

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21740272

研究課題名(和文) ウラン化合物における遍歴強磁性超伝導の微視的研究

研究課題名(英文) NMR study of uranium-based ferromagnetic superconductors

研究代表者

徳永 陽(TOKUNAGA YO)

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・研究副主幹

研究者番号：00354902

研究成果の概要(和文)：

f 電子系化合物における超伝導と磁性の関連性を調べるため、強磁性超伝導体 UCoGe において核磁気共鳴法による研究を行った。合成条件の異なる複数の試料で測定を行った結果、いずれの試料でも強磁性転移温度付近で強磁性と常磁性との相分離が確認されること、また残留抵抗比の増加と共に強磁性相の割合が増加することがわかった。また強磁性相の増加には必ずしも単結晶試料である必要がないことも判明した。超伝導の体積率も残留抵抗比と共に増加しており、以上の結果はこの系の超伝導出現において、強磁性相の存在が本質的に重要であることを示唆している。

研究成果の概要(英文)：

In order to investigate the relationship between magnetism and superconductivity in f-electron systems, NMR measurements have been performed in several UCoGe samples synthesized with different conditions. We have found that the volume of ferromagnetic phase in the samples increases with increasing their residual resistance ratio (RRR). Since bulk measurements indicate that the volume of superconducting phase also increases with increasing RRR, the NMR result suggests that the ferromagnetic ordering is essential for the occurrence of superconductivity in UCoGe.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,500,000	750,000	3,250,000
2010 年度	900,000	270,000	1,170,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：固体物理

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：強相関係、核磁気共鳴、超伝導

1. 研究開始当初の背景

強磁性超伝導体の研究の歴史は比較的早く、初期には HoMo₆S₈ や ErRh₄B₄ 等の希土類化合物で研究が行われていた。これらの化合物

では超伝導を担う電子と磁性を担う電子は異なっており、磁性は希土類イオンの局在 4f 電子が、一方、超伝導はそれを避けるようにバンドを形成した伝導電子が担っていた。また強磁性転移温度 (T_{Curie}) が超伝導転移温度

(T_{sc})よりも低いのが特徴で、局在モーメントと伝導電子間の相互作用のため、強磁性の出現に伴い超伝導は消失してしまうことが知られていた。

これに対して T_{Curie} が T_{sc} を越える初めての強磁性超伝導体として注目されたのが $RuSr_2ReCu_2O_8$ ($Re=Gd, Y$ など) 等の Ru 系超伝導体である。この Ru 系超伝導体では NMR 実験等から、磁性は RuO_2 面を構成する Ru の 4d 電子が、一方、超伝導は主に CuO_2 面を構成する Cu の 3d 電子が担うことが明らかになっている。すなわち Ru 系超伝導体では空間的に住み分けた2種類の強相関電子が、強磁性と超伝導の共存を可能にしていると言える。

ところが2000年以降、新たに発見されたウランを含む強磁性超伝導体 UGe_2 や $UCoGe$ では、 T_{Curie} が T_{sc} をよりも高く、強磁性秩序が十分に確立した状況で超伝導が出現する。さらに秩序モーメントの大きさが局在ウランでの期待値よりも遥かに小さいことから、ウランの遍歴的な 5f 電子が強磁性と超伝導の両方を担っていると可能性が指摘されていた。その場合、まったく新しい形の強磁性と超伝導の共存状態が実現していることになる。

2. 研究の目的

本研究は、ウランを含む強磁性超伝導体において核磁気共鳴(NMR)測定法による微視的研究を行い、f 電子系化合物における超伝導と磁性の関連性を調べることを目的とした。研究対象となったのは $UCoGe$ で、この物質の示す強磁性超伝導は、遍歴電子が強磁性と超伝導を同時に担うという点において極めてユニークであり、強磁性揺らぎを媒介とした非 BCS 型の超伝導機構の存在を直感的に示している。またこのような遍歴電子の強磁性超伝導は複数 5f 電子系の特異性も示唆している。

3. 研究の方法

本研究では NMR を測定手段として用いた。NMR 法は、原子核をプローブとした微視的測定手法であり、超伝導クーパー対の対称性およびスピン状態の同定に非常に威力を発揮する。 UPt_3 や Sr_2RuO_4 におけるスピン三重項超伝導の発見も NMR によるものである。また試料内での相分離や微小磁化にも敏感で、例えば URu_2Si_2 では隠れた秩序相と反強磁性秩序相の相分離を初めて明らかにしている。

本研究では独立行政法人日本原子力研究開発機構の芳賀らによって合成された複数の $UCoGe$ 試料において Co 核の NQR 測定を行った(図1)。合成方法やアニール条件の異なる複数の試料を準備することにより、系統的な測定を実施した。



図 1: 引き上げ法により合成された $UCoGe$ 単結晶試料。

4. 研究成果

(1) Co 核 NMR スペクトルの温度依存性

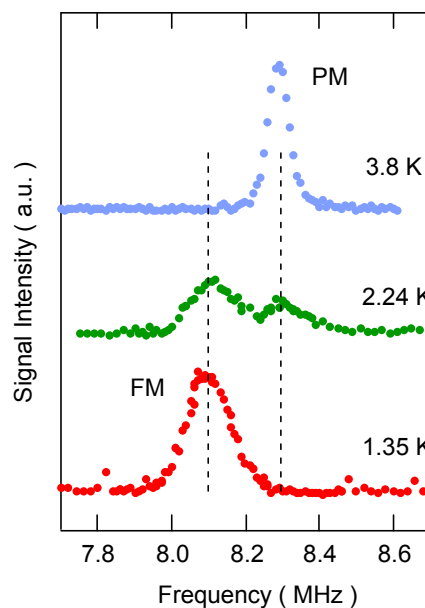


図 2: Co 核の NMR スペクトルの温度依存性。常磁性相からの 8.3MHz 付近に、強磁性相からの信号が 8.1MHz 付近に観測されている。

図 1 に $UCoGe$ 粉末試料における Co 核 NMR スペクトルの温度依存性を示す。電気抵抗、比熱等のバルク測定からはこの試料の T_{Curie} は 2.5~2.8 K であることが示されている。

T_{Curie} 以上の 3.8 K では試料全体が常磁性状態(スピンの秩序が無い状態)であり、この常磁性相を起源とするスペクトルが 8.3

MHz 付近に観測される。一方、 T_{Curie} 直下の 2.24K では、8.3MHz 付近の常磁性相からの信号と、8.1MHz 付近の強磁性相からの信号が同時に観測される。すなわち両相が共存状態にあることがわかる。このような常磁性と強磁性の相分離はすでに別グループにより指摘されていたが、我々の試料においてもこの相分離が確認されたことになる。単純にスペクトルの強度比から見積もると、この温度では試料中の 70~80% の領域が強磁性秩序状態で、残りが常磁性状態にあると考えられる。

さらに転移温度より十分に低い 1.35K では常磁性相からの信号は観測されず、試料内のほぼ 100% の領域が強磁性相となっていることが確認された。このことは超伝導転移温度以下では超伝導と強磁性がミクロに共存していることを示している。

(2) Co 核 NMR スペクトルの試料依存性

本研究では同様の測定を合成条件の異なる複数の試料で行った。その結果、
 ① いずれの試料でも転移温度直下で強磁性相と常磁性相の相分離が観測されること
 ② 両相の体積比は試料の質に非常に敏感であること
 ③ 試料の質が良くなる(電気抵抗の残留抵抗比の上昇)と共に、強磁性相の割合が増えること
 ④ 同じく試料の質が良くなると共に、相分離が観測される温度領域が小さくなること、
 がわかった。また強磁性相の増加には必ずしも単結晶である必要がないことも判明した。

このとき重要なのは、超伝導の体積率も残留抵抗比とともに増加することである。従って、上記の結果は超伝導の出現において強磁性相の存在が本質的に重要であることを示している。

(3) Co 核スピン-格子緩和時間の温度依存性

本研究では試料の質の違いが、UCoGe の電子状態にどのような影響を与えているのかをさらに詳しく調べるために、1.5K から 200K までの温度領域で、スピン-格子緩和時間の測定を行った。スピン-格子緩和時間は、ウランの 5f 電子スピンの揺らぎのエネルギーに関係する物理量である。図 3 に示すように、測定は高温でのアニールを行わないもの(As cast)と、行ったもの(Annealed)の 2 つの試料

について行い、その温度依存性を比較した。高温でのアニールは試料内の不均一性を取り除く効果があり、残留抵抗率がアニール後は上昇する。

測定の結果、アニールを行わない試料では強磁性転移に伴う緩和時間の発散が、ほとんど見られないのに対し、アニール後の試料では非常に大きな発散が T_{Curie} に向かって観測されることがわかった。これは残留抵抗比の上昇と共に、強磁性相の割合が増えるとした、スペクトル測定の結果と矛盾がない。

一方、8K 以上の温度領域では 2 つの試料で、緩和時間の絶対値及び温度依存性とも実験誤差の範囲でまったく違いがないことも確認された。70K 付近で観測されている温度依存性の変曲点は、ウランの 5f 電子が遍歴的となることを示唆する特徴的な温度 T^* と考えられるが、この T^* についても 2 つの試料において違いは観測されなかった。

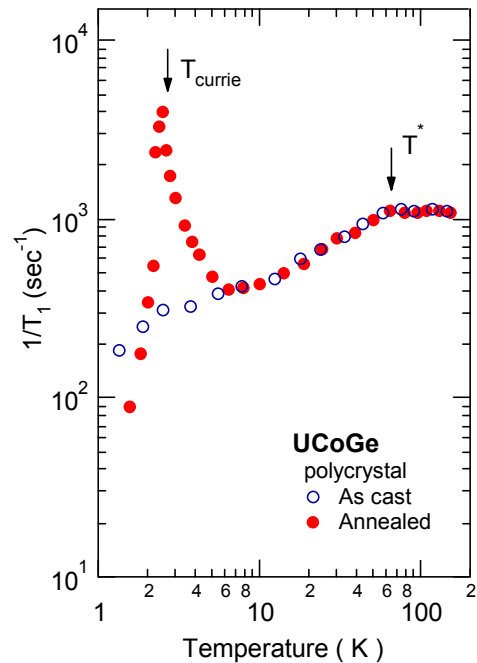


図 3: Co 核スピン-格子緩和時間の温度依存性。高温アニールを行わないもの(As cast)と、行ったもの(Annealed)の 2 つの試料で測定を行っている。

以上の結果は、高温での電子状態は 2 つの試料でほとんど違いがないにもかかわらず、非常にわずかな試料の不均一性により強磁性が抑制されてしまうことを微視的に明らかにしたものである。UCoGe の強磁性そのものが非常に特異なものであることを示唆する結果である。

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 2 件)

- ① Shinsaku Kambe, Hironori Sakai, Yo Tokunaga, and Kouji Kaneko
Correlation between the superconducting pairing symmetry and magnetic anisotropy in f -electron unconventional superconductors.
査読有
J. Phys: Conf. Seri, in press (2011)
- ② Hiroyuki Chudo, Hironori Sakai, Yo Tokunaga, Shinsaku Kambe, Dai Aoki, Yoshiya Homma, Yoshinori Haga, Tatsuma D. Matsuda, Yoshichika Ōnuki, and Hiroshi Yasuoka
Anisotropic spin fluctuations in Heavy-fermion superconductor $NpPd_5Al_2$
査読有
J. Phys. Soc. Jpn. 79, 053704 (2010)

[学会発表] (計 1 件)

- ① Yo Tokunaga,
NMR studies of uranium and transuranium compounds
International conference for wide band NMR in strongly correlated systems
2010年9月9日
Trogir Croatia

6. 研究組織

(1)研究代表者

徳永 陽 (TOKUNAGA YO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構

研究者番号 : 00354902