

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 2 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24340085

研究課題名(和文) 強磁性の量子臨界終点における新しい量子状態の解明と探索

研究課題名(英文) Elucidation and search for new quantum states in ferromagnetic quantum critical endpoint

研究代表者

小手川 恒 (Kotegawa, Hisashi)

神戸大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：30372684

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,700,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性の量子臨界終点を持つUCoAl、URhGeに対して核磁気共鳴法(NMR)を用いて、その微視的状态、磁気揺らぎの詳細を調べた結果、両者ともに量子臨界終点近傍において強い磁気揺らぎの増大を観測することに成功した。URhGeに関しては磁気揺らぎが磁場誘起超伝導の発現機構に関与しているものと推察される。また、強磁性体CeRuPOにおいては圧力下でメタ磁性転移を、強磁性体CeIr3B2では強磁性臨界点、ヘリカル磁性体CrAsにおいては圧力誘起超伝導を発見した。核四重極共鳴法(NQR)によって、CrAsの超伝導は磁気揺らぎを媒介としたCr系初の非従来型超伝導であることを強く示唆する結果を得た。

研究成果の概要(英文)：We have investigated microscopic states and details of magnetic fluctuation for UCoAl and URhGe which possess a ferromagnetic quantum critical endpoint, by means of nuclear magnetic resonance (NMR). As a result, we have succeeded to observe a development of strong magnetic fluctuations in the vicinity of the quantum critical endpoint of both compounds. The observed magnetic fluctuations are conjectured to play important role for field-induced superconductivity in URhGe. We have also found a metamagnetic transition which appears under pressure in ferromagnet CeRuPO, and ferromagnetic critical point in CeIr3B2. For helimagnet CrAs, we have found pressure-induced superconductivity. From nuclear quadrupole resonance (NQR) measurements, we have obtained the results indicating that superconductivity in CrAs is mediated by magnetic fluctuations, and that CrAs is the first Cr-based unconventional superconductor.

研究分野：低温物性

キーワード：強磁性 量子臨界点 メタ磁性 超伝導 圧力

1. 研究開始当初の背景

(1) 強磁性相近傍にある常磁性体、もしくは圧力下で強磁性状態が消失した常磁性状態において、磁場印加により一次相転移を通して強磁性状態を誘起させることが出来る物質が存在する。そのような物質は圧力や磁場などのパラメータを調整することにより、強磁性の量子臨界終点を示す。このような性質を示す物質は最近になっていくつか報告されてきていたが、その微視的状态や磁気揺らぎの詳細は未解明であった。また、URhGeではその量子臨界終点における磁気揺らぎが磁場誘起超伝導を引き起こしているとの予想がなされていたが、実験的な証拠は得られていなかった。

(2) また、そのような磁気相を圧力で抑制させることによって新たな量子状態を誘起させることは、反強磁性体では報告例が多数存在するが、強磁性体においては少なく、系統的理解のために多くの物質での例を必要としていた。

2. 研究の目的

(1) 強磁性量子臨界終点を持つ物質として UCoAl、URhGe を研究対象に選択した。UCoAl は常磁性体であるが、0.7 T の磁場印加により強磁性状態へと転移し、加圧することによって 1.5 GPa、7 T で量子臨界終点を示す。また、URhGe は結晶の b 軸方向と c 軸方向の印加磁場を調整することで量子臨界終点を誘起することが出来ると考えられている。そのような状況下で核磁気共鳴法(NMR)を用いて微視的状态や磁気揺らぎの詳細を調べた。

(2) 更なる磁気的な量子臨界点や量子相を探索するために強磁性体 CeRuPO、CeIr₃B₂ の圧力下電気抵抗測定を行った。また、ヘリカル磁性体 CrAs の圧力下電気抵抗測定も行った。CeRuPO においては圧力下でメタ磁性転移を発見したため、その詳細を明らかにするために NMR 測定を行った。また、CrAs では圧力誘起超伝導を発見したため、その超伝導の起源を明らかにするために核四重極共鳴法(NQR)を行った。

3. 研究の方法

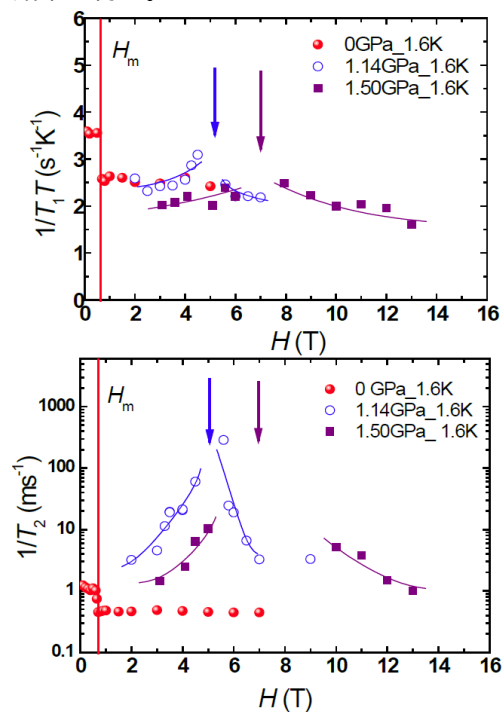
(1) UCoAl に関しては単結晶試料を用いた。ピストンシリンダーセルで圧力を印加し、容易軸である c 軸方向に磁場印加した上で ⁵⁹Co-NMR 測定を行った。URhGe に関しては多結晶試料を磁場中で配向させ、b 軸方向に磁場印加し、⁷³Ge-NMR を通じて磁場誘起超伝導が出現する領域での磁気揺らぎについて調べた。

(2) CeRuPO、CeIr₃B₂、CrAs の圧力下電気抵抗測定は全て単結晶試料を用いて、インデント型圧力セルを用いて行った。その後、CeRuPO に対しては ³¹P-NMR 測定を、CeIr₃B₂ に対しては ¹¹B-NMR、CrAs に対しては ⁷⁵As-NQR 測定を行った。

4. 研究成果

(1)

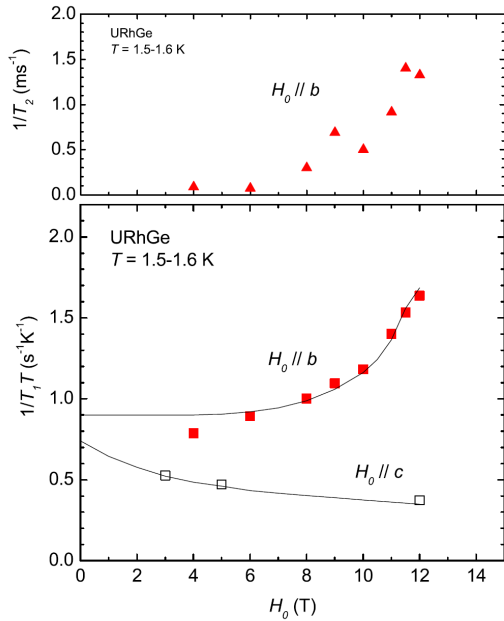
「UCoAl の量子臨界終点近傍の NMR 測定」
UCoAl は常磁性 - 強磁性のメタ磁性転移を示す物質であるが、約 1.5 GPa の圧力、約 7 T の磁場印加によって 1 次のメタ磁性転移が絶対零度で終結する量子臨界終点をもつ。NMR のスペクトル、核スピン格子緩和率 $1/T_1$ 、核スピン - スピン緩和率 $1/T_2$ を系統的に圧力変化を調べた結果、下図のように $1/T_2$ に大きな異常が現れることが分かった。このことから量子臨界終点近傍において Ising 的な縦揺らぎが増強されることを明らかにした。また、1 次のメタ磁性転移がクロスオーバーに変化した圧力域でも縦揺らぎが強く残っていることを示唆する結果を得た。



「URhGe の磁場誘起超伝導近傍の NMR 測定」

強磁性体超伝導体 URhGe は磁場誘起超伝導を示す特異な物質である。⁷³Ge 同位体を用いた試料に対する ⁷³Ge-NMR 測定から磁気揺らぎの性質を調べた。その結果、ゼロ磁場近傍では類似物質の UCoGe に比べて結晶の c 軸方向の一軸的な磁気揺らぎはそれほど強くない事が分かった。また、下図のように 12 T 付近にある磁場誘起超伝導相の近傍で $1/T_1$ と $1/T_2$ を測定した結果、b 軸方向と c 軸方向の磁気揺らぎが共に発達していることを明らかにした。同時に磁場誘起超伝導近傍において起こるスピン再配列は低温において一次相転移であり、温度 - 磁場相図上に 2 次相転移が 1 次相点に切り替わる三重臨界点が存在することを明らかにした。よって、URhGe の磁場誘起超伝導は強磁性の三重臨

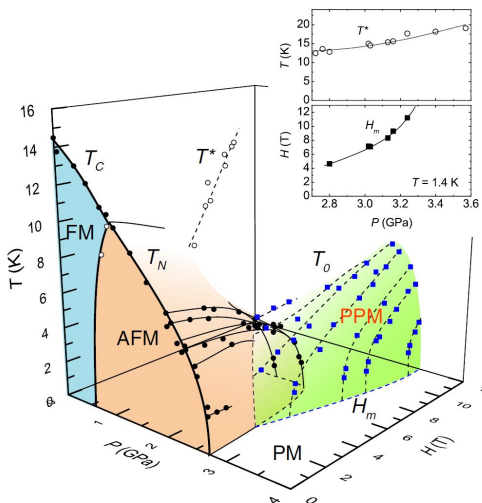
界点近傍の磁気揺らぎによって出現していることを明らかにした。また、他の強磁性超伝導体 URhGe の ^{73}Ge -NMR も行い、常圧において異方的な磁気揺らぎの発達を観測した。



(2)

「CeRuPO のメタ磁性転移と NMR 測定」

強磁性体 CeRuPO の圧力下電気抵抗測定を行った。CeRuPO は Ru サイトを Fe で置換することによって強磁性の量子臨界点を示す物質と報告されているが、圧力印加では反強磁性相に移り変わることが分かった。この反強磁性相は約 2.7 GPa の圧力下で消失し、その付近で磁場を印加することで常磁性 - 強磁性のメタ磁性転移を出現することを発見し、下図のような 3 次元相図を完成させた。さらに NMR 測定を行うことによってメタ磁性転移の前後で磁気揺らぎの異方性が大きく変わっていることを明らかにした。このことから、CeRuPO のメタ磁性転移にはフェルミ面の不安定性が関わっていることが示唆される。

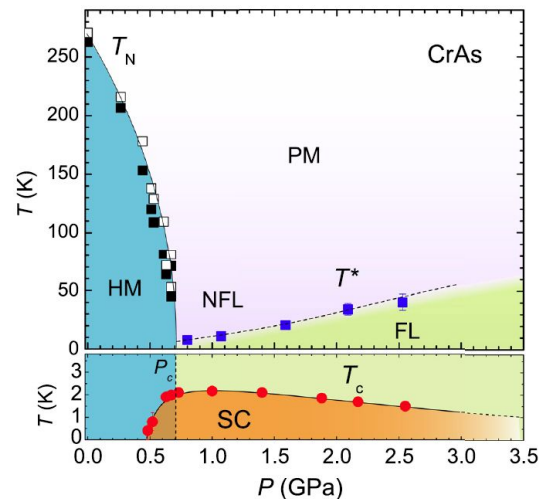


「CeIr3B2 の強磁性臨界点と NMR 測定」

CeIr_3B_2 はキュリー温度 41 K の強磁性体であるが、その自発磁化は $0.05 \mu_B/\text{Ce}$ と非常に小さいことから注目されている物質である。圧力下の電気抵抗測定から約 3.5 GPa において強磁性相が消失することを明らかにした。また、NMR 測定から ab 面内の磁気揺らぎが強い 2 次元的な異方性を持つ物質であることも分かった。

「CrAs の圧力誘起超伝導と NQR 測定」

また、ヘリカル磁性体 CrAs において圧力誘起超伝導を発見した。CrAs は古くから知られるヘリカル磁性体であり、結晶構造は URhGe を同じ空間群に属する。下図のように約 265 K の磁気転移温度は 0.7 GPa の加圧によって完全に抑制され、最高 2.2 K の超伝導が出現する。これは磁気的な Cr 系物質として初めての超伝導である。電気抵抗測定において非フェルミ液体的振る舞いが観測される事、超伝導転移温度が試料の純良性に依存することから超伝導機構が電子 - 格子相互作用では説明できない非従来型超伝導の可能性が示唆された。その後、 ^{75}As -NQR 測定を行い、磁気相転移は圧力下でも 1 次相転移であり、温度 - 圧力相図上に量子臨界点は存在しない事、圧力下の常磁性領域において磁気揺らぎが観測される事、核磁気緩和率に従来型超伝導に特徴的なコヒーレンスピークが現れないことを明らかにした。以上の結果から、CrAs は Cr 系物質として初の非従来型超伝導体であることが強く示唆された。



5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 6 件)

H. Kotegawa, K. Fukumoto, T. Toyama, H. Tou, H. Harima, A. Harada, Y. Kitaoka, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Onuki, K. M. Itoh, and E. E. Haller, ^{73}Ge -Nuclear Magnetic

Resonance/Nuclear Quadrupole Resonance Investigation of Magnetic Properties of URhGe, J. Phys. Soc. Jpn. 査読有 **84**, (2015) 054710. DOI: 10.7566/JPSJ.84.054710

H. Kotegawa, S. Nakahara, R. Akamatsu, H. Tou, H. Sugawara, and H. Harima, Detection of an Unconventional Superconducting Phase in the Vicinity of the Strong First-Order Magnetic Transition in CrAs Using ^{75}As -Nuclear Quadrupole Resonance, Phys. Rev. Lett. 査読有 **114**, (2015) 117002. DOI: 10.1103/PhysRevLett.114.117002

S. Kitagawa, H. Kotegawa, H. Tou, R. Yamauchi, E. Matsuoka, H. Sugawara, Phase diagram of CeRuPO under pressure investigated by ^{31}P -NMR: Comparison between CeRuPO under pressure and $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Fe}_x)\text{PO}$ system, Phys. Rev. B 査読有 **90**, (2014) 134406.

H. Kotegawa, S. Nakahara, H. Tou, H. Sugawara, Superconductivity of 2.2 K under Pressure in Helimagnet CrAs, J. Phys. Soc. Jpn. 査読有 **83**, (2014) 093702. DOI: 10.7566/JPSJ.83.093702

H. Kotegawa, T. Toyama, S. Kitagawa, H. Tou, R. Yamauchi, E. Matsuoka, and H. Sugawara, Pressure-Temperature-Magnetic Field Phase Diagram of Ferromagnetic Kondo Lattice CeRuPO, J. Phys. Soc. Jpn. 査読有 **82** (2013) 123711. DOI: 10.7566/JPSJ.82.123711

H. Kotegawa, H. Nohara, H. Tou, T. D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Haga, Z. Fisk, Y. Onuki, D. Aoki, and J. Flouquet, Pressure evolution of the metamagnetic transition in UCoAl As measured using ^{59}Co NMR, J. Korean Phys. Soc. 査読有 **63**, (2013) 341. DOI: 10.3938/jkps.63.341

〔学会発表〕(計 17 件)

ヘリカル磁性体 CrAs の圧力誘起超伝導と NQR 測定、京大基研研究会、2015.6.9、京都大学(京都府)

小手川恒、圧力誘起超伝導体 CrAs の NQR による研究、日本物理学会、2015.3.21、早稲田大学(東京都)

中原真悟、ヘリカル磁性体 CrAs の圧力印加による磁性 - 非磁性転移の研究、日本物理学会、2014.9.7、中部大学(愛知県)

福本健太、遍歴強磁性体 URhGe の磁場誘起超伝導相近傍における NMR 測定、日本物理学会、2014.9.7、中部大学(愛知県)

外山智大、CeRuPO の圧力下で現れるメタ磁性転移に関する研究、日本物理学会、2014.9.7、中部大学(愛知県)

北川俊作、 ^{31}P -NMRでみる重い電子系強磁性体CeRuPOにおける磁気揺らぎの圧力変化

外山智大、強磁性体CeRuPOの電気抵抗測定による相図作成、日本物理学会、2014.3.30、東海大学(神奈川県)

小手川恒、 ^{73}Ge -NMRによるURhGeの磁気揺らぎの研究、日本物理学会、2014.3.29、東海大学(神奈川県)

北川俊作、重い電子系強磁性体CeRuPOにおける圧力下 ^{31}P -NMR、日本物理学会、2013.9.28、徳島大学(徳島県)

明比亮介、UCoAlの圧力下NMR測定、日本物理学会、2013.9.26、徳島大学(徳島県)

村上晃一、強磁性体CeIr₃B₂の圧力効果とNMR測定、日本物理学会、2013.9.25、徳島大学(徳島県)

外山智大、強磁性体CeRuPOの温度 - 圧力 - 磁場の3次元相図の作成、日本物理学会、2013.9.25、徳島大学(徳島県)

村上晃一、強磁性体CeIr₃B₂の圧力下NMR測定、日本物理学会、2013.3.29、広島大学(広島県)

明比亮介、UCoAlの量子臨界点近傍における圧力下NMR、日本物理学会、2013.3.29、広島大学(広島県)

小手川恒、強相関電子系における圧力をパラメータとした新奇量子相の研究、日本物理学会、2013.3.26、広島大学(広島県)

村上晃一、CeIr₃B₂のNMRと圧力効果、日本物理学会、2012.9.20、横浜国立大学(神奈川県)

明比亮介、UCoAlの量子臨界点近傍におけるNMR、日本物理学会、2012.9.20、横浜国立大学(神奈川県)

〔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：
出願年月日：
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

小手川 恒 (KOTEGAWA、 Hisashi)
神戸大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：30372684

(2)研究分担者

藤 秀樹 (TOU、 Hideki)
神戸大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：60295467

(3)連携研究者

菅原 仁 (SUGAWARA、 Hitoshi)
神戸大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：60264587

(4)連携研究者

松田 達磨 (MATSUDA、 Tatsuma)
首都大学東京・大学院理工学研究科・准教授
研究者番号：30370472