

機関番号：14501

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20540358

研究課題名（和文） 充填スクッテルダイト化合物の純良単結晶育成とその電子状態の解明

研究課題名（英文） High-quality single-crystal growth and the research of the electronic state of the filled-skutterudite compounds

研究代表者

菅原 仁 (SUGAWARA HITOSHI)

神戸大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：60264587

研究成果の概要（和文）：本研究では充填スクッテルダイト化合物 RT_4X_{12} （R=希土類，T=Fe, Ru, Os, X=P, As, Sb）やカゴ状化合物 RT_2Al_{10} の純良単結晶を、フラックス法や高圧合成法を用いて育成し、電気抵抗、磁化、比熱、ドハース・ファンアルフェン効果等の種々の実験的手法を用いて研究を行った。結果として、これらの物質が示す異常な磁性や超伝導特性についての新しい知見を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：In this research, I have grown high-quality single-crystals of the filled-skutterudites RT_4X_{12} (R=rare earth, T=Fe, Ru, Os, X=P, As, Sb) and the cage-structure compounds RT_2Al_{10} by using the flux-method and the high-pressure synthesis, and studied the electronic states by using the resistivity, magnetization, specific heat and the de Haas-van Alphen effect etc. As the result, we have gained new information about the unconventional magnetism and superconductivity in these compounds.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

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：物性実験，強相関電子系，低温物性，磁性，超伝導

1. 研究開始当初の背景

充填スクッテルダイト化合物 RT_4X_{12} （R=希土類，T=遷移金属，X=P, As, Sb）は同じ結晶構造を持つにも関わらず、構成元素の組み合わせにより、重い電子状態や異方的超伝導、金属-絶縁体転移などの興味ある異常物

性を示す。一方、この物質は大きな熱電能を示すことから熱電材料としても期待されていた。このような興味ある物性の起源を解明するためにはその電子状態を明らかにすることが重要であると考えた。

2. 研究の目的

本研究では、これらの異常現象を系統的に理解する為に、これまで実験が不十分であった物質および単結晶が得られていない物質、さらには関連物質として新たに発見されたカゴ状化合物 RT_2Al_{10} の純良単結晶育成を行い、ドハース・ファンアルフェン(dHvA)効果や電子輸送効果測定などからその電子状態を解明することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究ではフラックス法や高圧合成法を駆使して、充填スクッテルダイト化合物やカゴ状化合物 RT_2Al_{10} の純良単結晶を育成し、dHvA効果や電気抵抗、ホール効果、熱電能等の電子輸送効果測定を通じて、この物質が示す異常現象の機構解明を行った。特に充填スクッテルダイト化合物に関してはその物性があまり理解されていない、Pr化合物やSm化合物に焦点を絞って研究を行った。

4. 研究成果

本研究で得られた主な研究成果は以下のようによまとめられる。

(1) 強磁性を示す近藤格子 $SmFe_4P_{12}$ のフェルミ面の観測と電子輸送効果測定

(2) Geをカゴに持つ新充填スクッテルダイト RPt_4Ge_{12} (R=La, Ce, Pr, Nd)の電氣的磁気的特性とNMR測定

(3) 相転移を示さない $PrOs_4P_{12}$ のフェルミ面の観測

(4) 反強磁性を示す $SmOs_4P_{12}$ のフェルミ面の観測

(5) RRu_2Al_{10} (R=La, Pr)の電氣的・磁気的特性

(1) に関しては、dHvA効果の観測に成功し、約 $10m_0$ を持つ重いフェルミ面の観測に成功した。しかしながら、バンド計算から予

測される、48バンドに対応した、さらに重いフェルミ面の観測には至らず、より高磁場での測定が必要である。(2) に関しては格子定数、電気抵抗、磁化を系統的に調べ、特に $LaPt_4Ge_{12}$ のBCS的超伝導状態や、 $CePt_4Ge_{12}$ が擬ギャップを示すこと等、NMR測定から微視的にその電子状態を明らかにした。(3) に関しては $PrFe_4P_{12}$ や $PrRu_4P_{12}$ の異常な相転移を示す物質の比較物質の研究であるが、この物質のdHvA効果の観測に成功し、そのフェルミ面を明らかにした。その結果、ネスティング構造をフェルミ面が持たないことが明らかとなり、また、結晶場状態の違いから、フェルミ面の特異な形状と、Prの4f電子が持つ多極子相互作用が $PrFe_4P_{12}$ や $PrRu_4P_{12}$ の異常な相転移に関与していることを指摘した。(4) では $SmOs_4P_{12}$ の単結晶育成に初めて成功しdHvA効果の測定を行った。その結果、Smの4f電子は良く局在しているが、比較物質の $LaFe_4P_{12}$ と比べて有効質量が約2倍増強されていないことを明らかにした。

(5) に関しては、カゴ状近藤化合物 CeT_2Al_{10} (T=Fe, Ru, Os)の比較物質である RT_2Al_{10} (R=La, Pr)の純良単結晶育成を行い、電気抵抗や磁化測定からそれらの基礎物性を明らかにした。特に $LaRu_2Al_{10}$ のdHvA効果の観測によりフェルミ面やサイクロトロン有効質量を決定した。

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)

[雑誌論文] (計 77 件) 全て査読有り

- ①. S. Tanaka, M. Sakoda, E. Matsuoka, H. Sugawara, R. Settai and Y. Ōnuki, de Haas-van Alphen effect in $SmOs_4P_{12}$, J. Phys.: Conference Series Vol. **273** (2011) 012060/1-4.
- ②. Lei Shu, W. Higemoto, Y. Aoki, A.D. Hillier, K. Ohishi, K. Ishida, R. Kadono, A. Koda, O.O. Bernal, D.E. MacLaughlin, Y.

- Tunashima, Y. Yonezawa, S. Sanada, D. Kikuchi, H. Sato, H. Sugawara, T.U. Ito and M.B. Maple, Suppression of time-reversal symmetry breaking superconductivity in $\text{Pr}(\text{Os}_{1-x}\text{Ru}_x)_4\text{Sb}_{12}$ and $\text{Pr}_{1-y}\text{La}_y\text{Os}_4\text{Sb}_{12}$, Phys. Rev. B Vol. **83** (2011) 100504(R)/1-4.
- ③. F. Kanetake, H. Mukuda, Y. Kitaoka, K. Magishi, H. Sugawara, K. M. Itoh and E. Haller, Superconducting Characteristics of Filled Skutterudites $\text{LaPt}_2\text{Ge}_{12}$ and $\text{PrPt}_2\text{Ge}_{12}$: ^{73}Ge -NQR/NMR Studies, J. Phys. Soc. Jpn. Vol. **79**, No. 6 (2010) 063702/1-4.
- ④. H. Sugawara, Y. Iwahashi, K. Magishi, T. Saito, K. Koyama, H. Harima, D. Kikuchi, H. Sato, T. Endo, R. Settai, and Y. Onuki, Fermi surface of the Pr-based filled skutterudite compound $\text{PrOs}_4\text{P}_{12}$, Phys. Rev. B Vol. **79**, Issue 3 (2009) 035104/1-5.
- ⑤. M. Toda, H. Sugawara, K. Magishi, T. Saito, K. Koyama, Y. Aoki, and H. Sato, Electrical, Magnetic and NMR Studies of Ge-based Filled Skutterudites $\text{RPt}_4\text{Ge}_{12}$ ($R = \text{La, Ce, Pr, Nd}$), J. Phys. Soc. Jpn. Vol. **77**, No. 12 (2008) 124702/1-9.
- ⑥. D. Kikuchi, H. Sugawara, K. Tanaka, H. Aoki, M. Kobayashi, S. Sanada, K. Kuwahara, Y. Aoki, H. Shishido, R. Settai, Y. Onuki, H. Harima, and H. Sato, Anomalous Electronic Behaviors in Ferromagnetic Kondo Lattice $\text{SmFe}_4\text{P}_{12}$, J. Phys. Soc. Jpn. Vol. **77**, No. 11 (2008) 114705/1-7.
- ③. M. Sakoda, S. Tanaka, Y. Inoue, K. Kumauchi, E. Matsuoka, H. Sugawara, T. Sakurai, H. Ohta, T.D. Matsuda and Y. Haga, Low Temperature Electrical and Magnetic Properties in $\text{RRu}_2\text{Al}_{10}$ ($R=\text{La, Pr}$), International Conference on Heavy Electrons (ICHE2010), 2010年9月17日, Tokyo, Japan
- ④. T.C. Kobayashi, Y. Kawasaki, K. Miyazawa, Y. Ikeda, S. Araki, H. Kotegawa, H. Sugawara, D. Kikuchi and H. Sato, Heat capacity measurement of $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ under high pressure”, International Conference on Heavy Electrons (ICHE2010), 2010年9月17日, Tokyo, Japan
- ⑤. 迫田将仁, 田中修平, 松岡英一, 菅原仁, 播磨尚朝, 櫻井敬博, 太田仁, 本多史憲, 撰待力生, 大貫惇睦, 松田達磨, 芳賀芳範, $\text{LaRu}_2\text{Al}_{10}$ のdHvA効果, 新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ～希薄f電子格子系の新しい秩序～, 2010年8月1日, 高知大学朝倉キャンパス
- ⑥. S. Tanaka, M. Sakoda, E. Matsuoka, H. Sugawara, R. Settai, Y. Onuki, De Haas-van Alphen effect in $\text{SmOs}_4\text{P}_{12}$, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2010), 2010年6月28日, Santa Fe, USA.
- ⑦. 田中修平, 迫田将仁, 菅原仁, 撰待力生, 大貫惇睦, $\text{SmOs}_4\text{P}_{12}$ のドハース・ファンアルフェン効果, 日本物理学会第65回年次大会, 2010年3月21日, 岡山大学津島キャンパス
- ⑧. K. Iwasa, K. Saito, Y. Murakami, H. Sugawara, Temperature evolution of crystal field splitting in $\text{PrOs}_4\text{P}_{12}$, International Conference on Magnetism 2009, 2009年7月27日, Karlsruhe, Germany
- ⑨. 菅原仁, 齊藤隆志, 龍岡翔, 田中謙弥, 佐藤英行, Gerald Giester, Peter Rogl, 高圧合成により作製された高充填率 $\text{CeFe}_4\text{Sb}_{12}$ の電子輸送特性, 日本物理学会2008年秋季大会, 2008年9月20日, 岩手大学
- [学会発表] (計 112 件)
- ①. 迫田将仁, 田中修平, 松岡英一, 菅原仁, 櫻井敬博, 太田仁, 松田達磨, 芳賀芳範, $\text{RT}_2\text{Al}_{10}$ ($R = \text{La, Pr, T} = \text{Fe, Ru, Os}$)の基礎物性, 日本物理学会第66回年次季大会, 2011年3月25日, 新潟大学五十嵐キャンパス
- ②. 迫田将仁, 田中修平, 松岡英一, 菅原仁, 播磨尚朝, 櫻井敬博, 太田仁, 本多史憲, 撰待力生, 大貫惇睦, 松田達磨, 芳賀芳範, $\text{RRu}_2\text{Al}_{10}$ ($R=\text{La, Pr}$)の電気的・磁気的特性, 日本物理学会2010年秋季大会, 2010年9月23日, 大阪府立大学中百舌鳥キャンパス

〔図書〕(計1件)

- ①. H. Sato, H. Sugawara, Y. Aoki, H. Harima,
"HANDBOOK OF MAGNETIC
MATERIALS, VOLUME 18, Chapter 1,
Magnetic Properties of Filled
Skutterudites" edited by K.H.J.
Buschow.(Elsevier North-Holland,
November 2009) 1-110.

〔その他〕

ホームページ等

[http://www.phys.sci.kobe-u.ac.jp/facult
y/sugawara.html](http://www.phys.sci.kobe-u.ac.jp/faculty/sugawara.html)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

菅原 仁 (SUGAWARA HITOSHI)
神戸大学・理学研究科・教授
研究者番号：60264587

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者