

令和 4 年 6 月 22 日現在

機関番号：82110

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2021

課題番号：20K22338

研究課題名（和文）ウラン系強磁性超伝導体の量子臨界現象

研究課題名（英文）Quantum criticality of uranium ferromagnetic superconductors

研究代表者

常盤 欣文 (Tokiwa, Yoshifumi)

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・副主任研究員

研究者番号：30737458

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：スピン三重項超伝導体UTe<sub>2</sub>の精密磁化測定を、2.5Tまでの強磁場、温度は2Kから60Kにおいて網羅的に行った。この測定から $dM/dT=dS/dB$ の関係により、磁場-温度相図においてエントロピーマッピングを行った。（Mは磁化、Tは温度、Sはエントロピー、Bは磁場である。）この結果、b軸方向の磁場では、増強超伝導が見える磁場付近からエントロピーの上昇が観測できた。a軸方向では7Tあたりにエントロピーの増大が見られる。これは以前報告されていたリフシツ転移と整合するものである。これらの結果はエントロピー増大が示す揺らぎの増大と超伝導の関係性を明らかにする重要な発見である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ウラン系の強磁性超伝導体はスピン三重項と考えられているが、その異常な性質は従来の超伝導のものとはかけ離れており、研究対象として注目を集めている。また、スピン三重項超伝導体は量子コンピュータのカギとなる物質と考えられている。したがって、その超伝導の発現機構の解明は、学術的にも社会的にも大きな意味を持つ。

非従来型の中でもスピン一重項の超伝導体では、その常伝導状態が異常な非フェルミ液体という相で、そこから超伝導が発生する。スピン三重項超伝導の常伝導相の性質はどのような性質を持つのか？この研究を揺らぎの指標であるエントロピー測定を通して行った。結果、超伝導と揺らぎの関係性を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：Precise magnetization measurements of the spin triplet superconductor UTe<sub>2</sub> were performed comprehensively in a strong magnetic field up to 25T and at temperatures from 2K to 60K. From these measurements, entropy is mapped in the magnetic field-temperature phase diagram based on the relationship of  $dM/dT = dS/dB$ . (M, T, S and B are magnetization, temperature, entropy and magnetic field.) As a result, in the magnetic field along b-axis, an increase in entropy is observed from the vicinity of the magnetic field where reinforced superconductivity emerges. For the field along a-axis increase of entropy is observed around 7T. This is consistent with the previously reported Lifshitz transition. These results clarify the relationship between the increase in fluctuations exhibited by entropy and superconductivity.

研究分野：強相関電子系

キーワード：超伝導 量子臨界現象 ウラン

## 1. 研究開始当初の背景

磁気秩序が元素置換による組成変化や磁場などの外部パラメータで消失する量子臨界点 (QCP) 近傍では、量子臨界揺らぎのため常伝導状態は量子臨界現象を示し異常な金属状態が現れる。非従来型超伝導の多くは、揺らぎが最も強い QCP 近傍で最も増強され、QCP から距離が離れると抑制されるため、量子臨界揺らぎは超伝導発現の起源と考えられている。量子臨界現象は超伝導発現機構に直結していることから、その研究は、重い電子系、鉄系、酸化物系など主要な超伝導物質系において活発に行われている。

そのような非従来型超伝導の一つに強磁性超伝導がある。従来、超伝導は磁場に弱く磁場印可により超伝導転移温度 ( $T_c$ ) は単調に減少する。数少ない例外の一つが、ウラン化合物の強磁性超伝導である。

それらの超伝導体では、 $T_c$  の磁場に対する非単調な変化や、一度消失した超伝導の高磁場での再出現が知られている。これと類似する  $T_c$  の特異な磁場応答が  $UTe_2$  で発見されたため、 $UTe_2$  が新たな強磁性超伝導体と推測され注目を集めている。

現在、超伝導近傍の量子臨界現象は、報告の殆どが反強磁性秩序に起因するものである。強磁性超伝導体の数がごく僅かであることと、 $UTe_2$  以外では常圧で強磁性秩序を示すため、強磁性超伝導における量子臨界現象の研究が殆どなく理解が進んでいない。

## 2. 研究の目的

強磁性超伝導の下地となる常伝導状態はどのような量子臨界的性質を持っているのだろうか。この問いに答えるのが本研究の目的である。量子臨界的性質は、QCP への距離と量子臨界揺らぎの種類が全てと言える。具体的に答えたい疑問として、典型的な相図と同様、強磁性超伝導の  $T_c$  も揺らぎが最も強い QCP 直上で最大化されているか、それとも距離があるか？ 量子臨界揺らぎは純粋に強磁性的か、そして揺らぎの次元性は？ これらの性質を、研究代表者独自の MCE を用いて明らかにする。

そして、 $UTe_2$  ( $T_c=1.6K$ ) は、強磁性転移温度が絶対零度に抑制された、量子臨界点に位置するとされており、強磁性超伝導の量子臨界現象を研究する格好の物質である。

$UTe_2$  の超伝導はスピン三重項超伝導と考えられている。そのような超伝導はトポロジカル超伝導の可能性があり量子コンピュータを構成する物質とされている。このように、スピン三重項超伝導は最先端の研究テーマを内包する重要な研究対象であり、そのような超伝導体の典型となりうる物質の物性解明は我々の分野における最重要課題の一つである。

## 3. 研究の方法

磁気熱量効果 (MCE) の測定により、エントロピーが得られ、磁場 - 温度相図上でエントロピーのマッピングが可能になる。これにより、磁氣的揺らぎの可視化ができる。本研究では、この MCE の精密測定系の立ち上げを行う。それと同時に、精度は落ちるものの、磁化測定からもエントロピーを算出することができるため、磁化測定による研究も行う。熱力学的関係式  $dM/dT=dS/dB$  により、磁化からエントロピーを求める。(M は磁化、T は温度、S はエントロピー、B は磁場である。)

## 4. 研究成果

## UTe<sub>2</sub>のエントロピーマッピング

### (1) 磁場 a 軸

Quantum Design 社製 PPMS を用いて磁場 9 T、温度 1.8 K までの精密磁化測定を行った。a 軸方向では帯磁率  $dm/dB$  に、低温でのみ 7 T あたりにピークが現れる。これは以前報告されているリフシツ転移によるものと考えられる。そして、その磁場においてエントロピーの異常増大が見られる。最近の研究により、超伝導磁気相図がこの磁場付近で折れ曲がりを見せており、エントロピーの異常増大が超伝導に影響を及ぼしている可能性がある。この結果に関して、日本物理学会や国際学会で発表を行った。

### (2) 磁場 b 軸

この磁場方向では、超伝導転移温度  $T_c$  が磁場によりいったん抑制されたのち、さらに高磁場で増大するという、異常なふるまいを示す。その  $T_c$  が極小を持つ磁場が 15 T 付近であるため、この磁場方向における研究には強い磁場が必要である。そこで、東北大学金属材料研究所において 24 T までの強磁場を用いて磁化測定を行い、エントロピーのマッピングを行った。この結果、b 軸方向の磁場では、増強超伝導が見える磁場付近からエントロピーの上昇が観測できた。エントロピーは揺らぎを表す指標であり、超伝導の増強はこの研究によって明らかになった磁場中における揺らぎの増大が寄与しているものと考えられる。この結果は、a 軸の結果と合わせて現在論文として執筆中である。

## MCE 測定系の立ち上げ

極低温実験のための液体ヘリウムを供給する再凝縮装置の不調により、進捗が遅れた。その後、自ら修理を行い、再凝縮装置の稼働に成功した。

MCE 測定には磁場中での極低温温度計校正が必須である。本研究で使用する予定である希釈冷凍機は磁場中の校正が難しい仕様であるが、試行錯誤により校正の実現に近づいている。現時点では、ゼロ磁場における温度計校正が完了している。令和 4 年度に磁場中校正を実現し、測定を始める予定である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 1件）

|  |                         |
|--|-------------------------|
| 1. 著者名<br>S. Bachus, D. A. S. Kaib, Y. Tokiwa, A. Jesche, V. Tsurkan, A. Loidl, S. M. Winter, A. A. Tsirlin, R. Valenti, and P. Gegenwart  | 4. 巻<br>125             |
| 2. 論文標題<br>Thermodynamic Perspective on Field-Induced Behavior of $\text{-RuCl}_3$   | 5. 発行年<br>2020年         |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review Letters  | 6. 最初と最後の頁<br>97203     |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1103/PhysRevLett.125.097203  | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する            |
| 1. 著者名<br>S. Bachus, I. A. Iakovlev, Y. Li, A. Woerl, Y. Tokiwa, L. Ling, Q. Zhang, V. V. Mazurenko, P. Gegenwart, and A. A. Tsirlin   | 4. 巻<br>102             |
| 2. 論文標題<br>Field evolution of the spin-liquid candidate $\text{YbMgGaO}_4$   | 5. 発行年<br>2020年         |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review B  | 6. 最初と最後の頁<br>104433    |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1103/PhysRevB.102.104433   | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する            |
| 1. 著者名<br>Y. Shimura, T. Kitazawa, S. Tsuda, S. Bachus, Y. Tokiwa, P. Gegenwart, R. Yamamoto, Y. Yamane, I. Nishihara, K. Umeo, T. Onimaru, T. Takabatake, H. T. Hirose, N. Kikugawa, T. Terashima, and S. Uji | 4. 巻<br>101             |
| 2. 論文標題<br>Fragile superheavy Fermi liquid in $\text{YbCo}_2\text{Zn}_2\text{O}$   | 5. 発行年<br>2020年         |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review B  | 6. 最初と最後の頁<br>241102(R) |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1103/PhysRevB.101.241102   | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する            |
| 1. 著者名<br>Y. Li, S. Bachus, H. Deng, W. Schmidt, H. Thoma, V. Hutanu, Y. Tokiwa, A. A. Tsirlin, and P. Gegenwart   | 4. 巻<br>10              |
| 2. 論文標題<br>Partial Up-Down Order with the Continuously Distributed Order Parameter in the Triangular Antiferromagnet $\text{TmMgGaO}_4$  | 5. 発行年<br>2020年         |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review X  | 6. 最初と最後の頁<br>11007     |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1103/PhysRevX.10.011007  | 査読の有無<br>有              |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている（また、その予定である）  | 国際共著<br>該当する            |

|  |                      |
|--|----------------------|
| 1. 著者名<br>Y Haga, P Opletal, Y Tokiwa, E Yamamoto, Y Tokunaga, S Kambe, H Sakai  | 4. 巻<br>34           |
| 2. 論文標題<br>Effect of uranium deficiency on normal and superconducting properties in unconventional superconductor UTe <sub>2</sub> | 5. 発行年<br>2022年      |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Physics Condensed Matters   | 6. 最初と最後の頁<br>175601 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1088/1361-648X/ac5201   | 査読の有無<br>有           |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-            |

|  |                   |
|--|-------------------|
| 1. 著者名<br>Y. Tokunaga, H. Sakai, S. Kambe, Y. Haga, Y. Tokiwa, P. Opletal, H. Fujibayashi, K. Kinjo, S. Kitagawa, K. Ishida, A. Nakamura, Y. Shimizu, Y. Homma, D. Li, F. Honda, D. Aoki | 4. 巻<br>91        |
| 2. 論文標題<br>Slow Electronic Dynamics in the Paramagnetic State of UTe <sub>2</sub>  | 5. 発行年<br>2022年   |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Physical Society of Japan   | 6. 最初と最後の頁<br>1-5 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.7566/JPSJ.91.023707   | 査読の有無<br>有        |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-         |

|   |                  |
|---|------------------|
| 1. 著者名<br>Y. Tokiwa, S. Bachus, K. Kavita, A. Jesche, A. A. Tsirlin, P. Gegenwart               | 4. 巻<br>2        |
| 2. 論文標題<br>Frustrated magnet for adiabatic demagnetization cooling to milli-Kelvin temperatures | 5. 発行年<br>2021年  |
| 3. 雑誌名<br>Communications Materials  | 6. 最初と最後の頁<br>42 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1038/s43246-021-00142-1  | 査読の有無<br>無       |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-        |

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Y. Tokiwa, P. Gegenwart, and E. Bauer   |
| 2. 発表標題<br>Zero-field QCP in CeCoIn <sub>5</sub>   |
| 3. 学会等名<br>International Workshop on 20 years of the 115's: past, present, and future (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>常盤 欣文, M. Garst, P. Gegenwart, S. L. Bud'ko, P. C. Canfield |
| 2. 発表標題<br>YbAgGeにおける量子二重臨界点   |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会2020年秋季大会(物性)   |
| 4. 発表年<br>2020年  |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>Y. Tokiwa, S. Bachus, K. Kavita, A. Jesche, A. A. Tsirlin, P. Gegenwart |
| 2. 発表標題<br>フラストレートした磁性体による極低温冷却  |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会2020年秋季大会(物性)   |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>Y. Tokiwa, S. Bachus, K. Kavita, A. Jesche, A. A. Tsirlin, P. Gegenwart          |
| 2. 発表標題<br>Frustrated magnet for adiabatic demagnetization cooling                          |
| 3. 学会等名<br>International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (online) (国際学会) |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>芳賀芳範, 常盤欣文, 山本悦嗣, 三宅厚志, 徳永将史  |
| 2. 発表標題<br>層状構造を持つウラン化合物U <sub>2</sub> Pt <sub>6</sub> Al <sub>15</sub> の結晶構造と物性 |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会2020年秋季大会(物性)   |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>徳永陽, 酒井宏典, 神戸振作, P. Opletal, 常盤欣文, 芳賀芳範, 仲嶺元気, 藤林裕己, 金城克樹, 北川俊作, 石田憲二, 佐藤芳樹, 仲村愛, 清水悠晴, 李徳新, 本間佳哉, 本多史憲, 青木大 |
| 2. 発表標題<br>NMRによるUTe2の磁気揺らぎの研究  |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会2020年秋季大会(物性)  |
| 4. 発表年<br>2021年   |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|