

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 1 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21540374

研究課題名（和文） 超純良ウラン化合物超伝導体の隠れた秩序相磁気励起

研究課題名（英文） Magnetic excitations in the hidden ordered state of ultra-pure uranium based superconductor.

研究代表者

神戸 振作 (KAMBE SHINSAKU)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究主席

研究者番号：40224886

研究成果の概要（和文）：通常とは異なる超伝導体である  $URu_2Si_2$  の超純良単結晶を作成した。この単結晶試料を用いて  $^{29}Si$  核磁気共鳴測定を行った。この測定によりこの超伝導体に現れる隠れた秩序相を明らかにした。特に秩序相での回転対称性について明らかにした。

研究成果の概要（英文）：Ultra-pure single crystal sample of non-conventional superconductor  $URu_2Si_2$  is prepared. Using this sample,  $^{29}Si$ -NMR measurements are performed. The hidden-ordered state of  $URu_2Si_2$  is clarified. Especially, rotation symmetry in the ordered state is clarified.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010年度	700,000	210,000	910,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

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：超伝導、隠れた秩序、NMR

## 1. 研究開始当初の背景

超伝導体  $URu_2Si_2$  の隠れた秩序状態は、20 年来にわたり、その秩序パラメーターが同定されていない。そのため、その同定は、f 電子系研究の大きな課題のひとつとなっていた。最近、隠れた秩序状態で、ab 面内の 4 回対称性が破れているという報告があり、その検証が待たれていた。

## 2. 研究の目的

本研究目的は、核磁気共鳴（NMR）法を用いて  $URu_2Si_2$  の隠れた秩序状態の解明を行うことである。特に、ab 面内の 4 回対称性が破れているかどうかの検証に努める。

## 3. 研究の方法

$^{29}Si$  同位体を 50%濃縮した  $URu_2Si_2$  単結晶試料をチョークラススキー法にて作成した。この試料を用いて、 $^{29}Si$  の NMR スペクトルを精密に測定した。 $^{29}Si$  同位体の自然存在比は 4.7%のため、50%濃縮することにより  $(50/4.7)^2 = 110$  倍の S/N を向上させることができる。試料は、電気抵抗率、帯磁率により評価し、非常に純良（残留抵抗率が 2-3 mΩcm 程度）であることを確認した。NMR 測定は通常のパルス法を用いて行った。12 T の超伝導磁石を用いてスピネコーを観測した。Si-NMR スペクトルはスピネコーをフーリエ変換することにより求めた。磁場

をかける方向を非常に精密にする必要（誤差 0.1 度以内）があるため、[001]と[110]方向が正確に出ている単結晶試料を 2 軸回転ステージに設置し NMR 測定を行った。磁場を ab 平面内に正確にかけ、ab 平面内で磁場を回転させ Si-NMR スペクトルの磁場方向依存を測定した。図 1 に試料の断面を示す。



図 1 単結晶試料

見えている鏡面は (001) 面である。また上部に平たい面がでているがこれが (110) 面である。この 2 つの面を利用して正確に磁場を ab つまり (001) 面内にかけた。



図 2 単結晶試料 (側面)

図 2 には単結晶の側面を示す。長軸方向が c 軸である。全体がきれいな金属光沢を示しており、良質の単結晶であることを示している。

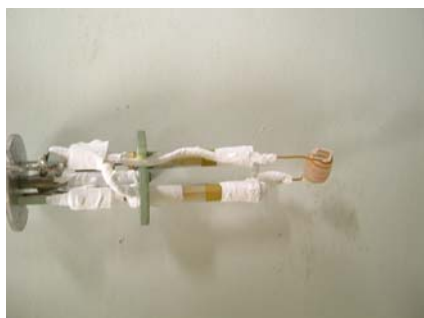


図 3 NMR プローブ先端部

図 3 には NMR プローブの先端部を示す。共鳴回路は 2 つの可変コンデンサーとひとつのコイルから構成されている。先端部のコイルにむけて平行に伸びている 2 つの棒状のものが可変コンデンサーである。コンデンサーは共鳴周波数を変えるためと、50 オームのインピーダンスマッチングを取るために 2 つ設置されている。今回の実験では、この先端部のコイルを 2 軸回転ステージに設置し、回転できるようにした。

#### 4. 研究成果

NMR スペクトルについて述べる。図 3 に  $^{29}\text{Si}$ -NMR スペクトルを示す。実験条件は、NMR 測定周波数が 43.955 MHz であり、これはかけた磁場が  $H=5.19\text{T}$  に対応する。また角度  $Q$  は、[110] 方向からの角度である。図 3 の場合、 $Q=0$  なので磁場は正確に [110] 方向を向いてある。線幅は数 kHz であり、ウラニウム化合物の NMR 線幅としては非常に小さい。これは試料が非常に高品質であることを示している。すべての場合、NMR スペクトルは、ローレンツ型であった。これは、線幅が不均一性に起因するものであることを示している。本試料は、非常に高品質であるが、それでも何らかの不均一性があると考えられる。

本化合物では 17 K に隠れた秩序転移がある。図 3 に見えるよう秩序状態である低温 7 K では、無秩序状態である 25 K に比べて線幅の増大が見られる。これは秩序変数と線幅に相関があることを示している。

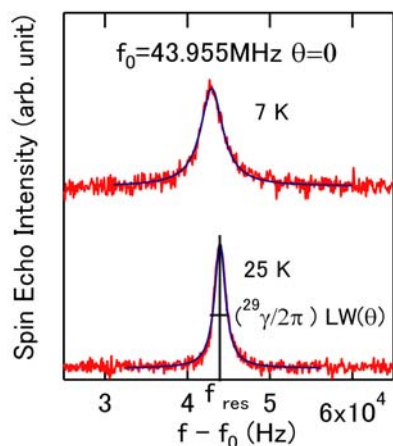


図 4  $^{29}\text{Si}$ -NMR スペクトル

ナイトシフトについて述べる。このスペクトルをローレンツ型関数でフィットしたものが図の黒い線である。これからセンターの周波数  $f$  が求まる。例えば 25 K のスペクトルでは黒い直線に対応する周波数である。この周波数  $f$  からナイトシフト  $K$  は  $K=(f-f_0)/f_0$  として求まる。ここで  $f_0$  は参照周

波数であり次式

$$f_0 = {}^2\gamma H \quad (1)$$

で表わされる。ここで ${}^2\gamma$ は ${}^{29}\text{Si}$ 核の磁気回転比である。ナイトシフトは静帯磁率 $\chi$ と超微細相互作用定数 $A$ を通じて比例しており次式で表わされる。

$$K = A\chi \quad (2)$$

従って、 $\chi$ に異方性があれば、 $K$ に異方性が出てくることになる。ここで超微細相互作用定数 $A$ はナイトシフト $K$ と静帯磁率 $\chi$ のプロット、いわゆる $K$ - $\chi$ プロットから求まる。 $\text{URu}_2\text{Si}_2$ では超微細相互作用定数 $A$ に $ab$ 面内の異方性はないことはわかっている。従って、 $K$ は $\chi$ の異方性を反映することになる。図5にナイトシフトの角度依存を示す。ここで $K_0$ は $2.5\text{K}$ 、 $\Theta=0$ でのナイトシフトである。図5からわかるように、ナイトシフトの角度依存は、実験誤差以内でなかった。 $2.5\text{K}$ の場合、系は無秩序状態である。この時、 $\text{Si}$ サイトは $ab$ 面内で4回対称性を持つので、ナイトシフトは低磁場で当方的でなければならない。従って、実験結果はそれを確認したことになる。 $5\text{K}$ の場合、系は隠れた秩序状態にある。従って、もし系の4回対称性が破れていれば、ナイトシフトの角度依存が現れるはずである。従って、この結果は、隠れた秩序状態でも4回対称性は破れていないことになる。

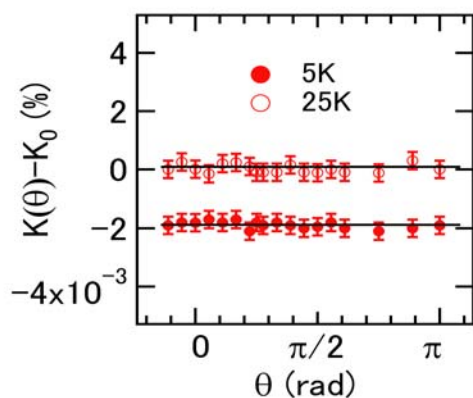


図5 ナイトシフトの角度依存

以上の議論は、秩序状態でドメイン構造がない場合の議論である。しかし、4回対称性が破れると主張している静帯磁率の実験では、2つのドメインAとBがあると考え、実際、大きい試料では4回対称性が破れは見られない。このドメインの効果はナイトシフトの角度依存性にも影響する。図6を用いてその効果を議論する。図において赤線はドメインAのスペクトル、青線はドメインBのスペクトル

である。ドメインAとドメインBは同等な斜方晶でありお互いに $90^\circ$ 度回転した状況である。2つのスペクトルは $45^\circ$ 度で同等になり、 $90^\circ$ 度回転すると入れ替わることになる。NMR測定で実際に測定できるのは、2つのドメインからのスペクトルの重ね合わせになるため、緑線で表わされるものになる。図でわかるように緑線のセンターの位置、つまりナイトシフトの対応する位置は角度依存がないことになる。従って、今回、得られたナイトシフトの結果からは、4回対称性が破れたかどうかは結論できない。

今回の結果は、4回対称性が破れたかどうかを判断するためにはドメインの有無を調べることが非常に重要であることを示した。もし、磁気ドメインがないことがわかれば、今回の結果は、4回対称性が破れないことを強く示唆する。現在までにドメインがある証拠は得られていない。しかし、通常の大極子磁気秩序とは異なる高次の多極子秩序の場合、どのようなドメインが現れるかは全く明らかではない。本化合物では、高圧下で反強磁性秩序が現れる。この秩序状態ではドメイン構造は現れない。しかしこの事実は隠れた秩序状態でドメインがないことの証拠にはならない。

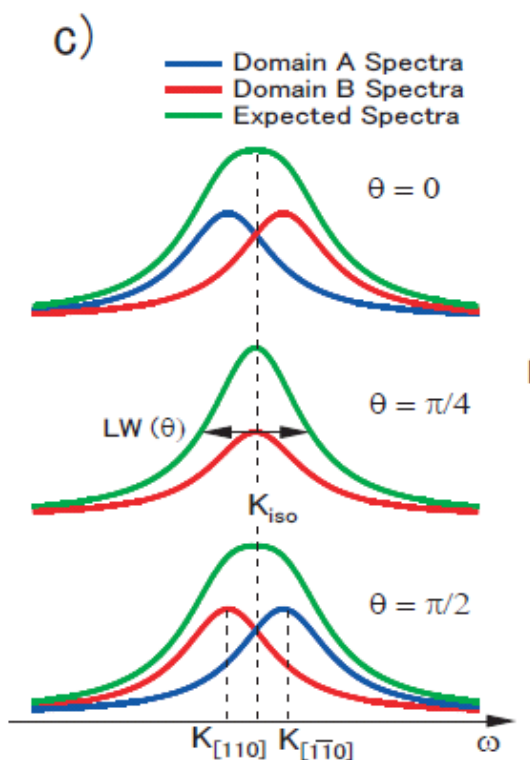


図6 ドメインでのスペクトル

本研究は4回対称性が破れの理解について、大きな前進をもたらした。今度のドメインの解明が待たれる。

## 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) Correlation between the superconducting pairing symmetry and magnetic anisotropy in f-electron unconventional superconductors, S. Kambe, H. Sakai, Y. Tokunaga and K. Kaneko, J. Phys. Conf. series 344, (2012) 012003. 査読有  
DOI : [10.1088/1742-6596/344/1/012003](https://doi.org/10.1088/1742-6596/344/1/012003)
- 2) T-dependent Nuclear Hyperfine Coupling at the In site in CeIrIn<sub>5</sub>, S. Kambe, H. Sakai, Y. Tokunaga, T.D. Matsuda, Y. Haga, T. Takeuchi, Y. Onuki and R.E. Walstedt, J. Phys. Soc. Jpn. 80 (2011) supplement A SA09. 査読有 DOI: [10.1143/JPSJS.80SA.SA009](https://doi.org/10.1143/JPSJS.80SA.SA009)
- 3) Quantum critical behavior in heavy fermion superconductor CeIrIn<sub>5</sub>: S. Kambe, H. Sakai, Y. Tokunaga and R.E. Walstedt, Phys. Rev. B82 (2010)144503. 査読有  
DOI : [10.1103/PhysRevB.82.144503](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.82.144503)
- 4) One-component description for magnetic excitations in heavy fermion CeIrIn<sub>5</sub>: S. Kambe, Y. Tokunaga, H. Sakai, H. Chudo, Y. Haga, T.D. Matsuda and R.E. Walstedt: Phys. Rev. B 81 Rapid Commun. (2010) 140405. 査読有  
DOI : [10.1103/PhysRevB.81.140405](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.81.140405)
- 5) Evidence for appearance of an internal field in the ordered state of CeRu<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> by  $\mu^+$ SR: S. Kambe, H. Chudo, Y. Tokunaga, T. Koyama, H. Sakai, T.U. Ito, N. Kazuhiko, W. Higemoto, T. Takesaka, T. Nishioka and Y. Miyake, J. Phys. Soc. Jpn. 79 (2010) 053708. 査読有  
DOI : [10.1143/JPSJ.79.053708](https://doi.org/10.1143/JPSJ.79.053708)
- 6) Diagnosis of Quantum Criticality by Nuclear Spin-echo decay Method: S. Kambe, H. Sakai, Y. Tokunaga, H. Chudo and R.E. Walstedt, Physica Status Solidi B 247(2010)520. 査読有  
DOI : [10.1002/pssb.20100520](https://doi.org/10.1002/pssb.20100520)
- 7) Quantum criticality in a uranium heavy fermion system revealed with NMR spin-spin relaxation: S. Kambe, H. Sakai, Y. Tokunaga, T.D Matsuda, Y. Haga, H. Yasuoka, H. Chudo and R.E. Walstedt, J. Phys.: Conf. Ser. 200 (2010) 012076. 査読有

DOI:10.10088/1742-6596/200/1/012076

[学会発表] (計 15 件)

- 1) 神戸振作 ASRC ワークショップ「JAEA アクティビティ」2012年2月2日、ラウランジュバン研究所
- 2) 神戸振作 日本物理学会「単結晶 YRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>の NMR」2011年9月24日、富山大学
- 3) 神戸振作 アメリカ化学会「アクチノイド化合物の NMR」2011年9月8日、デンバー
- 4) 神戸振作 日本物理学会「単結晶 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>の NMR」2010年9月26日、大阪府立大学
- 5) 神戸振作 スピニクス研究会「アクチノイド NMR 研究」2010年10月26日、茨城大学
- 6) 神戸振作 日本物理学会「f 電子系超伝導体の磁気異方性」2010年3月17日、岡山大学
- 7) 神戸振作 EU-RACTNMR 「f 電子系の超伝導」2010年1月23日、カールスルーエ
- 8) 神戸振作 日本物理学会 「CeIrIn<sub>5</sub> の NMR」2010年3月17日、岡山大学
- 9) 神戸振作 日本物理学会 「USn<sub>3</sub> の NMR」2009年9月23日、熊本大学

[その他]

ホームページ等  
なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

神戸 振作 (KAMBE SHINSAKU)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・研究主席

研究者番号：40224886