

1 URu₂Si₂の隠れた秩序に関する研究

重い電子系の研究分野における未解決問題のひとつに、ウラン系超伝導体URu₂Si₂ (T_c ~ 1.4 K) がT₀ = 17.5 Kにおいて示す2次相転移の問題がある。比熱にはT₀で鋭い跳びが見られるが、微視的測定では秩序構造が検出されず、「隠れた秩序」と呼ばれて25年が経過している。数多くの理論提案がなされているが、いずれのモデルも確証は得られていない。本研究では、近年話題となっている電子ネマティック秩序等の可能性を検証する目的で、以下2つの研究を行った。

i) 結晶格子の対称性と内部変数の変化の検証を

目的とする単結晶放射光X線回折実験

この物質についてX線による低温での精密な結晶構造解析は、実はこれまで行われていなかった。フリーパラメータであるSi原子位置(0, 0, z)について、隠れた秩序による変化の有無を初めて検証した。また、電子ネマティック秩序で予想される格子対称性の低下の有無を単結晶放射光X線回折実験により調べた。実験は、KEK-PF BL8Bにて約30 μ m角の単結晶に対する振動写真撮影を6 Kの低温まで行った(KEK・熊井玲児, 中尾裕則, 小林賢介氏との共同研究)。その結果、Si位置, 原子変位パラメータといった内部変数には精度内で異常は無く、結晶格子も正方晶から変化していないことが分かった(ピークプロファイルの解析からは、格子定数のずれはあったとしても0.01%以下)。一方、空間群についてI4/mmm以外にも、最適化の信頼因子が同程度になる空間群が存在することが新たに判明した。

ii) 電子ネマティック秩序の検証を目的とする偏

光顕微イメージング実験

偏光観察は結晶表面の μ mサイズの様々なドメイン形成を敏感に検知できる手段であり、本系で予想される電子ネマティック相の形成が偏光異常として検出できないかを試みた。最近では鉄系超伝導体でネマティック秩序によるドメイン形成がこの手法で可視化された例があるが、f電子系への適用はこれが初めてである。東大物性研・徳永研所有の偏光顕微鏡システム(空間分解能 ~2 μ m)を用い、結晶劈開c面のクロスニコル法による偏光特性観察をT₀上下で行い比較した(東大物性研, 徳永将史氏との共同研究)。その結果、偏光応答の違いはあっても0.3%以内であり、この範囲では2回対称のドメイン形成を示すコントラストは観測されなかった。成果は2013年8月東京開催の強相関電子系に関する国際会議SCES2013で公表(ポスター)する予定。

2 パルス強磁場下におけるURu₂Si₂の超音波測定

2012年6月4-8日と12月17-21日の二度に分けてドイツ・ドレスデン強磁場センターに於いて最大磁場68.7 T (パルス幅 ~120 ms) のロングパルス磁場を用いたURu₂Si₂の超音波測定を行った。[001]軸方向に磁場を印加した場合、磁化測定に現れる35-39 Tの多段メタ磁性転移近傍で、弾性定数(C₁₁-C₁₂)/2は階段状の異常を示しつつ、50 Tまで約0.7%増大することがわかった。その変化量は零磁場下の温度変化において120 K付近から最低温度までに生じる緩やかな弾性定数の減少(ソフト化)の大きさとほぼ一致する。(C₁₁-

C_{12})/2モードは対称性を低下させる斜方晶歪み(Γ_3 : 基底関数 $x_2 - y_2$)に対応することから、 URu_2Si_2 の弱磁場・低温領域では Γ_3 対称性の格子不安定性を伴ったc-f混成による重い電子状態が形成されており、磁化測定等との比較から、高磁場領域ではその混成が切れ、同時に格子不安定性も消失していることがわかった。この格子不安定性の起源は本系の「隠れた秩序」の未解明の秩序変数と深く関わっている可能性が高い。

3 充填スクテルダイト化合物 $PrOs_4Sb_{12}$ における超音波測定と電気抵抗測定の同時測定による非BCS超伝導転移近傍の弾性異常の検証

重い電子超伝導物質 $PrOs_4Sb_{12}$ の電気抵抗と弾性定数の同時測定を磁場中で行い、弾性応答の観点から超伝導相図の再構築を試みた。その結果、弾性定数 C_{11} の温度・磁場依存性は結晶場効果のみで説明でき、 T_c に対応した弾性異常定数は観測されなかった。即ち、本系の非BCS超伝導は少なくとも弾性定数 C_{11} ($= CB + 4/3 * (C_{11} - C_{12})/2$)に変化をもたらさないことがわかった。一方、過去の報告 (~17 MHz) では結晶場以外の寄与による弾性定数 $(C_{11} - C_{12})/2$ のソフト化が T_c 近傍まで続き、 T_c 以下でソフト化が停止するとされており、本研究結果と大きく矛盾する。ここで、本研究では320 MHzまでの高周波測定を行い、複数の周波数帯において再現性を確認していることを鑑みると、過去に行われた低周波測定では、超音波の指向性の悪さによって異なる超音波モードの混在が起こっている可能性が高いという結論に至った。

4 Uを内包するカゴ状化合物 $U_3Pd_20Si_6$ の磁場中弾性応答

Uを内包するカゴ状結晶構造を持つクラスレート化合物 $U_3Pd_{20}Si_6$ の磁場中超音波測定を行った。弾性定数 C_{44} は8cサイトの反強磁性転移点 T_N で大きなソフト化を示すことが過去の研究で判っていたが、本研究では試料表面を研磨し、測定精度のさらなる向上を試みた結果、 T_N 直下において超音波の吸収・散乱が生じ測定が困難になる領域が磁場の印可に伴い拡大することを発見した。その領域は過去の報告にある低温・高磁場領域のスピンフロップ相に繋がるのが予想され、大きな弾性異常とスピンフロップ状態の複雑な磁気構造からは高次多極子の寄与が示唆される。尚、本系の8cサイトのUのサイトシメトリーは T_d であり局所的に反転対称の欠如した系であるため、強い電子相関のもとではパリティ混成に起因する奇パリティの電気・磁気多極子が関与している可能性もある。今後、熱膨張測定や高磁場での測定により詳細を調査する予定。

5 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CsCl型の体心立方晶構造をとり、17.5 Kで強四極子秩序に伴う正方晶への構造相転移、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の圧力変化を再検証すること、及び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、4.1 GPaまで測定を行った。その結果、約3 GPa以上の未知の構造相内では2つの相転移らしき異常が新たに観測された。そのうちの低温側の異常は強磁性転移に対応していると考えられ、その臨界圧力は5 GPa以上にあると見積もられた。

6 カゴ状構造化合物RBe₁₃の単結晶育成と基礎物性測定

RBe₁₃ (R = 希土類) はNaZn₁₃型立方晶(Fm-3c, Oh)の結晶構造を持ち, Rイオンが24個のBeによって作られるカゴに囲まれている. この化合物系では重い電子系超伝導体UBe₁₃が特に有名であるが, 希土類化合物における研究は1975年のE. Bucherらによる報告以来ほとんどなされてこなかった. 我々はAl-Flux法によるLaBe₁₃, PrBe₁₃, SmBe₁₃の単結晶試料育成に成功し, 比熱, 磁化, 電気抵抗率などの基礎物性測定を行った. その結果, この物質系共通の性質として, カゴ状構造に起因すると考えられる低エネルギーのインシユタインフォノンの存在を明らかにした. さらに, SmBe₁₃においては磁場に鈍感な相転移が8 K付近に存在すること, Smの価数はほぼ三価であること, 結晶場基底状態が $\square 8$ 四重項であることなどを示唆する結果が得られた.

7 CePt₃Bにおける反強磁性および強磁性転移の圧力効果

空間反転対称性を持たない結晶構造をもつCePt₃Bは, TN = 8Kで反強磁性転移を起こし, さらに低温で弱い強磁性 (TC = 5 K) を起こす. これらの相転移温度の圧力依存性を調べるために, ジルコニアアンビルセルを用いた超高压下磁化測定を行った. 反強磁性転移に対応する異常は測定感度の問題で観測できなかったが, 強磁性転移の観測は成功した. その結果, 約4.9 GPaまでの圧力範囲では強磁性転移に明確な圧力変化は見られず, 強磁性の量子臨界領域に達するにはさらなる高压下での測定が必要であることが分かった. 本研究はドイツ, Brawnschweig大のDaniela Rauch氏, Stefan Süllow氏との国際共同研究である.

8 超高压下測定用高压セルの開発

高知大・北川氏が開発した10 GPa級対向アンビル超高压セルを参考に, 本研究室においても超高压セルの設計・開発を行った. 現在までのところ, 低温で3.8 GPaまでの圧力発生に成功しており, 今後改良を行うことで10 GPa以上の高压発生を目指す. また, ブラジル物理研究所(CBPF)での在外研究中に, 現地におけるダイヤモンドアンビルセルを用いた高压実験装置を立ち上げた.