

令和 4 年 6 月 20 日現在

機関番号：13101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03713

研究課題名(和文) 定荷重圧力装置を用いたドハース振動観測装置の開発と強相関電子系のフェルミ面の研究

研究課題名(英文) Development of the dHvA experiment under pressure using constant load system and Fermi surface study for strongly correlated electron system

研究代表者

摂待 力生 (Settai, Rikio)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：00251041

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：定荷重圧力装置を用いた圧力下のドハース・ファンアルフェン(dHvA)振動およびシュブニコフ・ドハース(SdH)振動を観測するための圧力セルの製作および希土類元素や遷移金属元素を含む強相関物質の単結晶育成を行い、電気抵抗や比熱、磁化およびdHvA(SdH)振動の実験からその電子状態および磁性状態を調べた。重い電子系CeIrIn5やCeRhIn5では、メタ磁性やリフシッツ転移前後の電子状態を調べた。また、重い電子系強磁性体CeRh6Ge4および参照物質のdHvA効果の実験からは、Ceの4f電子は先行研究で考えられていたような局在電子ではなく、遍歴電子であることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

希土類元素や遷移金属元素が有するf電子やd電子は、他のs電子やp電子を媒介として、強い磁性や超伝導といった学術的に興味深い物性を引き起こす。また、半導体的、絶縁体的な性質を示す場合も、f電子やd電子は重要な働きを示す。このような物質の本質的な電子状態を明らかにするためには、純良単結晶を用いた圧力実験と強磁場実験が重要な役割を果たす。本研究では、圧力下のdHvA実験の適用範囲を広げるための圧力装置の開発を行うとともに、純良単結晶、新物質の単結晶育成に成功した。これは強相関電子系の研究を推進する上で、学術的に意義の高い研究であると言える。

研究成果の概要(英文)：We have developed pressure cells for observing de Haas-van Alphen (dHvA) and Shubnikov-Dohaas (SdH) oscillations under pressure using a constant-load pressure apparatus and grown single crystals of strongly correlated electron systems containing rare earth and transition metal elements to investigate their electronic and magnetic states from experiments on electrical resistance, specific heat, magnetization and dHvA (SdH) oscillation experiments. In the heavy-fermion CeIrIn5 and CeRhIn5, the electronic states around metamagnetic and/or the Lifshitz transition were investigated. Experiments on the dHvA effect in the heavy-fermion ferromagnet CeRh6Ge4 and reference materials revealed that the 4f electrons in Ce are itinerant rather than localized electrons as thought in previous studies.

研究分野：物性物理学(強相関電子系, 磁性, 超伝導)

キーワード：純良単結晶育成 高圧実験 ドハース・ファンアルフェン効果 フェルミ面

1. 研究開始当初の背景

物質の多様性は、その物質の結晶構造や電子数、電子に働く様々な相互作用によってもたらされ、温度や磁場、圧力などの外部パラメータの制御によりしばしば大きく変化する。特に近年の圧力発生技術と圧力下の計測技術の発展により、銅酸化物・鉄系超伝導体や重い電子系の強相関電子系において、加圧を行い、電子に働く相互作用を制御することにより、磁気(スピン)秩序や軌道秩序状態を抑制し、秩序温度がゼロとなる量子臨界点近傍で、非フェルミ状態や新奇な超伝導状態が観測されている。4f 電子を含むセリウム化合物で観測される圧力誘起超伝導はその代表例である、また、d 電子を含んだ遷移元素化合物の中には、圧力や元素置換により金属絶縁体転移や電荷密度波(CDW)転移、結晶構造相転移が制御され、磁気秩序以外の揺らぎに起因した興味深い物性が観測されている。それらの中には、エキシトニック絶縁体の候補物質 Ta_2NiSe_5 の圧力誘起超伝導などがあり、大きな注目を集めている。電子状態を明らかにするためには、ドハース・ファンルフェン(dHvA)効果の実験は強力な実験手段の一つとなっている。ただし、圧力下での実験では試料空間が狭さいことや極低温での実験となることから圧力媒体の熱収縮による圧力の低下が問題となっていた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、磁氣的・構造的な量子臨界点やメタ磁性、リフシツツ転移といった圧力や磁場で変化する電子状態を、それらのフェルミ面研究から明らかにすることである。そのために、本研究では、2 K 以下で使用可能な定荷重式圧力発生装置とピストンシリンダー型圧力セル・改良型ブリッジマン圧力セルを組み合わせた極低温・強磁場・高圧下の複合極限環境下でのドハース・ファンルフェン振動(以下では単にドハース振動とよぶ)の観測システムを開発し、セリウムやイッテルビウムといった希土類元素を含む磁性体や CDW や構造相転移を示す遷移金属層を含む化合物の純良な単結晶育成を行う。ここで、ドハース振動は、振動数の磁場方向依存性からフェルミ面の大きさや形の情報を得ることができ、振動振幅の温度依存性から伝導電子の有効質量を決めることが出来るため、フェルミ面を研究する上で、非常に強力な実験手段となる。フェルミ面の形状や有効質量は、伝導の次元性や電子相関の強いホットスポット、磁気秩序や CDW と関連したネスティングベクトルとも関係しており、磁性や超伝導特性を考える上でも重要である。

3. 研究の方法

研究代表者(摂待)が取り組んできたクランプ型ピストンシリンダーを用いたドハース振動観測システムは、 CeRh_2Si_2 や CeRhIn_5 の量子相転移でのフェルミ面の変化や有効質量の増大を明らかにしたが、圧力範囲が 3 GPa までに限られていた。4f 電子系においても、他に 3 GPa 以上の高圧に量子相転移を示すものが多くあり、 CeRh_2Si_2 や CeRhIn_5 で得た知見が一般的なものなのか、あるいはもっと多様な量子状態が観測されるのかを明らかにする必要がある。そのためには、圧力領域や対象物質を広げることが重要であ

り、これまで取り組んできた純良な単結晶育成と極低温・強磁場・圧力下の複合極限環境下でのドハース振動観測技術、そして研究分担者（上床）の有する様々な高度な高圧発生技術を組み合わせる必要がある。具体的には、クランプ式ではなく、定荷重式のピストンシリンダーセルや改良型ブリッジマンアンビル装置を用いて、これまで観測が困難であった 3GPa~10GPa 領域でのドハース振動の観測システムの開発に取り組む。クランプ式の圧力セルは、圧力発生装置から切り離してクライオスタットに装着できるため簡便である一方、一般に低温で圧力媒体が圧力セルよりも大きく収縮するため、圧力低下が生じる。定荷重式にすることにより、低温での圧力降下を防ぐことが出来るとともに、低温状態のまま圧力を変化させ、フェルミ面の変化をより精密に捉えることも可能となる。強磁場下の実験は、東京大学物性研究所の強磁場施設や、フランス・グルノーブルやオランダ・ナイメーヘンの国際強磁場実験施設を利用する。

また、本研究の遂行には、純良な単結晶も欠かせない。実験に用いる単結晶試料は研究代表者が育成する。育成に必要な各種電気炉（テトラアーク引上炉、高温ブリッジマン電気炉、フラックス炉、ケミカルトランスポート炉）や超高真空アニール炉はすでに整備されている。また、結晶育成後に必要な結晶構造解析装置や元素分析装置も研究代表者や研究分担者の研究室に整備されており、新物質の解析に対応する。これらの装置を用いて、希土類および遷移金属元素化合物の純良単結晶育成および新物質の探索、量子臨界点近傍の電子状態の研究を行う。

4. 研究成果

(1) 重い電子系セリウム化合物 $CeIrIn_5$ および $CeRhIn_5$ のメタ磁性の研究: $CeIrIn_5$ は、磁気秩序を示さない重い電子系化合物である。しかし磁場中では磁化に 42 T 付近に異常が現れるメタ磁性が観測されるとともに、磁化には異常が観測されないが、電気抵抗や比熱に 30 T で異常が観測されており、フェルミ面のリフシツク転移があると考えられる。そこで、本研究では、In サイトを Cd や Sn で数%置換した単結晶を育成し、メタ磁性やフェルミ面を強磁場磁化、ドハース・ファンアルフェン効果から調べた。また、磁気構造を中性子散乱実験から明らかにした。さらに、 $CeRhIn_5$ の超音波実験を行い、30 T 近傍での音響的ドハース振動を観測した。この異常とネマティック相との関係を調べ、ネマティック相の存在を支持する結果およびネマティック相に起因すると思われるフェルミ面の再構成を観測した。

(2) カゴ状結晶構造をもつ $CeRh_2Cd_{20}$ の元素置換の研究

これまで、 $CeCr_2Al_{20}$ 型の構造を持つ CeT_2X_{20} 系として、 $CeIr_2Zn_{20}$ や $CeRu_2Zn_{20}$ が知られており、その 4f 電子は遍歴的である。本研究では、原子間の距離を広げ 4f 電子に局在をもたらすため、Zn を Cd で置換した $CeRh_2Cd_{20}$ の単結晶育成および Cd をさらに Pb や In に置換した単結晶を育成した。その結果、 $CeRh_2Cd_{20}$ は 0.3K で反強磁性秩序を示し、4f 電子が局在的になっていること、また Pb や In で置換するとわずかであるが、伝導電子との混成が強まることを見出した。

(3) 重い電子系磁性体の $CeRh_6Ge_4$ のフェルミ面の研究: $CeRh_6Ge_4$ は $T_C=2.5$ K で強磁性転移を示す重い電子系体である。セリウム化合物の強磁性体では、強磁性のまま量子臨界点に至る物質の報告例はほとんどない。本研究では、 $CeRh_6Ge_4$ の単結晶育成を行

い、結晶の純良度を示す指標 RRR (Residual Resistivity Ratio)=100 を超える純良な試料の育成に成功した。本年度はその単結晶を用いて、 $dHvA$ 振動の角度依存性を測定した。また、 f 電子のない参照物質 $LaRh_6Ge_4$ の単結晶育成にも成功し、 $LaRh_6Ge_4$ の $dHvA$ 効果の実験を行った。その結果、 $CeRh_6Ge_4$ のフェルミ面は、先行研究で報告されたような $4f$ 電子が局在したモデルではなく、遍歴したバンド計算で説明されることを明らかにした。このことは、 $CeRh_6Ge_4$ の強磁性が遍歴 $4f$ 電子によるものであることを示している。

(4) 新物質 $Yb_4Ru_7As_4$ の単結晶育成と物性評価：新物質 $Yb_4Ru_7As_4$ の良質な単結晶育成に成功し、 $T_N=2.5K$ の反強磁性体であること、弱い強磁性を伴っていること、電子比熱係数 $120mJ/(K^2 \cdot Yb\text{-mol})$ の比較的重い電子系であることを明らかにした。今後 $dHvA$ 振動の観測による電子状態の研究の足がかりとなった。

(5) ノーダルラインセミメタル物質 $YbMnSb_2$ の圧力下のフェルミ面の研究： $YbMnSb_2$ は、 $T_N=345K$ の反強磁性体で、最近フェルミ面近傍にノーダルラインをもつトポロジカル物質であることが議論されている。本研究では、ブリッジマンアンビルセルを用いた加圧下の磁気抵抗の測定により、 SdH 振動の観測に成功し、加圧と共に小さなフェルミ面がさらに小さくなることを見いだした。今後更なる加圧により、ノーダルラインがフェルミ準位に近づき、リフシツツ転移を起こし、そこでの他の物性に影響を及ぼすことが期待される。

(6) エキシトニック絶縁体候補物質 $TiSe_2$ の単結晶育成、および Ta_2NiSe_5 単結晶の元素置換効果の研究： Ta サイトを Ti や V などで置換することを試みた。その結果、 Ti 置換では、 $8\sim 10K$ でピークをとり減少するような半金属的な振る舞いを見出した。また、 V 置換では、この系では珍しく大きな単結晶の育成に成功し、超音波実験を行った。結晶構造の ac 面で歪む構造相転移に起因し C_{55} モードに大きなソフト化が観測された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Sundar Shyam, Dunsiger S. R., Gheidi S., Akella K. S., Cote A. M., Ozdemir H. U., Lee-Hone N. R., Broun D. M., Mun E., Honda F., Sato Y. J., Koizumi T., Settai R., Hirose Y., Bonalde I., Sonier J. E.	4. 巻 103
2. 論文標題 Two-gap time reversal symmetry breaking superconductivity in noncentrosymmetric LaNiC ₂	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 014511 ~ 014511
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.014511	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

1. 著者名 Kanda Tomoki, Arashima Koki, Hirose Yusuke, Settai Rikio, Matsui Kazuki, Nomura Toshihiro, Kohama Yoshimitsu, Ihara Yoshihiko	4. 巻 89
2. 論文標題 Symmetry Lowering on the Field-Induced Commensurate Phase in CeRhIn ₅	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 094709 ~ 094709
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.094709	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 Beauvois K., Qureshi N., Tsunoda R., Hirose Y., Settai R., Aoki D., Rodiere P., McCollam A., Sheikin I.	4. 巻 101
2. 論文標題 Magnetic structure of Cd-doped CeIrIn ₅	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 195146
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.195146	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

1. 著者名 Kurihara R., Miyake A., Tokunaga M., Hirose Y., Settai R.	4. 巻 101
2. 論文標題 High-field ultrasonic study of quadrupole ordering and crystal symmetry breaking in CeRhIn ₅	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 155125 ~ 155125
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.155125	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 Hirose Yusuke, Tsunoda Ryoma, Miyake Atsushi, Tokunaga Masashi, Settai Rikio	4. 巻 29
2. 論文標題 The Metamagnetic Behavior of $\text{LaCe}_2\text{IrIn}_5$ and $\text{CeIr}(\text{In}_{1-x}\text{X}_x)_5$ ($X = \text{Cd}, \text{Sn}$)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 011008-(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JSPSC.29.011008	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 Sano Sumika, Hirose Yusuke, Hirahara Takuya, Uwatoko Yoshiya, Gouchi Jun, Takeuchi Tetsuya, Settai Rikio	4. 巻 30
2. 論文標題 Single Crystal Growth of Ta and Ni Site Substituted Ta_2NiSe_5	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 011122-(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JSPSC.30.011078	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 Takayama Koki, Hirose Yusuke, Kawano Takuma, Doto Hiroshi, Honda Fuminori, Homma Yoshiya, Nakamura Ai, Aoki Dai, Thamizhavel Arumugam, Settai Rikio	4. 巻 30
2. 論文標題 Substitution Effect for Cd Site in $\text{RT}_2\text{Cd}_{20}$ ($R = \text{Ce}, \text{U}$)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 011122(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JSPSC.30.011122	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 -

〔学会発表〕 計14件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 青木一弘, 小林義明, 伊藤正行, 佐野純佳, 広瀬雄介, 摂待力生
2. 発表標題 励起子絶縁体候補物質 Ta_2NiSe_5 の元素置換効果-77Se-NMR研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 広瀬雄介, 山田峻輔, 栗原綾佑, 三宅厚志, 徳永将史, 本多史憲, 仲村愛, 郷地順, 上床美也, 摂待力生
2. 発表標題 Ce ₂ MgGe ₂ の磁場および圧力中物性測定
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高山昂己, 広瀬雄介, 土塔寛, 本多史憲, 本間佳哉, 青木大, 摂待力生
2. 発表標題 UPd ₂ Cd ₂₀ の置換効果の研究II
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐野純佳, 広瀬雄介, 平原琢也, 上床美也, 郷地順, 本多史憲, 摂待力生
2. 発表標題 Ta ₂ NiSe ₅ のTaサイトとNiサイトの置換効果の研究II
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 栗原綾佑, 三宅厚志, 徳永将史, 広瀬雄介, 摂待力生
2. 発表標題 パルス強磁場下超音波計測によるCeRhIn ₅ の電子ネマティック相と四極子効果の研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 八島光晴, 田岡晃, 椋田秀和, 本多史憲, 摂待力生, 大貫惇睦
2. 発表標題 重い電子系化合物CeCo(In _{1-x} Cd _x) ₅ の反強磁性と超伝導の共存現象におけるIn-NQR測定
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 足立涼, 佐賀範彰, 細井優, 井澤公一, 町田洋, 広瀬雄介, 土塔寛, 摂待力生
2. 発表標題 四極子自由度を持つPrPt ₂ Cd ₂₀ におけるホール効果測定
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 神田朋希, 荒島洸樹, 広瀬雄介, 摂待力生, 小濱芳允, 井原慶彦
2. 発表標題 115In-NMRで探るCeRhIn ₅ の磁気構造
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 足立涼, 佐賀範彰, 細井優, 下澤雅明, 井澤公一, 町田洋, 広瀬雄介, 土塔寛, 河野琢馬, 摂待力生
2. 発表標題 PrTr ₂ Cd ₂₀ (Tr=Pt, Rh)の電気輸送特性と温度磁場相図
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 広瀬雄介, 土塔寛A, 本多史憲B, 青木大B, 摂待力生
2. 発表標題 UPd ₂ Cd ₂₀ の圧力下電気抵抗測定
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 高山昂己, 広瀬雄介, 土塔寛, 本多史憲, 本間佳哉, 仲村愛, 青木大, 摂待力生
2. 発表標題 UPd ₂ Cd ₂₀ の置換効果の研究
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 栗原綾佑, 三宅厚志, 徳永将史, 広瀬雄介, 摂待力生
2. 発表標題 パルス強磁場下超音波計測によるCeRhIn ₅ の電子ネマティック相と音響ドハース効果
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐野純佳, 広瀬雄介, 平原琢也, 摂待力生
2. 発表標題 Ta ₂ NiSe ₅ のTaおよびNiサイト置換効果
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岡本晟太郎, 劉子揚, 塚本真司, 小林善明, 伊藤正行, 佐野純佳, 広瀬雄介, 摂待力生
2. 発表標題 NMRから見た励起子絶縁体候補物質Ta ₂ NiSe ₅ への元素置換効果
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2020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	上床 美也 (Uwatoko Yoshiya) (40213524)	東京大学・物性研究所・教授 (12601)	

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
---------	---------