

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25800186

研究課題名(和文) 一軸性圧力下での角度分解磁場中比熱測定から探る重い電子系超伝導

研究課題名(英文) Heavy-fermion superconductivity probed by field-angle-resolved specific heat measurement under uniaxial pressure

研究代表者

橘高 俊一郎(Kittaka, Shunichiro)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：80579805

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：非従来型超伝導の発現メカニズムに迫る上で、対形成相互作用と密接に関連する超伝導ギャップ構造の解明は欠かせない。そのギャップ異方性を検出する強力な手法の1つに角度分解磁場中比熱測定が挙げられる。本研究課題では、重い電子系超伝導のエキゾチックな特性をより顕著に引き出すために、一軸性圧力下で角度分解磁場中比熱測定が可能な装置を開発した。また、装置開発と並行して常圧での角度分解磁場中比熱測定についても行い、様々な重い電子系超伝導体のギャップ構造を決定した。

研究成果の概要(英文)：Identification of the superconducting gap structure, which is closely related to the pairing interaction, is crucial to resolve the pairing mechanism of unconventional superconductivity. One of the powerful methods to determine the gap anisotropy is field-angle-resolved specific heat measurement. In this project, we have developed the apparatus to measure the field-angle-resolved specific heat under uniaxial pressure in order to uncover exotic features of heavy-fermion superconductivity. Furthermore, gap structures of various heavy-fermion superconductors have been investigated by this method at ambient pressure.

研究分野：超伝導、磁性

キーワード：重い電子系 非従来型超伝導 一軸性圧力効果 比熱測定 超伝導ギャップ

## 1. 研究開始当初の背景

従来のBCS型s波超伝導体が等方的な超伝導ギャップを持つのに対して、重い電子系では強い電子間斥力を避けるために異方的な超伝導ギャップを持つことが多い。そのギャップ対称性の特定は、非従来型超伝導の発現メカニズムを解明する上で重要課題の1つに位置づけられている。一方で、重い電子系超伝導体の多くは転移温度が非常に低く、ギャップ構造の決定は容易ではない。その中で研究代表者は、極低温での角度分解磁場中比熱測定から様々な重い電子系超伝導体のギャップ構造を決定し、非従来型超伝導の理解を深めてきた。

最近、結晶の対称性が変化した際に現れる新奇な超伝導状態に注目が集まっている。例えば、重い電子系超伝導体  $UPt_3$  では何らかの理由で結晶の対称性が低下し、超伝導多重相が現れる。また、カイラル超伝導体  $Sr_2RuO_4$  では一軸性圧力下で  $T_c$  が倍増した新たな超伝導相の出現が報告されている。それらのメカニズムについては未解明な点が多く、結晶の対称性を制御した中で超伝導ギャップ構造の研究を行う手法が求められていた。

## 2. 研究の目的

本研究課題では、一軸性圧力下で角度分解磁場中比熱測定が可能な装置を開発することで、重い電子系超伝導のエキゾチックな特性を新たなアプローチから探ることを目指した。また、装置開発と並行して、これまでも実績を挙げてきた常圧下での角度分解磁場中比熱測定から様々な重い電子系超伝導体のギャップ構造の解明を目指した。

## 3. 研究の方法

### (1) 一軸性圧力下比熱測定装置の開発

一軸性圧力セルにはピストンシリンダー型を採用し、比熱測定に適したデザインのセルを作成した(図1)。一軸性圧力下での比熱測定は押

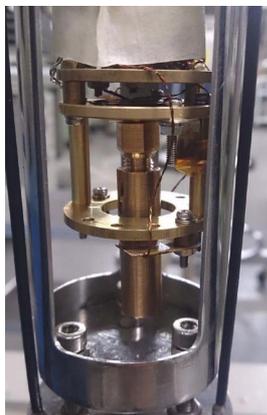


図1 開発した比熱測定用一軸性圧力セル。

し棒で直接試料に力を加えた状態で交流法または緩和法を用いて行った。試料にかかる力は、低温では鉛の超伝導転移温度の圧力変化、室温ではプレス機に設置したロードセルを用いて評価した。さらに、圧力セル内部の部品の歪み具合から内部圧力を評価できる仕組みも導入した。圧力セルの冷却には、最低到達温度 20 mK 以下の希釈冷凍機や同 300 mK 以下の  $^3\text{He}$  冷凍機を使用した。

### (2) 角度分解磁場中比熱測定による超伝導ギャップ構造の決定方法

超伝導状態における低温比熱は低エネルギーの準粒子励起を敏感に検出する。その準粒子励起構造は超伝導ギャップにおけるノードの有無や構造を明確に反映するため、それを利用して超伝導ギャップ構造を決定できる。具体的には、極低温比熱の温度・磁場依存性からノードの有無・タイプを特定し、回転磁場中での比熱振動からノード位置を決定した。磁場方位の精密制御にはベクトルマグネット装置を用いた。

## 4. 研究成果

### (1) 常圧測定による研究成果

一軸性圧力効果を調べる上で、常圧における超伝導・常伝導特性を明らかにしておくことは欠かせない。そのため本研究期間中、将来の圧力実験を見据えて様々な超伝導体について常圧での角度分解磁場中比熱測定を行った。その中で、当初予想もしていなかった成果が得られたものを以下に示す。

### $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$ の多バンドフルギャップ超伝導

1979年に発見された重い電子系初の超伝導体  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  は、35年に渡る研究の積み重ねから、磁気ゆらぎを引力相互作用として実現した「ギャップにノードを有する」異方的d波超伝導体として広く受け入れられてきた。一方で、対形成メカニズムを紐解く鍵となる超伝導ギャップ構造については未だ議論の最中であつた。そこでギャップ構造の決定を目指して、非常に純良な単結晶試料を用いて角度分解磁場中比熱測定を行った。その結果、極低温比熱がゼロ磁場で指数関数的な温度依存性を示すこと、低磁場で磁場に比例して増大すること、面内の磁場方位に鈍感であることを見出した(図2)。これらはフルギャップ超伝導に典型的な振る舞いであり、 $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  の超伝導ギャップに「ノードがない」ことを示している。さらに理論面からの考察により、得られた実験結果が多バンドフルギャップ超伝導モデルで良く理解できることを明らかにした。本研究成果は長年の研究者間の「共通理解」に変更を迫るものであり、重い電子系超伝導の研究に新たな展開をもたらしている。

また、 $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  の高磁場超伝導状態におい

て比熱と磁化が極低温で異常な振る舞いを示すことを見出した。良く似た異常は多バンド超伝導体である  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  の高磁場超伝導状態においても観測されることを報告し、多バンド超伝導におけるパウリ常磁性効果に特有の現象である可能性を指摘した。

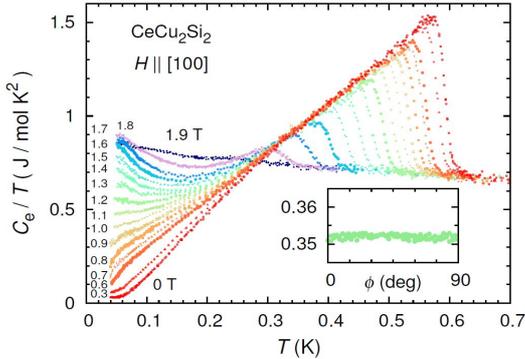


図 2  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  の磁場中比熱の温度変化と  $ab$  面内回転磁場中における磁場方位依存性 (挿入図: 0.1 K, 0.7 T)。

### $\text{UBe}_{13}$ の超伝導ギャップ構造と非フェルミ液体的性質

1983 年に  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  に続けて発見された第二の重い電子系超伝導体  $\text{UBe}_{13}$  は、ゼロ磁場における比熱や核磁気緩和率が低温で温度のべき乗に比例することなどから、超伝導ギャップにノードを持つことが確からしいと考えられてきた。ところが、ノード構造については複数の可能性が提案されており、未解決問題として残されていた。そこで、 $\text{UBe}_{13}$  のギャップ構造解明を目指して常圧での角度分解磁場中比熱測定を行った。その結果、 $\text{UBe}_{13}$  の極低温比熱が、 $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  と同様に、典型的なフルギャップ超伝導の特徴を示すことを見出し (図 3)、 $\text{UBe}_{13}$  でもフェルミ面上にギャップノードが存在しないことを突き止めた。これら一連の研究成果は、長い研究の歴史を持つ  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  と  $\text{UBe}_{13}$  の謎を解明したにとどまらず、重い電子系でのフルギャップ超伝導発現メカニズムという新たな課題を浮き彫りにした点で重要である。

他にも、 $\text{UBe}_{13}$  の常伝導状態において立方晶の対称性を反映した比熱の興味深い磁場・磁場方位依存性を見出した。この特徴的な磁場応答は、 $\text{UBe}_{13}$  の非フェルミ液体的性質や超伝導相内部の  $B^*$  と呼ばれる異常のメカニズムを解く鍵となることが期待される。

### その他の研究成果

上記の研究成果の他にも、 $\text{CeRu}_2$ 、 $\text{KFe}_2\text{As}_2$ 、 $\text{CePt}_3\text{Si}$  の角度分解磁場中比熱測定を常圧で行い、それぞれの超伝導ギャップ構造に関する新たな知見を得た。また、最近発見された  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の超伝導 1 次転移のメカニズムを探るた

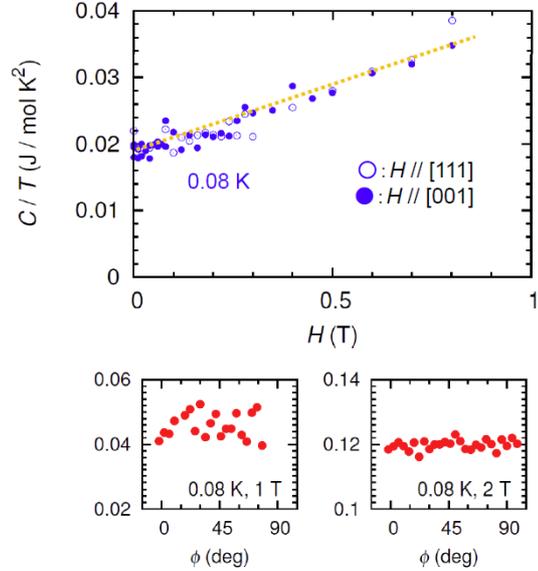


図 3  $\text{UBe}_{13}$  の低温比熱の磁場依存性 (上) と磁場方位依存性 (下)。

めに、磁場角度を精密に制御した極低温磁化測定を行った。その結果、超伝導 1 次転移において鋭い磁化のトビが生じていることを明らかにした。

### (2) 一軸性圧力下測定による研究成果

#### 極低温一軸性圧力下比熱測定装置の開発と $\text{CeCoIn}_5$ への応用

一軸性圧力下で比熱測定を行うためには高感度で小型の低温用温度計が必要である。そこで、市場で安価に販売されている超小型厚膜チップ抵抗器 ( $0.4 \times 0.2 \text{ mm}^2$ ) の温度依存性を複数調べ、その中から抵抗値の温度依存性が大きな (小さな) ものを選別し、試料温度計 (試料加熱用ヒーター) として使用した。この温度計小型化の試みは、常圧比熱測定の精度向上にも貢献し、これまで困難であった比較的熱容量が小さい試料の比熱測定も高感度に行うことができるようになった。

開発した一軸性圧力下比熱測定装置のベンチマークとして超伝導ギャップに  $d$  波型のラインノードを持つことが分かっている  $\text{CeCoIn}_5$  の一軸性圧力下比熱測定を行った。図 4 に測定結果の一部を示す。低圧での比熱測定結果は過去の常圧比熱測定結果を良く再現している。また、試料の  $[100]$  ( $[001]$ ) 方向に一軸性圧力を加えるとバルクの  $T_c$  が上昇 (減少) することを明らかにした。さらに、 $ab$  面内で回転させた磁場中で超伝導ギャップ構造を反映した明確な比熱振動を検出することに成功した (図 4 挿入図)。これらの結果は、開発した装置がギャップ構造の研究を行う上で十分な性能を有していることを示している。

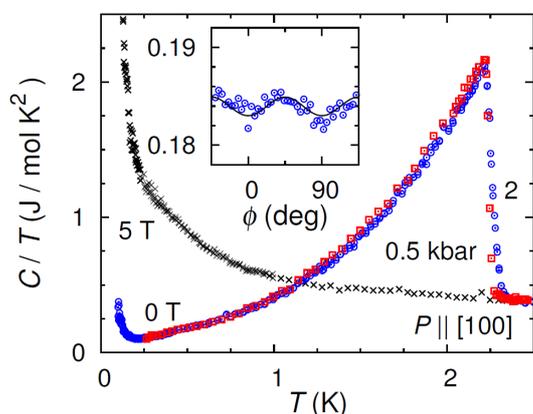


図4 開発した装置を用いて測定した CeCoIn<sub>5</sub> の *a* 軸方向圧力下におけるゼロ磁場比熱の温度変化 (□:0.5 kbar, ○:2 kbar)。×印は 2 kbar, 5 T (*H* || *c*)における常伝導状態の比熱。挿入図は 2 kbar における *ab* 面内回転磁場中比熱の変化 (0.4 K, 2 T)。φ は *a* 軸と磁場のなす角。

### Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> の一軸性圧力下比熱測定

Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> では一軸性圧力下で *T<sub>c</sub>* が倍増した新たな超伝導相の出現が報告されている。また *a* 軸方向に一軸性圧力を印加すると、秩序変数の縮退が解けて *T<sub>c</sub>* = 1.5 K の超伝導転移が 2 つに分裂することが期待されている。それらの研究を行うためには、一軸性圧力下でバルク量である比熱を測定することが重要となる。そこで開発した装置を用いて、Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> の一軸性圧力下比熱測定を開始した。Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> は比較的熱容量が小さいため高精度な比熱測定を行うことは容易でないが、図 5 に示すように一軸性圧力下でも比較的精度よく Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> の比熱を測定することができた。研究は現在進行中であり、各方向の一軸性圧力効果を今後明らかにしていく予定である。

以上のように、一軸性圧力下で角度分解磁場中比熱測定を行える装置が完成し、新たなアプローチから非従来型超伝導を研究することが可能となった。

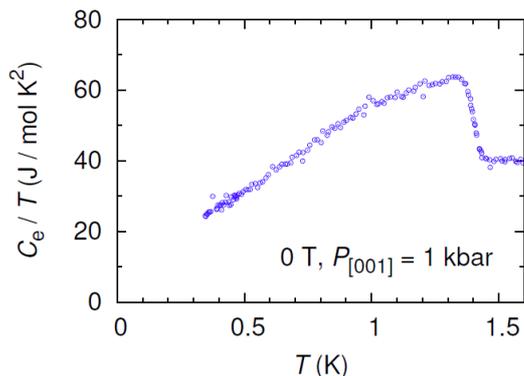


図5 開発した装置を用いて測定した Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub> の比熱の温度依存性。

### 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 16 件)

1. Y. Shimizu, S. Kittaka, T. Sakakibara, Y. Haga, E. Yamamoto, H. Amitsuka, Y. Tsutsumi, and K. Machida, “Field-Orientation Dependence of Low-Energy Quasiparticle Excitations in the Heavy-Electron Superconductor UBe<sub>13</sub>”, Phys. Rev. Lett., 査読有, **114**, 2015, 147002(1-6)  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.114.147002

2. S. Kittaka, A. Kasahara, T. Sakakibara, D. Shibata, S. Yonezawa, Y. Maeno, K. Tenya, and K. Machida, “Sharp Magnetization Jump at the First-Order Superconducting Transition in Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>”, Phys. Rev. B, 査読有, **90**, 2015, 220502(R)(1-5)  
DOI: 10.1103/PhysRevB.90.220502

3. S. Kittaka, Y. Aoki, Y. Shimura, T. Sakakibara, S. Seiro, C. Geibel, F. Steglich, H. Ikeda, and K. Machida, “Multiband superconductivity with unexpected deficiency of nodal quasiparticles in CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>”, Phys. Rev. Lett., 査読有, **112**, 2014, 067002 (1-5)  
DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.067002

4. S. Kittaka, Y. Aoki, N. Kase, T. Sakakibara, T. Saito, H. Fukazawa, Y. Kohori, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, K. Deguchi, N. K. Sato, Y. Tsutsumi, and K. Machida, “Thermodynamic study of nodal structure and multiband superconductivity of KFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>”, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, **83**, 2013, 013704(1-4)  
DOI: 10.7566/JPSJ.83.013704

5. S. Kittaka, T. Sakakibara, M. Hedo, Y. Onuki, and K. Machida, “Verification of anisotropic s-wave superconducting gap structure in CeRu<sub>2</sub> from low-temperature field-angle-resolved specific heat measurements”, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有, **82**, 2013, 123706(1-4)  
DOI: 10.7566/JPSJ.82.123706

(学会発表) (計 41 件)

1. 清水悠晴、河野洋平、榊原俊郎、橋高俊一郎、芳賀芳範、山本悦嗣、網塚浩、<sup>1</sup>重い電子系化合物 UBe<sub>13</sub> の高磁場常伝導状態及び超伝導相内における磁気異常の磁気応答<sup>1</sup>、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 24 日、早稲田大学 (東京都新宿区)

2. 橋高俊一郎、堤康雅、清水悠晴、榊原俊郎、池田浩章、町田一成、<sup>1</sup>CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> と UBe<sub>13</sub> における比熱と核磁気緩和率の温度依存性: 多バンドフルギャップ超伝導の検証<sup>1</sup>、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 21 日、早稲田大学 (東京都新宿区)

3. 笠原聡、橘高俊一郎、榊原俊郎、柴田大輔、米澤進吾、前野悦輝、天谷健一、町田一成、『超伝導体  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の磁場方向を精密制御した極低温磁化測定及び磁気トルク測定』、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014 年 9 月 10 日、中部大学(愛知県春日井市)

4. 橘高俊一郎、榊原俊郎、横山淳、『一軸性圧力下での極低温磁場中比熱測定装置の開発と  $\text{CeCoIn}_5$  への応用』、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014 年 9 月 8 日、中部大学(愛知県春日井市)

5. 清水悠晴、橘高俊一郎、榊原俊郎、芳賀芳範、網塚浩、町田一成、『重い電子系化合物  $\text{UBe}_{13}$  における超伝導対称性と磁気異常及び非フェルミ液体状態』、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014 年 9 月 8 日、中部大学(愛知県春日井市)

6. 橘高俊一郎、河野洋平、榊原俊郎、Ernst Bauer、『比熱測定から調べた空間反転対称性の破れた超伝導体  $\text{CePt}_3\text{Si}$  の磁場方位依存性』、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014 年 9 月 7 日、中部大学(愛知県春日井市)

7. S. Kittaka, Y. Aoki, Y. Shimura, T. Sakakibara, S. Seiro, C. Geibel, F. Steglich, H. Ikeda, Y. Tsutsumi, and K. Machida, "Gap symmetry of the heavy fermion superconductor  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  revisited: thermodynamic study", International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2014 (SCES2014), 2014 年 7 月 8 日, Grenoble (France)

8. 橘高俊一郎、清水悠晴、榊原俊郎、網塚浩、芳賀芳範、山本悦嗣、堤康雅、町田一成、『磁場中比熱測定から見た  $\text{UBe}_{13}$  の超伝導ギャップ構造と異常な常伝導状態』、日本物理学会第 69 回年次大会、2014 年 3 月 29 日、東海大学(神奈川県平塚市)

9. 橘高俊一郎、青木優也、志村恭通、榊原俊郎、S. Seiro, C. Geibel, F. Steglich、池田浩章、町田一成、『極低温磁化・比熱測定から見た  $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  の重い電子系超伝導』、日本物理学会 2013 年秋季大会、2013 年 9 月 28 日、徳島大学(徳島県徳島市)

10. S. Kittaka, Y. Aoki, N. Kase, T. Sakakibara, T. Saito, H. Fukazawa, Y. Kohori, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, and H. Eisaki, "Field-orientation dependence of the specific heat of nodal superconductor  $\text{KFe}_2\text{As}_2$ ", International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2013 (SCES2013), 2013 年 8 月 8 日, 東京大学(東京都文京区)

(その他)

ホームページ等

<http://sakaki.issp.u-tokyo.ac.jp/user/kittaka/index.html>

研究成果に加えて、研究活動時に有用な情報(超伝導転移温度の推移や研究会用タイマー、市販の厚膜チップ抵抗器の温度依存性、など)も公開している。

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

橘高 俊一郎 (KITAKA, Shunichiro)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号: 80579805