

## 研究課題別評価

### 1. 研究課題名 強磁性と超伝導の共存と自己誘起磁束格子の探索

### 2. 研究者氏名 :古川 はづき

### 3. 研究の狙い :

近年発見された新しい金属間化合物超伝導体  $RE T_2 B_2 C$  ( $RE = Lu, Er, Ho, Y, \text{etc.}$   $T = Ni, Pd, Pt$ ) は、希土類サイトに磁性原子を配すことにより、磁性と超伝導の競合・共存に関する研究が期待されることから大変注目され、現在、世界中で精力的な研究が進められている物質である。我々は、さきがけの研究開始以前に、この系の大型で良質な単結晶試料の育成条件の確立に世界で初めて成功し、磁性を含む超伝導体  $RE Ni_2 B_2 C$  系 ( $RE = Ho, Er$ ) の研究を開始した。そして  $Er Ni_2 B_2 C$  系の良質な大型単結晶試料を用いて偏極・非偏極中性子散乱実験を行い、この物質の低温で超伝導状態と弱強磁性状態が共存していることを証明することに成功した。それぞれの性質が相反すると考えられている強磁性と超伝導のミクロスコピックな共存状態の確認は、世界で最初の例であり、今後の磁性超伝導体の研究分野に大きな発展を促す非常に重要な成果である。

さきがけ研究では、これらの研究をさらに発展させ、強磁性と超伝導状態の共存・競合についての研究、および、「自己誘起磁束格子構造の探索」を行うことを研究目標とした。我々は、まず初めに、強磁性と超伝導状態のミクロな共存について詳細を調べるため  $Er Ni_2 B_2 C$  の弱強磁性状態における磁気構造を中性子回折実験により決定することを第一の研究目標とした。また、 $Er Ni_2 B_2 C$  系で観測された弱強磁性成分の自発磁化はわずか約  $0.3 \mu_B$  である。この磁化が作る内部磁場  $4 M$  の大きさは、系の超伝導の下部臨界磁場  $H_{C1}$  よりわずかに小さいと見積もられる。自発磁化が作る内部磁場  $4 M$  の大きさが系の  $H_{C1}$  より大きくかつ上部臨界磁場  $H_{C2}$  より小さい場合、これまでその存在が理論的に示唆されてきた強磁性成分の内部磁場による自己誘起渦糸構造が、この系で実験的に初めて観測される可能性がある。中性子小角散乱は超伝導状態の渦糸構造を直接的に観測できる非常に有効な実験手段である。そこで本研究では、 $Er Ni_2 B_2 C$  系について中性子小角散乱法による自己誘起渦糸構造の直接観測に挑戦した。また、その他、強磁性と超伝導の関係する系についての研究を行なうことを目標とした。

### 4. 研究結果 :

本研究における研究成果は、以下の4つにまとめられる。

#### 4-1 強磁性超伝導体 $Er Ni_2 B_2 C$ における強磁性と超伝導の共存状態の研究

(H. Kawano-Furukawa et al., PRB 65 180508 (2002) )

強磁性と超伝導の微視的な共存状態の研究には、 $Er Ni_2 B_2 C$  に現われる磁気秩序の詳細な研究が不可欠である。そこで、本研究では、スピンの空間相関を直接観測することができる中性子回

折実験を行い、この系に現われる磁気秩序の決定を行なった。弱強磁性成分は強磁性面を形成し35 の間隔で発生することが明らかになった。(図 1参照)

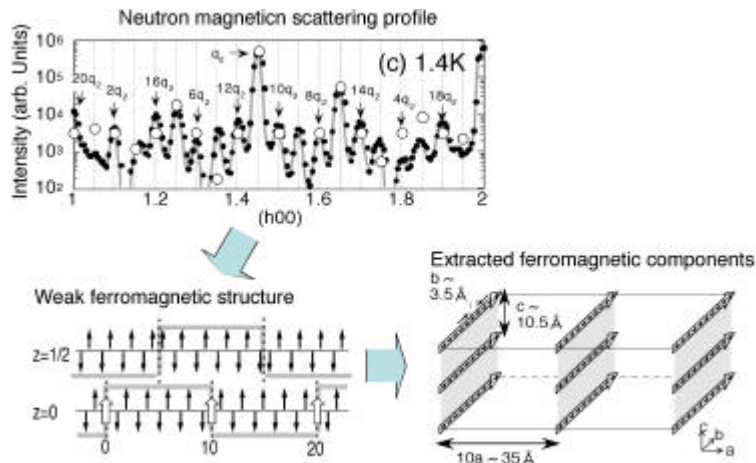


図 1:  $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$  系の中性子散乱データと決定された磁気構造 ( $T=1.4\text{K}$ )

#### 4-2 強磁性超伝導体 $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$ における自己誘起磁束格子構造の探索

(H. Kawano-Furukawa et al., submitted to PRL)

我々の磁化測定の結果は、ゼロ磁場下で系を冷却すると、強磁性のドメインがランダムな方向を向くために内部磁場がゼロとなり磁束格子が出現しないが、系を磁化容易軸方向に印加された磁場中で冷却し、強磁性のドメインを揃え、その後、磁場を切っても内部磁場が有限となって残り、自己誘起磁束格子が出現する事を強く示唆した。(図 2参照)

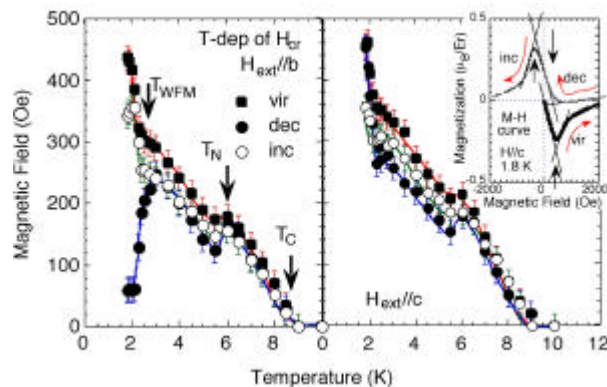


図 2: 下部臨界磁場  $H_{c1}$  の温度変化。

弱強磁性転移温度  $T_{\text{WFM}}$  以下で  $H_{c1}^{\text{dec}}$  ( $H // b$  磁化容易軸) が減少し、この条件下での自己誘起磁束格子構造実現の可能性を示唆している。

そこで、磁化測定に引き続き、磁束格子の空間相関を直接観測する中性子小角散乱実験を行

なった。その結果、この系で自己誘起磁束格子構造が実現していることを強く示唆する結果を得た。(図3参照)

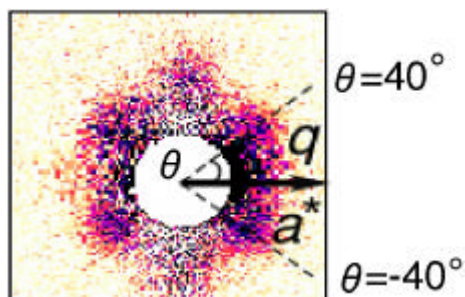


図3： 中性子小角散乱データ。(H<sub>ext</sub>=0、T=1.6K)  
= ± 40° 付近に磁束格子の存在を示す散乱が  
観測されている。測定がゼロ磁場下で行なわれて  
いるため、弱強磁性の内部磁場により形成された  
自己誘起磁束格子構造の存在を示す。

#### 4-3 (Er,Tb)Ni<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C, Er(Ni,Co)<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C における強磁性と超伝導の共存状態の研究

我々は ErNi<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C で実現する自己誘起磁束格子構造の観測に成功した。しかし、この系の場合、磁気ドメインの整列のため、実験の過程で超伝導状態に磁場をかける必要がある。このため、この共存状態についてさらに詳細な研究を行なうためには「外部磁場印加以外の方法でドメインを揃える方法を見つけ出す」、あるいは、強磁性転移後より低温で超伝導になる新物質を見つける必要がある。後者の条件を満たす系を探る目的で ErNi<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C の近隣物質として(Er,Tb)Ni<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C, Er(Ni,Co)<sub>2</sub>B<sub>2</sub>C の試料を作成しその物性を調べた。

結果として、ErNi<sub>1.9</sub>Co<sub>0.1</sub>B<sub>2</sub>C (右図)では強磁性転移後より低温で超伝導転移が起こることが示された。

このことから、超伝導状態に外部磁場を印加すること無く自己誘起磁束格子構造の形成過程を研究することが可能となる。この系についてのもより詳細な研究は現在も進行中である。(図4参照)

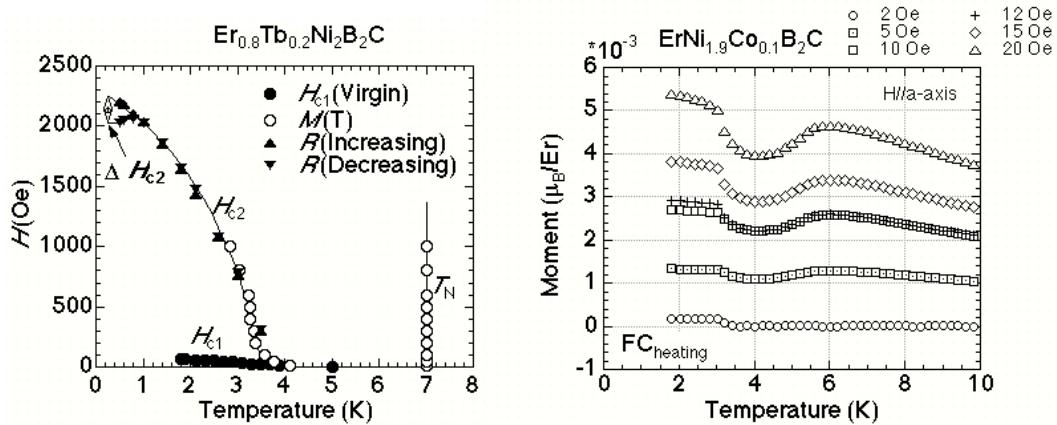


図 4 左 磁化測定、電気抵抗測定から決めた  $\text{Er}_{0.8}\text{Tb}_{0.2}\text{Ni}_2\text{B}_2\text{C}$  の磁気相図。1K 以下の低温で強磁性秩序出現による  $H_{c2}$  のヒステリシスが観測されている。右  $\text{ErNi}_{1.9}\text{Co}_{0.1}\text{B}_2\text{C}$  の磁化の温度依存性。6K での磁化の減少が SDW 転移、また、4K 以下での増加が強磁性転移を示唆する。超伝導転移温度  $T_c$  は約 2.5K。

#### 4-4 p 波超伝導 $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ における磁気揺らぎの超伝導メカニズムに果たす役割の解明

(論文投稿準備中)

銅酸化物高温超伝導体と同じ結晶構造をもつ  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  において超伝導が発見されて以来、この物質に対して様々な研究がなされている。バンド計算は、この系のフェルミ面が強い二次元性を持つことを示し、また NMR などの実験により、この系はスピントリプレットの p 波超伝導体であるということが示唆された。p 波超伝導体のクーパ対形成には、 $^3\text{He}$  の超流動状態からの類推から強磁性揺らぎの寄与が考えられた。そこで、我々は、強磁性揺らぎと超伝導の対称性 の関係を明らかにすべく、中性子非弾性散乱実験を行ない、この系での強磁性揺らぎの存在の確認に乗り出した。しかし  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  において強磁性揺らぎの証拠は全く見つからなかった。この結果は、当初、この系の超伝導の対称性が p 波的であるとする様々な実験結果に疑問を投げかけた。一方で、この系には、フェルミ面のネスティングに由来する動的帯磁率のピークが不整合位置  $q=(2/3, 2/3, 0)$  に発生する可能性が理論的に指摘され、実際、フランスのグループの実験により確認された。またこの反強磁性揺らぎが系の二次元面に対して垂直な方向 (c 軸方向) に磁気異方性を持つ場合に、この揺らぎが p 波の対称性をもつクパ対を形成することが理論的に指摘された。そこで、我々は、この系の研究の延長として、この反強磁性揺らぎが異方性を持つかどうか 非弾性中性子散乱実験による研究を行なった。その結果、この系の反強磁性揺らぎが c 軸方向に異方性を持つことが明らかになり、この揺らぎが系の p 波超伝導メカニズムに寄与する可能性が高いことを実証することに成功した。

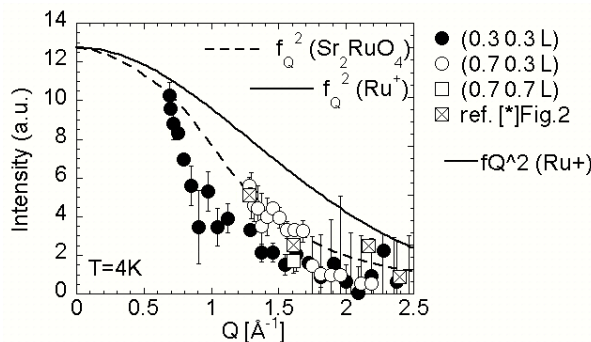


図5： 中性子非弾性散乱データ。

$q=(0.3\ 0.3\ 0)$ に観測される反強磁性的の性質を持つ

動的帯磁率の  $Q$  依存性。散乱強度が  $Q$  に対して  
点線で描かれた  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  系の磁気形状因子  
 $f^2(\text{Sr}_2\text{RuO}_4)$  より早く減少していることが異方性  
の存在を示唆している。

得られた異方性係数  $c/a$  は約 6。

#### 5. 自己評価：

強磁性超伝導体における自己誘起磁束格子構造の観測は、これまでの20年以上にわたる自己誘起磁束格子に関する研究、また、さらには40年以上にわたり継続的に行なわれてきた強磁性超伝導研究に大きな変革をもたらす非常に重要なテーマである。本研究では、この自己誘起磁束格子構造の存在を強く示唆する結果が得られた。しかし、未だに、レフェリーを十分に納得させるだけのデータを集め切れていない。私の信念は、万人が納得し、文句のつけようのない実験データを示すこと。そのためには、正面からだけではなく、様々な角度からもう一度物理を眺め、さらに、研究を確実なものにしたいと考えている。また、さきがけ研究は、これまで私が取り組んできた研究のスタイルとは異なり、最初から3年間で一つのテーマを完成させることを計画したため、かなりじっくりと着実に研究に取り組むことができたと思う。

#### 6. 研究総括の見解：

安定状態として反撥競合関係にあると考えられていた強磁性相と超伝導相とが現実に共存している物質系が最近発見されて、超伝導物質の基礎・応用の両面に関心を引いている。本研究者は、磁性金属(Ni)を含む一連の金属間化合物単結晶を作製し、中性子線回折と磁化測定によりこれらの特異な物質系での磁気状態と超伝導状態との競合と共存の機構を詳しく解明することを三年間の研究目標として提案し採択された。本領域研究者総勢 38 名中の 3 人目の女性研究者であり、期待に違わない活発な研究を行ってきたといえる。東大物性研究所の中性子回折研究施設(東海村原研内)を協同利用した意欲的な実行力と、自らに厳しく妥協に甘んじない研究態度は、他の本領域研究者たちに対して、大きな刺激を与えてきたことも特筆に値する。3年間の

研究成果には少なからぬ新規性が認められ、それに基づいて新しい解釈を提案しているが、競争の激しいこの分野で国際的に認知されるには、今後の実験的、理論的な詰めが必要であろう。将来の発展に期待したい。

#### 7. 主な論文等：

さきがけ研究に参加させていただいた三年間の論文と研究の成果発表は以下の通りである。

#### 発表論文

##### Original Papers

Spontaneous vortex phase in  $\text{ErNi}_2^{11}\text{B}_2\text{C}$ ,

H. Kawano-Furukawa, E. Habuta, T. Nagata, M. Nagao, H. Yoshizawa, N. Furukawa, H. Takeya and K. Kadowaki,

submitted to Phys. Rev. Lett.

Anomalous phonon peak in the superconducting state of  $\text{ErNi}_2^{11}\text{B}_2\text{C}$

H. Kawano-Furukawa, H. Yoshizawa, H. Takeya, and K. Kadowaki

Phys. Rev. B, to be published

Weak ferromagnetic order in the superconducting  $\text{ErNi}_2^{11}\text{B}_2\text{C}$

H. Kawano-Furukawa, H. Takeshita, M. Ochiai, T. Nagata, H. Yoshizawa, N. Furukawa, H. Takeya, and K. Kadowaki

Phys. Rev. B 65, 180508(R)

Coexistence of superconductivity and (anti-)ferromagnetism in  $\text{RuSr}_2\text{YCu}_2\text{O}_8$

H. Takagiwa, J. Akimitsu, H. Kawano-Furukawa, H. Yoshizawa

J. Phys. Soc. Jpn. 70, 333

##### Proceedings

Study of H-T Phase Diagram of  $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$

H. Takeshita, M. Ochiai, E. Habuta, T. Nagata, H. Kawano-Furukawa, N. Furukawa, H. Takeya, H. Yoshizawa, and K. Kadowaki

Physica C, to be published.

New anomaly of  $H_{C1}$  in  $\text{ErNi}_2^{11}\text{B}_2\text{C}$

H. Kawano-Furukawa, H. Yoshizawa, H. Takeya, and K. Kadowaki  
J. Magn. Magn. Matter. 226-230, 278

Magnetization isotherms on  $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$ ,  $\text{Er}_{0.8}\text{Tb}_{0.2}\text{Ni}_2\text{B}_2\text{C}$  and  $\text{Er}_{0.8}\text{Lu}_{0.2}\text{Ni}_2\text{B}_2\text{C}$  single crystals  
H. Takeya, E. Habuta, H. Kawano-Furukawa, T. Ooba, and K. Hirata  
J. Magn. Magn. Mater. 226-230, 269

Weak ferromagnetism in superconducting  $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$

H. Kawano-Furukawa

Rare Earth Transition Metal Borocarbides (Nitrides): Superconducting, Magnetic and Normal State Properties, Vol. 14 of NATO Advanced Study Institute, Series II (Kluwer Academic, Dordrecht, 2001), p. 223

## 学会発表

2002 年

$\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  における反強磁性スピン揺らぎ

浦田真理子, 永田貴志, 古川はづき, 吉澤英樹, 門脇広明, Pengcheng Dai

日本中性子科学会第 2 回年会 (Dec.9-10,2002, 熊取)

$\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$  における自己誘起磁束格子の観測

永田貴志, 矢野史子, 土生田恵美, 古川はづき, 長尾道弘, 吉澤英樹, 古川信夫, 竹屋浩幸, 門脇和男

日本中性子科学会第 2 回年会 (Dec.9-10,2002, 熊取)

$\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$  における自己誘起磁束格子の観測

永田貴志, 矢野史子, 土生田恵美, 古川はづき, 長尾道弘, 吉澤英樹, 古川信夫, 竹屋浩幸, 門脇和男

日本物理学会 2002 年秋季大会 (Sep.6-9, 2002 中部大)

$\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  系の反強磁性スピン揺らぎ

浦田真理子, 永田貴志, 古川はづき, 吉澤英樹, 門脇広明

日本物理学会 2002 年秋季大会 (Sep.6-9, 2002 中部大)

金属間化合物超伝導体  $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$  における磁場中磁気相図

竹下晴子, 落合みち代, 土生田恵美, 永田貴志, 古川はづき, 吉澤英樹, 古川信夫, 竹屋浩幸,

門脇和男

日本物理学会 2002 年秋季大会 (Sep.6-9, 2002 中部大)

The antiferromagnetic spin fluctuation in  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$

M. Urata, T. Nagata, H. Kawano-Furukawa, H. Yoshizawa, and H. Kadowaki

The 23rd International Conference on Low Temperature Physics (LT23) (Aug.20-27, 2002 広島)

H-T phase diagram and magnetic structure in  $\text{ErNi}_2^{11}\text{B}_2\text{C}$

H. Takeshita, M. Ochiai, E. Habuta, T. Nagata, H. Kawano-Furukawa, N. Furukawa, H. Takeya, H. Yoshizawa, and K. Kadowaki

The 23rd International Conference on Low Temperature Physics (LT23) (Aug.20-27, 2002 広島)

Antiferromagnetic fluctuations and p-wave superconductivity in  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$

H. Kawano-Furukawa

The workshop on CMR Manganites and Related Transition Metal Oxides (July 14-20, 2002, Telluride, CO, US)

$\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$ : a ferromagnetic superconductor

H Kawano-Furukawa

CERC-ERATO 2002 International Workshop on "Phase Control of Correlated Electron Systems." (22 - 25 May, 2002 Waikoloa, Hawaii, US)

Spontaneous vortex phase in the weak ferromagnetic superconductor  $\text{ErNi}_2^{11}\text{B}_2\text{C}$

H. Kawano-Furukawa, E. Habuta, H. Takeshita, T. Nagata, M. Nagao, H. Yoshizawa, N. Furukawa, H. Takeya, and K. Kadowaki

American Physical Society March Meeting 2002 (Mar.18-22, 2002 Indianapolis, US)

$\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$ : a ferromagnetic superconductor

H. Kawano-Furukawa,

US-JAPAN workshop (Mar.14-15, 2002 Tennessee, US)

2001 年

弱強磁性超伝導体と自己誘起磁束格子

古川はづき

日本中性子科学会第 1 回年会 (Dec.6-7, 2001 仙台)



Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>におけるスピン揺らぎとそのスケールリング則の検証

浦田真理子, 永田貴志, 古川はづき, 吉沢英樹, 門脇広明

日本中性子科学会第1回年会 (Dec.6-7, 2001 仙台)

ErNi<sub>2</sub><sup>11</sup>B<sub>2</sub>C の磁場中磁気相図

竹下晴子, 落合みち代, 土生田恵美, 永田貴志, 古川はづき, 竹屋浩幸, 吉沢英樹, 門脇和男

日本中性子科学会第1回年会 (Dec.6-7, 2001 仙台)

H-T phase diagram in ErNi<sub>2</sub><sup>11</sup>B<sub>2</sub>C

E. Habuta, H. Kawano-Furukawa, H. Yoshizawa, H. Takeya, and K. Kadowaki

Todai International Symposium, ISSP-Kashiwa 2001, Correlated Electrons (Oct.2-5, 2001 東大物性研)

Magnetism in superconducting ErNi<sub>2</sub><sup>11</sup>B<sub>2</sub>C

H. Kawano-Furukawa, M. Ochiai, H. Takeshita, T. Nagata, H. Yoshizawa, N. Furukawa, H. Takeya, and K. Kadowaki

International Conference on Neutron Scattering (ICNS2001) (Sep.9-13, 2001 Munchen)

H-T phase diagram in Er<sub>0.8</sub>Tb<sub>0.2</sub>Ni<sub>2</sub><sup>11</sup>B<sub>2</sub>C

H. Kawano-Furukawa, H. Takeshita, E. Habuta, T. Nagata, H. Yoshizawa, H. Takeya, and K. Kadowaki

International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2001) (Aug.6-10, 2001 Ann Arbor)

Possibility of spontaneous vortex phase in ErNi<sub>2</sub><sup>11</sup>B<sub>2</sub>C

H. Kawano-Furukawa, E. Habuta, T. Nagata, H. Yoshizawa, H. Takeya, and K. Kadowaki

American Physical Society March Meeting 2001 (Mar.12-16, 2001 Seattle)

2000 年

ホウ素炭化物超伝導体 ErNi<sub>2</sub><sup>11</sup>B<sub>2</sub>C における弱強磁性秩序

古川はづき, 土生田恵美, 竹屋浩幸, 吉沢英樹, 門脇和男

日本物理学会第55回年会 (Sep.22-55, 2000 新潟大)

弱強磁性超伝導体 ErNi<sub>2</sub><sup>11</sup>B<sub>2</sub>C における H<sub>C1</sub> の異常

土生田恵美, 古川はづき, 竹屋浩幸, 吉沢英樹, 門脇和男

日本物理学会第 55 回年会 (Sep.22-55, 2000 新潟大)

Possibility of spontaneous vortex phase in  $\text{ErNi}_2^{11}\text{B}_2\text{C}$

H. Kawano-Furukawa, H. Takeya, H. Yoshizawa, and K. Kadowaki

International Conference on Magnetism (ICM2000) (Aug.6-11, 2000 Recife)

Single crystal growth and physical properties of  $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$

H. Takeya, T. Ooba, K. Hirata, E. Habuta, and H. Kawano-Furukawa

International Conference on Magnetism (ICM2000) (Aug.6-11, 2000 Recife)

Orbital-ordering-induced anisotropic ferromagnetic spin fluctuations in perovskite manganites

R. Kajimoto, H. Yoshizawa, H. Kawano-Furukawa, H. Kuwahara, Y. Tomioka, and Y. Tokura

International Conference on Magnetism (ICM2000) (Aug.6-11, 2000 Recife)

$\text{RuSr}_2\text{YCu}_2\text{O}_8$  の中性子回折

高際寛之, 秋光 純, 古川はづき, 吉沢英樹

日本物理学会 200 年春の分科会 (Mar.22-25, 2000 関西大)

Possibility of spontaneous vortex phase in  $\text{ErNi}_2^{11}\text{B}_2\text{C}$

H. Kawano-Furukawa, H. Takeya, H. Yoshizawa, and K. Kadowaki

18th General Conference of the Condensed Matter Division of the European Physical Society (EPS-CMD18) (Mar.13-17, 2000 Montreux)