

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 19 日現在

機関番号：11201

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25400350

研究課題名(和文)パルス強磁場中の超音波測定による強相関電子系の秩序状態の研究

研究課題名(英文) Study on the ordering states of highly correlated electron systems by ultrasonic measurements in pulsed magnetic field

研究代表者

吉澤 正人 (Yoshizawa, Masahito)

岩手大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30220619

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>とURhGeの不思議な相転移を解明するために、パルス磁場中の超音波測定を行った。我々は、これらの物質において鉄系超伝導体と同様な構造的量子臨界現象が現れる事を発見した。ヤーンテラー温度は、鉄系物質の50Kに対し、ウラン化合物では1K程度と小さく、量子臨界点が磁性起源であることを強く示唆する。URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>では、C66においても高磁場での弾性軟化現象を発見した。このことは、この隠れた秩序の原因として提案されている候補の中で、Eu対称性の関与を示唆する。これらの量子臨界点近傍の弾性的性質の振る舞いは、強相関伝導系の量子臨界現象に共通の性質であるように思われる。

研究成果の概要(英文)：We have investigated exotic ordering of URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> and URhGe by ultrasonic measurements in pulsed magnetic field. We focus our attention on the aspect of quantum criticality appearing in magnetic field. URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> shows very similar behavior of structural quantum criticality in  $CE=(C_{11}-C_{12})/2$ , which was found in iron-based superconductor. Similar structural quantum criticality was also found in URhGe. However, Jahn-Teller energy EJT of Uranium compounds is order of 1 K, while that of the iron-based superconductor is about 50K. This suggests strongly a magnetic origin of quantum critical point in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>. In addition to CE, URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> shows remarkable elastic softening in C66 in high magnetic fields, which suggests different type of orthorhombic distortion below the hidden order temperature TH0, and participation of Eu symmetry among various proposed candidates. Such behavior would be a common feature near quantum critical point in strongly correlated electron systems.

研究分野：物性物理学

キーワード：超音波測定 強相関伝導系 パルス磁場 ウラン化合物 低温

## 1. 研究開始当初の背景

(1) 固体を伝搬する超音波によって測定される弾性定数と吸収係数は、固体内のさまざまな情報、特に、電子系や格子の電荷揺らぎや四重極揺らぎや秩序に関する情報を与えることがこれまでの多くの実験によって明らかにされている。本研究代表者は、これまでに、世界初の測定例でもある有機超伝導体  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu(NCS)<sub>2</sub> や  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Br (MY, Solid State commun. **89** (1995) 701) や、特異な磁束のピン止めが話題となった金属系超伝導体 CeRu<sub>2</sub> (MY, JPSJ **66** (1997) 2355) の弾性定数の測定を通じて、超伝導転移近傍での弾性異常と超伝導機構との関わりや磁束状態について研究を行ってきた。近年は、Ba(Fe,Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> 単結晶の弾性定数を測定し、超伝導相と隣接する磁気・構造相転移温度に向かう横波弾性定数  $C_{66}$  の非常に大きな軟化現象を観測し (MY, JPSJ **81** (2012) 024604, 固体物理 **47** (2012) 309)、鉄系物質の超伝導発現機構に対する鉄の 3d 電子軌道状態、特に、軌道の自由度との関わりが着目されるきっかけを作った。弾性定数や超音波吸収係数のプローブを使えば、固体のさまざまな秩序状態の謎を解明できる事が期待された。

(2) URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の隠れた秩序は、発見から 30 年を越えた今でも大きな謎として物性研究者の前に立ちはだかっている。この隠れた秩序の中に超伝導相が潜んでおり、超伝導の発現機構との関係も良く分かっていない。近年、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の隠れた秩序に関してさまざまな理論的提言が行われていた。実験面においても、高品質の単結晶が供給されてきており、物性の解明に向けての基盤が整いつつあり、新しいツールでの物性解明が期待されていた。新しいツールとして、超音波測定はこれまでも、さまざまな極限環境 (極低温・圧力下・磁場) と組み合わせ測定が行われて来たが、近年は、定常磁場に加えて、パルス磁場中の測定が可能となり、磁場中に発現する量子臨界現象の研究が可能となってきている。

## 2. 研究の目的

(1) 近年、量子臨界点近傍の超伝導が精力的に研究されて来ている。研究代表者の行って来た鉄系超伝導体 Ba(Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub> では、Co をドーブしない BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> では、140K に磁気・構造相転移を示し、それに伴って、 $C_{66}$  弾性定数の温度変化に大きな異常が出現する。Fe を Co に置換すると、磁気・構造相転移温度が低下し、超伝導が発現すると共に、 $x=0.070$  において量子臨界点 (QCP) が出現する。低  $x$  側のアンダードーブ側の  $C_{66}$  の大きな弾性異常は、QCP を越えると次第に消滅する。一方、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> では、約 36T の磁場下において QCP が出現する。量子臨界現象というキーワードで URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> を眺めると、鉄系超伝導体と URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> が共通の物理が見えて

くるのではないかと考えらえる。鍵となる弾性定数は鉄系超伝導体では  $C_{66}$ 、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> では  $C_E=(C_{11}-C_{12})/2$  である。両者を比較することにより、鉄系超伝導体で培われた研究手法を用いて、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の隠れた秩序 (HO) に関する知見を得ることが期待される。

(2) また、磁場中の量子臨界点は URhGe にも現れる。URhGe は  $T_{\text{Curie}}=10.5\text{K}$  に強磁性相転移を有し、リエントラント超伝導や、磁場をパラメータとして量子臨界点 (QCP) が出現するなど、興味深い物性を示すことが知られている。URhGe は斜方晶系に属し、 $T_{\text{Curie}}$  以下で  $c$  軸方向に強磁性が出現する。また、0.25K で超伝導の出現も報告されている。この物質は  $b$  軸方向に磁場をかけると  $H_k=12\text{T}$  で強磁性相は消失し、代わって、超伝導相が出現する。この系のゼロ磁場での電子比熱係数の値  $160\text{mJ/mol}\cdot\text{K}^2$  は磁場中で顕著に増強され、 $H_k$  でピークを形成する。この物質の弾性的性質に関する報告例はこれまでになかった。

(3) 本研究においては、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> と URhGe に焦点を当て、パルス磁場中の超音波測定により、これらの秩序に関する知見を得ることを目的とする。

## 3. 研究の方法

(1) 超音波測定は、東京大学物性研究所附属国際超強磁場科学研究施設のパルス磁場を用いて行った。パルス磁場は、パルス幅 34ms、最高磁場 55T である。超音波測定は自前で開発した装置と実験手法 ORPHEUS 法 (位相直交法) を用いて行った。URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> と URhGe の単結晶試料は日本原子力研究開発機構 (JAEA) 芳賀芳範氏のグループから提供された。URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 単結晶試料は、約 2mm 立方の大きさを持ち、RRR は 100 程度である。比熱で HO がはっきり見えている試料を用いた。URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 試料については、URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の独立した弾性モード  $C_{11}$ ,  $C_{33}$ ,  $C_{44}$ ,  $C_{66}$ ,  $C_E=(C_{11}-C_{12})/2$  の弾性定数と吸収係数の磁場依存性を、1.5K から 150K の温度範囲、55T までの磁場範囲で測定した。

(2) URhGe については、 $T_{\text{Curie}}$  において  $c$  軸方向の自発磁化が、 $b$  軸方向の磁場中では  $H_k$  においてその方向にスイッチするという性質に着目し、磁場方向  $H$  を  $b$  軸に、音波の伝搬方向  $k$  を  $a$  方向に固定して、音波の振動方向  $u$  を  $b$  方向と  $c$  方向にそれぞれ変えた  $C_{66}$  と  $C_{55}$  の測定を行った。 $C_{66}$  は  $H_k$  以下で強磁性磁気モーメントと音波が結合し、 $H_k$  以上で結合が切れるモード、 $C_{55}$  は逆に、 $H_k$  以下で磁気モーメントと音波が結合せず、 $H_k$  以上で結合するモードであり、URhGe の磁気モーメントの方向がスイッチする様子を捉える事ができると期待した。

#### 4. 研究成果

(1) Fig.1 は、 $C_E$  の温度依存性である。このデータは、磁場依存性データから作成した。 $C_E$  の異常は、磁場の印加に伴って次第に小さくなり、36T の QCP を越えると急速に消滅する。これは、鉄系超伝導体の場合と類似である。両者の違いは、Jahn-Teller 温度  $E_{JT}$  である。鉄系超伝導体の  $E_{JT}$  が約 50K であるのに対し、 $URu_2Si_2$  の  $E_{JT}$  は 1K 以下である。この違いは、前者は弾性異常が軌道の揺らぎに起因するのに対し、後者は磁性に起因していると推測される。また、矢印で示す極小点は QCP より磁場を高くすると次第に高温へ移行する。このような振る舞いも鉄系超伝導体と酷似である。

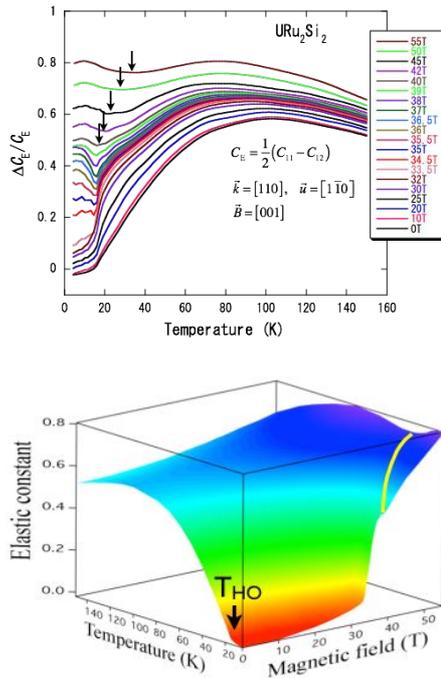


Fig.1 Temperature dependence and Three-dimensional plot of  $C_E$  of  $URu_2Si_2$  in selected magnetic field.

(2) Fig.2 は磁場依存性データから作成した  $C_{66}$  と  $C_{44}$  の 3 次元の等高線マップである。温度軸で眺めて見ると、両者共、ゼロ磁場では、温度の関数として単調に増加し、 $T_{HO}=17.5K$  でわずかな異常を示す。しかし、 $C_{66}$  は 55T の磁場下では、温度の低下と共に上昇した弾性定数は 40K を境に低温に向かってソフトニングに転じる。このような振る舞いは  $C_{44}$  には見られない  $C_{66}$  特有の現象である。また、 $T_{HO}$  での弾性異常は  $C_{44}$  の方が  $C_{66}$  より大きい。これらのことから、 $C_{44}$  を正常の振る舞いとして考えると、 $C_{66}$  には隠れた秩序の形成に関連する情報が含まれていると考えられる。詳しい解析を行った結果、 $C_{66}$  には  $C_E$  とは異なる QCP の特徴が現れていることが分かった。以上、 $URu_2Si_2$  のパルス磁場中の超音波測定から、36T の QCP 近傍において、 $(C_{11}-C_{12})/2$  に現れる鉄系超伝導体と

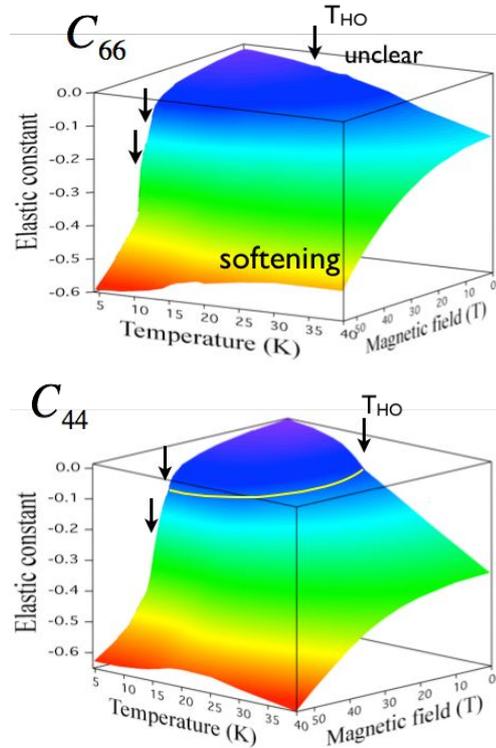


Fig.2 Three-dimensional plot of  $C_{66}$  and  $C_{44}$  as functions of temperature and magnetic field.

類似の QCP の振る舞いに加えて、 $C_{66}$  にも QCP の特徴が観測された。

(3) Fig.3 は  $C_{66}$  のデータから  $C_{44}$  を引いた値の温度依存性である。 $C_{44}$  をバックグラウンドとして考えた。この値は、 $T_{HO}$  以下で軟化する。このことを、相転移とそれをもたらす対称性の変化という観点で考えると、Eu 対称性が関与している可能性を強く示唆している。

(4) Fig.4 は一定磁場中での  $URhGe$  の  $C_{66}$  の温度依存性である。この図は、弾性定数の磁場依存性から温度依存性に変換した。音波と自発磁化が結合する ( $u \ c$ )  $C_{66}$  には顕著な弾性軟化現象が観測された。異常の大きさは  $URu_2Si_2$  で観測された  $C_E$  の異常と同程度であった。この  $C_{66}$  の異常の原因は明らかではないが、バンドに起因すると考えている。

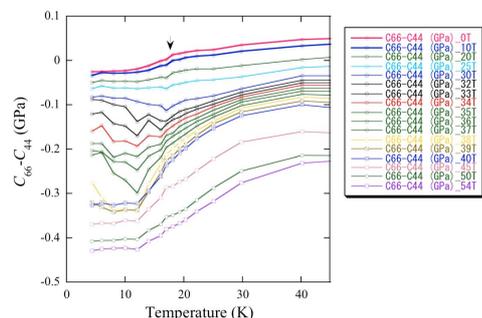


Fig.3 Temperature dependence of  $C_{66}-C_{44}$ .

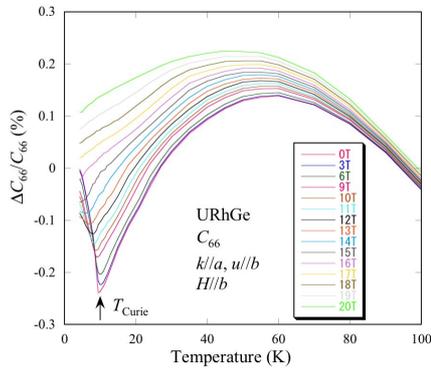


Fig.4 Temperature dependence of  $C_{66}$  of URhGe in selected magnetic field.

Jahn-Teller 解析によると、Jahn-Teller エネルギー  $E_{JT}$  は 0.35K~0.51K 程度で、これも  $URu_2Si_2$  の  $C_E$  のそれと同等である。一方、 $C_{55}$  には特に異常な振る舞いは観測されなかった。

(4)以上のように、本研究では、 $URu_2Si_2$  と URhGe のパルス磁場中の超音波測定を行い、両物質に QCP に特徴的な弾性異常を観測した。 $URu_2Si_2$  に関しては、ゼロ磁場中で現れる顕著な  $C_E$  弾性異常と隠れた秩序との関係はこれまで注目されなかった。この弾性モードには 17K の隠れた秩序転移温度で顕著な異常が観測されないで、隠れた秩序との関係は薄いと考えられてきた面もある。しかし、本研究では、 $C_E$  の弾性異常は磁性に起因することは示唆されただけでなく、 $C_{66}$  の弾性異常も同様に QCP 近傍特有の振る舞いを示すことが明らかとなった。この 2 つの実験事実は、 $T_{HO}$  以下で、 $C_E$  に対応する変形とは別に  $C_{66}$  に対応する格子変形が起きていること、その原因として、隠れた秩序が磁性起源として提案されているさまざまな可能性の中で、Eu 対称性に破れが生じていることを強く示唆している。これらの成果は  $URu_2Si_2$  の隠れた秩序の解明にとって重要なマイルストーンであると考えられる。

#### 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6件)

Daichi Hatanaka, Eisuke Asanuma, Kouki Takeda, Takeshi Ikeda, Mitsuteru Nakamura, Yoshiki Nakanishi, Fumitoshi Iga, Yoshitomo Harada, Hiroataka Yamaguchi, Masahito Yoshizawa, Synthesis and characterization of rare-earth boride thin films of  $CeB_6$  fabricated by MBE method: JPS Conf. Proc. Vol. 3, 011049 (2014) 査読有 DOI: 10.7566/JPSCP.3.011049

Dai Tamura, Yoshiki Nakanishi, Sounosuke Kikuchi, Tsubasa Ito, Mitsuteru Nakamura, Masahito Yoshizawa, and Susumu Shimomura, Elastic Property of Ternary Carbide  $SmNiC_2$  Proved by Ultrasound Measurements: JPS Conf. Proc. Vol. 3, 011063 (2014) 査読有 DOI: 10.7566/JPSCP.3.011063

Haruka Takezawa, Kouhei Sakano, Shalamujiang Simayi, Chiaki Fujii, Mitsuteru Nakamura, Yoshiki Nakanishi, Yuta Koshika, Yuichiro Takahashi, Takao Watanabe, and Masahito Yoshizawa, Elastic properties of iron-based superconductors  $FeTe_{1-x}Se_x$  by ultrasonic measurement: JPS Conf. Proc. Vol. 3, 016025 (2014) 査読有 DOI: 10.7566/JPSCP.3.016025

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 (2013) 033602 (5pages) 査読有 DOI: 10.7566/JPSJ.82.033602

S. Simayi, K. Ssakano, H. Takezawa, M. Nakamura, Y. Nakanishi, K. Kihou, M. Nakajima, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, S. Uchida, and M. Yoshizawa, Strange Inter-Layer Properties of  $Ba(Fe_{1-x}Co_x)_2As_2$  Appearing in Ultrasonic Measurements, J. Phys. Soc. Jpn. Vol. 82 (2013) pp. 114604 (7 Pages) 査読有 DOI: 10.7566/JPSJ.82.114604

Y. Nakanishi, G. Koseki, D. Tamura, K. Kurita, T. Saito, M. Koseki, M. Nakamura, M. Yoshizawa, Y. Koyota, C. Sekine, T. Yagi, Ultrasound measurements on the skutterudite compound  $SmOs_4P_{12}$ , J. Korean Phys. Soc. Vol. 62, (2013) pp. 1855-1857 査読有 DOI: 10.3938/jkps.62.1855

[学会発表](計20件)

谷藤史弥、久野智之、名取望、中村光輝、中西良樹、伊賀文俊、原田善之、山口博隆、吉澤正人、MBE 法による希土類六硼化物の作製と評価、日本物理学会第 71 回年次大会、東北学院大学泉キャンパス、22aPS-35、2016.3.22  
高橋祥平、大山雄輔、長谷川潤弥、中西良樹、中村光輝、吉澤正人、山田瑛、東中隆二、松田達磨、青木勇二、佐藤英行、籠状物質  $SmTa_2Al_{20}$  の低温弾性特性と相転移異常 (II)、日本物理学会第 71 回年次大会、東北学院大学泉キャンパス、22aPS-20、2016.3.22  
大山雄輔、高橋祥平、長谷川潤弥、中西

良樹、中村光輝、吉澤正人、仲村愛、辺土正人、大貫惇睦、 $\text{EuX}_4$  ( $X=\text{Ga}, \text{Al}$ )の電荷秩序転移に伴う弾性異常(II)、日本物理学会第71回年次大会、東北学院大学泉キャンパス、22aPS-27、2016.3.22

堀越啓太、石塚紘晃、赤坂直哉、納口昇也、中村光輝、中西良樹、小林達也、宮坂茂樹、田島節子、吉澤正人、鉄系超伝導体  $\text{SrFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$  の超音波測定、日本物理学会2015年秋季大会、関西大学千里山キャンパス、19aPS-39、2015.9.19

納口昇也、赤坂直哉、堀越啓太、石塚紘晃、中村光輝、中西良樹、綿重達哉、笠原成、芝内孝禎、松田祐司、吉澤正人、鉄系超伝導体  $\text{Fe}(\text{Se}_{1-x}\text{S}_x)$  の超音波測定、日本物理学会2015年秋季大会、関西大学千里山キャンパス、19aPS-40、2015.9.19

吉澤正人、鉄系超伝導体の弾性的性質、日本物理学会2015年秋季大会、関西大学千里山キャンパス、18pDB-7、2015.9.18 (企画講演)

大山雄輔、高橋祥平、長谷川潤也、中西良樹、中村光輝、吉澤正人、仲村愛、辺土正人、大貫惇睦、 $\text{EuX}_4$  ( $X=\text{Ga}, \text{Al}$ )の電荷秩序転移に伴う弾性異常、日本物理学会2015年秋季大会、関西大学千里山キャンパス、17aPS-67、2015.9.17

高橋祥平、大山雄輔、長谷川潤也、中西良樹、中村光輝、吉澤正人、山田瑛、東中隆二、松田達磨、青木勇二、佐藤英行、 $\text{SmTa}_2\text{Al}_{20}$  の低温弾性特性と相転移異常、日本物理学会2015年秋季大会、関西大学千里山キャンパス、17aPS-66、2015.9.17

吉澤正人、バンド電子の引き起こす弾性異常と超伝導の発現機構、日本金属学会2015年秋期講演大会、九州大学伊都キャンパス、2015.9.16 (招待講演)

M. Yoshizawa, Inherent elastic softening of  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  appearing in high magnetic field, 11<sup>th</sup> International Conference on Research in High Magnetic Fields, Grenoble, 2015.7.3

吉澤正人、赤坂直哉、三田村裕幸、納口昇也、堀越啓太、中西良樹、榊原俊郎、金道浩一、Jiri Pospisil、山本悦嗣、芳賀芳範、パルス磁場における  $\text{URhGe}$  の超音波測定、日本物理学会第70回年次大会、早稲田大学、2015.3.22

赤坂直哉、納口昇也、堀越啓太、菅原 仁、中村光輝、中西良樹、吉澤正人、強磁性  $\text{CeIr}_3\text{B}_2$  超音波測定(2)、日本物理学会第70回年次大会、早稲田大学、2015.3.22

久野智之、浅沼英資、谷藤史弥、中村光輝、中西良樹、伊賀文俊、原田善之、山口博隆、吉澤正人、分子エピタキシー法を用いた希土類六硼化物の作製、日本物理学会第70回年次大会、早稲田大学、2015.3.21

林昌伸、藤井千旭、シャラムジャン・シマイ、菅原仁、中村光輝、中西良樹、吉

澤正人、強磁性  $\text{CeIr}_3\text{B}_2$  の超音波測定、日本物理学会第69回年次大会、東海大学、2014.3.28

吉澤正人、超音波測定で観る鉄系超伝導体に内在する多様な揺らぎとその協奏、日本物理学会第69回年次大会、東海大学、2014.3.26 (シンポジウム講演)

C. Fujii, S. Simayi, K. Sakano, M. Nakamura, Y. Nakanishi, K. Kihou, M. Nakajima, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, S. Uchida, and M. Yoshizawa, Correlation between in-phase elastic anomaly and superconductivity in  $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ , International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013)、東京、2013.8.7

D. Hatanaka, E. Asanuma, K. Takeda, T. Ikeda, M. Nakamura, Y. Nakanishi, F. Iga, and M. Yoshizawa, Synthesis and characterization of rare-earth boride thin films of  $\text{CeB}_6$  fabricated by MBE method, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013)、東京、2013.8.7

D. Tamura, Y. Nakanishi, S. Kikuchi, T. Ito, M. Nakamura, M. Yoshizawa, and S. Shimomura, Elastic Properties of Ternary Carbide  $\text{SmNiC}_2$  Probed by Ultrasonic Measurements, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013)、東京、2013.8.7

H. Takezawa, K. Sakano, S. Simayi, C. Fujii, M. Nakamura, Y. Nakanishi, Y. Koshika, Y. Takahashi, T. Watanabe, and M. Yoshizawa, Elastic properties of iron-based superconductor  $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$  by ultrasonic measurements, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013)、東京、2013.8.7

M. Yoshizawa, S. Simayi, Y. Nakanishi, H. Mitamura, K. Araki, T. Sakakibara, K. Kindo, Y. Honma, E. Yamamoto, T. D. Matsuda, Y. Onuki, Ultrasonic Measurements of  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  in Pulsed Magnetic Field, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013)、東京、2013.8.6

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕  
出願状況(計0件)  
取得状況(計0件)

〔その他〕  
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉澤 正人 (YOSHIKAWA Masahito)

岩手大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：30220619

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし