

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：11201

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540354

研究課題名(和文)超音波共鳴法で切り拓く高感度微小試料弾性特性研究

研究課題名(英文)Ultrasound studies for a tiny sample probed by the high-resolved measurement method

研究代表者

中西 良樹(Nakanishi, Yoshiki)

岩手大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：70322964

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：これまで超音波測定を実施する上で大きな制約となっていた結晶の試料サイズに関して、測定上の改善を有意に行い、より小さいサイズの試料(0.5 mm以下級の微小サイズ)に関しても従来通り高感度な測定を可能にした。具体的には、超音波信号を試料に入射する際、高周波電気信号を超音波信号に変換する圧電素子を、変換効率の損失を出来るだけ抑えた状態でより小さいサイズに微細加工し、更に厚みを薄くすることで200 MHz以上の周波数を容易に発生させることが可能となり、結晶中での超音波信号の直進性を増大させた点にある。この装置を用いて、大型単結晶育成が困難な興味深い物質について研究を行った。

研究成果の概要(英文)：We have developed equipment for measuring ultrasound velocity and attenuation traveling in a solid for a case using a very tiny sample. It is important when one must do the measurement with a very small sample size less than 0.5 mm thick. What the features are that special transducers are designed for the small samples and they can generate waves ranging in frequency above 200 MHz. The newly developed system helps us improve the difficulties such as measurements with a small size sample, and ensures high performance in our measurements. By using the new equipment, the sound velocity and attenuation were measured in some systems such as PrTr2Al20 (Tr = V, Ti), SmNiC2 and so on, which the sample size is too small to perform the measurement in a conventional way.

研究分野：物性物理

 キーワード：超音波測定 多重極限環境 弾性特性 混合価数状態 電荷密度波 ヤーンテラー効果 非クラマース
二重項 強相関係伝導物質

1. 研究開始当初の背景

物質がもつ基本性質の中に弾性特性がある。この弾性特性は電子系と格子系の相関（電子格子相互作用）により決定される。固体中の電子状態を明らかにする実験手法の中で、弾性特性の側面からアプローチする有力な方法として超音波測定が深く認識されている。しかしながら、これまで幅広く用いられてきた超音波測定手段である位相比較法では、大型単結晶試料がどうしても必要であり、大型単結晶の育成が比較的困難である希土類化合物では、この点が大きな障害として立ちはだかっていた。新物質が開発され、基礎物性で興味深い特性が発見されても、育成された単結晶試料のサイズで大きな制約を受ける状況であった。この問題点を改善するために電気信号を超音波信号に変換する圧電素子の小型化、並びに超音波共鳴法を用いた超音波測定の立ち上げ並びにいくつかの興味深い系について実験を実施した。

2. 研究の目的

固体の電子物性を決定づける基本自由度として、電子はスピン、電荷、軌道自由度をもっている。ここ数年、これらに加えて原子の価数自由度の役割が注目されている。この価数自由度に由来する新奇量子現象の報告により、関心もたれている。こうした研究を推進する際、スピン自由度が起源となる磁気モーメントの存在は、電荷、軌道自由度の解明に大きな足枷となる場合が多い。**磁気モーメントに殆ど不感で、電荷の空間分布に著しく敏感な実験手法は大変少ない。その代表格が超音波実験である。**しかしながら、詳細かつ信頼の出来る超音波実験を行うには大型単結晶試料が必要不可欠であり、中性子散乱実験と同様、試料サイズの制約が超音波研究の障害になっていた。微小サイズの測定試料でも超音波測定が行える装置開発を本研究の主目的として設定する。

3. 研究の方法

以下の流れで本研究を実施し、微小試料を用いた超音波共鳴法を実現する。

1) 微小試料の弾性特性研究を行うために、超音波共鳴法（RUS）の装置を立ち上げる。特に微小試料測定用圧電素子（transducer）加工、試料ホルダー開発に工夫を凝らす。

2) 前述した試料について、装置の動作確認も含めた測定を実施する。

3) 一般に、ここで掲げた試料をはじめ強相関電子系は伝導電子に強く遮蔽された磁気モーメント、あるいは時間的、空間的に揺らいだ極めて小さい磁気多極子モーメント

を有している。こうした小さい磁気モーメントの微視的情報を詳細に得るには強い外部磁場が必要になる。1) で建設した装置を既存の40 T級パルス磁石と組み合わせ、強磁場下での超音波測定を微小試料について行う。

4. 研究成果

微小空間における超音波測定を高精度に行うため、初年度は主として装置の開発とその試運転を行った。本装置を用いて得られた結果について紹介する。微小試料を用いた超音波測定を可能にする重要な点の一つに圧電素子（トランスデューサー）の超小型化が挙げられる。本研究室で自作した超小型かつ薄型の圧電素子を用いることで超音波測定周波数を著しく向上させ、試料中を伝搬する超音波の有効波数をより増加させS/N比の向上を図った。独自の工夫で圧電素子の微細加工技術を向上させたことに成功要因がある。

この装置を用いて、これまで大型単結晶の育成が困難であった系について実験を行なった。数例を紹介すると、希土類Pr、Smイオンを基礎にした籠状物質、電荷密度波転移と磁気秩序が共存するSmNiC₂およびEuX₄、SrX₄(X=Al, Ga)について超音波測定を行なった。前者は、従来のスピン自由度とは異なり軌道自由度（非クラマース二重項）が主役となる量子臨界点の出現が期待される物質群である。実際、PrTr₂Al₂₀ (Tr=V, Ti) では低温で出現する四重極転移とその特性を明らかにし、非クラマース二重項が伝導電子に強く遮蔽された状況が実現していることを、弾性定数の温度変化から明らかにした。また、SmV₂Al₂₀では、低温で逐次相転移を発見し、₈四重項を基底状態にした低温物性が実現していることを明らかにした。更に、この逐次転移の高温側の転移が多極子転移である可能性を指摘した。今後、μSRをはじめ微視的な実験手段で、転移点前後における自発磁化の有無を検証することが重要になる。

SmNiC₂は電荷密度波(CDW)と強磁性が共存する興味深い系であり、両者の秩序変数が密接に相関した極めて稀な物質である。この系のCDW転移温度近傍と強磁性転移近傍の弾性定数を精緻に測定し、縦波および横波に現れる弾性異常の相違を発見した。この結果から横波にのみ、両相転移の異常が大きく観測されることが明らかになり、横波格子歪みを間接あるいは直接媒介とする

相転移であることが分かった。得られた弾性異常から秩序変数と格子歪みとの結合定数あるいは秩序変数同士の結合定数を微視的に見積もり、この物質群のデータベース作成にも寄与した。この結果は一連の物質群である斜方晶 $RNiC_2$ (R: 希土類)の電子状態、低励起状態を明らかにする上で重要な示唆を与えることとなる。特にこの物質群で唯一超伝導転移を示す $LaNiC_2$ について、その超伝導発現機構と電荷密度波との相関関係を明らかにする上で弾性定数から得られる微視的情報が活用されることとなる。

本研究の目的には設定していなかったが、研究を進めていく上で新たな課題と発見があった。微小試料を用いて、一軸圧力の超音波測定を実現したことである。行った物質は鉄系超伝導物質である。この系は一軸異方性が電子物性、構造特性で極めて大きいことが明らかにされており、外部から一軸圧力を印加することで電子物性に大きな変化をもたらされると期待されている。この状況は静水圧と一軸圧の圧力応答が大きく異なることから実験的に実証されている。本研究で開発した装置を用いて一軸圧力下の $BaFe_2As_2$ の構造相転移近傍における弾性定数を精緻に測定し、一軸圧力を印加することにより転移温度が著しく上昇し、同時に弾性異常が著しく抑制されることを発見した。

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8件)

S. Simayi, K. Sakano, H. Takezawa, M. nakamura, Y. Nakanishi, K. Kihou, M. Nakajima, C. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, S. uchida, M. Yoshizawa
Structural Quantum Criticality and Superconductivity in Iron-Based Superconductor $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$
J. Phys. Soc. Jpn. **82** (2014) 114604 (査読有)

D. Tamura, Y. Nakanishi, S. Kikuchi, T. Ito, M. Nakamura, M. Yoshizawa, S. Shimomura
Elastic property of Ternary Carbide $SmNiC_2$ by ultrasound measurements

J. Phys. Soc. Jpn. Conf. Proc. **3** (2014) 11063

Yoshiki Nakanishi, Gen Koseki, Dai Tamura,
Kohei, Kurita, Takeshi Saito, Minoru, Koseki,
Mitsuteru Nakamura, Masahito Yoshizawa, Yuya
Koyota, Chihiro Sekine and Takehiko Yagi
Ultrasound measurements on the skutterudite compound $SmOs_4P_{12}$
J. KOREAN PHYS. SOC. **60** (2013) 0001 (査読有)

Masahito Yoshizawa, Hiroyuki Mitamura, Fumitaka Shichinomiya, Satoshi Fukuda, Yoshiki Nakanishi, Hitoshi Sugawara, Toshiro Sakakibara, and Koichi 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** (2013) 033602 (査読有)

Masahito Yoshizawa, Daichi Kimura, Taiji Chiba,
Shalamujiang Simayi, Yoshiki Nakanishi, Kunihiro
Kihou, Chul-Ho Lee, Akira Iyo, Hiroshi Eisaki,
Masamichi Nakajima, and Shin-ichi
Structural Quantum Criticality and Superconductivity in Iron-Based Superconductor $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$
J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 024604 (査読有)

他

[学会発表](計18件)

中西良樹、吉澤正人、酒井明人、中辻知、S. Erfanifam、S. Yasin、S. Zherlitsyn、J. Wosnitza
PrV2Al20に出現する高磁場秩序相の弾性特性
2014年09月07日～2014年09月10日
中部大学 春日井キャンパス(愛知県)
日本物理学会 2014年秋季大会

中西良樹、田村大、菊池壮之介、伊藤翼、
中村光
輝、吉澤正人、下村晋強磁性希土類化合物
SmNiC₂の電荷密度波と弾性特性
2013年03月26日～2013年03月29日
広島大学 東広島キャンパス（広島県）
日本物理学会第68回年次大会

中西良樹、小関玄、田村大、栗田講平、
齋藤武
志、中村光輝、吉澤正人、吉田誠、落合
明圧力下超音波測定によるCeSbの弾性特性
の研究
2012年11月07日～2012年11月09日
大阪大学 大阪大学会館（大阪府）
第53回高圧討論会

中西良樹、田村大、中村光輝、吉澤正人、
浜野
卓、喜舎場英吾、光田暁弘、和田裕文
EuRh₂Si₂の転移点近傍における特異な弾性
異常
2012年09月18日～2012年09月21日
横浜国立大学 常盤台キャンパス（神奈川県）
日本物理学会2012年秋期大会

Yoshiki Nakanishi, Gen Koseki, Dai
Tamura,
Kohei, Kurita, Takeshi Saito, Minoru,
Koseki,
Mitsuteru Nakamura, Masahito Yoshizawa,
Yuya
Koyota, Chihiro Sekine and Takehiko Yagi
Ultrasound measurements on the
skutterudite compound SmOs₄P₁₂
2012年07月08日～2012年07月13日
Bexco, Busan, Korea（韓国）
The 19th International Conference on
magnetism with Strongly Correlated
Electron Systems

Y. Nakanishi, G. Koseki, K. Kurita, M.
Koseki, T.
Saito, D. Tamura, M. Nakamura, M.
Yoshizawa,
M. Yoshida, A. Ochiai
High pressure ultrasonic investigation
of single crystal CeSb under magnetic
fields
2012年07月03日～2012年07月06日

Wuhan, China（中国）
The 10th International Conference on
Research in High Magnetic Fields

他

〔図書〕（計0件）

〔その他〕
ホームページ等
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中西 良樹 (NAKANISHI, Yoshiki)
岩手大学・大学院工学研究科・准教授
研究者番号：70322964

(2) 研究分担者
なし

(3) 連携研究者
なし