

令和 5 年 6 月 30 日現在

機関番号：82121

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K03756

研究課題名（和文）強磁性金属の量子臨界近傍における中性子回折磁気構造解析

研究課題名（英文）Neutron diffraction magnetic structure analysis near the quantum criticality of ferromagnetic metals

研究代表者

宗像 孝司（MUNAKATA, Koji）

一般財団法人総合科学研究機構（総合科学研究センター（総合科学研究室）及び中性子科学センター（研究開発・中性子科学センター・副主任技師）

研究者番号：00363408

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）：J-PARCのパルス中性子源MLFに設置されている特殊環境微小単結晶中性子構造解析装置SENJUに適用可能なアンビル方式の高圧発生技術を開発した。この技術を用いて遍歴強磁性体LaCrGe₃において新たに発見された、強磁性相が抑制された後に出現する圧力誘起反強磁性相に着目し、この反強磁性相の磁気的構造を高圧下中性子回折測定で明らかにし、この物質の量子臨界現象の解明を目指した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

J-PARC MLFの単結晶中性子回折装置SENJUを用いて10GPa程度までの精密な構造解析や磁性研究を可能にする技術開発を行ない、液体ヘリウム温度以下の極低温にて中性子回折実験を定常的に行なう試料環境と測定手法を構築した。これにより量子臨界現象を含む他の圧力下物性測定との間で相補的な物性研究を進めることが可能となり、高圧力下での物性現象の諸因子解明にミクロな立場から迫ることができる。

研究成果の概要（英文）：We have developed anvil-type high-pressure technique that can be applied to SENJU, Extreme Environment Single Crystal Neutron Diffractometer installed in the pulsed neutron source MLF at J-PARC. Using this technique, we focus on the newly discovered pressure-induced antiferromagnetic phase that appears after the ferromagnetic phase is suppressed in the itinerant ferromagnet LaCrGe₃. We aimed to elucidate the quantum critical phenomenon of this material by clarifying it by neutron diffraction measurement.

研究分野：物性物理

キーワード：高圧力 中性子回折 単結晶 磁気構造 量子臨界 J-PARC SENJU

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 強相関電子系物質において、複数の相の秩序化エネルギーや秩序変数間の相互作用が拮抗・競合している場合、秩序相の臨界領域では秩序変数のゆらぎが大きくなり、わずかな外力によって相転移という巨大な応答が得られる。この臨界領域を生成する手段として、物質の外部から高圧力を印可することが極めて有効であることは良く知られている。この圧力誘起相臨界領域に現れる物性を調べる上で、結晶構造や磁気状態を知ることは不可欠である。中性子回折法はこれらを直接調べることができる手法である。特にパルス中性子源に設置された TOF (飛行時間) 法の中性子回折装置は、広い逆空間を一挙に測定して精密な結晶構造、磁気構造解析が可能になるため極めて効率的で強力な測定装置であり、相臨界領域の物性を研究するための重要な手段である。

(2) 金属間化合物の多くは常圧で反強磁性や強磁性といった磁気秩序を示す。圧力や磁場といった制御パラメータを変化させると、磁気秩序が抑制され転移温度が絶対零度に向かう。絶対零度における 2 次相転移は量子臨界点と呼ばれ、多くの反強磁性体でこの現象が観測される。一方、強磁性体については制御パラメータにより磁気秩序が 2 次から 1 次相転移に変化することが理論、実験の両面から報告されており、強磁性量子臨界が本質的に存在するかに関し、その出現機構を含め議論が続いている。

2. 研究の目的

上記背景のもと、強相関電子系物質の研究に有用な低温高圧下での単結晶中性子回折測定技術および手法の開発と、これを実際の物質に適用し単結晶試料の中性子磁気回折測定の実施を主要な目的とする。

(1) J-PARC のパルス中性子源 MLF に設置されている特殊環境微小単結晶中性子構造解析装置 SENJU に適用可能なアンビル方式の高圧発生技術を開発する。物性物理研究推進の要請に応じ、液体ヘリウム温度までの低温、および 10GPa 程度までの超高圧力下においても単結晶中性子回折実験を可能にする試料環境を SENJU に構築する計画である。

(2) 本研究で対象物質とした LaCrGe_3 は常圧で強磁性基底状態を持つ遍歴強磁性体である。強磁性転移は圧力によって抑制され、3 重臨界点近傍 (約 1.8GPa) より高圧側で 2 次転移から 1 次転移へ変化し、約 2.1GPa で絶対零度に落ち込み量子臨界点には至らない。また強磁性相 (FM 相) の高圧側に磁氣的な変調構造を持った反強磁性相 (AFM_0 相) が出現することが知られている。本研究で開発した低温・高圧試料環境を用い、 LaCrGe_3 の低温・高圧下の中性子磁気回折の探索を SENJU にて実施し、圧力誘起の新奇磁気相の解明に繋がる情報を取得することを目的とした。

3. 研究の方法

(1) パルス中性子源用アンビル式高圧発生技術と低温・高圧試料環境の開発

本研究では、J-PARC MLF の中性子ビームライン SENJU に高圧下单結晶中性子回折法の構築を行なう。10GPa 級の圧力が目標であるのでアンビル式の高圧セル (高圧装置) を使用することになる。この目的のため、定常中性子源である JRR-3 の角度分散型回折装置用に開発され利用研究実績も多い対向ハイブリッドアンビル式高圧技術^[1]を採用し、SENJU 用に向けての改良を施す。また SENJU での高圧下低温実験を実現するために、ハイブリッドアンビル式高圧セル冷却用の冷凍機の開発も進める。

(2) LaCrGe_3 の高圧下单結晶中性子回折測定

LaCrGe_3 の先行研究で明らかとなった、高圧下で誘起される AFM_0 相と FM 相との関係性を明らかにするために高圧下中性子回折実験を行なう。中性子実験には本研究で開発した高圧セルを用い、SENJU の一般課題マシンタイムにて実施する。

4. 研究成果

(1) パルス中性子源用アンビル式高圧発生技術と低温・高圧試料環境の開発

TOF-Laue 法回折装置である SENJU は広い検出器立体角により高効率なデータ収集が可能である^[2]。JRR-3 用ハイブリッドアンビル式高圧セルの設計をもとに SENJU 用に開発した高圧セルを図 1 に示す。セルの材質は主としてベリリウム銅で、セル外形は高さ 77mm、直径 45mm の円筒形であり、SENJU の検出器配置を考慮して水平面内に対向した開口角 135° の窓を 2 箇所設けてある。使用したアンビルは超硬 WC と単結晶サファイア、あるいは超硬 WC と周囲を MP35N 合金でサポートした単結晶 SiC の組み合わせ (ハイブリッド) である。本研究中においては、アンビル先端加工面 (キュレット) の直径を 2.7mm とした時、WC とサファイアの組み合わせでは 4GPa、WC と SiC の組み合わせでは 9GPa を超える圧力発生に成功した。

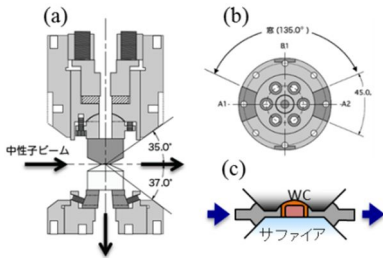


図 1. SENJU 用改良型高圧セル。(a) 正面, (b)上面, (c)試料付近。



図2.(左) -XYZ軸を備えた高圧セル用冷凍機システム。(右) BN製ノズル式入射コリメータ。

図 2(左)に高圧セル用冷凍機システムを示す。入射中性子に対し単結晶試料の方位を変えるための回転軸に加え、直交する 3 本の並進軸 XYZ を備えており、試料位置の微調整あるいは冷却による試料位置の変動を補正可能である。冷却には GM 冷凍機を使用している。本冷凍機システムによる高圧セルの到達温度は約 2.7K を達成した。高圧セルでは試料サイズが制限されるため、測定時のバックグラウンド低減対策が特に重要である。図 2(右)は、中性子ビームが可能な限り試料のみに入射するように製作した BN 製のノズル式入射コリメータである。これにより微弱な磁気反射を含めた多くの反射測定に対し、その効果が確認できた。

以上の SENJU における高圧発生技術と低温・高圧試料環境の開発、および測定手法の確立は、本研究に留まらず既に SENJU を利用するユーザーの一般課題にも複数利用されており、各成果が出てきている。今後も多くの強相関電子系物質の高圧物性研究への適用が可能な研究成果である。

(2)LaCrGe₃ の高圧下单結晶中性子回折測定

先行研究^[3]にも示されている様に、LaCrGe₃ の新しい磁気相 AFM₀ は 2GPa 以上に存在する。この圧力領域での測定のために、上記で記した改良型のハイブリッドアンビル式高圧セルを用いた高圧下中性子回折実験を SENJU にて行なった。高圧セルの試料サイズに成形した LaCrGe₃ 単結晶を、その(h h k)面が水平になるように高圧セルに封入した。圧力は 2.5GPa に調整し、AFM₀ 相と常磁性相間の情報を得るために温度を変化させた測定を行なった。本研究では AFM₀ 相での磁気伝播ベクトルを決定することが目的であり、この相での磁気反射の検索を行なった。磁気構造が未知のため広く逆格子空間を走査し磁気反射を探索することが重要である。従って試料の水平面内での回転(試料方位の変更)に加え、入射波長は SENJU の 1st フレーム(0.4~4.4 Å)と 2nd フレーム(4.6~8.8 Å)を使用した。図 3 は 2nd フレームで測定した 2.5GPa での AFM₀ 相(2.8K)と常磁性相(65K)の(h h k)逆格子面の回折強度マップを示している。両者を比較調査した結果、今回の測定の範囲内では有意な差、つまりその存在が示唆されていた高圧下 AFM₀ 相における新たな磁気反射の出現や反射強度の変化は確認できなかった。本高圧相が強磁性クラスターの状態であるという考えを提唱している研究もあるが^[4]、今回の実験とは異なる圧力や逆格子面での測定も含め、低バックグラウンド条件下でのより詳細な磁気反射の探索を行う必要があると考えられる。

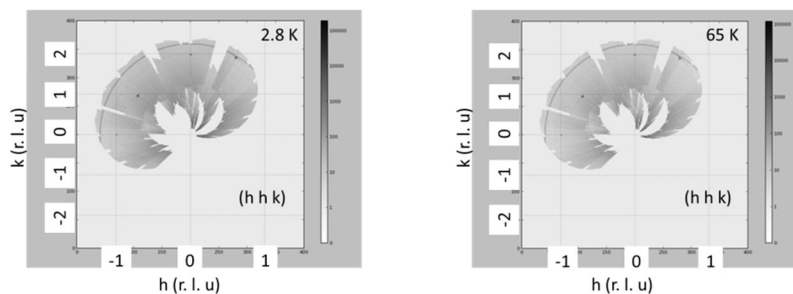


図 3. SENJU の 2nd フレームで測定した 2.5GPa における LaCrGe₃ の(hhk)逆格子面の回折強度マップの温度変化。

また本研究のテーマである量子臨界現象に関連して、二次元直交ダイマー系物質 SrCu₂(BO₃)₂ の強磁場下約 26T での中性子非弾性測定に関する共同研究実験を、ドイツ Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB)の原子炉 BER II に設置された分光器 EXED において、本研究助成により実施することが出来た。この実験を含む結果は研究論文(共著)にまとめられ投稿中である^[5]。

- [1] 長壁, 日本中性子科学会 「波紋」 22, 139-144, (2012).
- [2] T. Ohara *et al.*, J. Appl. prystallogr. 49, 120 (2016).
- [3] V. Taufour *et al.*, Phys. Rev. Lett., 117, 037207 (2016).
- [4] E. Gati *et al.*, Phys. Rev. B 103, 075111 (2021).
- [5] E. Fogh *et al.*, arxiv.org/abs/2306.07389.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計18件（うち査読付論文 18件 / うち国際共著 7件 / うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Keishiro Yamashita, Kazuki Komatsu, Takashi Ohhara, Koji Munakata, Tetsuo Irifune, Toru Shinmei, Kazumasa Sugiyama, Toru Kawamata and Hiroshi Kagi	4. 巻 42
2. 論文標題 Improvement of nano-polycrystalline diamond anvil cells with Zr-based bulk metallic glass cylinder for higher pressures: application to Laue-TOF diffractometer	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 High Pressure Research	6. 最初と最後の頁 121 - 135
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/08957959.2022.2045982	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 E Dissanayake, M Matsuda, K Munakata, H Kagi, J Gouchi and Y Uwatoko	4. 巻 31
2. 論文標題 Development of cubic anvil type high pressure apparatus for neutron diffraction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 384001 (5pp)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648x/ab2688	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49件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 16件）

1. 発表者名 Ellen Fogh, Gaetan Giriat, Andrea Piovano, Oleksandr Prokhnenko, Maciej Bartkowiak, Koji Munakata, Ekaterina Pomjakushina, Martin Boehm, Kazuhisa Kakurai, Frederic Mila, Henrik M. Roennow
2. 発表標題 Exploring the Shastry-Sutherland compound, Sr ₂ Cu(BO ₃) ₂ , by using inelastic neutron scattering with high pressures and high magnetic fields
3. 学会等名 International Conference on Neutron Scattering (ICNS 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Koji Munakata and Toyotaka Osakabe
2. 発表標題 Development and application of techniques for low-temperature and high-pressure single crystal neutron diffraction
3. 学会等名 11th International Workshop on Sample Environment at Scattering Facilities (ISSE 2022) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Koji Munakata, Roji Kiyonagi, Takashi Ohhara, Akiko Nakao, Yoshihisa Ishikawa, Kentaro Moriyama and Wataru Kambara
2. 発表標題 Sample stick with ω -rotation axis for top-loading cryostat using in TOF single-crystal neutron diffractometer SENJU
3. 学会等名 11th International Workshop on Sample Environment at Scattering Facilities (ISSE 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 荒木新吾, 岩本凱成, 秋葉和人, 小林達生, 宗像孝司, 長壁豊隆, 金子耕士
2. 発表標題 -Mnの圧力誘起磁気秩序相の磁気構造
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 長壁豊隆, 宗像孝司
2. 発表標題 高圧下磁性研究におけるJRR-3とJ-PARC MLFの相補利用
3. 学会等名 日本中性子科学会 第22回年会
4. 発表年 2022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
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 荒木新吾, 小林達生, 西森弘顕, 秋葉和人, 岩本凱成, 宗像孝司, 長壁豊隆, 金子耕士
2. 発表標題 -Mnの高圧物性
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
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
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宗像孝司, 鬼柳亮嗣, 大原高志, 中尾朗子, 石川喜久, 森山健太郎, 神原理
2. 発表標題 MLF単結晶中性子回折装置SENJの試料環境整備の現状
3. 学会等名 2021年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小澤竜也, 藤原理賀, 内原猛, 満田節生, 矢野真一, 中尾朗子, 宗像孝司
2. 発表標題 一軸応力が誘起するMnPの巨大磁気応答と結晶構造再構成
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宗像孝司
2. 発表標題 海外施設での実験経験と試料環境
3. 学会等名 第23回 CROSSroads Workshop 「量子ビーム実験施設における試料環境」(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Munakata, T. Osakabe, A. Nakao, and T. Ohhara
2. 発表標題 Development of high pressure apparatus at single crystal neutron diffractometer SENJU
3. 学会等名 J-PARC Symposium 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Ohhara , R. Kiyonagi, A. Nakao, K. Munakata, Y. Ishikawa, K. Moriyama, I. Tamura, and K. Kaneko
2. 発表標題 The latest status of a TOF single crystal neutron diffractometer SENJU at J-PARC
3. 学会等名 J-PARC Symposium 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019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	金子 耕士 (KANEKO Koji) (30370381)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究 部門 原子力科学研究所 物質科学研究センター・研究主幹 (82110)	

6. 研究組織（つづき）

	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	長壁 豊隆 (OSAKABE Toyotaka) (80354900)	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 物質科学研究センター・研究主幹 (82110)	
研究分担者	加倉井 和久 (KAKURAI Kazuhisa) (00204339)	一般財団法人総合科学研究機構（総合科学研究センター（総合科学研究室）及び中性子科学センター（研究開発・中性子科学センター・特任研究員） (82121)	

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		
スイス	EPFL	Paul Scherrer Institut, (PSI)	
ドイツ	Helmholtz-Zentrum Berlin (HZB)		
フランス	Institute Laue Langevin (ILL)		
カタール	Carnegie Mellon University		
米国	University of California, Davis	Oak Ridge National Laboratory	
ドイツ	Helmholtz-Zentrum Berlin		
スイス	EPFL		