

## 1 重い電子系 $UBe_{13}$ における非BCS超伝導状態の研究

$UBe_{13}$ は1983年に発見された重い電子系超伝導体であり、80~90年代に多くの実験的研究が成されたが、超伝導ギャップのノードが点状か線状か、磁場中混合相で比熱に見られる弱い異常 ( $B^*$ 異常と呼ばれる) は本質的か、またその起源は何か、さらに上部臨界磁場  $H_{c2}$ の異方性の有無は、といった問題が現在においても論争となっている。我々は、原研先端研・芳賀芳範氏より提供を受けた $UBe_{13}$ 単結晶に対し温度領域0.1 K ~ 2 K、磁場領域0 ~ 8 Tにおける静的磁化測定及び0.4 K ~ 2 K, 0 ~ 12 Tにおける比熱測定を行った。実験の結果、本物質について超伝導混合相での熱平衡磁化を初めて求め、上記 $B^*$ 異常が磁化曲線に折れを引き起こす何らかの磁氣的異常であることを明らかにした。さらに[100]方向と[110]方向の磁場に対する $H_{c2}$ が $T_c$ 直下ではほぼ一致するが、およそ0.7 $T_c$ より低温で僅かに異なる異方性を示すことを明らかにした。また磁化と比熱の詳しい解析から、Makiパラメータ $k_2$ の温度変化を求め、この系の超伝導に対する対破壊効果に常磁性効果による寄与が存在すること、また、 $B^*$ 異常に対応する磁化の挙動から混合状態の低温弱磁場領域における正常相で微弱な強磁性が発生している可能性があることを初めて提案した。さらに $H_{c2}$ の異方性について、偶パリティ超伝導でFermi面に異方性がある可能性、および奇パリティで対称性の異なる2種類の秩序変数が共存するマルチバンド超伝導の可能性について議論を行い、新たな問題提起を行った。

## 2 放射光X線を用いた $URu_2Si_2$ の結晶構造解析

$URu_2Si_2$ の隠れた秩序の問題に関し結晶構造の変化の有無を調べる目的で、KEK-PF BL8A及び8Bの2軸回折計を用いて振動写真法による単結晶X線回折実験を行った。その結果、観測精度内で隠れた秩序に伴う格子の低対称化はみられず、また新たな超格子反射の発生もみられないことを確認した。さらに回折強度の温度変化の解析から、結晶構造の内部パラメータであるSi原子位置及び各原子の原子変位パラメータが転移温度付近で異常を示すことを見出した。詳しい分析から、電子数の多いUの原子変位パラメータが、回折強度の異常に最も大きく寄与していることがわかった。しかし、20 K以下の低温で実際に原子変位パラメータが変化しているとは考え難く、この結果は、隠れた秩序状態においてU原子の周りの電荷密度分布の異方性に何らかの変化が起こっている可能性を示唆している。現在、隠れた秩序に本質的な寄与を中抽出するために、電荷密度マップを作製し、詳しい分析を進めている。また、今後より精度を上げた実験を実施し、電荷密度分布の温度変化を明らかにしていく計画である。

## 3 超音波によるRh希釈系 $U(Ru_{1-x}Rh_x)_2Si_2$ の弾性特性の研究と磁場中超音波測定による反強十六極子秩序の検証

重い電子系 $URu_2Si_2$ の隠れた秩序相の問題に対し、Rh希釈系の $U(Ru_{1-x}Rh_x)_2Si_2$  ( $x = 0, 0.02, 0.07$ )単結晶試料を用いて高分解能超音波測定 (測定周波数 $f \square 175$  MHz) を行った。母物質に現れる弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ のソフト化は、隠れた秩序が消失する $x = 0.07$ においても現れ、極低温で一定値に収束する振る舞いを初めて捉えた。一方、参照物質 $ThRu_2Si_2$ の弾性定数を測定し $URu_2Si_2$ の弾性定数と比較することにより、擬似的に格子・フォノンの寄与を差し引き、 $(C_{11}-C_{12})/2$ のソフト化が5f電子の寄与に依るものであることを浮き彫りにした。また、平成23年楠瀬らによって提案された、隠れた秩序変数の有力な

候補である $Hza(=xy(x_2-y_2))$ 型反強電気十六極子秩序の可能性を検証した。隠れた秩序相において  $H \parallel [100]$  と  $H \parallel [110]$  に磁場を印加した場合の弾性定数 $(C_{11}-C_{12})/2$ ,  $C_{66}$ の温度, 磁場変化を比較したところ $10^{-5}$ の精度内では有意な差は観測されない。よって, 少なくとも $H \leq 8$  Tのc面内磁場中弾性定数測定で誘起四極子による応答は実験精度内では現れないと結論できる。

---

## 4 パルス強磁場における充填スクッテルダイト $SmOs_4Sb_{12}$ の弾性応答

---

磁場に鈍感な重い電子状態を示し, 同時に磁場に依存しない局所フォノン自由度を持つ充填スクッテルダイト化合物  $SmOs_4Sb_{12}$ の強磁場下における超音波測定を行うことで, 結晶場基底状態を明らかにすることを目的とし, 平成23年11月にドイツ, ドレスデン強磁場研究所で62 Tパルス磁場下超音波実験を行った。その結果, 4.2 K に於ける弾性定数  $C_{11}$  の磁場依存性は 10 T 付近で極小をとり, 高磁場領域では dHvA 振動を繰り返しながら励磁と共にゆるやかに上昇する傾向を示した。立方晶系において $C_{11}$ は $\Gamma_1$ 対称性のOBと $\Gamma_3$ 対称性の四極子感受率の和として記述されるため, 高磁場領域でOB の影響が小さいと仮定した場合, 本実験結果は $SmOs_4Sb_{12}$ の結晶場基底状態が $\Gamma_8$  四重項であることを示唆する。

---

## 5 多重極限環境下における $UPd_2Si_2$ の5f電子状態に関する研究

---

$UPd_2Si_2$  (正方晶 $ThCr_2Si_2$ 型結晶構造) は常圧において非整合-Type-I反強磁性逐次相転移を示す。この物質の磁性は局在5f電子を仮定したモデルで良く説明される一方で, 低温において5f電子の遍歴性も観測されている。このようなU系化合物における5f電子の二面性について詳細に調べるために,  $UPd_2Si_2$ の多重極限環境(高圧・強磁場)下における電気抵抗及び磁化測定を行い, 始めて5.5 GPa, 7Tまでの温度-圧力-磁場相図を完成させた。これにより圧力によりType-I反強磁性相が安定化することが分かった。また, 圧力によってc-f混成の増強を示唆する結果が得られた一方で, 電気抵抗の $T^2$ 項の係数Aや有効磁気モーメントの増大など通常のCe-4f電子系では見られない振る舞いが観測された。この異常な振る舞いは価数揺動といった5f電子系の特徴を反映している可能性がある。

---

## 6 CeAgにおける強磁性秩序の圧力効果及び圧力誘起構造相転移に関する研究

---

CeAg は常圧において体心立方晶CsCl 型の結晶構造をとり, 17.5 Kで強四極子秩序に伴う正方晶への構造相転移, また5.5 Kで強磁性転移を起こす。この物質における強磁性転移点の圧力変化を再検証し, また2 GPa以上の高圧下で誘起される未知の構造相転移に関する情報を得るため, インデンターセルを用いた高圧下電気抵抗測定を行った。試料はプラズマジェット炉で作成した多結晶を用い, 3.4GPaまで測定を行った。測定結果から, 強磁性秩序は高圧下4~5GPaで消失することが予想される。さらに2.5GPa以上の低温において新たな圧力誘起相転移と思われる異常が観測された。また, 圧力誘起構造相転移に関しては先行研究と同様の結果が得られた。

---

## 7 $SmBe_{13}$ の基礎物性測定

---

立方晶(Fm-3c)の結晶構造を持つ $SmBe_{13}$ の研究は1975年の発見以降ほとんど行われていなかった。そのため, 低温の相転移の起源はおろか結晶場や価数, 近藤効果などのほとんどの物性が明らかになっていない。そこでフラックス法により作成した単結晶試料を用い

て、電気抵抗、比熱、磁化測定を行った。その結果、7.5 Kでの（磁気転移と思われる）相転移は磁場に鈍感であることが分かった。このような磁場鈍感な振る舞いは他のSm系化合物にもしばしば見られるが、その起源は不明である。加えて、Smの価数はほぼ三価であること、結晶場基底状態が $\Gamma_8$  四重項であること、比熱にカゴ状構造に起因すると考えられるアインシュタインフォノンの寄与が存在することなどを示唆する結果が得られた。

---

## 8 Ce<sub>3</sub>Pd<sub>2</sub>Ge<sub>6</sub>の圧力効果

---

クラスレート化合物Ce<sub>3</sub>Pd<sub>2</sub>Ge<sub>6</sub>は Cr<sub>23</sub>C<sub>6</sub>型立方晶の結晶構造を持ち、Ce原子は4aと8cと呼ばれる2つの結晶学的に非等価なサイトを持つ。この物質では非等価なサイトが低温でそれぞれ相転移を起こし、8cサイトではTQ = 1.2 Kで強四極子秩序、4aサイトではTN = 0.75 Kで反強磁性秩序が起きる。これまでこの物質の圧力効果についての報告はなく、そこでCe<sub>3</sub>Pd<sub>2</sub>Ge<sub>6</sub>の2つの相転移の圧力効果を調べるためにインデンターセルを用いた3.86 GPaまでの高圧下電気抵抗測定を行った。TNは2.5 GPa付近までは上昇しその後減少し始める。一方TQは2 GPa付近まではあまり圧力依存せず、より高圧側ではTN同様減少し始める。これらの結果から、どちらの相転移の量子臨界圧力も5 - 6 GPa近傍に存在する可能性を指摘した。また、近藤効果的な振る舞いにおいても、通常のCe化合物とは異なる異常な圧力依存性を観測した。

---

## 9 Cd-doped Ce<sub>2</sub>RhIn<sub>8</sub>の圧力効果

---

重い電系化合物Ce<sub>2</sub>RhIn<sub>8</sub>のRhサイトにCdをドーピングした化合物における反強磁性の圧力依存性を調べた。インデンターセルを用いた3.6 GPaまでの高圧下電気抵抗測定を行った。TNは2 GPa付近に最大値を持ち、その後減少する。量子臨界圧力は5 - 6 GPa近傍に存在すると考えられ、さらなる高圧での実験が必要である。

---

## 10 超高圧下磁化測定用高圧セルの開発

---

日本原子力研究機構・立岩氏が開発したQuantum Design社製のMagnetic Property Measurement System (MPMS) 用磁化測定用高圧セル（セラミックアンビルセル）を参考に、本研究室においてもMPMS用「超小型」磁化測定用高圧セルを開発した。微小磁化を正確に求めるために本研究室で開発したSQUID波形差し引き用プログラムを用いることが可能であり、これにより磁化の小さい反強磁性体における5.5 GPaまでの超高圧下かつ精密磁化測定に成功した。