016), 2016 年 5 月 10 日, Zijingang Campus, Zhejiang University, Hangzhou, China

阿曾尚文, 比嘉泰之, 小林理気, 松林和幸, 上床美也, 吉澤英樹, $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の中性子散乱 II, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 17 日, 関西大学千里山キャンパス (大阪府吹田市)

小林理気, 比嘉泰之, 高村治希, 阿曾尚文, $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ 置換系試料の構造解析, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 17 日, 関西大学千里山キャンパス (大阪府吹田市)

比嘉泰之, 金武克明, 坂井梓, 阿曾尚文, 松林和幸, 上床美也, 重い電子系化合物 $\text{YbCo}_{2-x}\text{Ni}_x\text{Zn}_{20}$ の物性, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 8 日, 中部大学春日井キャンパス (愛知県春日井市)

Naofumi Aso, Crystal structure of non-centrosymmetric heavy fermion superconductors CeRhSi_3 and CeIrSi_3

studied by single-crystal X-ray diffraction, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2014), 2014 年 7 月 8 日, Campus Saint Martin d' Hères, Grenoble, France

(その他 12 件)

〔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・教授

研究者番号: 40313118