

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 24 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25247055

研究課題名(和文)アクチノイド化合物の新奇強磁性超伝導の探索と磁場誘起現象

研究課題名(英文) Novel ferromagnetic superconductivity and field-induced phenomena in actinide compounds

研究代表者

青木 大 (AOKI, Dai)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：30359541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,100,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性と超伝導が共存するウラン化合物UGe₂、URhGe、UCoGeの世界最高純度の純良単結晶を育成した。電気抵抗、比熱、熱電能、熱膨張、磁化、磁化率などさまざまなマクロ物性測定を行った。また、ドハース・ファンアルフェン効果やシュブニコフ・ドハース効果、熱電能の量子振動効果などミクロ物性測定も行った。低温、強磁場、高圧の極限環境下の実験である。詳細な温度-磁場-圧力相図の決定を行い、磁場誘起の強磁性ゆらぎ、さらにリフシツ転移を伴うフェルミ面の不安定性に焦点を絞り実験を行った。

研究成果の概要(英文)：We grew high quality single crystals of UGe₂, URhGe and UCoGe which show the coexistence of ferromagnetism and superconductivity. Many macroscopic experiments, such as resistivity, specific heat, thermopower, thermal expansion, magnetization and susceptibility, were performed under extreme conditions, namely low temperature, high field and high pressure. Microscopic experiments, such as de Haas-van Alphen experiments, Shubnikov-de Haas experiments, quantum oscillations in thermopower, were also done. We precisely determined temperature-field-pressure phase diagram in these materials, and focused on the field-induced ferromagnetic fluctuations and Fermi surface instabilities, which can be understood as the Lifshitz transition.

研究分野：固体物理

キーワード：強磁性超伝導

1. 研究開始当初の背景

強磁性と超伝導は、これまで共存しないと考えられてきた。強磁性の強い内部磁場が超伝導電子対(クーパ対)を壊してしまうからである。強磁性キュリー温度がゼロに向かう強磁性量子臨界点近傍で、超伝導実現の可能性が理論的に指摘されていたが、具体的な物質は最近まで見つかっていなかった。ウラン化合物 UGe₂ で強磁性と超伝導の微視的な共存が発見された後、URhGe、UCoGe の強磁性と超伝導の共存が実験で明らかになった。これら強磁性超伝導体はすべてウラン化合物である。ウランの 5f 電子は結晶中を動いて遍歴しているとともに磁性も担っている。つまり同じ電子が強磁性と超伝導の両方を担っている。スピン三重項の超伝導ではなく、スピン三重項超伝導が実現していると考えられている。これら強磁性超伝導の特徴の一つは、極めて高い上部臨界磁場 H_{c2} である。UGe₂、URhGe、UCoGe のいずれも特定の方向に磁場を加えると磁場誘起あるいは磁場強化型の H_{c2} 相図を示す。スピン三重項の平行スピン対が超伝導を担っている場合、ゼーマン効果による超伝導パウリリミットが働かない。強磁場中で、強磁性スピンゆらぎの発達など、超伝導を強めるなんらかの効果が働けば磁場誘起型の超伝導が実現すると考えられる。強磁性超伝導における、これらの発現メカニズムを詳細な実験によって明らかにすることが求められていた。

2. 研究の目的

上記の背景のもと、次のような目的で本研究を行った。まず第一にアクチノイド化合物における新奇強磁性超伝導体の発見、第二に磁場誘起超伝導を含む極限環境下の量子臨界現象と強磁性超伝導の新現象の探索、第三に磁場誘起超伝導の発現機構の解明である。

3. 研究の方法

まず、これまでに知られている 3 つの強磁性超伝導体 UGe₂、URhGe、UCoGe の純良単結晶育成を行った。テトラアーク炉を用いたチヨクラルスキー法により多数の単結晶育成を行った。UGe₂ はコングルエントメルトで純良単結晶育成が比較的容易であるが、URhGe、UCoGe はインコングルエントメルトのため、純良単結晶を得るのはきわめて難しい。試料の純度の目安となる残留抵抗比 (RRR) は、通常 10 以下である。仕込み比を変えたり、アニールの条件を変えたりするなど、さまざまな試行錯誤のすえ、RRR が 100 を越える純良単結晶育成に成功した。得られた試料は放電加工機による成形、ラウエ写真、電気抵抗、比熱、磁化など基礎物性測定により試料評価を行った。純良単結晶を用いた極限環境下における磁気抵抗、ホール効果、熱電能、熱伝導度、シュブニコフ・ドハース効果、ドハース・ファンアルフェン効果などの物性測定を行った。これらの実験は、東北大学金属材料

研究所大洗センター、CEA-Grenoble、LNCMI など海外の研究所を含む国際研究協力のもと行われた。

4. 研究成果

まず、URhGe においては、リエントラント超伝導が現れる b 軸方向でホール効果や熱電能測定を行った。その結果、キュリー温度がゼロに向かう H_r=12T 近傍を境にホール係数の大きな変化、熱電能の符号反転をともなう大きな変化が観測された。また、ホール抵抗に磁場掃引にともなうヒステリシスが観測された。これらにより、H_r は一次の転移であること、フェルミ面が H_r で再構築されていることが分かった。さらにシュブニコフ・ドハース効果、熱電能の量子振動効果の観測からフェルミ面が磁場とともに大きく変化していることが微視的に確認できた。磁場誘起超伝導で重要な点は、磁場で誘起される強磁性ゆらぎであるが、それだけでなくフェルミ面のゆらぎも超伝導に重要な役割を果たしていることが分かった。これらは、ゼーマン効果によるバンド分裂が起源であるリフシツ転移とも深く関わっている。

UCoGe においては、高圧下の電気抵抗測定に焦点を当てて実験を行った。温度圧力相図を詳細に調べるとともに、H_{c2} の圧力依存性についても調べた。その結果、磁化容易軸方向 H//c では、強磁性圧力 P_c を越えたあとも、H_{c2} が下に凸の異常な温度依存性を示すことが分かった。また、H//b の磁化困難軸方向では、H_{c2}(0) が圧力とともに減少するが、P_c を越えた圧力でも、10T を越えていることが分かった。P_c 以上の圧力においても強磁性ゆらぎはなお支配的であることを示している。34T までのシュブニコフドハース効果測定、熱電量子振動効果測定も行った。比較的小さなキャリア数と重い準粒子状態を反映して、フェルミ面は磁場とともに大きく変化することが分かった。

強磁性超伝導体の研究を進めるうちに、強磁性量子臨界現象を詳細に調べる必要があることがわかった。このため、強い Ising の一軸異方性を持つ UCoAl と関連物質の研究も行った。温度・圧力・磁場の 3 次元相図をつくり、常磁性から強磁性への一次相転移面を含むウィング型の相図を決定した。また、量子臨界終点で大きな磁気ゆらぎが発達していることを明らかにした。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 30 件、全て査読有)

Thermoelectric power quantum oscillations in the ferromagnet UGe₂ [Phys. Rev. B 16 (2016) 155120] A. Palacio Morales, A. Pourret, G. Knebel, G. Bastien, V. Taufour, D. Aoki, H. Yamagami, and J. Flouquet,

DOI: 10.1103/PhysRevB.93.155120

Pressure cell for transport measurements under high pressure and low temperature in pulsed magnetic fields [Rev. Sci. Instr. 116 (2016) 023907] D. Braithwaite, W. Knafo, R. Settai, D. Aoki, S. Kurahashi, J. Flouquet, DOI:10.1063/1.4941714

Field-Induced Lifshitz Transition without Metamagnetism in CeIrIn₅ [Phys. Rev. Lett. 116 (2016) 023907]. D. Aoki, G. Seyfarth, A. Pourret, A. Gourgout, A. McCollam, J. A. N. Bruin, Y. Krupko, I. Sheikin, DOI:10.1103/PhysRevLett.116.037202

Non-Fermi-liquid nature and exotic thermoelectric power in the heavy-fermion superconductor UBe₁₃ [Phys. Rev. B 92 (2015) 241101*] Y. Shimizu, A. Pourret, G. Knebel, A. Palacio-Morles, D. Aoki, DOI:10.1103/PhysRevB.92.241101

Quasi-two-dimensional Fermi surfaces of the heavy-fermion superconductor Ce₂PdIn₈ [Phys. Rev. B 92 (2015) 115141] K. Goetze, J. Klotz, D. Gnida, H. Harima, D. Aoki, A. Demuer, S. Elgazzar, J. Wosnitzer, D. Kaczorowski, I. Sheikin, DOI:10.1103/PhysRevB.92.045129

Optical conductivity of URu₂Si₂ in the Kondo liquid and hidden-order [Phys. Rev. B 92 (2015) 045129] R. P. S. M. Lobo, J. Buhot, M. A. Measson, D. Aoki, G. Lapertot, P. Lejay, C. C. Homes, DOI:10.1103/PhysRevB.92.045129

Microscopic magnetic properties of the ferromagnetic superconductor UCoGe reviewed by x-ray magnetic circular dichroism [Phys. Rev. B 92 (2015) 035124] M. Taupin, J. P. Sanchez, J. P. Brison, D. Aoki, G. Lapertot, F. Wilhelm, A. Rogalev, DOI:10.1103/PhysRevB.92.035124

Fermi surface instabilities in CeRh₂Si₂ at high magnetic field and pressure. [PHYSICAL REVIEW B 91 (2015), 245129-] A. Palacio-Morales, G. Seyfarth, T. M. Suzuki, D. Braithwaite, G. Knebel, D. Aoki, J. Flouquet, DOI:10.1103/PhysRevB.91.245129

Reentrant Superconductivity Driven by

Quantum Tricritical Fluctuations in URhGe: Evidence from Co-59 NMR in URh_{0.9}Co_{0.1}Ge. [Phys. Rev. Lett. 114 (2015) 216401] Y. Tokunaga, D. Aoki, H. Mayaffre, S. Kraemer, M. H. Julien, C. Berthier, M. Horvatic, H. Sakai, S. Kambe, S. Araki, DOI:10.1103/PhysRevLett.114.216401

Unusual strong spin-fluctuation effects around the critical pressure of the itinerant Ising-type ferromagnet URhAl. [Phys. Rev. B 91 (2015) 125115] Y. Shimizu, D. Braithwaite, B. Salce, T. Combier, D. Aoki, E. N. Hering, S. M. Ramos, J. Flouquet, DOI:10.1103/PhysRevB.91.125115

Pressure-Temperature-Field Phase Diagram in the Ferromagnet U₃P₄. [J. Phys. Soc. Jpn. 84 (2015) 024705] S. Araki, M. Hayashida, N. Nishiumi, H. Manabe, Y. Ikeda, T. C. Kobayashi, K. Murata, Y. Inada, P. Wisniewski, D. Aoki, Y. Onuki, E. Yamamoto, Y. Haga, DOI:10.7566/JPSJ.84.024705

Large Cyclotron Effective Mass Detected by de Haas-van Alphen Effect in YbCu₂Si₂. [J. Phys. Soc. Jpn. 84 (2015) 035002] D. Aoki, F. Honda, Y. Homma, D.X. Li, R. Settai, H. Harima, Y. Onuki, DOI:10.7566/JPSJ.84.035002

Uniaxial-Stress-Induced Ferromagnetism in the Itinerant Metamagnetic Compound UCoAl Probed by Magnetostriction Measurements. [J. Phys. Soc. Jpn. 84 (2015) 023704] Yusei Shimizu, Bernard Salce, Tristan Combier, Dai Aoki, Jacques Flouquet DOI:10.7566/jpsj.84.023704

Lattice dynamics of the heavy-fermion compound URu₂Si₂ [Phys. Rev. B 91 (2015) 035129] J. Buhot, M. A. Méasson, Y. Gallais, M. Cazayous, A. Sacuto, F. Bourdarot, S. Raymond, G. Lapertot, D. Aoki, L. P. Regnault, A. Ivanov, P. Piekarczyk, K. Parlinski, D. Legut, C. C. Homes, P. Lejay, R. P. S. M. Lobo DOI:10.1103/PhysRevB.91.035129

Symmetry of the Excitations in the Hidden Order State of URu₂Si₂ [Phys. Rev. Lett. 113 (2014) 266405] J. Buhot, M.-A. Méasson, Y. Gallais, M. Cazayous, A. Sacuto, G. Lapertot, D. Aoki

DOI:10.1103/PhysRevLett.113.266405

Magnetic fields above the superconducting ferromagnet UCoGe [Phys. Rev. B 90 (2014) 184501] D. J. Hykel, C. Paulsen, D. Aoki, J. R. Kirtley, and K. Hasselbach
DOI:10.1103/PhysRevB.90.184501

Superconducting gap of UCoGe probed by thermal transport [Phys. Rev. B 90 (2014) 180501R] M. Taupin, L. Howald, D. Aoki, and J.-P. Brison
DOI:10.1103/PhysRevB.90.180501

Large reversible magnetocaloric effect in ferromagnetic semiconductor EuS [Solid State Comm. 193 (2014) 6] D. X. Li, T. Yamamura, S. Nimori, Y. Homma, F. Honda, D. Aoki
DOI:10.1016/j.ssc.2014.05.024

Time-Reversal Symmetry in the Hidden Order and Superconducting States of URu2Si2 [J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 094720] Ikuto Kawasaki, Isao Watanabe, Adrian Hillier, Dai Aoki
DOI:10.7566/JPSJ.83.094720

Fermi Surface Instabilities in Ferromagnetic Superconductor URhGe [J. Phys. Soc. Jpn., 83 (2014) 094719] Dai Aoki, Georg Knebel, Jacques Flouquet
DOI:10.7566/JPSJ.83.094719

②① Spin fluctuation and Fermi surface instability in ferromagnetic superconductors [C. R. Physique 15 (2014) 630] Dai Aoki, Adrien Gourgout, Alexandre Pourret, Gael Bastien, Georg Knebel, Jacques Flouquet
DOI:10.1016/j.crhy.2014.07.004

②② Lifshitz transition and metamagnetism: Thermoelectric studies of CeRu2Si2 [Phys. Rev. B 90 (2014) 075127] M. Boukahil, A. Pourret, G. Knebel, D. Aoki, Y. Onuki, J. Flouquet
DOI:10.1103/PhysRevB.90.075127

②③ Superconductivity and Ferromagnetic Quantum Criticality in Uranium Compounds [J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 061011] Dai Aoki, Jacques Flouquet
DOI:10.7566/JPSJ.83.061011

②④ Quantum Criticality and Lifshitz Transition in the Ising System

CeRu2Si2: Comparison with YbRh2Si2 [J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 061002] Alexandre Pourret, Dai Aoki, Mounir Boukahil, Jean-Pascal Brison, William Knafo, Georg Knebel, Stephane Raymond, Mathieu Taupin, Yoshichika Onuki, Jacques Flouquet
DOI:10.7566/JPSJ.83.061002

②⑤ Fermi surface in the hidden-order state of URu2Si2 under intense pulsed magnetic fields up to 81 T [Phys. Rev. B 89 (2014) 165107] G. W. Scheerer, W. Knafo, D. Aoki, M. Nardone, A. Zitouni, J. Beard, J. Billette, J. Barata, C. Jaudet, M. Suleiman, P. Frings, L. Drigo, A. Audouard, T. D. Matsuda, A. Pourret, G. Knebel, and J. Flouquet
DOI:10.1103/PhysRevB.89.165107

②⑥ Magnetic Order in Ce0.95Nd0.05CoIn5: The Q-Phase at Zero Magnetic Field [J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 013707] S. Raymond, S.M. Ramos, D. Aoki, G. Knebel, V. P. Mineev, G. Lapertot
DOI:10.7566/jpsj.83.013707

②⑦ Existence of anisotropic spin fluctuations at low temperature in the normal phase of the superconducting ferromagnet UCoGe. [Physical Review B 89 (2014) 041108] M. Taupin, L. Howald, D. Aoki, J. Flouquet, J. P. Brison
DOI:10.1103/PhysRevB.89.041108

②⑧ Giant and isotropic low temperature magnetocaloric effect in magnetic semiconductor EuSe [Appl. Phys. Lett. 102 (2013) 152409] D.X. Li, T. Yamamura, S. Nimori, Y. Homma, F. Honda, D. Aoki
DOI:10.1063/1.4802260

②⑨ Metamagnetic Transition in UCoAl Probed by Thermoelectric Measurements. [Phys. Rev. Lett. 110 (2013) 116404] A. Palacio-Morales, A. Pourret, G. Knebel, T. Comber, D. Aoki, H. Harima, J. Flouquet
DOI:10.1103/PhysRevLett.110.116404

③⑩ Fermi Surface Reconstruction inside the Hidden Order Phase of URu2Si2 Probed by Thermoelectric Measurements. [J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) 034706] A. Pourret, A. Palacio-Morales, S. Kramer, L. Malone, M. Nardone, D. Aoki, G. Knebel, J. Flouquet
DOI:10.7566/JPSJ.82.034706

[学会発表](計 11 件)

D. Aoki, “ Ferromagnetic superconductivity and Fermi surface instabilities in uranium compounds ”, SCES2016, 2016 年 5 月 10 日, 杭州(中国)

D. Aoki, “ Ferromagnetic superconductivity and Fermi surface instabilities ”, Anomalous Transport in Multipolar and Topological Materials, 2016 年 3 月 12 日, Washington DC (米国)

D. Aoki, “ Recent advances in ferromagnetic superconductors ” M2S, 2015 年 8 月 25 日, Geneve (Switzerland)

D. Aoki, “ Spin fluctuations and Fermi surface instabilities in ferromagnetic superconductors ”, International Workshop/School on Heavy Fermions and Quantum Phase Transitions, 2015 年 4 月 16 日, 杭州 (中国)

D. Aoki, “ Spin fluctuation and Fermi surface instabilities and in uranium ferromagnetic superconductors ”, 13th Bilateral German-Japanese Symposium, 2014 年 7 月 15 日, Tegernsee(ドイツ)

D. Aoki, “ Fermi surface instabilities and ferromagnetic superconductivity in uranium compounds ”, IDWN2014, 2014 年 5 月 31 日, Suwon (韓国)

D. Aoki, “ High field properties of actinide compounds ”, High field workshop, 2013 年 11 月 13 日, 松島大観荘 (宮城県松島町)

D. Aoki, “ Quantum oscillations and Fermi surfaces in URu₂Si₂ ”, URu₂Si₂ Workshop, 2013 年 11 月 5 日, Nijmegen (オランダ)

D. Aoki, “ Recent advances in ferromagnetic superconductors ”, QPT conference, 2013 年 9 月 18 日, Freudenstadt (ドイツ)

D. Aoki, “ Superconductivity and Ferromagnetic Quantum Criticality in Uranium Compounds ”, SCES2013, 2013 年 8 月 5 日, 東大本郷キャンパス(東京都文京区)

D. Aoki, “ Field reentrant superconductivity and Fermi surface

instabilities in uranium compounds ”, Actinide conference, 2013 年 7 月 22 日, Karlsruhe (ドイツ)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

青木 大 (AOKI, Dai)
東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号: 30359541

(2) 研究分担者

本多 史憲 (HONDA, Fuminori)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号: 90391268

(3) 研究分担者

本間 佳哉 (HOMMA, Yoshiya)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号: 00260448

(4) 研究分担者

李 徳新 (LI, Dixin)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号: 40281985