

機関番号：14301

研究種目：基盤研究 (B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20340088

研究課題名 (和文)

ウラン化合物重い電子超伝導体における磁性と超伝導の共存状態の微視的観測

研究課題名 (英文)

Microscopic Investigation of the coexistence state of Magnetism and Superconductivity in Uranium-based Heavy-Fermion Superconductors

研究代表者

石田 憲二 (ISHIDA KENJI)

京都大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：90243196

研究成果の概要 (和文)：

2007年に発見された強磁性超伝導体 UCoGe における強磁性と超伝導の共存状態を、良質の単結晶を用いた微視的な核磁気共鳴の測定から調べた。強磁性転移後、試料の全領域が強磁性状態になり、超伝導は強磁性領域で起こっていることを実験的に示した。この結果は、強磁性と超伝導が微視的に共存していることを示す結果である。さらに UCoGe の磁気励起を調べた結果、低温域ではモーメント方向の縦ゆらぎが支配的であることを明らかにした。今回の実験で明らかになった磁気励起は、理論研究からスピン三重項超伝導に有利な磁気励起と指摘されていた励起である。これらの実験結果は UCoGe は超伝導対がスピンの自由度を持つスピン三重項超伝導体である可能性を強く示唆する結果である。

研究成果の概要 (英文)：

We have studied coexistence of ferromagnetism and superconductivity in ferromagnetic superconductor of UCoGe from the microscopic NMR measurement using a high-quality single crystal. Below the ferromagnetic transition, whole region of the sample is in ferromagnetic state, and a nearly half of the region becomes superconductive below T_c . We also have investigated magnetic fluctuations in the compound, and found that longitudinal ferromagnetic fluctuations along the ordered moments directed to the c axis is dominant at low temperatures. The magnetic fluctuations we observed have been suggested to be favorable for spin-triplet superconductivity from theoretical point of view. These results suggest the possibility that spin-triplet superconductivity is realized in UCoGe.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	11,300,000	3,390,000	14,690,000
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	1,800,000	540,000	2,340,000
年度			
年度			
総計	15,200,000	4,560,000	19,760,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：磁気共鳴

1. 研究開始当初の背景

(1) 今世紀になって重い電子化合物の中には新しい物理概念を必要とする超伝導体が数々と見つかった。中でも反強磁性相と超伝導が共存、競合関係にあるCeMn₅ (M=Rh, Co, Ir) の系では反強磁性と超伝導の新奇な相関が報告されていた。

(2) 2007年に発見されU系超伝導UCoGeでは強磁性と超伝導の共存が報告され、強磁性と超伝導の関係にも興味が集まっていた。

(3) 強磁性と超伝導が共存する超伝導体では、今までほとんどの超伝導体で見られていたスピン三重項超伝導ではないスピン三重項超伝導の可能性が指摘されていた。

2. 研究の目的

上記の状況を踏まえ、新しく発見された強磁性超伝導体UCoGeに関し以下の問題を明らかにしていく。

(1) 強磁性と超伝導がどのように共存しているのか? (強磁性と超伝導は異なる領域で起こっているのか(相分離)なのか、同一領域で起こっている(共存)か、を明らかにする。)

(2) どのような磁気励起を持っているのか? その磁気励起と超伝導には相関があるのか?

(3) どのような超伝導状態を取っているのか? 超伝導対の対称性は?

(4) 強磁性磁気モーメントは超伝導とどのような関係にあるのか?

3. 研究の方法

上記の問題を解明するために、名古屋大学・大学院理学研究科 佐藤憲昭教授のグループとの共同実験により良質な単結晶試料を提供いただいた。強磁性転移は直流磁化率、超伝導転移は交流帯磁率の測定より決定した。微視的な磁気状態は⁵⁹Co核の核磁気共鳴(NMR)と核四重極共鳴(NQR)の測定から調べた。試料は大きな異方性を持っているために詳細に角度を制御したNMR測定を、80mKの低温域まで測定を行った。

4. 研究成果

上記の問題に関し、今回の研究により以下のことが明らかになった。

(1) 超伝導は強磁性領域で起こっており、強磁性と超伝導の微視的共存。

強磁性と超伝導を示す良質な単結晶UCoGeにおいて⁵⁹Co-NQRを行った。強磁性転移後、常磁性の信号は消失し、モーメントからの内部磁場の影響をうけた強磁性信号が現れた。この結果は、強磁性転移後、試料の全領域が強磁性状態にあることを意味している。さらにこの強磁性信号の核スピン-格子緩和率(1/T₁)を測定すると、超伝導転移以下の温度で緩和成分の半分に超伝導転移を示す1/T₁の急激な減少が見られた。この結果は強磁性領域の半分の領域が超伝導転移したと考えられる。この結果は強磁性と超伝導が微視的に共存していることを示す結果である。

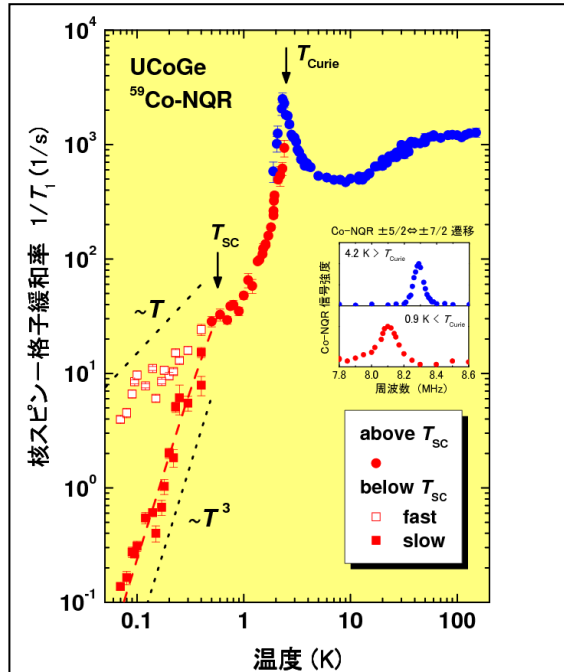


図1: UCoGeのCo核のNQRによる $1/T_1$ の温度依存性。 T_{Curie} 以上では常磁性の信号で測定。 T_{Curie} 以下では磁気モーメントの影響でNQR信号はシフトする。 T_{Curie} 以下では強磁性の信号で測定(赤点)。超伝導転移温度 T_{SC} 以下では緩和に二成分が見られる。超伝導転移後に急激に減少する遅い緩和が超伝導成分に対応する。(T. Ohta *et al.* JPSJ. 79, 023707 (2010))

(2) 超伝導状態における自己誘導渦糸状態の可能性

強磁性状態の $1/T_1$ は単一の成分であるので電子状態は均一と考えられるが、超伝導状態の緩和率は図2に示すように二成分が見られた。

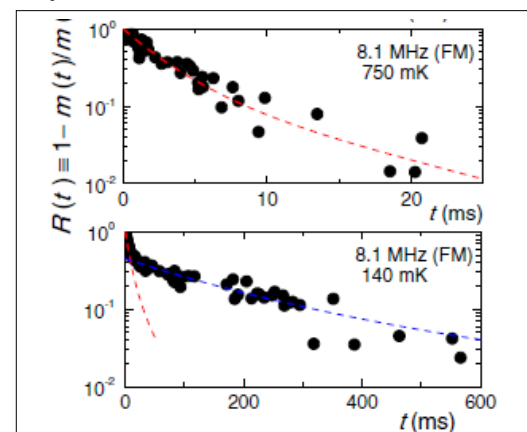


図2: UCoGeにおける緩和曲線。 T_{SC} 直上の750mKでは緩和は単一の成分でfitでき電子状態は均一である。これに対し超伝導状態の140mKでは非超伝導と超伝導の2成分が見られる。(T. Ohta *et al.* JPSJ. 79, 023707 (2010))

各成分の $1/T_1$ の温度依存性は、短い成分はほぼ $T_1 T = \text{一定}$ で非超伝導の振る舞いを、長い成分は $1/T_1 \sim T^3$ と超伝導ギャップの影響が現

れ、空間的に不均一な超伝導状態になっていることを明らかにした。

興味ある可能性の一つとして、自身の強磁性モーメントの影響でゼロ磁場の下でも磁束が生まれている「自己誘導渦糸状態」(図3)が挙げられる。この状態は理論研究から指摘されたものの、実験的に確認されたことのない状態である。なお最近の低温磁化測定の研究からも低磁場において完全反磁性状態が観測されず、自己誘導渦糸状態を示唆する結果が得られている。(K. Deguchi et al. *J. Phys. Soc. Jpn.* **79**, 083708 (2010))

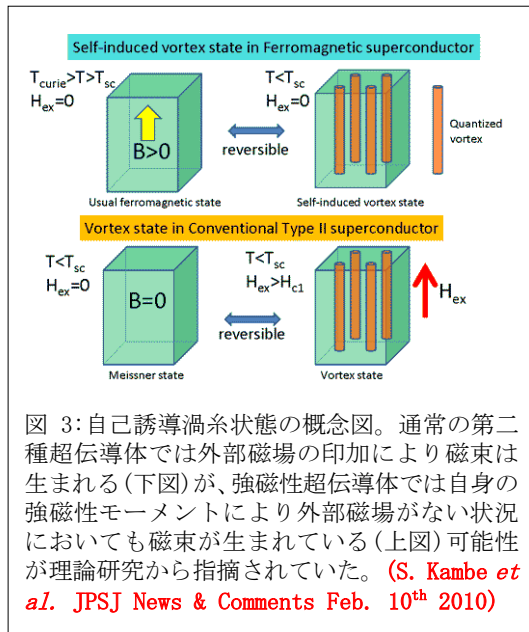


図 3: 自己誘導渦糸状態の概念図。通常の第二種超伝導体では外部磁場の印加により磁束は生まれる(下図)が、強磁性超伝導体では自身の強磁性モーメントにより外部磁場がない状況においても磁束が生まれている(上図)可能性が理論研究から指摘されていた。(S. Kambe et al. *JPSJ News & Comments Feb.* 10th 2010)

(3) T_c 直上における異方的強磁性ゆらぎ及びスピ三重項超伝導の可能性

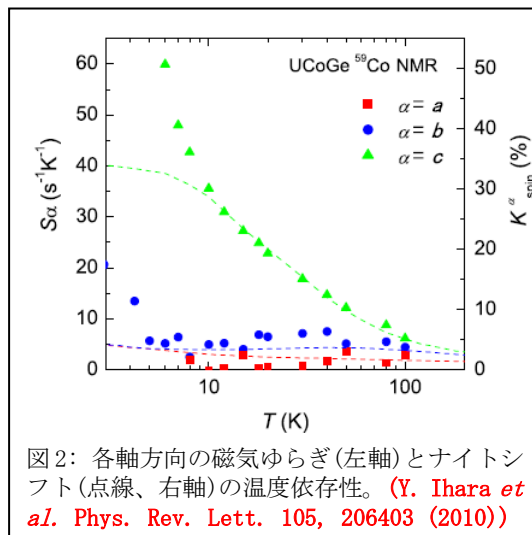


図 2: 各軸方向の磁気ゆらぎ(左軸)とナイトシフト(点線、右軸)の温度依存性。(Y. Ihara et al. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 206403 (2010))

常伝導状態の磁気励起を、単結晶試料を用いて各軸方向のナイトシフトと $1/T_1$ の測定から調べた。その結果、c 軸方向にイジング的な強磁性ゆらぎを持つことを明らかにし

た。強磁性モーメントは c 軸方向に向いているので、この強磁性ゆらぎはモーメントの縦ゆらぎである。

今回明らかになったイジング異方性を持つモーメント方向の縦ゆらぎは、理論研究からスピ三重項超伝導に有効な磁気ゆらぎであることが指摘されており、UCoGe においてスピ三重項超伝導が実現している可能性を指摘した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 17 件)

[1] 石田憲二,

「超伝導と磁性の共存」

パリティ Vol.26 No.1 (2011) 30-31

[2] 石田憲二, 服部泰佑, 井原慶彦, 中井祐介, 佐藤憲昭, 出口和彦, 田村暢之, 佐藤伊佐務

「U系重い電子超伝導体 UCoGe における新
奇な超伝導状態

—コバルト核四重極共鳴(^{59}Co NQR)実験
による強磁性と超伝導の微視的共存—」

固体物理 Vol. 46, No. 6, (2010) 25 – 33

[3] 石田憲二

「層状ルテニウム酸化物超伝導体 Sr_2RuO_4
の核磁気共鳴実験

—スピ三重項超伝導の d-vector の問題
—」物性研究 Vol. 95 No.1, (2010) 1-33

[4] L.E. Klintberg, Swee K. Goh, S. Kasahara,

Y. Nakai, K. Ishida, M. Sutherland, T.
Shibauchi, Y. Matsuda, and T. Terashima

“Chemical Pressure and Physical Pressure
in $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ”

J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 123706 1-4

[5] Y. Ihara, T. Hattori, K. Ishida, Y. Nakai,

E. Osaki, K. Deguchi, N. K. Sato, and I. Satoh

“Anisotropic magnetic fluctuations in the
ferromagnetic superconductor UCoGe studied
by directional-dependent ^{59}Co NMR
measurements”

Physical Review Letter **105** (2010) 206403 1-4

[6] Swee K. Goh, Y. Nakai, K. Ishida, L. E.

Klinberg, Y. Ihara, S. Kasahara, T. Shibauchi,
Y. Matsuda, and T. Terashima

“Anisotropic superconducting properties of
optimally doped $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.65}\text{P}_{0.35})_2$ under
pressure”

Physical Review B **82** (2010) 094502 1-5

[7] Y. Nakai, T. Iye, S. Kitagawa, K. Ishida, H.

Ikeda, S. Kasahara, H. Shishido, T. Shibauchi,

- Y. Matsuda, and T. Terashima
“Unconventional Superconductivity and Antiferromagnetic Quantum Critical Behavior in the Isovalent-Doped $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ”
Physical Review Letter **105** (2010) 107003 1-4
- [8] S. Kitagawa, Y. Nakai, T. Iye, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano and H. Hosono
“Stripe antiferromagnetic correlations in $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ probed by ^{75}As NMR”
Physical Review B **81** (2010) 212502 1-4
- [9] T. Hattori, K. Ishida, Y. Nakai, T. Ohta, K. Deguchi, N. K. Sato, I. Satoh
“Weakly first-order behavior in ferromagnetic transition of UCoGe revealed by Co-59-NQR studies “
Physica C-Superconductivity and its applications, **470** Suppl. 1, S561-S563 (2010)
- [10] T. Ohta, T. Hattori, K. Ishida, Y. Nakai, E. Osaki, K. Deguchi, N. K. Sato, and I. Satoh,
“Microscopic Coexistence of Ferromagnetism and Superconductivity in Single-Crystal UCoGe ”
J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 023707-1-4 (2010)
- [11] Y. Nakai, T. Iye, S. Kitagawa, K. Ishida, S. Kasahara, T. Shibauchi, Y. Matsuda and T. Terashima
“ ^{31}P and ^{75}As NMR evidence for a residual density of states at zero energy in superconducting $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.67}\text{P}_{0.33})_2$ ”
Phys. Rev. B **81**, 020503 1-4(R) (2010)
- [12] H. Sugawara, K. Ishida, Y. Nakai, H. Yanagi, T. Kamiya, Y. Kamihara, M. Hirano and H. Hosono
“Two Dimensional Spin Dynamics in the Itinerant Ferromagnet LaCoPO Revealed by Magnetization and ^{31}P -NMR Measurements”
J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 113705 1-4 (2009)
- [13] K. Ishida, Y. Nakai, S. Kitagawa, Y. Kamihara, M. Hirano and H. Hosono
“ ^{75}As and ^{139}La NMR studies on $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{As}_x)$ ”
Physica B **404**, 3089-3094 (2009)
- [14] K. Ishida, Y. Nakai, H. Hosono
“To What Extent Iron-Pnictide New Superconductors Have Been Clarified : A Progress Report”
J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 062001 1-20 (2009)
- [15] Y. Nakai, S. Kitagawa, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono
“An NMR study on the F-doping evolution of the iron oxypnictide $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$ ”
New Journal of Physics **11**, 045004 1-15 (2009)
- [16] Y. Ihara, H. Takeya, K. Ishida
“Magnetic anomalies of hydrous cobaltate compound $\text{Na}_x(\text{H}_3\text{O})_z\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ detected by NMR and NQR measurements”
Phys. Rev. B **79** (2009) 24510 1-10
- [17] Y. Nakai, K. Ishida, Y. Kamihara, M. Hirano, and H. Hosono,
“Evolution from Itinerant Antiferromagnet to Unconventional Superconductor with Fluorine Doping in $\text{LaFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$ Revealed by ^{75}As and ^{139}La Nuclear Magnetic Resonance”
J. Phys. Soc. Jpn. , **77** (2008) 073701 1-4
- [学会発表] (計 49 件)
- [1] 軽部皓介, 服部泰佑, 石田憲二, 佐藤憲昭
 「 UNi_2Al_3 の角度分解 ^{27}Al -NMR測定」
 日本物理学会第 66 回年次大会
 2011 年 3 月 25 日
 新潟大学五十嵐キャンパス
- [2] 服部泰佑, 軽部皓介, 井原慶彦, 石田憲二, 田村暢之, 出口和彦, 佐藤憲昭, 佐藤伊佐務
 「単結晶 UCoGe における超伝導状態の ^{59}Co NMRナイトシフト測定」
 日本物理学会第 66 回年次大会
 2011 年 3 月 25 日
 新潟大学五十嵐キャンパス
- [3] 中井祐介, 前川紘紀, 北川俊作, 家哲也, 石田憲二, 笠原成, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁
 「 $\text{CaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ のNMR/NQR」
 日本物理学会第 66 回年次大会
 2011 年 3 月 28 日
 新潟大学五十嵐キャンパス
- [4] 家哲也, 中井祐介, 北川俊作, 石田憲二, 笠原成, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁
 「鉄系超伝導体 $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ の磁性と超伝導のNMRによる研究」
 日本物理学会第 66 回年次大会
 2011 年 3 月 28 日
 新潟大学五十嵐キャンパス
- [5] 北川俊作, 中井祐介, 石田憲二, Cao Wang, Guanghan Cao, Zhu-an Xu
 「鉄系超伝導体 $\text{LaFe}(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)\text{O}$ における NMR/NQR」

日本物理学会第 66 回年次大会
2011 年 3 月 28 日
新潟大学五十嵐キャンパス

[6] 石田憲二

⁵⁹Co-NQR and NMR Studies on Ferromagnetic
Superconductor UCoGe
Physical Phenomena High magnetic Phenomena
2010 2010年12月7日
Tallahassee Florida USA

[7] 石田憲二

⁵⁹Co-NQR and NMR Studies on Ferromagnetic
Superconductor UCoGe”
The 11th Asia Pacific Physics Conference
(APPC11)
2010年11月17日 Shanghai 中国

[8] 石田憲二

“NMR Studies on Iron-based Superconductors”
ISS2010
2010年11月3日
つくば 日本

[9] 石田憲二

“NMR Studies on Iron-based Superconductors”
ICMM 2010
2010年10月28日
コルカタ インド

[10] 石田憲二

“NMR Studies on Iron-based Superconductors”
International and Interdisciplinary Workshop on
Novel Phenomena In Integrated Complex
Science: from Non-living to Living System
2010年10月11日
コープイン京都 日本

[11] 軽部皓介, 服部泰佑, 井原慶彦, 石田憲二, 田村暢之, 出口和彦, 佐藤憲昭

「YCoGe, LaCoGeの⁵⁹Co-NQR/NMRを用いた磁性の研究」
日本物理学会 2010年秋季大会
2010年9月23日
大阪府立大学中百舌鳥キャンパス

[12] 北川俊作, 中井祐介, 石田憲二, Yanfeng Guo, Youguo Shi, 山浦一成, 室町英治

「⁷⁵As-NMRから見た鉄系超伝導体
LaFeAsO_{0.85}における不純物効果」
日本物理学会 2010年秋季大会
2010年9月23日
大阪府立大学中百舌鳥キャンパス

[13] 中井祐介, S.K.Goh, 家哲也, 北川俊作, 石田憲二, 笠原成, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁

「鉄系超伝導体BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂の高P濃度域におけるNMR」

日本物理学会 2010年秋季大会
2010年9月24日
大阪府立大学中百舌鳥キャンパス

[14] 家哲也, 中井祐介, 北川俊作, 石田憲二, 笠原成, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁

「鉄系超伝導体BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂の低P濃度域におけるNMR」
日本物理学会 2010年秋季大会
2010年9月24日
大阪府立大学中百舌鳥キャンパス

[15] 服部泰佑, 井原慶彦, 軽部皓介, 石田憲二, 田村暢之, 出口和彦, 佐藤憲昭, 佐藤伊佐務

「単結晶UCoGeを用いた⁵⁹Coサイトの角度分解NMR」
日本物理学会 2010年秋季大会
2010年9月25日
大阪府立大学中百舌鳥キャンパス

[16] 井原慶彦, 服部泰佑, 軽部皓介, 石田憲二, 田村暢之, 出口和彦, 佐藤憲昭, 佐藤伊佐務

「⁵⁹Co-NMRを用いた単結晶UCoGeの異方的磁気励起の研究」
日本物理学会 2010年秋季大会
2010年9月25日
大阪府立大学中百舌鳥キャンパス

[17] 石田憲二

“⁵⁹Co-NQR and NMR Studies on Ferromagnetic Superconductor UCoGe”
2010年8月30日 ESPCI Paris, France
International Workshop: On the Heavy Fermion Road, 30 Aug. – 1 Sept.

[18] 石田憲二

“NMR Studies on Iron-based Superconductors
Interplay between Superconductivity and Magnetism”
2010年8月11日 東北大学 仙台
ICC-IMR

[19] 石田憲二

“NMR Studies on Iron-based Superconductors
Interplay between Superconductivity and Magnetism”
2010年8月4日 ICTP Trieste, Italy
ICTP Workshop: Principles and Design of Strongly Correlated Electronic Systems

[20] 石田憲二

“NMR Studies on Iron-based Superconductor
BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂

Interplay between Superconductivity and Magnetism
2010年5月18日 Hangzhou, China
2010 Hangzhou Workshop on Quantum Matter

[21] 石田憲二
“NMR Studies on Iron-based Superconductor
Interplay between Superconductivity and Magnetism”
2010年4月27日 Antalya Turkey
International Conference on Superconductivity
and Magnetism (ICSM 2010)

2009 年度

[22] 石田憲二
“NMR Studies on Iron Superconductors”
Workshop `鉄系高温超伝導体研究の最前線`
2009 年 11 月 28 日
(独)日本原子力研究開発機構 上野 (日本)

[23] 石田憲二
“NMR Studies on LaFeAs(O_{1-x}F_x) and Related
Compounds”
9th International Conference on Materials and
Mechanisms of Superconductivity (M2S-IX)
2009 年 9 月 11 日
京王プラザホテル・新宿

[24] 中井祐介
“Comparative NMR Studies on Iron Pnictide
Systems LaFeXO (X = As, P)”
9th International Conference on Materials and
Mechanisms of Superconductivity (M2S-IX)
2009 年 9 月 9 日
京王プラザホテル・新宿

[25] 北川俊作
⁷⁵As-NMR Studies of Anisotropic Spin
Fluctuations in LaFeAs(O_{1-x}F_x)
9th International Conference on Materials and
Mechanisms of Superconductivity (M2S-IX)
2009 年 9 月 9 日
京王プラザホテル・新宿

[26] 石田憲二
Microscopic Coexistence of Ferromagnetism and
Superconductivity in UCoGe
9th International Conference on Materials and
Mechanisms of Superconductivity (M2S-IX)
2009 年 9 月 8 日
京王プラザホテル・新宿

[27] 石田憲二
“Nuclear-Magnetic-Resonance Studies on
Sr₂RuO₄ and Ferromagnetic Superconductor
UCoGe”
Novel Spin Paring 2009

2009 年 9 月 14 日
Panasonic Auditorium, Yukawa Memorial Hall,
Kyoto University, Kyoto, Japan
他 22 発表

[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 :
出願年月日 :
国内外の別 :

○取得状況 (計 0 件)

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

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織 (1) 研究代表者

石田 憲二 (KENJI ISHIDA)
京都大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号 : 90243196

(2) 研究分担者 ()

研究者番号 :

(3) 連携研究者 ()

研究者番号 :