

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25610096

研究課題名(和文)精密比熱測定による量子臨界点近傍の超伝導異常物性の研究

研究課題名(英文)Studies of anomalous superconducting properties near a quantum critical point by precision specific heat measurements

研究代表者

芝内 孝禎 (Shibauchi, Takasada)

東京大学・新領域創成科学研究科・教授

研究者番号：00251356

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：絶対零度における相転移点である量子臨界点近傍では、金属の標準理論であるフェルミ液体論から逸脱した物性が観測され、しばしば非従来超伝導相が出現する。この超伝導と量子臨界揺らぎとの関連性を明らかにすることが重要な課題の一つである。我々は、鉄系超伝導体の微小純良単結晶試料での精密比熱測定により、量子臨界点近傍の超伝導状態における準粒子励起を調べた。その結果、超伝導転移における比熱の跳びから見積もられる有効質量が絶対零度における磁場侵入長と定量的に一致し発散的に増大すること、および渦系コアのエネルギーが異常に増大することを見出した。これらは量子臨界性が超伝導相内部にも強い影響を及ぼしている証拠である。

研究成果の概要(英文)：In the vicinity of a quantum critical point, which marks a phase transition at zero temperature, physical properties exhibit deviations from the standard Fermi-liquid theory of metals, and sometimes unconventional superconductivity emerges. An important issue is to clarify the relationship between this superconductivity and the quantum critical fluctuations. In this project, we studied quasiparticle excitations in the superconducting state near a quantum critical point in iron-based superconducting materials. We found that the effective electron mass estimated from the jump in the specific heat at the superconducting transition gives a quantitative agreement with the zero-temperature penetration depth results, showing a divergent increase towards the quantum critical point. Moreover, the vortex core energy also shows an anomalous increase. These results evidence that the quantum criticality affects strongly the electronic state deep inside the superconducting phase.

研究分野：固体電子物性

キーワード：量子臨界現象 超伝導特性 準粒子励起 臨界磁場 反強磁性 渦系物理 有効質量 磁場侵入長

1. 研究開始当初の背景

反強磁性などの秩序相を持つ物質に対して、圧力や化学組成などの温度以外の制御パラメータを変化させると、秩序を抑制することが可能で、その転移温度が絶対零度に一致し、その相転移が2次相転移であるときは、その量子相転移点を量子臨界点と呼ぶ。この量子臨界点近傍では、熱揺らぎは抑えられ、量子ゆらぎが臨界的に発達することから、様々な異常物性が出現する。特に図1のように、量子臨界点を中心とした扇状の量子臨界領域とよばれる領域では、通常金属の標準理論であるフェルミ液体論からの逸脱が観測されている。さらに、しばしばこの量子臨界点近傍にドーム型の非従来型超伝導相が出現することが知られており、重い電子系超伝導体、有機超伝導体、鉄系超伝導体などにおいて、同様な相図が議論されている。ここで、この量子臨界揺らぎが超伝導の発現とどのように関連しているかが、固体物理学における重要な課題の一つである。

この量子臨界点に関する研究において、我々は等電荷置換系の鉄系超伝導体 $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ に着目した。この系は広い組成領域において、純良単結晶試料の育成が可能であり、制御パラメータをP置換量として図1に近い相図が得られることが明らかとなっている。また、高磁場量子振動の観測により、電子構造についての情報を得ることができ、最高30ケルビンの高温超伝導が反強磁性秩序近傍で出現するため、量子臨界現象と超伝導の関連性を実験的に調べる上で非常に適した系である。今までの測定から、超伝導転移温度以上の常伝導状態の物性測定から、電子の有効質量が、量子臨界点に近づくにつれて増大することは知られていたが、超伝導相内部でこの量子臨界ゆらぎがどのように超伝導特性に影響を及ぼすかについては、ほとんどわかっていなかった。

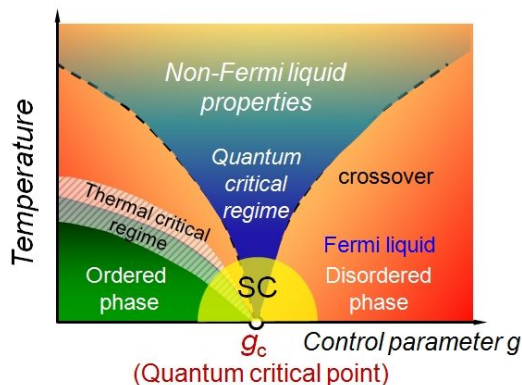


図1. 温度(Temperature)対制御パラメータ(Control parameter)の相図の概念図。秩序相(Ordered phase)の絶対零度における終点が量子臨界点(Quantum critical point)とよばれる。このまわりに超伝導相(SC)がしばしば出現する。

2. 研究の目的

本研究では、 $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ の純良単結晶試料を用いて、量子臨界点近傍における超伝導状態が、量子臨界揺らぎの影響をどのように受けるかを調べることを目的とし、準粒子励起を直接反映する比熱を精密に測定することにより、他の物理量と比較しながら、超伝導特性に現れる異常物性について明らかにした。

特に、比熱測定により見積もられる超伝導に参与する電子の有効質量が、常伝導状態における量子振動から見積もられる質量や絶対零度における磁場侵入長から見積もられる質量とどのような関係にあるか、について定量的に評価した。さらに、磁場中比熱により決定される上部臨界磁場と有効質量の関係、さらにはホール素子を用いて評価した下部臨界磁場との関係についても調べ、量子臨界点近傍の超伝導状態における物性の詳細を議論することを目指した。

3. 研究の方法

鉄系超伝導体 $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ の単結晶試料は自己フラックス法を用いて育成されるが、特にP濃度が高い領域ではサイズの小さいものしか得られていない。また、不均一性を持つ試料では、量子臨界点ごく近傍における異常がなまされてしまう可能性があるため、均一な微小単結晶試料を用いた物性測定が非常に重要となる。このために、本研究では、共同研究を行っているブリストル大学のグループにより開発されたペアチップ抵抗温度センサを用いた長時間緩和測定法を用いた高感度の比熱測定を、P置換量の異なる様々な純良試料について行い、系統的な研究を行った。

また、超伝導状態における電子状態をより詳細に調べるために、以前に行った量子振動の解析結果および磁場侵入長の測定結果との定量的な比較を行った。さらに、超伝導状態における熱力学的な基本量である臨界磁場の定量評価を行った。上部臨界磁場の測定については、転移温度付近の低磁場において磁場中比熱により評価し、高磁場低温領域については、パルス磁場下での磁気トルク測定により見積もった不可逆磁場と組み合わせることにより議論を行った。また、下部臨界磁場については、ホール素子アレーを用いた局所的な磁場分布測定を行い、試料端から磁束が侵入し始める磁場を測定することにより評価した。

4. 研究成果

比熱測定を中心として、量子臨界点近傍の超伝導状態についての研究を展開し、主に以下の2つの成果を得た。

(1) 超伝導転移温度における比熱の跳びの定量化による電子の有効質量評価

通常、電子の有効質量を評価するには、低温極限の電子比熱係数 γ を見積もる必要があ

るが、この系の最高の転移温度は 30 ケルビンと高いため、上部臨界磁場も 50 テスラ以上と非常に高くなるため、超伝導を完全に抑制した状態での低温比熱測定は困難である。しかしながら、超伝導転移温度における比熱の跳びと電子比熱係数 γ は比例関係にあることが知られているため、この比熱の跳びに着目し、超伝導に關与する電子の有効質量の組成変化を見積もった。その結果、量子振動が観測されている $x > 0.4$ の領域では、量子振動から見積もられる有効質量との非常によい一致を得ることができた。この比熱測定により、量子臨界点が位置すると考えられている $x = 0.3$ をカバーする範囲で有効質量の評価が可能になり、実際 $x = 0.3$ に向かって発散的に増大する振る舞いが観測され、 $x = 0.3$ では、バンド質量の 10 倍にも達する大きさとなることが明らかとなった。

さらに、磁場侵入長の絶対値測定から見積もられた超伝導電子の絶対零度における有効質量も定量的に比熱の結果と一致することが明らかとなり、超伝導相内においても、常伝導相と同程度の量子臨界揺らぎによる有効質量増強がなされていることを実験的に示すことができた。

(2) 上部および下部臨界磁場の組成依存性と渦糸エネルギーの評価

超伝導状態における基本的な物理量である上部及び下部臨界磁場の組成依存性を決定した。通常の理論では、上部臨界磁場はコヒーレンス長によって決まるため、有効質量の 2 乗に比例し、転移温度の 2 乗に反比例すると考えられる。しかし、量子臨界点近傍でこの関係から期待される上部臨界磁場の増大に比べ、実験結果では、はるかに小さい増大しか観測されなかった。また、下部臨界磁場については、磁場侵入長の 2 乗に反比例することが期待されるため、量子臨界点近傍で減少することが予想されたが、実験結果では反対に増大することが明らかになった。このような通常の振る舞いとは反する臨界磁場の結果は、通常非常に小さいと考えられている渦糸中心 (コア) 部のエネルギーが、何らかの理由で量子臨界点近傍において非常に増大していることを示唆している。実際、反強磁性相近傍の第 2 種超伝導体において磁場を印加した時の量子化磁束 (渦糸) がどのような性質を示すかについては様々な議論がある。例えば、コア部分で反強磁性が誘起される可能性があり、超伝導相内で量子臨界点がある場合は反強磁性と超伝導がミクロに共存できるために、渦糸の構造が変更を受けてコヒーレンス長が増大する可能性が考えられる。

これらの結果は、量子臨界点近傍の超伝導状態が今まで考えられていなかった異常物性を示すことを明らかにした点で重要な結果であると考えられ、今後の強相関電子系の超伝導分野の研究において新たな視点をもたらす可能性がある。

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 23 件) 全て査読有り

M. D. Watson, T. Yamashita, S. Kasahara, W. Knafo, M. Nardone, J. Beard, F. Hardy, A. McCollam, A. Narayanan, S. F. Blake, T. Wolf, A. A. Haghighirad, C. Meingast, A. J. Schofield, H. von Lohneysen, Y. Matsuda, A. I. Coldea, and T. Shibauchi, "Dichotomy between the Hole and Electrons Behavior in the Multiband FeSe Probed by Ultra High Magnetic Fields", Phys. Rev. Lett. (in press).

T. Terashima, N. Kikugawa, S. Kasahara, T. Watashige, T. Shibauchi, Y. Matsuda, T. Wolf, A. E. Bohmer, F. Hardy, C. Meingast, H. v. Lohneysen, and S. Uji, "Pressure-Induced Antiferromagnetic Transition and Phase Diagram in FeSe", J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 063701 (2015) [4 pages]
DOI: 10.7566/JPSJ.84.063701

Y. Lamhot, A. Yagil, N. Shapira, S. Kasahara, T. Watashige, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and O. M. Auslaender, "Local Characterization of Superconductivity in $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ", Phys. Rev. B **91**, 060504(R) (2015) [5 pages]
DOI: 10.1103/PhysRevB.91.060504

C. Putzke, P. Walmsley, J. D. Fletcher, L. Malone, D. Vignolles, C. Proust, S. Badoux, P. See, H. E. Beere, D. A. Ritchie, S. Kasahara, Y. Mizukami, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and A. Carrington, "Anomalous Critical Fields in Quantum Critical Superconductors", Nat. Commun. **5**, 5679 (2014) [6 pages]
DOI: 10.1038/ncomms6679

T. Yoshida, S. Ideta, T. Shimojima, W. Malaeb, K. Shinada, H. Suzuki, I. Nishi, A. Fujimori, K. Ishizaka, S. Shin, Y. Nakashima, H. Anzai, M. Arita, A. Ino, H. Namatame, M. Taniguchi, H. Kumigashira, K. Ono, S. Kasahara, T. Shibauchi, T. Terashima, Y. Matsuda, M. Nakajima, S. Uchida, Y. Tomioka, T.

Ito, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, H. Ikeda, R. Arita, T. Saito, S. Onari, and H. Kontani, "Anisotropy of the Superconducting Gap in the Iron-Based Superconductor $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ", *Sci. Rep.* **4**, 7292 (2014) [6 pages]
DOI: 10.1038/srep07292

Y. Mizukami, M. Konczykowski, Y. Kawamoto, S. Kurata, S. Kasahara, K. Hashimoto, V. Mishra, A. Kreisel, Y. Wang, P. J. Hirschfeld, Y. Matsuda, and T. Shibauchi, "Disorder-Induced Topological Change of the Superconducting Gap Structure in Iron Pnictides", *Nat. Commun.* **5**, 5657 (2014) [6 pages]
DOI: 10.1038/ncomms6657

S. Kasahara, T. Watashige, T. Hanaguri, Y. Kohsaka, T. Yamashita, Y. Shimoyama, Y. Mizukami, R. Endo, H. Ikeda, K. Aoyama, T. Terashima, S. Uji, T. Wolf, H. v. Loehneysen, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, "Field-Induced Superconducting Phase of FeSe in the BCS-BEC Cross-Over", *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **111**, 16309-16313 (2014).
DOI: 10.1073/pnas.1413477111

T. Terashima, N. Kikugawa, A. Kiswandhi, E.-S. Choi, J. S. Brooks, S. Kasahara, T. Watashige, H. Ikeda, T. Shibauchi, Y. Matsuda, T. Wolf, A. E. Bohmer, F. Hardy, C. Meingast, H. v. Lohneysen, and S. Uji, "Probing the Fermi Surface of the Small-Fermi-Energy Low-Carrier-Density Superconductor FeSe by Shubnikov-de Haas Oscillations", *Phys. Rev. B* **90**, 144517 (2014) [6 pages]
DOI: 10.1103/PhysRevB.90.144517

T. Shibauchi, A. Carrington, and Y. Matsuda, "A Quantum Critical Point Lying beneath the Superconducting Dome in Iron-Pnictides", *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **5**, 113-135 (2014).
DOI: 10.1146/annurev-conmatphys-031113-133921

D. Watanabe, T. Yamashita, Y. Kawamoto, S. Kurata, Y. Mizukami, T.

Ohta, S. Kasahara, M. Yamashita, T. Saito, H. Fukazawa, Y. Kohori, S. Ishida, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, A. B. Vorontsov, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, "Doping Evolution of the Quasiparticle Excitations in Heavily Hole-Doped $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$: A Possible Superconducting Gap with Sign-Reversal between Hole Pockets", *Phys. Rev. B* **89**, 115112 (2014) [5 pages]
DOI: 10.1103/PhysRevB.89.115112

芝内孝禎、松田祐司、「鉄系高温超伝導体の超伝導対称性と電子状態相図(解説)」
日本物理学会誌 **68**(9), 592-601 (2013).

P. Walmsley, C. Putzke, L. Malone, I. Guillamon, D. Vignolles, C. Proust, S. Badoux, A. I. Coldea, M. D. Watson, S. Kasahara, Y. Mizukami, T. Shibauchi, Y. Matsuda, and A. Carrington, "Quasiparticle Mass Enhancement Close to the Quantum Critical Point in $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ", *Phys. Rev. Lett.* **110**, 257002 (2013) [5 pages]
DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.257002

ほか 11 件

[学会発表](計 15 件)

Takasada Shibauchi (招待講演)
"Quantum Criticality and BCS-BEC Crossover in Iron-Based Superconductors", KITP Conference on Strong Correlations and Unconventional Superconductivity: Towards a Conceptual Framework, KITP, UCSB, Santa Barbara, CA, USA, September 22-26, 2014.

Takasada Shibauchi (プレナリー講演)
"Quantum Criticality in Iron Pnictide Superconductors", 27th International Conference on Low Temperature Physics (LT27), Buenos Aires, Argentina, August 6-13, 2014.

Takasada Shibauchi (招待講演)
"Quantum Criticality and Unconventional Superconductivity in Iron-Pnictides", Symposium on "New Horizon of Strongly Correlated Physics" (NHSCP2014), ISSP, Kashiwa, Japan, June 25-27, 2014.

Takasada Shibauchi (招待講演)

“The Superconducting Order Parameter in Iron-Pnictides”, International Conferences on Modern Materials and Technologies (CIMTEC 2014), 7th International Conference on Science and Engineering of Novel Superconductors, Montecatini Terme, Italy, June 16-19, 2014.

芝内孝禎 (シンポジウム講演)

「電子状態相図と不純物効果」, 領域 8 シンポジウム「多軌道電子系としての鉄系高温超伝導体: 軌道とスピンの協奏」, 日本物理学会第 69 回年次大会, 東海大学, 神奈川県平塚市
2014 年 3 月 27 日-30 日

Takasada Shibauchi (招待講演)

“Quantum Criticality in Iron-pnictide Superconductors”, RIKEN-APW joint workshop “Highlights in condensed matter physics”, Riken, Wako, Saitama, Japan, January 23-25, 2014.

Takasada Shibauchi (招待講演)

“Electronic phase diagram of iron-pnictide superconductor $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ”, The IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013): Advanced superconducting materials and its applications, Qingdao, China, September 22-24, 2013.

Takasada Shibauchi (招待講演)

“Superconducting Gap Symmetry in BaFe_2As_2 -Based Superconductors”, International Workshop on Recent Developments in Fe-based high-temperature Superconductors, Riverhead, New York, USA, September 3-6, 2013.

Takasada Shibauchi (招待講演)

“Nematic Transition and Antiferromagnetic Quantum Critical Point in $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ ”, Spectroscopies in Novel Superconductors (SNS2013), Berkeley, California, USA, June 24-28, 2013.

ほか 6 件

{ その他 }
ホームページ等

6 . 研究組織

(1) 研究代表者

芝内 孝禎 (SHIBAUCHI TAKASADA)
東京大学・大学院新領域創成科学研究科・
教授

研究者番号 : 00251356