

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：24506

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25800211

研究課題名(和文) 純良URu2Si2単結晶を用いた μ SR法による「隠れた秩序相」の解明

研究課題名(英文) Muon spin spectroscopy study of hidden order state of URu2Si2

研究代表者

川崎 郁斗 (KAWASAKI, IKUTO)

兵庫県立大学・物質理学研究科・助教

研究者番号：90552307

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：重い電子系化合物URu₂Si₂は17.5 Kで2次相転移を示すが、過去約30年にわたる研究にも関わらずその秩序変数は定まっておらず、17.5 K以下の相は隠れた秩序相と呼ばれている。本研究課題では、隠れた秩序相、及び1.4 K以下で発現する超伝導相の磁気的性質や時間反転対称の破れの有無を調べるために、ミュオンスピン緩和法の実験を実施した。その結果、隠れた秩序相において非常に微弱(~ 0.1 Oe)ではあるが静的な内場が発達すること、またその内場が超伝導相でさらに増大することを明らかにした。これらは、この系の隠れた秩序相や超伝導相を理解するうえで重要な基礎情報となると考えている。

研究成果の概要(英文)：The heavy-fermion compound URu₂Si₂ shows a mysterious second-order transition at 17.5 K. Despite intensive studies for about three decades, the order parameter of the transition at 17.5 K has not yet been identified, and thus the ordered phase is referred to as the hidden order. In the present study, we have performed muon spin relaxation experiments in order to investigate the presence of a time-reversal symmetry-breaking field in the hidden order and superconducting states of URu₂Si₂. The development of a tiny static internal magnetic field is observed in the hidden order state. We also found that the internal field is further enhanced in the superconducting phase. These findings provide the basis for the understanding of the hidden order and superconducting states.

研究分野：数物系科学

キーワード：重い電子系 隠れた秩序 異方的超伝導 ウラン化合物

1. 研究開始当初の背景

ウラン系化合物はU5f電子の持つ強い電子相関により、重い電子状態、異方的超伝導、複雑な電荷・磁気秩序、及びそれらの競合・共存などの興味深い物性を示すことで注目を集めている。その中で重い電子系化合物URu₂Si₂はT₀~17.5 Kにおいて非常に不可思議な相転移を示すことで注目されている。比熱等のマクロ物性測定からT₀の転移は通常の2次転移であり、転移点以下において何らかの対称性が低下し、それに対応する秩序変数が発達していると考えられる。しかし、X線、中性子散乱等のミクロ測定を行っても、明瞭な格子変位や磁気秩序が検出されないことから、「隠れた秩序(Hidden Order: HO)」と呼ばれている。この物質が発見されて以来、約30年間にわたる実験・理論両面から精力的な研究が展開されるが、未だ秩序変数の解明には至らず、f電子系物理の最大の謎の一つとして研究者を長年悩ませる難問の一つとなっている。

隠れた秩序相の秩序変数を特定するためには、その対称性を決定することが極めて重要となる。ドハース・ファンアルフェン効果の実験によると、隠れた秩序相のフェルミ面は圧力下で誘起される反強磁性相とほぼ同一であることが報告されており、この結果は隠れた秩序相の秩序波数ベクトルが反強磁性相の秩序波数ベクトル(Q_{AF} = (1, 0, 0))と同一であることを示している。さらに、最近のNMR及び磁気トルク測定の研究によると、c軸まわりの4回対称性が破れていることが示唆されている。その一方で、隠れた秩序相における時間反転対称性(TRS)の破れの有無についてはまだコンセンサスは得られていない状況にあり、近年提唱された隠れた秩序変数に対する理論モデルをみてもTRSの破れを仮定する理論モデルと、それを仮定しない理論モデルが混在している状況にある。これまでのNMR及びミュオンスピン緩和(μSR)の研究において、T₀以下で微弱な内場の発達が発見されており、

隠れた秩序相での時間反転対称性の破れが示唆されているが、その内場の詳細については更なる研究が必要な状況にある。

URu₂Si₂はT_C~1.4 K以下で隠れた秩序と共存する超伝導相を示すことでも注目されている。角度分解比熱及び熱伝導率の測定により、この系の超伝導相は秩序変数k_z(k_x+ik_y)を持つ、カイラル超伝導状態であり、時間反転対称性を破っていることが示唆されている。しかしながら、超伝導相内で発現する内場の直接観測はなされていない状況にあった。

2. 研究の目的

本課題では、重い電子系化合物URu₂Si₂の隠れた秩序相、超伝導相の時間反転対称性の破れの有無や磁氣的性質を調べるために、μSRの実験を行った。μSR法は非常に高い感度(~0.1 G)、かつゼロ磁場で測定が可能であるといった特徴を持つ磁気プローブであり、秩序変数の時間反転対称性の破れに伴う内場の発達を敏感に捉えることが可能な実験手法であるといえる。

3. 研究の方法

μSRの実験は世界最高レベルの強度を持つパルスミュオンが利用可能なイギリスのラザフォードアップルトン研究所・理研RALミュオン施設において実施した。この施設では、過去にこの系に対して実施されたμSR実験に比べて、より長時間の緩和スペクトルが取得できるため、微弱な内場の発達をより高精度に測定することが可能である。試料はチョクラスキー法で作成したURu₂Si₂の純良な単結晶を用いた。μSR実験の前には交流帯磁率の実験を実施し、超伝導転移点の決定を行った。μSR実験は零磁場下、縦磁場下、横磁場下の各条件で³He冷凍機を用いて0.3-150 Kの温度領域で実施した。

4. 研究成果

隠れた秩序相の内場の発達の有無を調べるために、零磁場下でのμSR実験を行った。零

磁場のスペクトルは全温度領域で $A_0 \exp(-\lambda_{ZF} t)$ の関数形でよくフィットすることができた。 $T_0 \sim 17.5$ K以下で緩和率が明瞭に増大する振る舞いが観測された(Fig. 1)。この結果は隠れた秩序相内において、内場が発達していることを示唆するものである。緩和率の発達は10 K近傍で一度飽和する振る舞いを見せるが、さらに温度を下げると再び発達することがわかった。

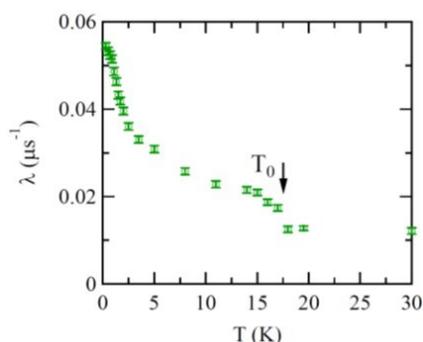


Fig1. 零磁場μSRの緩和率の温度依存性

内場のダイナミクスを調べるために縦磁場下でのμSR実験を実施したところ、非常に微弱な縦磁場の印加で、緩和が抑制されることが分かった(Fig. 2)。また、緩和が抑制される様子は、静的な内場の存在を仮定した場合の計算結果と完全に整合していることから、隠れた秩序相内で発達する内場はミュオンの時間スケールで静的であることがわかった。観測された内場の大きさは11 Kでおおよそ0.18 Oe程度であり非常に微弱である。

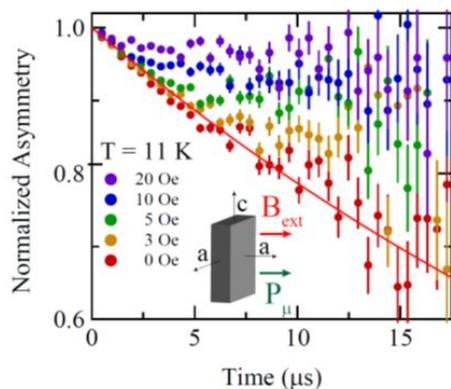


Fig2. 縦磁場μSRのスペクトル

隠れた秩序相内の内場の異方性を調べるために、横磁場下でのμSR実験を実施した。Fig. 3に示すように実験はミュオンビームの入射方向(本実験では $P_\mu \parallel a$)に垂直な2方向に横磁場を印加した状況で実施した。得られた緩和率の温度依存性をFig. 3に示す。内場が静的な場合、横磁場スペクトルの緩和率の大きさは磁場印加方向の内場の分布に対応する。 T_0 以下で $H \parallel a$, $H \parallel c$ の両方の緩和率の増大が観測されたため、隠れた秩序相内で発達する内場はミュオン位置で a 軸成分及び c 軸成分の両者を併せ持つことが明らかとなった。一方で、10 K以下では c 軸成分のみの発達が観測された、この成分の起源は不明だがその温度依存性から隠れた秩序とは直接的に関係がないものと考えられる。ここで興味深い点は圧力下で誘起される反強磁性相に対して実施されたμSR実験によると、反強磁性秩序がミュオン位置に作る内場は c 軸成分しか存在しないことが報告されている。よって隠れた秩序相内のミュオン位置での a 軸成分の内場の存在は、隠れた秩序変数が反強磁性相の秩序変数 $J_z(A_{2u})$ とは異なる対称性を持つことを示唆するものであると言える。

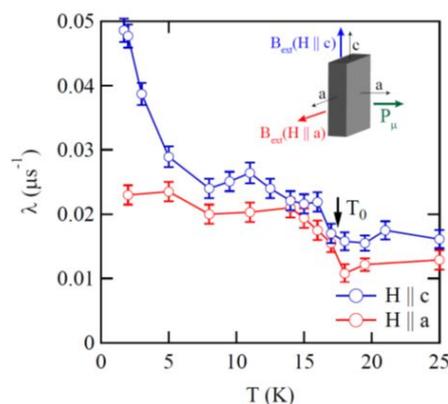


Fig3. 横磁場μSRの緩和率の温度依存性

超伝導相の時間反転対称性の破れの有無を検証するため、より低温領域での零磁場μSR実験も実施した。緩和率の温度依存性をFig. 3に示す。隠れた秩序相内での緩和率の発達は $T_c = 1.35$ Kまで継続しているが、 T_c 以下で更なる発達を示すことを明らかにした。この発

達はFig. 3の $-d\lambda_{ZF}/dT$ にピーク構造として明瞭に観測されている。しかしながら、 T_c において観測された緩和率の増大は非常に小さく、スピン3重項超伝導体 Sr_2RuO_4 の超伝導転移点において観測される、零磁場緩和率の増大量に比べて1桁程度小さい。この小ささが、過去のミュオン実験で超伝導転移点における異常が報告されなかった原因の一つであろうと考えられる。そのため、現時点では観測された緩和率の発達が超伝導相の時間反転対称性の破れに起因するのか、ただ隠れた秩序相の内場の発達の異常を捉えているだけなのかの区別は困難であり、最終的な結論を得るためには更なる研究が必要であると考えられる。

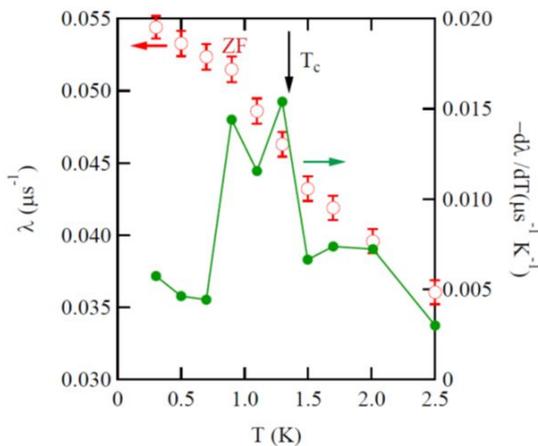


Fig4. 零磁場 μ SRの緩和率の温度依存性

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9件)

I. Kawasaki, I. Watanabe, A. D. Hillier, and D. Aoki; “Time-Reversal Symmetry in the Hidden Order and Superconducting States of URu_2Si_2 ” J. Phys. Soc. Jpn. 83 094720-1 to 094720-5 (2014). DOI: 10.7566/JPSJ.83.094720. (査読有)

I. Kawasaki, M. Yokoyama, S. Nakano, K. Fujimura, N. Netsu, H. Kawanaka, and K. Tenya; “Ferromagnetic Cluster-Glass State in Itinerant Electron System $Sr_{1-x}La_xRuO_3$ ” J.

Phys. Soc. Jpn. 83 064712-1 to 064712-7 (2014). DOI: 10.7566/JPSJ.83.064712. (査読有)

M. Yokoyama, S. Nakano, S. Ishihara, N. Wada, S. Takeuchi, I. Kawasaki, H. Kawanaka, and K. Tenya; “Evolution of Ferromagnetic Clusters Originating from Itinerant Ru 4d Electrons in $Sr_{1-x}La_xRuO_3$ ” JPS Conf. Proc. 3 013002-1 to 013002-6 (2014). DOI: 10.7566/JPSCP.3.013002. (査読有)

H. Kuroe, K. Aoki, T. Sato, R. Kino, H. Kuwahara, T. Sekine, M. Hase, I. Kawasaki, T. Kawamata, T. Suzuki, I. Watanabe, K. Oka, T. Ito, and H. Eisaki; “Muon spin spectroscopy in multiferroic $(Cu,Zn)_3Mo_2O_9$ ” JPS Conf. Proc. 2 010206-1 to 010206-8 (2014). DOI: 10.7566/JPSCP.2.010206. (査読有)

S.-i. Fujimori, I. Kawasaki, A. Yasui, Y. Takeda, T. Okane, Y. Saitoh, A. Fujimori, H. Yamagami, Y. Haga, E. Yamamoto, and Y. Ōnuki; “Itinerant Magnetism in URhGe Revealed by Angle Resolved Photoelectron Spectroscopy” Phys. Rev. B 89 104518-1 to 104518-7 (2014). DOI: 10.1103/PhysRevB.89.104518. (査読有)

M. Yokoyama, K. Fujimura, S. Ishikawa, M. Kimura, T. Hasegawa, I. Kawasaki, K. Tenya, Y. Kono, and T. Sakakibara; “Possible Evolution of Antiferromagnetism in Zn-Doped Heavy-Fermion Superconductor $CeCoIn_5$ ” J. Phys. Soc. Jpn. 83 033706-1 to 033706-5 (2014). DOI: 10.7566/JPSJ.83.033706. (査読有)

S.-i. Fujimori, I. Kawasaki, A. Yasui, Y. Takeda, T. Okane, Y. Saitoh, A. Fujimori, H. Yamagami, Y. Haga, E. Yamamoto, and Y. Ōnuki; “Angle resolved photoelectron spectroscopy study of heavy Fermion

superconductor UPd₂Al₃” JPS Conf. Proc. 3
011072-1 to 011072-5 (2014) DOI:
10.7566/JPSCP.3.011072. (査読有)

H. Guo, H. Tanida, R. Kobayashi, I. Kawasaki, M. Sera, T. Nishioka, M. Matsumura, I. Watanabe, and Z. A. Xu; “Magnetic instability induced by Rh doping in the Kondo semiconductor CeRu₂Al₁₀” Phys. Rev. B 88 115206-1 to 115206-8 (2013). DOI: 10.1103/PhysRevB.88.115206. (査読有)

H. Guo, K. Matsuhira, I. Kawasaki, M. Wakeshima, Y. Hinatsu, I. Watanabe, and Z. A. Xu; “Magnetic order in the pyrochlore iridate Nd₂Ir₂O₇ probed by muon spin relaxation” Phys. Rev. B 88 060411-1 to 060411-5 (2013). DOI: 10.1103/PhysRevB.88.060411. (査読有)

[学会発表](計3件)

川崎郁斗、「ミュオンスピン緩和法からみたSr_{1-x}La_xRuO₃における不均一強磁性クラスタの形成」、日本物理学会2014年秋季大会、2014年9月10日、中部大学(愛知県春日井市)

川崎郁斗、「μSRによる重い電子系超伝導体URu₂Si₂の研究」、日本物理学会2013年秋季大会、2013年9月27日、徳島大学(徳島県徳島市)

I. Kawasaki, “μSR study of hidden order state in URu₂Si₂”, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013), August 7, 2013, Tokyo (Japan)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

川崎 郁斗 (IKUTO KAWASAKI)

兵庫県立大学・物質理学研究科・助教

研究者番号：90552307