

平成 22 年 5 月 26 日現在

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2007～2009

課題番号：19540366

研究課題名（和文）

ウラン及び超ウラン化合物の強磁場磁性

研究課題名（英文）

High-Field Magnetism on Uranium and Trans-uranium compounds

研究代表者

杉山 清寛 (SUGIYAMA KIYOHIRO)

大阪大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：00187676

研究成果の概要（和文）：

ウラン化合物の中でも低温でバンドギャップを持つ半導体的な電気抵抗を示す β - US_2 に特に焦点を当て、強磁場を用いた実験装置を開発して、研究を行った。4.2 K の低温で磁場をかけることによって抵抗が急激に減少し、50 テスラの強磁場下で電気抵抗は 10 万分の 1 以下にも減少し、電気伝導はもはや半導体的ではなく金属的であることを発見した。この金属化は、試料が磁場中での磁化の出現と相関があることを発見した。

研究成果の概要（英文）：

The high-field magnetization and magnetoresistance measurement of β - US_2 with semiconducting electrical resistivity in low temperatures were mainly carried out using the development of a new experimental equipment in high-magnetic field measurement. The electrical resistivity suddenly quenched at 4.2 K in the high-magnetic field and reached to one hundred thousandth part of zero field value at 50 T. The system is not semiconducting but metallic at 50 T. The relationship between this great large negative magnetoresistance and the magnetization is found experimentally.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2008年度	900,000	270,000	1,170,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：ウラン化合物、超ウラン化合物、パルス強磁場、強相関電子系、重い電子系、磁化過程、電子状態

1. 研究開始当初の背景

ウラン化合物を含む超ウラン化合物は、磁

氣的には磁気イオン間の相関が強く、多体問題の強相関系として物性物理の分野ではと

でも興味深い物質群である。しかし、その取扱が法的に難しい点や、相関が強いために磁性を調べるために強磁場が必要であるなど、いくつかの制約があって、世界的にもあまり研究されていない分野である。当時、研究代表者は日本原子力開発機構先端基礎研究センターと東北大学の金研、そして大阪大学極限量子科学研究センターの強磁場実験施設（阪大強磁場）を結んで、この3つの要素を組み合わせ、世界にもあまり例のないウラン及び超ウラン化合物の研究の準備を始めていた。これらの要素を融合した本研究を始めるのに機が熟していたと考え、本研究をスタートさせた。世界的には、本研究と同様な視点を持った研究がアメリカのロスアラモスなどで行える状況にあった。

2. 研究の目的

U化合物と Np 化合物の磁性をパルス強磁場を用いて相関を壊すことで低磁場では見られない物性を観察することによって研究し、これらの化合物の磁性を多極子、局在、非局在の観点から強磁場磁化測定と磁気抵抗測定を用いて明らかにしていくことを目的にする。

初年度は Np 化合物を念頭に置いていたが、手続き的に Np 化合物の取扱が難しくなったため、U化合物を中心に研究を続けた。特に、局在と遍歴という観点から非常に興味深い β -US₂ に焦点を当てて研究を行った。

3. 研究の方法

試料は、ウラン及び超ウラン化合物の純良単結晶の育成に成功している、日本原子力研究所先端基礎研究センター（原研）と東北大学金属材料研究所の研究分担者（次年度より連携研究者）の芳賀、松田、本間の3氏より提供を受けた。これらの試料の取扱は、法的規制も大きいため、全てこれらの機関内で合法的に外部に出せるような形に整形、封入を行ってから、大阪大学に移送して測定を行った。阪大においても、阪大のルールに則った取扱を行っている。

超ウラン化合物の研究には、それと比べるべき $4f$ 、 $3d$ などの磁性を示し、以前より研究されてきている参照物質の研究も必要である。本研究では、同じ f 電子系であり、同じような物質系を形成している $4f$ 電子系の希土類化合物の研究も行った。これらの物質は、大阪大学大学院理学研究科の大貫グループによって育成された試料を用い、同様に強磁場下での磁性の研究を行った。

本測定の重要なポイントは、他では用いる

ことができない 50 テスラにも及ぶ強磁場下での測定を行う点にある。研究代表者は大阪大学極限量子科学研究センターの強磁場施設の併任教員になっており、これらの施設を用いた研究を自由に行うことができる。パルス磁場は、強磁場が比較的容易に得られる点でとてもすぐれた装置であるが、パルス幅が短いと、当研究のような金属性の伝導性を持った試料では、渦電流の効果によって測定が困難になる問題がある。定常磁場の測定がこれらの困難を避ける意味では大切であるが、当研究のような強磁場を得ることは世界的にも達成できていない。そこで、当施設のロングパルスマグネットを用い、50 テスラの磁場までの磁化測定と磁気抵抗測定を行った。

また、超ウラン化合物の測定のためには、その特性がはっきり見える超低温での高感度測定が必要である。当施設は歴史のある施設で、これらの測定に実績があるが、更にブラッシュアップする必要があるため、装置の改良と開発を行って実験を進めた。科研費の大部分はこれらの実験装置の整備と実験の遂行に用いられた。

研究成果の発表は主に日本物理学会の定例会議と学会の欧文誌を用いた。最終的な成果発表は今年秋の国際会議（東京）で行う予定にしている。

4. 研究成果

β -US₂ は、ウラン化合物の中でも低温で 80 K 位のバンドギャップを持つ半導体的な電気抵抗を示すことで注目される物質である。圧力下でこの半導体的な電気抵抗が壊され金属的になる報告があるが、磁場中での詳細な研究がなされてこなかった。そこで、原研で新たに育成された単結晶を用いて、50 テスラまでの磁気抵抗の測定を広範な温度範囲で行った。

半導体的な温度変化を示す領域の一番高温側の 83 K では 50 テスラで約半分になる負の磁気抵抗が観察されたが、4.2 K では 50 テスラで 10 万分の 1 以下にも減少する巨大な負の磁気抵抗を発見した。いろいろな温度領域で同様な測定を行って、測定データを 50 テスラの磁場下での電気抵抗の温度変化の形で整理すると、50 テスラの強磁場下では、電気抵抗の振る舞いはもはや半導体的ではなく、典型的な金属的な振る舞いを示していることがわかった。

半導体的な電気抵抗の振る舞いは、遍歴的な電子状態の特徴的なフェルミ面上に、エネルギーギャップが開いていると理解できるが、この大きな負の磁気抵抗と、強磁場下での金属的な振る舞いは、磁場によって半導体的なエネルギーギャップが潰されて、物質全

体が金属的になっていると考えることで自然に理解できる。

磁化率の温度依存性より、これらの低温での半導体的な異常は、磁化と密接に関係していることが示唆されている。この事から類推して、強地場中での半導体から金属への変化に、磁化が寄与していることが期待できる。そこで、この磁気抵抗と磁化との関係を実験的に明らかにするために、強磁場磁化測定の方法を系統的に行った。同じ温度での測定を比べると、磁化の出現と大きな磁気抵抗に一定の相関があることを解明した。

超ウラン化合物の磁性の解明には純良単結晶の育成が欠かせないが、試料を純良科することに成功すると、金属化合物がほとんどであるため、試料の低温での電気抵抗がどんどん小さくなる。前述したように、残留抵抗の小さい試料のパルス磁場中での測定のためには、過電流を避けることが大切である。そのために、磁場方向に垂直な方向に薄い試料を用いることになる。そうすると、観測できる試料の量がへってしまうため、測定の感度を上げる必要がある。今まで以上に巻数を増やした感度を上げたピックアップコイルシステムの開発を精力的に行った。そのポイントは、強磁場が発生できる小さな空間にどれだけの巻数のピックアップコイルを入れることができるかという点にある。そのために極細線の導線を探し、それらの線を用いたピックアップコイルを作成した。また、磁場が変化することによる、シグナルへのじまを減らすために、磁場によるバランスと出力、ノイズの解明に努め一定の成果を上げた。

超ウラン化合物を調べる上で重要となる鍵が低温の磁性である。その磁性を理解する上で重要な鍵を握るので、パルス強磁場と ^3He を用いた低温装置を組み合わせることに多くの労力を割き、温度は目的の 0.6 K に達した。

ウラン及び超ウラン化合物の解明には同じ f 電子系で以前より詳細に調べられている希土類系の磁性と比べることが大切である。その一環として RCu_2Si_2 と CeAu_2Si_2 の等の研究を精力的に実験を行った。これらの系で磁気異方性が重要なキーワードであることが明らかとなった。

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) (項目ごとに、発表年次順に記入しました)

[雑誌論文] (計10件、全て査読有り)

(1) "Metamagnetic Behavior in Heavy

Fermion Compound $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ ", T. Takeuchi, S. Yasui, M. Toda, M. Matsushita, S. Yoshiuchi, M. Ohya, K. Katayama, Y. Hirose, N. Yoshitani, F. Honda, K. Sugiyama, M. Hagiwara, K. Kindo, E. Yamamoto, Y. Haga, T. Tanaka, Y. Kubo, R. Settai and Y. Ōnuki; J. Phys. Soc. Jpn., 79 (2010) 印刷中

(2) "Possible Existence of Magnetic Polaron in Nearly Ferromagnetic Semiconductor $\beta\text{-US}_2$ " S. Ikeda, H. Sakai, N. Tateiwa, T. D. Matsuda, D. Aoki, Y. Homma, E. Yamamoto, A. Nakamura, Y. Shiokawa, Y. Ota, K. Sugiyama, M. Hagiwara, K. Kindo, K. Matsubayashi, M. Hedo, Y. Uwatoko, Y. Haga, and Y. Ōnuki; J. Phys. Soc. Jpn., 78 (2009) 114704 (1-10).

(3) "Heavy Fermion State in $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ " S. Yoshiuchi, M. Toda, M. Matsushita, S. Yasui, Y. Hirose, M. Ohya, K. Katayama, F. Honda, K. Sugiyama, M. Hagiwara, K. Kindo, T. Takeuchi, E. Yamamoto, Y. Haga, R. Settai, T. Tanaka, Y. Kubo and Y. Ōnuki; J. Phys. Soc. Jpn., 78 (2009) 123711 (1-4).

(4) "Electrical and Magnetic Properties of CeAu_2Si_2 ", Y. Ota, K. Sugiyama, Y. Miyauchi, Y. Takeda, Y. Nakano, Y. Doi, K. Katayama, N. D. Dung, T. D. Matsuda, Y. Haga, K. Kindo, T. Takeuchi, M. Hagiwara, R. Settai, Y. Ōnuki; Journal of the Physical Society of Japan, 78 (2009) 034714.

(5) "Magnetic Properties of Single Crystalline RCu_2Si_2 (R: Rare Earth)", N. D. Dung, Y. Ota, K. Sugiyama, T. D. Matsuda, Y. Haga, K. Kindo, M. Hagiwara, T. Takeuchi, R. Settai, Y. Ōnuki; Journal of the Physical Society of Japan, 78 (2009) 024712.

(6) "High-field magnetization of single crystals CeCu_2X_2 (X=Si and Ge) and YbCu_2Si_2 ", K. Sugiyama, T. Miyauchi, Y. Ota, T. Yamada, Y. Oduchi, N. D. Dung, Y. Haga, T. D. Matsuda, M. Hagiwara, K. Kindo, T. Takeuchi, R. Settai and Y. Ōnuki; Physica B 403 (2008) 769-771.

[学会発表] (計6件)

(1) 杉山清寛, 戸田雅敏等、 $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ とその関連物質の強磁場磁化、日本物

- 理学会第 65 回年次大会 2010 年 3 月 23 日 岡山大学
- (2) 杉山清寛, 広瀬雄介等、US₂の強磁場磁性 2、日本物理学会秋の分科会 2009 年 9 月 27 日 熊本大学
- (3) N. D. Dung, K. Sugiyama 他、The Effect of Crystalline Electric Field on Magnetic Properties in RCu₂Si₂ (R: Rare Earth) 日本物理学会秋の分科会 2008 年 9 月 21 日 岩手大学
- (4) 太田有基、杉山清寛 他、正方晶 RCu₂Si₂ (R: 希土類) の強磁場磁化過程、日本物理学会秋の分科会 2008 年 9 月 21 日 岩手大学
- (5) 杉山清寛 他、RCu₂Si₂ (R=希土類) の強磁場磁化過程、日本物理学会第 62 回年次大会 2007 年 9 月 21 日 北海道大学
- (6) K. Sugiyama et al. High-field magnetization of single crystals CeCu₂X₂ (X=Si and Ge) and YbCu₂Si₂, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2007 年 5 月 15 日 Houston, U. S. A.

ンター・研究副主幹
研究者番号：90354901

松田 達磨 (MATSUDA TATSUMA)
日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究員
研究者番号：30370472

本間 佳哉 (HONMA YOSHIYA)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号：00260448

6. 研究組織

(1) 研究代表者

杉山 清寛 (SUGIYAMA KIYOHIRO)
大阪大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：00187676

(2) 研究分担者 (平成 19 年度)

芳賀 芳範 (HAGA YOSHINORI)
日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究副主幹
研究者番号：90354901

松田 達磨 (MATSUDA TATSUMA)
日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究員
研究者番号：30370472

本間 佳哉 (HONMA YOSHIYA)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号：00260448

(3) 連携研究者 (平成 20 年度、21 年度)

芳賀 芳範 (HAGA YOSHINORI)
日本原子力研究開発機構・先端基礎研究セ