

令和元年6月10日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04006

研究課題名(和文) 反転対称性の破れとフェルミオロジーが切り拓く5f電子系の新奇物性

研究課題名(英文) Novel physical properties in 5f electron systems opened up by inversion-symmetry breaking and Fermiology

研究代表者

青木 大 (Aoki, Dai)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：30359541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,200,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性超伝導体URhGe、UCoGeについては純良単結晶育成に成功し、シュブニコフ・ドハース効果、熱電能の量子振動現象などを観測した。スピン三重項超伝導で磁場再突入(磁場強化)型超伝導を示す両物質は、磁場とその方向により強磁性ゆらぎがチューニングでき、そのために特異な超伝導相図を示すが、それ以外にもフェルミ面の不安定性という「電子状態のゆらぎ」も重要な役割を果たしていることがわかった。また、空間反転対称性の破れたU₃Ni₃Sn₄の純良単結晶に成功し、そのフェルミ面を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によりスピン三重項状態をもつ強磁性超伝導体の性質が明らかになった。強磁性超伝導は理論的には何十年も前からその存在が予想されていたが、現実の系はこれまで見つかっていなかった。本研究により、超伝導の性質およびそれに関わるフェルミ面の不安定性が解明されたことで、今後、さらに研究が進展することが期待される。また、新物質探索という点からもきわめて重要な礎となった。実際、本研究の終了間際に新奇なスピン三重項超伝導体UTe₂が見つかった。強磁性秩序寸前の物質であり、しかもリエントラント超伝導を示す。この発見には、本研究で得られた知見が生かされている。

研究成果の概要(英文)：High quality single crystals of ferromagnetic superconductors, URhGe and UCoGe were successfully grown. Using these samples, Shubnikov-de Haas effect and the quantum oscillations of thermopower were observed. In this system, the spin-triplet superconductivity and field reentrant (reinforced) superconductivity were established. The ferromagnetic fluctuations can be tuned by the magnetic field with fine tuning field direction. As a result, a very peculiar Hc₂ phase emerges. We clarified the Fermi surface instabilities, that is "fluctuations of electronic states", play an important role as well.

We also grew high quality single crystals of U₃Ni₃Sn₄ and clarified the Fermi surface properties without inversion symmetry in the crystal structure for the uranium based heavy fermion system.

研究分野：固体物性

キーワード：強磁性 超伝導 空間反転対称性の破れ 重い電子系 ウラン化合物

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

結晶構造における局所的・非局所的空間反転対称性の破れとスピン軌道相互作用は、近年の物性物理学における重要な概念である。超伝導、マルチフェロイクス、カイラル磁性・超伝導、トポロジカル絶縁体、スピントロニクスなど幅広い分野でその重要性が認識されている。超伝導に関しては、CePt₃Siの空間反転対称性の破れた重い電子系超伝導の発見に続いて、CeRhSi₃、CeIrSi₃において、反強磁性量子臨界点近傍で巨大な上部臨界磁場 H_{c2} を持つ超伝導が発見された。また、MnSi など反転対称性の破れたカイラル構造をもつ物質では、磁気スキルミオンの研究が発展している。また、反転対称性の破れた TaAs などディラック型バンド分散を持ち、トポロジカル量子状態のワイル半金属が注目を集めている。結晶構造全体にわたる反転対称性の破れのみならず、局所的な反転対称性の破れもきわめて重要であることがわかってきた。研究代表者が発見した強磁性超伝導体 URhGe とその仲間である UCoGe は TiNiSi 型(空間群:Pnma)の結晶構造を持ち、ウラン原子がジグザグ構造を取る。ジグザグ構造はサイト位置に局所的な反転対称性が破れた系である。最近の理論的研究により、大きなスピン軌道相互作用とパリティ混成により興味深い物性が期待できることが分かっている。実際、URhGe と UCoGe は強磁性と超伝導が共存しており、スピン三重項超伝導が実現している。さらに、両者は磁場誘起超伝導あるいは磁場強化型超伝導を示すなど、多彩で魅力的な超伝導の性質が明らかになっている。Pnma の空間群については、最近相次いで超伝導体(MnP, CrAs, MgPtSi)が発見されるなど、ジグザグ構造と特異なスピン軌道相互作用の重要性が実験的にも明らかにされつつある。これら局所的・非局所的な反転対称性の破れた 5f 電子系物質(アクチノイド化合物)は、これまで反転対称性の破れという視点で系統的に研究されて来なかった。5f 電子は、遍歴する 3d 電子と局在する 4f 電子の中間的な性質を持つ。強いスピン軌道相互作用の結果として全角運動量 J が重要であり、遍歴多極子を含む多様性に富んだ物性を示すのが 5f 電子系である。これらを微視的に調べる上で、フェルミ面の研究(フェルミオロジー)はきわめて重要である。なぜなら、スピン軌道相互作用で分裂したフェルミ面あるいはバンド構造は、リフシツツ転移、多バンド超伝導、フェルミ面の不安定性、トポロジカル絶縁体、フェルミ・アークなど、さまざまな場面で顔を出すからである。つまり、フェルミ面を理解することは、多彩な物性物理の根源に迫ることを意味する。

2. 研究の目的

上記のような背景のもと本研究の目的は以下の4点である。

- 局所的・非局所的に反転対称性の破れた 5f 電子系物質(ウラン化合物、トリウム化合物)の純良単結晶育成と新物質探索。
- 微視的測定手段であるドハース・ファンアルフェン(dHvA)効果により、フェルミ面を詳細に調べる。反転対称性の破れに起因するフェルミ面の分裂をバンド計算などの理論と比較することにより、スピン軌道相互作用およびその相対論効果を明らかにする。
- スピン構造にも着目しながらカイラリティとフェルミ面の関係を明らかにする。
- 局所的・非局所的な反転対称性の破れが生み出す新奇量子相(超伝導やトポロジカル量子相など)の発見。

3. 研究の方法

ウラン・トリウム化合物の純良単結晶育成を行なった。まず結晶全体にわたって反転対称性の破れた化合物を引き上げ法、フラックス法、ブリッジマン法、気相成長法などさまざまな手法を駆使して単結晶育成を行なった。さらに強磁性超伝導体 URhGe, UCoGe に代表されるジグザグ構造など、局所的に反転対称性の破れた物質についても物質探索を進めるとともに単結晶育成を行なった。得られた試料を用いて、電子状態を明らかにするために高磁場 15T、極低温 30mK までの磁場変調法によるドハース・ファンアルフェン(dHvA)効果測定を行なった。また、シュブニコフ・ドハース効果、熱電能による量子振動効果など、輸送現象によるフェルミ面観測も行なった。局所的・非局所的な反転対称性の破れがもたらす新奇量子相の探索を行うために、高圧、極低温、強磁場の極限環境下の電気抵抗測定、熱電能測定等も行なった。さらに本研究で得られた試料は、国内の研究者に提供されるとともに、研究代表者がフランス CEA-Grenoble で育成したウラン化合物単結晶はヨーロッパの各国の研究者にも提供して国際共同研究を展開した。

4. 研究成果

強磁性超伝導体 URhGe, UCoGe については純良単結晶育成に成功し、シュブニコフ・ドハース効果、熱電能の量子振動現象などを観測した。スピン三重項超伝導で磁場再突入(磁場強化)型超伝導を示す両物質は、磁場とその方向により強磁性ゆらぎがチューニングでき、そのために特異な超伝導相図を示すが、それ以外にもフェルミ面の不安定性という「電子状態のゆらぎ」も重要な役割を果たしていることがわかった。

URhGe は磁場を b 軸方向に加えたときに、強磁性キュリー温度が 0K に向かい $H_R=12T$ のスピン再配向に接続している。強磁性揺らぎがもっとも発達するところであり、そのために磁場再突入型超伝導が現れる。熱電能の精密測定により、 H_R で符号反転を伴うフェルミ面の劇的な変化を観測した。また、低温で H_R は弱い一次転移であり、3K 付近で三重臨界点があることも見出し

た。34T までの強磁場測定では量子振動も観測し、フェルミ面と重い電子状態の直接観測に成功した。

UCoGe においては、磁場を磁化容易軸方向に加えた時の電気抵抗、ホール効果、熱電能測定を行い、4, 9, 12, 16, 21T において逐次的な異常を観測した。また、シュブニコフ・ドハース効果、熱電能の量子振動によってフェルミ面を直接観測するとともに、振動数が磁場とともに変化していることを明らかにした。これらの結果から UCoGe においてリフシツ転移が起きていることがわかった。

また、空間反転対称性の破れた $U_3Ni_3Sn_4$ の純良単結晶に成功し、そのフェルミ面を明らかにした。バンド計算と極めて良い一致を示し、分裂幅から反対称スピン軌道相互作用による分裂エネルギーを見積もることに成功した。重い準粒子バンドを反映して、分裂幅は比較的小さい。また、alpha branch においては、dHvA 振動数の角度依存性から多数の分裂が観測された。これは、分裂したフェルミ面の縮退点などを通る orbital crossing によるものであり、フェルミ面上のスピンテクスチャを反映したものとなっている。この研究はハーフホイスラー構造をもつ UPt5 の純良単結晶育成とフェルミ面の研究に発展した。空間反転対称性の破れを反映してフェルミ面はやはり分裂しており、バンド計算とも良い一致を示す。磁場方向によって多数の分裂が見えており、縮退点あるいは擬縮退点を通る orbital crossing によって、これらが説明できることがわかった。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 61 件[総件数])

以下の論文全て査読有

- ① [D. Aoki](#), K. Ishida, and J. Flouquet: J. Phys. Soc. Jpn. 88, 22001 (2019), Review of U-based Ferromagnetic Superconductors: Comparison between UGe2, URhGe, and UCoGe
DOI: 10.7566/jpsj.88.022001
- ② [青木大](#): RADIOISOTOPES 67, 403 (2018), アクチノイド化合物の単結晶育成
DOI: 10.3769/radioisotopes.67.403
- ③ W. Beilun, [D. Aoki](#), and J.-P. Brison: Phys. Rev. B 98, 24517 (2018), Vortex liquid phase in the p-wave ferromagnetic superconductor UCoGe
DOI: 10.1103/PhysRevB.98.024517
- ④ A. Maurya, H. Harima, [A. Nakamura](#), Y. Shimizu, Y. Homma, D. X. Li, [F. Honda](#), Y. J. Sato, and [D. Aoki](#): J. Phys. Soc. Jpn. 87, 44703 (2018), Splitting Fermi Surfaces and Heavy Electronic States in Non-Centrosymmetric $U_3Ni_3Sn_4$
DOI: 10.7566/JPSJ.87.044703
- ⑤ D. Braithwaite, [D. Aoki](#), J. P. Brison, J. Flouquet, G. Knebel, [A. Nakamura](#), A. Pourret: Phys. Rev. Lett. 120, 37001 (2018), Dimensionality Driven Enhancement of Ferromagnetic Superconductivity in URhGe
DOI: 10.1103/PhysRevLett.120.037001
- ⑥ Wu, G. Bastien, M. Taupin, C. Paulsen, L. Howard, [D. Aoki](#), J. P. Brison: Nature Communications 8, 14480 (2017), Pairing mechanism in the ferromagnetic superconductor UCoGe
DOI: 10.1038/ncomms14480
- ⑦ G. Bastien, A. Gourgout, [D. Aoki](#), A. Pourret, I. Sheikin, G. Seyfarth, J. Flouquet, G. Knebel, Phys. Rev. Lett. 117, 206401 (2016), Lifshitz Transitions in the Ferromagnetic Superconductor UCoGe,
DOI: 10.1103/PhysRevLett.117.206401
- ⑧ G. Bastien, D. Braithwaite, [D. Aoki](#), G. Knebel, J. Flouquet: Phys. Rev. B 94, 125110 (2016), Quantum criticality in the ferromagnetic superconductor UCoGe under pressure and magnetic field
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.125110
- ⑨ A. Gourgout, A. Pourret, G. Knebel, [D. Aoki](#), G. Seyfarth, J. Flouquet: Phys. Rev. Lett. 117, 46401 (2016), Collapse of Ferromagnetism and Fermi Surface Instability near Reentrant Superconductivity of URhGe
DOI: 10.1103/PhysRevLett.117.046401
- ⑩ [D. Aoki](#), [A. Nakamura](#), D. X. Li, Y. Homma: J. Phys. Soc. Jpn. 85, 73713 (2016), Large Upper Critical Field of Superconductivity in the Single Crystal U6Co
DOI: 10.7566/JPSJ.85.073713

[学会発表] (計 14 件)

- ① [Dai Aoki](#), Tuning reentrant superconductivity and Fermi surface instabilities in ferromagnetic superconductors, Novel Phenomena in Quantum Materials driven by Multipoles and Topology, 2018
- ② [Dai Aoki](#), Tuning ferromagnetic fluctuations and Fermi surface instabilities in

- ferromagnetic superconductors, A.A.Abrikosov Memorial Conference, 2018
- ③ Dai Aoki, Fermi surface studies of uranium heavy fermion compounds, Fermi-NEST, 2018
 - ④ Dai Aoki, Fermi surface instabilities and superconductivity in uranium compounds, PCFES2018, 2018
 - ⑤ Dai Aoki, Ferromagnetic superconductivity and the field-induced phenomena, IWDN2018, 2018
 - ⑥ Dai Aoki, Tuning ferromagnetic fluctuations and superconductivity in uranium ferromagnets, Frustration, Orbital Fluctuations, and Topology in Kondo Lattices and their relatives, 2018
 - ⑦ Dai Aoki, Turning ferromagnetic fluctuations and Fermi surface instabilities in the spin-triplet ferromagnetic superconductors, Emergent Phenomena in Strongly Correlated Quantum Matter, 2018
 - ⑧ Dai Aoki, Ferromagnetic superconductivity and field induced phenomena in uranium compounds, Actinide conference, 2017
 - ⑨ Dai Aoki, Ferromagnetic superconductivity and field induced phenomena in uranium compounds, Open space between aperiodic order and strong electronic correlations, 2017
 - ⑩ Dai Aoki, Unconventional superconductivity and field induced phenomena in uranium compounds, CalCon2017, 2017
 - ⑪ Dai Aoki, Fermi surface instabilities and field induced phenomena in ferromagnetic superconductors, LT28, 2017
 - ⑫ Dai Aoki, Unconventional superconductivity in uranium compounds --Ferromagnetic superconductivity in URhGe and UCoGe-, SUPERSTRIPES2017, 2017
 - ⑬ Dai Aoki, Tuning ferromagnetic fluctuations and superconductivity in uranium ferromagnets, Physics of Uranium based Unconventional Superconductors, 2017
 - ⑭ Dai Aoki, Turing ferromagnetic fluctuations and Fermi surface instabilities in field-induced ferromagnetic superconductors, CEMS Symposium on Trends in Condensed Matter Physics, 2017

[その他]

新聞報道

- ① ウラン化合物の強磁場スピン密度波相を発見-30 年来の謎に強磁場中性子回折が回答をもたらす-, 科学新聞, 2016. 11. 18
- ② ～電子の対を自在に制御～ 磁場と相性の良い超伝導のメカニズムを解明, 科学新聞, 2017. 03. 10
- ③ ウラン化合物の強磁場スピン密度波相を発見 -30 年来の謎に強磁場中性子回折が回答をもたらす-, 科学新聞, 2017. 11. 18
- ④ フォースで目覚める超伝導 ～磁場誘起超伝導を力で制御～, 科学新聞, 2018. 01. 30
- ⑤ エキゾチック超伝導体の振る舞い 「世界初」東北大金研が解明, 科学新聞, 2019. 03. 22

6. 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：本多 史憲

ローマ字氏名：(HONDA, Fuminori)

所属研究機関名：東北大学

部局名：金属材料研究所

職名：准教授

研究者番号 (8 桁)：90391268

研究分担者氏名：仲村 愛

ローマ字氏名：(NAKAMURA, Ai)

所属研究機関名：東北大学

部局名：金属材料研究所

職名：助教

研究者番号 (8 桁)：30756771

研究分担者氏名： 大貫 惇睦
ローマ字氏名：(ONUKE, Yoshichika)
所属研究機関名：琉球大学
部局名：理学部
職名：客員教授
研究者番号（8桁）：40118659

※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。