

複合極端条件を用いた 強相関電子系化合物の物性研究

(課題番号:10304029)

平成10～12年度科学研究費補助金(基盤研究(A)(2))
研究成果報告書

平成 13 年 3 月

研究代表者 藤 田 敏 三

(広島大学大学院先端物質科学研究科・教授)

複合極端条件を用いた 強相関電子系化合物の物性研究

(課題番号:10304029)

平成10～12年度科学研究費補助金(基盤研究(A)(2))
研究成果報告書

平成13年3月

研究代表者 藤田 敏三

(広島大学大学院先端物質科学研究科・教授)

は し が き

本冊子は、平成10～12年度に文部省科学研究補助金・基盤研究(A) (2) として実施した研究課題

「複合極端条件を用いた強相関電子系化合物の物性研究」(課題番号: 10304029)

の研究成果報告書である。

f 電子系の高濃度近藤効果, d 電子系の高濃度超伝導に始まり, 近年, 金属と絶縁体の境界, あるいは局在傾向の強い伝導電子系で興味深い物質が数多く見つかっている。これらは, 局在電子と遍歴電子に割り切った従来の立場からは理解し難く, 両者の境界領域と位置づけるよりは, むしろ電子系の新しい状態として独立した領域を形成しつつある。この領域では, 極端条件によって制御されて現れる多様な物性の変化が, とくに興味深い。

本研究では, 低温・強磁場・高圧を組合わせた複合極端条件下で比熱などの物性測定技術を確立し, その複合極端条件下で物性実験を行った。極端条件技術としては, われわれのグループでは, これまで, 低温は 10 mK, 磁場は 16 T, 圧力は 8 GPa まで達成できており, たとえば, 8 T / 4.2 K で金属の電気抵抗を測定することはできた。しかし, 高圧下で 1 K 以下の物性測定は, 困難である。とりわけ, 断熱条件が必要な比熱の測定は非常に難しい。本研究では, 100 mK あるいはそれ以下の低温で 2 GPa の高圧下で比熱の測定が可能になったので, 物性測定の幅を広げた。同時に磁場も印加可能である。

一方, 本研究で取り上げた物質も広範囲におよぶが, 大きく分類すると, 希土類元素あるいはウラン元素を含む金属間化合物と, 銅およびルテニウムの酸化物である。いずれも, 電子間のクーロン相互作用が大きく, どれも個性的で特異な物性を見せるものばかりであった。極端条件下での物性とその変化は実に多様で, その研究は新しい物性の発掘に直結している。今後 重要な研究領域として多くの研究者に注目されることになるであろう。

研究組織

研究代表者	藤田 敏三	広島大学大学院先端物質科学研究科・教授
研究分担者	鈴木 孝至	広島大学大学院先端物質科学研究科・助教授
	中村 文彦	広島大学大学院先端物質科学研究科・助手
	伊藤 昌和	広島大学大学院先端物質科学研究科・助手

研究経費

平成10年度	23,300 千円
平成11年度	5,000 千円
平成12年度	4,900 千円
計	33,200 千円

研究の経過と成果の概要

本研究の目標は、物質の基本量を 低温・強磁場・高圧などの複合極端条件下で測定できる装置を整備して、強相関 f 電子系化合物や d 電子系化合物のバラエティに富む異常物性を電子レベルから理解することである。以下に、研究とおもな成果の概要をまとめておいた。詳しくは、後に資料として添付した原著論文に委ねたい。

1) 極端条件と測定系の整備

圧力下で断熱法による比熱を測定するために、非磁性のクランプ型圧力セルを設計／製作した。セルの寸法は直径 30 mm 長さ 120 mm。試料空間の大きさは、直径が 3 mm 長さは約 10 mm である。これを希釈冷凍機につけて 1 K 以下の測定を可能にした。最高圧力は、セルの材料強度によって制限され、約 2 GPa である。試料の熱容量は圧力セルを含めた全熱容量に比べると最大でも 10% 程度しか見込めないので精密測定が必要である。しかも、セル本体の熱容量は圧力に依存するので、各圧力下で較正した。

この装置を用いて YbInCu_4 の比熱を 150 mK 以下まで測定した。常圧での YbInCu_4 は、40 K で1次の価数転移を起こす。その転移に関わるエントロピーの変化から価数の変化分を見積もることができた。圧力印加により転移点は下がる。価数転移が消える量子臨界点近傍で、超伝導の出現が期待されたが、実験した圧力範囲ではまだ臨界点に到達することができず、したがって、超伝導もまだ見つかっていない。セルをさらに改良して、圧力を 3 GPa 程度まで上げる必要がある。

2) CeNiSn の金属的な基底状態

近藤半導体と考えられていた CeNiSn の磁場中比熱を 1 K で測定した結果、有限な電子比熱が存在し、この温度領域での電気抵抗の測定結果ともあわせると、基底状態は多体効果に支配された異常な金属状態である可能性が高いことを示すことができた。

CeNiSn 以外にも、 CeRu_2 の異常な超伝導混合状態、層状構造をもつ CeTe_2 における磁気抵抗の異方性、強磁性ラーベス相化合物 CeFe_2 の小さい磁気モーメント、 CeSb における反強磁性 等についても調べた。また、 YbPtSn の低温比熱の解析から、その局在磁性とエネルギー準位を示唆した。 LuB_6 では、音速の量子振動を観測し、はじめてフェルミ面を決めることに成功した。

3) ウラン化合物の磁気秩序と四重極子秩序

UNiSn は、常圧ゼロ磁場において 43 K で格子と磁性に関する複合相転移を示す。強磁場および超高压をかけることにより2つの秩序の競合関係を突き止めた。UNiSn においては反強磁性磁気秩序と強四重極子秩序が競合しており、圧力や磁場をかけると、四重極子秩序が助長され、反強磁性秩序が抑制されて、両者が分離する。強四重極子秩序が現れると半導体的な電気伝導から金属伝導に移る。この転移を追跡して、磁場-圧力-温度の3軸相図にまとめた。

UNiAl の磁性と伝導に対する圧力効果も興味深い。3 GPa 以上の圧力では反強磁性秩序は消えてしまう。UPt の比熱・磁化率・電気抵抗の測定から、この化合物は遍歴型の強磁性体であることを提唱した。UIrGe の比熱・磁化率・抵抗・熱電能測定から、その電子状態を調べた。

4) 高温超伝導体に対する圧力効果

銅酸化物 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) の単結晶試料の超伝導転移温度 T_c を、8 GPa までの圧力 P の関数として追った。 T_c は、 P の静水圧からのずれにきわめて敏感なことを見出した。その異方的圧力効果の解析から、LSCO においては斜方晶ひずみ、すなわち、 CuO_2 面の波打は超伝導を抑制する。実験結果をまとめると、正方晶相での LSCO の相図が得られた。一方、 CuO_2 面間距離が増大すると T_c が上昇する。この効果を利用して、 $T_c = 51.6$ K を達成した。

5) ルテニウム酸化物

上記の LSCO と同じ結晶構造をもつルテニウム酸化物 Sr_2RuO_4 は p 波超伝導を示し、注目を集めている。その比熱・磁気抵抗等の測定を行い、異常な超伝導性を調べた。量子振動から、フェルミ面を決定した。関連物質 $\text{Sr}_{3-x}\text{Ca}_x\text{Ru}_2\text{O}_4$ は $x = 1$ 近傍で弱い強磁性を示す。Ca 置換量の関数としての振る舞いを SCR の立場から解析した。

次に、本研究に関連して発表した論文のリストとそのコピーを試料として添付する。

研究発表

学会誌等 (論文リスト)

1998 年

1. Weak ferromagnetism in two-dimensional bilayered $\text{Sr}_{3-x}\text{Ca}_x\text{Ru}_2\text{O}_7$
S. Ikeda, Y. Maeno and T. Fujita
Phys. Rev. B **57** (2), 978-986 (1998)
2. The Normal State Magnetoresistance of Sr_2RuO_4
N.E. Hussey, A.P. Mackenzie, J.R. Cooper, Y. Maeno, S. Nishizaki and T. Fujita
Phys. Rev. B **57**(9), 5505-5511 (1998).
3. Electronic crossover in the highly anisotropic normal state of Sr_2RuO_4 from pressure effects on electrical resistivity
K. Yoshida, F. Nakamura, T. Goko and T. Fujita, Y. Maeno, Y. Mori and S. Nishizaki
Phys. Rev. B **58** (22), 15,062-15,066 (1998)
4. The Fermi Surface Topology of Sr_2RuO_4
A.P. Mackenzie, S. Ikeda, Y. Maeno, T. Fujita, S.R. Julian and G.G. Lonzarich
J. Phys. Soc. Jpn. **67** (2), 385-388 (1998).
5. Evidence for Unconventional Superconductivity of Sr_2RuO_4 from Specific-Heat Measurements
S. Nishizaki, Y. Maeno, S. Farmer, S. Ikeda and T. Fujita
J. Phys. Soc. Jpn. **67** (2), 560-563 (1998).
6. Quadrupolar and Magnetic Phase Diagram of UNiSn
T. Akazawa, T. Suzuki, H. Goshima, T. Tahara, T. Fujita, T. Takabatake and H. Fujii
J. Phys. Soc. Jpn. **67** (9), 3256-3260 (1998)
7. Large Magnetostriction and Complex Phase Transition in UNiSn
T. Fujita, T. Akazawa, H. Goshima, T. Tahara, T. Suzuki, T. Takabatake and H. Fujii
Physica B **246-247**, 445-449 (1998)
8. Anomalous Field Dependence of Specific Heat of CeNiSn below 1K
K. Izawa, T. Suzuki, T. Fujita, T. Takabatake, G. Nakamoto, H. Fujii and K. Maezawa
J. Magn. Magn. Mater. **177-181**, 395 - 396 (1998).

9. Acoustic de Haas van Alphen Effect of CeRu₂
T. Suzuki, N. Okuda, H. Goshima, T. Fujita, M. Hedo, Y. Inada, Y. Onuki, E. Yamamoto and Y. Haga
J. Magn. Mater. **177-181**, 415 - 416 (1998).
10. Magnetism in UPt
K. Prokeš, J.C.P. Klaasse, I.H. Hagmusa, A.A. Menovsky, E.H. Brück, F.R. de Boer and T. Fujita
J. Phys. : Condens. Matter **10**, 10643-10654 (1998)

1999 年

11. Metallic ground state of CeNiSn
K. Izawa, T. Suzuki, T. Fujita, T. Takabatake, G. Nakamoto, H. Fujii and K. Maezawa
Phys. Rev. B **59** (4), 2599-2603 (1999).
12. Magnetic properties of UNiAl under pressure
K. Prokes, T. Fujita, N.V. Mushnikov, S. Hane, T. Tomita, T. Goto, V. Sechovsky, A.V. Andreev and A.A. Menovsky
Phys. Rev. B **59** (13), 8720-8724 (1999)
13. Electronic properties of a UIrGe single crystal
K. Prokes, T. Tahara, T. Fujita, H. Goshima, T. Takabatake, M. Mihaalik, A.A. Menovsky, S. Fukuda and J. Sakurai,
Phys. Rev. B **60**, 9532-9538 (1999).
14. Specific Heat of YbPtSn
T. Suzuki, Y. Matsumoto, F. Masaki, K. Izawa, M. Ito, K. Katoh, T. Takabatake and T. Fujita
Physica B **259-261**, 146-147 (1999).
15. Phase diagram of UNiSn in magnetic field and under hydrostatic pressure
T. Akazawa, T. Suzuki, T. Tahara, T. Goko, J. Hori, H. Goshima, F. Nakamura, T. Fujita, T. Takabatake and H. Fujii
Physica B **259-261**, 248-249 (1999).

16. Normal state, superconductivity and quasiparticle Fermi surface of the strongly correlated oxide Sr_2RuO_4
S.R. Julian, A.P. Mackenzie, G.G. Lonzarich, C. Bergemann, R.L.W. Haselwimmer, Y. Maeno, S. NishiZaki, A.W. Tyler, S. Ikeda and T. Fujita
Physica B **259-261**, 928-933 (1999).
17. Transport properties of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ under pressure
F. Nakamura, T. Goko, N. Kikugawa, J. Hori, Y. Uno and T. Fujita
Physica C **317-318**, 366-372 (1999)
18. Structural Transitions and Localization in $\text{La}_{2-x-y}\text{Nd}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ with $p \sim 1/8$
S. Sakita, F. Nakamura, T. Suzuki and T. Fujita
J. Phys. Soc. Jpn. **68** (8), 2755-2761 (1999)
19. Reduction of Superconducting Transition Temperature due to Orthorhombic Distortion in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$
T. Goko, F. Nakamura and T. Fujita
J. Phys. Soc. Jpn. **68** (9), 3074-3077 (1999)
20. Impurity scattering effect on the anisotropic resistivity for $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_{4-\delta}$ with a wide range of x
N. Kikugawa, J. Hori, F. Nakamura and T. Fujita
J. Low Temp. Phys. **117** (5/6), 1139-1143 (1999)
21. T_c Enhancement in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ under anisotropic pressure
F. Nakamura, J. Hori, T. Goko, Y. Uno, N. Kikugawa and T. Fujita
J. Low Temp. Phys. **117**, 5/6, 1145-1149 (1999)
22. T_c ENHANCEMENT IN $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ BY ANISOTROPIC PRESSURE
T. Fujita, J. Hori, T. Goko and F. Nakamura
Int. Journal of Mod. Phys. B **13** (29, 30 & 31), 3655-3659 (1999)

2000 年

23. Role of two-dimensional electronic state in super conductivity in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$
F. Nakamura, T. Goko, J. Hori, Y. Uno, N. Kikugawa and T. Fujita
Phys. Rev. B **61** (1), 107-110 (2000).

24. Competing interaction and anisotropic magnetoresistance in a layered compound CeTe_2
M.H. Jung, K. Umeo, T. Fujita and T. Takabatake
Phys. Rev. B **62** (17), 11609-11613 (2000)
25. Superconductivity and its Phase Diagram of LSCO under High Pressure
T. Fujita, J. Hori, T. Goko, N. Kikugawa and S. Iwata
RIKEN Review No. 27. 75-76 (2000).
26. Substitution Effect on the Unstable Ferromagnet CeFe_2
H. Fukuda, H. Kamura, T. Ekino, H. Fujii, N. Kikugawa, T. Suzuki and T. Fujita
Physica B **281-282** (1-4), 92-93 (2000)
27. Collapse of AF magnetic order in UNiAl under pressure
O. Syshchenko, T. Fujita, K. Prokeš, V. Sechovský and A.A. Menovsky
Physica B **281-282** (1-4), 208-209 (2000)
28. Magnetic specific heat of a URhGe single crystal
I.H. Hagemusa, K. Prokeš, T. Takabatake, T. Fujita, J.C.P. Klasse, E.H. Brück, V. Sechovský and F.R. de Boer
Physica B **281-282** (1-4), 223-225 (2000)
29. Strong Depression of the Magnetic Ordering Temperature of CeSb by Ni Incorporation
M.H. Jung, D.T. Adroja, F. Iga, T. Suzuki, T. Fujita, I. Oguro and T. Takabatake
Physica B **281-282** (1-4), 443-444 (2000)
30. Elastic Quantum Oscillation of LuB_{12}
N. Okuda, T. Suzuki, I. Ishii, S. Hiura, F. Iga, T. Takabatake, T. Fujita, H. Kadomatsu and H. Harima
Physica B **281-282** (1-4), 756-757 (2000)
31. Pressure effects on an antiferromagnetism in UNiAl.
O. Mikulina, J. Kamarád, A. Lacerda, O. Syshchenko, T. Fujita, K. Prokeš, V. Sechovský, H. Nakotte, W. Beyerman and A.A. Menovsky
J. Appl. Phys. **87** (9), 5152- 5154 (2000)