

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17691

研究課題名(和文)超低温領域までの新奇電子状態の研究

研究課題名(英文)Study of novel electric states down to ultra-low temperatures

研究代表者

山下 穰(Yamashita, Minoru)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：10464207

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は極低温(~50 mK)まで行われている強相関電子系研究を超低温(~1 mK)まで拡張することを目的とした。その第一歩として超低温領域で有効な測定手段を見出すために、重い電子系超伝導物質CeCoIn5の量子振動測定を行った。その結果、超低温領域で量子振動の振幅の減少と周波数の不連続変化を観測し、超伝導相と隣接する秩序相が存在することがわかった。CeCoIn5の超伝導状態は量子臨界点近傍にあるが、超伝導相と隣接する秩序相の存在の有無は長年の謎であった。全く予想外の本研究成果は、この物質における新しい相の発見にとどまらず、今後の超低温物性研究が非常に有望であることを示している。

研究成果の概要(英文)：The main focus of this study was to study the strongly-correlated electron systems down to unprecedented ultra-low temperatures (~1 mK); The lowest temperature of the current studies has been limited to ~50 mK. As a first step, we performed quantum oscillation measurements of the d-wave superconductor CeCoIn5 to verify the applicability of these measurements at ultra-low temperatures. Unexpectedly, we found anomalous changes in the quantum oscillation measurements at ultra-low temperatures, indicating an emergence of unknown ordered phase neighboring to the superconducting phase. Although CeCoIn5 has been inferred to be located in the vicinity of a quantum critical point (QCP), no ordered phase corresponding to the QCP has been observed. Our findings not only reveal this long-standing mystery of CeCoIn5, but also demonstrate the presence of rich physics in unexplored ultra-low temperature region.

研究分野：低温物理学

キーワード：超低温物性 強相関電子系 超伝導 量子臨界性

## 1. 研究開始当初の背景

科学は、より低温・高圧・高磁場など、今まで実現不可能であった研究環境を可能にすることで、その研究領域を広げてきた。特に、系の基底状態を明らかにするためには可能な限り低エネルギーまでの測定が必須で、多彩な電子状態が発現する強相関電子系に対する低温測定が市販の希釈冷凍機で実現可能な極低温 (~50 mK) まで盛んに行われている。

しかし、様々な最先端研究領域において、より低温までの研究が必要となっている。その最も顕著な例は量子臨界点(QCP)近傍における物性研究である。熱揺らぎとの競合による有限温度の相転移とは対照的に、絶対零度で2つの異なる相が競合する QCP 近傍では量子揺らぎの効果によって電子相関が発達し、金属の標準理論であるフェルミ液体論から逸脱した振る舞いが観測されたり、QCP 近傍に非従来型の超伝導状態が発現したりする。これらの QCP 近傍の物理現象の解明は現代物理における最大の課題の一つである。

QCP とその周りの電子状態の関係を明らかにするには、QCP からの距離を圧力や磁場などの外部変数によって精密に制御する事が重要である。この目的に最も適しているのが  $f$  電子を含む希土類化合物である。遍歴性と局在性を併せ持つ  $f$  電子の多自由度が共存・競合している為、系のエネルギースケールが小さくて QCP への制御が容易で、QCP 研究の中心的舞台となっている。しかし反面、その低エネルギースケールの為に低温で相転移するものが多く、市販の希釈冷凍機による極低温測定 (~50 mK) では不十分であった。

## 2. 研究の目的

そこで本研究では強相関電子研究を超低温度領域 (~1 mK) にまで拡大するという着想を得た。これまで超低温度領域における物性研究は液体ヘリウムなどの物性研究に限られており、強相関電子系にとっては全く未踏の領域である。その為、試料が目的の温度まで冷却されるか、試料を発熱させずに測定を行う事が可能か等の技術的問題の検証が必要である。そこで、第一の目標として超低温度領域で有効な測定手法を見出すために代表的重い電子系超伝導物質である CeCoIn<sub>5</sub> の量子振動測定を行った。

量子振動測定では振幅の温度依存性から試料自体の温度を評価することが可能であり、この性質を用いて試料を超低温まで冷却できることが確認できる。対象試料である CeCoIn<sub>5</sub> は最も詳細にその物性が研究されている物質の一つであり、そのバンド構造は希釈冷凍機温度までの量子振動測定から徹底的に研究されている。このため、超低温度までの測定の検証に必要なすべての情報が揃

った最適な物質であるといえる。特に、非常に大きな有効質量をもつバンドが存在しており、その温度変化から超低温度までの試料温度の評価が可能である。

## 3. 研究の方法

測定は金属カンチレバーを用いたキャパシタンス法による磁気トルク測定によって行った。この測定手法は測定による発熱を非常に小さくすることが可能であるため、超低温度測定に適している。物性研究所の核断熱消磁冷凍機にカンチレバーをセットし、試料全体を液体ヘリウム3に浸けることで試料を超低温度まで冷却した。物性研究所の核断熱消磁冷凍機は断熱消磁によって温度を制御するための超伝導磁石に加えて、実験空間用の超伝導磁石も備えており、超低温 (~1 mK) 高磁場 (~10 T) の複合極限環境が実現可能である。この装置を用いて試料の  $c$  軸に最大 10 T までの磁場を印加して磁気トルク測定を行った。

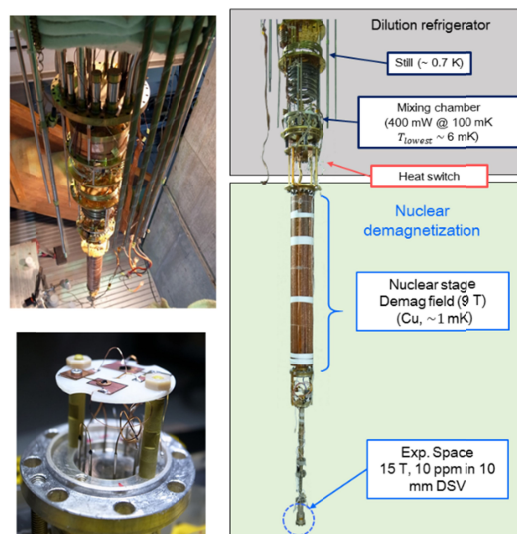


図1 (左上) 核断熱消磁冷凍機の外観。(左下) カンチレバーセルの外観 (右) 冷凍機内部の写真と各測定ステージにおける温度。

## 4. 研究成果

超低温度 (~2 mK) から 100 mK の広い温度範囲にわたって 10 T までの量子振動測定から CeCoIn<sub>5</sub> における複数の量子振動の観測に成功した。先行研究との比較から、主要なフェルミ面はすべて観測できたことがわかった。

量子振動の温度依存性を詳細に調べた結果、16 mK 以下の超低温度領域で量子振動の振幅が温度減少とともに小さくなることを発見した。通常の量子振動は低温で大きくなる温度依存性を示すため、これは全く予想外の発見であった。さらに、量子振動の周波数も同時に変化していることが判明した。これ

は CeCoIn<sub>5</sub> の電子状態が 16 mK を境に大きく変化していることを示している。この変化が起きる温度の磁場依存性を調べたところ、超伝導相と隣接しており、測定可能な磁場範囲 (6 - 10 T) では温度依存性が小さいことが判明した。

観測された量子振動の振幅と周波数の温度依存性に対して詳細な検討を行った結果、起こる可能性のある様々な相転移現象のうち反強磁性相への相転移によって量子振動が変化している可能性が最も高いことがわかった。

CeCoIn<sub>5</sub> の超伝導状態は非従来型の d 波の対称性を持つことが知られている。このため、高温超伝導体との類推からなんらかの磁気秩序相が近傍にあると考えられていた。さらに、上部臨界磁場周辺では電気抵抗や比熱などの様々な物理量の温度依存性が通常のフェルミ液体から大きく異なる非フェルミ液体的温度依存性を示すことが報告されていた。この非フェルミ液体的な振る舞いから上部臨界磁場周辺に磁気秩序相との境界にある量子臨界点が存在することが推定されてきた。くわえて、磁場を試料の ab 面内に印加した際には超伝導相内にスピン密度波による磁気秩序が形成されることが知られており、超伝導と隣接する磁気秩序相と密接な関係にあることが指摘されてきた。ところが、CeCoIn<sub>5</sub> においては磁気秩序相が観測報告はなく、磁気秩序相は実験的に実現できない負圧力側に隠れている可能性や、超伝導相に覆い隠されている可能性が考えられてきた。

本研究によって超伝導相と隣接する磁気秩序相が存在する可能性が示されたことにより、その磁気秩序相の持つ磁気相互作用が CeCoIn<sub>5</sub> の超伝導発現機構と密接に関係していることがわかった。さらに、その温度 - 磁場相図の研究から、銅酸化物高温超伝導体をはじめとする非従来型超伝導体と非常に類似した相図を持つ可能性が示された。これは反強磁性量子臨界点近傍に現れる非従来型超伝導体に共通の性質を表している可能性がある。

本研究成果は現在投稿中であり、今後、本研究によって示された磁気秩序相を NMR などの磁気測定によって確認することが重要な課題である。超低温度までの NMR 測定は挑戦的な課題であるが、NMR によって磁気秩序相の詳細が判明すれば超伝導相との関係についてより詳細な情報が得られる。また、量子振動測定を ab 面内に磁場を印加した条件でも行う事で、今回発見した秩序相の存在の有無と超伝導と共存するスピン密度波相との関係の詳細がわかることが期待できる。

##### 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 3 件)

1. Thermal Hall Effect in a Phonon-Glass Ba<sub>3</sub>CuSb<sub>2</sub>O<sub>9</sub>, K. Sugii, M. Shimozawa, D. Watanabe, Y. Suzuki, M. Halim, M. Kimata, Y. Matsumoto, S. Nakatsuji, and M. Yamashita, Phys. Rev. Lett. 118, 145902; DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.118.145902>
2. Emergence of nontrivial magnetic excitations in a spin-liquid state of kagomé volborthite, Daiki Watanabe, Kaori Sugii, Masaaki Shimozawa, Yoshitaka Suzuki, Takeshi Yajima, Hajime Ishikawa, Zenji Hiroi, Takasada Shibauchi, Yuji Matsuda, and Minoru Yamashita, Proc. Natl. Acad. Sci. USA 113, 8653-8657 (2016); DOI: 10.1073/pnas.1524076113.
3. Dome-Shaped Magnetic Order Competing with High-Temperature Superconductivity at High Pressures in FeSe, J. P. Sun, K. Matsuura, G. Z. Ye, Y. Mizukami, M. Shimozawa, K. Matsubayashi, M. Yamashita, T. Watashige, S. Kasahara, Y. Matsuda, J.-Q. Yan, B. C. Sales, Y. Uwatoko, J.-G. Cheng, and T. Shibauchi, Nature Communications 7, 12146 (2016).

[学会発表](計 16 件)

1. 田代光輝, 山田章悟, 下澤雅明, 杉井かおり, 山下穰, 谷口貴紀, 武田晃, 瀧川仁, 穴戸寛明, 「CeCoIn<sub>5</sub> における超低温下 NMR 測定 II」, 日本物理学会 第 72 回 年次大会 (2017 年) 2017 年 03 月 17 日 ~ 2017 年 03 月 20 日, 大阪大学 豊中キャンパス (大阪府吹田市)
2. 山下穰, 「Thermal-Hall effects of spins and phonons」 The 37th REIMEI Workshop on Frontiers of Correlated Quantum Matters and Spintronics (招待講演)(国際学会) 2017 年 01 月 14 日 ~ 2017 年 01 月 16 日 東海村産業・情報プラザ (茨城県那珂郡東海村)
3. 田代光輝, 山田章悟, 下澤雅明, 杉井かおり, 山下穰, 谷口貴紀, 武田晃, 瀧川仁, 穴戸寛明, 「CeCoIn<sub>5</sub> における超低温下 NMR 測定」, 日本物理学会 2016 年秋季大会 2016 年 09 月 13 日 ~ 2016 年 09 月 16 日 金沢大学 角間キャンパス (石川県・金沢市)

4. 山田章悟, 下澤雅明, 杉井かおり, 山下  
穰、宍戸寛明、「超低温下における  
CeCoIn<sub>5</sub>の de Haas-van Alphen 効果」  
日本物理学会 第71回年次大会(20  
16年)2016年03月19日~2016年03  
月22日 東北学院大学泉キャンパス(宮  
城県、仙台市)

他12件

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

山下 穰 (YAMASHITA, Minoru)  
東京大学・物性研究所・准教授  
研究者番号: 10464207