

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：11201

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2010～2012

課題番号：22654037

研究課題名（和文） 超音波で切り開く超ウラン化合物の物性

研究課題名（英文） Physical Properties of Actinoid compounds explored by ultrasonic measurements

研究代表者

吉澤 正人 (YOSHIZAWA MASAHIRO)

岩手大学・工学研究科・教授

研究者番号：30220619

研究成果の概要（和文）：URu₂Si₂ の弾性的性質をパルス磁場中の超音波測定で研究した。URu₂Si₂ の $C_E=(C_{11}-C_{12})/2$ 弾性定数は、低温に向かい、特徴的な弾性軟化を示すが、その磁場依存性では、36T 近傍の量子臨界点を超えると急速に消滅する。この量子臨界点近傍の振る舞いは、鉄系超伝導体 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂ の C₆₆ の振る舞いに酷似している。この事実は、鉄系超伝導体で明らかにされたように、URu₂Si₂ の C_E 弾性定数はこの系の隠れた秩序の形成に強く関与していることを示唆している。

研究成果の概要（英文）：We have investigated the elastic properties of URu₂Si₂ by using ultrasonic measurements in the pulsed magnetic field. The elastic constant $C_E=(C_{11}-C_{12})/2$ shows characteristic softening towards low temperatures as a function of temperature. The softening disappears beyond 36 T of the quantum critical point in this system. It is very similar to that of C₆₆ in iron-based superconductor Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂. This fact suggests strongly that C_E is correlated with the formation of hidden order.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成22年度	1,000,000	0	1,000,000
平成23年度	800,000	240,000	1,040,000
平成24年度	800,000	240,000	1,040,000
総計	2,600,000	480,000	3,080,000

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：ウラン化合物、超音波物性、低温、強磁場

1. 研究開始当初の背景

超ウラン化合物中の 5f 電子は、局在する場合の多い 4f 電子と遍歴する 3d 電子の中間の性質を示ことが知られている。平成 15 年度から 19 年度に行われた特定領域研究「充填スッテルダイト構造に創出する量子多電子状態」では、対称性の高いカゴの中にある多電子という観点から、局在性の高い 4f 電子が遍歴性を持つと、どのような物性が発現するかという観点から研究が行われてきた。その結果、普通でない重い電子超伝導体、八

極子や十六極子といった高ランクの多極子秩序等の興味深い物性が発見された。超ウラン化合物はまさに、遍歴と局在の織りなす物性の宝庫である。しかし、実験的な制約から超ウラン化合物の超音波測定は皆無に等しい状況であった。

物質は低温、強磁場、高圧などの極限環境で本性を発現することが知られている。研究代表者は、超音波測定により固体の物性研究を行ってきた。極限環境下での実験を行えば、物性の宝庫であるウラン化合物や超ウラン化

化合物の未知の物性が見つかるのではないかと期待して、本研究に着手した。

2. 研究の目的

本研究では、ウラン化合物と超ウラン化合物を研究対象に設定したが、2011年に発生した東日本大震災の影響で、実験施設として想定していた東北大学金属材料研究所量子エネルギー材料科学国際研究センター（茨城県大洗）の施設が使用できなくなり、ウラン化合物、特に、 URu_2Si_2 に絞って行うことにした。この物質は、その特異な物性が発見されてから四半世紀以上の年月が経つにもかかわらず、どのような秩序が発現しているのか不明であり、世界中の物理学者が興味を抱いている物質でもある。近年、さまざまな理論研究や実験研究によって、解決の糸口が提案されている。本研究の目的である、多極子物理の観点では、 URu_2Si_2 には32極子秩序が実現されているという提案もある。

鉄系超伝導体122系 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ が Co のドーピングによって量子臨界点 (QCP) が発現するのに対し、 URu_2Si_2 は約 36T の強磁場で QCP が発現することが知られている。本研究では、超音波測定により、鉄系超伝導体の物性と URu_2Si_2 のパルス磁場中の弾性的性質を明らかにし、量子臨界点近傍の両者を比較することにより、 URu_2Si_2 のキーワードとなる物理量の抽出と、両者の比較から、 URu_2Si_2 の未解明な物性を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、ウランというハンドリングが特殊な物質へのアプローチと、パルス磁場下での超音波測定というこれもあまり例のない測定に対するという2つの実験的手法開発と、鉄系超伝導体の物性解明、 URu_2Si_2 の物性解明の3本柱で研究を行った。

(1) ウラン化合物、超ウラン化合物の超音波測定とパルス磁場中の超音波測定

盛岡から移設した超音波測定装置を使い、東北大学金属材料研究所量子エネルギー材料科学国際研究センター（茨城県大洗）のアクチノイド棟に設置されているスクイド磁化測定装置で動作する試料ホルダーを含む測定システムの開発を行った。具体的には、試料ホルダーの作製と、光リソグラフィーを用いた小型で100MHz領域の測定に耐える専用の電気音響変換素子の開発、専用の測定ソフトウェアの開発を行なった。これらを用いて、充填スクッテルダイト化合物 $\text{SmRu}_4\text{P}_{12}$ のパルス磁場中の超音波測定と、鉄系超伝導体 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ と $\text{Fe}_{1.03}(\text{Te}_{0.8}\text{Se}_{0.2})$ の弾性定数測定を行った。 $\text{SmRu}_4\text{P}_{12}$ の研究では、パルス磁

場中で音速と超音波吸収係数の磁場依存性が制度良く測定できることを確認した。

(2) 鉄系超伝導体の量子臨界現象

鉄系超伝導体 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ に関して、Co 濃度が、0%、3.7%、6.0%、8.4%、9.8%、11.6%、16.1%、24.5%の大型単結晶試料の C_{66} 弾性定数の温度依存性を 300K から 5K の範囲で詳しく測定した。弾性定数は、ヤーン・テラーの表式で解析を行い、系を特徴づけるヤーン・テラー・エネルギーは電子格子相互作用定数などを求めた。

(3) パルス磁場超音波測定で探る URu_2Si_2 の隠れた秩序と量子臨界現象

東大物性研究所国際超強磁場科学施設において 55 T までのパルス磁場中の超音波測定を行い、弾性定数の磁場依存性とそれを基にした弾性定数の温度依存性、そして、それらを統合した弾性定数の三次元マップの作成を行った。

4. 研究成果

(1) 鉄系超伝導体の量子臨界現象

図1は $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ の C_{66} 弾性定数の温度依存性である。 C_{66} は非常に大きな弾性異常が存在する。特に、Co 濃度 7% のアンダードーピング領域では、室温に比べて、90%にも及ぶ弾性の軟化現象が観測された。7%近傍に存在すると考えられる量子臨界点を越えて、オーバードーピング領域に入ると、弾性の軟化量は次第に小さくなることが分かった。

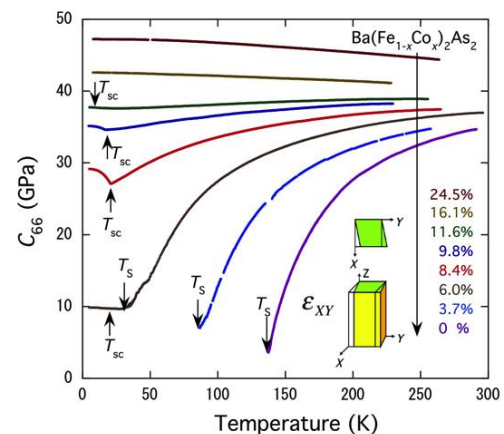


図1 $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ の C_{66} 弾性定数の温度依存性

弾性の軟化量をコンプライアンス S_{66} ($=1/C_{66}$) で表した量の温度依存性を図2に示す。 S_{66} の最大値は、超伝導臨界温度 T_{sc} と相関する。このことから、この物質の C_{66} 弾性異常と超伝導発現機構との間には密接な関係が存在することが明らかとなっている。この研究がきっかけとなり、超伝導の新しい発現機構として、軌道揺らぎの役割が現在クローズアップされている。

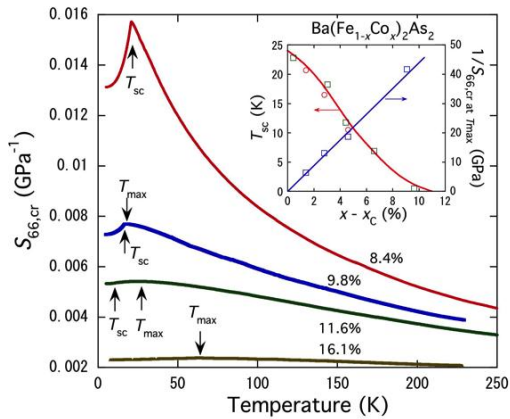


図2 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂の弾性コンプライアンス S_{66} の温度依存性

(2)パルス磁場超音波測定で探る URu₂Si₂の隠れた秩序と量子臨界現象

URu₂Si₂の弾性定数の中で、 $C_E=(C_{11}-C_{12})/2$ は、高温から弾性軟化することが知られていた。弾性異常の量は約0.7%と小さいが、高温からの軟化の振る舞いは鉄系超伝導体の C_{66} の異常と似ている。この C_E の異常の起源については諸説あり、未解明であるが、本研究では、鉄系超伝導体との比較という観点から、この C_E 弾性定数の量子臨界点近傍の振る舞いを詳細に調べた。

図3は C_E の磁場依存性である。驚くべき事に、約36T付近を越えると、 C_E の異常は急速に消滅することが分かった。図4は、磁場依存性から作成された C_E の温度依存性である。図5は磁場と温度を関数とした C_E の三次元表示である。

この量子臨界点を越えると弾性異常が急速に消滅する振る舞いは、鉄系超伝導体 Ba(Fe_{1-x}Co_x)₂As₂の C_{66} の振る舞いに酷似している。詳細な比較によると、ヤーン・テラー温度は、鉄系超伝導体では約50Kであるのに対し、URu₂Si₂では1K以下。ヤーン・テラー解析から求められたサイト間の相互作用は、鉄系では強制的、URu₂Si₂では反強制的である。また、異常の大きさは鉄系の方が圧倒的に大きい。これらのことを勘案すると、URu₂Si₂のこの弾性異常の原因は、軌道や四極子という格

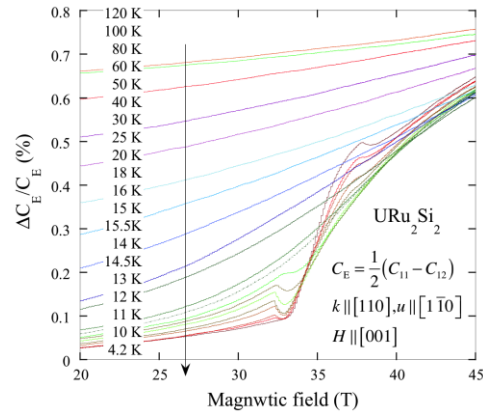


図3 URu₂Si₂の C_E 弾性定数の磁場依存性

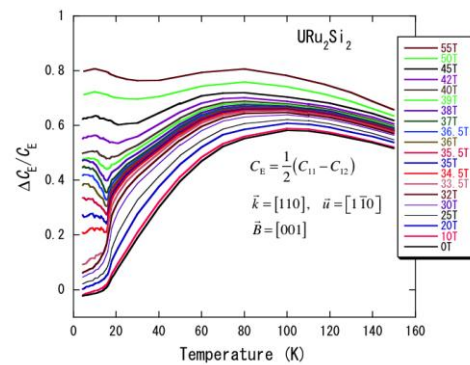


図4 URu₂Si₂の C_E 弾性定数の温度依存性

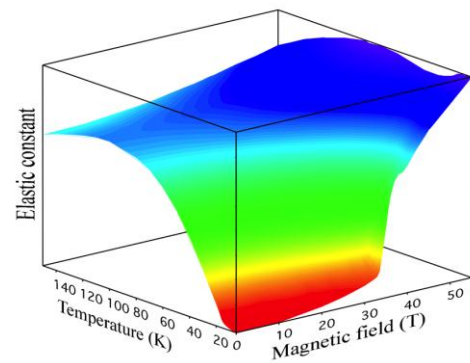


図5 URu₂Si₂の C_E 弾性定数の磁場と温度を関数とした三次元表示

子との結合が強いものではなく、多極子を含む磁気的によると考えられる。この考察のうち1つの裏付けは、隠れた秩序転移温度 T_{H0} における弾性異常が、いわゆる磁歪型である

ことがこの研究で示された。このことから、 T_{HO} 以下で出現する秩序は、 C_E 弾性定数の歪である ε_{xx} - ε_{yy} と磁歪型に結合し、時間反転対称性を持たないことが予想される。

以上の事実と解析から、この事実は、鉄系超伝導体と同様に、 URu_2Si_2 でも C_E 弾性定数はこの系の隠れた秩序の形成に強く関与しており、 T_{HO} 以下の隠れた秩序相において、 $(C_{11}-C_{12})/2$ に対応する歪みによる斜方晶変形歪を伴う反強磁気多極子秩序が実現していることを強く示唆している。

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7件)

- ① M. Yoshizawa, H. Mitamura, F. Shichinomiya, S. Fukuda, Y. Nakanishi, H. Sugawara, T. Sakakibara, and K. Kindo, High-Field Phase Diagram of $SmRu_4P_{12}$ Determined by Ultrasonic Measurements in Pulsed Magnetic Field up to 55 T, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 82, 033602(5頁) (2013) [査読有]
DOI: 10.7566/JPSJ.82.033602
- ② A. Ismayil, R. Kamiya, R. Onodera, D. Kimura, T. Chiba, Y. Nakanishi, K. Kihou, M. Nakajima, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, S. Uchida, and M. Yoshizawa, Elastic Anomalies Associated with superconducting phase transitions in Iron-based Superconductor $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$, *J. Phys.: Conf. Ser.*, 400, 022037(4頁) (2012) [査読有]
DOI: 10.1088/1742-6596/400/2/022037
- ③ 吉澤正人, 柔らかくなるほど高くなる超伝導体転移温度 —鉄系超伝導体における超伝導と構造揺らぎの不思議な関係—, *固体物理*, 47, 309-319 (2012) [査読無]
URL: <http://www.agne.co.jp/kotaibutsuri/kota1047.htm#no557>
- ④ M. Yoshizawa, and S. Simayi, Anomalous elastic behavior and its correlation with superconductivity in iron-based superconductor $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$, *Modern Phys. Lett. B*, 26, 1230011(23頁) (2012) [レビュー, 査読無]
DOI: 10.1142/S0217984912300116
- ⑤ M. Yoshizawa, S. Simayi, K. Sakano, Y. Nakanishi, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, M. Nakajima, S. Uchida, Large elastic anomalies and strong electron-lattice coupling in iron-based superconductor $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$, *Solid State Commun.*, 152, 680-687 (2012) [査読有]

DOI: 10.1016/j.ssc.2011.12.006

- ⑥ M. Yoshizawa, D. Kimura, T. Chiba, S. Simayi, Y. Nakanishi, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, M. Nakajima, S. Uchida, Structural Quantum Criticality and Superconductivity in Iron-Based Superconductor $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 81, 024604(6 Pages) (2012)
DOI: 10.1143/JPSJ.81.024604 [査読有]
- ⑦ T. K. Fujita, M. Yoshizawa, R. Kamiya, T. Sakakibara, K. Kindo, F. Iga, I. Lshii and T. Suzuki, Elastic Anomalies of TbB_4 in Pulsed High Magnetic Fields, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 80, SA084 (3 Pages) (2011) [査読有]
DOI: 10.1143/JPSJS.80SA.SA084

[学会発表] (計14件)

- ① 吉澤正人, シヤラムジャン・スマイ, 坂野幸平, 中西良樹, 三田村裕幸, 荒木幸治, 榊原敏郎, 金道浩一, 本間佳哉, 山本悦嗣, 松田琢磨, 芳賀芳範, 大貫惇睦, URu_2Si_2 のパルス磁場中の超音波測定, 日本物理学会第68回年次大会, 2013年3月26日, 広島大学 (広島県)
- ② 吉澤正人, 竹澤 遼, 坂野幸平, シヤラムジャン・スマイ, 中村光輝, 中西良樹, 木方邦宏, 李 哲虎, 伊豫 彰, 永崎 洋, 中島正道, 内田 慎一, 鉄系超伝導体 $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ の比熱とグリュンナイゼン定数, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012年9月20日, 横浜国立大学 (神奈川県)
- ③ M. Yoshizawa, Anomalous elastic properties in the iron-based superconductors $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$ and $Fe(Sel-xTex)$, 2012 Materials & Mechanisms of Superconductivity Conference (M²S 2012) (招待講演), 2012年8月2日, ワシントン DC (米国)
- ④ S. Simayi, M. Yoshizawa, K. Sakano, Y. Nakanishi, R. Settai, Y. Onuki, Large elastic softening in heavy fermion superconductor $Rh_{17}S_{15}$, International conference on heavy electrons and novel quantum phases, 2012年7月7日, 慶州 (韓国)
- ⑤ 吉澤正人, 鉄系超伝導体の弾性的性質, 日本物理学会第67回年次大会, 2012年3月26日, 関西学院大学 26pYD-7 [シンポジウム講演] (大阪府)
- ⑥ Abdusalam Ismayil, 坂野幸平, 小関玄, 小関実, 中西良樹, 大貫惇睦, 撰待力生, 吉澤正人, Large elastic softening in heavy fermion superconductor $Rh_{17}S_{15}$, 本物理学会第67回年次大会, 2012年3月25日, 関西学院大学 25aYH-4 (大阪府)

- ⑦ 坂野幸平, 中西良樹, 吉澤正人, 小鹿優太, 川田桂輔, 渡辺孝夫, 超音波測定における鉄系超伝導体 $\text{Fe}_{1.03}\text{Te}_{0.8}\text{Se}_{0.2}$ の弾性特性, 日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 25 日, 関西学院大学 25aPS-84 (大阪府)
- ⑧ M. Yoshizawa, Elastic properties of iron-based superconductor, 24th International Symposium on Superconductivity (ISS2012) [招待講演], 2011 年 10 月 25 日, Tokyo (東京都)
- ⑨ M. Yoshizawa, D. Kimura, T. Chiba, A. Ismayil, Y. Nakanishi, K. Kihou, M. Nakajima, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, and S. Uchida, Quantum Criticality and Superconductivity in $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ Investigated by Ultrasonic Measurements, 26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26) [招待講演], 2011 年 8 月 16 日, Beijing International Convention Center (BICC) (中国)
- ⑩ D. Kimura, T. Chiba, R. Kamiya, A. Ismayil, Y. Nakanishi, M. Nakamura, M. Yoshizawa, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, M. Nakajima, S. Uchida, Ultrasonic measurements of iron pnictide superconductor $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ single crystals, International Workshop on Novel Superconductors and Super Materials 2011 (NS2011), 2011 年 3 月 7 日, 日本科学未来館 (東京都)
- ⑪ M. Yoshizawa, D. kimura, T. Chiba, R. Kamiya, A. Ismayil, R. Onodera, Y. Nakanishi, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, M. Nakajima, S. Uchida, Large elastic softening and orbital order in iron-based superconductor $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, International Workshop on Novel Superconductors and Super Materials 2011 (NS2011)(招待講演), 2011 年 3 月 6 日, 日本科学未来館 (東京都)
- ⑫ 吉澤正人、七宮史崇、三田村裕幸、中西良樹、菅原仁、榊原俊郎、金道浩一、佐藤英行, $\text{SmRu}_4\text{P}_{12}$ のパルス磁場中の弾性定数測定, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010 年 9 月 23 日, 大阪府立大学(大阪府)
- ⑬ 七宮史崇、吉澤正人、三田村裕幸、中西良樹、小坂昌史、榊原俊郎、金道浩一, YbAl_3C_3 のパルス磁場中超音波測定, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010 年 9 月 23 日, 大阪府立大学 (大阪府)
- ⑭ T. K. Fujita, M. Yoshizawa, R. Kamiya, H. Mitamura, T. Sakakibara, K. Kinodo and F. Iga, Elastic anomalies of TbB_4 in pulsed high magnetic fields, International Conference on Heavy Electrons 2010, 2010 年 9 月 19 日, Minami-Osawa Campus,

Tokyo Metropolitan University (東京都)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉澤 正人 (YOSHIZAWA MASAHIITO)
岩手大学・工学研究科・教授
研究者番号：30220619

(2) 連携研究者

芳賀 芳範 (HAGA YOSHINORI)
(独) 日本原子力研究開発機構・
先端基礎研究センター・主任研究員
研究者番号：90354901

本間 佳哉 (HONMA YOSHIYA)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号：00260448