

## 価数不安定性をもつアクチノイド化合物に特有の 新奇量子状態の研究

Investigation of novel quantum states in actinide-based  
compounds with unstable valence

佐藤 憲昭 (SATO NORIAKI)

名古屋大学・大学院理学研究科・教授



### 研究の概要

アクチノイドは物性科学的に興味ある現象、例えば従来の物理学では犬猿の仲と思われてきた強磁性と超伝導の共存などを示す。これらの現象を研究するために、東北大・金研に試料育成拠点を形成する。さらに、アクチノイド元素の5f電子が固体中で示す奇妙な性質（遍歴・局在2重性）の謎を解き明かす。

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：アクチノイド、重い電子系、磁性、超伝導

### 1. 研究開始当初の背景

磁性と超伝導は物質科学の最先端の研究テーマとして長年研究が続けられてきた。近年、従来の物理学では理解できない現象がアクチノイド物質において次々と見出されている。例えば  $UGe_2$  や  $UCoGe$  などでは、犬猿の仲と考えられてきた強磁性と超伝導という2つの長距離秩序が共存している。また  $URu_2Si_2$  では、隠れた秩序 (hidden order) (最近では dark order) と呼ばれる不思議な状態が存在し、それに対し20を超える理論的シナリオが提出されている。しかし、実験的には未だ解明されていない。これらの状態を担う主役はウラン原子中の5f電子(重い電子)であるが、(アクチノイド元素のもつ放射性に起因する) 実験の困難さに阻まれ、その本質は謎に包まれたままである。

### 2. 研究の目的

我が国におけるアクチノイド化合物の物性研究が産声を上げたのは20年ほど前である。これまでの研究を維持しさらに発展させていくためには、結晶合成・育成のための拠点を大学に形成する必要がある。そこで本研究課題では、J施設である東北大・金研(原子力機構と並立する形で) アクチノイド研究

のための拠点を形成する。これらの拠点で育成された良質の単結晶試料を用い、上記問題を解決する。

### 3. 研究の方法

ウラン化合物の単結晶育成のためのテトラーク炉と、育成された試料の基礎物性評価を行うための装置を東北大金研に設置する。これらを用いて  $UCoGe$  や  $URu_2Si_2$  等の単結晶を育成・評価する。静的・動的性質を明らかにするため、種々の実験手法を駆使し、磁性と超伝導の相関や秩序変数を明らかにする。またこれらと並行して、超ウラン化合物 ( $NpPd_5Al_2$ ,  $PuRhGa_5$ ,  $PuIrGa_5$  など) や、共通する物理を有すると考えられる参照系 ( $ZrZn_2$  などの典型的遍歴磁性体や  $SmS$  などの価数揺動物質) の研究も行う。

### 4. これまでの成果

【拠点の形成】テトラーク炉と基礎物性評価装置 PPMS の設置を終え、既にいくつかのウラン系物質の良質単結晶が育成されている。

【 $UCoGe$ 】(1) 良質単結晶を用いた磁化測定および核磁気共鳴実験により、強磁性と超伝導が共存する実験的確認を得た。(2) 通常の超伝導体とは異なり下部臨界磁場が存在

せず、また超伝導状態において2つの緩和時間が存在することを見出した。これらより、自己誘導ボルテックスが存在する可能性を指摘した。[以上、発表論文2, 3] (3) 強いイジング的異方性スピン揺らぎが存在することを明らかにした。[発表論文1] これは、超伝導の引力相互作用を解明する上で重要な手掛かりになるものと期待される。

【URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>】(1) SPring-8における共鳴X線散乱実験から、四極子秩序を特徴づける信号が無いこと、(2) 磁気反射の精密な測定から、常圧において隠れた秩序と反強磁性の2相が空間的に相分離し共存していること、(3) 一軸応力下中性子散乱から、磁気八極子秩序の兆候もみられないこと、(4) 逆格子空間の広い領域での超格子反射の探査実験から、磁気双極子及び電気四極子による秩序や構造相転移の可能性は、非整合長周期構造も含めて否定的であることを示した。これらとは独立に磁気トルク測定を行った結果、隠れた秩序の相転移温度以下で、回転対称性の破れが生じていることを見出した。[発表論文4] さらに、高磁場において新たな相転移が存在する可能性を指摘した。[発表論文5] これらは、隠れた秩序の仮説に対し、強い制限を加えるものである。

【超ウラン元素化合物】強い放射能を持つNp化合物用の物性測定密閉容器を作製した。また、アクチノイド系列においてNpの次に位置するPuの強い放射能とそのために誘発される自己照射及び自己発熱を回避するために、長寿命の希少な原料である<sup>242</sup>Puを使用した結晶育成方法を開発した。

## 5. 今後の計画

上記成果を基に、さらに次の研究を進める。

【UCoGe】異方的スピン揺らぎと超伝導発現機構の関係を理論研究の助けを借りながら明らかにする。また、自己ボルテックスのより直接的な検証のため、STM/STS実験などを行う。

【URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>】磁場中共鳴X線散乱及び高感度弾性定数測定により十六極子秩序の可能性について検証する。また、高次多極子の構造因子が高角側で大きな値をとる特徴に注目し、非共鳴短波長の放射光X線を用いて検出する実験を行う。

【他の電子系物質】価数不安定性を有するSmSにおける圧力誘起相転移や、典型的遍歴

電子強磁性体ZrZn<sub>2</sub>における圧力誘起量子相転移の研究を行い、UCoGeやUGe<sub>2</sub>の量子相転移と比較する。これにより、5f電子の特性を抽出すると同時に、遍歴電子系(価数不安定系)に共通する不変性を導き出す。

最終的に、3d, 4f, 5f電子の特質を遍歴・局在2重性(価数の不安定性)の観点から整理し、新しい学理の構築を目指す。

## 6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

1. Y. Ihara, T. Hattori, K. Ishida, Y. Nakai, E. Osaki, K. Deguchi, N. K. Sato and I. Satoh, "Anisotropic Magnetic Fluctuations in the Ferromagnetic Superconductor UCoGe Studied by Direction-Dependent <sup>59</sup>Co NMR Measurements", Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 206403-1-4.

2. K. Deguchi, E. Osaki, S. Ban, N. Tamura, Y. Simura, T. Sakakibara, I. Satoh and N. K. Sato, "Absence of Meissner State and Robust Ferromagnetism in the Superconducting State of UCoGe: Possible Evidence of Spontaneous Vortex State", J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 083708-1-4.

3. T. Ohta, T. Hattori, K. Ishida, Y. Nakai, E. Osaki, K. Deguchi, N. K. Sato and I. Satoh, "Microscopic Coexistence of Ferromagnetism and Superconductivity in Single-Crystal UCoGe", J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 023707-1-4.

4. R. Okazaki, T. Shibauchi, H.J. Shi, Y. Haga, T.D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Onuki, H. Ikeda and Y. Matsuda, "Rotational Symmetry Breaking in the Hidden-Order Phase of URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>", Science **331** (2011) 439-442.

5. H. Shishido, K. Hashimoto, T. Shibauchi, T. Sasaki, H. Oizumi, N. Kobayashi, T. Takamasu, K. Takehana, Y. Imanaka, T.D. Matsuda, Y. Haga, Y. Onuki, Y. Matsuda, "Possible Phase Transition Deep Inside the Hidden Order Phase of Ultraclean URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>", Phys. Rev. Lett. **102** (2009) 156403-1-4.

ホームページ等

<http://mlbp.phys.nagoya-u.ac.jp/>