

平成 22 年 6 月 15 日現在

研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2007～2009  
 課題番号：19540385  
 研究課題名（和文） NMRによるウラン化合物の局在・非局在状態の解明  
 研究課題名（英文） NMR Investigation of the localized and delocalized Nature of Uranium Compounds  
 研究代表者  
 安岡 弘志（YASUOKA HIROSHI）  
 日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究員  
 研究者番号：50026027

研究成果の概要（和文）： 5f 電子系で顕著に現れる局在と非局在の状態変化を NMR から動的かつ正確に理解する目的で、 $USn_3$  や  $UIn_3$  をとりあげた。Sn 核や In 核の NMR の精密測定より反強磁性的スピン揺らぎが重要な役割を演じていることを明らかにした。Np 化合物超伝導体、 $NpPd_5Al_{12}$ 、を取り上げ Al 核の NMR による研究を行い、常伝導状態及び超伝導状態での NMR シフトや緩和率の温度依存性より、この物質の超伝導状態は異方的 d-波超伝導で特徴づけられることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）： From the detailed NMR measurements for Sn and In nuclei in typical uranium compounds,  $USn_3$  and  $UIn_3$ , we have clarified that an antiferromagnetic spin fluctuation is playing the essential role of the electronic state of high temperatures.

$^{27}Al$  NMR shift and relaxation studies have clarified an d-wave superconductivity in newly developed Np compound,  $NpPd_5Al_{12}$ . It is also found that high temperature spin dynamics is highly anisotropic, having dramatic decrease of the fluctuations along the c-axis at low temperature.

## 交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2008 年度	500,000	150,000	650,000
2009 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,100,000	930,000	4,030,000

研究分野：固体物性実験

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：核磁気共鳴、重い電子系、局在・非局在

## 1. 研究開始当初の背景

本研究計画で取り上げたウラン化合物を中心とした重い電子系物質群では、高温の局在した f-電子状態が如何にして低温で非局在化してエキゾチックな超伝導等の基底状態へ移行していくかが問題であった。その最も

重要な視点は f-電子と伝導電子との混成をいかに理解するかであった。この問題を、電子物性の立場より微視的に解明することが強く望まれていた。

## 2. 研究の目的

本研究の研究目的はウラン化合物で代表される f-電子を含む重い電子系のシステムで「高温での局在モーメントはいかにして非局在のフェルミ流体に移行するか？」また「局在と非局在状態が夫々の極限の理論で本当に記述できるか？」など高温での電子物性を今一度みなおして微視的に解明することである。実験手段としては、核磁気共鳴 (NMR) 法を用いて低温から高温領域までの NMR シフトや核磁気緩和時間の精密測定を行い、それらの温度依存性より局在・非局在状態及びその移行過程について明らかにするものである。

### 3. 研究の方法

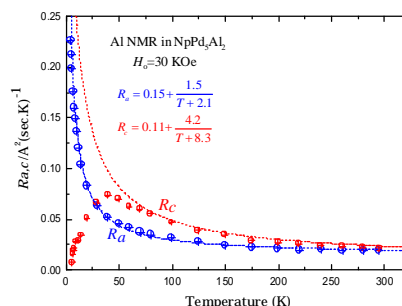
- (1) 典型的なウラン化合物として、まず CeIrIn<sub>5</sub>, USn<sub>3</sub> を選び高純度結晶を作成し巨視的な物理量の測定より試料の十分な評価を行う。(芳賀が担当)
- (2) Ir, Sn といった比較的観測困難な原子核を対象とし高温での精密測定を実現するために、新規回路の導入やパルスシーケンスの工夫等により従来の NMR 装置の感度向上を図る。(安岡、神戸が担当)
- (3) 高温 (約 500K 程度まで) で長時間安定に動作する磁場中クライオスタットを製作する。(神戸、安岡が担当)
- (4) 夫々の物質で、ナイトシフト K、スピン・格子緩和率  $1/T_1$  およびスピン・スピン緩和率  $1/T_{2g}$  の温度依存性を精密に測定する。(安岡、神戸が担当)
- (5) 測定されたデータを解析し、理論的に解釈し局在・非局在状態およびそのクロスオーバーを解明する。(全員が担当)

研究目的でも述べた如く、本研究を通じて解明される f-電子化合物の高温での電子物性は、必ずいわずの重い電子系と呼ばれている強相関 f-電子系の低温でのエキゾチックな物性解明に新しい指針を与えることは間違いなく、集中した研究展開が重要と考えている。

### 4. 研究成果

- (1) 5f 電子系で顕著に現れる局在と非局在の状態変化を NMR から動的かつ正確に理解する目的で、典型的なウラン化合物として USn<sub>3</sub> や UIn<sub>3</sub> をとりあげた。Sn 核や In 核の NMR シフトや緩和率の温度依存性を精密に測定し SCR 理論を用いて半定量的解析し反強磁性的スピン揺らぎが重要な役割を演じていることを明らかにした。
- (2) 最近発見された Np 化合物超伝導体、NpPd<sub>5</sub>Al<sub>2</sub>、を取り上げ Al 核の NMR による研究を行った。常伝導状態及び超伝導状態での NMR シフトや緩和率の温度依存性

より、この物質の超伝導状態は異方的 d-波超伝導で特徴づけられることを明らかにした。更に、下図に示すような常伝導状態の緩和率に大きな異方性があることを発見した。特に注目されるのは c-軸方向の揺らぎが低温で死んで行くように見えることである。これは、f-電子系超伝導体の顕著な特徴の一つと考えられ今後の理論的な解明が必要である。



- (3) NMR の装置開発については、ゼロ磁場における周波数スペクトルの自動測定システムを完成させた。また、高温での NQR や NMR 測定を可能にする磁場中クライオスタットの設計をおこなった。

本研究の総括としては重い電子系の局在と非局在の問題には多くの要素が絡んでおり複雑であること、とくにスピンのゆらぎには大きな異方性が存在することが明らかになり、全容を解明するにはより広範な物資で系統的な研究が必要である。

### 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 10 件)

- H. Chudo, H. Sakai, Y. Tokunaga, S. Kambe, D. Aoki, Y. Homma, Y. Haga, T. D. Matsuda, Y. Ōnuki, and H. Yasuoka, Anisotropic spin fluctuations in Heavy-fermion superconductor NpPd<sub>5</sub>Al<sub>2</sub>, J. Phys. Soc. Jpn. 査読有, Vol. 79 (2010) 053704.
- H. Chudo, H. Sakai, Y. Tokunaga, S. Kambe, D. Aoki, Y. Homma, Y. Shiokawa, Y. Haga, S. Ikeda, T. D. Matsuda, Y. Ōnuki, and H. Yasuoka, <sup>27</sup>Al NMR studies of NpPd<sub>5</sub>Al<sub>2</sub>, Physica B, 査読有, 404 (2009) 3216.
- M. Matsumura, Y. Kawamura, S. Edamoto, T. Takesaka, H. Kato, T. Nishioka, Y. Tokunaga, S. Kambe and H. Yasuoka, Novel phase transition in CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> probed by <sup>27</sup>Al-NQR/NMR, J. Phys. Soc. Jpn. 査読有, 78 (2009) 123713.
- H. Chudo, H. Sakai, Y. Tokunaga, S.

Kambe, D. Aoki, Y. Homma, Y. Shiokawa, Y. Haga, S. Ikeda, T.D. Matsuda, Y. Onuki and H. Yasuoka, <sup>27</sup>Al NMR Evidence for the Strong-Coupling d-Wave Superconductivity in NpPd<sub>5</sub>Al<sub>2</sub>, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, 77 (2008) 083702-1-4  
Y. Tokunaga, D. Aoki, Y. Homma, H. Sakai, H. Chudo, S. Kambe, T.D. Matsuda, S. Ikeda, E. Yamamoto, A. Nakamura, Y. Haga, Y. Shiokawa, Y. Onuki and H. Yasuoka), <sup>31</sup>P-NMR Study of the Neptunium-Based Filled Skutterudite NpFe<sub>4</sub>P<sub>12</sub>, J. Phys. Soc. Jpn. 査読有, 77 Suppl. A (2008) 211-213  
H. Yasuoka, Perspective of Research on Transuranium Compounds, Online-News and Comments, 査読有, Vo.11, 2007  
R.E. Walstedt, Y. Tokunga, H. Kato, H. Sakai, T. Fujimoto, S. Kambe and H. Yasuoka, NMR study of actinide compounds, The NMR of actinide Nuclei, J. Phys. Soc. Jpn. (2006) 査読有, Suppl. 77 - 81  
Y. Tokunaga, R.E. Walstedt, Y. Homma, D. Aoki, S. Kambe, H. Sakai, T. Fujimoto, S. Ikeda, E. Yamamoto, A. Nakamura, Y. Shiokawa and H. Yasuoka, 17O NMR Spin-Lattice Relaxation in NpO<sub>2</sub>: Field Dependent Cross Relaxation Process Driven by <sup>237</sup>Np Spins, J. Phys. Chem. Sol., 査読有, 68 (2007) 2016-2019  
Y. Tokunaga, H. Sakai, T. Fujimoto, S. Kambe, R.E. Walstedt, K. Ikushima, H. Yasuoka, D. Aoki, Y. Homma, Y. Haga, T.D. Matsuda, S. Ikeda, E. Yamamoto, A. Nakamura, Y. Shiokawa, K. Nakajima, Y. Arai and Y. Onuki, NMR Studies of Actinide Dioxides, J. Alloys Compds., 査読有, 444-445 (2007) 241  
H. Sakai, S. Kambe, Y. Tokunaga, T. Fujimoto, R.E. Walstedt, H. Yasuoka, D. Aoki, Y. Homma, E. Yamamoto, A. Nakamura, Y. Shiokawa and Y. Onuki, Anisotropic Spin Fluctuations and Anomalies of Nuclear Quadrupole Interactions in the Itinerant Antiferromagnet NpCoGa<sub>5</sub>: <sup>59</sup>Co NMR and <sup>69,71</sup>Ga NMR/NQR Studies, Phys. Rev. B **76** (2007) 024410

[学会発表](計5件)

神戸振作、安岡弘志 他、USn<sub>3</sub>のスピンスピン緩和、日本物理学会、2008年9月21日

酒井宏典、安岡弘志 他、反強磁性体CePd<sub>5</sub>Al<sub>2</sub>の核磁気共鳴法による研究、日本物理学会、2008年9月22日  
神戸振作、安岡弘志 他、CeIrIn<sub>5</sub>のIn-NMR、日本物理学会、2008年9月27日  
中堂博之、安岡弘志、他、新規超伝導体NpPd<sub>5</sub>Al<sub>2</sub>のAl-NMRによる研究 II、日本物理学会、2008年3月26日  
山本悦嗣、芳賀義範 他、URhの結晶育成と結晶構造、2008年3月23日

[図書](計1件)

安岡弘志、プルトニウム-魅惑多き元素と化合物、岩波書店、科学 2010年2月号、164-169

6. 研究組織

(1) 研究代表者

安岡弘志 (YASUOKA HIROSHI)

日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究員

研究者番号: 50026027

(2) 研究分担者

神戸振作 (KAMBE SHINSAKU)

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: 40224886

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

芳賀芳範 (HAGA YOSHINORI)

研究者番号: 903549

(3) 連携研究者