

平成 30 年 5 月 25 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17740

研究課題名(和文) 中性子散乱による重い電子系セリウム化合物における磁性と超伝導の共存競合問題の研究

研究課題名(英文) Neutron diffraction study of magnetic phases on cerium-based heavy fermion superconductors

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) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：重い電子系反強磁性体CeNiGe<sub>3</sub>における超伝導と競合する高圧力下反強磁性相を、圧力下中性子散乱実験により解明することを目的とする。その為に圧力セルの開発から進め、以下の結果を得た。1. 加圧時の応力集中箇所を有限要素法により解析することで、広い回折角を有する中性子実験用圧力セルが出来た。2. 圧力セルの開発の遅れと、施設側の問題(冷凍機の故障)により実験が出来なかったが、今後、圧力下中性子実験を実施する予定である。3. 上記実験が滞った為、物質開発を進めた。反転対称性のないCePdSi<sub>3</sub>等の単結晶試料の育成に成功し、非整合磁気構造が基底状態になっている可能性を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In order to reveal pressure-induced magnetic phases on the cerium-based heavy electron superconductor CeNiGe<sub>3</sub>, we developed a small pressure cell with a wide detectable reflection angles for neutron diffraction experiments. For higher-pressure experiments above 4 GPa, further improvement on the gasket and sealing parts is indispensable. High-pressure neutron experiments were late because of a delay on the development of high pressure cell and a trouble on the cryostat in the neutron facility. Under these circumstances, we studied an alternate research subject of the noncentrosymmetric cerium-based intermetallic compounds CePdSi<sub>3</sub>. For CePdSi<sub>3</sub>, we found multiple magnetization steps, complex magnetic phase diagrams, and a possibility that an incommensurate magnetic ground state is realized.

研究分野：数物系科学

キーワード：重い電子 圧力 中性子実験

### 1. 研究開始当初の背景

CeNiGe<sub>3</sub>の温度圧力相図は、重い電子系の典型的な相図とは一風変わっている。この物質の超伝導相は、6~7 GPa に存在する反強磁性量子臨界点の近傍に加えて、臨界点から離れた 4 GPa 付近の反強磁性相内でも現れる。図 1 に示すように、反強磁性相内で発現する超伝導相 1 は、反強磁性 2 が現れると同時に消失する。この興味深い相図は、RKKY 相互作用と近藤効果の単調な競合効果では理解できない物理が存在することを示唆している。

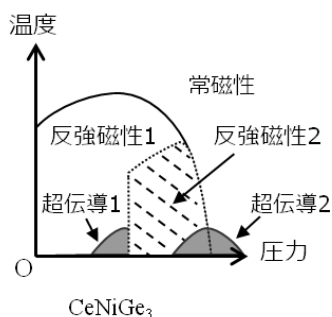


図 1 CeNiGe<sub>3</sub>の相図の概略図。

CeNiGe<sub>3</sub>で観測されているふるまいを理解するためには、高圧力下における磁気相の構造情報が必要不可欠であるが、反強磁性 2 を調べる為には、4 GPa 程度の高圧力下で、かつ液体ヘリウム温度以下から希釈冷凍機温度領域での中性子実験が必要であった。また、4 GPa を超える圧力下における中性子実験は、他の多くの重い電子系化合物においても必要とされていた。

### 2. 研究の目的

そのような中で、低温高圧下における中性子実験を行うための小型圧力セルの開発を進め、セリウムイオンあたり 1 ボーア磁子以下の小さな磁気信号を検出する為の実験的なノウハウを確立することを目指した。

上記実験は萌芽的要素が強いため、上手くいかない場合の代替として、反転対称性の破れたセリウム化合物の物質開発も行った。ここでは、反転対称性の破れに起因する物性物理現象の発現を、実験的に明らかにすることを目的とした。

### 3. 研究の方法

圧力下中性子実験用の小型圧力セルを開発するにあたり、圧力セルの強度に加えて、中性子実験に適した形状や圧力セルの材質を決める必要があった。そこで、中性子透過率や実験後の放射化問題などを考慮しつつ圧力セルの材料を選定したうえで、加圧時の応力集中箇所を有限要素法により解析し、広い回折角をもつ圧力セルを設計・製作する。

圧力は、通常の実験室であれば、鉛や錫などの超伝導転移温度の圧力依存性から決め

ることが出来る。しかしながら、中性子実験施設では中性子実験を行う時間が限られているため、これまでの方法では非効率である。そこで、効率よくビームタイムを使うために、ルビー蛍光法を利用した圧力測定装置を導入し、新規に圧力モニターシステムを立ち上げる。

反転対称性の破れたセリウム化合物として、CePdSi<sub>3</sub>の単結晶試料を用いて中性子回折実験により磁気構造を調べる。

### 4. 研究成果

中性子実験用圧力セルを作成する際に、中性子に対する透過率や放射化問題を考慮して、圧力セルのシリンダー材を NiCrAl 合金とした。試料サイズを 1mm<sup>3</sup>程度とするために、ガスケットを用いた対抗アンビル型の形状とした。アンビルにはコバルトフリーのタングステンカーバイトを採用した。片方のアンビルには穴をあけ、その中に光ファイバーを通すことで、ルビー蛍光法による圧力測定を可能にした。圧力セルのシリンダーは、有限要素法により強度計算を行い、10ton 程度の荷重に耐えるように設計した。完成した圧力セルの写真を図 2 に示す。この研究成果は、日本物理学会(大阪大豊中、2017年3月)にポスター発表した。

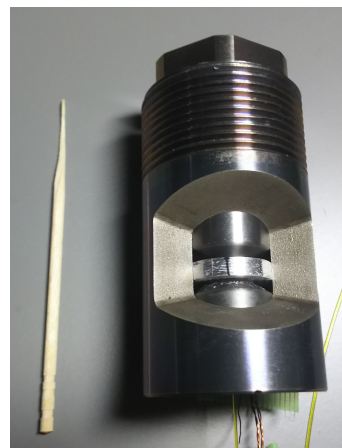


図 2 中性子実験用小型圧力セル

これまでの中性子実験では主に塩化ナトリウムの格子定数の変化から、試料空間に発生した圧力が測定されてきた。しかしながら、この方法では圧力の測定に中性子ビームが必要となり、実験室で圧力発生効率などを調べて、セルの最適化を行うには、たいへん非効率であった。そこで、ダイヤモンドアンビルセルなどでよく使われるルビー蛍光法による圧力測定方法を導入することにした。

ルビーの励起光源には、波長 532nm のレーザーを用い、試料空間までは光ファイバーを通して伝送した。ルビーに 532nm の励起光をあてることで生じる蛍光を、光の導入に用いた同じ光ファイバーで収集し、ハーフミラー

を介して分光器へ分け、1800gr/mmの回折格子によって、680~710nm領域を分光した。測定に使うルビーとして、クロム1%含有の $Al_2O_3$ 結晶を浮遊帯域溶融炉で自作し、新規に立ち上げたルビー蛍光圧力モニターシステムで測定した。大気圧下におけるルビー蛍光スペクトルを図3に示す。

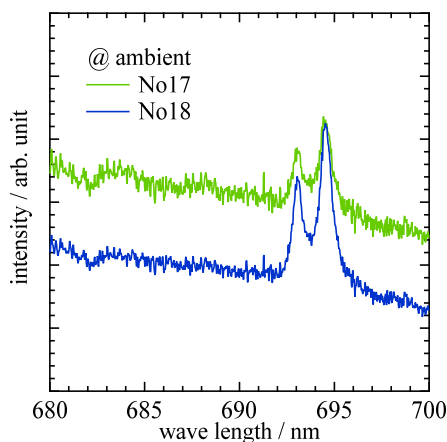


図3 大気圧下において観測したルビーの蛍光スペクトル。

加圧試験を行った後、大強度陽子加速器研究施設 J-PARC・MLF の BL18 (SENJU: 課題番号 2017A0147) において、中性子実験を実施予定であったが、圧力セルの開発の遅れと、施設側の問題(冷凍機の故障)により実験が出来なかった。圧力セルについては、圧力封止機構の改良を行う必要があることがわかり、ガスケット部分とアンビル部分の改良を進めている。今後、冷凍機の修理が済み次第、圧力下中性子実験を実施する予定である。

上記実験が滞った為、物質開発を進めた。反転対称性のない $CePdSi_3$ 、 $CePtSi_3$ 等の単結晶試料の育成に成功し、複雑な磁気相図を発見した。 $CePdSi_3$ に関しては、中性子回折実験を行い、図4に示すように、非整合位置に磁気反射を観測した。図4では2つの磁気伝搬ベクトルに磁気反射が現れており、この原因はよく分かっていない。少なくとも、高温側の磁気相(I相)では、磁気伝搬ベクトルは $\mathbf{i}=(0.32, 0, 0)$ となっており、より低温のIII相で $\mathbf{iii}=(0.32, 0, 1)$ 位置の磁気反射が現れることがわかった。希釈冷凍機温度領域でも非整合位置に磁気反射が現れており、これは $CePdSi_3$ では非整合磁気構造が基底状態になっている可能性を示している。また参照物質である $CePtSi_3$ では低温で整合構造に変化しており、 $CePdSi_3$ とは対照的になっている。今後、他の $CeTSi_3$ 系の磁気構造との比較と、詳細な磁気構造解析を行い、結果を論文として投稿予定である。

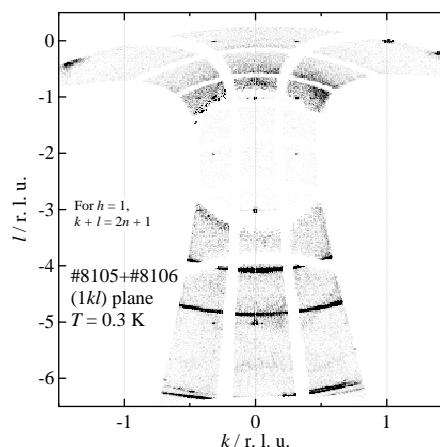


図4  $CePdSi_3$ の(1kl)面における中性子回折強度。

## 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4件)

1. D. Ueta, T. Kobuke, M. Yoshida, H. Yoshizawa, Y. Ikeda, S. Itoh, and T. Yokoo, "Crystalline Electric Field Level Scheme of the Non-Centrosymmetric  $CePtSi_3$ ", *Physica B: Condensed matter* 536, (2017) 21-23 (2 pages).
2. K. Mochizuki, Y. Shimizu, A. Kondo, S. Nakamura, S. Kittaka, Y. Kono, T. Sakakibara, Y. Ikeda, Y. Isikawa, and K. Kindo, "Thermodynamic Investigation of Metamagnetic Transitions and Partial Disorder in the Quasi-Kagome Kondo Lattice  $CePdAl$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.* 86 (2017) 034709 (5 pages).
3. R. Otaka, M. Yokoyama, H. Mashiko, T. Hasegawa, Y. Shimizu, Y. Ikeda, K. Tenya, S. Nakamura, D. Ueta, H. Yoshizawa, and T. Sakakibara, "Superconductivity and Non-Fermi-Liquid Behavior in the Heavy-Fermion Compound  $CeCo_{1-x}Ni_xIn_5$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.* 85 (2016) 094713 (7 pages).
4. D. Ueta, Y. Ikeda, H. Yoshizawa, "Weak Ferromagnetism and Multiple Metamagnetic Transitions in the Non-centrosymmetric Tetragonal Compound  $CePdSi_3$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.* 85 (2016) 104703 (13 pages).

〔学会発表〕(計5件)

1. 植田大地、吉田雅洋、小吹智広、池田陽一、吉澤英樹、中尾朗子、茂吉武人、Y. Liu、“空間反転対称性の破れたCePdSi<sub>3</sub>の磁気構造”、日本中性子科学会年会、福岡大学 (2017)
2. 植田大地、小吹智広、吉田雅洋、池田陽一、伊藤晋一、横尾哲也、吉澤英樹、“空間反転対称性の破れたCePtSi<sub>3</sub>の磁気特性”日本物理学会 第72回年次大会 大阪大学 豊中キャンパス (2017/03/18)
3. 植田大地、吉田雅洋、小吹智広、池田陽一、吉澤英樹、中尾朗子、茂吉武人、Y. Liu、“空間反転対称性の破れたCePdSi<sub>3</sub>の磁気構造”、日本物理学会 秋季大会、岩手大学 (2017)
4. D. Ueta, T. Kobuke, M. Yoshida, Y. Ikeda, S. Itoh, T. Yokoo, and H. Yoshizawa, “Crystalline Electric Field Level Scheme of the Non-Centrosymmetric CePtSi<sub>3</sub>”, International conference on Strongly Correlated Electron Systems (2017).
5. 池田陽一、“重い電子化合物CeNiGe<sub>3</sub>の圧力下磁気相の研究”、日本物理学会 第72回年次大会 大阪大学 豊中キャンパス (2017/03/18)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://qblab.imr.tohoku.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)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

(2)研究分担者

無し。

(3)連携研究者

無し。

(4)研究協力者

本研究の一部(反転対称性の破れたセリウム化合物の研究)については、以下の方々に協力頂いた。

1. 植田大地 (DAICHI UETA) 東京大学物性研究所 (2018年現在 DC3)

2. 吉田雅洋 (MASAHIRO YOSHIDA) 東京大学物性研究所・博士研究員

3. 吉澤英樹 (HIDEKI YOSHIZAWA) 東京大学物性研究所・教授

4. 中尾朗子 (AKIKO NAKAO) CROSS 一般財団法人 総合科学研究機構 中性子科学センター BL18 グループリーダー

5. 茂吉武人 (T. MOYOSHI) CROSS 一般財団法人 総合科学研究機構 中性子科学センター 研究開発部 BL18 研究員

6. 宗像孝司 (KOJI MUNAKATA) CROSS 一般財団法人 総合科学研究機構 中性子科学センター 研究開発部 BL18 研究員