特集 —— 複合極限環境下における精密物性測定 ——

複合極限環境下（低温・磁場・圧力下）における
超音波測定

Recent Advances in Ultrasonic Measurements under Multi-Extreme Conditions

中西 良樹

Yoshiki NAKANISHI

In this article, we review recent advances in ultrasonic measurements under multi-extreme conditions such as high pressures, high magnetic fields and low temperatures. We have developed a clamped piston-cylinder high-pressure cell for the application of hydrostatic pressure and uniaxial one as well, and succeeded to perform the ultrasonic measurement under multi-extreme conditions, even in a pulsed magnetic field for the first time. We show the technical details, the current problems and some of recent results obtained in compounds with a ThCr_2Si_2 -type crystal structure such as EuRh_2Si_2 and BaFe_2As_2 .

[*clamp cell, ultrasonic measurement, hydrostatic pressure, uniaxial pressure, phase transition, valence instability, multi-extreme conditions, pulsed magnetic-field*]

1. はじめに

物質の性質（物性）を決める主要因として、物質を構成している原子自身の持つ性質、およびその原子の空間配列が極めて重要な役割を果たしている。換言すると、両者の状態を変化させることで新規物性現象を誘起することが期待出来る。これらの両要因に本質的な変化をもたらす外部変数として、圧力が挙げられる。こうした背景から、外部変数としての圧力は、温度、磁場と共に基本変数としてその重要性が深く認識されている。原子を構成している電子は、電荷、スピン、軌道と3つの内部自由度を有しており、この3つの自由度が電子物性を決める上で多彩さを産む。更に原子の配列が、電子間、あるいは電子格子間に働く各種相互作用を決定し、電子の持つ自由度に介在することで、磁気秩序、多重極子秩序、重い電子系、非従来型超伝導、価数転移等の興味深い量子現象を創出する[1]。

また、圧力は電子間の相互作用を連続的に変化させることで、元素置換とは異なる緻密且つ、系を乱さないクリーンな研究舞台を提供する大きな長所が

ある。著者が研究対象としている量子臨界点近傍の電子状態についても、イオン間距離を近づけ波動関数の重なりを大きくすることで、場合によっては電子相を大きく変貌させる効果をもたらす。電子間相互作用が極めて強い強相関電子系では、取り分け圧力効果が顕著に現れ、その意義は高い。その一方で圧力測定独特の問題にも直面する。試料空間のサイズに大きな制約が生じてしまうこと、圧力媒体に直接素子を入れなければならないこと等が挙げられる。本稿では、極低温・強磁場・高圧力の複合環境下における超音波測定に関するこれまでの研究と現状、さらに問題点および今後の課題について紹介する。

2. 超音波測定と物質の弾性特性

本稿で中心となる超音波測定について簡単に紹介する。超音波測定によって我々は物質の弾性特性、すなわち物質の硬さ軟らかさを知ることが出来る。この測定を通じて、電気抵抗、帯磁率、誘電率等と並ぶ基本物理量の一つ弾性定数： C を得ることが出来る。実際は歪み感受率（あるいは電気感受率、四

極子感受率とも称される) と呼ばれる結晶内の格子歪みに対する線形応答を観測している。具体的には結晶内の“音の速さ: v ”を測定することで、物質の密度 ρ を用いて $C = \rho v^2$ から弾性定数に換算している。結晶中のイオンがお互い「ばね」で結合した粗視化を考えると、ばね定数が弾性定数に対応する。ばね定数が大きくなるとイオン(格子)振動の伝搬速度は速くなり、小さくなると遅くなる。これは、物質がそれぞれ「硬くなる」ことと「軟らかくなる」ことに対応する。このようにして結晶中の音速と物質の硬さ(弾性特性)の対応が理解出来る。

実際の測定では、平行に面出した結晶両面に圧電素子(トランスデューサー)を貼付け、高周波電気信号を片面の素子に入射することで超音波信号に変換し、結晶中を伝搬させる。結晶中を伝搬し、反射を繰り返した超音波信号を、もう一方の圧電素子で電気信号に変換し、もとの電気信号との振幅および位相差を比較することで信号の実部成分、虚部成分から音速と超音波吸収係数を抽出する[2]。

超音波信号が結晶中に入射されると、結晶中には格子歪みが誘起され、局所的な「歪み場」が生じる。この局所歪みに共役な秩序変数が歪み場と選択的に結合し、線形応答に変化を与える。結晶中では、電荷分布、特に電荷を多重極展開した際の電気四重極モーメントが、共役な秩序変数として線形応答に最も大きく寄与する。換言すると電気四重極モーメントになり得るものであれば、その成因は電荷、増強された伝導電子、 $3d$, $4f$ 電子軌道等、秩序変数の種類を問わない。こうした特徴から、希土類の価数揺動系、籠状物質の大振幅非調和格子振動、重い電子系のフェルミ面、さらには希土類化合物の $4f$ 結晶場基底状態、遷移金属化合物の $3d$ 軌道状態等に関する微視的な情報を得る有力な実験手法として超音波測定は物性研究の分野で幅広く利用されてきた[2]。

一般に結晶中で誘起される歪み場は ε_{ij} ($i, j = x, y, z$)、変位 $u = (u_x, u_y, u_z)$ を用いて

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_j}{\partial i} + \frac{\partial u_i}{\partial j} \right) = \varepsilon_{ji} \quad (1)$$

で記述され、任意の歪みは対称化された歪みによって記述される。対称性の高い結晶構造では、対称化された歪みの数は少なくなる。この対称化された歪みの空間対称性と電荷分布のそれとが合致すると、選択的に強く結合する。例として、この電荷分布が

Table 1. Irreducible representations of the strains, operator equivalents of the quadrupole moments and the corresponding elastic constants in tetragonal symmetry.

Symmetry D_{4h}	Orbitals/Quadrupoles	Elastic strain/Deformation	Elastic Constants
Γ_1 A_{1g}	$O_z = z^2$	ε_{zz} $\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}$	C_{33}
Γ_3 B_{1g}	$O_2 = x^2 - y^2$	$\varepsilon_{xx} - \varepsilon_{yy}$	$C_4 = \frac{1}{2}(C_{11} - C_{12})$
Γ_4 B_{2g}	$O_{xy} = xy$	ε_{xy}	C_{55}
Γ_5 E_g	$O_{yz} = yz$ $O_{zx} = zx$	ε_{yz} ε_{zx}	C_{44}

四重極子モーメントに起因する場合、Table 1 で示される四重極子演算子と対称化歪みが対応する。この電荷分布がイオンの電荷分布、イオンの非調和振動であっても事情は同じである。ここでは後述のためにも具体的に正方晶系に関する歪みについて紹介する (Table 1)。

超音波測定の実験で使用されている超音波の周波数 f は、一般的に $f = 5 \sim 100$ MHz の帯域である。これは波長に換算すると $\lambda = 10^{-1} \sim 10^{-2}$ mm 程度の長さに対応し、原子間隔に比して十分長いことが分かる。このことは物質を構成している原子、分子の要素を無視し、それらを平均化した均一の物質として見なす連続体として良く近似出来ることを意味している。従って、フックの法則を用いて超音波により結晶中に誘起された歪み ε_{ij} ($i, j = x, y, z$) と応力 σ_{kl} ($k, l = x, y, z$)、両者を結ぶ結合定数である弾性定数 $C_{kl ij}$ は式

$$\sigma_{kl} = \sum_{ij} C_{kl ij} \varepsilon_{ij} \quad (2)$$

で記述できる[3]。ここで σ_{kl} は k 方向に垂直な面に働く l 方向の応力である。歪みが固体中に誘起された際、結晶自身の回転が生じないため、応力には

$$\sigma_{kl} = \sigma_{lk} \quad (3)$$

の関係が生じる。この条件が入ることで弾性定数にも

$$C_{ijkl} = C_{klij} \quad (4)$$

の関係が成立し、独立な弾性定数は 36 個から 21 個に減少する。また正方形の対称性を加味すると（例えば x と y の入れ替えに対して不変）以下の 6 種類の弾性定数が独立として残る。ここで弾性定数の添字には Voigt 表記を用いた。

$$\begin{pmatrix} \sigma_{xx} \\ \sigma_{yy} \\ \sigma_{zz} \\ \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} \\ \sigma_{xy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{66} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} \\ \varepsilon_{yy} \\ \varepsilon_{zz} \\ \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} \\ \varepsilon_{xy} \end{pmatrix} \quad (5)$$

($xx \rightarrow 1, yy \rightarrow 2, zz \rightarrow 3, yz \rightarrow 4, zx \rightarrow 5, xy \rightarrow 6$)

線形応答である歪み感受率の温度変化には、超音波で誘起された固体中の格子歪みと秩序変数の結合に関する微視的情報が含まれる。ここで、四重極子モーメントと磁気双極子モーメントとの対比により、歪み感受率について補足する。外場を磁場に選んだ際、共役となる物理量は磁気双極子モーメントである。よく知られている様に、基底状態のスピン自由度に関する情報は、帯磁率の温度変化に如実に現れる。系の低エネルギー付近に、磁気双極子モーメントに関する縮退がある場合（系がクラマース縮退している場合）、温度の逆数に比例したキュリー項が低温物性を支配する。磁気双極子モーメント間に働く相互作用エネルギー以下に温度が下がると、磁気転移（磁気秩序）が生じる。また同様な状況は誘電体でも成立する。外場を電場に選んだ際、共役となる物理量は電気双極子モーメントである。同様に電気双極子モーメント間の静電相互作用により、相互作用エネルギー以下に温度が下がると誘電転移が生じ得る。

次に圧力下実験について説明する。圧力の種類には、等方的に圧力が生成される静水圧力と一軸的に生成される一軸圧力がある。本稿で紹介する実験では、圧力発生装置として一般的なピストンシリンダー型高圧発生装置を用いて両圧力実験を行った。静水圧力下実験では Cu-Be 製の高圧セルを用い、Cu-Be 製のシリンダー内に超硬合金である NiCrAl を用いたハイブリッド型高圧セルを使用した。静水圧力下における超音波測定の詳細は、前回の特集号にて記載しているので、そちらを参照して頂きたい [4]。一軸圧力下での超音波測定の際に使用した圧力セルについて紹介する。静水圧力実験と異なり、一軸圧力実験で細心の注意を払わないといけない点

Fig. 1. Schematic cross section of a clamp device for ultrasonic measurements under uniaxial pressure.

は、試料の損壊（破壊）である。特に共同研究者から提供して頂いた試料を用いる場合、極めて慎重に行わなければならない。後述する新しいセルの動作確認で試験的に多結晶試料を用いた理由の一つがこの点にある。

Fig. 1 は Cu-Be 製ピストンシリンダー型一軸圧力セルを示す。静水圧力セルとの大きな相違点は、圧電素子を装着した試料をテフロン容器内に圧力媒体と一緒に挿入する必要はなく、特製バネを介した NiCrAl 製ピストンを用いて測定試料を直接挟む形式になっている。尚、圧力は下部のナットを回転させることで内部のピストンが押し込まれ、試料に対して直接セルの長さ方向に一軸圧力が加圧される原理となっている。ピストンの向きに垂直な方向に関して、Cu-Be 製の外部セルに予め窓を開けておくことで、圧電素子を試料に装着することが出来る。つまり試料に印加される一軸圧力： P と超音波の伝搬する方向： k は直交した配置になっている。この形式の一軸圧力セルでは $P \perp k$ 配置のみの測定が可能となる。また、試料の面全体をピストンで押すため、ピストンと接している試料面は、ピストンの断面積に比べ小さくなければならない。その際、圧電素子（2 mm～4 mm 四方）とピストンとの空間干渉を回避するため、その垂直面については圧電素子

のサイズ以上の試料面積が最低限必要になる。このように、今回用いた一軸圧力セルは、試料サイズ、試料形状に関して大きな制約を受ける。

3. 静水圧力または一軸圧力と静磁場を組み合わせた超音波測定

圧力下超音波測定の最近の研究について紹介する。まず静水圧力下における EuRh_2Si_2 の超音波測定について述べる。正方晶 TrCr_2Si_2 型結晶構造を有するこの系は、Eu の価数が基本的には +2 価を有しているものの、大変不安定な価数状態にあることが特徴として挙げられる。 EuRh_2Si_2 は常圧において温度 25 K で磁気転移を示す[5–10]。帯磁率において明瞭な折れ曲がり（カスプ）が 25 K で観測されていることから磁気転移であることを裏付けている。これは $\text{Eu}^{2+} : 4f^7, J=7/2$ および $\text{Eu}^{3+} : 4f^6, J=0$ 。しかしながら、圧力を印加すると Eu の価数が圧力に強く依存して変化する。この Eu の価数変化に引きずられ、常圧の磁気転移の挙動に大きな変化が見られる。常圧帯磁率で観測されたカスプは圧力印加に伴い徐々に小さくなりブロード化していくと同時に、僅かに高温側へとシフトする。約 1.0 GPa 近傍でカスプは消失する。更に高い圧力では、その転移温度は上昇し、帯磁率のカスプは消失したものの熱線膨張の急激な減少を伴う相へと移り変わっていく。これは、この圧力で Eu の価数が転移することで Eu^{2+} の比率（成分）が小さくなることに対応し、Eu イオンの価数がこの圧力下で変化していると考えられる[5,10]。

この様な基礎物性を持つ EuRh_2Si_2 について、多結晶試料を用いて弾性定数の測定を行なった。Fig. 2 は多結晶試料 EuRh_2Si_2 の横波超音波に対する弾性定数の温度依存性を示す。温度を減少させるに従い、弾性定数は単調に増加していく。この振る舞いはイオンの熱振動が抑えられ、系が硬くなることを反映しており、通常物質で観測される現象である。しかしながら、反強磁性転移温度 $T_N=25$ K で明瞭なディップ構造を示し、約 20 K 付近で極大値を持ったあとソフト化し、約 10 K 付近で極小値を示す。Fig. 3 は圧力 $P=0.5$ GPa 下での縦波超音波に対する弾性定数の温度変化を示す。横波同様、温度を減少させるに従い、弾性定数は単調に増加していく。反強磁性転移温度 $T_N=25$ K で僅かな弾性異常が伺

Fig. 2. Temperature dependence of the transverse elastic constant C_T at ambient pressure in the absence of an external magnetic field. The dotted vertical line and arrow denote the Néel temperature point.

Fig. 3. Temperature dependence of the longitudinal elastic constant C_L under a pressure of 0.5 GPa in the absence of an external magnetic field. The dotted vertical line and arrow denote the Néel temperature point in the absence of an external magnetic field.

える。更に約 5 K 付近で弾性定数が急激に減少する振る舞いを見せる。ここで特筆すべき点は、この弾性異常が出現する温度領域で、他の基本物理量には明瞭な異常が観測されていないことである。つまり、弾性定数にのみ顕著に現れている異常である。後述する様に、この異常は外部圧力、外部磁場に対しても依存性を示す。

Fig. 4 は、一定圧力下、 $P=0.5$ GPa のゼロ磁場、および幾つかの磁場中における縦波弾性定数の温度変化を示す。各磁場の結果は、比較のため縦軸方向に任意にシフトさせてある。反強磁性転移温度で観測された弾性異常は、印加磁場を増加させるに従い、僅かであるが低温側にシフトする。また約 5 K 付近で観測された弾性異常が磁場増加により、その形状を変え、跳びの大きさも抑制される傾向を示す。Fig. 5 は印加圧力を更に増加させ、系が価数揺動状態になっていると考えられる $P=1.0$ GPa のゼロ磁場および幾つかの磁場中における縦波弾性定数の温度変化を示す。 $P=0.5$ GPa に比べると磁場依存性がより顕著になり、約 25 K 付近の弾性異常がよりはっきりと認識できる。更に、ゼロ磁場ではアップ・ターンの振る舞いも観測される。磁場印加に伴い約 25 K 付近の弾性異常は低温側にシフトし、その振る舞いは、 $P=0.5$ GPa に比べてより磁場依存性が大きいことが分かる。また約 5 K 付近の弾性異常も $P=0.5$ GPa のそれと異なり、ゼロ磁場では減少ではなく上昇していることが分かる。しかし、磁場を印加することで約 5 K 以下の弾性定数の温度依存性が減少に転じていく。

これらの結果を温度磁場相図にまとめたものが Fig. 6 である。図中には、異なる印加圧力の結果も

Fig. 4. Temperature dependence of the longitudinal elastic constant C_L under a pressure of 0.5 GPa at the selected external magnetic fields. The dotted vertical line denotes the Néel temperature point at ambient pressure in the absence of an external magnetic field. The arrows indicate the positions of anomalies determined.

Fig. 5. Temperature dependence of the longitudinal elastic constant C_L under a pressure of 1.0 GPa at the selected external magnetic fields. The arrows indicate the positions of anomalies determined.

Fig. 6. The magnetic phase diagram of a polycrystalline sample of EuRh_2Si_2 under the selected pressures.

えられている[5,10]。更なる実験と解析が今後必要ではあるが、多結晶試料を用いた測定でさえも臨界圧力約 $P=0.8$ GPa の前後で弾性定数に出現する異常の振る舞い、ならびに相境界の振る舞いに顕著な違いが見出せる。ここで約 5 K 付近に出現した弾性異常について言及する。この温度における他の物性異常は観測されていないが、帯磁率の結果を注意深くみると、約 5 K 付近に僅かな異常が観測され、帯磁率の振る舞いもこの温度以下で僅かに圧力依存を示す[5]。その起源は現時点で不明ではあるが、弾性定数に取り分け顕著に出る興味深い振る舞いである。これは巨視的な物理量に現れる異常であり、不純物の効果と解釈するのは難しい。中性子散乱、X 線回折等、微視的な手法を用いた、弾性特性に関する実験が望まれる。

次に一軸圧力下における超音波測定の結果を紹介する。鉄系超伝導体物質の 1 つ BaFe_2As_2 の弾性定数についてこれまでに得られているデータの一部を述べる。この系は EuRh_2Si_2 と同様、正方晶 TrCr_2Si_2 Si_2 型結晶構造を有する物質群であり、As をイオン半径の小さい P で置換することにより超伝導相が出現する。その母物質 TrCr_2Si_2 は 140 K でスピン密度波転移を伴った構造相転移（正方晶 $I4/mmm$ から斜方晶 $Fmmm$ ）を生じる[11–15]。Fig. 7 は TrCr_2Si_2 の単結晶試料の c 軸に縦波を伝播させ a 軸

に一軸圧を加えた弾性定数 C_{33} の温度変化の結果である。0 GPa では、構造相転移温度 $T_s=140$ K で顕著な弾性異常（鋭いカスプ）が観測されている。これは、我々のグループで以前に報告した結果と等しい[13,14]。

特筆すべき点は、一軸圧力を 0.1 GPa、0.4 GPa と印加することで転移温度が高温側にシフトし、転移に伴う弾性異常の大きさが急激に抑制されることである。 BaFe_2As_2 に関しては静水圧力下での物性測定のみ、これまで報告がある[15]。現時点では深い議論は出来ない状況であるが、興味深いのは、一軸圧力の印加方向によっては、静水圧力の圧力依存性と大きく異なる振る舞いを示すことである。つまり、静水圧力下では圧力印加に伴い、転移温度は低温側にシフトするが、 a 軸に一軸圧を印加すると、圧力増加に伴い高温側に転移温度がシフトする。この系では Fe の 3d 電子がフェルミ面を形成し、その電子軌道が構造相転移、磁気転移に深く関わっていると考えられている[16–18]。 a 軸に一軸圧を印加することで、系の物性を大きく支配している 3d 電子バンドに対し、等方的な静水圧とは異なる異方的な歪みを与えている。推測の域ではあるが、光電子分光実験とバンド計算の結果から指摘されている X 点を中心に形成しているホール面が磁気転移および構造相転移に大きく関与していると考えられている。X 点を中心に形成しているホール面に局所応力 σ_{xx} が作用し、局所的な結晶対称性を破ることで静水圧とは異なる転移点の上昇をもたらしたのかも知れない[19–21]。同系で報告されている輸送現象の異方的な振る舞いと格子系の異方性との関係は、明らかにされるべき今後の課題である。

4. 一軸圧力とパルス強磁場を組み合わせた超音波測定

最後に、一昨年より始めたパルス強磁場と一軸圧力装置を組み合わせた超音波測定について簡単に紹介する。まだ問題点が多く、今後改善すべき点も多くあることを予め断っておく。パルス強磁場と圧力の組み合わせは、静磁場下の測定に比べると克服すべき課題が多い。特に、パルス磁場中で顕著に現れる渦電流効果（eddy current）は重要な課題である。定常磁場下の実験と異なり、この効果の大きな影響を受ける。静磁場と異なり短時間に大電流をコイルへ放出し、パルス磁場を発生するため、パルス磁場

Fig. 7. Temperature dependence of the elastic constant C_{33} of the singlecrystalline sample BaFe_2As_2 under several uniaxial pressure of 0, 0.1 and 0.4 GPa from the bottom in the absence of an external magnetic field. The arrows indicate the positions of anomalies determined.

中では金属部品あるいは試料自身に、急激に磁場が侵入し、その侵入磁場を打ち消す様に渦電流が発生し、試料の温度上昇を引き起こし、更に高周波信号の S/N 比を著しく下げてしまう。こうしたパルス磁場独特の問題を解決しなければならない。そのため、圧力セルに用いる材料に関して格別の注意を払わなければならない。つまり非磁性かつ極めて伝導性の低い物質を用いることが不可欠となる[22–25]。一方で、圧力セルに用いる材質としては金属が持つ機械強度、さらには加工性に関しても配慮する必要がある。

これらの重要な特性を平均的に兼ね備えた物質の一つとして、今回は複合樹脂である Parmax を用いた[24–25]。すなわち、前述した一軸圧力セルを Cu–Be 主体ではなく、パルス強磁場下用に Parmax 材を用いて製作した (Fig. 8)。圧力セルの構成は前述した Cu–Be 製のものと全く同じであり (Fig. 1)、低温環境下で定圧を保つためのスプリング (バネ) は Cu–Be 製セルと同じものを用いた。また、試料を直接押さえるピストン (push rod) も、伝導性の悪い Parmax 材を用いた。この圧力セルを用いて、動作確認も含め前出の EuRh_2Si_2 について測定を行った。ここで用いた試料は EuRh_2Si_2 の多結晶試

料である。そのため、一軸圧を印加してはいるが、効果としてはそれぞれの結晶軸に関して平均化した圧力効果となっていると考えられる。

Fig. 9 および 10 は、本一軸圧力セルを用いて測定した EuRh_2Si_2 の秩序相における一定一軸圧力下での弾性定数の磁場変化である。秩序相では、約 1 T 付近でメタ磁性転移を生じることが先行研究で明らかにされており、このメタ磁性転移が静水圧力依

Fig. 8. (Color online) Overview of a clamp device for ultrasonic measurements under uniaxial pressure.

Fig. 9. (Color online) Magnetic field dependence of the longitudinal elastic constant C_L of polycrystalline sample EuRh_2Si_2 at the temperature of 4 K at ambient pressure and an uniaxial pressure of 0.3 GPa.

Fig. 10. (Color online) The low magnetic field parts of Fig. 9. Magnetic field dependence of the longitudinal elastic constant C_L of polycrystalline sample EuRh_2Si_2 is shown at the temperature of 4 K at ambient pressure and several uniaxial pressures of 0.3, 0.4, 0.5 and 0.6 GPa. The arrows indicate the positions of the anomalies determined.

存を示す[10]。メタ磁性に伴う弾性異常が明瞭に観測され、一軸圧力を加えることで弾性異常の転移磁場が高磁場側へ移動することが分かる。また弾性異常の形状も、僅かであるがブロード化していることも分かる。この振る舞いは、先行実験である静水圧力下で行なわれた磁化測定の結果とほぼ一致する[10]。

ここで、このセルの解決すべき問題について、2点言及する。一軸圧力測定では、圧力校正がいつも大きな問題となる。今回のセルに関しては、セル下部に取付けられているクランプナットを締めることで、試料に接するピストンを通して圧力を印加している。クランプナットを締める際のトルクを測定し、この値と印加圧力を校正し、間接的に決定した圧力値として今回は表示している。この校正値を用いて、多結晶試料 EuRh_2Si_2 のメタ磁性転移に起因した弾性異常の一軸圧力依存性と、同物質の先行研究である静水圧力下磁化測定で得られたメタ磁性転移の圧力依存性を比較すると、ほぼ一致はするものの、厳密な印加圧力を校正するには別の方法が必要である。静水圧の様にマノメーターとして Sn , Pb の超伝導転移温度変化を用いる手法も挙げられるが、実験で印加されている一軸圧力は、一般に静水圧力に比べると極めて小さく、従って Sn , Pb の超伝導転移温度の変化も小さく有意性に欠ける。この問題を解決

するため、誤差の極めて小さい正確なばね定数を試料ホルダーの上部（室温部分）に用いて、ばねの復元力が試料に一軸印加する機構のセルを現在考案している。挿入したばねの縮み長から印加一軸圧力を逆算し、より正確な一軸圧力値の算出が可能であると考えられる。今回の一軸圧力セルで、もう一つ言及しなければならない重要な点がある。このセルは、一軸圧を加えた結晶面以外の方向は固定されておらずフリーになっている。つまりポアソン比に応じて変形する。この制約は、圧電素子を測定試料に貼付しなければならないため、測定上避けられないものである。本稿で紹介した一軸圧力下の超音波測定では、印加圧力方向に垂直な方向で伸縮が生じる。他の一軸圧力下物性実験と比較する際、こうした一軸圧力実験の条件の違いに注意を払わなければならない。

5. おわりに

最近の圧力下超音波測定研究に関して、静水圧および一軸圧力についてそれぞれ紹介した。特に一軸圧力下の超音波測定に関しては、静磁場およびパルス磁場中のセルについて現況を述べた。他の物性実験と同様に印加一軸圧力の校正が超音波測定でも大きな課題として挙げられる。パルス磁場下での一軸超音波測定では、一軸圧力セルの材質として伝導性、機械特性、加工性の面から Parmax は十分機能すると考えられる。超音波が結晶中に誘起する格子歪みと共役な外場である一軸圧（応力）は、現時点では実験手法として改善すべき点はまだ多くあるが、将来的に物質の弾性特性、特に弾性特性の異方性という側面から、新規量子現象の機構解明に新しい切り口として貢献出来ることを期待している。

謝 辞

本研究は、中村 光輝 氏、吉澤 正人 氏（以上、岩手大学）小坂 昌史 氏（埼玉大学）、大橋 政司 氏（金沢大学）、光田 暁弘 氏、和田 裕文（以上、九州大学）、Erfanifam Salim 氏、Shadi Yasin 氏、Zherlytsin Sergei 氏、Wosnitza Joachim 氏（以上、ドレスデン強磁場施設：Helmholtz-Zentrum-Dresden-Rossendorf）との共同研究である。特に米国国立高磁場研究所（NHMFL: National High Magnetic Field Laboratory）Stanley W Tozer 氏には、本稿

で紹介したパルス強磁場下一軸圧力セルで用いた貴重な特殊樹脂, Parmax を好意で提供して頂きました。深く感謝致します。本研究の一部は、岩手大学のサヴァティカル研修制度を利用して行われたものです。また、本研究の一部は JSPS 科研費 24540354 の助成を受けて行われました。

参考論文

- [1] 毛利信夫 編: 新しい高圧力の科学 (講談社サイエンティフィック, 東京, 2003).
- [2] B. Lüthi: *Physical Acoustics in the Solid State* (Springer, 2004).
- [3] C. Kittel: *Introduction to Solid State Physics* 8th Edition (John Wiley & Sons, Inc).
- [4] 中西良樹, 孫培傑, 藤野拓也, 中村光輝, 吉澤正人: 高圧力の科学と技術, **16**, 357 (2006).
- [5] A. Mitsuda, S. Hamano, N. Araoka, H. Yayama, H. Wada: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 023709 (2012).
- [6] I. Felner, I. Nowik: *J. Phys. Chem. Solids*, **45**, 419 (1984).
- [7] B. Chevalier, J.M.D. Coey, B. Lloret, J. Etoumeau: *J. Phys. C*, **19**, 4521 (1986).
- [8] Z. Hossain, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich: *J. Alloys. Compound*, **323–324**, 396 (2001).
- [9] S. Seiro, C. Geibel: *J. Phys. Conds. Matter.*, **26**, 046002 (2014).
- [10] A. Mitsuda, S. Hamano, H. Wada: *J. Korean Phys. Soc.*, **62**, 1787 (2013).
- [11] M. Rotter, M. Tegel, D. Johrendt: *Phys. Rev. Lett.*, **101**, 107006 (2008).
- [12] M. Rotter, M. Tegel, D. Johrendt, I. Schellenberg, W. Hermes, R. Pöttgen: *Phys. Rev. B*, **78**, 020503 (R) (2008).
- [13] M. Yoshizawa, D. Kimura, T. Chiba, S. Simayi, Y. Nakanishi, K. Kihou, C.H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, M. Nakajima, S. Uchida: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 024604 (2012).
- [14] S. Simayi, K. Sakano, H. Takezawa, M. Nakamura, Y. Nakanishi, K. Kihou, M. Nakajima, C.H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, S. Uchida, M. Yoshizawa: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **82**, 114604 (2013).
- [15] E. Colombier, S.L. Bud'ko, N. Ni, P.C. Canfield: *Phys. Rev. B*, **79**, 224518 (2009).
- [16] M. Yi, D.H. Lu, J.G. Analytis, J.-H. Chu, S.-K. Mo, R.-H. He, R.G. Moore, X.J. Zhou, G.F. Chen, J.L. Luo, N.L. Wang, Z. Hussain, D.J. Singh, I.R. Fisher, Z.-X. Shen: *Phys. Rev. B*, **80**, 024515 (2009).
- [17] T. Kondo, R.M. Fernandes, R. Khasanov, C. Liu, A.D. Palczewski, N. Ni, M. Shi, A. Bostwick, E. Rotenberg, J. Schmalian, S.L. Bud'ko, P.C. Canfield, A. Kaminski: *Phys. Rev. B*, **81**, 060507 (R) (2010).
- [18] Y. Kim, H. Oh, C. Kim, D. Song, W. Jung, B. Kim, H. J. Choi, C. Kim, B. Lee, S. Khim, H. Kim, K. Kim, J. Hong, Y. Kwon: *Phys. Rev. B*, **83**, 064509 (2011).
- [19] E.C. Blomberg, A. Kreyssig, M.A. Tanatar, R.M. Fernandes, M.G. Kim, A. Thaler, J. Schmalian, S.L. Bud'ko, P.C. Canfield, A.I. Goldman, R. Prozorov: *Phys. Rev. B*, **85**, 144509 (2012).
- [20] S.L. Bud'ko, N. Ni, S. Nandi, G.M. Schmiedeshoff, P.C. Canfield: *Phys. Rev. B*, **79**, 054525 (2009).
- [21] M.A. Tanatar, N. Ni, G.D. Samolyuk, S.L. Bud'ko, P.C. Canfield, R. Prozorov: *Phys. Rev. B*, **79**, 134528 (2009).
- [22] 竹下直, 寺倉千恵子: 高圧力の科学と技術, **14**, 260 (2004).
- [23] Y.H. Matsuda, K. Uchida, K. Ono, Z. Ji, S. Takeyama: *Int. J. Mod. Phys. B*, **18**, 3843 (2004).
- [24] W.A. Coniglio, D.E. Graf, S.W. Tozer: *High Pressure Res.*, **33**, 425425 (2013).
- [25] X. Wang, M. Misek, M.K. Jacobsen, K.V. Kamenev: *High Pressure Res.*, **34**, 371 (2014).

[2015 年 8 月 5 日受付, 2015 年 10 月 15 日受理]

© 2015 日本高圧力学会