

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20540361

研究課題名（和文）強磁性に近い遍歴電子系チタンコバルトの超伝導

研究課題名（英文）Superconductivity of Nearly Ferromagnetic Itinerant System TiCo

研究代表者

小田 祺景 (ODA YASUKAGE)

兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・客員研究員

研究者番号：50029526

研究成果の概要（和文）：

我々は、3d-band 化合物でかつ強磁性に近い遍歴電子系であるチタンコバルト(TiCo)が約 50 mK で超伝導になることを見いだした。まず、常伝導状態における物性を測定し、それが強磁性に近い物質特有の特性を持っていることを確認した。また、この物質は微量の強磁性クラスターを含み、典型的な磁気余効が観測されること示した。強磁性クラスターの大きさや量が超伝導転移温度に敏感に関係していることを明らかにした。また遍歴強相関電子系の関連研究として、やや複雑な構造の LaPt₃Si などの測定を行った。

研究成果の概要（英文）：

We have found that nearly ferromagnetic itinerant electrons in TiCo, which is a 3d-band compound, become superconducting below approximately 50 mK. The normal state properties have been studied in detail, and reconfirmed to have characteristic of nearly ferromagnetic itinerant electron system. It has been found that the material includes a small number of ferromagnetic clusters and shows typical magnetic aftereffects. The size and quantity of the ferromagnetic clusters have been clarified to be related to the superconducting transition temperature. The heat capacity of LaPt₃Si has also been studied with the similar interest.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,200,000	660,000	2,860,000
2009年度	700,000	210,000	910,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

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：強相関電子系、金属物性、物性実験、超伝導、磁性。

1. 研究開始当初の背景

TiCoの磁性は高温部でCurie-Weiss的に振る舞い、低温においてエンハンスされたPauli常磁性的な性質を示す。この物質は低温で激しい強磁性的なスピン揺らぎが存在する強磁

性に近い遍歴電子系の化合物であることが知られていた。このような磁氣的性質を持つことから、TiCoでは遍歴電子間に強磁性的なスピン揺らぎを仲介とした引力相互作用が働き、新しい型の超伝導（p-波など）が発現する可

能性があると考えられる。また、TiCoはCsCl型の単純な結晶構造を持つ3d-band化合物であることから、研究対象としては好都合である。このような興味から我々はこの物質の超伝導を探索してきたが、このTiCoが約35 mKでバルクな超伝導になることを発見し、欧文誌に発表した(研究業績⑬参照)。これは強磁性に近い3d-band遍歴電子系の最初の超伝導である。この研究のさらなる発展が期待された。

2. 研究の目的

強磁性に近い 3d-band 遍歴電子系が約 35 mK でバルクな超伝導になることがわかったので、種々の物性を測定し超伝導の基本的な性質や磁性との関係を実験的に明らかにすることが最終目標である。しかし転移温度が低いので、試料を改善して可能な限り転移温度を高くすること、冷凍機の性能を上げるなどが求められた。また、低磁場で磁性に履歴現象が現れたり、転移温度が試料ごとに大きく変化したりする問題を解決する必要があった。また常磁性状態での比熱測定なども実施して強磁性に近い遍歴電子系の特性をより詳しく実験する必要もあった。これらの問題を解決しながら期間内に出来るだけ前に進むことが目的であった。また、同じく強相関係で物性に類似性のある LaPt₃Si などについても研究室スタッフと協力して研究を進める。

3. 研究の方法

(1) 装置の改良:

³He-⁴He 希釈冷凍機の冷凍能力を約 1.5 倍にし、無負荷到達温度を約 6 mK に向上させるために(現有無負荷到達温度は 9.3 mK)、熱交換器と混合機を新仕様に交換する。設計は代表者(小田)が行い、部品製作は業者へ特注の形で発注する。なお、冷凍機の他の部品は現有装置をそのまま使用する。

静磁場下での測定のために小型の超伝導磁石を製作する。臨界磁場は大きくないので最大磁場 500~1000 Oe 程度とするが、極低温下での振動による温度上昇を極力抑えるために、ソレノイド上下端から 10 cm 位置でのモレ磁場ができるだけ小さくなるように設計する。この磁石を装着できるように希釈冷凍機の一部(バキューム管と放射熱シールド管)を改良する。これらは、設計は代表者が行い、製作は業者へ特注の形で発注する。

(2) 15 mK~150 mK 領域での比熱の温度変化を詳細に測定するための準備をする。

(3) 高純度試料原料を購入し、製作条件や熱処理条件を変化させて多数の試料を製作し、超伝導転移温度がどのような条件下で変化するかを詳細に調べるとともに、より高い転移温

度を持つ試料を製作することを試みる。原材料である高純度コバルトとチタンは新規に購入する。

(4) 途中経過を日本物理学会などで中間報告し、また、今までの研究成果を国際会議などで発表する。

(5) 併行して、LaPt₃Si などについても研究室スタッフと協力して比熱などの測定を行う。

4. 研究成果

(1) 良質の試料を製作するためにジョンソンマッセイ社から高純度のチタンとコバルトを購入し、いくつかの TiCo 試料を製作した。結果、約 50 mK の超伝導転移温度を持つ試料を繰り返し製作できるようになった。これは当初の 35 mK に比べれば大きな前進であるが、残念ながらそれ以上の転移温度は今回の研究期間内には得ることが出来なかった。ただ、後述するように、転移温度は試料内に微量に出現する強磁性クラスターのサイズや量に依存することがわかったので、将来そこを制御できる技術が開発されれば転移温度は更に上昇する可能性があることを指摘しておく。

(2) 磁気余効の発見。試料内に強磁性クラスターがあり、その大きさがある臨界値近傍に分布するとき磁気余効が現れることは古くから知られていた。今回 TiCo では典型的な磁気余効が観測されることがわかった。その結果、100 Oe 以下の低磁場で観測された磁化の異常な履歴現象や、0.1~1K の温度範囲で観測される比熱の異常な増加が磁気余効と関係していることが明らかになった。また、異常に長い磁化の緩和が時間の対数に比例することがわかった。磁気余効を引き起こしている試料内の強磁性クラスターのサイズと量が超伝導転移温度と関係していることも明らかになった。これらの結果は欧文誌に発表し、今年夏の国際会議(LT26 北京)でも発表する予定である。

(3) 比熱測定などについては、約 80 mK までの測定は達成できたので常伝導状態の比熱の温度変化を測定し、デバイ定数や γ などの値を決定すると同時に、スピン揺らぎを取り入れた理論との比較などを議論し、欧文誌に発表した。しかし、超伝導転移による比熱の温度変化は測定することは出来なかった。第一の理由は約 30~40 mK 以下では温度計の応答が非常に遅くなり微小な温度変化を精度よく測定することが難しかったことである。これらの技術開発は今後の課題である。

(4) その他、当初はもし超伝導転移温度を 80 mK 位まで上げることができれば我々の研究科内共同研究によって核磁気共鳴の実験なども出来るものと期待していた。しかし、転移温度は 50 mK までしか上げることができなかったためこれらの実験を研究期間内に実施することは出来なかった。

(5)併行して、 LaPt_3Si などについても研究室スタッフと協力して比熱などの測定を行った。

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 13 件)

① Y. Oda, G. Motoyama, M. Shiotsuki, and A. Sumiyama, [Superconductivity and Magnetic Aftereffects in the Exchange-Enhanced Paramagnetic Compound TiCo], Journal of Physics: Conference Series, 査読有, in press, 2011.

② G. Motoyama, H. Sakai, A. Yamaguchi, A. Sumiyama, and Y. Oda, [Anisotropy of magnetic susceptibility of URu_2Si_2 under pressure], Journal of Physics: Conference Series, 査読有 Vol. 273, 2011, 012080-1~4.

③ M. Shiotsuki, G. Motoyama, Y. Oda, A. Yamaguchi, A. Sumiyama, T. Takeuchi, R. Settai, and Y. Onuki, [Specific Heat on the Non-centrosymmetric Superconductor LaPt_3Si], J. Phys. Soc. Jpn. Suppl., 査読有, in press, 2011.

④ A. Sumiyama, N. Miyakawa, Y. Ushida, G. Motoyama, A. Yamaguchi, and Y. Oda, [Magnetic-field modulation of the Josephson effect between polycrystalline CeCu_2Si_2 and Al], Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 273, 2011, 012086-1~4,

⑤ Y. Aoki, A. Sumiyama, G. Motoyama, Y. Oda, T. Yasuda, R. Settai, and Y. Onuki, [Meissner effect of heavy-fermion superconductor CePt_3Si under pressure], Physica C, 査読有, Vol. 470, 2010, S554-S555.

⑥ Y. Aoki, A. Sumiyama, M. Shiotsuki, G. Motoyama, A. Yamaguchi, Y. Oda, T. Yasuda, R. Settai, and Y. Onuki, [Josephson Effect between Noncentrosymmetric LaPt_3Si and a Conventional Superconductor], J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, Vol. 79, 2010, 124707-1~6.

⑦ A. Sumiyama, Y. Tsuji, N. Ikeda, Y. Oda, H. Shishido, R. Settai, and Y. Onuki, [Comparison of Josephson effect of heavy-fermion superconductor CeTIn_5 ($T=\text{Co, Ir}$)], Physica C, 査読有, Vol. 470, 2010, S577-S578.

⑧ Y. Oda, A. Tamura, G. Motoyama, and A. Sumiyama, [Superconductivity and Magnetism in Exchange-Enhanced Paramagnetic Compound

TiCo], Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 150, 2009, 052192-1~4.

⑨ G. Motoyama, M. Watanabe, K. Maeda, A. Sumiyama, and Y. Oda, [Crystalline Electric Field Effect of $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Pt}_3\text{Si}$ of Single Crystals], Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 150, 2009, 052173-1~4.

⑩ G. Motoyama, A. Tamura, and Y. Oda, [Magnetic Aftereffect in Exchange-Enhanced Paramagnetic Compound TiCo], J. Phys. Soc. Jpn, 査読有, Vol. 77, 2008, 073704-1~4

⑪ A. Tamura, K. Maeda, G. Motoyama, and Y. Oda, [Normal State Properties of Exchange-Enhanced Paramagnetic Compound TiCo], J. Phys. Soc. Jpn, 査読有, Vol. 77, 2008, 043706-1~4

⑫ G. Motoyama, K. Maeda, and Y. Oda, [Specific Heat Study of Magnetic and Superconducting Transition in CePt_3Si], J. Phys. Soc. Jpn, 査読有, Vol. 77, 2008, 044710-1~5.

⑬ Y. Oda, H. Takezoe, A. Tamura, G. Motoyama, E. Sakagami, and K. Asayama, [Superconductivity in Exchange-Enhanced Paramagnetic Compound $\text{Ti}_{0.5+x}\text{Co}_{0.5-x}$], J. Phys. Soc. Jpn, 査読有, Vol. 76, 2007, 093705-1~3.

[学会発表] (計 14 件)

① Y. Oda, G. Motoyama, M. Shiotsuki, and A. Sumiyama, [Superconductivity and Magnetic Aftereffects in the Exchange-Enhanced Paramagnetic Compound TiCo], 26th international Conference on Low temperature Physics (低温国際会議 LT26), 2011.8.10-17 (invited poster presentation), Beijing China.

② M. Shiotsuki, G. Motoyama, Y. Oda, A. Yamaguchi, A. Sumiyama, T. Takeuchi, R. Settai, and Y. Onuki, [Specific Heat Study of the Non-centrosymmetric Superconductor LaPt_3Si in Magnetic Field], 26th international Conference on Low temperature Physics (低温国際会議 LT26), 2011.8.10-17, Beijing China.

③ M. Shiotsuki, G. Motoyama, Y. Oda, A. Yamaguchi, A. Sumiyama, T. Takeuchi, R. Settai, and Y. Onuki, [Specific Heat Study on the Non-centrosymmetric Superconductor LaPt_3Si], International Conference on Heavy Electrons 2010 (ICHE2010), 2010.9.18, 首都大学東京.

④ 塩月聖博、本山岳、小田祺景、住山昭彦、

「TiCoの超伝導と磁気余効」、日本物理学会、2010.9.23 発表（講演番号 23aPS-122）、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス。

⑤塩月聖博、本山岳、小田祺景、山口明、住山昭彦、竹内徹也、安田敬、撰待力生、大貫惇睦、「LaPt₃Si 多結晶および単結晶の磁場中比熱測定Ⅱ」、日本物理学会、2010.9.24 発表（講演番号 24aWG-8）、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス。

⑥塩月聖博、本山岳、小田祺景、山口明、住山昭彦、竹内徹也、安田敬、撰待力生、大貫惇睦、「LaPt₃Si 多結晶および単結晶の磁場中比熱測定」、日本物理学会、2010.3.20 発表（講演番号 20pGD-8）、岡山大学津島キャンパス。

⑦境秀樹、横山暢之、本山岳、小田祺景、山口明、住山昭彦、「URu₂Si₂の秩序相における電気抵抗率および磁化率から求めた励起エネルギーの比較Ⅱ」、日本物理学会、2010.3.21. 発表（講演番号 21pGF-3）、岡山大学津島キャンパス。

⑧青木義弘、住山昭彦、本山岳、小田祺景、安田敬、撰待力生、大貫惇睦、「重い電子系超伝導体 CePt₃Si の圧力下におけるマイスナー効果Ⅱ」、日本物理学会、2009.9.25.発表（講演番号 25aPS-27）、熊本大学黒髪キャンパス。

⑨塩月聖博、本山岳、小田祺景、山口明、住山昭彦「LaPt₃Si 等重い電子系化合物に関連した超伝導体の比熱測定」、日本物理学会、2009.9.25 発表（講演番号 25aPS-28）、熊本大学黒髪キャンパス。

⑩境秀樹、横山暢之、本山岳、小田祺景、山口明、住山昭彦、「URu₂Si₂の秩序相における電気抵抗率および磁化率から求めた励起エネルギーの比較」、日本物理学会、2009.9.25 発表（講演番号 25aPS-94）、熊本大学黒髪キャンパス。

⑪青木義弘、住山昭彦、本山岳、小田祺景、安田敬、撰待力生、大貫惇睦、「重い電子系超伝導体 CePt₃Si の圧力下におけるマイスナー効果」、日本物理学会、2009.3.27.発表（講演番号 27aPS-17）、立教大学、中・高校池袋キャンパス。

⑫青木義弘、住山昭彦、本山岳、小田祺景、安田敬、撰待力生、大貫惇睦、「空間反転対称性のない CePt₃Si, LaPt₃Si の超伝導性の比較」、日本物理学会、2008.9.21.発表（講演番号 21aPS-31）、岩手大学上田キャンパス。

⑬ Y. Oda, A. Tamura, G. Motoyama, and A.

Sumiyama, [Superconductivity and Magnetism in Exchange-Enhanced Paramagnetic Compound TiCo], 25th international Conference on Low temperature Physics (低温国際会議 LT25), 2008.8.9., Amsterdam Netherlands.

⑭ G. Motoyama, M. Watanabe, K. Maeda, A. Sumiyama, and Y. Oda, [Crystalline Electric Field Effect of Ce_{1-x}La_xPt₃Si of Single Crystals], 25th international Conference on Low temperature Physics (低温国際会議 LT25), 2008.8.8., Amsterdam Netherlands.

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0）

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）

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

小田 祺景 (ODA YASUKAGE)

兵庫県立大学・大学院物質理学研究科 客員研究員

研究者番号：50029526

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：