

令和元年5月30日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K17757

研究課題名(和文)多極子秩序と共存する新奇超伝導状態の微視的解明

研究課題名(英文)Microscopic investigation of exotic superconducting state in the higher order multipole state

研究代表者

服部 泰佑(Hattori, Taisuke)

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・研究職

研究者番号：80757667

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：アクチナイド化合物URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>で観測された新しい特徴を持った超伝導状態の詳細について検証するため、世界最高純度の単結晶URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>試料を用いて核磁気共鳴法(NMR)を行った。過去最高精度のナイトシフト測定を超伝導状態で実現することに成功した。その結果、超伝導状態において、磁化容易軸のナイトシフトが明瞭に減少することを観測し、本系での超伝導がスピン一重項超伝導状態であることを明らかにした。加えて、磁化困難軸のナイトシフトには変化が見られなかったことから、本系ではスピンの殆ど磁気容易軸方向にしか向かない状態を取っている、すなわち、スピン磁化率に大きな異方性があることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

非従来型の超伝導の詳細を明らかにした本研究成果は、超伝導現象の理解を深め、その発現機構解明の一助となる。

また、磁化困難軸方向に対する地場に対して非常に強い性質の原因を解明したため、今後、磁場に強いより実用的な超伝導体を探索する際に指針を与えるものと期待される。

最後に、電子スピンの一方向のみに固定され、横方向には倒れないという新しい状態は、非常に多くの電子を持つウランが起源となって現れる新しい状態と考えられる。多電子系であることに起因するウラン電子の新しい状態の研究を進めることで基礎物性物理学の進展、原子力基礎科学の充実に寄与するものと思われる。

研究成果の概要(英文)：In order to identify the spin contribution to superconducting pairing compatible with the so-called "hidden order", <sup>29</sup>Si nuclear magnetic resonance measurements have been performed using a high-quality single crystal of URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>.

A clear reduction of the <sup>29</sup>Si Knight shift in the superconducting state has been observed under a magnetic field applied along the crystalline c axis, corresponding to the magnetic easy axis. These results provide direct evidence for the formation of spin-singlet Cooper pairs.

Consequently, results indicating a very tiny change of the in-plane Knight shift demonstrate extreme uniaxial anisotropy for the spin susceptibility in the hidden order state.

研究分野：低温物性

キーワード：アクチナイド化合物 超伝導対称性 ナイトシフト イジング異方性 スピン一重項超伝導 核磁気共鳴法 ウラン化合物

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

ほとんどの非従来型超伝導は、何かしらの“秩序状態”の近傍で現れ、両者は密接に関係していることが多いことが知られている。その点で、 $\text{URu}_2\text{Si}_2$ で見られている非従来型の超伝導は興味深い研究対象となる。 $\text{URu}_2\text{Si}_2$ では高次多極子秩序ではないか、と議論されているものの、未だ確定的ではない所謂“隠れた秩序”(転移温度 約 18 K)の下で超伝導(転移温度 約 1.5 K)が生じるためである。また、本系に静水圧力を加えると、隠れた秩序は反強磁性秩序へと転移するが、超伝導は反強磁性領域で現れず、隠れた秩序相内でのみ現れる。まるで隠れた秩序に守られているかのような超伝導の発現機構に興味を持たれている。

### 2. 研究の目的

世界最高純度の単結晶  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  を用いて核磁気共鳴 (NMR) 測定を行うことで、多極子と共存する超伝導の対称性を微視的に決定し【A】、高次多極子ゆらぎによる超伝導対形成の機構を解明する【B】

【A】超伝導波動関数の決定は、超伝導発現機構を議論する上で不可欠である。近年の単結晶試料を用いた巨視的測定は、スピン一重項(d波)超伝導を指摘しているが、微視的な測定は未だなく、本系のスピン対称性についてのコンセンサスは得られていない。今回、純良単結晶を用いた超伝導状態の NMR を行い、超伝導電子対のスピン状態を決定する。

【B】これまでに、一軸異方性(イジング性)が非常に強い磁気ゆらぎが確認されている。この磁気ゆらぎを NMR を用いて調べ、高次多極子秩序下のゆらぎの詳細を明らかにする。NMR で直接検出するゆらぎの詳細と、A で決定した超伝導状態において理論的に期待される引力機構を合わせることで、超伝導発現機構について検証する。

### 3. 研究の方法

高精度 NMR 測定を超伝導状態において実現するため、原子力機構芳賀氏より超純良単結晶試料の提供を受けた。本試料は、NMR 可能な核である  $^{29}\text{Si}$  同位体を約 50%まで濃縮した上でアニール処理により超純良化したものであり、非常に良い超伝導特性を示している。加えて、感度が最大となるよう NMR のセッティングを行い、磁場方向のミスアライメントも極小に抑えた上で、 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機を用いて極低温領域 (~ 50 mK) までの測定を行う。特に、ナイトシフト測定を中心に行う。ナイトシフトは電子の磁化率に比例し、マイスナー効果を示す超伝導状態においても微視的に電子磁化率を測定するため、スピン対称性を決定するうえで強力な測定手法となる。

### 4. 研究成果

#### (1) 超高精度核磁気共鳴測定

純良単結晶試料を用いたことにより、非常に狭い線幅を持つ  $^{29}\text{Si}$  NMR スペクトルを得た。これにより、過去最高の解像度を持つナイトシフト測定 (~ 0.001%) を、超伝導状態において実現した。本系の超伝導状態におけるスピン対称性を決定するために必要なナイトシフト測定の精度は ~ 0.01% と予想されており、それを十分に上回るものである。本精度のナイトシフト測定を  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の磁化容易軸である  $c$  軸方向、及び困難軸となる面内方向それぞれに地場を印可しながら、50 mK までの測定に成功した

#### (2) スピン一重項超伝導であることの実証

超伝導におけるナイトシフトの温度依存性を図 1, 2 に示す。それぞれ、磁化容易軸である  $c$  軸方向 ( $K^c$  図 1) 及び磁化困難軸である  $a$  軸方向 ( $K^a$  図 2) の結果で、いずれも超伝導転移温度 ( $T_{\text{sc}} \sim 1.5$  K) における値からのずれ  $K = K(T - T_{\text{sc}}) - K(T)$  で表示している。高解像度の測定でも一切の変化を捉えることができなかった  $K^a$  とは対照的に、 $K^c$  は超伝導転移温度以下で明瞭に減少することが分かった。 $K^c$  の減少は、超伝導対形成にともなう電子磁化率の消滅を意味するものであり、スピン一重項超伝導を実証するものと考えられる。事実、本系でスピン一重項超伝導が形成された場合に期待されるナイトシフト減少量及び、カイラル d 波の超伝導ギャップ異方性を用いたシミュレーション (図 1 実線) は、実験結果をよく説明することに成功した。

#### (3) スピン磁化率にみられる強い一軸異方性

スピン一重項超伝導の場合、磁化率のスピン成分は磁場方向に依らず消滅するはずで、スピン磁化率に比例するナイトシフトは全軸方向に対して減少する必要がある。すなわち、 $K^a$  の減少が観測されなかったのは、磁化困難軸のスピン磁化率が実験で観測できる限界値を超えて小さかったことを意味する。約 0.05% の減少が確認された  $K^c$  に対して、 $K^a$  の変化は測定限界である約 0.002% 以下のため、少なくとも 25 倍以上のスピン異方性が必要なことになる。強いスピン異方性は量子振動や非線形磁化率の角度依存性から示唆されているものとも合致しており、ナイトシフト測定は隠れた秩序下におけるスピン磁化率の強い 1 軸異方性を直接的に実証したものと言える。加えて、核スピン緩和率の測定からは、動的な帯磁率、すなわち磁気揺らぎについても非常に一軸異方性が強いことが示唆されており、このような異方性が隠れた秩序に起因し生じるものなのか、あるいは高温から存在し、隠れた秩序のトリガ

ーとなるものなのか、また、非従来型超伝導の起源とはどのように関係しているのか、今後の更なる検証が期待される。

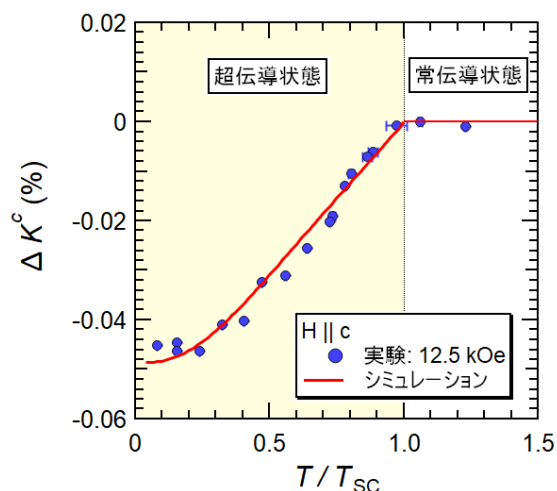


図 1. 容易軸方向に対する  $^{29}\text{Si}$  ナイトシフトの温度依存性。実線はシミュレーション。横軸は約 1.5K の超伝導転移温度  $T_{\text{sc}}$  でスケールしている。

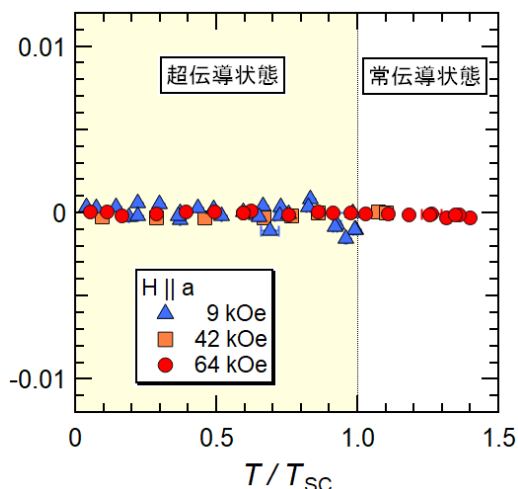


図 2. 磁化困難軸方向に対する  $^{29}\text{Si}$  ナイトシフトの温度依存性。臨界磁場  $H_{c2^a} \sim 130$  kOe に対して半分以下の磁場で測定している。

## 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 件)

【査読有】 T. Hattori, H. Sakai, Y. Tokunaga, S. Kambe, T. D. Matsuda, and Y. Haga

“Evidence for Spin Singlet Pairing with Strong Uniaxial Anisotropy in  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  Using Nuclear Magnetic Resonance”

*Physical Review Letters* **120**, 027001 (Jan. 2018).

【査読有】 T. Hattori, H. Sakai, Y. Tokunaga, S. Kambe, T. D. Matsuda, and Y. Haga

“No Detectable Change in In-Plane  $^{29}\text{Si}$  Knight Shift in the Superconducting State of  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ ”

*Journal of the Physical Society of Japan* **85**, 073711-1 - 4 (Jun 2016).

〔学会発表〕(計 9 件)

日本物理学会 2018 年年次大会 (2018 年 9 月 10 日、同志社大学)、10pPSB-63(ポスター)

服部泰佑、酒井宏典、徳永陽、神戸振作、松田達磨、芳賀芳範

希釈冷凍機を用いた単結晶  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  の  $^{29}\text{Si}$  NMR 測定

J-Physics 2018: International Workshop on New Materials and Crystal Growth

27-30 Jun. 2018, Awaji Yumebutai International Conference Center, Japan, 29-5 (oral)

T. Hattori, H. Sakai, Y. Tokunaga, S. Kambe, T. D. Matsuda and Y. Haga

Strong Ising anisotropy of  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  probed by  $^{29}\text{Si}$  NMR on the Superconducting state

[Invited] Physics of Uranium based Unconventional Superconductors

29<sup>th</sup> Sep. 2017, Tokai Industry and Information Plaza, "iVil", Japan, 29-01 (oral)

T. Hattori, Strong Ising anisotropy of  $\text{URu}_2\text{Si}_2$  probed by  $^{29}\text{Si}$  NMR on superconducting state

J-Physics 2017: International Workshop on Multipole Physics and Related Phenomena

27<sup>th</sup> Sep. 2017, Hachimantai Royal Hotel, Japan, P-12 (poster),

T. Hattori, Strong uniaxial spin anisotropy in the Hidden order state of  $\text{URu}_2\text{Si}_2$

"International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2017" (SCES 2017)

July 2017, Prague, Czech Republic, Tu-1-50 (poster)

T. Hattori, H. Sakai, Y. Tokunaga, S. Kambe, T. D. Matsuda, Y. Haga

Spin state of superconducting URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> probed by <sup>29</sup>Si Knight shift

超伝導研究の最先端:多自由度、非平衡、電子相関、トポロジ、人工制御

(2017年6月19日, 京大) 口頭発表

服部 泰佑, URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>の超伝導状態におけるスピン磁化率の異方的振る舞い

日本物理学会 2017年年度大会(2017年3月17日、大阪大学)、17pK-PS-25(ポスター)

服部泰佑、酒井宏典、徳永陽、神戸振作、松田達磨、芳賀芳範

URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>におけるスピン磁化率の強い一軸異方性

TMU シンポジウム, U系およびBiS<sub>2</sub>系の物理の最近の発展 (2016年11月28日, 首都大)

服部 泰佑 口頭発表 <sup>29</sup>Si Knight Shift in the superconducting state of single crystalline URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>

日本物理学会 2016年秋季大会(2016年9月13日、金沢大学) 13-aJD-1(口頭発表)

服部泰佑、酒井宏典、徳永陽、神戸振作、松田達磨、芳賀芳範

単結晶 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>における超伝導状態の<sup>29</sup>Si ナイトシフト測定

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

〔その他〕

ホームページ等

プレス発表:

磁場に負けない超伝導 - ウラン化合物で現れる、磁場に強い超伝導の仕組みを解明 -

<https://www.jaea.go.jp/02/press2017/p18011301/>

## 6. 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名:

ローマ字氏名:

所属研究機関名:

部局名:

職名:

研究者番号(8桁):

### (2)研究協力者

研究協力者氏名:

ローマ字氏名:

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。