

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 25 年 6 月 9 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22540378

研究課題名（和文）高圧実験によるウラン系強磁性超伝導物質の研究

研究課題名（英文）High pressure study on uranium ferromagnetic superconductors

研究代表者

立岩 尚之（TATEIWA NAOYUKI）

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・主任研究員

研究者番号：50346821

研究成果の概要（和文）：

本研究課題では、10 GPa級超高压下精密測定技術を駆使して、ウラン系強磁性超伝導物質 UGe_2 , $URhGe$ の研究を行った。新たな高压下磁化測定用セラミックアンビルセルを開発し、強磁性相境界における特異な磁性状態の起源を解明した。さらに、ウランダイカルコゲナイド化合物 (β - US_2 , $USeS$, $UTeS$) における、巨大磁気抵抗効果と圧力誘起型の強磁性相との相関や、超伝導物質 URu_2Si_2 の異常な電子散乱と非従来型超伝導の相関などを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

Uranium ferromagnetic superconductors UGe_2 and $URhGe$ have been studied with high-pressure experiments. We have developed a ceramic anvil high-pressure cell for magnetic measurements under high pressure. Anomalous magnetic properties around the ferromagnetic phase boundary in the superconductors have been analyzed with the spin fluctuation theory. Furthermore, we have studied a relation between the pressure-induced ferromagnetism and the negative magnetoresistance in β - US_2 , $USeS$, and $UTeS$. We also revealed the strong correlation between the anomalous quasiparticles scattering and unconventional superconductivity in URu_2Si_2 .

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2011 年度	900,000	270,000	1,170,000
2012 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

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：強相関係、強磁性超伝導

1. 研究開始当初の背景

アクチノイド化合物 5f 電子系では、電子の強い相関効果に起因した新奇な物性を示す。多くの化合物で、非従来型超伝導や 5f

電子の多極子自由度に起因した興味深い物理現象が現れ、長く研究が行われてきた。本申請課題で計画するウラン系強磁性超伝導物質も、そのような物質群の一つである。

強磁性と超伝導の関係は 50 年以上前から様々な研究が行われおり、両者は競合する関係にあると考えられてきた。2000 年以降、ウラン化合物 UGe_2 、 $URhGe$ 、 $UCoGe$ で発見された強磁性と超伝導の共存現象は大きな反響を呼び、世界的に多くの研究が行われた。しかし、未解決な部分が多く研究は終結していない。ウラン系強磁性超伝導物質は試料育成が難しく、また UGe_2 では、超伝導が高压下で現れることから、高压実験特有の技術的問題も加わり、多くの課題を残しているのが現状である。

2. 研究の目的

本課題申請では、強磁性超伝導物質を始めとしてウラン系化合物の高压研究を目的とする。これらの化合物について純良単結晶試料を育成し、高压実験を通して、ウラン 5f 電子物性を解明する。精密な静水圧下物性測定技術の確立を行い、さらに測定手段の拡張も行う。

3. 研究の方法

ウラン化合物の超純良単結晶試料育成と結晶評価に関する基本的技術は既に確立している。本課題申請では、試料育成技術の高度化を計った。さらに 10 GPa 級静水圧下精密物性測定技術の方法論を確立させた。新たな測定手段として、報告例の少ない高压下磁化測定用圧力セルを完成させ、その基本的な方法論を構築した。これらをウラン系強磁性超伝導物質の研究に適用した。

4. 研究成果

(1) 高压下磁化測定用セラミックアンビルセルの開発

本研究を遂行する上で、精密な高压下物性測定の手段の確立することは重要である。特に強磁性超伝導物質の研究では磁化測定が重要な手段となる。汎用型のピストンシリンダー型圧力セルは高々 1.2 GPa 程度の圧力しか到達できない。 UGe_2 、 $URhGe$ 、 $UCoGe$ などウラン系強磁性超伝導物質の研究には不十分であった。我々は、対向型アンビルセルの磁化測定への適用を検討し、アンビル材料として磁化の小さなセラミック複合材料に着目した。いくつか試行錯誤した結果、単純な構造をとる高压下磁化測定用“セラミックアンビルセル”の開発に成功し、7.6 GPa までの高压下磁化測定が可能になった。インデンタセルやダイヤモンドアンビルセルと比較して精度のよい高压下磁化測定が可能となった。テスト測定で行った、超伝導物質 MgB_2 の超伝導転移温度の圧力依存や、反強磁性化合物 $CePd_5Al_2$ の磁気転移温度の圧力依存などについて、過去の報告と一致のよい結果を得る事ができ、その

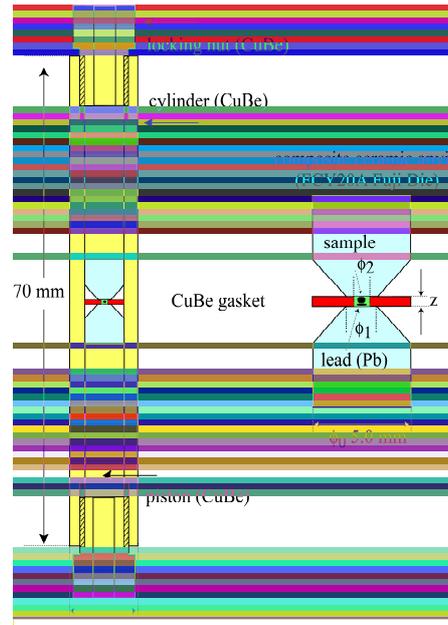


図 1 高压下磁化測定用セラミックアンビルセルの概念図

実用性を立証した。この圧力セルはウラン系強磁性超伝導物質だけに限らず、物性物理の幅広い分野への適用が可能で、高压研究の新しい展開をもたらすものと期待される。

さらにセルの仕様を修正させ、10 GPa 以上の超高压下磁化測定も可能となった。希土類化合物 $YbCu_2Si_2$ について 12 GPa まで磁化測定を行い、圧力誘起磁性相の強磁性成分（自発磁化）を検出し、強い一軸磁気異方性を明らかにすることができた。さらに低温におけるバックグラウンドの低減化を行い、「窪み付きアンビル」の適用させることで、静水圧性の向上化を果たすことができた。

(2) ウラン系強磁性超伝導物質の研究

上記セラミックアンビルセルを用いて、強磁性超伝導物質 UGe_2 の高压下磁化測定を行った。 UGe_2 は常圧では $T_C = 54$ K の強磁性物質である。1.0-1.6 GPa で強磁性超伝導が出現し、臨界圧力 1.6 GPa で両秩序状態が消滅する。近年、強磁性化合物の温度-磁場-圧力空間における転移温度の wing structure と、相境界近傍の電子状態と量子臨界性の関係が多くの興味の対象となっている。過去の 1.8 GPa までの交流磁化率測定から、臨界圧力以上の常磁性領域では、磁化率の極大が報告され、何らかの磁気相関の発達が示唆されていたものの、定量的かつ具体的な考察は行われていない。この点を明らかにするために、より圧力領域を広げ直流磁化測定を 5 GPa まで行い、定量的考察を試みた。図 2 はウラン系強磁性超伝導物質

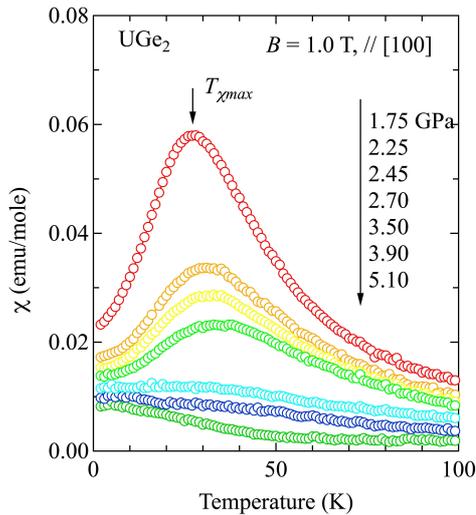


図2 ウラン系強磁性超伝導物質 UGe_2 の高圧下磁化測定の結果。

UGe_2 の高圧下磁化測定の結果である。1.75 GPa 以上の高圧側の常磁性領域における結果を表示した。磁化率は上に凸の温度依存を示し、1.75 GPa では $T_{\chi max} = 27$ K 近辺にブロードな極大が形成されることを確認した。これは強磁性が消滅しても、強いスピンの揺らぎが存在することを示唆する。さらに、磁化率の上に凸の構造は、加圧と共に弱くなり、極大が現れる温度 $T_{\chi max}$ はわずかに増加する。4 GPa 以上では、磁化率の振舞は通常金属のそれへと変化した。また、2 K における磁化の磁場依存には、メタ磁性転移的な異常が観測された。その転移磁場 H_m は加圧と共に急激に増大する。以上の結果は、強磁性秩序の相境界に、強いスピンの揺らぎの存在を示唆する。スピンのゆらぎ理論 (SCR) を用いた解析を行い、「揺らぎの縦成分」の温度・磁場変化がブロードな磁化率の極大と、メタ磁性の原因であることを明らかにした。

(3) ウランダイカルコゲナイド化合物の高圧研究

ウランダイカルコゲナイド化合物 ($UTeS$, $USeS$, $\beta-US_2$) は、常圧で絶縁体/半金属であり、ウラン強磁性超伝導化合物 $UCoGe$, $URhGe$ と同じ斜方晶の結晶構造を形成する。この系は、電気伝導の大きな磁場応答が特徴的である。とくに $\beta-US_2$ では、非磁性基底状態を持つにも関わらず、低温でマンガ氧化物と同程度の巨大な負の磁気抵抗効果が現れ、その起源に興味を持たれる。高圧下磁化測定を行った結果、 $\beta-US_2$ に圧力を加えると、0.7 GPa 程度で、自発磁化 $0.05 \mu_B/U$ 程度の弱い強磁性相が誘起されることが明らかにされた。さらに圧力を加えてゆくと、5 GPa 近辺で絶縁体から金属へと転移 (IMT) し、自発磁化の大きさも一次転移的

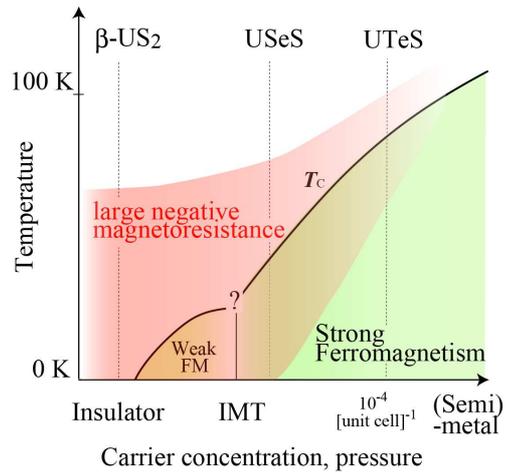


図3 ウランダイカルコゲナイド化合物の磁気相図 (概念図)

に増大する。強磁性物質 $UTeS$ ($T_c = 98$ K), $USeS$ ($T_c = 24$ K) についても、高圧実験を行ったところ、強磁性転移温度は加圧と共に増加し、さらにバンド間の重なり合いが増大するため電気伝導が増加することがわかった。

以上の結果から、このウランダイカルコゲナイド化合物の磁性状態は、伝導キャリアの濃度によって支配されることが示唆される。これを概念的に示したのが図3である。横軸はキャリア濃度もしくは圧力で、縦軸は温度である。キャリア濃度が小さい領域は、非磁性基底状態が形成される。加圧すると弱い強磁性状態 (Weak FM) が誘起され、絶縁体金属転移 (IMT) を経て、強い強磁性状態へと遷移すると思われる。前述の通り、 $\beta-US_2$ では巨大な負の磁気抵抗効果が現れる。また、 $USeS$, $UTeS$ でも転移温度近辺で比較的大きな磁気抵抗の効果が現れる。薄い赤で示した領域、強磁性相境界近傍には、伝導キャリアの異常な磁場応答の要因が潜んでいるように思える。伝導キャリアの束縛状態：磁気ポーラロンの存在が示唆され、その検出などを目的としたドイツの大学との共同研究が開始されている。

(4) ウラン系超伝導物質 URu_2Si_2 の高圧研究

ウラン化合物 URu_2Si_2 は $T_0 = 17.5$ K で二次相転移し、 $T_{sc} = 1.4$ K で超伝導転移が現れる。 T_0 以下の秩序状態の起源は不明で、「隠れた秩序」と呼ばれ盛んに研究が行われている。我々は、物性の試料依存が徹底的に調べ、超純良単結晶試料を用いた研究から、「隠れた秩序」相では、電気抵抗が温度のほぼ 1.5 乗に近い振舞 ($\rho \propto T^{1.5}$) を示すことを明らかにした。これは、通常の電子散乱では見られない異常な振舞である。「隠れた秩序」の四極子秩序を仮定すると、異方的な導電性が理論的に予測され

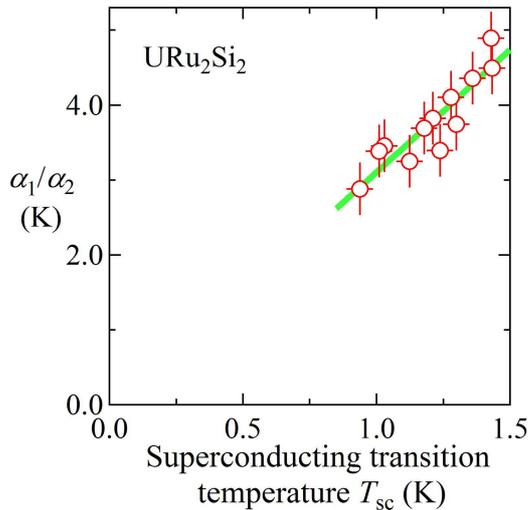


図4 URu₂Si₂における α_1/α_2 と超伝導転移温度 T_{sc} との関係

たが、実験的には等方的である。つぎに、電気抵抗率 ρ を $\rho = \rho_0 + \alpha_1 T + \alpha_2 T^2$ と表して実験データを再び解析した。これは銅酸化物超伝導体や有機伝導体の研究：特に電気伝導の角度依存を議論する際に導入されたもので、二つの散乱過程が仮定されている。URu₂Si₂の場合、経験式に過ぎないが、抵抗を分離させる形式となっており、異常な電気抵抗と他の物理量との相関が明らかになることを期待した。図4に「隠れた秩序」相のデータを解析して得られた結果を示す。図中の点線は $\alpha_1/\alpha_2 = a(T_{sc})^{\delta_1}$ という関係式でフィットした結果で、 T_{sc} と α_1/α_2 の間に線形関係($\alpha_1/\alpha_2 \propto T_{sc}$)が成り立つことが明らかとなった。 α_2 はほとんど圧力に依存しないので、電気抵抗率の一次の項の係数 α_1 と超伝導転移温度 T_{sc} がほぼ比例関係にあり、「隠れた秩序」の異常な電子散乱と超伝導は大変密接な相関があることが示唆された。最近、銅酸化物超伝導体や有機物超伝導体、鉄ヒ素系超伝導物質でも、電気抵抗率の一次の項の係数 α_1 と T_{sc} の間に線形関係が成立することが明らかにされている。URu₂Si₂の超伝導には、これら強相関電子系超伝導物質に共通する普遍性を持つ事が示唆される。

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 20 件)

- ① Scaling relation found in anomalous electrical transport and superconductivity of heavy fermion superconductor URu₂Si₂
N. Tateiwa, T. D. Matsuda, Y. Haga, E. Yamamoto and Y. Onuki,
 J. Phys.: Conf. Ser. **400** (2012) 022123-1-4

DOI: 10.1088/1742-6596/400/2/022123 (査読有)

② Magnetic measurement at pressures above 10 GPa in a commercial superconducting quantum interference device magnetometer

N. Tateiwa, Y. Haga, Z. Fisk

Rev. Sci. Instrum., **83**, (2012) 053906-1 – 053906-5.

DOI:10.1063/1.4722945 (査読有)

③ Strong correlation between anomalous quasiparticle scattering and unconventional superconductivity in the hidden-order phase of URu₂Si₂

N. Tateiwa, T. D. Matsuda, Y. Onuki, Y. Haga, and Z. Fisk

Phys. Rev. B **55** (2012) 054516-1-054516-5

DOI: 10.1103/PhysRevB.85.054516 (査読有)

④ 簡便な高圧下磁化測定用セラミックアンビル型圧力セル (mCAC)

立岩尚之, 芳賀芳範

固体物理 **46** (2011) 791-799 (査読有)

⑤ Non-magnetic to Magnetic Transition under High Pressure in Narrow-Gap Semiconductor β -US₂

N. Tateiwa, Y. Haga, H. Sakai, S. Ikeda, T. D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Onuki

J. Phys. Soc. Jpn. Suppl., **80** (2011) SA103-1-SA103-3

DOI: 10.1143/JPSJS.80SA.SA103 (査読有)

⑥ Miniature ceramic-anvil high-pressure cell for magnetic measurements in a commercial superconducting quantum interference device magnetometer

N. Tateiwa, Y. Haga, Z. Fisk, and Y. Onuki

Rev. Sci. Instrum. **82** (2011) 053906-1-053906-8

DOI: 10.1063/1.3590745 (査読有)

⑦ High-pressure electrical resistivity measurement on heavy fermion superconductor URu₂Si₂ using super clean crystal

N. Tateiwa, T. D. Matsuda, Y. Haga, E. Yamamoto and Y. Onuki,

J. Phys.: Conf. Ser. **273** (2011) 012087-1-012076-3 (査読有)

DOI: 10.1088/1742-6596/273/1/012087

⑧ Magnetic Field and Pressure Phase Diagrams of Uranium Heavy-Fermion Compound U₂Zn₁₇

N. Tateiwa, S. Ikeda, Y. Haga, T. D. Matsuda, E. Yamamoto, K. Sugiyama, M. Hagiwara, K. Kindo, and Y. Onuki

J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 014706-1 - 014706-8
DOI: 10.1143/JPSJ.80.014706 (査読有)

⑨低温・高圧下物性測定実験で使用される圧力伝達媒体の系統評価

立岩尚之、芳賀芳範
固体物理 **45** (2010) 225-234 (査読有)

⑩ Appropriate pressure-transmitting media for cryogenic experiment in the diamond anvil cell up to 10 GPa

N. Tateiwa and Y. Haga
J. Phys.: Conf. Ser. **215** (2010) 012178-1 - 012178-5 (査読有)
DOI:10.1088/1742-6596/215/1/012178

⑪ Crystal Structure and Physical Properties of Uranium-Copper Oxyposphite UCuPO

H. Sakai, N. Tateiwa, T.D. Matsuda, T. Sugai, E. Yamamoto and Y. Haga
J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 074721-1-074721-10
DOI: 10.1143/JPSJ.79.074721 (査読有)

[学会発表] (計 30 件)

①ウラン化合物の高圧下物性研究
立岩尚之、芳賀芳範、松田達磨、山本悦嗣、松本裕司、Z. Fisk
日本物理学会第 68 回年次大会
2013 年 03 月 27 日 広島大学東広島キャンパス (広島県東広島市)

②高圧下磁化測定用圧力セルの開発とウラン系強磁性化合物の研究

立岩尚之、芳賀芳範、松田達磨、Zachary Fisk
第 53 回高圧討論会
2012 年 11 月 07 日 大阪大学 (大阪府、豊中市)

③ Magnetic property in ferromagnetic superconductor UGe₂ above ferromagnetic critical pressure

N. Tateiwa, Y. Haga, T. D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Onuki, and Z. Fisk
19th International Conference on Magnetism (ICM2012)
2012 年 07 月 13 日 Busan, Bexco, (釜山、韓国)

④ウラン化合物の高圧研究：高圧下磁化測定を中心に

立岩尚之
兵庫県立大学・多重極限物質科学研究センター・シンポジウム
2012 年 3 月 28 日 兵庫県立大学 播磨光都キャンパス (兵庫県、赤穂郡)

⑤高圧下磁化測定用セラミックアンビルセルの開発と f 電子系化合物への適用

立岩尚之、芳賀芳範、Zachary Fisk、大貫惇睦
日本物理学会第 67 回年次大会
2012 年 3 月 27 日 関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス (兵庫県、西宮市)

⑥ Strong correlation between anomalous quasiparticles scattering and unconventional superconductivity in the hidden order of URu₂Si₂
Naoyuki Tateiwa
International workshop 「2nd International REIMEI workshop on New approach to the exotic phases of actinide compounds under unconventional experimental conditions」
2012 年 2 月 2 日 Institute of Laue Langevin, (グルノーブル、フランス)

⑦ Strong correlation between anomalous quasiparticles scattering and unconventional superconductivity in the hidden order of URu₂Si₂
Naoyuki Tateiwa

International workshop 「Heavy Fermion Physics: Perspective and Outlook」招待講演
2012 年 01 月 08 日 Institute of Physics (北京、中国)

⑧ウラン化合物の高圧研究
立岩尚之、芳賀芳範、松田達磨、山本悦嗣、Zachary Fisk、大貫惇睦
第 52 回高圧討論会
2011 年 11 月 09 日 沖縄キリスト教学院 (沖縄県、那覇市)

⑨ウラン系超伝導物質 URu₂Si₂ の電子輸送特性の圧力効果について

立岩尚之、松田達磨、芳賀芳範、Zachary Fisk、大貫惇睦
日本物理学会 2011 年秋季大会
2011 年 9 月 24 日 富山大学五福キャンパス (富山市、富山県)

⑩セラミックアンビルを用いた高圧下磁化測定用圧力セル

立岩尚之、松田達磨、芳賀芳範、Zachary Fisk、大貫惇睦
日本物理学会 2011 年秋季大会
2011 年 9 月 23 日 富山大学五福キャンパス (富山県、富山市)

⑪ Scaling relation found in anomalous electrical transport and superconductivity of heavy fermion superconductor URu₂Si₂

N. Tateiwa, T. D. Matsuda, Y. Onuki, Y. Haga, and Z. Fisk
26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26)
2011 年 8 月 13 日 Beijing International Convention Center, (北京、中国)

②アクチノイド化合物 UCd₁₁ の超高压下電気抵抗測定

立岩尚之, 芳賀芳範, 松田達磨, 山本悦嗣, Z. Fisk, 大貫惇睦

日本物理学会第 66 回年次大会

2011 年 03 月 25 日、新潟大学 (新潟県、新潟市)

③High-pressure studies on actinide compounds in Tokai

N. Tateiwa

第 1 回日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター国際ワークショップ「極限条件下実験によるアクチノイド化合物のエキゾチック物性研究への新しいアプローチ」

2011 年 2 月 17 日茨城県那珂郡東海村、招待講演

④ Pressure-induced ferromagnetism in non-magnetic semiconductor β-US₂

N. Tateiwa

5th Asian Conference on High Pressure Research

2010 年 11 月 9 日島根県立産業交流会館(島根県松江市)

⑤ウランカルコゲナイド化合物の圧力誘起強磁性

立岩尚之, 芳賀芳範, 山本悦嗣, 池田修悟, 松田達磨, 大貫惇睦

第 51 回高压討論会

2010 年 10 月 20 日仙台戦災復興記念館 (宮城県、仙台市)

⑥超純良単結晶試料を用いた URu₂Si₂ の高压研究

立岩尚之, 松田達磨, 山本悦嗣, 芳賀芳範, 大貫惇睦

日本物理学会 2010 年秋季大会

2010 年 9 月 25 日大阪府立大学 (大阪府)

⑦Electrical resistivity measurement on heavy fermion superconductor URu₂Si₂.

N. Tateiwa

International workshop: On the heavy fermion road 2010年8月31日Ecole Superier de Physique et Chimie In dustrielles (ESPCI) (フランス、パリ)

⑧ High-pressure electrical resistivity measurement on heavy fermion superconductor URu₂Si₂ using super clean crystal

N. Tateiwa, T. D. Matsuda, Y. Haga, E. Yamamoto and Y. Onuki,

Strongly Correlated Electron system (SCES2010)

2010 年 6 月 30 日 Santa Fe convention center (Santa Fe, USA)

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 高压発生装置及び磁化測定装置

発明者: 立岩尚之、芳賀芳範

権利者: 日本原子力機構

種類: 特許

番号: 特願 2011-054153

出願年月日: 2011 年 03 月 11 日

国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ等

http://asrc.jaea.go.jp/soshiki/gr/ActinideGroup/to_p_jp.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

立岩 尚之 (TATEIWA NAOYUKI)

(独) 日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・アクチノイド物質開発研究グループ・主任研究員

研究者番号: 50346821

(2) 研究分担者

山本 悦嗣 (YAMAMOTO ETSUJI)

(独) 日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・アクチノイド物質開発研究グループ・副主任研究員

研究者番号: 50343934

(3) 連携研究者

芳賀 芳範 (HAGA YOSHINORI)

(独) 日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・アクチノイド物質開発研究グループ・主任研究員

研究者番号: 90354901

松田 達磨 (MATSUDA TATSUMA)

(独) 日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・アクチノイド物質開発研究グループ・副主任研究員

研究者番号: 30370472

(4) 研究協力者

Zachary Fisk (ZACHARY FISK)

(独) 日本原子力研究開発機構・先端基礎研究センター・アクチノイド物質開発研究グループ・グループリーダー、カリフォルニア大学・教授