

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03737

研究課題名(和文) 高圧力下中性子回折実験による超伝導と競合する重い電子反強磁性状態の研究

研究課題名(英文) High-pressure neutron diffraction study of heavy-electron antiferromagnetic states

研究代表者

池田 陽一 (Ikeda, Yoichi)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：40581773

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：一風変わった温度圧力相図を示すCeNiGe₃における圧力下で現れる超伝導と共存する磁気相と、競合する磁気相の性質の解明を目指し、1立方ミリメートル程度の試料に対して4～5万気圧程度の圧力実験ができる圧力セルの開発と、それを用いた圧力下中性子回折実験を進めてきました。現在の発生圧力は目標の大凡四分の一程度であるため、さらなる改良は必要であるものの、圧力下で微弱な磁気信号を観測するという初段の目的を達成することができました。また非整合磁気伝搬ベクトルにわずかながら圧力変化が見られ、大凡2～5万気圧の間で非整合-整合磁気相転移が生じる可能性を見出すことに成功しました。

研究成果の学術的意義や社会的意義

圧力は温度と並んで、物質の状態を変えるひとつのパラメータであるものの、物質中の電子状態を変えるためには数万気圧程度の圧力が必要となります。先人による様々な努力の結果、近年では多くの実験が比較的手軽に実施できるようになりましたが、物質の微視状態を調べる中性子やX線による実験のためには更なる工夫が必要です。我々は物質の磁気状態を調べるために、数万気圧の圧力下で比較的大きな試料(1mm³)でも実験のできる圧力セルを開発し、圧力下の磁気状態の変化を捉えることに成功しました。目標とした圧力には届いていないため更なる改良は必要ですが、今後、物質の新しい状態を捉えることが出来る可能性があります。

研究成果の概要(英文)：The aim of the project is to develop a high-pressure apparatus for neutron diffraction experiments, which is available to keep a high-pressure condition of 4-5 GPa, and to get an additional insight into magnetic phases of CeNiGe₃ under high pressure. We have succeeded in observing magnetic Bragg reflections with our high-pressure apparatus under high pressure, though the applied pressure is lower than the target pressure (4-5 GPa). In addition, we found that the incommensurate magnetic propagation wave vector of the low-pressure antiferromagnetic phase possibly shifts to a commensurate point, indicating a possible incommensurate-to-commensurate magnetic transition under high pressure. Further upgrade of our high-pressure apparatus is under consideration.

研究分野：固体物理

キーワード：中性子回折 高圧力

1. 研究開始当初の背景

磁性と超伝導の関係を見直すきっかけのひとつとなった f 電子系化合物 CeCu_2Si_2 における重い電子超伝導の発見以来[1]、その発現機構を解明するための精力的な研究の結果、図 1 のように、超伝導は磁気量子臨界点の近くで発現し、実験的には CeIn_3 や CePd_2Si_2 [4]等、多くの重い電子超伝導体が発見されている。その一方、理論的にはクーパ対形成にかかわる電子間引力の機構として、電子格子相互作用のほかに、磁気ゆらぎ[2]や価数ゆらぎ[3]などの提案がなされ、研究の広がりを見せている。図 1 のような磁気転移と超伝導の定性的な圧力変化は、RKKY 相互作用と cf 混成効果の競合により理解されている。本研究課題で着目した CeNiGe_3 は、図 2 に模式的に示すように一風変わった温度圧力相図を示す。これまでの研究により研究代表者らは、この物質の単結晶試料を作製し、超伝導 1 相 (図 2 柱の低圧力側の影部) は反強磁性 1 の下でのみ存在することと、より高圧力下で安定化する反強磁性 2 (図中の破斜線部) の下で消失することを見出した[5,6]。また、超伝導 1 相は同じ反強磁性 1 相の中でも常圧下では存在せず、より高圧力下の反強磁性 2 相に隣り合う形で発現する点も特徴である。超伝導と共存・競合する磁性相の存在や、超伝導が磁性相の内部でのみ発現する特殊性は、超伝導と磁性の関係を理解する上で興味深い研究対象といえる。このような高圧力下で起こる電子状態や磁性状態の変化について知見を得るため、圧力下中性子実験により微視状態の違いを明らかにすることを目標に研究を進めた。

References: [1] F. Steglich et al., Phys. Rev. Lett. 43, 1892 (1979). [2] K. Miyake et al., Phys. Rev. B 34, 6554R (1986). [3] Y. Onishi and K. Miyake, J. Phys. Soc. Jpn., 69, 3955 (2000). [4] N. D. Mathur et al., Nature 394, 39 (1998). [5] Y. Ikeda et al., JPS Conf. Proc. 3, 015044 (2014). [6] H. Kotegawa et al., J. Phys. Soc. Jpn. 75, 044713 (2006).

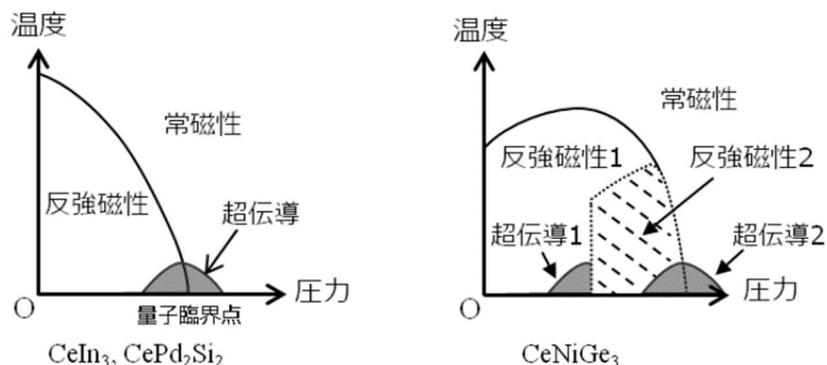


図1 重い電子系における相図の例[4]。 図2 CeNiGe_3 の温度-圧力相図の概略図[5, 6]。

2. 研究の目的

申請時における研究目的として、(1). 超伝導と共存する磁気秩序相と、競合する磁気秩序相の磁気構造を圧力下中性子実験により明らかにすること、(2). 圧力下中性子実験と輸送特性の圧力変化の測定から、超伝導転移温度と関連する物理量を明らかにすること、(3). 上記の二項目の結果、特に圧力下の結晶構造解析の結果をバンド計算にフィードバックし、より現実 に即した電子状態の圧力変化を明らかにすること、を掲げた。しかしながら予備実験として進めていた圧力セルの開発がガスケットの選定不良等の理由で滞ったため、研究目的(1)と(2)より、(1')圧力下中性子実験用圧力セルの改良と、(2')それを用いた中性子回折実験による研究に注力し、(3)は今後の検討課題とした。具体的には、4-5 GPa 程度までの加圧を可能にすること、磁性相 2、乃至は磁性相 1 の高圧力下の状態を中性子回折実験により調べ、常圧下の状態からの変化を明らかにすることを目指した。

3. 研究の方法

開発した圧力セルの性能評価のため、図 3(左, 中)に示すような標準試料の電気抵抗測定により、発生圧力の較正を行った。使用したアルミニウム合金製のガスケットを用いた場合、室温において大凡 3 GPa の加圧に成功した。目標とした 4 GPa までの加圧は出来なかったものの、今後、ガスケットの材質や成型等の条件を見直すことで、5 GPa 程度までの圧力実験に目途がたった。

圧力下中性子実験は J-PARC MLF の BL18 に設置された単結晶回折計 (SENJU) を用いた (実験

課題番号：2020B0155)。安全上の理由から、圧力セルが破壊されない低い圧力範囲に限り実験を行った。発生圧力は格子定数の変化や圧力媒体の圧縮率から、大凡 1-2 GPa と評価された。

4. 研究成果

実験の結果、図 4 に示すような中性子回折強度マップを得ることが出来、極低温の圧力下において磁気および核 Bragg ピークの観測に成功した。発生圧力は目標の大凡四分の一の 1 万気圧程度であるため、さらなる改良は必要であるものの、圧力下で微弱な磁気信号を観測するという初段の目的を達成することができた。また、圧力下中性子回折実験により、常圧下磁気相の非整合磁気伝搬ベクトルにわずかながらも圧力変化を見出し、伝搬ベクトルの圧力変化を直線近似した場合、大凡 2~5GPa の間で非整合-整合磁気相転移が生じる可能性が明らかとなった。今後はより安定して高圧力下実験が可能となるように更なる圧力セルの改良に加え、単結晶試料を用いた 3 万気圧程度までの電気輸送特性と磁気特性を詳細に調べ、電子状態に対する非整合-整合転移の可能性を検証する予定である。

今回の研究では安全上の理由から、無理のない圧力において実験を行った。その際、より安全な対策を実施するために、ガスケットの外側に NiCrAl 製の補助リング状を追加して実験を行った。中性子の吸収やバックグラウンドの増加などの悪影響が心配されたものの、図 4 に示す逆格子空間の範囲においては、予想に反して補助リングの有無で定性的な差が無いことが確認された。この結果は、今後より高い圧力実験を行うときにも活かすことができると考えている。また今回の結果を踏まえて、コヒーレント散乱や吸収の影響が小さな、より良いガスケット材質の選定を行うことで、当該領域研究の発展に資することができると確信する。

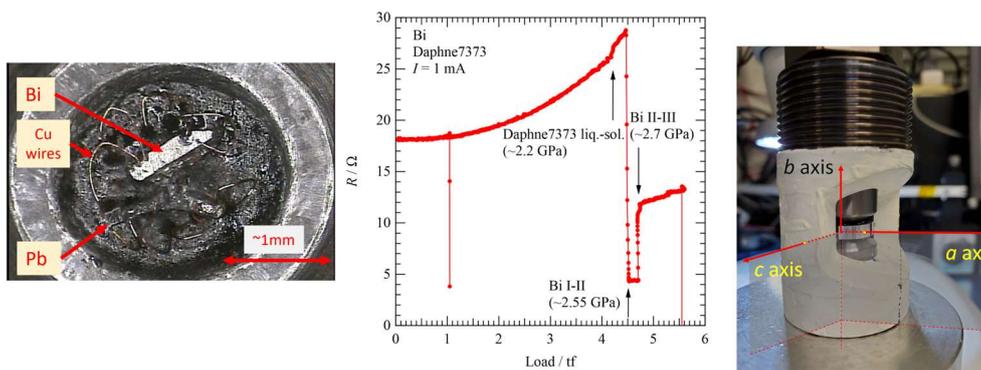


図 3 (左) 電気抵抗測定による発生圧力の評価用にビスマスと鉛の標準試料に端子を取り付けた様子。(中) 荷重に対するビスマスの電気抵抗の変化。ビスマスの構造相転移に由来する電気抵抗の変化が矢印で示した荷重値において観測され、確かに 3GPa 程度までの加圧に成功したことが示された。(右) 圧力セルと封入した結晶の方位を示した写真。

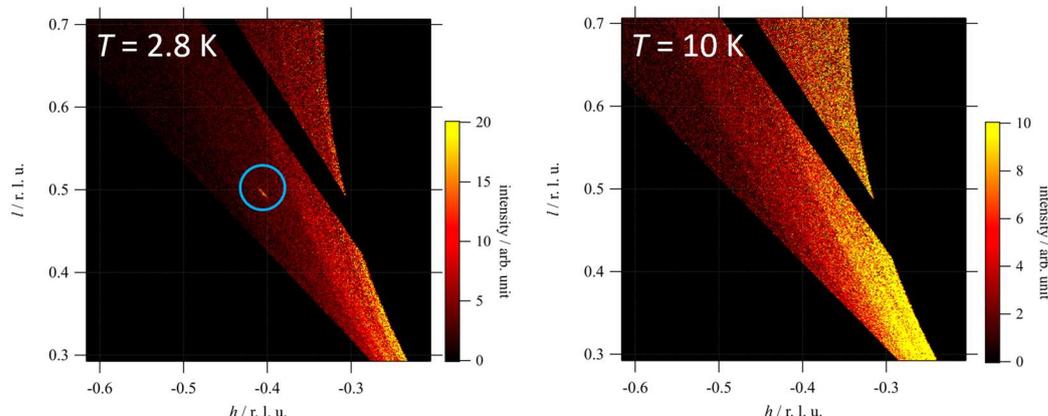


図 4 圧力下 (大凡 1-2 GPa) における逆格子空間 (h/l) における中性子回折強度マップ。(左) 磁気転移温度以下 2.8 K で測定した結果。(右) 磁気転移温度以上の 10 K で測定した結果。左図の丸で示したところに磁気 Bragg 反射を観測し、開発したセルを用いて圧力下実験が可能であることが示された。

上記研究と並行して、以下の2つの共同研究を進めた。これらの研究は当初計画には挙げなかったものの、関連性の高い研究として、当該研究期間の間に行った。

【イッテルビウム系重い電子化合物の研究】においては、磁性イオンが希薄な場合においても磁化の非線形増加が起こることを実験的に明らかにし、縮重度の大きな場合の近藤効果との関連性を議論した。この成果は学会発表と修士論文としてまとめられた。学術誌への投稿準備を終え、近日中に投稿を予定している。

【反転対称性のないセリウム化合物の研究】においては、正方晶 $I4mm$ に属するいくつかのセリウム化合物の研究を進めた。そのうちのひとつを挙げると、単結晶中性子回折実験により phase shift を持ちうる oval 型の反強磁性秩序が低温で安定することを見出し、その成果は学術雑誌へ掲載された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 D Ueta, T Kobuke, H Shibata, M Yoshida, Y Ikeda, S Itoh, T Yokoo, T Masuda, H Yoshizawa	4. 巻 90
2. 論文標題 Crystalline Electric Field Level Scheme of Non-centrosymmetric CeRhSi ₃ and CeIrSi ₃	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 104706
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/jpsj.90.104706	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 D Ueta, M Yoshida, T Kobuke, Y Ikeda, T Masuda, H Yoshizawa	4. 巻 90
2. 論文標題 Complex Magnetic Phase Diagram in the Non-Centrosymmetric Compound CePtSi ₃	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 64712
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/jpsj.90.064712	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 Itoh Shinichi, Masuda Takatsugu, Yokoo Tetsuya, Yoshizawa Hideki, Soda Minoru, Asai Shinichiro, Ikeda Yoichi, Ibuka Soshi, Yoshida Masahiro, Hawaii Takafumi, Saito Hiraku, Kawana Daichi, Sugiura Ryosuke, Asami Toshio, Ihata Yoshiaki	4. 巻 33
2. 論文標題 Dynamical Studies in Condensed Matter on High Resolution Chopper Spectrometer (HRC) -2nd Phase of HRC Project-	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Proceedings of the 3rd J-PARC Symposium (J-PARC2019): JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 11058
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/jpscp.33.011058	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 Ueta Daichi, Yoshida Masahiro, Kobuke Tomohiro, Ikeda Yoichi, Nakao Akiko, Moyoshi Taketo, Munakata Koji, Liu Yaohua, Masuda Takatsugu, Yoshizawa Hideki	4. 巻 90
2. 論文標題 Oval-cycloidal Magnetic Structure with Phase-shift in the Non-centrosymmetric Tetragonal Compound CePdSi ₃	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 114702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.114702	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9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 北澤崇文, 池田陽一, 池内和彦, 蒲沢和也, 大河原学, 藤田全基
2. 発表標題 非弾性中性子散乱実験で見た YbTr ₂ Zn ₂₀ (Tr = Rh, Ir)における c-f 混成の増強
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会 (PSH-59)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 池田陽一
2. 発表標題 圧力下中性子回折実験用圧力装置の開発
3. 学会等名 日本物理学会2019年度秋季大会 (12aPS-52)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 北澤崇文
2. 発表標題 Yb希薄系Y _{1-x} Yb _x T ₂ Zn ₂₀ (T = Co, Rh) の結晶場準位
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会 (2020)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 池田陽一, 大河原学, 谷口貴紀, 南部雄亮, 岩佐和晃, 藤田全基
2. 発表標題 東北大学中性子散乱分光器6G-TOPANの2021年
3. 学会等名 第21回日本中性子科学会年会、京都大学 (オンライン開催)、2021.12.01-03.
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 橋本勇輝、池田陽一、宗像孝司、鬼柳亮嗣、藤田全基
2. 発表標題 重い電子系超伝導体CeNiGe ₃ に対する圧力下单結晶中性子回折実験
3. 学会等名 第140回金研講演会 2021. 05. 26.
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 橋本勇輝、池田陽一、北澤崇文、宗像孝司、鬼柳亮嗣、大原高志、藤田全基
2. 発表標題 圧力下单結晶中性子回折実験による重い電子系超伝導体CeNiGe ₃ の研究
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会 2021. 09.21.
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 北澤崇文、池田陽一、松尾晶、榊原俊郎、南部雄亮、金道浩一、藤田全基
2. 発表標題 Yb希薄系(Lu, Yb)Rh ₂ Zn ₂₀ における近藤効果に起因した単サイトメタ磁性
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会, 2021.09.20-23.
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 北澤崇文、池田陽一、清水悠晴、松尾晶、山下穰、金道浩一、藤田全基
2. 発表標題 擬縮重を持つYb希薄系(R, Yb)Rh ₂ Zn ₂₀ (R = 非磁性元素)の格子体積と特性温度の関係
3. 学会等名 日本物理学会年次大会, 2022.03.15-19.
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 北澤崇文, 池田陽一, 松尾晶, 榊原俊郎, 南部雄亮, 金道浩一, 藤田全基
2. 発表標題 Yb希薄系(Lu, Yb)Rh ₂ Zn ₂₀ における近藤効果に起因した単サイトメタ磁性
3. 学会等名 第140回金研講演会, 2021.05.26.
4. 発表年 2021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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------