

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21740256

研究課題名(和文) 超高压下で重い電子系圧力誘起超伝導体の電子状態を探る

研究課題名(英文) Investigation of the electronic structure of heavy fermion superconductor under high pressure

研究代表者

本多 史憲 (HONDA FUMINORI)

大阪大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：90391268

研究成果の概要(和文)：

本研究課題では、高压下で重い電子状態や圧力誘起超伝導を示す物質の電子状態に着目し研究を進めた。常圧で反強磁性を示す CePtSi_2 や CePd_5Al_2 をはじめ、同じく反強磁性体で結晶構造に反転対称性のない CeIrGe_3 、 CeCoGe_3 等の化合物の量子臨界点における圧力誘起超伝導を詳細に調べ、上部臨界磁場の異方性などを明らかにした。また $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ (T: Co, Rh, Ir) 化合物で重い電子系特有のメタ磁性が現れることを見だし、圧力下でこれらの化合物が量子臨界点に近づき大きな電子の有効質量を示すことを発見した。

研究成果の概要(英文)：

In rare-earth and actinide compounds, various kinds of electronic ground states such as magnetic ordering, heavy fermion, and unconventional superconductivity are realized as a result of the competition between the RKKY interaction and the Kondo effect. In this research, electronic properties of several Ce- and Yb- compounds are investigated under high pressure, high magnetic field, and low temperature.

Physical properties of pressure induced heavy fermion superconductors such as CePtSi_2 , CeRhGe_2 , and CePd_5Al_2 as well as a non-centrosymmetric compound CeIrGe_3 have been investigated. It is also found that $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ exhibits an extremely heavy fermion state under high pressure near the quantum critical point.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2010 年度	1,500,000	450,000	1,950,000
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：強相関電子係、高压物性、重い電子系超伝導

1. 研究開始当初の背景

セリウム・ウラン化合物は、比較的局在性の強い f 電子と結晶中を自由に動き回る伝導電子とが混成し、磁気・電荷・多極子秩序、小さな磁気モーメント、重い電子状態、異方的超伝導など特色ある物性が発現する。これらの現象は、Ruderman-Kittel-漕

谷-芳田 (RKKY) 相互作用と近藤効果のバランスで生まれるが、これらの相互作用が拮抗した場合、磁性が抑制された重い電子状態(量子臨界状態)が形成され、しばしば超伝導状態が発現する。近年これらの相互作用をコントロールする手段として圧力が重要なパラメータであることがわかり、

我々をはじめ多くの研究グループで圧力下での物性研究が行なわれ、いくつかの圧力誘起重い電子系超伝導体が発見されている。一方で、この重い電子による超伝導状態については、磁性との共存、超伝導電子対の対称性、大きな超伝導上部臨界磁場(H_{c2})及びその異方性など未解明な点が多いことも事実である。

実験技術の進歩もあり約 3GPa 程度までの圧力下では比較的静水圧性のよい実験が行われ、電子物性も次第に明らかになってきた。一方、それ以上の圧力領域となると、試料空間がより小さくなるブリッジマンアンビル型高压発生装置やダイヤモンドアンビル型高压発生装置(DAC)を使用する技術的困難さ、それに付随する物性測定上の制約、圧力媒体の固化による非静水圧性に起因した圧力勾配、測定試料へのダメージによる残留抵抗の増加や超伝導転移のブロード化などさまざまな問題があり、超伝導の詳細を研究する上で克服すべき点は多い。

2. 研究の目的

本研究では静水圧性を格段に改善する希ガス(アルゴンやヘリウム)を圧力媒体として DAC に導入することができるシステムを開発し、超高压下において重い電子系圧力誘起超伝導体の電子状態を詳しく調べることを目的とする。

そこで、これまでのさまざまな高压発生装置開発や圧力下における測定の経験を活かし、測定範囲をより高い圧力へと拡張し、希土類・アクチナイドなどの f 電子を持つ物質が示す、超伝導や磁性、多極子などの電子状態を調べることを目的として本課題研究を遂行することにした。

3. 研究の方法

本研究では、希ガスを圧力媒体とした静水圧性の良い高压セルを開発しこれらの高压発生装置や既存の装置を用いて、希土類化合物で見られる圧力誘起超伝導体の電子状態を詳しく調べる。研究に用いる試料は代表者と代表者の所属するグループの大学院生らによって育成された純良単結晶試料を用いた。研究対象としては、具体的には磁性が消失し、超伝導が現れる量子臨界点が 5–10GPa と比較的高く、詳しい電子物性が明らかになっていない CePd_5Al_2 、 CeTGe_3 (T:Co, Ir)、などの物質の詳細な圧力—温度—磁場相図の研究。またセリウムが $4f$ 電子 1 つなのに対して、 $4f$ のホールを 1 つ持ち対照的な物性を示すと考えられるイッテルビウム(Yb)化合物などに対象を拡げ研究を進めていく。

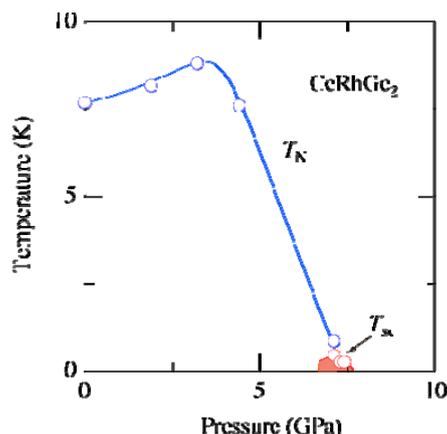


図1 CeRhGe_2 の圧力と温度の相図。 T_N はネール点、 T_{sc} は超伝導転移温度を表す。

4. 研究成果

本研究課題において、様々な希土類、アクチノイド化合物の純良単結晶育成と高压下における電子状態の研究を行ってきた。ここではいくつかの主要な結果について記載し、より詳細なデータや解釈については後掲の論文を参照願いたい。

・ CePtSi_2 と CeRhGe_2 の圧力誘起超伝導

圧力誘起超伝導探索の過程において、新物質 CeRhGe_2 の単結晶育成に成功した。 CeRhGe_2 の結晶構造は正方晶に近い CeNiSi_2 型の斜方晶構造である。比熱や帯磁率の測定において 7.5 K で磁気転移を反映した明確な比熱の異常が観測されたことから、この物質は $T_N = 7.5$ K の反強磁性体であることがわかった。帯磁率は高温でキュリー・ワイス則に従い、有効磁気モーメントは Ce の自由イオンの値に近い約 $2.4 \mu_B/\text{Ce}$ と見積もられた。低温での比熱の温度依存性から得られた電子比熱係数は約 $70 \text{ mJ/mol}\cdot\text{K}^2$ であった。帯磁率と比熱の結果から、この物質の $4f$ 電子は比較的良好に局在した $4f$ 電子による反強磁性を示し、2次元電子系であることが示唆される。そこで、磁気転移が消失する量子臨界点近傍における物性を調べるため、高压下における電気抵抗測定を行なった。ブリッジマンアンビル型高压装置をもちいて 4.4 GPa までの実験を行ったところ、電気抵抗は全体的に増加し、 T_N は約 3 GPa まで単調に増加、その後減少に転じることがわかった。磁気秩序の抑制にはより高压が必要であると考えられたため、ダイヤモンドアンビル型高压装置を使って実験を行った。7.1 GPa で電気抵抗は約 50 K で山を持つような重い電子系特有の振る舞いに変わり、さらに温度を下げると約 1 K で反強磁性に伴うと考えられる電気抵抗の折れ曲がりが見られ、0.4 K 付近で再び電気抵抗が急激に減少することがわかった。0.4 K での電気抵抗の減少は比較的低い磁場で

消失することから超伝導が発現したと考えられる。

図1にこの結果から得られたCeRhGe₂の圧力-温度相図を示す。現在のところ超伝導は7 GPa付近の狭い圧力領域だけで見られ、まだゼロ抵抗は観測されていない。この原因の一つとしては結晶の純度や圧力の不均一性などが考えられる。

次に九州大の巨海グループによって圧力誘起超伝導の可能性が示唆されたCePtSi₂について単結晶を育成し圧力下での研究を行った。これまでCePtSi₂では1.7 GPa以上の圧力をかけると低温で電気抵抗が急激に減少することが報告されていたが、今回我々の研究で1.5 GPa程度の圧力をかけると、 $T_{sc} = 0.16$ K以下で電気抵抗がゼロになることが確認された。また超伝導の上部臨界磁場の異方性を詳細に測定したところ、ゼロ磁場での上部臨界磁場は $H \parallel a-, b- c$ -軸に対して、 $H_{c2}(0) = 11, 22, 3$ kOeとなることがわかった。この異方性はフェルミ面の異方性と必ずしも対応しているわけではなく、むしろ帯磁率の異方性と密接に関連しているように見えることから、この異方性には常磁性効果が大きく寄与していることが考えられる。

・結晶構造に反転対称性のないCeIrGe₃の圧力誘起超伝導

$T_N = 8.5$ Kの反強磁性体CeIrGe₃の結晶構造はBaNiSn₃型の正方晶であり、結晶の[001]方向に空間反転対称性を持たない。反転対称性がない系では、結晶内の電場勾配によりフェルミ面が分裂し、クーパ対の対称性がs波とp波が混じった新しいタイプの超伝導状態が実現する可能性が示唆されている。この場合生成されるクーパ対は結晶の(001)面内で形成される。このような結晶構造での超伝導は、Ce化合物ではCePt₃Siで始めて発見され、その後CeRhSi₃やCeIrSi₃で相次いで発見された。CeIrGe₃はこの後者の化合物と同じ結晶構造であり、圧力誘起超伝導が期待されていた。しかし、反強磁性転移温度 T_N は8.5 Kと高く、反強磁性が安定であるため、8 GPaまでの研究では T_N の顕著な減少は見られなかった。そこでより高い圧力範囲をカバーできるダイヤモンドアンビル型高圧装置を用いて圧力下における電気抵抗測定を行った(図2)ところ、 T_N が段階的に減少し、約20 GPaで反強磁性と共存する超伝導が発現した後、24 GPa以上で基底状態は超伝導のみの相となる。CeIrGe₃の温度と圧力の相図を図3に示す。上述したように、この化合物には結晶構造に反転対称性がないことから、クーパ対が(001)面内で形成されることから、[001]方向の磁場に対してスピン帯磁率が生じず、量子臨界点で重い電子状態が実現することにより[001]方向に巨大な上部臨界磁場を持つと考えられる。

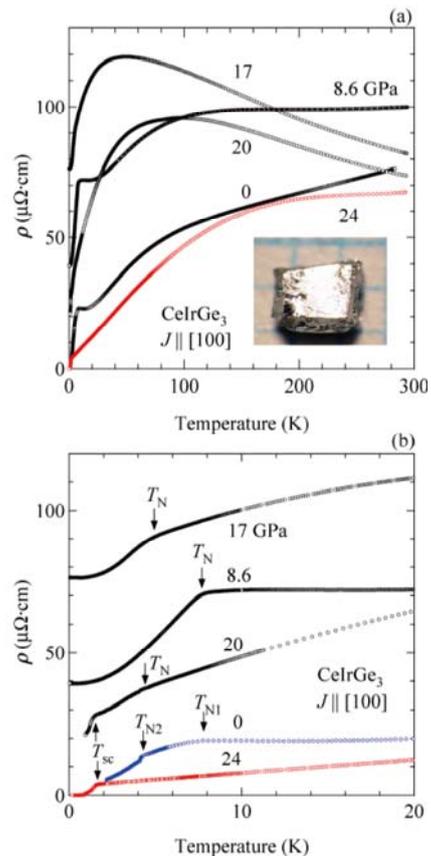


図2 超高压下におけるCeIrGe₃の電気抵抗の温度依存性。(a)の内挿図はフラックス法により育成された純良単結晶試料。

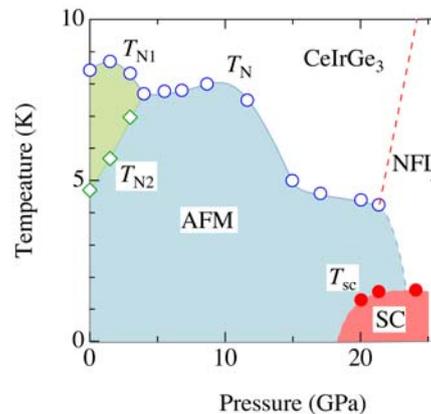


図3 CeIrGe₃の圧力と温度の相図。 T_N はネール点、 T_{sc} は超伝導転移温度を表す。

・重い電子系化合物YbT₂Zn₂₀ (T: Co, Rh, Ir)の量子臨界点近傍の電子状態

YbT₂Zn₂₀はCeCr₂Al₂₀型の立方晶で、Ybがダイヤモンド構造をとり、Tはパイロクロア構造である。それぞれがZnで囲まれたカゴ状の結晶である。これらの化合物は全て磁気秩序を持たない。つまり磁化率はYb³⁺の有効ボーア磁気モーメントを持つキュリー・ワイス則に従い、 $T_{\chi_{max}}$ で極大値を

持ち、より低温で一定の磁化率となる。 $T_{\chi_{\max}}$ は近藤温度に対応し、 $T_{\chi_{\max}}$ 以下で $4f$ 電子は局在電子から遍歴電子に変貌する。 χ ($T \sim 0$ K) の値は電気抵抗率 $\rho = \rho_0 + AT^2$ の \sqrt{A} 値、および電子比熱係数 γ に比例する。すなわちフェルミ液体の重い電子系となる。 $T_{\chi_{\max}}$ は $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ で 7.4 K、 $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ で 5.8 K、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ で 0.32 K である。従来の重い電子系の典型物質 CeCu_6 では $T_{\chi_{\max}} = 1$ K であったので、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ はおよそ 1桁小さい近藤温度の物質ということになる。重い電子系特有のメタ磁性が $T_{\chi_{\max}}$ 以下で出現することを期待して磁化測定を行ったところ、1.3 K では $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ で $H_m = 97$ kOe、 $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ では 63 kOe にメタ磁性が見いだされた。 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ では 1.3 K ではメタ磁性は見いだされないが、60 mK では 6 kOe にメタ磁性が観測された。 $T_{\chi_{\max}}$ と H_m との関係を含めてプロットしたのが図4である。この関係は実験的に H_m (kOe) = $15 T_{\chi_{\max}}$ (K) で表現される。つまり、 $\mu_B H_m = k_B T_{\chi_{\max}}$ であった。つまり重い電子系の基本法則が広い温度と磁場範囲で確立していることを示している。

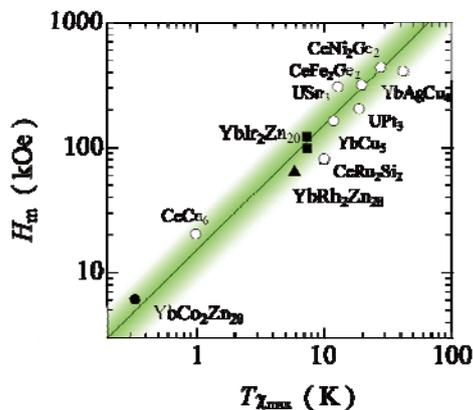


図4 重い電子系の $T_{\chi_{\max}}$ と H_m の関係。

本研究では $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ (T: Co, Rh, Ir) のメタ磁性の磁場を目安にして、圧力下での電気抵抗、ドハース・ファンアルフェン (dHvA) 効果の測定を行った。その結果、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ が量子臨界点近傍に位置することがわかった。dHvA 効果から $H = 0$ kOe では、 $100 \sim 500 m_0$ のサイクロトロン有効質量を持つ重い電子系であることも明らかにされた。ただし、この重い電子系は磁場の増大とともに著しく減少する。また、圧力・磁場中で $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ の電気(磁気)抵抗測定を行ったところ、 H_m は加圧とともに減少し、それ

に伴い電気抵抗の T^2 の係数 A が急激に増大、さらに A 値は H_m で極大をもつ(図 5(a))ことがわかった。 \sqrt{A} は電子の有効質量に比例するため、常圧と 5.0 GPa におけるドハース・ファンアルフェン効果(dHvA)測定から見積もったサイクロトロン有効質量を対応させる(図 5(b))と、5.0 GPa での有効質量は $450 m_0$ (m_0 : 電子の静止質量) という巨大な値となる。これは特筆すべき値で、これまで見つかった最高に重い電子系 CeCu_6 に比べはるかに大きい。さらに高圧下で 5.2 GPa で H_m が消失し、7.5 GPa で反強磁性が誘起されることを見いだした。このことは非磁性 Yb 化合物における量子臨界点探索において H_m が重要な指標となることを表している。

本研究課題では以上のような研究を行って、セリウムやイットリウム化合物が量子臨界点近傍で示す特異な電子状態を明らかにした。今後もさらに研究を進め、重い電子系化合物が示す多彩な電子状態の本質を探る研究につなげていきたい。

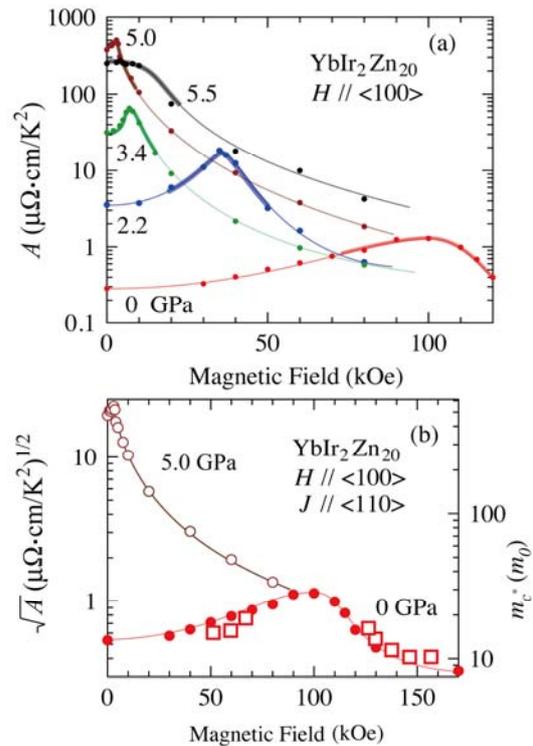


図5 (a) 圧力下における $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ の A 値の磁場依存性と(b)常圧と 5.0 GPa における \sqrt{A} 値と常圧におけるサイクロトロン有効質量の磁場依存性の比較。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 15 件)

① Magnetic and Superconducting Properties of CeRhGe_2 and CePtSi_2

Y. Hirose, N. Nishimura, F. Honda, K. Sugiyama,

M. Hagiwara, K. Kindo, T. Takeuchi, E. Yamamoto, Y. Haga, M. Matsuura, K. Hirota, A. Yasui, H. Yamagami, R. Settai, and Y. Ōnuki
J. Phys. Soc. Jpn. **80** (No.1, February 10) (2011) 024711 (12 pages). 査読有

② Strong Field Quenching of the Quasiparticle Effective Mass in Heavy Fermion Compound $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$

Masahiro Ohya, Masaki Matsushita, Shingo Yoshiuchi, Tetsuya Takeuchi, Fuminori Honda, Rikio Settai, Toshiki Tanaka, Yasunori Kubo, and Yoshichika Ōnuki
J. Phys. Soc. Jpn. **79** (No.8, Aug. 10) (2010) (4 pages) 083601. 査読有

③ Quantum Critical Phenomena in Heavy Fermion Compound $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$

Fuminori Honda, Shinichi Yasui, Shingo Yoshiuchi, Tetsuya Takeuchi, Rikio Settai, and Yoshichika Ōnuki
J. Phys. Soc. Jpn. **79** (No.8, Aug. 10) (2010) (4 pages) 083709. 査読有

④ Metamagnetic Behavior in Heavy-Fermion Compound $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$

Tetsuya Takeuchi, Shinichi Yasui, Masatoshi Toda, Masaki Matsushita, Shingo Yoshiuchi, Masahiro Ohya, Keisuke Katayama, Yusuke Hirose, Naohisa Yoshitani, Fuminori Honda, Kiyohiro Sugiyama, Masayuki Hagiwara, Koichi Kindo, Etsuji Yamamoto, Yoshinori Haga, Toshiki Tanaka, Yasunori Kubo, Rikio Settai, and Yoshichika Ōnuki
J. Phys. Soc. Jpn. **79** (No.6, June 10) (2010) 064609 (15 pages). 査読有

⑤ Heavy fermion state and quantum criticality

Y. Ōnuki, R. Settai, F. Honda, N.D. Dung, T. Ishikura, T. Takeuchi, T.D. Matsuda, N. Tateiwa, A. Nakamura, E. Yamamoto, Y. Haga, D. Aoki, Y. Homma, H. Harima, H. Yamagami
Physica B **405** (Issue 9, May 1) (2010), 2194-2199. 査読有

⑥ Pressure-induced superconductivity and large upper critical field in the noncentrosymmetric antiferromagnet CeIrGe_3

F. Honda, I. Bonalde, K. Shimizu, S. Yoshiuchi, Y. Hirose, T. Nakamura, R. Settai, and Y. Ōnuki
Physical Review B., **81** (2010) 140507(R). HIGHLIGHTED ARTICLES として【Editor's Suggestion】に選定. 査読有

⑦ Low-Temperature Magnetic Orderings and Fermi Surface Properties of LaCd_{11} , CeCd_{11} , and PrCd_{11} with a Caged Crystal Structure

Shingo Yoshiuchi, Tetsuya Takeuchi, Masahiro Ohya, Keisuke Katayama, Masaki Matsushita,

Naohisa Yoshitani, Naoto Nishimura, Hisashi Ota, Naoyuki Tateiwa, Etsuji Yamamoto, Yoshinori Haga, Hiroshi Yamagami, Fuminori Honda, Rikio Settai, and Yoshichika Ōnuki

J. Phys. Soc. Jpn. **79** (No.4, March 25) (2010) 044601 (11 pages). 査読有

⑧ Magnetic and Fermi Surface Properties of CePd_5Al_2 and PrPd_5Al_2

Y. Nakano, F. Honda, T. Takeuchi, K. Sugiyama, M. Hagiwara, K. Kindo, E. Yamamoto, Y. Haga, R. Settai, H. Yamagami, and Y. Ōnuki
J. Phys. Soc. Jpn. **79** (No.2, January 25) (2010) 024702 (9 pages). 査読有

⑨ 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, Y. Onuki

J. Phys. Soc. Jpn. **78** (No.12, December 10) (2009) 123711 (4 pages). 査読有

⑩ Magnetic Properties of RCoGe_3 (R: Ce, Pr and Nd) and Strong Anisotropy of the Upper Critical Field in Non-centrosymmetric Compound CeCoGe_3

M.-a. Measson, H. Muranaka, T. Kawai, Y. Ota, Kiyohiro S., M. Hagiwara, K. Kindo, T. Takeuchi, K. Shimizu, F. Honda, R. Settai, and Y. Ōnuki
J. Phys. Soc. Jpn. **78** (No.12, December 10) (2009) 124713 (10 pages). 査読有

その他 5 件

〔学会発表〕 (計 68 件)

①【招待講演】Novel superconductivity and heavy electron states under high quality single crystals and high-pressure techniques

F. Honda

5th Asian Conference on High Pressure Research
November 7-12, 2010, 島根県松江市くまびきメッセ

②超高压下における $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ の磁性と伝導
本多史憲, 安井慎一, 吉内伸吾, 竹内徹也, 摂待力生, 大貫惇睦

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

③ Effect of pressure on the metamagnetism in $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$

F. Honda

International Conference on Heavy Electrons
2010 (ICHE2010)

2010年9月17日-20日
首都大学東京南大沢キャンパス講堂

④Effect of pressure on the metamagnetism in $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ -a new tuning parameter for quantum criticality

F. Honda

Kick-off conference on Pressure effects on Materials (ICMR2010)

2010年8月23日~30日

University of California, Santa Barbara

⑤ CeRhGe_2 の圧力誘起超伝導

広瀬雄介, 本多史憲, 他 14名

日本物理学会第65回年次大会,

2010年3月20日~23日、岡山大学

⑥圧力下磁気抵抗測定による $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ のメタ磁性

安井慎一, 松下昌輝, 大家政洋, 吉内伸吾,

本多史憲, 他 4名

日本物理学会第65回年次大会,

2010年3月20日~23日、岡山大学

⑦ CeRhGe_2 の磁性と圧力誘起超伝導

広瀬雄介, 本多史憲, 他 14名

日本物理学会 2009年秋季大会

2009年9月25日~28日、熊本大学

⑧ CeRhGe_3 と CeIrGe_3 の純良単結晶育成と圧力誘起超伝導

ボナルデ イスマルド, 本多史憲, 他 6名

日本物理学会 2009年秋季大会

2009年9月25日~28日、熊本大学

⑨ Pressure-induced Superconductivity in Non-centrosymmetric Compound CeIrGe_3

Fuminori Honda

9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity

Sept. 7-12, 2009, Keio Plaza Hotel, Tokyo, Japan

“Selections from New Superconductors”セッションでの口頭発表

⑩ Pressure-induced superconductivity in CePd_5Al_2 and CeRhGe_2

F. Honda,

International Conference on Quantum Criticality and Novel Phases,

Aug. 2-5, 2009, Max Planck Institute for Chemical Physics of Solids, Dresden, Germany

⑪ Pressure-induced superconductivity in f-electron systems: CePd_5Al_2 , CeNiGe_3 and CeRhGe_2

F. Honda,

International Conference on High Pressure

Science and Technology,
July 26-31, 2009, Tokyo International Exchange
Center, Odaiba, Tokyo

他 57件

6. 研究組織

<研究代表者>

本多 史憲 (HONDA FUMINORI)

大阪大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：90391268

以上。