

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 6 日現在

機関番号：34315

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2017～2022

課題番号：17K05553

研究課題名（和文）非自明超伝導体のギャップ構造決定の実験的手法の確立を目指す理論的研究

研究課題名（英文）Theoretical studies to establish experimental methods of determination of gap structures in unconventional superconductors

研究代表者

町田 一成 (Machida, Kazushige)

立命館大学・総合科学技術研究機構・プロジェクト研究員

研究者番号：50025491

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：通常の超伝導体とは異なる物性を示す非自明超伝導体のギャップ構造を決定することやその物質の対形成機構を解明するための第一歩である。当該課題の下でいくつかの新奇超伝導体を取り上げ、その物質にそってギャップ構造を実験グループとの共同作業の下で遂行した。曖昧さ無しにギャップ構造を決定できた系もあるが、一方で将来の検討に待つ物質も残った。特に現在大きな関心を集めている重い電子系超伝導UTe₂については当初a軸方向に点状ノードが存在することを磁場回転比熱実験によって見出したが、最近のT_c=2Kの超純良試料を用いて再検証する必要がある。これは喫緊の将来の課題である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

当該研究は物性物理学の根底にある自然界が示す自然法則を具体的、個別的な物質に着目して解き明かそうとする試みである。そうした文脈の中で当該研究の達成した成果は確実な基礎の一つを物性分野に加えたと言える。即ち、超伝導ギャップ決定の強力な手段の提供は今後この分野の発展の基盤的な知見を与えたと言える。こうした知見はより広い立場、即ち社会的な観点から見ても直接的な応用は無いにしろ汎用性を有しており、将来にわたって有効なものであり十分に社会的な意義を持っていると言える。

研究成果の概要（英文）：One of the main purposes of this study is to determine the gap structure in non-trivial superconductors, which exhibit unconventional physical properties unseen in conventional superconductors. This study is important in uncovering the pairing mechanism in such materials, which may ultimately lead to novel superconductor with high transition temperature. In this study we take up several unconventional superconductors in order to determine their gap structures. In some of them the gap structures are unambiguously determined by using field rotation specific heat measurement, but there remain undetermined due to sample quality. Namely the heavy Fermion superconductor UTe₂, which is one of the focus in condensed matter community and claimed to be a point node gap structure by us must be rechecked by using ultra-high quality samples with T_c=2K. This is an urgent next work.

研究分野：物性理論

キーワード：非自明超伝導体 超伝導ギャップ構造 重い電子系 強相関電子系

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

非自明超伝導体はしばしば強相関電子系に発見される。特に U 原子や Ce 原子を含む重い電子系物質はその格好の舞台となり、40 年以上にも渡って種々の超伝導物質が発見され、それらは従来型の超伝導体とは異なる超伝導特性を示すことが知られている。しかしこの長い研究の歴史にも関わらず超伝導対称性が確定した物質は UPt3 を除くとほとんど無い。CeCu₂Si₂ はこの物質群の中で 1979 年に最初の見出された典型物質であるが、そのギャップ構造が我々の角度分解比熱実験法によって確立したのは 2014 年になってからである。これには足かけ 35 年が費やされた。他にも (U,Th)Be₁₃ や類縁物質である CeCoIn₅、Sr₂RuO₄、FeSe、SrBi₂Se₃ 等はギャップ構造を含めて超伝導の対称性の同定は未解決である。究極の目標はこれ等の強相関系超伝導体の対形成機構の解明であるがその達成への道のりは遠いというのが現状である。

2. 研究の目的

こうした研究背景を元にして我々は一つ一つ上記物質を実験グループとの連携の下で取り上げながらギャップ構造を決定する理論的な枠組みを創り上げ、実験的な検証を行いつつ理論的な展開を計ることを行なった。そうした研究を行う中で新物質の発見に呼応して、更なる理論考察を遂行した。特にここ数年前に発見された重い電子系の物質群に属する UTe₂ は世界的な規模で研究が急速に立ち上がり、現在も盛んに研究が進行している。我々もこの潮流の中でこの物質に注力した研究を、上記物質 (U,Th)Be₁₃、CeCoIn₅、Sr₂RuO₄、FeSe、SrBi₂Se₃ 等に加えて遂行した。研究の具体的な目的はこれらの超伝導体のギャップ構造の決定であるが、これを実際の実験状況に応じた最適な実験方法を理論的に考案することである。

3. 研究の方法

上に記したように我々の研究方法の特徴は実験グループとの密接な連携の下で理論を展開するところにある。それによってどのような実験が非自明超伝導体の本質解明に最も有効かつ適切なものかについての理論的な指針を実験グループに提案することが可能となる。この特徴の典型例は上述の CeCu₂Si₂ である。30 年以上にも渡って未解決であったギャップ構造を我々の進めた理論方法を用いてフルギャップであることを疑いの余地の無い形で実験的に立証することが出来た。超伝導体の電子構造を微視的な立場から解析することが可能な準古典 Eilenberger 方程式を近似なしで解くことによって従来の Ginzburg-Landau 理論に基づく現象論では不可能であった超伝導の準粒子の空間構造を明らかにする中でギャップ構造の同定に必要な熱力学諸量を求めることに成功した。

4. 研究成果

(1) UTe₂

当初には予想していなかった新物質 UTe₂ 問題に注力した。典型的な重い電子系超伝導体であるこの物質は現在盛んに世界的な規模で研究が急激に進んでいる。その理由の一つには様々な非自明な超伝導現象がこの系に見出されその原因となるクーパー対の対称性の同定が焦眉の問題となっているからである。例えば常圧下並びに圧力下に於ける磁場温度相図が複数の相に分けられている多重相図になっている。UPt₃、(U,Th)Be₁₃ に続いての他には見られない極めて稀な超伝導体である。また時間反転対称性の自発的な破れやカイラル性の発見、更には T_c=2K に対して H_{c2} が 60T を越える等々非従来型超伝導体の典型例となっている。特に昨年日本のグループによる超純良試料作成の成功は今後更に本質的な実験データが出て来ることが期待でき対称性解明の実験的理論的な進展が見込まれる。当該研究課題の下で今まで培ってきた研究方法をこの物質に適用し、その本質の解明、即ちクーパー対の対称性の同定、並びにギャップ構造の特定に取り組んだ。

我々の考え方の基本は以下の通りである。この物質の対関数の群論的な分類はスピン軌道結合 (SOC) が強い極限にあるとすると様々な困難と矛盾が起きる。その典型例は NMR による Knight shift 実験である。d-vector が磁場下で徐々に回転するという現象は強い SOC 説では説明できない。我々は SOC は有限であるという立場に立つ。この仮説の下で UTe₂ は 3He-A 相とよく似た振舞いを見せ、かつ前述の時間反転対称性の破れを始めとして非自明な現象は理解可能となる。又 A1 相に特徴的な磁化を通しての外部磁場との強い結合は交換相互作用を通して外部磁場を打ち消すために H_{c2}=60T を理解可能なものとする。即ち軌道運動に起因する H_{c2} の限界はこのような機構で超越することが可能であるという一般論に到達することができた。この A1 類似の対称性の下で A1-A2 からなる多重相図を作成した。この相図は圧力下の実験とよく整合するが、常圧下の相図は未だ検証されていない。即ち無磁場下で A1-A2 の相転移が 0.5K 近傍に出現するという理論予想は今後超純良試料を用いて立証できると期待する。

実験グループとの共同研究で角度分解比熱実験を実行した。実験結果は a 軸方向に点状のノードが存在するという結論であったが、これは $T_c=1.6\text{K}$ 試料を用いた種々の実験手段による他の実験と整合して $T_c=1.6\text{K}$ 試料においては a 軸方向に点状のノード説が共通理解となっている。しかし最近の $T_c=2\text{K}$ 試料による結果はまだ十分に吟味されておらずギャップのトポロジーの特定には至っていないがこの結論とは明らかに矛盾している。従って先の角度分解比熱測定を 2K 試料を用いて行う必要がある。将来へ向けての課題の一つである。また磁化、比熱実験を行なったが、これも 2K 試料を用いて極低温において再検証を行う必要がある。 1.6K 試料にあった残留比熱は 2K 試料では消失する。これが本質的なものであるとするならば 2K 試料に於ける低温での第 2 の相転移は不可避である。

(2) CeCoIn5 に於ける FFL0 相の解明

磁場を c 軸に印加したときに高磁場領域に FFL0 相が出現するとの報告があるが、その相の存在の真偽並びに相境界の決定について詳しい実験がない中、我々は超高感度磁歪測定を遂行し、FFL0 相の兆候と相境界を精密に定めることに成功した。FFL0 相に磁場を増加して、Abrikosov 相から入ると全ての熱力学量が急速に磁場変化する。これは無限に離れていた FFL0 に伴うドメインが磁場と共にその数を急増させ間隔を縮めるためである。磁歪の磁場変化に伴って観測された長さの急変化は FFL0 相出現の有力な証拠である。この異常磁場ならびに温度変化を丹念に追求することによって Abrikosov と FFL0 の相境界を正確に確定した。得られた相図において FFL0 の磁場方向の幅は我々の理論計算とよく整合しており FFL0 相を捉えたものと考えられることができる。又磁歪の磁場と垂直な成分にはこの異常が見られないという事実は FFL0 の空間変調が c 軸即ち磁場に平行に起きるとい理論予測と一致してこの磁歪の異方性は FFL0 同定のもう一つの有力な根拠である。

このような現時点での結論を更に検証する計画をしている。磁歪測定では FFL0 相を直接観測することができなかったが、中性子弾性散乱実験を実行して FFL0 の空間変調に付随する超格子反射点を観測することができる。我々の見積もりによればこの散乱強度は現状の実験装置で可能である。今回の磁歪実験によって確定した磁場と温度の領域を探る中性子弾性散乱実験を英国、米国の研究者と計画している。

(3) Sr2RuO4 のギャップ構造

我々が長らく主張してきた Sr2RuO4 のスピン 1 重項説は S. Brown による Knight shift が T_c 以下で減少するという実験によって急速に多くの人々の共通理解となった。対称性決定のもう一つの柱であるギャップ構造特定のための角度分解比熱実験を従来より広い磁場と温度の領域、かつ新たな理論予想のもとで遂行した。その結果従来からの c 軸平行線状ノード説を否定することができた。線状ノードは c 軸に垂直方向に存在することを明確にし、長年の懸案を解決した。この系がスピン 1 重項で水平ラインノードを持つ超伝導体であることを立証することができた。この結論を更に確かなものにするために中性子非弾性散乱実験を実行した。水平ラインノードに随伴するスピンギャップを観測しこのノード構造をより確かなものとした。Sr2RuO4 のスピン 1 重項説に則れば当然の期待として高磁場低温領域に FFL0 相が存在すると予想できる。実際先年 NMR 実験が行われ当該磁場域の共鳴スペクトルに我々が以前計算した FFL0 に特徴的な異常スペクトルを見出した。彼らの提出した相図は我々の作成したものとは異なり、相境界が正しく決定されているのか否かについて検証する必要がある。準備的な磁歪実験を遂行したところ実際に CeCoIn5 と類似の磁歪異常が見つかった。ただし磁歪変化は CeCoIn5 に比べて 2 桁小さいので実験は困難を極めた。この実験を再度磁歪方向を変えて行うことを計画している。もしも CeCoIn5 と同様に磁歪変化に異方性が見つかれば FFL0 の有力な証拠となる。また熱伝導率の方向依存性も重要な実験的な証拠となり得る。FFL0 の変調方向と相対的な熱伝導率は異方的な振舞いを示すと期待できるのでこれも大切な実験である。米国の実験グループと共同でこれを計画している。更に難度が高い実験になるが中性子弾性散乱実験は FFL0 を直接観測できているので将来的には是非実行してみたいと考えている。この困難は散乱強度が小さいことである。従って装置に組み込まれている印加磁場の均一性が問題となる。Grenoble の ILL 装置では均一度の観点で問題があり実現可能かどうかのギリギリであるが挑戦したい研究課題である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計13件（うち査読付論文 13件／うち国際共著 3件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yusei Shimizu, et al	4. 巻 106
2. 論文標題 Anomalous electromagnetic response in the spin-triplet superconductor UTe2	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 214525 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.106.214525	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kazushige Machida	4. 巻 106
2. 論文標題 Violation of Pauli-Clogston limit in the heavy-fermion superconductor CeRh2As2: Duality of itinerant and localized 4 f electrons	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 184509 1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.106.184509	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kazushige Machida	4. 巻 104
2. 論文標題 Nonunitary triplet superconductivity tuned by field-controlled magnetization: URhGe, UCoGe, and UTe2	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 014514, 1-21
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.014514	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Kazushige Machida	4. 巻 89
2. 論文標題 Notes on multiple superconducting phases in UTe2 ---Third transition---	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 65001
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.89.065001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kazuki Iida, et al	4. 巻 89
2. 論文標題 Horizontal Line Nodes in Sr ₂ RuO ₄ Proved by Spin Resonance	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 53702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.053702	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kazushige Machida	4. 巻 89
2. 論文標題 Theory of Spin-polarized Superconductors An Analogue of Superfluid ³ He A-phase	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 33702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.033702	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kenta M. Suzuki, et al	4. 巻 B101
2. 論文標題 Microscopic Eilenberger theory of Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov states in the presence of vortices	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 214516
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.214516	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yue Sun, Shunichiro Kittaka, Toshiro Sakakibara, Kazushige Machida, Jinghui Wang, Jinsheng Wen, Xiangzhuo Xing, Zhixiang Shi, and Tsuyoshi Tamegai	4. 巻 123
2. 論文標題 Quasiparticle Evidence for the Nematic State above T _c in Sr _x Bi ₂ Se ₃	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Lett.	6. 最初と最後の頁 27002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.123.027002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Shunichiro Kittaka, Shota Nakamura, Toshiro Sakakibara, Naoki Kikugawa, Taichi Terashima, Shinya Uji, Dmitry A. Sokolov, Andrew P. Mackenzie, Koki Irie, Yasumasa Tsutsumi, Katsuhiro Suzuki, and Kazushige Machida	4. 巻 87
2. 論文標題 Searching for gap zeros in Sr2RuO4 via field-angle-dependent specific-heat measurement	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 093703 1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.87.093703	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Kazushige Machida, Koki Irie, Katsuhiro Suzuki, Hiroaki Ikeda, and Yasumasa Tsutsumi	4. 巻 99
2. 論文標題 Theoretical studies for identifying horizontal line nodes via angle-resolved density-of-states measurements: Application to Sr2RuO4	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Pays. Rev. B	6. 最初と最後の頁 064510 1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.064510	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Machida	4. 巻 87
2. 論文標題 Spin triplet nematic pairing symmetry and superconducting double transition in U1-xThxBe13	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 033703 1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.87.033703	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Sun, S. Kittaka, S. Nakamura, T. Sakakibara, K. Irie, T. Nomoto, K. Machida, J. Chen, and T. Tamegai	4. 巻 96
2. 論文標題 Gap structure of FeSe determined by angle-resolved specific heat measurements in applied rotating magnetic field	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 220505-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.96.220505	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Y. Shimizu, S. Kittaka, S. Nakamura, T. Sakakibara, D. Aoki, Y. Homma, A. Nakamura, and K. Machida	4. 巻 96
2. 論文標題 Quasiparticle excitations and evidence for superconducting double transitions in mono crystalline U0.97Th0.03Be13	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 100505-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.96.100505	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 町田一成
2. 発表標題 強磁性超伝導体の理論 超流動3He A相との類似性
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Machida
2. 発表標題 Theory of ferromagnetic superconductors and its application to UTe2 ---Analogue of superfluid 3He A phase--
3. 学会等名 日本物理学会年会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 K. Machida
2. 発表標題 Spin Singlet Pairing in Sr2RuO4 with Horizontal Nodes--Present Status and Future Prospect--
3. 学会等名 Strongly Correlated Electron Systems (SCES) 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 町田一成
2. 発表標題 Sr2RuO4の対称性の問題--理論的側面--
3. 学会等名 日本物理学会年会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木雄大、町田一成、池田浩章
2. 発表標題 Sr2RuO4における磁気感受率の超伝導ギャップ依存性の解析
3. 学会等名 日本物理学会年会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
ドイツ	Max Planck Institute		