

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05545

研究課題名(和文) カゴメ近藤格子CeRhSnに於ける量子臨界現象とフラストレート磁性

研究課題名(英文) Quantum criticality and frustration in the kagome-Kondo lattice CeRhSn

研究代表者

高畠 敏郎 (TAKABATAKE, TOSHIRO)

広島大学・先端物質科学研究科・特任教授

研究者番号：40171540

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)：セリウム原子が擬カゴメ格子を形成するCeRhSnの特異な量子臨界現象の原因を明らかにすることを目的として、三つの手法で研究した。(1) 4d電子を注入したCeRh<sub>1-x</sub>Pd<sub>x</sub>Snでは近藤温度の低減とともに $x > 0.1$ で磁気秩序が誘起される。(2) CeRhSnのカゴメ面内に一軸圧を印加して対称性を破ると、熱膨張係数に磁気転移を示す異常が発現する。(3) 近藤温度がCeRhSnよりも2倍高い同型構造のCeIrSnもCeRhSnとよく似た量子臨界現象を示す。これらの結果は、擬カゴメ構造をもつ近藤格子のフラストレーションが、ゼロ磁場・常圧下での特異な量子臨界現象をもたらすことを意味する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

量子スピンの幾何学的フラストレーションの研究は絶縁体を対象としてきたのに対して、近藤格子系の研究は局在4f電子が配列した金属間化合物を対象として、独立に発展してきた。フラストレートした結晶構造をもつ近藤格子系に関する本研究は、両分野を繋ぐ新しい物性物理分野の創出の第一歩となる。磁気モーメントが配列した系が、近藤効果とフラストレーションの二つの効果の協働によって、絶対零度まで長距離磁気秩序せず、量子力学的に揺らいだ状態をとることは、スピン液体という新たな概念の実例と言える。

研究成果の概要(英文)：A Kondo lattice compound CeRhSn with 4f moments on a quasikagome lattice displays quantum critical behavior in the specific heat and magnetic susceptibility. This mechanism has been studied by three methods. First, 4d electron doping reduces the Kondo temperature  $T_K$  and induces a magnetic order. Second, application of uniaxial stress on the kagome plane induces a magnetic order. Third, CeIrSn with a two-times higher  $T_K$  exhibits similar quantum critical behavior as CeRhSn. All observations support the concept that the geometrical frustration in the quasikagome lattice induces the quantum critical behavior in zero field and at ambient pressure.

研究分野：物性物理学

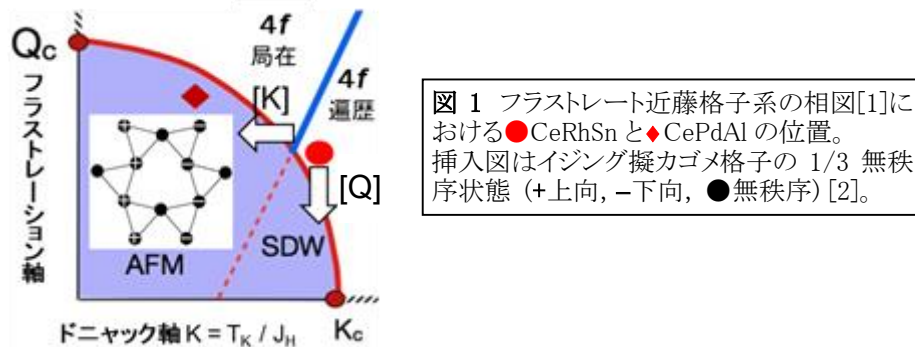
キーワード：量子臨界現象 カゴメ格子 フラストレーション 近藤格子 磁気異方性

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

## 1. 研究開始当初の背景

近年、近藤効果を示す希土類の Ce や Yb が幾何学的フラストレーションの強い格子を組む系が注目されてきた。Coleman らはフラストレーション強度  $Q$  を縦軸、近藤温度/交換相互作用の比  $T_K/J_H = K$  を横軸とした相図 (図 1) を提案した[1]。この絶対零度での相図では磁気秩序が発現する点は  $Q_c$  と  $K_c$  をつなぐ量子臨界線となる。例えば、Ce が六方晶の  $c$  面内で擬カゴメ格子を組む CePdAl は、 $c$  軸を容易軸とするイジング的磁気モーメントが 2.7K で AFM 秩序するので、相図の菱形の位置にある。特異な点は、フラストレーションと近藤効果の相乗効果によって Ce の 1/3 はスピンを失って常磁性に留まることである[2]。この部分無秩序状態の出現は、最近、石塚・求がイジングスピンのカゴメ近藤格子系の理論で再現した[3]。

我々は、CePdAl と同じ結晶構造で  $c$  軸方向を磁化容易軸とする CeRhSn が局在と遍歴の狭間にあり、しかも、反強磁性(AFM)スピン揺らぎを保ったまま 50mK まで磁気秩序しないことを 2003 年に発表した[4]。協力研究者である Tokiwa と Gegenwart らは、CeRhSn の  $a$  軸方向の熱膨張係数/温度が  $T = 0$  に向かって発散するのに対して  $c$  軸方向では一定であることから、フラストレーションによって量子臨界点近傍に位置するはじめての近藤格子系であると 2015 年に提案した[5]。



[1] P. Coleman *et al.*, J. Low Temp. Phys. 161, 182 (2010).

[2] A. Donni *et al.*, J. Phys. C 8, 11213 (1996).

[3] H. Ishizuka, Y. Motome, PRB 91, 085110 (2015).

[4] M. S. Kim, K. Umco, T. Takabatake *et al.*, PRB 68, 054416 (2003).

[5] Y. Tokiwa, P. Gegenwart *et al.*, T. Takabatake *et al.* Sci. Adv. 1, e1500001 (2015).

## 2. 研究の目的

近藤格子系におけるフラストレーションが誘起する量子臨界現象という新概念を確立することを本研究の目的とした。具体的には擬カゴメ格子系の CeRhSn を対象として、近藤効果とフラストレーションをそれぞれ制御することで、磁気秩序を誘起し、その際の量子臨界現象の違いからフラストレーション効果を抽出しようとした。

## 3. 研究の方法

上記の目的のために、三つの手法を用いた。

(1) フラストレート近藤格子系の相図 (図 1) においてドニャック軸の  $[K]$  の方向に磁気臨界線を越えるには、CeRhSn の  $T_K$  を下げる必要がある。このために、Rh を周期表の右隣の Pd で置換して 4d 電子を注入した CeRh<sub>1-x</sub>Pd<sub>x</sub>Sn の試料を高島と大学院生が作製し、比熱、磁化率などを分担者の梅尾らが測定した[6]。研究協力者の Adroja は  $\mu$ SR によって、磁気秩序の発生過程を調べた。

(2) 相図のフラストレーション軸の  $[Q]$  の方向に磁気臨界線を越えるには、結晶の対称性を下げる必要がある。このために、CeRhSn の擬カゴメ格子の  $a$  軸方向に一軸圧を印加し、研究協力者の Tokiwa, Gegenwart が熱膨張を測定した[7]。梅尾は、一軸圧下で比熱と磁化率を測定できる圧力セルと計測系を整備した。磁気秩序の発現を中性子散乱で直接観測するために、研究協力者の佐藤は一軸圧セルを自作し、中性子散乱実験を試みた。

(3) CeRhSn と同型構造の CeIrSn は  $T_K$  が 2 倍高いことが知られていた。CeIrSn においても低温でフラストレーションに起因する量子臨界現象が出現するかどうかを調べた。具体的には、CeIrSn の単結晶試料を高周波加熱チョコレートスキーマによって育成し、その低温物性を測定して、CeRhSn と比較した[8]。

#### 4. 研究成果

上記の計画した研究から下記の三つの成果を得た。

(1)  $\text{CeRh}_{1-x}\text{Pd}_x\text{Sn}$  の多結晶・単結晶試料について比熱, 磁化率, 電気抵抗率などの温度変化を 0.05K まで測定した[6]。比熱/温度 ( $C/T$ )の結果を図 2 (a)に示す。 $x = 0.1$  の  $C/T$  は  $x = 0$  に比べて格段に大きくなり,  $-\log T$  に比例して上昇する。この試料の  $\mu\text{SR}$  スペクトルの 0.07 K での早い緩和は短距離秩序の発生を示す(図 2(b))。  $x = 0.2$  の  $C/T$  は 0.2-0.3 K で明瞭なピークを示し, 長距離秩序の発生を示唆する。つまり, Pd 濃度  $x = 0.1-0.2$  の間で量子臨界線を越えたことが判った。

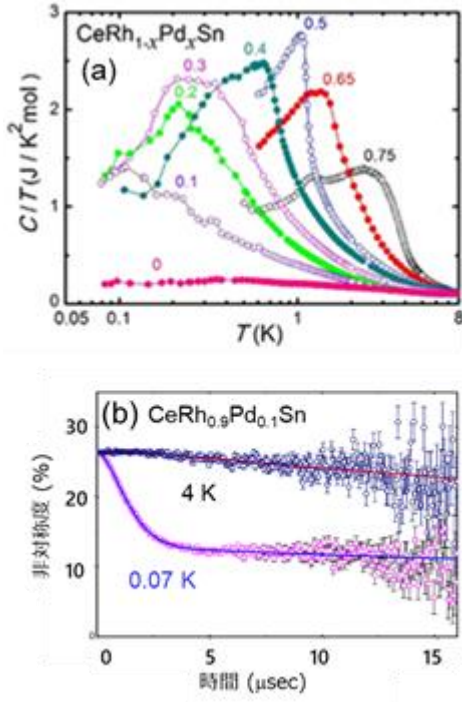


図2(a)  $\text{CeRhSn}$  の Rh を Pd で置換して 4d 電子をドープすると,  $x = 0.1$  では比熱/温度が  $-\log T$  に比例して上昇する。 $x = 0.2$  で現れる明瞭なピークは, 長距離磁気秩序を示唆する[6]。  
(b)  $x = 0.1$  の 0.07K でのミュエスアールスペクトルは短距離磁気秩序の発生を示す。

(2)  $\text{CeRhSn}$  単結晶の  $a$  軸方向に一軸圧をかけて線熱膨張係数  $\alpha$  を測定した[7]。図 3 に  $P//a = 60$  MPa における  $\alpha/T$  の温度変化を示す。  $B = 0$  で 0.4K 以下での  $\alpha/T$  の上昇は, 何らかの長距離秩序の発生を示す。これは擬カゴメ格子が歪んだためにフラストレーションが抑制されて, 磁気転移が出現したことを意味する。

一軸圧下での比熱と磁化率を測定するための圧力セルを試作し, 予備測定を行ったが, バックグラウンドが大きいため, 正確な値を求めるには至っていない。

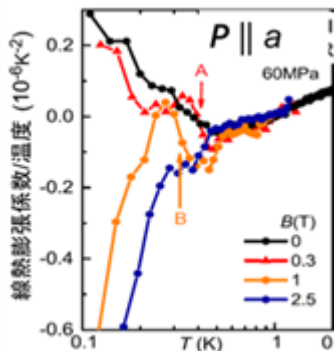


図 3  $\text{CeRhSn}$  の一軸圧  $P//a = 60$  MPa における  $a$  軸方向の熱膨張係数/温度の温度変化[7]。

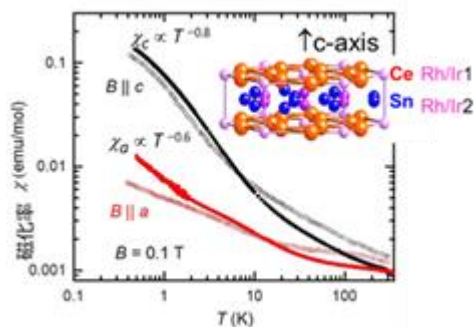


図4 近藤カゴメ格子系 CeRhSn(○)と CeIrSn(●)の磁化率の温度冪発散 [8]

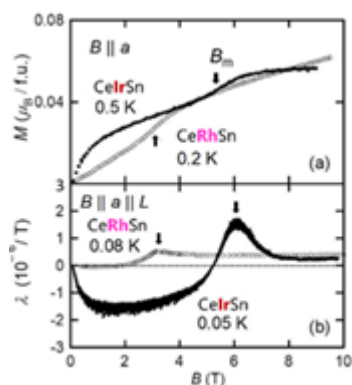


図5 磁化困難 a 軸方向の (a)メタ磁性クロスオーバー[8]と (b)巨大磁歪λ(B)。

(3) CeIrSn の単結晶試料の比熱，直流・交流磁化率，電気抵抗を測定した[8]。常圧下での磁化率は c 軸方向で大きく，電気抵抗は a 軸方向で大きいという異方性は，CeRhSn と同じである。熱電能が山をとる温度から見積もった近藤温度  $T_K$  は CeRhSn の 2 倍の 480 K である。 $T_K$  がこれほど高いにも拘わらず，磁化率(図 4)と比熱/温度は 1 K 以下の温度領域で発散傾向を示し，その温度依存性は CeRhSn と同様である。

図 5 (a)に示すように，磁場を a 軸方向に印加すると，6 T 付近で磁化が約 10% 伸びるというメタ磁性クロスオーバーも CeRhSn と共通している。このクロスオーバーに伴って，CeIrSn の体積磁歪係数が正のピークを示し膨張することを研究協力者の志村が見出した(図 5(b))。このような磁化困難軸方向のメタ磁性クロスオーバーと磁歪係数の極大は，局在スピンのカゴメ格子系では報告が無いので，遍歴電子の擬カゴメ格子でのみ起こる特異な現象である。

以上の結果から，擬カゴメ近藤格子系に内在するフラストレーションが量子臨界現象を誘起していることを検証できた。本研究の対象物質は価数揺動領域に属しイジング性を示す系であったが，今後は局在性の強い領域やイジング以外のハイゼンベルグや XY 異方性をもつ擬カゴメ格子系を対象を広げ，それらの量子臨界現象を明らかにしていく計画である。それによって，近藤効果とフラストレーションの協働によるスピン液体状態の物理像を確立したい。

[6] C. L. Yang, S. Tsuda, K. Umeo, Y. Yamane, T. Onimaru, T. Takabatake, N. Kikugawa, T. Terashima, S. Uji, Quantum criticality and development of antiferromagnetic order in the quasikagome Kondo lattice  $CeRh_{1-x}Pd_xSn$ , Phys. Rev. B 96, 045139/1-7, 2017.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.045139

[7] R. Kuechler, C. Stingl, Y. Tokiwa, M. S. Kim, T. Takabatake, P. Gegenwart, Uniaxial stress tuning of geometrical frustration in a Kondo lattice, Phys. Rev. B 96, 241110(R)/1-5, 2017.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.241110

[8] S. Tsuda, C. L. Yang, Y. Shimura, K. Umeo, H. Fukuoka, Y. Yamane, T. Onimaru, T. Takabatake, N. Kikugawa, T. Terashima, H. T. Hirose, S. Uji, S. Kittaka, T. Sakakibara, Metamagnetic crossover in the quasikagome Ising Kondo-lattice compound CeIrSn, Phys. Rev. B. 98.155147/1-7, 2018  
DOI: 10.1103/PhysRevB.98.155147

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件／うち国際共著 5件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 T. Takabatake, Y. Muro, J. Kawabata, K. Hayashi, T. Takeuchi, K. Umeo, T. Ekino, D. T. Adroja	4. 巻 99
2. 論文標題 Interplay between hybridization gaps and unusual magnetic orders in Kondo semiconductors CeT <sub>2</sub> Al <sub>10</sub> (T = Ru and Os)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phil. Mag.	6. 最初と最後の頁 2984-2999
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/14786435.2019.1646438	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 該当する
1. 著者名 C. Bareille, T. -S. Nam, T. Takabatake, K. Kuroda, T. Yajima, M. Nakayama, S. Kunisada, S. Akebi, M. Sakano, S. Sakuragi, R. Noguchi, B. I. Min, S. Shin, T. Kondo	4. 巻 100
2. 論文標題 Strongly anisotropic high-temperature Fermi surface of the Kondo semimetal CeNiSn revealed by angle-resolved photoemission spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 045133/1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.045133	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 該当する
1. 著者名 S. Seong, K. Kim, E. Lee, C. -J. Kang, T. Nam, B. I. Min, T. Yoshino, T. Takabatake, J. D. Denlinger, J. -S. Kang	4. 巻 100
2. 論文標題 Angle-resolved photoemission spectroscopy study of the M&ouml;bius Kondo insulator candidate CeRhSb	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 035121/1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.035121	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 該当する
1. 著者名 Takeuchi, K. Hayashi, K. Umeo, T. Takabatake	4. 巻 87
2. 論文標題 Different variations of Néel temperature T <sub>N</sub> and Kondo temperature T <sub>K</sub> in the alloy system Ce(Ru <sub>1-x</sub> Os <sub>x</sub> ) <sub>2</sub> Al <sub>10</sub> under uniaxial pressure	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 054702/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.87.054702	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 S. Tsuda, C. L. Yang, Y. Shimura, K. Umeo, H. Fukuoka, Y. Yamane, T. Onimaru, T. Takabatake, N. Kikugawa, T. Terashima, H. T. Hirose, S. Uji, S. Kittaka, T. Sakakibara	4. 巻 98
2. 論文標題 Metamagnetic crossover in the quasikagome Ising Kondo-lattice compound CeIrSn	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Phys. Rev B.	6. 最初と最後の頁 155147/1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.98.155147	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 C. L. Yang, K. Umeo, T. Takabatake	4. 巻 807
2. 論文標題 Evolution of a magnetic order in the quasi-kagome lattice system CeRh <sub>1-x</sub> PdxSn (x < 0.75)	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Phys.: Conf. Ser.	6. 最初と最後の頁 042001-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/807/4/042001	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 C. L. Yang, S. Tsuda, K. Umeo, Y. Yamane, T. Onimaru, T. Takabatake, N. Kikugawa, T. Terashima, S. Uji	4. 巻 96
2. 論文標題 Quantum criticality and development of antiferromagnetic order in the quasikagome Kondo lattice CeRh <sub>1-x</sub> PdxSn	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 045139/1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.96.045139	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 R. Kuechler, C. Stingl, Y. Tokiwa, M. S. Kim, T. Takabatake, P. Gegenwart	4. 巻 96
2. 論文標題 Uniaxial stress tuning of geometrical frustration in a Kondo lattice	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 241110(R)/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.96.241110	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 該当する

1. 著者名 C.L. Yang, S. Tsuda, K. Umeo, T. Onimaru, W. Paschinger, G. Giester, P. Rogl, T. Takabatake	4. 巻 739
2. 論文標題 Structural and magnetic properties of a novel ternary intermetallic compound CePd <sub>3</sub> Sn <sub>2</sub>	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Alloys Compd.	6. 最初と最後の頁 518-521
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jallcom.2017.12.323	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 該当する

〔学会発表〕 計13件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 T. Takabatake
2. 発表標題 Frustration-induced quantum criticality in quasikagome Kondo lattice Ce compounds
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, SCES2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大石遼平, 井上幸大, 大曲雄大, 草ノ瀬優香, 山根悠, 梅尾和則, 高畠敏郎, 鬼丸孝博
2. 発表標題 八二カム格子系CePt <sub>6</sub> Al <sub>3</sub> の重い電子状態
3. 学会等名 日本物理学会2020年第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 志村 恭通, Andreas Worl, Philipp Gegenwart, 津田 研, 鬼丸孝博, 高畠敏郎
2. 発表標題 価数揺動下にある擬カゴメ格子系CeIrSnの負の磁歪と熱膨張
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 津田研, 楊崇立, 山根悠, 梅尾和則, 志村恭通, 鬼丸孝博, 高畠敏郎, 福岡宏, 菊川直樹, 寺嶋太一, 廣瀬陽代, 宇治進也, 橘高俊一郎, 榊原俊郎
2. 発表標題 擬カゴメ近藤格子系CeIrSnの磁気フラストレーション
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 津田研, 楊崇立, 志村恭通, 山根悠, 梅尾和則, 鬼丸孝博, 高畠敏郎, 福岡宏, 菊川直樹, 寺嶋太一, 廣瀬陽代, 宇治進也, 橘高俊一郎, 榊原俊郎
2. 発表標題 擬カゴメ近藤格子化合物CeT <sub>2</sub> Sn (T=Rh, Ir)の磁気フラストレーションとLaIrSnの超伝導
3. 学会等名 日本物理学会2019年春季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Takabatake
2. 発表標題 Magnetic ordering in cerium-based Kondo semiconductors
3. 学会等名 International Workshop on Heavy Fermions and Topological States (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Takabatake
2. 発表標題 Frustration effects in kagome Kondo lattice systems CeT <sub>2</sub> Sn (T = Rh and Ir)
3. 学会等名 5th Chinese Meeting on Heavy Fermion Systems (国際学会)
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 T. Takabatake
2. 発表標題 Crystal growth and physical properties of Kondo semiconductors
3. 学会等名 J-Physics 2018: International Workshop on New Materials and Crystal Growth (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Takabatake
2. 発表標題 Frustration-induced quantum criticality in quasikagome Kondo lattice Ce compounds
3. 学会等名 ECMP 2019: 2nd International Workshop on Emergent Condensed Matter Physics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 津田研, 楊崇立, 梅尾和則, 山根悠, 鬼丸孝博, 高畠敏郎, 菊川直樹, 寺嶋太一, 廣瀬陽代, 宇治進也
2. 発表標題 擬カゴメ近藤格子CeRhSnのPd及びIr置換による磁気秩序の発生
3. 学会等名 日本物理学会 2017年秋季大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 津田研, 楊崇立, 梅尾和則, 山根悠, 鬼丸博孝, 高畠敏郎, 菊川直樹, 寺嶋太一, 廣瀬陽代, 宇治進也
2. 発表標題 擬カゴメ近藤格子系CeRh <sub>1-y</sub> Ir <sub>y</sub> Sn の磁気フラストレーション
3. 学会等名 日本物理学会2018年春季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 C. L. Yang, S. Suda, K. Umeo, T. Onimaru, W. Paschinge, G. Giester, P. Rogl, T. Takabatake
2. 発表標題 Low-dimensional magnetic behaviors in a novel intermetallic compound CePd3Sn2
3. 学会等名 日本物理学会2018年春季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高島 敏郎
2. 発表標題 Magnetic ordering in cerium-based Kondo semiconductors
3. 学会等名 The 21st Intern. Conf. on Solids Compounds of Transition Elements (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018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
研究分担者	梅尾 和則  (UMEI KAZUNORI)  (10223596)	広島大学・自然科学研究支援開発センター・准教授   (15401)	
研究協力者	デバシバイ アドロージャ  (Devashibhai Adroja)		
研究協力者	トキワ ヨシフミ  (Tokiwa Yoshifumi)		

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 協力者	ゲーゲンバルト フィリップ  (Gegenwart Philipp)		
研究 協力者	佐藤 卓  (SATO TAKU)  (70354214)	東北大学・多元物質科学研究所・教授   (11301)	