

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 24 日現在

機関番号：13101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740226

研究課題名(和文) 圧力誘起超伝導，巨大磁気抵抗および異方的近藤散乱を示すセリウム化合物の物性研究

研究課題名(英文) Study of the Ce compound which exhibits pressure-induced superconductivity, magneto resistance and unisotropic kondo scattering

研究代表者

中野 智仁 (NAKANO, Tomohito)

新潟大学・自然科学系・准教授

研究者番号：60507953

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は申請者らが発見したCePtSi₂における圧力誘起超伝導，巨大磁気抵抗および異方的な近藤散乱の発現機構を解明するため，CePtSi₂およびその関連物質のフラックス法による純良単結晶試料を育成し，圧力下における輸送特性測定を行い，主に以下を明らかにした。以下に主な結果を示す。(1)各結晶軸に対して輸送特性を明らかにし，圧力誘起超伝導が価数揺らぎの影響を受けていることを示唆した。(2)磁化の異方性に対応して，c軸方向の磁気抵抗効果が強大であるのに対し，b軸方向では極端に小さいことを明らかにした。これは異方的な近藤散乱に起因していると考えられる。

研究成果の概要(英文)：In this study, the transport properties of single crystals of CePtSi₂ and its relative materials under pressure and in magnetic fields were measured to reveal the origin of the pressure-induced superconductivity, large magnetoresistance, and anisotropic Kondo scattering in CePtSi₂. The main results are shown below. (1) The transport properties under pressure for each crystal axis indicated that the pressure-induced superconductivity in CePtSi₂ is mediated by the influence of valence fluctuation. (2) The magnetoresistance effect is large for c-axis, but very small for b-axis. This suggests that the anisotropic magnetoresistance and Kondo scattering have the same origin.

研究分野：1303

科研費の分科・細目：4303

キーワード：圧力誘起超伝導 異方的近藤 磁気抵抗効果

1. 研究開始当初の背景

f 電子系の重い電子系化合物において、圧力等の外部パラメータによって誘発される磁気不安定点近傍で「磁気揺らぎ」を媒介とした非 BCS 超伝導が発見されることがあり、その探索が盛んに行われている。それに対して近年、外部パラメータによって f 電子が価数転移(クロスオーバー)を引き起こす場合、「価数の揺らぎ」によっても超伝導が誘起されることが理論的に提唱されている。一方、我々によって多結晶試料を用いた実験から発見された CePtSi_2 の圧力誘起超伝導は磁気不安定と価数クロスオーバー領域が混在していると考えられる量子状態下で引き起こされた超伝導であることが示唆されており、実験的検証が必要とされている。

2. 研究の目的

重い電子系化合物 CePtSi_2 の圧力誘起超伝導の起源は、純良単結晶試料作成が困難であることに起因して未だ明らかになっていない。しかし、我々はフラックス法による純良単結晶育成法を成功させ、予備的な実験から CePtSi_2 は超伝導のみならず、重い電子系化合物としては異例の巨大な磁気抵抗および異方的な近藤散乱を示す事が推測された。この3つの特異な性質は近藤効果と結晶構造の異方性が大きく寄与していると考えられ、これらの発現機構と相関を明らかにすることを目的として、 CePtSi_2 およびその関連物質の純良単結晶試料を用いて詳細な物性測定を行った。

3. 研究の方法

本研究に関する実験は新潟大学工学部および自然科学研究科、東京大学物性研究所において行った。 CePtSi_2 およびその関連物質の単結晶試料はインジウムを用いたフラックス法によって作成した。多結晶試料はアーク炉を用いて作成した。電気抵抗測定は4端子法によって行った。圧力発生にはピストンシリンダー型圧力セルおよびキュービックアンビル圧力セルを用いた。また、磁場中の実験は 12/14T 超伝導磁石を用いて行った。

4. 研究成果

(1) CePtSi_2 の圧力効果
層状構造を持つ CePtSi_2 は電子比熱係数 $\gamma = 600 \text{ mJ/mol K}^2$ の持つ重い電子系化合物の一つであるが、 $T_N = 1.8 \text{ K}$ 以下で反強磁性相を示す。この反強磁性相は圧力によって抑制され 1 GPa 程度の圧力で反強磁性相は消失する。反強磁性相に代わって 1.4 GPa から 2.4 GPa の範囲で $T_c \sim 0.15 \text{ K}$ 程度の超伝導を示す。多くの場合、重い電子系超伝導は「磁気揺らぎ」を媒介とし、量子臨界点近傍で最大の T_c を持つが、この超伝導相の中心圧力は量子臨界点よりも高压側(1.7 GPa 付近)に存在し、また通常よりも広い超伝導の圧力範囲を持つ。この超伝導出現圧力領域では、近藤効果による電

気抵抗の極大や極低温領域での振る舞いが「価数揺らぎ」超伝導体として有力視される $\text{CeCu}_2(\text{Si,Ge})_2$ のそれに酷似している。これまでの研究は主に多結晶試料を用いて行われていたが、この超伝導の発現機構を明らかにするため純良単結晶試料の育成を行った。図1に作成した CePtSi_2 と関連物質の LaPtSi_2 の単結晶試料を示す。

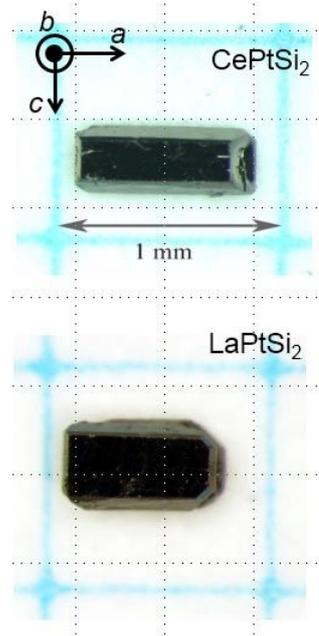


図1: CePtSi_2 および LaPtSi_2 の単結晶。

図2に圧力下における電気抵抗の温度依存性を示す。なお、電流 J の方向は a 軸方向である。常圧(0 GPa)の電気抵抗 ρ は $T_1 = 3.7 \text{ K}$ と $T_2 = 33 \text{ K}$ に極大を示す。これは結晶電場の影響を受けた近藤効果によるものとして理解されている。また $T_N = 1.8 \text{ K}$ では反強磁性転移による下方向の折れ曲がりを示す。また電気抵抗がフェルミ液体的な温度依存性として T^2 に比例する最大の温度 T_{FL} は 1.4 K と見積った。

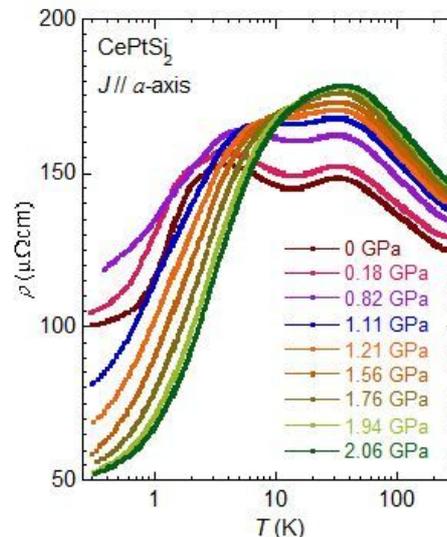


図2: CePtSi_2 の圧力下電気抵抗の温度依存性。

圧力増加にともなって、 T_N は減少し消失する。同時に T_{FL} も減少し、約1.2 GPaで0になることが予測された。これは量子臨界点が1.2 GPaにあることを示唆する。

電気抵抗のフェルミ液体的温度依存性 $\rho = \rho_0 + AT^2$ による解析から、 ρ_0 および A は超伝導相出現領域で急激に減少することがわかった。この現象は、他の結晶軸方向の電流でも観測された。 $A^{1/2}$ が電子比熱係数 γ に比例する値であることを考えると、超伝導相出現領域で γ が減少していることを示し、また、Ceの価数が変化していることを示唆する。この γ の減少はCeCu₂(Si,Ge)₂における価数揺らぎに起因すると考えられている超伝導相近傍でも観測されている。さらにこの圧力領域ではゼーベック係数の圧力変化にも異常が見つかっている。これらは、CePtSi₂の圧力誘起超伝導が価数揺らぎに関連していることを示す。価数の変化と圧力誘起超伝導の関連性の詳細を調べるためさらなる実験を行う予定である。

(2) CePtSi₂の磁場効果

磁気抵抗効果および磁場中での量子臨界点近傍の性質を明らかにするために磁場中での電気抵抗測定を行った。図2に $J // a$ 軸、磁束密度 $B // c$ 軸の電気抵抗を示す。

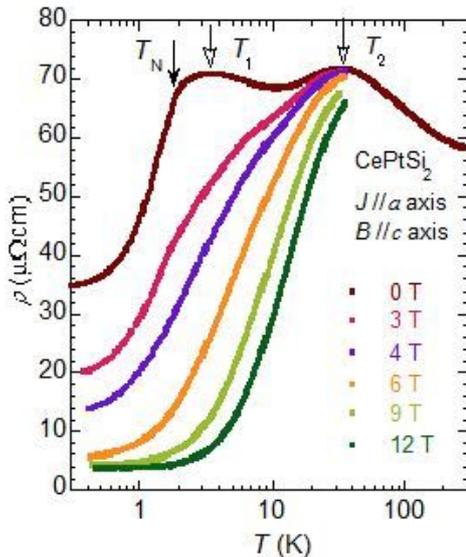


図3: CePtSi₂のc軸方向の磁場中の電気抵抗

磁場印加によって電気抵抗は急激に抑制される。特に近藤効果による T_1 の極大の抑制が堅調であった。 T_1 での磁気抵抗効果 $\{\rho(0\text{ T}) - \rho(12\text{ T})\} / \rho(12\text{ T})$ はおよそ10であり、この値は典型的な重い電子系化合物CeRu₂Si₂等と比べて大きい。 T_N もまた磁場によって減少し $B_c = 4.5\text{ T}$ で消失するが、 T_{FL} は6 T程度まではほとんど変化を見せず、圧力下のQCP近傍の振る舞いとは対照的であることがわかった。

c軸方向の磁場で大きな磁気抵抗効果を示すのに対して、a軸およびb軸方向の磁場での

磁気抵抗効果は小さい。a軸方向の12 Tの磁場では1.5 Kの T_N が残り、b軸方向で T_N はほとんど変化しなかった。これは、近藤効果による T_1 での極大の大きさに対応していると考えられる。

(3) Ge置換効果

負の圧力効果を期待してCePtSi₂のSiをGeに置換した多結晶および単結晶試料を作成した。X線回折実験の結果から、Ge置換によって体積が増大することを確認し、単結晶CePt(Si_{0.8}Ge_{0.2})₂に対して圧力下の電気抵抗測定を行った。常圧の $J // a$ 軸の電気抵抗は $T_1 = 6.3\text{ K}$ および $T_2 = 50\text{ K}$ で極大を示し、 $T_N \sim 4.4\text{ K}$ で変曲点を示した。Ge置換による T_N の増大は負の圧力効果によるものと理解できる。2 GPa程度までの圧力印加によって T_1 と T_2 は減少を示すが、3 GPa以上では上昇に転じた。図4に T_1 と T_2 の圧力依存性を示す。比較の為CePtSi₂の T_1 と T_2 を3 GPaずらして示してある。これにより、 T_1 と T_2 は圧力によって連続的に変化していることがわかった。また T_N 、 T_{FL} についても同様であった。これらからCePt(Si_{0.8}Ge_{0.2})₂では3 GPa程度の圧力が印加された状態であり、CePt(Si_{0.8}Ge_{0.2})₂においてもCePtSi₂の超伝導相に対応する圧力(5 GPa近傍)で超伝導相があることを示唆する。今後は5 GPa近傍で極低温領域での実験が必要である。

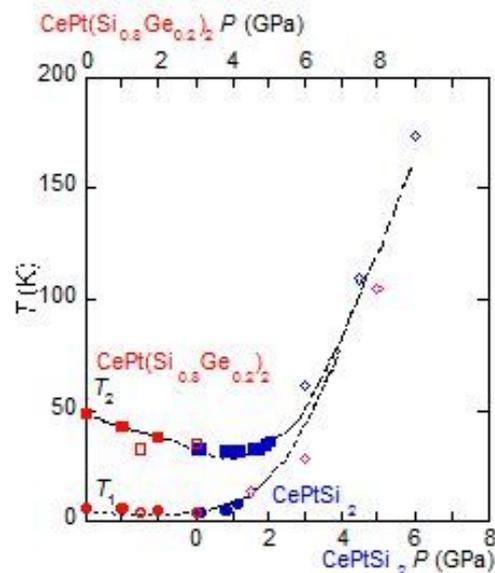


図4: CePtSi₂とCePt(Si_{0.8}Ge_{0.2})₂の T_1 と T_2 の圧力依存性。CePtSi₂とCePt(Si_{0.8}Ge_{0.2})₂とで3 GPaシフトさせて描いてある。

(4) 小型ブリッジマンアンビルセルの開発

上記よりピストンシリンダー型圧力セルで発生不可能な領域での測定が必要になったことを踏まえて、希釈冷凍機に搭載可能な小型ブリッジマンアンビルセルの開発を行った。その結果室温で約12 GPa、低温領域で10 GPaを発生可能なセルの開発に成功した。今後、この圧力セルを用いて、詳細な実験を

行う予定である。

新潟大学・自然科学系・准教授
研究者番号：60507953

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 6件)

T. Nakano, S. Onuki and N. Takeda, "Transport Properties of a Single Crystal of Pressure-Induced Superconductor CePtSi₂", J. Supercond. Nov. Magn. 26 (2013) 2135-2137. 査読あり
10.1007/s10948-012-1896-3

T. Nakano, S. Onuki and N. Takeda, "Transport properties of a single crystal of pressure-induced superconductor CePtSi₂ in the magnetic field", Physica C 493 (2013) 109-111. 査読あり

他 4 件

〔学会発表〕(計 13件)

佐藤亮平, 新井宏典, 寺島宗一郎, 中野智仁, 武田直也, 大橋 政司, 巨海玄道, "小型ブリッジマンアンビル高圧力セルの開発", 第 54 回高圧討論会, 新潟コンベンションセンター, 2013 年 11 月 15 日

大屋七海, 小貫真太郎, 加瀬直樹, 中野智仁, 武田 直也, "CePt(Si_xGe_{1-x})₂ の圧力下電気抵抗", 第 54 回高圧討論会, 新潟コンベンションセンター, 2013 年 11 月 15 日

T. Nakano, S. Onuki, T. Takeda, "Effect of magnetic field on resistivity of CePtSi₂ single crystal" The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, Tokyo, Japan, 6th August 2013

T. Nakano, S. Onuki, and N. Takeda, "Low-temperature properties of CePtSi₂ in magnetic field" Ninth International Conference on New Theories, Discoveries, and Applications of Superconductors and Related Materials, Frascati-Rome, Italy, September 16-20, 2012 (Invited)

他 9 件

〔その他〕

ホームページ等

<http://ntakeda.eng.niigata-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

中野 智仁 (NAKANO, Tomohito)