

令和 元年 5 月 17 日現在

機関番号：82110

研究種目：国際共同研究加速基金（国際共同研究強化）

研究期間：2016～2018

課題番号：15KK0174

研究課題名（和文） 遍歴強磁性超伝導体における磁場誘起超伝導メカニズムの微視的解明（国際共同研究強化）

研究課題名（英文） Microscopic investigation of the mechanism of field-induced reentrant superconductivity in itinerant ferromagnetic superconductors (Fostering Joint International Research)

研究代表者

徳永 陽 (Tokunaga, Yo)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 先端基礎研究センター・研究主幹

研究者番号：00354902

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 6,300,000円

渡航期間： 10ヶ月

研究成果の概要（和文）：本国際共同研究では、最先端の高磁場NMR技術を持つフランス国立強磁場研究所に滞在し、強磁性超伝導体における磁場誘起超伝導メカニズムの解明を極低温高磁場下のNMR法により行った。その結果、17テスラ100mKという極低温強磁場でGe-NMR信号の観測に初めて成功した。更にその信号を用いて核磁気緩和時間の磁場依存性を測定し、超伝導が出現する400mK以下の温度領域においても磁場誘起三重臨界点に起因する強いスピン揺らぎが存在することを明らかにした。このことはウランの5f電子スピンの揺らぎが磁場誘起超伝導の引力の起源となっていることを強く示唆している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超伝導はもともと磁場とは相性が悪く、強い磁場をかけていくと最後には超伝導が壊されてしまう。ところがウラン化合物で見つかった強磁性超伝導体では、磁場によって新しい超伝導が誘起される。この特異な振る舞いは、新しい超伝導機構の存在を直感的に示唆している。本国際共同研究では、最先端の高磁場NMR技術を持つフランス国立強磁場研究所と共同で、ウラン系強磁性超伝導体のNMR研究を行い、磁場で誘起されたスピン揺らぎが磁場誘起超伝導の発現に強く関わっていることを明らかにした。今後この磁場で安定化する特異な超伝導機構が解明が進めば、超伝導応用の可能性を大きく広げることになる。

研究成果の概要（英文）：Ferromagnetic (FM) order is incompatible in general with superconductivity with singlet spin pairs, since a strong exchange field in FM state forces the spin pairs to align in the same direction. In contrast, fluctuation of FM moments has been supposed to create a binding force between quasiparticles with triplet spin, in the same manner as in the mechanism of superfluid pairing in  $^3\text{He}$ . Such an unconventional spin-triplet state, mediated by FM fluctuations, is now expected to be realized in a family of uranium based compounds. In this study, we have collaborated with LNCMI-Grenoble in France, and performed NMR studies on a single crystal of uranium based FM superconductor URhGe. Our NMR results provides strong evidence that the pairing mechanism of reentrant superconductivity in URhGe is mediated by spin fluctuations developed around the tricritical point under magnetic fields.

研究分野：固体物理

キーワード：強磁性超伝導 核磁気共鳴 磁場誘起超伝導 三重臨界点 磁気揺らぎ

## 1. 研究開始当初の背景

超伝導はもともと磁場とは相性が悪く、どんな超伝導体も強い磁場をかけていくと、最後には超伝導が壊されてしまう。ところがウラン化合物の強磁性超伝導体では、同じウラン電子が強磁性と超伝導を同時に担っており、更に驚くべきことに、磁場によって新しい超伝導が誘起される(磁場誘起超伝導)。この特異な超伝導の振る舞いは、強磁性揺らぎを利用した新しい超伝導機構の存在を直感的に示唆している。更に磁場で安定化する超伝導が解明できれば、超伝導の応用の可能性を大きく広げることになる。

この超伝導の解明のため、研究代表者は2014年から科研費基盤(C)の援助を受け、遍歴強磁性体 URhGe について NMR による研究を行ってきた。その結果、磁場によるウラン電子の磁氣的揺らぎの増大が、この物質の磁場誘起超伝導の出現に強く関与していることを示す結果が得られた。この成果は、強磁性揺らぎによる新しい超伝導の可能性を示す実験結果として高く評価され、米国物理学会誌 *Physical Review Letters* 誌に注目論文(Editor's suggestion)として掲載された。

## 2. 研究の目的

本国際共同研究の目的は、上記の科研費基盤(C)の研究を進展させ、日仏トップレベルの核磁気共鳴法(NMR)による測定技術を融合し、ウラン化合物で発見された磁場誘起超伝導の発現メカニズムを実験的に解明することである。上記の研究では、磁場により誘起された臨界的な磁氣的揺らぎが、この物質の超伝導の出現に深く関与していることを示すことができたが、測定を行なった際の最低温度は1.4Kであり、磁場誘起超伝導が出現するよりも前の高い温度領域でしか測定ができなかった。しかしより踏み込んで、この磁気揺らぎが磁場誘起超伝導の発現機構の鍵であることを明確に示すには、超伝導が出現する温度領域での実験が必要であった。しかしそのような研究には極低温と強磁場が同時に必要となるため、技術的に難しく、これまで実施することができなかった。

そこで本国際共同研究では、最先端の高磁場 NMR 技術を持つフランス国立強磁場研究所の協力をのもと、極低温高磁場下の NMR 研究を進めた。NMR 法は超伝導の対称性や結合の強さを直接決定できる非常に強力な測定手法であり、その情報はまさに超伝導解明の鍵となる。磁場誘起超伝導状態の NMR 観測を世界に先駆けて行い、強磁性揺らぎによる新しい超伝導メカニズムを徹底的に検証する。通常は超伝導を抑制する強磁場がなぜ超伝導を安定化させるのか? その解明はまさしく磁性と超伝導が絡み合う強相関電子物性の本質に迫るものである。

## 3. 研究の方法

研究代表者は2016年10月より10ヶ月間、フランスのグルノーブルにある国立強磁場研究所に滞在し、同研究所の NMR 研究グループと共同で、URhGe 単結晶において極低温強磁場下での  $^{73}\text{Ge}$  核の核磁気共鳴(NMR)測定を実施した。自然存在比の小さい  $^{73}\text{Ge}$  核の NMR を実施するため、本研究では特に  $^{73}\text{Ge}$  同位体を濃縮した純良な URhGe 単結晶を準備した。滞在したグルノーブル国立強磁場研究所は CEA グルノーブル研究所と隣接しており、同研究所には URhGe の強磁性超伝導の発見者であり、単結晶育成の専門家である青木博士が在籍していた。試料提供に関して同博士の全面的な協力を得ることができ、世界最高レベルの NMR 実験設備と純良単結晶を組み合わせた実験が可能となった。実験では超伝導磁石に希釈冷凍機を組み込んで NMR 実験を行い、更にその信号を用いて NMR シフトおよび核磁気緩和時間を測定し、磁場誘起超伝導が出現する 10-13 テスラの磁場領域での磁気揺らぎの特性を調べた。帰国後は、ゼロ磁場下での NMR (=NQR) 実験を単結晶試料を用いて行なった。更に超伝導に関わる磁気ゆらぎの特性を探るため、URhGe と同じ結晶構造を持つが超伝導を示さない UPtGe の Pt-NMR 実験を実施した。

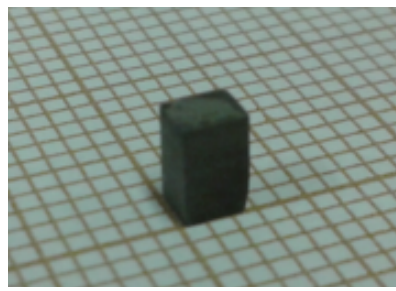


図 1 : NMR 実験に用いた URhGe 単結晶

## 4. 研究成果

(1) 図 1 に単結晶試料で得られた  $^{73}\text{Ge}$ -NMR スペクトルを示す。NQR 効果に NMR 信号は 9 本に分裂している。先行研究での粉末試料でのスペクトルと比較して、各信号の線幅は約半分となっている。我々の用いた単結晶が非常に良質な試料であることが確認できた。次にこの単結晶を超伝導磁石に組み込んだ希釈冷凍機に入れ NMR 実験を行なった。その結果、17 テスラ 100mK という

極低温強磁場で Ge-NMR 信号の観測に初めて成功した。更にその信号を用いて NMR スペクトル、Knight shift、及び核磁気緩和時間の磁場依存性を測定した。その結果、磁場誘起超伝導が出現する 11.8-13.5 テスラの温度領域において、強い磁気ゆらぎにより NMR 信号が消失することが確認された。この結果は超伝導が出現する 400mK 以下の温度領域においても強い磁場誘起三重臨界揺らぎが存在することを明らかにするものである。このことはウランの 5f 電子スピンの揺らぎが磁場誘起超伝導の引力の起源として働いていることを強く示唆する重要な結果である。更に帰国後は同じ URhGe においてゼロ磁場下の NMR (NQR) 測定を実施し、単結晶試料において Ge-NQR 信号の観測に初めて成功した。

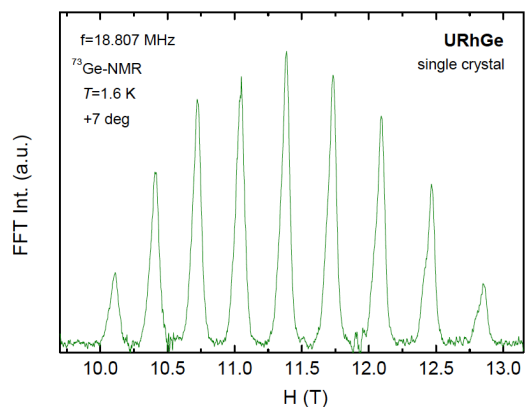


図 2: 単結晶試料で得られた  $^{73}\text{Ge}$ -NMR スペクトル

(2) 本研究では磁気ゆらぎと超伝導の関係をより深く理解するため、URhGe の関連物質である UPtGe においても Pt-NMR 研究を実施した。UPtGe は URhGe と類似の結晶構造を持つ反強磁性体で、その磁気構造は 5f 電子化合物では唯一、結晶の周期性と非整合なサイクロイド型を示す(図 3)。一方で URhGe とは異なり超伝導は出現しない。我々は UPtGe の単結晶を用いて核磁気緩和時間の測定を行い、動的スピン帯磁率の温度依存性を各結晶軸方向に分解して求めた。その結果、UPtGe における磁気ゆらぎが 2 次元的な XY 型の異方性を持つことが明らかになった。このことは URhGe の磁気ゆらぎが強い Ising 型の異方性を持つのと対照的である。URhGe と同じく超伝導を示す UCoGe の磁気ゆらぎも強い Ising 型の異方性を持つことが報告されている。今回の UPtGe における XY 型の磁気ゆらぎの観測は、磁気ゆらぎが異方性が超伝導の出現に極めて重要であることを示唆している。

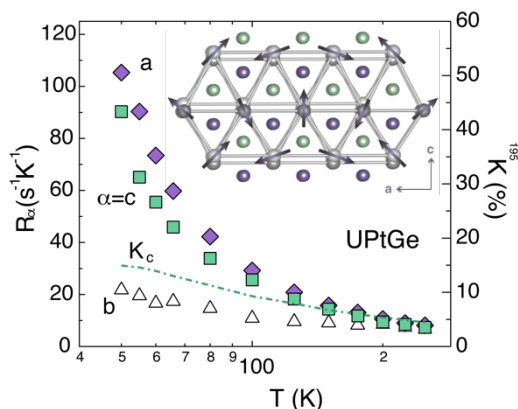


図 3: UPtGe の各結晶軸方向についての動的スピン帯磁率の温度依存性。(挿入図) UPtGe のサイクロイド型の磁気秩序。

## 5. 主な発表論文等 (研究代表者は下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

- ① Y. Tokunaga, A. Nakamura, D. Aoki, Y. Shimizu, Y. Homma, F. Honda, H. Sakai, T. Hattori and S. Kambe, Easy-plane XY spin fluctuations in the cycloidal magnet UPtGe studied via field-orientation-dependent  $^{195}\text{Pt}$  NMR, Phys. Rev. B, 査読有, **98**, 014425\_1-5 (2018).  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.014425>
- ② Y. Tokunaga, D. Aoki, H. Mayaffre, S. Kramer, M.-H. Julien, C. Berthier, M. Horvatic, H. Sakai, T. Hattori, S. Kambe and S. Araki, Field-induced reentrant superconductivity driven by quantum tricritical fluctuations in URhGe, PHYSICA B, 査読有, **536** 122-124 (2018).  
<https://doi.org/10.1016/j.physb.2017.09.022>
- ③ T. Hattori, H. Sakai, Y. Tokunaga, S. Kambe, T. D. Matsuda and Y. Haga, Evidence for Spin Singlet Pairing with Strong Uniaxial Anisotropy in  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  Using Nuclear Magnetic Resonance, Phys. Rev. Lett., 査読有, **120**, 027001\_1-5 (2018)  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.027001>
- ④ J. Pospisil, Y. Haga, S. Kambe, Y. Tokunaga, N. Tateiwa, D. Aoki, F. Honda, A. Nakamura, Y. Homma, E. Yamamoto and T. Yamamura, Switching of magnetic ground states across the  $\text{URu}_{1-x}\text{Rh}_x\text{Ge}$  alloy system, PHYSICAL REVIEW B, 査読有, **95**, 155138\_1-15, (2017).  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.155138>
- ⑤ Y. Tokunaga, D. Aoki, H. Mayaffre, S. Kreameer, M.-H. Julien, C. Berthier, M. Horvatic, H. Sakai, T. Hattori, S. Kambe and S. Araki, Interplay between Quantum Fluctuations and Reentrant Superconductivity with a Highly Enhanced Upper Critical Field in URhGe, Phys. Rev. B. 査読有, **93**, 201112-1 -5 (R) (2016).

<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.201112>

- ⑥ T. Hattori, H. Sakai, Y. Tokunaga, S. Kambe, T. D. Matsuda and Y. Haga, No Detectable Change in In-Plane  $^{29}\text{Si}$  Knight Shift in the Superconducting State of  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ , J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, **85**, 073711\_1-4 (2016).  
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.85.073711>

[学会発表] (計 8 件)

- ① 徳永 陽, 強磁性/隠れた秩序と共存する超伝導, 日本物理学会年次大会シンポジウム(招待講演), 2017 年
- ② Y. Tokunaga, Spin fluctuations driving superconductivity in uranium-based ferromagnets: Comparison between URhGe and UCoGe, Physics of Uranium based Superconductors (招待講演), 2017 年
- ③ Y. Tokunaga, Reentrant superconductivity induced by quantum tricritical fluctuations in URhGe, International Workshop on Multipole Physics and Related Phenomena (招待講演), 2017 年
- ④ Y. Tokunaga, Field-induced reentrant superconductivity driven by quantum tricritical fluctuations in URhGe, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, SCES2017, 2017 年
- ⑤ 徳永 陽, URhGe 単結晶の NMR による研究, 日本物理学会年次大会, 2017 年
- ⑥ 徳永 陽, サイクロイド型磁気秩序を示す UPtGe の Pt-NMR による研究, 日本物理学会秋季大会, 2016 年

## 6. 研究組織

研究協力者

[主たる渡航先の主たる海外共同研究者]

研究協力者氏名: ラデン ホルバティック

ローマ字氏名: Mladen HORVATIC,

所属研究機関名: フランス・グルノーブル国立強磁場研究所(CNRS-LNCM-GRENOBLE)

部局名: NMR 研究グループ

職名: グループリーダー

[その他の研究協力者]

研究協力者氏名: マーク ジュリアン

ローマ字氏名: Marc Julien

研究協力者氏名: クロード ベルチエ

ローマ字氏名: Claude Berthier

研究協力者氏名: 青木 大

ローマ字氏名: Dai Aoki

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。