

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 31 日現在

機関番号：18001

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22540370

研究課題名（和文） 強相関化合物における f 電子の遍歴および局在の二重性の解明

研究課題名（英文） Investigation on the duality nature of f-electron systems in the strongly correlated compounds

研究代表者

眞榮平 孝裕（ MAEHIRA TAKAHIRO ）

琉球大学・理学部・准教授

研究者番号：20372807

研究成果の概要（和文）：遍歴と局在の 2 重性は強相関電子系の持つ本質的な問題である。本研究では 2 重性を本質的に内在するセリウムを研究対象に選び、典型的な希土類化合物を解析するとともに 2 重性が関与する物性現象を明らかにすることを目的とした。 $\alpha$ -Ce のフェルミ面を、局所密度近似を基礎とした相対論的バンド計算法により明らかにした。得られたフェルミ面はホール面と電子面がそれぞれ 1 枚ずつで形成されており開軌道は存在しない。この結果は高磁場磁気抵抗の実験結果と矛盾しない。また、超ウラン化合物、PuS、PuSe、PuTe、PuRu<sub>2</sub>、PuRh<sub>2</sub>、PuIr<sub>2</sub>、PuPt<sub>2</sub>、ThSn<sub>3</sub>、USn<sub>3</sub>、NpSn<sub>3</sub>、PuSn<sub>3</sub>、PuRh<sub>3</sub>、PuPd<sub>3</sub>、PuPt<sub>3</sub>についても電子構造を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：The duality nature of the f electrons, i.e. itinerant or localized, is an essential issue of the strongly correlated f electron systems. The purpose of the present project is to investigate the physical properties arising from the duality nature of the f electrons in rare - earth compounds. We derive the Fermi surface for  $\alpha$ -Ce by a relativistic linear augmented plane wave method within the framework of a local-density approximation. The Fermi surfaces thus obtained are composed of an hole sheet and an electron sheet, all of which have no open orbits. The Fermi surface topology is consistent with the experimental results for the high-field magnetoresistance. We have also studied the physical properties arising from the itinerant or localized nature of the f electrons in other transuranium compound like PuS, PuSe, PuTe, PuRu<sub>2</sub>, PuRh<sub>2</sub>, PuIr<sub>2</sub>, PuPt<sub>2</sub>, ThSn<sub>3</sub>, USn<sub>3</sub>, NpSn<sub>3</sub>, PuSn<sub>3</sub>, PuRh<sub>3</sub>, PuPd<sub>3</sub>, PuPt<sub>3</sub>.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2011 年度	600,000	180,000	780,000
2012 年度	500,000	150,000	650,000
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：遍歴，局在，相対論的バンド計算，結晶場，f 電子系，電子相関，磁性，超ウラン化合物，j,j 結合

## 1. 研究開始当初の背景

一般にセリウム金属は、周期表の如何なる系列の金属よりも数多くの結晶構造をとることが知られているが、そのなかでも Ce の特異性は際立っている。Ce は大きな熱膨張係数を持っているが、固体相の一つである  $\alpha$ -Ce (面心立方晶) においては、温度減少とともに 20% も体積が大きく収縮する。また、 $\gamma$ - $\alpha$  転移として知られる価数転移では、結晶の対称性を保ちながら Ce の価数が不連続に跳ぶ一次転移を示す。このような特異な変化の原因は、主にバンド計算において、Ce 金属の 4f 電子の金属結合に関係した遍歴と局在の拮抗として議論されている。電子の遍歴と局在の拮抗は、磁性の発現と密接に関連しているが、局在性が強まるにもかかわらず磁性が発現しないという理由が理解されない。これは、物性物理の基本的な問題のほずであり、それに関する  $\alpha$ -Ce の重要性を認識し、強相関電子系の観点から新たな光を当て、解決する必要がある。本研究を遂行する上で、強い電子相関に起因する計算の困難は予想されるが、このような基本的な問題の解明を図ることは、バンド理論にとって大いなる挑戦でもある。

## 2. 研究の目的

遍歴と局在の 2 重性は強相関電子系の持つ本質的な問題である。本研究では、2 重性を本質的に内在する単体セリウムを研究対象に選び、2 重性の起源を明らかにするとともに、典型的なセリウム化合物における 2 重性が関与する物性現象を明らかにすることを目的とする。単体セリウムは、 $\gamma$  相から  $\alpha$  相へ変化する際、結晶構造は変えないが 20% もの体積変化を伴うことが知られている。相変化による 4f 電子の局在性と遍歴性が強く示唆されているが、単結晶育成の困難さから理論・実験ともに決定的な理解には至っていない。そこで、相対論的バンド理論を基に微視的模型を構築し、f 電子の局在性と遍歴性の拮抗に起因した特異な現象の統一的描像への到達を目指す。

## 3. 研究の方法

### (1) $\alpha$ -Ce および $\gamma$ -Ce に対するエネルギーバンド計算の実行

f 電子系に対しては、これまで局所密度近似に結晶場効果を組み込んだ方法を開発してきたが、 $\alpha$ -Ce および  $\gamma$ -Ce に対して、この LDA+CEF 法によるエネルギーバンド計算を実行し、電子構造を決定する。

### (2) 微視的模型のパラメーターの決定

バンド計算から得られた Ce の電子構造を基に、フェルミレベル近傍のバンド分散を再現するように微視的模型を構築する。モデルは、電子の遍歴性をもたらすホッピング項、局在性に関わるクーロン相互作用項と結晶場項

から成る。ホッピング項に対しては、強束縛近似によって電子軌道間の跳び移り積分を求め、その値はバンド計算の電子構造を再現するように決定される。

### (3) モデルの数値的研究

微視的模型を用いて Ce の解析を進めていく。その際、二つの相補的な手法を活用する。すなわち、扱うサイズは小さくなるが電子相関効果を正確に取り入れることのできる厳密対角化法と、大きなサイズを扱えるが電子相関効果は近似的に取り入れる平均場近似法である。これらをうまく組み合わせて、Ce の遍歴・局在状態とその秩序構造を系統的に明らかにする。

### (4) モデルの解析的研究

(3) の数値的研究と同時に、解析的手法による研究にも着手する。数値計算は、計算機誤差あるいは統計誤差の範囲内においては原理的に正しい答を与えてくれるが、多くの場合、取り扱うクラスターサイズに限界がある。それとは相補的に、摂動論的な考えでもモデルを解析する必要がある。

## 4. 研究成果

遍歴と局在の 2 重性は強相関電子系の持つ本質的な問題である。そこで、2 重性を本質的に内在する単体セリウムを研究対象に選び研究を開始した。単体セリウムは、 $\gamma$  相から  $\alpha$  相へ変化する際、結晶構造は変えないが 20% もの体積変化を伴うことが知られている。相変化による 4f 電子の局在性と遍歴性が強く示唆されているが、単結晶育成の困難さから理論・実験ともに決定的な理解には至っていない。まず、相対論的バンド計算の手法を用いて、 $\alpha$ -セリウム、 $\gamma$ -セリウム、f 電子の寄与を調べるためにランタンおよびトリウム電子構造を系統的に明らかにした。その結果、 $\alpha$ -セリウムについては、横磁気抵抗の実験結果を合理的によく説明するが、f 電子が局在的な傾向を示す  $\gamma$ -セリウムについては、局所密度近似 (LDA) 法を基礎とするバンド計算では説明することが困難であった。 $\alpha$ -セリウムの解析の結果、2 番目のバンド 2 と 3 番目のバンド 3 がフェルミレベルを横切り、4f 電子成分によりフェルミ面が形成されていることがわかった。バンド 2 のホール面は、 $\Lambda$  軸上に位置する 8 個の閉じた円盤状フェルミ面と、W 点でゾーンからゾーンへ複雑に連結したフェルミ面から形成される。バンド 3 の電子面は、 $\Sigma$  軸上に位置する 12 個の閉じたフェルミ面から形成され、その形状は原子番号 90 番目のトリウムのフェルミ面とよく似ている。バンド 2 のフェルミ面がゾーンからゾーンへ連結しているために開軌道の可能性があったが、解析の結果、開軌道は生じないことがわかった。また、バンド 3 がトリウムのフェルミ面と似ていると

ころから、4f 電子系、5f 電子系の違いはあるが、単体セリウムの参照物質としても有効であることが確認できた。これは、事前に予想していたことであり、今後の研究を進める上でも、重要な確認の1つであった。さらに、強相関電子系の電子状態を微視的観点から理解するため、電子模型構築を進めるが、その指針を得るための解析を行った。この電子模型は、強束縛近似による f-および p-電子の遍歴項と混成項、f-電子間相互作用項、そして結晶場項からなり、Slater-Koster としては、(ffs), (fps), (fpp), (pps), (ppp) の5つを考えている。その解析の結果、 $\Gamma_8$  と  $\Gamma_7$  は (fpp) について敏感に変化することがわかり、LDA+CEF 法による電子状態の解析において、重要な意味を持つことがわかった。

(1)  $\alpha$ -Ce のバンド計算の実行と解析:  $\alpha$ -Ce および  $\gamma$ -Ce の結晶場基底状態を再現するように結晶場ポテンシャルのパラメーター範囲を探索し、j-j 結合描像での1電子ポテンシャルを見積もった。4f 電子のいない Th も含めて、電子構造やフェルミ面の系統的比較を行った。

(2)  $AnSn_3$  ( $An=Th, U, Np, Pu$ ) のバンド計算の実行と解析: アクチノイド系列において、トリウムから超ウラン系のプルトニウムまでの  $AuCu_3$  構造をもつ化合物、 $ThSn_3$ 、 $USn_3$ 、 $NpSn_3$ 、 $PuSn_3$  に対するバンド計算を実行し、電子構造を明らかにした。

(3)  $PuX_2$  ( $X=Ru, Rh, Ir, Pt$ ) のバンド計算の実行と解析: プルトニウムを含むラーベス相構造をもつ化合物、 $PuRu_2$ 、 $PuRh_2$ 、 $PuIr_2$ 、 $PuPt_2$  に対するバンド計算を実行し、電子構造を明らかにした。

(4)  $PuX$  ( $X=S, Se, Te$ ) のバンド計算の実行と解析: プルトニウムを含むモノカルコゲナイド構造をもつ化合物、 $PuS$ 、 $PuSe$ 、 $PuTe$  に対するバンド計算を実行し、電子構造を明らかにした。

(5) La (fcc, dhcp 構造) のバンド計算の実行と解析: 単体 La の電子構造を明らかにし、それを基に  $\alpha$ -Ce および  $\gamma$ -Ce の結晶場基底状態を再現するように結晶場ポテンシャルのパラメーター範囲を探索した。この場合、j-j 結合描像での1電子ポテンシャルを見積もった。

(6)  $EuGa_4$  のバンド計算の実行と解析: 新規に発見された強相関電子系化合物  $EuGa_4$  の電子構造を明らかにした。

(7) 超ウラン化合物のバンド計算の実行と解析を行い、系統的な整理を行った: 主な物質としては、 $PuS$ 、 $PuSe$ 、 $PuTe$ 、 $PuRu_2$ 、 $PuRh_2$ 、 $PuIr_2$ 、 $PuPt_2$ 、 $ThSn_3$ 、 $USn_3$ 、 $NpSn_3$ 、 $PuSn_3$ 、 $PuRh_3$ 、 $PuPd_3$ 、 $PuPt_3$  に対するバンド計算を実行し、電子構造を明らかにし系統的に整理した。

(8)  $SmSn_3$  と  $LaSn_3$  のバンド計算の実行と解析:  $LaSn_3$  と  $SmSn_3$  の電子構造を明らかにし、

dHvA 効果の実験結果を合理的に説明した。

(9) Yb、Y 化合物のバンド計算の実行と解析:  $YbSn_3$ 、 $YbPb_3$ 、 $YPb_3$ 、 $YSn_3$  の電子構造を明らかにし、dHvA 効果の実験結果を合理的に説明した。

#### 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 9 件)

① Takahiro Maehira and Yasutomi Tatetsu, Electronic Structures of Plutonium compounds with the NaCl-type monochalcogenides structure, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, 400, 042042, 2012, 4pages.

② Takahiro Maehira, Yasutomi Tatetsu, Hirochika Teruya and Eijiro Sakai, Origin of the Frequency Branch of the de Haas-van Alphen Effect in  $CeIr_2$ , Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 81, SB012, 2012, 4pages.

[学会発表] (計 30 件)

① 眞榮平孝裕, 立津慶幸,  $SmSn_3$  と  $LaSn_3$  の電子構造, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 18 日, 横浜国立大学.

② Takahiro Maehira and Yasutomi Tatetsu, Electronic Properties of Plutonium Compounds with the Cubic Laves Phase Structure, Strongly Correlated Electron Systems 2011 (SCES2011), 2011. 9. 30, Cambridge, UK.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
出願年月日:  
国内外の別:

○取得状況 (計 0 件)

名称:  
発明者:  
権利者:  
種類:  
番号:  
取得年月日:  
国内外の別:

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

眞榮平 孝裕 (MAEHIRA TAKAHIRO)

琉球大学・理学部・准教授

研究者番号：20372807

(2) 研究分担者

( )

研究者番号：

(3) 連携研究者

( )

研究者番号：