

平成 21 年 5 月 20 日現在

研究種目：基盤研究(B)  
 研究期間：2006～2008  
 課題番号：18340100  
 研究課題名（和文） 重い電子系超伝導体の人工超格子の作製による物性研究  
 研究課題名（英文） Physical properties of heavy Fermion superconductors investigated by fabrication of artificial superlattices  
 研究代表者  
 芝内 孝禎 (SHIBAUCHI TAKASADA)  
 京都大学・大学院理学研究科・准教授  
 研究者番号：00251356

## 研究成果の概要：

本研究では、希土類元素Ceを含む重い電子系化合物の薄膜化技術を確立し、CeCoIn<sub>5</sub>超伝導体のc軸配向薄膜、CeIn<sub>3</sub>反強磁性体のエピタキシャル薄膜、およびCeIn<sub>3</sub>とLaIn<sub>3</sub>のエピタキシャル人工超格子の作製に成功した。Ce系重い電子系のエピタキシャル薄膜作製は世界初の成果である。さらに人工超格子の作製により、重い電子系の次元性を制御することが可能になり、低次元化による反強磁性の抑制とそれに伴う非フェルミ液体的物性の発現の観測に成功した。今後2次元の重い電子系における新しい物理学の展望が期待できる。

## 交付額

(金額単位：円)

|        | 直接経費       | 間接経費      | 合計         |
|--------|------------|-----------|------------|
| 2006年度 | 7,400,000  | 2,220,000 | 9,620,000  |
| 2007年度 | 5,500,000  | 1,650,000 | 7,150,000  |
| 2008年度 | 2,000,000  | 600,000   | 2,600,000  |
| 年度     |            |           |            |
| 年度     |            |           |            |
| 総計     | 14,900,000 | 4,470,000 | 19,370,000 |

研究分野： 固体電子物性

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード： f電子系、次元性制御、電子相関、量子臨界点、反強磁性、非フェルミ液体、異方的超伝導

## 1. 研究開始当初の背景

(1) Ceなどの希土類元素やUなどのアクチナイド元素を含む4f, 5f系の重い電子系化合物では、強い電子間の相互作用により自由電子の数百倍にも達する有効質量を持った重い電子系を形成し、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や、異方的な対称性をもつ非従来型超伝導状態など

が実現している。このような強相関電子系の振る舞いを理解することは固体物理学の最重要課題の一つである。

現在までの重い電子系の研究における手段としては、バルク結晶試料を用いた物性測定に限られており、薄膜化が可能となれば、バルク結晶では不可能である測定が可能となり、新しい情報が得られることが期待される。その一例としては、異方的超伝導体にお

ける位相の情報を取り出せる $\pi$ 接合を用いたジョセフソン接合の実験などが挙げられ、銅酸化物高温超伝導体では、実際に薄膜化により可能となっている。

(2) 今までに発見されている重い電子系化合物はすべて基本的には3次元的な電子構造を示す。これに対して、薄膜化技術を用いて人工超格子の作製が可能となれば、その低次元化が可能となる。

## 2. 研究の目的

(1) 本研究の第一の目的は、Ceを含む重い電子系化合物の薄膜化技術を確立することである。これにより、重い電子系研究の新たな方向性を示すことが可能となる。

(2) 第二に、重い電子系Ce化合物のエピタキシャル薄膜を実現する。研究開始時点で、エピタキシャル化に成功した例は皆無である。

(3) 第三に、f電子を含むCe化合物とf電子を含まない系を交互に積層して、エピタキシャル人工超格子を作製する。Ce化合物層の厚みを制御することにより、重い電子系の次元性制御が可能となる。

(4) さらに、その低温物性測定から、今までに前例のない2次元重い電子系における物性を明らかにする。

## 3. 研究の方法

本研究では、酸化などの反応性が極めて高いCe元素の化合物の薄膜作製が鍵となるが、超高真空下で安定度の高い蒸着を可能にする必要がある。このため、本研究では、超高真空中での蒸着に適した分子線エピタキシー法を用いる。特に、Ce元素の供給には、高温用の特殊Kセルと、肉厚のTa製のルツボを用いることで安定に行えることが明らかとなり、この方法を採用している。薄膜の評価には、X線回折、EDX化学分析、AFM、RHEED、TEMなどにより行なう。また、低温物性測定として、電気抵抗、磁気抵抗、ホール係数測定を希釈冷凍機温度まで行なう。

## 4. 研究成果

(1) まず、薄膜成長装置である分子線エピタキシー(MBE)システムの立ち上げをおこない、高温用Kセルの導入、各種コントロールのコンピューターによる一括化を完成させた。これにより、Ce、Co、La、Inの各元素の蒸着を高い安定度で行えるようになった。

(2) MBEシステムを用いて、CeCoIn<sub>5</sub>超伝導体のc軸配向薄膜の作製に成功した。抵抗率の

温度依存性はバルク単結晶のものとはほぼ一致しており、約2 Kにおいて超伝導転移を示した。また、上部臨界磁場の異方性もバルク単結晶試料と遜色ない値が得られ、高い配向度であることが明らかとなった。

(3) 次に、反強磁性体CeIn<sub>3</sub>のエピタキシャル薄膜の作製に成功した。基盤として、格子定数のマッチングのよいMgF<sub>2</sub>を用いることで、基盤に対して垂直方向、平行方向ともに格子の揃った薄膜を再現性よく作製する技術を確立した。これは、Ce系重い電子系では世界で初めての成果である。さらに、CeIn<sub>3</sub>と同様の結晶構造を持つLaIn<sub>3</sub>についてもエピタキシャル薄膜の作製に成功した。得られたCeIn<sub>3</sub>薄膜の電気輸送特性はバルク単結晶の結果をほぼ再現し、10 Kにおいて反強磁性転移を確認した。

(4) f電子を含む重い電子系反強磁性体CeIn<sub>3</sub>とf電子を含まない通常金属のLaIn<sub>3</sub>を交互に積層させた人工超格子の作製に成功した。RHEEDではシャープなストリークパターンと、1層1層の蒸着に対応した振動が観測され、原子層レベルで平坦な成膜が可能となった。またX線およびTEM構造解析から、エピタキシャル成長も確認された。

(5) CeIn<sub>3</sub>の層を制御した一連の超格子を作製し、その低温物性測定を行なった。これにより、反強磁性転移温度が、CeIn<sub>3</sub>の層数の減少とともに下降していき、2単位格子程度の厚みで消失することが明らかとなった。この消失に伴い、電気抵抗の温度依存性がフェルミ液体で期待される温度依存性からずれ、非フェルミ液体的な物性が発現することが明らかとなった。このことは、重い電子系の低次元化により、反強磁性の量子臨界点を実現することが可能であることを示す世界で初めての成果であると考えられる。今後より高度な制御により、さらなる新奇物性の出現が期待できる。

(6) その他、関連研究として、重い電子系や強相関電子系の超伝導状態などの研究を展開した。

## 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 20 件)

- ① K. Hashimoto, T. Shibauchi, S. Kasahara, K. Ikada, S. Tonegawa, T. Kato, R. Okazaki, C. J. van der Beek, M. Konczykowski, H. Takeya, K. Hirata, T. Terashima, and Y. Matsuda, "Microwave Surface-Impedance Measurements of the Magnetic

- Penetration Depth in Single Crystal  $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$  Superconductors: Evidence for a Disorder-Dependent Superfluid Density", *Phys. Rev. Lett.* **102** (2009). 査読有
- ② H. Shishido, K. Hashimoto, T. Shibauchi, T. Sasaki, H. Oizumi, N. Kobayashi, T. Takamasu, K. Takenaka, Y. Imanaka, T. D. Matsuda, Y. Haga, Y. Onuki, and Y. Matsuda, "Possible Phase Transition Deep Inside the Hidden Order Phase of Ultraclean  $URu_2Si_2$ ", *Phys. Rev. Lett.* **102**, 156403 (2009). 査読有
- ③ R. Okazaki, M. Konczykowski, C. J. van der Beek, T. Kato, K. Hashimoto, M. Shimozawa, H. Shishido, M. Yamashita, M. Ishikado, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, S. Shamoto, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, "Lower Critical Fields of Superconducting  $PrFeAsO_{1-y}$  Single Crystals", *Phys. Rev. B* **79**, 064520 (2009). 査読有
- ④ K. Hashimoto, T. Shibauchi, T. Kato, K. Ikada, R. Okazaki, H. Shishido, M. Ishikado, H. Kito, A. Iyo, H. Eisaki, S. Shamoto, and Y. Matsuda, "Microwave Penetration Depth and Quasiparticle Conductivity of  $PrFeAsO_{1-y}$  Single Crystals: Evidence for a Full-Gap Superconductor", *Phys. Rev. Lett.* **102**, 017002 (2009). 査読有
- ⑤ M. Yamashita, N. Nakata, Y. Kasahara, T. Sasaki, N. Yoneyama, N. Kobayashi, S. Fujimoto, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, "Thermal-Transport Measurements in a Quantum Spin-Liquid State of the Frustrated Triangular Magnet  $k-(BEDT-TTF)_2Cu_2(CN)_3$ ", *Nature Phys.* **5**, 44-47 (2009). 査読有
- ⑥ T. Kato, T. Shibauchi, Y. Matsuda, J. R. Thompson, and L. Krusin-Elbaum, "Entanglement of Solid Vortex Matter: A Boomerang Shaped Reduction Forced by Disorder in Interlayer Phase Coherence in  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+y}$ ", *Phys. Rev. Lett.* **101**, 027003 (2008). 査読有
- ⑦ Y. Nakajima, H. Shishido, H. Nakai, T. Shibauchi, M. Hedo, Y. Uwatoko, T. Matsumoto, R. Settai, Y. Onuki, H. Kontani, and Y. Matsuda, "Magneto-Transport Properties Governed by Antiferromagnetic Fluctuations in the Heavy Fermion Superconductor  $CeIrIn_5$ ", *Phys. Rev. B* **77**, 214504 (2008). 査読有
- ⑧ Y. Kasahara, T. Iwasawa, Y. Shimizu, H. Shishido, T. Shibauchi, I. Vekhter, and Y. Matsuda, "Thermal Conductivity Evidence for a  $d_{x^2-y^2}$  Pairing Symmetry in the Heavy-Fermion Superconductor  $CeIrIn_5$ ", *Phys. Rev. Lett.* **100**, 207003 (2008). 査読有
- ⑨ T. Shibauchi, L. Krusin-Elbaum, M. Hasegawa, Y. Kasahara, R. Okazaki, and Y. Matsuda, "Field-Induced Quantum Critical Route to a Fermi Liquid in High-Temperature Superconductors", *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **105**, 7120-7123 (2008). 査読有
- ⑩ P. Spathis, S. Colson, C. J. van der Beek, P. Gierlowski, T. Shibauchi, Y. Matsuda, M. Gaifullin, M. Li, and P. H. Kes, "c-Axis Coupling in Underdoped  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+d}$  with Varying Degrees of Disorder", *Phys. Rev. B* **77**, 104503 (2008). 査読有
- ⑪ S. Ohira-Kawamura, H. Shishido, H. Kawano-Furukawa, B. Lake, A. Wiedenmann, K. Kiefer, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, "Anomalous Flux Line Lattice in  $CeCoIn_5$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 023702 (2008). 査読有
- ⑫ R. Okazaki, Y. Kasahara, H. Shishido, M. Konczykowski, K. Behnia, Y. Haga, T. D. Matsuda, Y. Onuki, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, "Flux Line Lattice Melting and the Formation of a Coherent Quasiparticle Bloch State in the Ultraclean  $URu_2Si_2$  Superconductor", *Phys. Rev. Lett.* **100**, 037004 (2008). 査読有
- ⑬ R. Okazaki, H. Shishido, T. Shibauchi, M. Konczykowski, A. Buzdin, and Y. Matsuda, "High Field Superconducting Transition of  $CeCoIn_5$  Studied by Local Magnetic Induction Measurements", *Phys. Rev. B* **76**, 224529 (2007). 査読有
- ⑭ T. Shibauchi, M. Konczykowski, C. J. van der Beek, R. Okazaki, Y. Matsuda, J. Yamaura, Y. Nagao, and Z. Hiroi, "Vortex Redistribution below the First-Order Transition Temperature in the b-Pyrochlore Superconductor  $KOs_2O_6$ ", *Phys. Rev. Lett.* **99**, 257001 (2007). 査読有
- ⑮ A. Buzdin, Y. Matsuda, and T. Shibauchi, "FFLO State in Thin Superconducting Films", *Europhys. Lett.* **80**, 67004 (2007). 査読有
- ⑯ S. Ohira-Kawamura, H. Shishido, A.

- Yoshida, R. Okazaki, H. Kawano-Furukawa, T. Shibauchi, H. Harima, and Y. Matsuda, "Competition between Unconventional Superconductivity and Incommensurate Antiferromagnetic Order in  $CeRh_{1-x}Co_xIn_5$ ", *Phys. Rev. B* **76**, 132507 (2007). 査読有
- ①⑦ M. Izaki, H. Shishido, T. Kato, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and T. Terashima, "Superconducting Thin Films of Heavy Fermion Compound  $CeCoIn_5$  Prepared by Molecular Beam Epitaxy", *Appl. Phys. Lett.* **91**, 122507 (2007). 査読有
- ①⑧ Y. Kasahara, T. Iwasawa, H. Shishido, T. Shibauchi, K. Behnia, Y. Haga, T. D. Matsuda, Y. Onuki, M. Sigrist, and Y. Matsuda, "Exotic Superconducting Properties in the Electron-Hole Compensated Heavy Ferimon 'Semimetal'  $URu_2Si_2$ ", *Phys. Rev. Lett.* **99**, 116402 (2007). 査読有
- ①⑨ Y. Shimono, T. Shibauchi, Y. Kasahara, T. Kato, K. Hashimoto, Y. Matsuda, J. Yamaura, Y. Nagao, and Z. Hiroi, "Effects of Rattling Phonons on the Dynamics of Quasiparticle Excitation in the b-Pyrochlore  $KOs_2O_6$  Superconductor", *Phys. Rev. Lett.* **98**, 257004 (2007). 査読有
- ②⑩ Y. Nakajima, H. Shishido, H. Nakai, T. Shibauchi, K. Behnia, K. Izawa, M. Hedo, Y. Uwatoko, T. Matsumoto, R. Settai, Y. Onuki, H. Kontani, and Y. Matsuda, "Non-Fermi Liquid Behavior in the Magnetotransport of  $CeMIn_5$  (M: Co and Rh): Striking Similarity between Quasi Two-Dimensional Heavy Fermion and High- $T_c$  Cuprates", *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 024703 (2007). 査読有
- [学会発表] (計 20 件)
- ① 安一樹, 宍戸寛明, 加藤智成, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁, 「重い電子系人工超格子をもちいた次元性制御による量子臨界点の実現」, 日本物理学会第 64 回年次大会, 2009 年 3 月 27 日, 立教大
- ② 芝内孝禎, 「HeavyFermions in Flatland」, 新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」第 1 回研究会, 2009 年 3 月 11 日, 東京大学柏図書館メディアホール
- ③ T. Shibauchi, 「HeavyFermions in Flatland」(招待講演), Workshop on Functional Materials by Design, 2009 年 1 月 20 日, Los Alamos National Laboratory (NM, USA)
- ④ 安一樹, 加藤智成, 宍戸寛明, 二井瑛典, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁, 「人工超格子による重い電子系の次元性制御 I」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 2008 年 9 月 22 日, 岩手大
- ⑤ 加藤智成, 安一樹, 宍戸寛明, 二井瑛典, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁, 「人工超格子による重い電子系の次元性制御 II」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 2008 年 9 月 22 日, 岩手大
- ⑥ Y. Kasahara, T. Iwasawa, Y. Shimizu, H. Shishido, T. Shibauchi, I. Vekhter, and Y. Matsuda, "Pinning Down the Pairing Symmetry of Heavy-Fermion Compound  $CeIrIn_5$ ", 25th International Conference on Low Temperature Physics (LT25), 2008 年 8 月 10 日, アムステルダム (オランダ)
- ⑦ 笠原裕一, 岩澤卓矢, 清水悠晴, 宍戸寛明, 芝内孝禎, 松田祐司, 撰待力生, 大貫惇睦, 「 $CeIrIn_5$ の超伝導対称性」, 日本物理学会第 63 回年次大会, 2008 年 3 月 24 日, 近畿大
- ⑧ 宍戸寛明, 加藤智成, 井崎学, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁, 「 $CeIn_3$ 人工超格子における次元性制御による反強磁性の抑制と重い電子状態」, 日本物理学会第 63 回年次大会, 2008 年 3 月 23 日, 近畿大
- ⑨ 宍戸寛明, 加藤智成, 井崎学, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁, 「2 次元 heavy fermion : 分子線エピタキシー法による f 電子系人工超格子の作製と評価 I」, 日本物理学会第 62 回年次大会, 2007 年 9 月 22 日, 北海道大
- ⑩ 加藤智成, 宍戸寛明, 井崎学, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁, 「2 次元 heavy fermion : 分子線エピタキシー法による f 電子系人工超格子の作製と評価 II」, 日本物理学会第 62 回年次大会, 2007 年 9 月 22 日, 北海道大
- ⑪ 河村聖子, 宍戸寛明, 古川はづき, 芝内孝禎, 松田祐司, B. Lake, A. Wiedenmann, 「中性子小角散乱法を用いた  $CeCoIn_5$  における磁束格子構造の研究」, 日本物理学会第 62 回年次大会, 2007 年 9 月 22 日, 北海道大
- ⑫ 清水悠晴, 岩澤卓矢, 笠原裕一, 宍戸寛明, 芝内孝禎, 松田祐司, 撰待力生, 大貫惇睦, 「 $CeIrIn_5$ の磁場中熱伝導率の異方性と超伝導ギャップ構造」, 日本物理学会第 62 回年次大会, 2007 年 9 月 22 日, 北海道大
- ⑬ Y. Nakajima, T. Shibauchi, H. Shishido,

H. Nakai, K. Behnia, K. Izawa, M. Hedo, Y. Uwatoko, T. Matsumoto, R. Settai, Y. Onuki, H. Kontani, and Y. Matsuda, "Non-Fermi Liquid Behavior in the Magnetotransport of Quasi Two-Dimensional Heavy Fermion Compounds  $CeMIn_5$ ", The 8th International Conference on Spectroscopies in Novel Superconductors (SNS2007), 2007年8月22日, 仙台

- ⑭ 岡崎竜二, 宍戸寛明, 芝内孝禎, 松田祐司, Marcin Konczykowski, 撰待力生, 大貫惇睦, 「 $CeCoIn_5$ の平行磁場下における局所磁化測定」, 日本物理学会 2007年春季大会, 2007年3月20日, 首都大
- ⑮ 岩澤卓矢, 笠原裕一, 宍戸寛明, 井澤公一, 芝内孝禎, 松田祐司, 撰待力生, 大貫惇睦, 「熱伝導率から見た $CeIrIn_5$ の超伝導ギャップ構造」, 日本物理学会 2007年春季大会, 2007年3月20日, 首都大
- ⑯ 河村聖子, 吉田暁海理, 古川はづき, 宍戸寛明, 松田祐司, 芝内孝禎, 撰待力生, 大貫惇睦, 「中性子散乱で見た $Ce(Rh,Co)In_5$ の磁性と超伝導への寄与」, 日本物理学会 2007年春季大会, 2007年3月20日, 首都大
- ⑰ 宍戸寛明, 岡崎竜二, 福浦大志, 芝内孝禎, 松田祐司, 撰待力生, 大貫惇睦, 「 $CeRh_{1-x}Co_xIn_5$ のHall効果測定」, 日本物理学会 2007年春季大会, 2007年3月20日, 首都大
- ⑱ 仲島康行, 宍戸寛明, 中井秀和, 芝内孝禎, 松田祐司, 井澤公一, 辺土正人, 上床美也, 松本武彦, 撰待力生, 大貫惇睦, 紺谷浩, 「重い電子系化合物 $CeMIn_5$ ( $M=Co, Rh$ )の高圧下磁気抵抗」, 日本物理学会 2006年秋季大会, 2006年9月24日, 千葉大
- ⑲ 宍戸寛明, 岡崎竜二, 芝内孝禎, 松田祐司, Marcin Konczykowski, 撰待力生, 大貫惇睦, 「 $CeCoIn_5$ の超伝導状態における微小ホール素子による局所磁化測定」, 日本物理学会 2006年秋季大会, 2006年9月24日, 千葉大
- ⑳ 井崎学, 芝内孝禎, 松田祐司, 寺嶋孝仁, 「 $CeCoIn_5$ 超伝導薄膜の作製」, 日本物理学会 2006年秋季大会, 2006年9月24日, 千葉大

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

芝内 孝禎 (SHIBAUCHI TAKASADA)  
京都大学・大学院理学研究科・准教授  
研究者番号：00251356

(2) 研究分担者

寺嶋 孝仁 (TERASHIMA TAKAHITO)  
京都大学・低温物質科学研究センター・教授  
研究者番号：40252506

(3) 連携研究者