

I サマリウム化合物における磁性－非磁性転移の研究

Study of nonmagnetic-magnetic transition in samarium compounds

水戸 毅・上田光一・小山岳秀

Mito, T., Ueda, K., Koyama, T.

希土類元素を含む化合物が示す様々な物性を、希土類元素の種類によって特徴づけることを目的に、サマリウム (Sm) 化合物の磁性、電気伝導性、Sm 価数に注目した研究を行った。SmB₆ や SmS は、常圧下では Sm 価数が 2～3 価間の中間価数状態をとり、非磁性の半導体であるが、圧力の印加によって金属的かつ磁性を示すようになる。4f 電子状態やギャップの圧力依存性を核磁気共鳴 (NMR) 測定によって調べるが、SmB₆ については最新の高圧力技術との組み合わせにより 7 GPa までの測定を可能にし、SmS については S 元素を NMR 観測が可能な ³³S 同位体で置換することによって、この物質の NMR 測定に初めて成功した。また SmB₆ の Sm 価数の圧力依存性を 13 GPa までの X 線吸収分光測定によって調べた。

II ユーロピウム化合物の核磁気共鳴、 核四重極共鳴による研究

NMR and NQR studies on multipolar ordering systems

水戸 毅・上田光一・小山岳秀

Mito, T., Ueda, K., Koyama, T.

ユーロピウム (Eu) を含む化合物が示す磁性や Eu 価数について、NMR と NQR 測定による研究を行なっている。Eu は 3 価で非磁性であるのに対し、2 価では軌道角運動量を持たないにもかかわらず、7 μ_B もの大きな磁気モーメントを持つという特徴がある。EuPtP については、この物質が温度変化に対して示す二度の価数転移による秩序構造を、³¹P-NMR 測定によって明らかにした。また、この物質の低温下磁気秩序状態で、P, Pt のゼロ磁場 NMR 測定、3 価状態にある Eu の NQR 測定によって磁気秩序構造を明らかにした。その他、Eu 2 価状態にある EuRh₂Si₂、Eu 2 価から 3 価に転移する EuPd₂Si₂、Eu 3 価状態にある EuNi₂Si₂ の磁性について NMR 測定によって調べた。

III イッテルビウム化合物の核磁気共鳴、 核四重極共鳴による研究

NMR/NQR studies of ytterbium compounds

水戸 毅・上田光一・小山岳秀
Mito, T., Ueda, K., Koyama, T.

イッテルビウム (Yb) を含む化合物における非磁性-磁性転移の研究は、Ce 系や Sm 系の化合物との比較においても大変興味深い。YbXCu₄ (X= Cu, Ag, In) が示す高温の局在状態と低温の非磁性状態間の移り変わりを、共通の Cu サイト (16e サイト) の NMR 測定によって調べ、伝導電子が低温非磁性状態の形成に果たす役割について情報を得た。その他、価数揺動物質である YbPd₂Si₂ や低温で極めて大きな比熱を示す YbCo₂Zn₂₀ についても研究を行なった。

IV 隠れた秩序を示す URu₂Si₂ の核磁気共鳴、 核四重極共鳴による研究

NMR/NQR studies of URu₂Si₂ that shows the hidden order

水戸 毅・上田光一・小山岳秀
Mito, T., Ueda, K., Koyama, T.

ウラン (U) を含む URu₂Si₂ 化合物は、 $T_{HO}=17.5$ K 以下で秩序因子が明らかになっていない相転移 (隠れた秩序 (HO)) を示す。 T_{HO} における f 電子状態、磁性、系の対称性変化について調べるため、URu₂Si₂ の単結晶試料と ²⁹Si の濃縮粉末試料の Ru と Si サイトの NMR と NQR 測定を行なった。また、非磁性参照物質である ThRu₂Si₂ と LaRu₂Si₂ についても NMR と NQR 測定を行ない、HO 状態でのイジング的スピン相関や U 価数について情報を得た。

V 銀ナノ粒子

NMR study of Ag nano-particles

水戸 毅・上田光一・小山岳秀
Mito, T., Ueda, K., Koyama, T.

バルクの大きさでは金属特性を示す元素をナノ粒子化し、粒子中に閉じ込められた電子に生じる量子サイズ効果や表面効果を微視的かつ直接的に観測することを目的に、銀ナノ粒子の Ag-NMR 測定を行なった。有機分子の化学修飾によって粒径 4.0 ± 0.5 nm に揃えられた銀ナノ粒子の Ag-NMR 測定に初めて成功し、バルクの銀試料との比較から、ナノ粒子の中心付近に位置する銀と表面付近に位置する銀からの信号分離を可能にした。

VI 重い電子系超伝導体の核磁気共鳴、核四重極共鳴

NMR and NQR studies of heavy Fermion superconductors

水戸 毅・上田光一・小山岳秀

Mito, T., Ueda, K., Koyama, T.

重い電子系超伝導の発生機構を解明するため、以前からの UPt_3 、 URu_2Si_2 、 UPd_2Al_3 での Pt、Si、Al 核等の NMR、Ru、Pd 核の NQR に加え、最近報告された $CePt_3Si$ の Pt、Si 核の NMR を行ない、ナイトシフト、核スピン格子緩和時間の温度変化を測定している。特に 1 K 以下の低温における NMR、NQR 測定を中心にして研究を行なっている。

VII 遍歴電子磁性体の NMR/NQR

NMR/NQR study of itinerant electron magnet

水戸 毅・上田光一・小山岳秀

Mito, T., Ueda, K., Koyama, T.

主に 3d 電子に起因する磁性体の性質は、「磁性金属では電子間の交換相互作用によって著しく増強されたスピンの揺らぎが存在し、それが物質の熱力学的性質を支配する」という考えによって説明できる。半導体 $FeSb_2$ についてはその電子状態を、 $Rh_{17}S_{15}$ は 4d 電子間の相関と超伝導特性を研究している。また、インド工科大学との共同研究で、soft ferromagnetic material である $FeCuSb$ の内部磁場の測定を行なっている。

VIII 複数の相転移をもつ物質での核磁気共鳴

NMR study of materials with multiple phase transitions

水戸 毅・上田光一・小山岳秀

Mito, T., Ueda, K., Koyama, T.

希土類を含む金属間化合物（例えば $RE_5T_4X_{10}$ 、 $RE_2T_3X_5$; RE=希土類、T=遷移金属、X=Si 又は Ge）では、電荷密度波（CDW）、スピン密度波（SDW）、超伝導転移等のうち複数の相転移が、温度を変えていくと同一物質内で起こる。特に各構成原子についてのフェルミ面での電子の状態密度の測定に重点をおいて NMR 測定を行なっている。

IX 幾何学的フラストレート系の磁性

Magnetism of geometrically frustrated systems

水戸 毅・上田光一・小山岳秀

Mito, T., Ueda, K., Koyama, T.

磁性原子が 2 次元三角格子や 3 次元パイロクロア格子を組む幾何学的フラストレーションをもつ化合物の物質探索を行ない、それらが示す異常現象、たとえば金属絶縁体転移や磁気転移の機構を解明するための研究を行なっている。特に金属相（遍歴電子磁性体）での幾何学的フラストレーションの効果に着目している。実験手法としては、核磁気共鳴や中性子散乱などをはじめとした様々な手段を用いている。

発表論文 List of Publications

- I-1 K. Nishiyama, T. Mito, G. Prist'ava's (Slovak Acad. Sci.), T. Koyama, K. Ueda, T. Kohara, S. Gabáni (Slovak Acad. Sci.), K. Flachbart (Slovak Acad. Sci.), H. Fukazawa (千葉大院理), Y. Kohori (千葉大院理), N. Takeshita (産総研), N. Shitsevalova (Nat'l. Acad. Sci. Ukraine), H. Ikeda (立命館大理): High-pressure induced modifications in the hybridization gap of the intermediate-valence compound SmB_6 , Phys. Rev. B **93**, 121111(R) (2016)
- I-2 山田陽彦・小山岳秀・上田光一・水戸 毅・芳賀芳範 (原子力機構先端基礎): SmS の圧力下 NMR 測定 II、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015

- I-3** 水戸 毅・江見直哉・西山功兵・谷口太一・小山岳秀・上田光一・小原孝夫・水牧仁一朗 (JASRI/SPring-8)・河村直己 (JASRI/SPring-8)・石松直樹 (広大院理)・北川健太郎 (東大院理)・小山内湧人 (茨大院理工)・林 健人 (茨大院理工)・伊賀文俊 (茨大理)・N. Shitsevalova(Nat'l. Acad. Sci. Ukraine)：小さな半導体ギャップを持つ Sm 系化合物における電子状態 SmB_6 の価数・磁性・ギャップ、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015
- I-4** 小山内湧人 (茨大院理工)・菊地翔弥 (茨大院理工)・伊賀文俊 (茨大院理工・理)・水戸 毅・佐藤桂輔 (茨城高専)・近藤晃弘 (東大物性研)・金道浩一 (東大物性研)：価数揺動系 $\text{Sm}_{1-x}\text{R}_x\text{B}_6$ ($\text{R}=\text{Yb}^{2+}, \text{La}^{3+}, \text{Zr}^{4+}$) のエネルギーギャップの組成依存性と厚み依存性、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015
- I-5** T. Mito, N. Emi, T. Koyama, K. Ueda, N. Kawamura(JASRI/SPring-8), M. Mizumaki (JASRI/SPring-8), N. Ishimatsu(広大院理), F. Iga(茨大理): Electronic states in the pressure-induced magnetically ordered phase in SmB_6 , International Workshop on Itinerant-Electron Magnetism (京都大学)、2015
- I-6** 江見直哉・小山岳秀・西山功兵・上田光一・水戸 毅・水牧仁一朗 (JASRI/SPring-8)・河村直己 (JASRI/SPring-8)・石松直樹 (広大院理)・北川健太郎 (東大院理)・加賀山朋子 (阪大基極セ)・H. Nguyen(阪大基極セ)・清水克哉 (阪大基極セ)・伊賀文俊 (茨大理)・N. Shitsevalova(Nat'l. Acad. Sci. Ukraine)：X 線吸収分光・NMR 測定による近藤半導体 SmB_6 の高圧下電子状態、日本物理学会第 71 回年次大会 (東北学院大)、2016
- I-7** 小山岳秀・山田陽彦・上田光一・水戸 毅・芳賀芳範 (原子力機構先端研)：NMR からみた SmS の圧力効果、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015
- I-8** 小山岳秀・山田陽彦・上田光一・水戸 毅・芳賀芳範 (原子力機構先端研)： SmS における圧力誘起磁気秩序の NMR 研究、日本物理学会第 71 回年次大会 (東北学院大)、2016
- I-9** 小山内湧人 (茨大院理工)・菊地翔弥 (茨大院理工)・平野 航 (茨大理)・水戸 毅・佐藤桂輔 (茨城高専)・近藤晃弘 (東大物性研)・金道浩一 (東大物性研)・伊賀文俊 (茨大院理工・理)：価数揺動系 SmB_6 の試料厚み依存性と $\text{Sm}_{1-x}\text{R}_x\text{B}_6$ ($\text{R}=\text{Yb}^{2+}, \text{La}^{3+}, \text{Zr}^{4+}$) におけるエネルギーギャップの組成依存性、日本物理学会第 71 回年次大会 (東北学院大)、2016
- II-1** T. Koyama, Y. Maeda, K. Ueda, T. Mito, H. Sugawara(神大自然): Nuclear Quadrupole Resonance Measurement of the Ferromagnetic Filled-Skutterudite Compound $\text{EuRu}_4\text{Sb}_{12}$, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 085001-1-2 (2015)
- II-2** T. Koyama, T. Maruyama, K. Ueda, T. Mito, A. Mitsuda(九大院理), M. Umeda(九大院理), M. Sugishima(九大院理), H. Wada(九大院理): Zero-field NMR and NQR studies of magnetically ordered state in charge-ordered EuPtP , Phys. Rev. **B91**, 094419 1-4 (2015)

- II-3** T. Koyama, F. Ueyama, T. Maruyama, K. Ueda, T. Mito, A. Mitsuda(九大院理), H. Wada(九大院理): NMR study of EuNi_2Si_2 with trivalent Eu, International Workshop on Itinerant-Electron Magnetism (2015, 京都大学)、2015
- III-1** 中山大将・河合秀晃・小山岳秀・上田光一・水戸 毅・辻井直人(物材機構)・J.L. Sarrao (LANL)・B. Idzikowski(Polish Acad. of Sci.): 中間価数物質 YbXCu_4 ($X=\text{Cu, Ag, In}$) の NMR/NQR 測定、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015
- III-2** 山岡人志(理研 SPring-8)・辻井直人(理研基幹研)・鈴木通人(物材機構)・山本義哉(関西学院大理工)・Ignace Jarrige (BNL NSLS II)・佐藤仁(広島大 HiSOR)・Jung-Fu Lin (テキサス大)・水戸 毅・櫻井裕也(理研基幹研)・平岡望(NSRRC 台湾)・石井啓文(NSRRC 台湾)・Ku-Ding Tsuei(NSRRC 台湾)・酒井 治(理研基幹研)・水木純一郎(関西学院大理工)・M. Giovannini(Genova 大)・E. Bauer(ウィーン工科大): Cubic YbCu_5 系化合物の高圧下における Yb 価数の異常な振舞い、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015
- III-3** 水牧仁一郎(JASRI/SPring-8)・筒井智嗣(JASRI/SPring-8)・杉本邦久(JASRI/SPring-8)・広瀬雄介(新潟大理)・角田竜馬(新潟大自然)・水戸 毅・摂待力生(新潟大理): 価数転移物質 YbInCu_4 の 1 次構造相転移に関する新しい知見、日本物理学会第 71 回年次大会 (東北学院大)、2016
- IV-1** N. Emi, R. Hamabata, D. Nakayama, T. Miki, T. Koyama, K. Ueda, T. Mito, Y. Kohori (千葉大院理), Y. Matsumoto (名工大), Y. Haga (原子力機構先端研), E. Yamamoto (原子力機構先端研), Z. Fisk(原子力機構先端研, カリフォルニア大), N. Tsujii(物材機構): Magnetic and Electronic Properties of URu_2Si_2 Revealed by Comparison with Nonmagnetic References ThRu_2Si_2 and LaRu_2Si_2 , J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 063702-1-4 (2015)
- IV-2** 江見直哉・濱端良輔・中山大将・三木俊宙・小山岳秀・上田光一・水戸 毅・小堀 洋(千葉大院理)・松本裕司(名工大)・芳賀芳範(原子力機構先端研)・山本悦嗣(原子力機構先端研)・Zachary Fisk(原子力機構先端研, カリフォルニア大)・辻井直人(物材機構): NMR・NQR 測定による URu_2Si_2 の価数とスピン揺らぎ、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015
- IV-3** 濱端良輔・江見直哉・中山大将・三木俊宙・小山岳秀・上田光一・水戸 毅・小堀 洋(千葉大院理)・松本裕司(名工大)・芳賀芳範(原子力機構先端研)・山本悦嗣(原子力機構先端研)・Zachary Fisk(原子力機構先端研, カリフォルニア大)・辻井直人(物材機構): URu_2Si_2 と非磁性参照物質 ThRu_2Si_2 , LaRu_2Si_2 との NMR/NQR 測定による比較、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015
- IV-4** N. Emi, R. Hamabata, D. Nakayama, T. Miki, T. Koyama, K. Ueda, T. Mito, Y. Kohori (千葉大院理), Y. Matsumoto (名工大), Y. Haga (原子力機構先端研), E. Yamamoto (原子力機構先端研), Z. Fisk(原子力機構先端研・カリフォルニア大),

- N. Tsujii(物材機構): NMR and NQR studies of URu₂Si₂ and isostructural non-magnetic references, International Workshop on Itinerant-Electron Magnetism (京都大学)、2015
- IV-5** 濱端良輔・江見直哉・小山岳秀・上田光一・水戸 毅・本山 岳(島根大院総合理工)・松本裕司(名工大)・芳賀芳範(原子力機構先端研)・山本悦嗣(原子力機構先端研)・Zachary Fisk(原子力機構先端研, カリフォルニア大): NMR 測定による URu₂Si₂ の隠れた秩序相と常磁性相における異方性の研究、日本物理学会第 71 回年次大会 (東北学院大)、2016
- VIII-1** 上田光一・小山岳秀・水戸 毅・小原孝夫: CDW と超伝導を示す物質の電子状態についての NMR による研究 IV、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015
- VIII-2** 上田光一・小山岳秀・水戸 毅・小原孝夫: CDW と超伝導を示す Lu₅Ir₄Si₁₀ の NMR による電子状態の研究、日本物理学会第 71 回年次大会 (東北学院大)、2016
- VIII-3** 森岡亮(徳島大工)・川崎 祐(徳島大工)・岸本 豊(徳島大工)・中村浩一(徳島大工)・西山功兵・小山岳秀・水戸 毅・馬場拓行(東大物性研)・山内 徹(東大物性研)・磯部正彦(マックスプランク研)・上田 寛(豊田理化学研): パナジウムブロンズ Ag_{2/3}V₂O₅ における金属絶縁体転移の NMR による研究 III、日本物理学会第 71 回年次大会 (東北学院大)、2016
- IX-1** T. Koyama, H. Yamada, K. Ueda, T. Mito, Y. Aoyama(新潟大院自然), N. Nakano(新潟大院自然), N. Takeda(新潟大工): NMR studies on polyphosphide Ce₆Ni₆P₁₇, J. Physics: Conference Series **683**, 012027 (2016)
- IX-2** 小山岳秀・岩崎 聡・山田陽彦・上田光一・水戸 毅・青山悠司(新潟大院自然)・中野智仁(新潟大院自然)・武田直也(新潟大工): 立方晶 Ce₆Ni₆P₁₇ の基底状態の NMR による研究、日本物理学会 2015 年秋季大会 (関西大)、2015
- IX-3** T. Koyama, H. Yamada, K. Ueda, T. Mito, Y. Aoyama (新潟大院自然), T. Nakano (新潟大院自然), N. Takeda(新潟大工): NMR studies on polyphosphide Ce₆Ni₆P₁₇, TMU International Symposium on New Quantum Phases Emerging from Novel Crystal Structure, (首都大学東京)、2015

大学院物質理学研究科

博士後期課程

江見 直哉: 多角的に観測する非局在性が強い *f* 電子状態の研究

博士前期課程

三木 俊宙: URu₂Si₂ の構造対称性に関する微視的研究

中山 大将: NMR, NQR から見る中間価数物質 Yb 系化合物の温度依存性

丸山 文博: 価数転移を示す EuPtP の NMR による研究

山田 陽彦: 濃縮 ³³S を用いた NMR による SmS の物性研究

濱端 良輔: *f* 電子系化合物における微視的対称性変化の研究

科学研究費補助金等

- 1 文部科学省科学研究費補助金 (平成 26～27 年度) 若手研究 (B) 課題番号:26800193
研究課題 希土類化合物における圧力誘起絶縁体－金属転移現象の微視的研究
研究代表者 小山岳秀
- 2 兵庫県立大学教育研究助成 (平成 27 年度)
研究課題 マイクロレベルの結晶歪観測手法の開発
研究代表者 水戸 毅