

連携量子ビーム法による量子二重臨界性の研究

谷口 貴紀*

Bicriticality via Multi-quantum Beam Methods

Takanori TANIGUCHI*

本研究は、強い量子揺らぎを生み出す「二重臨界性」に着目し、CeNiIn₄およびYbCu₄Auを対象としてその実現機構を解明することを目的とした。両物質の単結晶育成に成功し、単結晶X線回折により精密な結晶構造を決定した。さらに、YbCu₄AuについてはSPring-8におけるARPES測定により電子構造を調べ、小さなフェルミ面がf電子由来であることを明らかにした。このフェルミ面は磁気伝搬ベクトルと整合的な位置に存在しており、逐次磁気転移が局在磁性相からネスティングに起因する遍歴磁性相への変化として理解できる可能性を示した。一方、CeNiIn₄ではμSR測定により0.28–2.8 Kの温度範囲で逐次転移を詳細に調べた。その結果、約1.4 Kでの二次転移と0.80 Kでの一次転移を確認し、二つの秩序変数の競合と相互作用によって相分離および一次相境界が形成されることを明らかにした。自由エネルギー解析から、本系は磁気構造を安定化する相互作用に対応し、二つの転移温度が一致する点が二重臨界点となることを示した。

以上より、YbCu₄AuおよびCeNiIn₄は量子二重臨界性を示す有望な物質であり、その発見機構として電子ネスティング効果および秩序変数間相互作用の重要性を明らかにした。今後は磁気構造の決定が重要な課題である。

1. 研究背景

量子臨界性の研究は、固体物理学における主要なテーマのひとつである。量子臨界領域では、大きな量子揺らぎによって非従来型の超伝導やスピン液体などのエキゾチックな性質が現れるため、量子臨界性を持つ物質に注目することは新しい物性を探求するための有望な戦略である。

従来の量子臨界性よりも大きな量子揺らぎを発生させるメカニズムは、特に興味深い。そのようなメカニズムの一つが「二重臨界性」であり、2つの量子臨界点が重なった領域において、異なる量子揺らぎがカップリングし、より高温で観測可能な量子揺らぎ由来の性質をもたらす[1,2]。そのため、応用面でも非常に魅力的なテーマである。

このような中、申請者はCeNiIn₄[3]とYbCu₄Au[4]が理想的な該当物質である可能性を見出した。すでに単結晶育成も成功し、特にYbCu₄Auは電気抵抗、比熱、磁化、核磁気共鳴、ミュオンスピン緩和・回転、粉末中性子回折、そして放射光X線分光法といった多角的な実験を展開した。本研究課題では、(i)得られた単結晶試料を用いて単結晶X線回折測定から結晶構造を決定すること、(ii)YbCu₄Auに対してARPES測定から電子構造を決定すること、(iii)CeNiIn₄に対してμSR測定から二重臨界性を持つ物質であることを決定すること、を実施した。下記にその結果を報告する。

2. CeNiIn₄とYbCu₄Auの単結晶X線回折測定の結果

YbCu₄AuとCeNiIn₄の単結晶X線回折測定は、Rigaku社のXtaLab mini-iiを用いた。構造解析にはOlex2[5]を用い、直接法によるSHELX[6]で初期構造を決定し、その後、最小二乗法に基づくSHELX[7]精密化プログラムを用いて構造を精密化した。得られた結果を用いて描いた結晶構造を図1に示す。それぞれ、YbCu₄AuとCeNiIn₄のR値は2.1%と3.3%で精度よく結晶構造を決定することができた。

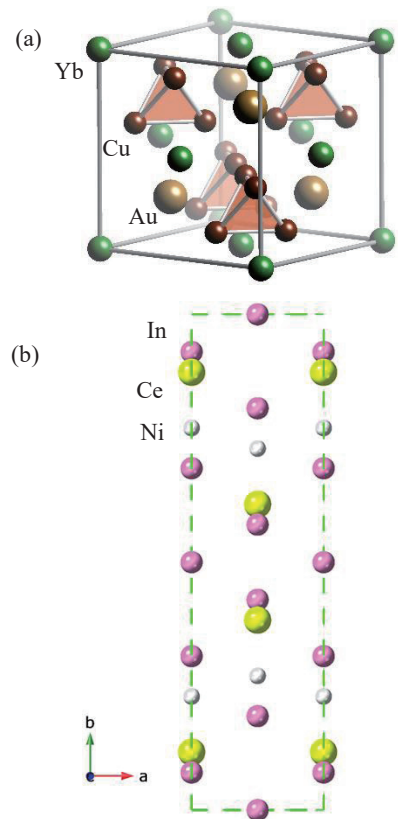


図1 (a) YbCu₄Auと(b) CeNiIn₄の結晶構造。

2026年2月26日 受理

* 豊田理研スカラー

東北大学金属材料研究所

3. YbCu₄Au の ARPES 測定の結果

ARPES 測定は Spring-8 の BL25SU で行った。試料は<111>面で X 線が入射できるように加工した。図 1 に ARPES で得られた k_x - k_y マッピングを示す。ここで、 k_z , k_x , k_y 方向はそれぞれ [111], [1-10], [-1 1 0] 方向を示す。六角形はブリルアンゾーンであり、六角形の辺上に小さなフェルミ面が観測された。f 電子の寄与を加えることのできない DFT 計算ではこの小さなフェルミ面が観測されなかったため、小さなフェルミ面は f 電子の寄与である。この小さなフェルミ面の位置は先行研究の中性子回折実験で決定された磁気伝搬ベクトルで別の小さなフェルミ面に移ることができる場所に存在する。そのため、YbCu₄Au が示す逐次転移は、局在磁性相からネスティングによる遍歴磁性相が安定化した可能性がある。

4. CeNiIn₄ の μ SR 測定の結果

本研究では、CeNiIn₄ の結晶構造および試料品質を粉末 X 線回折により確認した後、J-PARC 物質・生命科学実験施設 (MLF) の S1 μ SR 分光器と HELIOX 冷凍機を用いて μ SR 測定を行った。粉末試料 1 g を用い、0.28 K ~ 2.8 K の温度範囲において縦磁場 (LF) 下で時間スペクトルの温度依存性を測定した。

30 mT の縦磁場下で得られた μ SR スペクトルは、逐次転移温度において急激な変化を示した。約 1.4 K では初期非対称度が温度低下とともに連続的に減少し、この転移が二次相転移であることを示唆する。一方、0.80 K では速い緩和成分と遅い緩和成分の二成分が明瞭に観測された。速い緩和は低温相における大きな内部磁場由来し、遅い緩和は中間相の内部磁場を反映している。両成分の共存は中間相と低温相の相分離を示しており、この転移が一次相転移であることを示す。

単結晶 X 線回折できめた対称性に基づいて自由エネルギーを表現したところ、2つの相の位相を決める項が含まれていた。この位相結合が正の場合はらせん・サイクロイド構造が安定化し、負の場合は共線構造が安定となる。本系は後者に対応する。

逐次転移は二つの秩序変数の相互作用として記述でき、強い結合は競合を生み一次相境界を形成する。本研究で観測された一次転移はこの枠組みで理解される。さらに、二つの転移温度が一致する点は二重臨界点に対応することを明らかにした。

5. まとめ

本研究で、我々は結晶構造を決定し、YbCu₄Au と YbNiIn₄ が示す二重臨界性の原因について調べた。YbCu₄Au はネスティングの影響で遍歴磁性となっている可能性を提示できた。YbNiIn₄ では、二重臨界点を熱力学的にも持つことを示すことができた。今後の課題は、それぞれの磁気構造を決定することである。

REFERENCES

- 1) M. Garst, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **78** (2008) 235118.
- 2) T. Meng, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **86** (2012) 125107.
- 3) F. Honda, *et al.*, *JPS Conf. Proc.*, **3** (2014) 012026.
- 4) T. Taniguchi, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **93** (2024) 124706.
- 5) O. V. Dolomanov, *et al.*, *J. Appl. Cryst.*, **42** (2009) 339.
- 6) G. M. Sheldrick, *Acta A*, **64** (2008) 112.
- 7) G. M. Sheldrick, *Acta C*, **713** (2015).

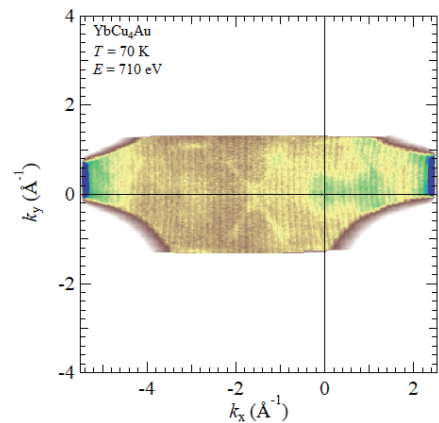


図2 70 Kにおける YbCu₄Au の k_x - k_y マッピング。色は光電子の強度を示す。

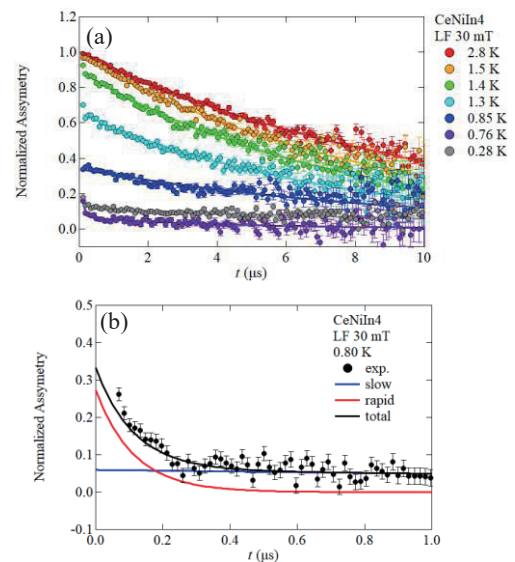


図3 (a) μ SR 時間スペクトルの温度依存性。 (b) 0.80 K における μ SR 時間スペクトル。2成分の緩和が共存する。