

## 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 6 月 10 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2012

課題番号：21540373

研究課題名（和文） アクチノイド化合物における大きな磁気抵抗効果の研究

研究課題名（英文） Research for Huge Magnetoresistance in Actinide Compounds

研究代表者

山本 悦嗣（YAMAMOTO ETSUJI）

独立行政法人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：50343934

研究成果の概要（和文）： $\beta$ - $US_2$  は、低温で狭いギャップを持つ半導体である。そのギャップは磁場や圧力などの外場に極めて敏感であり、7 T の磁場、または 8 GPa 程度の圧力で電気抵抗値が 6-8 桁程度減少するという大きな磁気抵抗効果を持つ。この  $\beta$ - $US_2$  について大型の純良単結晶育成を行った。この単結晶を用いて、中性子散乱や高圧下や高磁場下における磁化率、電気抵抗測定などを詳細に行い、その磁気抵抗効果の性質を明らかにした。

研究成果の概要（英文）： $\beta$ - $US_2$  is narrow gap semiconductor and does not order magnetically. The narrow gap is very sensitive to a magnetic field or a high pressure.  $\beta$ - $US_2$  have a huge magnetoresistance which has  $10^{-6}$ - $10^{-8}$  order, with a magnetic field of 7 T or under a high pressure of 8 Gpa. We grew high quality single crystal of  $US_2$  and clarified the property of magnetoresistance by magnetic susceptibility, electric resistance and neutron scattering measurement.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010 年度	800,000	240,000	1,040,000
2011 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012 年度	400,000	120,000	520,000
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

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：強相関電子系、アクチノイド、巨大磁気抵抗

## 1. 研究開始当初の背景

$\beta$ - $US_2$  は、低温で狭いギャップを持つ半導体である。そのギャップは磁場や圧力などの外場に極めて敏感であり、研究代表者らは 7 T の磁場、または 8 GPa 程度の圧力で電気抵抗値が 6-8 桁程度減少するという大きな磁気抵抗効果を見いだした。このような外場効果は、通常のバンド半導体としては理解できず、ウランの 5f 電子が伝導系に強い影響を及ぼしていることを示している。

また、比熱のショットキー異常や磁化率の温度依存性から結晶場効果として解析することができるが、そのエネルギースケール（約 90K）は  $US_2$  の半導体ギャップと同程度である。

このことは、絶縁体や半導体のウラン化合物は局在的であるとする f 電子系の単純な見方について再考の必要性を示すものであった。

## 2. 研究の目的

斜方晶の結晶構造を持つ $\beta$ - $\text{US}_2$ は、2種類の結晶学的サイトを占有するS原子の片方のサイトをSe, Teで置換することができる。S, Se, Teと進むに従って、伝導は金属的になり、同時に強磁性が発現するという事実から、磁性と伝導の密接な関係が示唆される。

しかし、これらの物質はいずれもカルコゲン元素を含み、その高い蒸気圧と、取扱の難しさのために試料作製が困難であった。さらに $\beta$ - $\text{US}_2$ のような狭いギャップを持つ半導体では、不純物効果が重要となることが予想され、よく評価された純良単結晶の作製が発点として重要である。そのため種々の物性測定に耐えうる大型単結晶作製方法を確立する。

得られた大型純良単結晶を用いて、これらの物質の特性を磁場・温度・圧力などの関数として系統的に明らかにすることにより、磁気抵抗効果の本質を解明する。

## 3. 研究の方法

$\beta$ - $\text{US}_2$ とその参照物質として $\text{USeS}$ 、 $\text{UTeS}$ について様々な育成条件で結晶育成を行い、最適な結晶育成方法を確立する。大型純良単結晶を育成し、これについて磁場中比熱測定、磁化率測定により、結晶場解析を行う。また圧力下での測定により、圧力のバンドに及ぼす効果を調べる。また光電子分光などからバンドの微視的構造をしらべ、これらのことによりウランカルコゲナイド化合物で発現する巨大磁気抵抗効果の特性を明らかにする。

## 4. 研究成果

(1)  $\beta$ - $\text{US}_2$ に見られる大きな磁気抵抗効果は容易軸方向[001]に磁場をかけたときのみ顕著に観測され、困難軸[100]方向ではほとんどみられず、異方性が大きい。低温における磁気抵抗効果について詳細な実験の結果、この磁気抵抗効果は低温でのバンドギャップが、磁場によりつぶされることによると考えられる。

(2)  $\beta$ - $\text{US}_2$ は1GPaで圧力秩序相が誘起されるが、この起源を探るため高圧下の磁化測定を行った。 $\beta$ - $\text{US}_2$ の結晶場基底状態は一重項状態であり、第一励起状態は100Kの位置にある。図1.に示すように常圧では磁化は降温で飽和し、一重項基底状態に対応する振る舞いをするが、加圧により磁化の値は増大する。これは磁気交換相互作用の増大によるものと考えられ、誘起磁気転移が起こる可能性が示唆される。

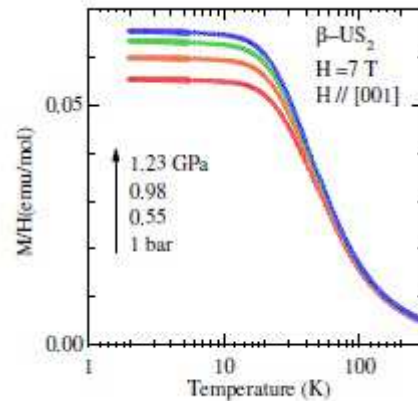


図1.  $\beta$ - $\text{US}_2$ の高圧下の磁化率

また高圧下で見られる自発磁化は図2に示すとおりである。

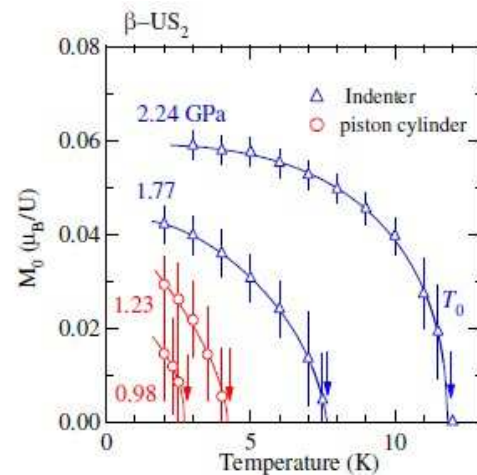


図2.  $\beta$ - $\text{US}_2$ の高圧下で生じる自発磁化

(3)  $\beta$ - $\text{US}_2$ について中性子散乱実験を行い、8 Kにおいて約7 meVのシャープな非弾性散乱ピークを観測した。この非弾性ピークのQ依存性は $\text{U}^{4+}$ イオンの磁気形状因子とよく合致し、明らかな分散関係は見られない。したがってこの非弾性ピークは結晶場励起によるもので、またその励起エネルギーは磁化率から求めた結晶場準位ともよく合致することが明らかになった。この約7 meVは90 Kの伝導ギャップに非常に近いことも興味深い。また100 K以上でフォノン起源でない準弾性散乱ピークも現れ、非弾性ピークと共存することも明らかにした。この準弾性散乱は $\text{U-5f}$ 電子と $\text{S-2p}$ 電子の混成から生じていると思われる。

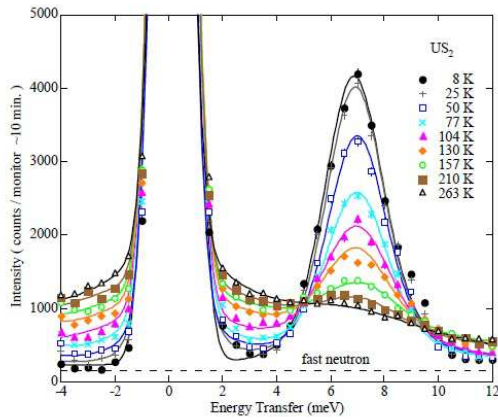


図 3.  $\beta$ - $US_2$  の中性子散乱

(4) 大阪大学との共同研究で  $\beta$ - $US_2$  について 50 T までの強磁場磁化、磁気抵抗の測定を行った。その結果、図に示すように 4.2 K における容易軸方向 [001] の磁化は 40 T で飽和し、50 T では  $1.75 \mu_B/U$  に達した。これに対応して 50 T の磁気抵抗は約 5000 分の 1 の  $2 \times 10^{-2} \Omega \cdot cm$  にまで減少することを明らかにした。この磁気抵抗の減少は上述したように容易軸方向 [001] のみで、50 T の強磁場中でも困難軸 [100] 方向では磁気抵抗効果が現れないことがわかった。この容易軸方向で現れる伝導電子は強磁場中で、5f 結晶場磁気モーメントが完全に配向するときに U サイトから放出されるものと考えられる。

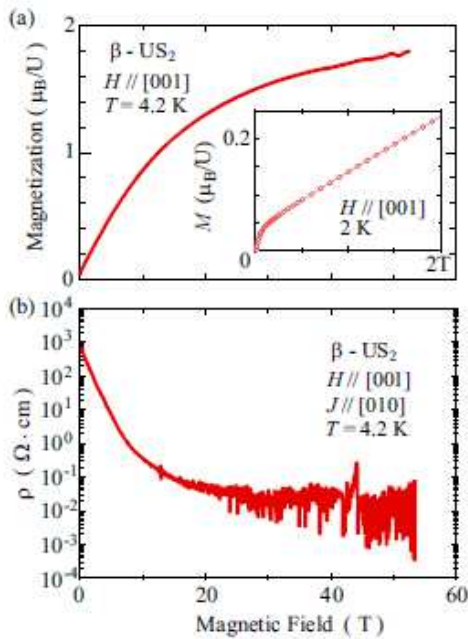


図 4.  $\beta$ - $US_2$  の強磁場中での磁化率と電気抵抗

(5) 図 5 に示すような  $\beta$ - $US_2$  単結晶の磁場下での容易軸方向 [001] の詳細な磁化率測定を行い、その磁気的性質を明らかにした。

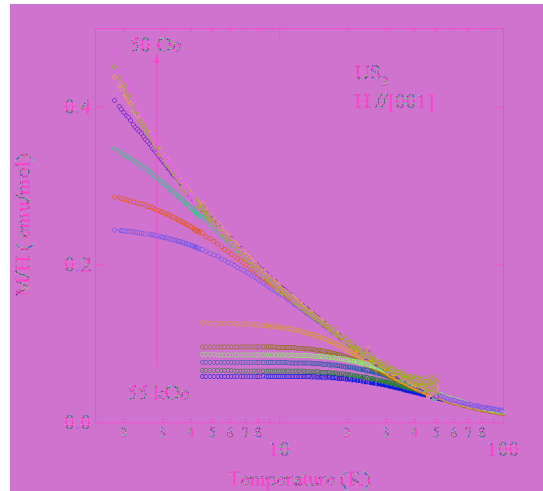


図 5.  $\beta$ - $US_2$  の [001] 方向の詳細な磁化率

この物質の磁化は一般的には結晶場効果による一重項状態の形成によるものと解釈できる。しかし、50 K 以下のある限られた磁場と温度範囲では、図に示すような磁化が磁場に大きく依存した特異なスケールリングに従うことを見出した。

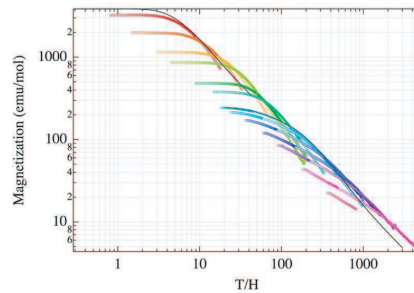


図 6.  $\beta$ - $US_2$  の [001] 方向の詳細な磁化率の特異なスケールリング

これは単純な結晶場効果では説明できない。我々はこの振る舞いを常磁性的な磁気クラスターによるものとする、いわゆる磁気的なポラロンモデルで説明できる可能性があることを示した。さらに詳細な研究が必要であるが、この結果はこの物質の巨大磁気抵抗とも関連しており、その意味でも重要な成果である。

## 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 4 件)

① N. TATEIWA, Y. HAGA, H. SAKAI, S. IKEDA, T. D. MATSUDA, E. YAMAMOTO, Y. ONUKI  
Non-magnetic to Magnetic Transition under High Pressure in Narrow-Gap Semiconductor  $\beta$ -US<sub>2</sub>

Journal of the Physical Society of Japan, Supplement A

査読有、Vol.80、2011、SA103-1~3

DOI:10.1143/JPSJS.80SA.SA103

② K. SUGIYAMA, Y. HIROSE, K. ENOKI, S. IKEDA, E. YAMAMOTO, N. TATEIWA, Y. HAGA, T. KIDA, M. HAGIWARA, K. KINDO, F. HONDA, R. SETTAI, Y. ONUKI

Magnetic-Field-Induced Metallic State in  $\beta$ -US<sub>2</sub>

Journal of the Physical Society of Japan, Supplement A

査読有、Vol.80、2011、SA104-1~3

DOI: 10.1143/JPSJS.80SA.SA104

③ N. Metoki, K. Kaneko, S. Ikeda, H. Sakai, E. Yamamoto, Y. Haga, Y. Homma, Y. Shiokawa

IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering

査読有、Vol. 9、2010、012088-1~9

④ 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, Y. ONUKI

Possible Existence of Magnetic Polaron in Nearly Ferromagnetic Semiconductor  $\beta$ -US<sub>2</sub>

Journal of the Physical Society of Japan

査読有、Vol.78、2009、114704

[学会発表] (計 4 件)

① 山本悦嗣、芳賀芳範、立岩尚之、菅井孝志、池田修悟、大貫惇睦

ウランカルコゲナイトにおける結晶場励起の磁場依存性

日本物理学会 2009 年秋季大会、2009 年 9 月 25 日、熊本大学

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

山本 悦嗣 (YAMAMOTO ETSUJI)

独立行政法人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：50343934

### (2) 研究分担者

松田 達磨 (MATSUDA TATSUMA)  
独立行政法人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：30370472

立岩 尚之 (TATEIWA NAOYUKI)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究主幹  
研究者番号：50346821