

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 1 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400375

研究課題名(和文) 遍歴強磁性超伝導体における磁場誘起超伝導メカニズムの微視的解明

研究課題名(英文) Microscopic investigation of field-induced superconducting mechanism in itinerant ferromagnetic superconductors

研究代表者

徳永 陽 (TOKUNAGA, Yo)

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・先端基礎研究センター・研究主幹

研究者番号：00354902

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は遍歴強磁性超伝導体URhGeの磁場誘起超伝導の発現機構を解明することを目的として実施された。この磁場誘起超伝導は強磁性の量子臨界点近傍で出現するため、その臨界的な磁気揺らぎを引力とした超伝導機構が提案されていたが、実験的証拠は得られていなかった。そこで本研究ではCoを一部置換したURhGe単結晶を準備し、Co核の核磁気共鳴測定を行った。その結果、量子臨界点近傍において磁気揺らぎが強く発散する様子が明らかになった。さらにその揺らぎが三重臨界点の特徴を持つこともわかった。本研究により磁場誘起超伝導が強磁性的な臨界磁気揺らぎを引力として出現していることが確認された。

研究成果の概要(英文)：The re-entrant superconductivity (RSC), discovered in 2005, emerges near a field-induced quantum critical point (QCP) in a ferromagnetic (FM) superconductor URhGe. While the origin of this RSC is broadly thought to be associated with quantum critical fluctuations near the QCP, their exact nature had not been well identified. In this study, we conducted  $^{59}\text{Co}$  NMR study in a Co-doped single crystal of URhGe. The experiment revealed a divergence of electronic spin fluctuations in the vicinity of the QCP. Furthermore, the fluctuations observed are characteristic of a tricritical point. We have suggested these fluctuations as the pairing glue responsible for the RSC.

研究分野：固体物理

キーワード：強磁性超伝導 核磁気共鳴 量子臨界点 磁場誘起超伝導 三重臨界点

### 1. 研究開始当初の背景

もともと超伝導と強磁性は相性が悪い。これは強磁性による強い内部磁場が超伝導の電子対を容易に破壊してしまうからである。このため両者の微視的な共存は難しいと考えられてきた。ところがウラン化合物で発見された強磁性超伝導体では、同じ遍歴電子が強磁性と超伝導を同時に担っている。さらに2005年にはそのうちの一つである URhGe において、一度磁場で壊された超伝導が、約12テスラの強磁性量子臨界点近傍で再び出現する(磁場誘起超伝導)という驚くべき現象が発見された。

理論的には<sup>3</sup>Heにおける超流動の研究の発展として、強磁性揺らぎを用いた超伝導の可能性は古くから議論されていた。そのため URhGe で発見されたこの磁場誘起超伝導の発現機構についても、強磁性の臨界揺らぎを引力とする超伝導機構が有力視されていた。しかし実験による直接的な検証は進んでいなかった。

### 2. 研究の目的

本研究はウランを含む遍歴強磁性体 URhGe で発見された磁場誘起超伝導の発現機構を実験的に解明することを目的とした。この磁場誘起超伝導は強磁性の揺らぎを媒介とした新しい超伝導メカニズムの存在を直感的に示唆しており、その実験的な検証が待たれていた。本研究では核磁気共鳴(NMR)法を主な測定手段として用いた。NMR法は原子核の磁気的な性質(原子核スピン)を利用して、原子核位置にはたらく電子に起因する磁性を測定することにより電子状態を評価する手法であり、特に物質中の磁気的な揺らぎを高精度で観測できるという特徴を持つ。これにより磁気揺らぎと超伝導の相関関係を直接検証することが可能となった。強磁性揺らぎは反強磁性揺らぎと異なり、磁場による制御が可能である。この性質を利用して研究を進めた。

### 3. 研究の方法

研究の遂行のため、世界最高純度の単結晶を準備し、さらにフランス国立強磁場研究所の強磁場実験設備と精密な磁場角度分解 NMR 技術を融合させて研究を行った。これまで URhGe 単結晶を用いた詳細な NMR 研究が行われていなかった最大の要因は、化合物中に含まれている原子核の NMR 感度がいずれも極めて低く、信号の観測が困難である点にあった。そこで本研究では URhGe に僅かな Co (10%) をドーブした単結晶を準備して Co-NMR 実験を行った。これは(1)URhGe の磁気的な性質は少量の Co 置換ではその磁気的な性質はほとんど影響を受けないこと、さらに(2)Co核は感度が良く、NMR 信号が比較的容易に観

測されること、に着目したものである。その結果、URhGe の単結晶において NMR 信号の観測に初めて成功した。

測定ではさらに磁場中回転機構を用いて磁場印可方向を精密に制御しながら NMR のスピン-格子緩和時間( $T_1$ )とスピン-スピン緩和時間( $T_2$ )を測定した。これらの物理量は物質内部の磁気的な揺らぎの強さと直接関係している。フランス国立強磁場研究所の強磁場実験設備を用いることで磁場は最大で30テスラまで印可した。これにより磁気揺らぎの磁場角度依存性を広い磁場領域に渡って検証し、磁場誘起超伝導との相関を明らかにすることができた。

### 4. 研究成果

図1に磁場を結晶の(bc)面内に印可することで得られた磁化の揺らぎの角度分布の様子を示す。図の横軸が結晶のb軸方向、縦軸がc軸方向にかけた磁場の強さに対応する。超伝導の出現する領域(白四角で囲まれた部分)と磁気揺らぎの増大している部分( $=1/T_2$ が増大している部分)が良く一致していることが分かる。このことは12テスラ付近に量子臨界的な磁気揺らぎが存在し、さらにその急激な増大によって磁場誘起超伝導が出現していることを強く示唆している。また観測された(bc)面内の磁気揺らぎの特徴的な広がり、三重臨界点を含む量子相転移の存在を明らかにしている。

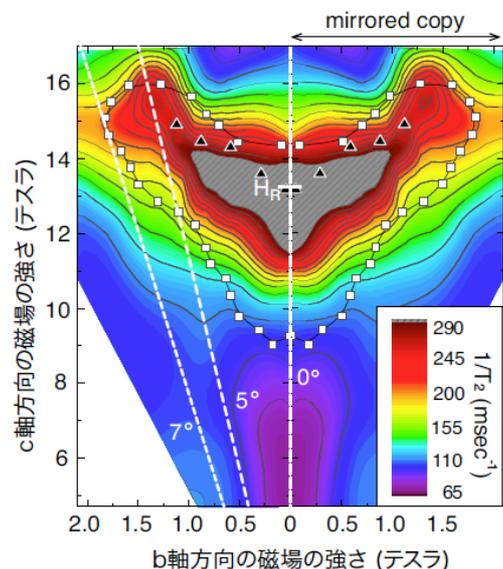


図1 NMR で観測された量子三重臨界点 ( $H_R$ ) 近傍での磁気揺らぎの分布の様子。 $1/T_2$ の大きさが磁気揺らぎの大きさに比例する。超伝導の出現する領域(白四角で囲まれた部分)で磁気揺らぎが急激に増大している。

一方、図2は(ab)面内と(bc)面内に磁場を印可した場合の、磁気揺らぎの磁場角度依存性を比較したものである。(bc)面内に磁場を

印可した場合は、b 軸方向から僅かに磁場を傾けるだけで磁気揺らぎの増大が急激に抑制される。一方、(ab)面に磁場を印可した場合は、b 軸から大きく磁場を傾けても揺らぎほとんど抑制されないことがわかった。このことは 12 テスラ付近の臨界的な揺らぎが c 軸方向の磁場に極めて敏感であること、逆に a 軸方向の磁場の影響は殆ど受けない事を意味している。さらに重要なのは、図に見られるように、この極めて異方的な磁気揺らぎの磁場依存性が、磁場誘起超伝導の磁場異方性と強く相関していることである。このことは超伝導対形成の引力としてこの強磁性揺らぎが用いられていることを明らかにしている。

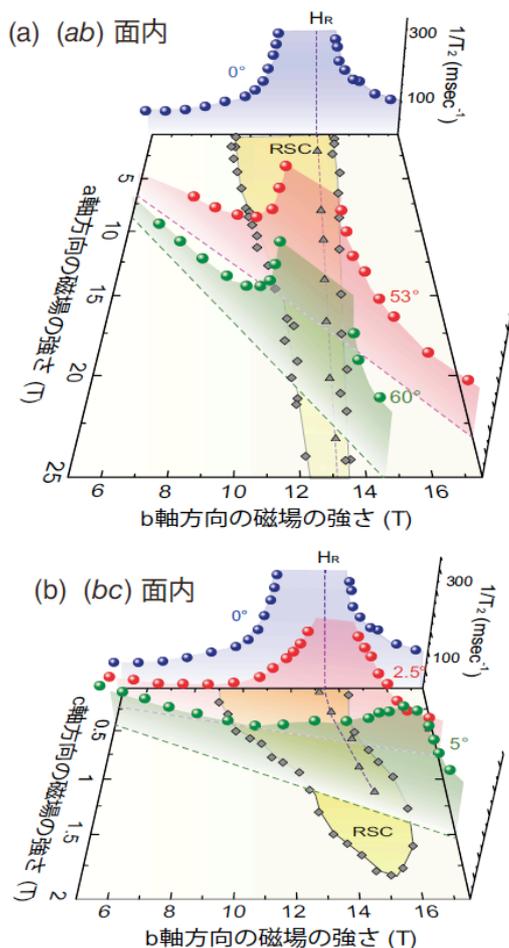


図2 磁気揺らぎの磁場方向依存性の比較。(bc)面内に磁場を印可した場合(b)は、b軸方向から僅かに磁場を傾けるだけで磁気揺らぎの増大( $1/T_2$ の増大)が急激に抑制されるのに対し、(ab)面内に磁場を印可した場合(a)は、b軸から大きく磁場を傾けても揺らぎの増大は抑制されない。さらにこの磁気揺らぎが発達した同じ領域において磁場誘起超伝導(RSC)が出現していることがわかる。

ウラン化合物の遍歴強磁性超伝導は、BCS理論の枠組みで理解される従来の超伝導とは明らかに異なっており、その発現機構の解明は磁性と超伝導が絡み合う強相関電子物

性の本質に迫るものである。これまで強磁場は超伝導を壊してしまうため、超伝導の応用にとってむしろ邪魔な存在でしかなかった。しかし、今回の発見は場合によっては強磁場が物質の磁気的性質を変化させ、物質内の磁気的な揺らぎを増大させることで、超伝導を生み出すことが可能であることを明らかにしている。この磁場で安定化する超伝導の機構を理解することは応用上の意義も大きく、この系の驚異的に高い上部臨界磁場の理解とあわせて、その新しい知見は強磁場中で動作する新しい超伝導デバイス等の開発にも繋がると期待される。

本成果は、「Physical Review Letters (フィジカル レビュー レターズ)」に Editors' Suggestion (注目論文) として掲載された。

### 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 4 件)

- ① Y. Tokunaga, D. Aoki, H. Mayaffre, S. Kreamer, M. H. Julien, C. Berthier, M. Horvatic, H. Sakai, T. Hattori, S. Kambe and S. Araki, "Interplay between Quantum Fluctuations and Reentrant Superconductivity with a Highly Enhanced Upper Critical Field in URhGe", *Phys. Rev. B* **93**, 201112-1-5(R) (2016).  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.201112>
- ② 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  $\text{URu}_2\text{Si}_2$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 073711-1-4 (2016).  
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.85.073711>
- ③ Y. Tokunaga, D. Aoki, H. Mayaffre, S. Kreamer, M. H. Julien, C. Berthier, M. Horvatic, H. Sakai, S. Kambe and S. Araki, "Quantum Tricritical Fluctuations Driving Mass Enhancement and Reentrant Superconductivity in URhGe", *J. Phys.: Conf. Ser.* **683**, 012010\_1-6 (2016).  
<https://doi.org/10.1088/1742-6596/683/1/012010>
- ④ Y. Tokunaga, D. Aoki, H. Mayaffre, S. Kreamer, M. H. Julien, C. Berthier, M. Horvatic, H. Sakai, S. Kambe and S. Araki, "Reentrant Superconductivity Driven by Quantum Tricritical Fluctuations in URhGe: Evidence from

<sup>59</sup>Co NMR in URh<sub>0.9</sub>Co<sub>0.1</sub>Ge” Phys. Rev. Lett. **114**, 216401\_1-5 (2015).”  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.216401>

[学会発表] (計 5 件)

- ① 徳永 陽 “URhGe 単結晶の NMR による研究” 日本物理学会第 72 回年次大会, 平成 29 年 3 月 17 日、大阪大学(大阪府豊中市)
- ② 徳永 陽 “URhGe における強磁性超伝導の NMR による研究”, J-Physics:多極子伝導系の物理全体会議, 平成 28 年 5 月 27 日、北海道大学(北海道札幌市)
- ③ Y. Tokunaga, “ Quantum tricritical fluctuations driving reentrant superconductivity in URhGe”, TMU International Symposium 2015, Sep. 24-25, (2015). 首都大学東京(東京都八王子市)

[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：  
取得年月日：  
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

<http://asrc.jaea.go.jp/soshiki/gr/MatPhysHeavyElements/Highlights/Highlights.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

徳永 陽 (TOKUNAGA, Yo)

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・先端基礎研究センター・研究主幹

研究者番号：00354902

### (2) 研究分担者

青木 大 (AOKI, Dai)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：30359541

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：

### (4) 研究協力者

( )