

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月3日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05463

研究課題名(和文) 先進的な高圧下物性測定技術によるウラン強磁性超伝導物質の研究

研究課題名(英文) Study on uranium ferromagnetic superconductors with advanced high pressure technique

研究代表者

立岩 尚之(Tateiwa, Naoyuki)

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：50346821

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では高圧下磁化測定を通してウラン強磁性超伝導物質の研究を行った。圧力セルに皿パネを導入し、より静水圧性の高い環境下で測定が可能になった。動的磁性の研究のため、Takahashiによるスピンのゆらぎ理論のアクチノイド5f電子系への適用を検討し、その妥当性を明らかにした。UGe2の高圧下磁化測定を行い、データをTakahashi理論で解析した。スピンのゆらぎの特性温度 $T_0$ の圧力効果と超伝導転移温度 $T_{sc}$ の強い相関を見出し、強磁性ゆらぎに起因する超伝導の特性を明らかにした。また、URhSi, URhAl, UGe2, UCu2Ge2などの強磁性化合物の磁気臨界現象を研究した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題では、高圧下磁化測定の実験手法が改善され、静水圧下の高い環境下における測定が可能になった。この手法は他の研究分野でも有益である。また、高温超伝導体等の研究では中性子散乱実験などを通して磁気ゆらぎと超伝導の相関が明らかにされ、理論的理解が進んできた。この点、実験手段が限定されるウラン系化合物では進歩が遅れていた。本研究課題ではTakahashiによるスピンのゆらぎ理論を用いて、ウラン強磁性超伝導物質UGe2等の強磁性ゆらぎの定量的評価が行われ、ゆらぎと超伝導の相関が明らかにされた。他の強相関電子系超伝導物質との比較検討も可能になり、今後の研究の発展に寄与することが期待される。

研究成果の概要(英文)：We have studied uranium ferromagnetic superconductors by magnetic measurements at high pressures. At first, our pressure cell has been modified in order to produce good hydrostatic pressure by introducing washers in the cell. We confirmed the applicability of Takahashi's spin fluctuation theory to actinide 5f systems from the analyses of magnetic data in 80 actinide (uranium, neptunium, and plutonium) ferromagnets. A strong correlation between the characteristic temperature of spin fluctuations  $T_0$  and the superconducting transition temperature  $T_{sc}$  has been found in UGe2. The spin fluctuation parameters have been determined for mixed phase URh1-xCoxGe between the other uranium ferromagnetic superconductors URhGe and UCoGe. The dynamical magnetic properties of the uranium ferromagnetic superconductors are studied. We also have studied the classical critical phenomenon in uranium ferromagnets URhSi, URhAl, UCu2Ge2, and UGe2.

研究分野：物性II

キーワード：ウラン系強磁性超伝導 高圧実験



また、ゆらぎの遍歴性の程度を示す  $T_C/T_0$  は FM1/FM2 転移で急激に変化することから、この転移とウラン 5f 電子の局在 / 遍歴転移との関連が示唆される。さらに、URhGe と UCoGe の混晶系 ( $URh_{1-x}Co_xGe$ ) (雑誌論文) について、スピンのゆらぎパラメータ  $T_0$  等の組成変化を決定した。UCoGe 近傍では、Rh から Co への置換に伴い、転移温度  $T_C$  が減少しゆらぎスペクトルの分布幅が急激に増大する。磁気不安定点に向かってゆらぎが発達するように見え、強磁性量子臨界点近傍で現れる超伝導として UCoGe の超伝導は理解できることが示唆される。一方、URhGe, UGe<sub>2</sub> にはそのような特徴が見られない。超伝導が現れる背景となる強磁性状態は前者と後者で異なることが示唆された。

なお、UGe<sub>2</sub> の磁化測定では、皿バネを圧力セルに導入し、圧力の温度変化を低減化させて静水圧性を高めた。その結果、 $P_x$  以上の圧力領域で現れる FM1-FM2 へのメタ磁性転移等がより明瞭に観測され、諸物理量の圧力依存が精密に決定された。

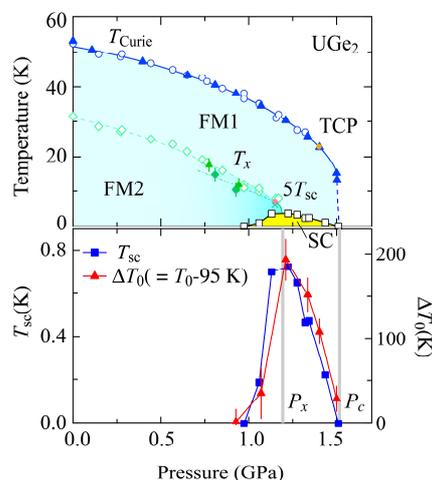


図2 UGe<sub>2</sub> の圧力相図と  $T_0$  と  $T_{sc}$  の圧力依存 (雑誌論文)

(3) ウラン系強磁性超伝導物質の強磁性状態は一軸磁気異方性が大きく、「三次元イジングモデル」で記述されると考えられてきた (引用文献)。超伝導に関する理論モデルも基本的にこの立場で構築される例が多い。しかし、UGe<sub>2</sub> と URhGe の磁気臨界現象は三次元イジングのユニバーサリティクラスでは説明できないことを研究代表者は明らかにした (引用文献)。超伝導が現れる特異な強磁性状態が示唆される。本研究課題では、超伝導物質 URhGe と同じ結晶構造を有する URhSi の臨界指数を決定した。URhSi の強磁性転移は UGe<sub>2</sub>, URhGe と同じユニバーサリティクラスに属することが示唆された (雑誌論文)。5f 電子間の磁気相関の類似性が示唆される。また、URhSi の  $T_0$  等スピンのゆらぎパラメータは、URhGe のそれらと似たような値を示す。それにも関わらず、URhSi は超伝導転移を示さない。最近の一軸圧力下の URhGe の実験 (引用文献) とその理論的解釈 (引用文献) では、磁化困難軸方向の「横のゆらぎ」が超伝導に寄与することが指摘された。超伝導転移温度に対する「横のゆらぎ」の寄与の大きさは、2つの磁化困難軸間の磁化率の異方性と関連している。この立場で、URhGe と URhSi を対比させ考察した (雑誌論文)。さらに、ウラン化合物 URhAl (雑誌論文) と UGa<sub>2</sub> の強磁性転移はそれぞれ二・三次元 XY モデルのユニバーサリティクラスに、UCu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> は三次元イジングモデルのそれに属することを明らかにした。

(4) 一軸圧力下磁化測定用圧力セルを開発した。セルのテストとして、常磁性物質 UCoAl の一軸圧力で誘起される強磁性相や、URhAl の強磁性転移温度の一軸圧力依存を調べた。上記の通り最近の URhGe の研究から、超伝導には縦と横の磁気ゆらぎの両方の寄与があることが示唆された。今後、一軸応力と磁場が平行・垂直の場合について磁化測定ができる装置を開発し、縦と横の二つのゆらぎの超伝導に対する寄与を分離させ定量評価することに挑戦したい。

#### < 引用文献 >

- Review, A. D. Huxley, Physica C **514**, 368-377 (2015).
- Y. Takahashi, J. Phys. Soc. Jpn. **55**, 3553-3573 (1986).
- N. Tateiwa, Y. Haga, Z. Fisk, and Y. Onuki, Rev. Sci. Instrum. **82**, 053906-1-053906-8 (2011).
- 高橋慶紀、吉村一良、遍歴磁性とスピンゆらぎ、内田老鶴圃、2012 年
- N. Tateiwa, Y. Haga, T. D. Matsuda, E. Yamamoto, and Z. Fisk, Phys. Rev. B **89**, 064420-1-064420-8 (2014).
- D. Braithwaite, D. Aoki, J-P. Brison, J. Flouquet, G. Knebel, A. Nakamura, and A. Poursret, Phys. Rev. Lett. **120**, 037001-1-037001-5 (2018).
- V. P. Mineev, Phys. Rev. B **96**, 104501-1-104501-5 (2017).

#### 5 . 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 15 件)

Naoyuki Tateiwa, Yoshinori Haga, and Etsuji Yamamoto, Novel critical behavior of magnetization in URhSi: Similarities to the uranium ferromagnetic superconductors UGe<sub>2</sub> and URhGe, Phys. Rev. B **99**, 094417-1- 094417-12 (2019). (査読有)  
DOI:10.1103/PhysRevB.99.094417

Naoyuki Tateiwa, Jiri Pospisil, Yoshinori Haga, Hironori Sakai, Tatsuma D Matsuda, and Etsuji Yamamoto, Phenomenological approach to study the degree of the itinerancy of the 5f electrons in actinide ferromagnets with spin fluctuation theory, Progress in Nuclear Science and Technology **5**,104-107 (2018). (査読有)  
[http://www.aesj.net/document/pnst005//104\\_107.pdf](http://www.aesj.net/document/pnst005//104_107.pdf)

Naoyuki Tateiwa, Yoshinori Haga, and Etsuji Yamamoto, Strong correlation between ferromagnetic superconductivity and pressure-enhanced ferromagnetic fluctuations in UGe<sub>2</sub>, Phys. Rev. Lett. **121**, 237001-1-237001-6 (2018). ( 査読有 )  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.121.237001

Jiri Pospisil, Yoshinori Haga, Yoshimitsu Kohama, Atsushi Miyake, Shinsaku Kambe, Naoyuki Tateiwa, Michal Valiska, Petr Proschek, Jan Prokleska, Vladimir Sechovsky, Masashi Tokunaga, Koichi Kindo, Akira Matsuo, and Etsuji Yamamoto, Magnetic field induced phenomena in UIrGe in fields applied along the *b* axis Phys. Rev. B **98**, 014430-1-014430-7 (2018). ( 査読有 )  
DOI: 10.1103/PhysRevB.98.014430

Jiri Pospisil, Yoshinori Haga, Atsushi Miyake, Shinsaku Kambe, Naoyuki Tateiwa, Yo Tokunaga, Fuminori Honda, Ai Nakamura, Yoshiya Homma, Masashi Tokunaga, Dai Aoki, and Etsuji Yamamoto, Consecutive magnetic phase diagram of UCoGe-URhGe-UIrGe system, Physica B-Condensed matter **536**, 532-534 (2018). ( 査読有 )  
DOI: 10.1016/j.physb.2017.10.050

Naoyuki Tateiwa, Jiri Pospisil, Yoshinori Haga, and Etsuji Yamamoto, Critical behavior of magnetization in URhAl: Quasi-two-dimensional Ising system with long-range interactions, Phys. Rev. B **97**, 064423-1-064423-10 (2018). ( 査読有 )  
DOI: 10.1103/PhysRevB.97.064423

Yuji Matsumoto, Yoshinori Haga, Naoyuki Tateiwa, Etsuji Yamamoto, and Zachary Fisk, Crystallographic, Magnetic, Thermal, and Electric Transport Properties in UPtIn Single Crystal, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 024706-1-024706-4 (2018). ( 査読有 )  
DOI: 10.7566/JPSJ.87.024706

Hiroshi Tanida, Kentaro Kitagawa, Naoyuki Tateiwa, Masafumi Sera, Takashi Nishioka, Pressure studies on the antiferromagnetic Kondo semiconductor Ce(Ru<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> (*x* = 0, 0.1), Phys. Rev. B **96**, 235131-1-235131-7 (2017). ( 査読有 )  
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.235131

Jiri Pospisil, Yoshinori Haga, Kunihisa Nakajima, Norito Ishikawa, and Ivana Cisarova, Naoyuki Tateiwa, Etsuji Yamamoto, and Tomoo Yamamura, ScPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub> - New polymorphic phase in Al-Pd-Sc system, Solid State Commun. **268**, 12-14 (2017). ( 査読有 )  
DOI:10.1016/j.ssc.2017.09.001

Shin-ichi Fujimori, Masaaki Kobata, Yukiharu Takeda, Tetsuo Okane, Yuji Saitoh, Atsushi Fujimori, Hiroshi Yamagami, Yuji Matsumoto, Etsuji Yamamoto, Naoyuki Tateiwa, and Yoshinori Haga, Electronic structure of ThRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> studied by angle-resolved photoelectron spectroscopy: Elucidating the contribution of U 5*f* states in URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>, Phys. Rev. B **96**, 125117-1-125117-12 (2017). ( 査読有 )  
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.125117

Naoyuki Tateiwa, Jiri Pospisil, Yoshinori Haga, Hironori Sakai, Tatsuma D. Matsuda, and Etsuji Yamamoto, Itinerant ferromagnetism in actinide 5*f*-electron systems: Phenomenological analysis with spin fluctuation theory, Phys. Rev. B **96**, 035125-1-035125-15 (2017). ( 査読有 )  
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.035125

Jiri Pospisil, Yoshinori Haga, Shinsaku Kambe, Yo Tokunaga, Naoyuki Tateiwa, Dai Aoki, Fuminori Honda, Ai Nakamura, Yoshiya Homma, Etsuji Yamamoto, and Tomoo Yamamura, Switching of magnetic ground states across the UIr<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>Ge alloy system, Phys. Rev. B **95**, 155138-1-155138-15 (2017). ( 査読有 )  
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.155138

Jiri Pospisil, Jun Gouchi, Yoshinori Haga, Fuminori Honda, Yoshiya Uwatoko, Naoyuki Tateiwa, Shinsaku Kambe, Shoko Nagasaki, Yoshiya Homma, and Etsuji Yamamoto, Effect of Pressure on Magnetism of UIrGe, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 044709-1-044709-6 (2017). ( 査読有 )  
DOI: 10.7566/JPSJ.86.044709

Yuji Matsumoto, Yoshinori Haga, Naoyuki Tateiwa, Haruyoshi Aoki, Noriaki Kimura, Tomoo Yamamura, Etsuji Yamamoto, Tatsuma D. Matsuda, and Zachary Fisk, and Hiroshi Yamagami, Fermi Surface of ThRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> as a Reference to the Strongly Correlated Isostructural Metals Investigated by Quantum

Oscillations, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 104709-1-104709-7 (2016). (査読有)  
DOI: 10.7566/JPSJ.85.104709

Yoshinori Haga, Yuji Matsumoto, Jiri Pospisil, Naoyuki Tateiwa, Etsuji Yamamoto, Tomoo Yamamura, and Zachary Fisk, Magnetoresistance and Hall effect of antiferromagnetic uranium compound URhIn<sub>5</sub>, J. Phys. Conf. Ser. **807**, 012015-1-012015-4 (2016). (査読有)  
DOI: 10.1088/1742-6596/807/1/012015

[学会発表](計 20 件)

芳賀 芳範、松本 裕司、立岩 尚之、山本 悦嗣、山村 朝雄、URh<sub>6</sub>X<sub>4</sub>(X = Si, Ge)の電子状態と伝導特性、日本物理学会第 74 回年次大会、2019 年 3 月 15 日

立岩 尚之、芳賀 芳範、山本 悦嗣、ウラン強磁性化合物 UGe<sub>2</sub> の高圧下磁化測定 III、日本物理学会第 74 回年次大会、2019 年 3 月 14 日

立岩 尚之、芳賀 芳範、山本 悦嗣、ウラン系強磁性超伝導物質 UGe<sub>2</sub> の高圧下磁化測定、第 59 回高圧討論会、2018 年 11 月 27 日

酒井 宏典、比嘉 野乃花、服部 泰佑、徳永 陽、神戸 振作、立岩 尚之、芳賀 芳範、P. F. S. Rossa, J. D. Thompson, F. Running, E. D. Bauer, S. K. R. Krishna, A. P. Reyes、ナローギャップ半導体 β-US<sub>2</sub> の <sup>33</sup>S-NMR、日本物理学会 2018 年秋季大会(物性)、2018 年 9 月 11 日

立岩 尚之、芳賀 芳範、山本 悦嗣、J. Pospisil、ウラン強磁性超伝導物質 UGe<sub>2</sub> を中心とした高圧下磁化測定による研究、日本物理学会 2018 年秋季大会(物性)、2018 年 9 月 11 日

芳賀 芳範、松本 裕司、立岩 尚之、山本 悦嗣、ウラン化合物強磁性体 URh<sub>6</sub>Si<sub>4</sub> 単結晶の物性及び関連物質の探索、日本物理学会 2018 年秋季大会(物性)、2018 年 9 月 11 日

Naoyuki Tateiwa, Yoshinori Haga, Etsuji Yamamoto, Ferromagnetic superconductivity mediated by pressure-enhanced spin fluctuation developed around the phase boundary of FM1 and FM2 in UGe<sub>2</sub>, 21st International Conference on Magnetism (ICM 2018), 2018 年 7 月 17 日

立岩 尚之、芳賀 芳範、山本 悦嗣、ウラン強磁性化合物 UGe<sub>2</sub> の高圧下磁化測定、日本物理学会第 73 回年次大会、2018 年 3 月 23 日

立岩 尚之、高圧下磁化測定によるウラン強磁性物質の研究、東北大学金属材料研究所ワークショップ「アクチノイド元素の科学と技術」・第 9 回アルファ放射体実験室利用研究会(合同)、2017 年 11 月 28 日

立岩 尚之、芳賀 芳範、山本 悦嗣、ウラン系強磁性超伝導物質の高圧下磁化測定、第 58 回高圧討論会、2017 年 11 月 10 日

立岩 尚之、J. Pospisil、芳賀 芳範、酒井 宏典、山本 悦嗣、松田 達磨、アクチノイド 5f 電子系強磁性化合物のスピンゆらぎ特性温度について、日本物理学会 2017 年秋季大会(物性)、2017 年 9 月 21 日

Naoyuki Tateiwa, Application of miniature high pressure cell for magnetic measurements to study of strongly correlated electron systems, 55th European High Pressure Research Group Meeting (EHPRG), 2017 年 9 月 5 日、(招待講演)

立岩 尚之、高圧・極低温物性測定と強相関電子系、高圧力と量子ビームのマリアージュによる新規物性分野開拓の物質科学研究会、茨城大学、2017 年 3 月 25 日

立岩 尚之、ウラン系強磁性化合物のスピンゆらぎ特性温度、京都大学統合複雑系国際研究ユニット研究会遍歴電子系研究会「新世代の遍歴磁性」、2017 年 3 月 21 日

立岩 尚之、物性測定用精密高圧セルの開発と磁性研究への応用、日本物理学会第 72 回年次大会、2017 年 3 月 18 日、(招待講演)

立岩 尚之、ウラン強磁性超伝導物質 UGe<sub>2</sub> と URhGe の非従来型臨界現象、TMU シンポジウム「U 系および BiS<sub>2</sub> 系の物理の最近の発展」、2016 年 11 月 28 日、(招待講演)

立岩 尚之、芳賀 芳範、ウラン強磁性化合物の高圧研究：秩序状態の圧力効果、第 57 回高

圧討論会、2016年10月29日

立岩 尚之、芳賀 芳範、山本 悦嗣、ウラン 5f 電子系の強磁性状態の圧力効果、日本物理学会 2016 年秋季大会 (物性)、2016 年 9 月 15 日

Naoyuki Tateiwa, Magnetic measurements on rare earth and actinide compounds with a miniature ceramic anvil high pressure cell 54th European High Pressure Research Group (EHPRG) International Meeting on High Pressure Science and Technology, 2016 年 9 月 8 日

Naoyuki Tateiwa, Miniature ceramic anvil cell mCAC for magnetic measurements under high pressure 17th International Conference on High Pressure in Semiconductor Physics (HPSP-17) & Workshop on High-pressure Study on Superconducting (WHS), 2016 年 8 月 8 日、(招待講演)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年：  
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<https://asrc.jaea.go.jp/soshiki/gr/MatPhysHeavyElements/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名：

ローマ字氏名：

部局名：

職名：

研究者番号(8桁)：

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名：芳賀 芳範

ローマ字氏名：Yoshinori Haga

研究協力者氏名：山本 悦嗣

ローマ字氏名：Etsuji Yamamoto

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。