

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2007~2011

課題番号：20340082

研究課題名(和文) CeCoIn<sub>5</sub>におけるFFLO状態と特異な渦糸コアに関する研究研究課題名(英文) Study of the FFLO state with Anomalous Vortices in CeCoIn<sub>5</sub>

研究代表者

熊谷 健一 (KUMAGAI KEN-ICHI)

北海道大学・名誉教授

研究者番号：70029560

研究成果の概要(和文)：

重い電子系超伝導体 CeCoIn<sub>5</sub> ( $T_c=2.3\text{K}$ )は、高磁場下で超伝導転移が1次相転移であり、さらには強磁場・極低温領域で新たな超伝導相が出現する。この新奇超伝導相は Pauli limit を超える強磁場中において現れる FFLO 状態であることが期待されている。また、多くの実験結果は CeCoIn<sub>5</sub> が量子臨界点近傍に位置することを示しており、特異な磁氣的性質が現れることが期待される。我々は CeCoIn<sub>5</sub> の低温・強磁場領域での新たな超伝導相において *ab* 面内および *c* 軸に印可磁場の角度を変化させて、In サイトでの NMR スペクトルの磁場および温度依存性を詳細に測定した。

これまでに、① Pauli limit を超える強磁場で下での超伝導状態での局所スピン帯磁率温度依存・磁場依存性を明らかにした。特に、一次相転移での局所スピン帯磁率の不連続変化をナイトシフトの変化として観測したのは最初の例である。② 新奇超伝導状態でのスピン帯磁率の磁場依存性の解析より、ノード構造を伴う FFLO 相であると結論した。③  $H//a$ -axis の磁場印加で In(2)サイトにおいて内部磁場を受けた特徴ある NMR スペクトルが観測され、非整合磁気秩序 FFLO 相のみで出現することと、その磁気秩序は超伝導領域と nodal 面によらず系全体に一樣に出現することを明らかにした。④ さらには、*ab* 面内から印可磁場の角度を変化させると、磁気構造が変化するとともに、 $\theta = 20^\circ$  付近で磁気秩序と FFLO 相が消失することを明らかにした。

新奇超伝導相内でのみで出現する特異な磁気状態と FFLO 相の共存の詳細を明らかにし、FFLO 相と磁気相互作用の相関の重要性を示した。

研究成果の概要(英文)：

The quasi-two dimensional heavy fermion superconductor CeCoIn<sub>5</sub> continues to excite great interest, because it shows a number of fascinating superconducting properties. CeCoIn<sub>5</sub> is an extremely clean high- $\kappa$  superconductor with *d*-wave symmetry. The superconductivity of CeCoIn<sub>5</sub> at high fields is destroyed by Pauli paramagnetic effect, as evidenced by the first-order phase transition at the upper critical field  $H_{c2}$ . Closely related to the Pauli limited superconductivity, this high-field and low-temperature phase (HL-phase) has been attributed to the Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) state. The presence of the FFLO state in CeCoIn<sub>5</sub> has been supported by several experiments. However, recent NMR and neutron data in parallel field demonstrated a long-range static magnetic order in the HL-phase. Remarkably this incommensurate spin-density wave order vanishes when the superconductivity dies at  $H_{c2}$ , indicating that the magnetism and the exotic superconductivity are closely intertwined.

In this study, to improve our understanding of how the exotic superconductivity and magnetism can interact in CeCoIn<sub>5</sub>, we measured NMR spectra on the three distinct In

sites.  $^{115}\text{In}$  NMR measurements demonstrate the emergence of a spatially distributed normal quasiparticle region in the HL-phase in parallel field. The field evolution of the paramagnetic magnetization and low energy quasiparticle DOS can be described well by the order parameter associated with the nodal plane formation via the FFLO second order phase transition. The NMR spectra also reveal that the spatially uniform SDW coexists with the FFLO nodal planes. The exotic HL-phase is suppressed with increasing the angle of the direction of magnetic field with respect to the a-axis, and disappears beyond  $\theta \sim 20^\circ$ .

Our results provide strong evidence for the formation of the FFLO state via the second order phase transition, which coexists with the static magnetic order.

#### 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	5,600,000	1,680,000	7,280,000
2009年度	3,600,000	1,080,000	4,680,000
2010年度	2,900,000	870,000	3,770,000
年度			
年度			
総計	12,100,000	3,630,000	15,730,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード： 強相関係

#### 1. 研究開始当初の背景

重い電子系超伝導体  $\text{CeCoIn}_5$  は、Ce 化合物では最も高い超伝導転移温度 ( $T_c = 2.3\text{K}$ ) をもち、初めて  $H_{C2}$  で一次相転移が観測された注目すべき物質である。しかも高磁場・極低温領域で新奇な超伝導相が出現し、Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) 状態の可能性が活発に議論されている。我々は  $\text{CeCoIn}_5$  の核磁気共鳴 (NMR) スペクトルの特徴的な変化の知見を得ることにより、1964 年に提唱された超伝導秩序関数が空間変調し 2 次元ノード構造を持つ全く新しいタイプの超伝導秩序状態を微視的な観点から立証できることに着目した。これまでノード面の出現による normal 状態に対応する NMR 信号を検出して、平行な磁場での FFLO 状態を微視的に示し、さらに面に垂直な磁場下での FFLO 相の存在を示し、超伝導電子相図を明らかにしてきた。これらの成果に対し以下の興味ある問題点が指摘され、その実験的解明が要請されている。

- (1)  $\text{CeCoIn}_5$  は磁場誘起量子臨界点近傍に位置するため、磁気秩序の有無と磁気揺らぎと FFLO 相との相関が重要であり、これまでの実験的相違点を明らかにしつつ

磁気的性質を明らかにすること。

- (2) 強い Pauli 常磁性効果による超伝導相での局所帯磁率の微視的理解が重要であること。すなわち、強磁場下で現れる  $H_{C2}$  での一次相転移領域での変化を含め、超伝導状態および渦糸コア内での局所ナイトシフトの磁場依存性を実験的、理論的に明らかにすること。
- (3) FFLO 相における 2 次元ノード面と磁束渦糸に閉じ込められた準粒子状態は大きく異なりその特異性が指摘されている。空間分解 NMR 測定により超伝導相とノード領域での電子状態を分離して得ることにより、特異な準粒子状態を解明すること。

#### 2. 研究の目的

- (1) 超伝導秩序波動関数の空間変調を伴う FFLO 状態における反強磁性秩序の有無について相反する実験結果が報告されているので、これを実験的に明らかにする。
- (2) さらに、FFLO 超伝導状態における 2 次元ノード面内と「渦糸コア」の特異な準粒子の構造とそれに依拠して現れる新奇な磁気揺らぎを解明する。すなわち、空間分解核磁気共鳴法 (spatially-resolved NMR) により、強磁場下で現れる  $H_{C2}$  での一次相転移

領域で超伝導状態および渦糸コア内の局所ナイトシフトの磁場依存性を実験的に明らかにするとともに、FFLO相における2次元ノード面と磁束渦糸(1次元)に閉じ込められた超伝導領域とノード領域での準粒子状態を分離して得る。

### 3. 研究の方法

- (1) CeCoIn<sub>5</sub>のFFLO状態あるいは渦糸コア内で反強磁性秩序が現れた場合、各原子核サイトは超微細相互作用を通して大きな内部磁場をうける。この局所的内部磁場によるNMRスペクトルの特徴的变化の観測により磁気秩序の同定が可能になるので、50mKにいたる極低温領域で、広い周波数領域での精密なNMRスペクトルを測定し、各サイトの局所磁場分布を実験的に明らかにし、磁気秩序状態における磁気構造を微視的な観点から明らかにする。
- (2) 第2種超伝導体の磁束状態では、超伝導反磁性による磁場分布によるNMR線幅のいわゆるRedfield Patternと、渦糸コア内外の大きなナイトシフトの空間分布による効果がNMRスペクトルを決める。後者の変化はこれまで全く議論されてこなかった。Pauli常磁性効果の大きな重い電子系CeCoIn<sub>5</sub>の空間分解NMR測定を行い、超伝導領域、渦糸コア内、FFLO相のノード面内の信号を分離測定し、局所磁化率の温度・磁場依存性を求める。この知見を得て、最近のPauli常磁性効果を取り入れた局所スピン密度の理論計算と比較検討することにより、磁束コアでのいわゆるnormal状態とは異なるスピン密度を定量的に求める。
- (3) CeCoIn<sub>5</sub>は2次元性の強い物質であり、面内方向にフェルミ面のネスティングはFFLOに有利に働く。*a*軸と*c*軸とでは*H<sub>c2</sub>(0)*は2倍の違いがあるが、Pauli常磁性は*c*軸方向が大きい。このため、FFLO状態の形成に対するPauli常磁性効果とフェルミ面のもたらす影響を調べるためには、試料軸と磁場のなす角度依存性の知見は重要である。精密な角度依存性の測定環境を整備し、詳細な角度依存性を測定する。
- (4) 得られた成果を内外の国際会議・研究会で発表するとともに、理論的考察に関する研究討議を通してFFLO状態と磁気秩序との理解を深める。

### 4. 研究成果

我々はCeCoIn<sub>5</sub>の低温・強磁場領域での新たな超伝導相において*ab*面内および*c*軸に磁場を加えて、主にIn(2)サイトでの

NMRスペクトルの磁場および温度依存性を詳細に測定した。これまで明らかにしたことは、

- (1) Pauli limitを超える強磁場で下での超伝導状態での局所スピン帯磁率温度依存・磁場依存性を詳しく求め、①一次相転移での局所スピン帯磁率の不連続変化をナイトシフトの変化として観測した。②超伝導状態でのスピン帯磁率が制されるが、その磁場依存性は特異であることを示した。
- (2) *H//a*-軸に比べて*H//c*-軸の場合には、FFLO相はH-T図で極めて狭い領域にのみ現れ、BCS相との境界線の磁場依存性はほとんど無いこと。
- (3) *H//a*-軸の磁場印加でIn(2)サイトにおいて内部磁場を受けた特徴あるNMRスペクトルが観測され、非整合磁気秩序の出現がNMR実験により明らかになった、磁気秩序は超伝導領域と超伝導ギャップが消失するnodal面で一様に現れることが明になり、提唱されている理論的モデルの評価に関連する重要な知見となった。

磁気秩序が新奇超伝導相内でのみで出現する特異な磁気状態であることは今後解明すべき重要な観点である。

### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

1. K. Kumagai, H. Shishido, T. Shibauchim Y. Matsuda, "Evolution of Paramagnetic Quasiparticle Excitations Emerged in the High-Field Superconducting Phase of CeCoIn<sub>5</sub>", Phys. Rev. Lett. 106 137004 (4) (2011).
2. K. Kumagai, N. Kondoh, H. Shishido, Y. Matsuda, "NMR Study of Magnetically-Ordered State in a Novel Superconducting Phase in CeCoIn<sub>5</sub>", Physica C:470, S533-S535 (2010).
3. K. Kumagai, T. Oyaizu, Y. Furukawa, H. Shishido and Y. Matsuda, "NMR study of a FFLO state of CeCoIn<sub>5</sub> in a Perpendicular and a Parallel Field", Physica B 403, 1144-1146 (2008).

[学会発表] (計13件)

1. K. Kumagai, H. Shishido, T. Shibauchi and Y. Matsuda, NMR Study of Magnetic Order and Spatially-Modulated Superconducting Gap in CeCoIn<sub>5</sub>", International Conference of Magnetism and Superconductivity (ICSM2012), Istanbul,

- Turkey, April 27- May 4, (2012). 招待講演
2. K. Kumagai, “NMR Study of Magnetic Order and the FFLO State in CeCoIn<sub>5</sub>”, 新学術領域研究「重い電子系の形成と秩序化」ワークショップ, 2011年11月11日～12日, 新潟大学 招待講演
  3. K. Kumagai, H. Shishido, T. Shibauchi and Y. Matsuda, “NMR Study of Magnetic Order and Spatially-Modulated Superconducting Gap in CeCoIn<sub>5</sub>”, A special session on the application of  $\mu$ SR, NMR and LTXRD etc in condensed matter, Fall Meeting of Chinese Physical Society (CPS), Hangzhou, China, September 16 – 18, (2011), (招待講演)
  4. K. Kumagai, H. Shishido, T. Shibauchi and Y. Matsuda, “Field Evolution of the FFLO State and Magnetism in CeCoIn<sub>5</sub>”, International Conference on Ultra Low Temperature Physics (ULT 2011), August, 19-22, (2011), KAIST, Daejeon, Republic of Korea, (招待講演)
  5. K. Kumagai, H. Shishido, T. Shibauchi and Y. Matsuda, “<sup>27</sup>Al- and <sup>95</sup>Mo-NMR Study on Noncentrosymmetric Superconductor Mo<sub>3</sub>A<sub>2</sub>C”, 26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26), August 10-17, (2011), Beijing, China (ポスター)
  6. K. Kumagai, H. Shishido, T. Shibauchi and Y. Matsuda, “NMR Study of the FFLO State and Magnetism in CeCoIn<sub>5</sub>”, 26th International Conference on Low Temperature Physics, (LT26), August 10-17, (2011), Beijing, China (ポスター)
  7. K. Kumagai, H. Shishido, T. Shibauchi and Y. Matsuda, “NMR Study of Magnetic Order and Spatially-Modulated Superconducting Gap in CeCoIn<sub>5</sub>”, International Conference of Strongly Correlated Electron Systems (SCES) August 29 – September 3, (2011), Cambridge, UK. (ポスター)
  8. K. Kumagai, H. Shishido, and Y. Matsuda, NMR study of magnetic order and FFLO state in CeCoIn<sub>5</sub>, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, (SCES), Santa Fe, USA, June 27-July 2, (2010) (ポスター)
  9. K. Kumagai, H. Shishido, and Y. Matsuda, NMR Study of Magnetic Order and Spatially-Modulated Superconducting Gap in CeCoIn<sub>5</sub>, International Conference on Spectroscopies in Novel Superconductors, (SNS2010), Shanghai, China, May 24-28, (2010). (ポスター)
  10. K. Kumagai, H. Shishido, and Y. Matsuda, “NMR Study of Magnetically-Ordered State and Spatially-Modulated Superconducting Gap in CeCoIn<sub>5</sub>”, International Conference on Superconductivity and Magnetism (ICSM2010), Antalya, Turkey, April 25-30, (2010), (招待講演)
  11. K. Kumagai, N. Kondoh, H. Shishido, and Y. Matsuda, “NMR Study of Magnetically-Ordered State in a Novel Superconducting Phase in CeCoIn<sub>5</sub>”, 9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity, (M2S-IX) Tokyo, September 7-12, (2009), (ポスター)
  12. K. Kumagai, N. Kondoh, H. Shishido, and Y. Matsuda, “NMR study of magnetic and superconducting order of CeCoIn<sub>5</sub> in a high field and low temperature phase”, 12th International Workshop on Vortex Matter in Superconductors (vortex2009), September 12-16, (2009), Yamanaka Naito Seminar House, Lake Yamanaka, Japan (口頭発表)
  13. K. Kumagai, “Magnetic Order inside the FFLO Phase in CeCoIn<sub>5</sub>” NATO Advanced Research Workshop on Physical Properties of Nano Systems, Yalta, Ukraine, September 29 – October 2, (2009). (招待講演)
6. 研究組織
- (1) 研究代表者
- 熊谷 健一 (KUMAGAI Kenichi)
- 北海道大学・ 名誉教授
- 研究者番号 : 70029560