

平成 30 年 5 月 29 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05158

研究課題名(和文) 重い電子系で発現する多バンドフルギャップ超伝導の機構解明

研究課題名(英文) Pairing mechanism of multiband full-gap superconductivity in heavy-electron systems

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) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：元祖の重い電子系超伝導体CeCu₂Si₂が多バンドのフルギャップ超伝導状態にあることが最近見出され、重い電子系における対形成メカニズムに一石が投じられている。本研究では、重い電子系で発現するフルギャップ超伝導の発現機構に迫るべく、CeCu₂Si₂のギャップ対称性を多角的に検証した。また、他の様々な強相関電子系物質についても磁場角度分解比熱測定から超伝導ギャップ構造を特定し、非従来型の対形成メカニズムの理解を深めることに努めた。加えて、ギャップ構造の圧力による変遷を明らかにするために圧力下磁場角度分解比熱測定装置を新たに開発した。

研究成果の概要(英文)：Pairing mechanism of heavy-fermion superconductivity has attracted much attention because the first discovered heavy-fermion superconductor CeCu₂Si₂ has been unexpectedly revealed to be a multiband full-gap superconductor. In this study, we have examined the gap symmetry of CeCu₂Si₂ and those of various exotic superconductors, in order to deepen understanding of their exotic pairing mechanisms. Furthermore, we developed an apparatus for measuring field-angle-dependent specific heat under pressure to study the pressure effect on the gap structure.

研究分野：超伝導、磁性

キーワード：重い電子系超伝導 超伝導ギャップ 比熱 磁場回転 圧力下比熱

1. 研究開始当初の背景

電子相関が極めて強い「重い電子系」の超伝導では、従来のフォノンを媒介とした対形成が期待できず、そのメカニズム解明を目指した研究が世界中で盛んに行われている。従来のフォノン機構による超伝導は等方的なフルギャップ (*s* 波型) を持つのに対して、重い電子系超伝導体のギャップは異方的であり、しばしば特定の波数方向に「ノード」を持つことが知られている。超伝導ギャップがノードを持てば同一サイトで電子対を形成する確率がゼロとなり、強い斥力を避けた電子対形成が可能になる。そのギャップにおけるノードの位置は対形成相互作用と密接に関係し、機構解明の重要な鍵となる。

こうした非従来型超伝導研究の始まりは 1979 年の CeCu_2Si_2 における重い電子系初の超伝導発見にまで遡る。その発見以来、世界中で活発に超伝導研究が展開され、 CeCu_2Si_2 はスピン揺らぎ機構によるラインノード *d* 波超伝導体であることが確実視されてきた。ところが最近、我々が高純度単結晶試料を用いて極低温磁場角度分解比熱測定を行ったところ、 CeCu_2Si_2 がギャップにノードを持たないフルギャップ超伝導体であることが明らかとなった。これまでの「常識」を覆す本発見は大きな注目を集め、より多角的な検証と対形成メカニズムの再考が重要な課題となっていた。

2. 研究の目的

本研究では、重い電子系におけるフルギャップ超伝導の発現機構に迫るべく、 CeCu_2Si_2 超伝導をより多角的に検証することを第一の目的に定めた。第二に、 CeCu_2Si_2 では静水圧力下の 4.5 GPa 付近において種々の物理量に異常が観測され、高圧下で別の発現機構による超伝導相に遷移している可能性が指摘されている。そこで、高圧側の超伝導相のギャップ構造を明らかにするために、圧力下でも磁場角度分解比熱測定が可能な新たな装置の開発を目指した。第三に、その他の様々な重い電子系超伝導体のギャップ構造の解明を通して、重い電子系におけるエキゾチック電子対形成機構の理解を深めることを目的とした。

3. 研究の方法

極低温比熱は準粒子状態密度に比例するため、その磁場強度及び磁場方位依存性は超伝導ギャップにおけるノード構造を明らかにする鍵となる。例えば、フルギャップ超伝導体の低温比熱はゼロ磁場で指数関数的な温度依存性を示し、低磁場で線型な磁場依存性を示す。一方、ゼロギャップ (ノード) を持つ超伝導体の低温比熱はゼロ磁場で温度の冪乗に比例し、低磁場でおおよそ $H^{1/2}$ に比例した急上昇を示す。したがって、これらの対照的な比熱の振る舞いから超伝導ギャップにおけるノードの有無を判別できる。また、ノード超伝導体の $H^{1/2}$ 的な比熱の上昇の大きさは、ノード方向と印加磁場の間の角度に依存するため、回転磁場中で比熱を測定すればノードの位置まで特定することができる。これまでは比較的異方性の小さい面内 (例えば正方晶の *ab* 面) における回転磁場中比熱測定から縦ラインノードの検証を主に行ってきたが、本研究では比較的異方性の大きい面内 (例えば正方晶の *ac* 面) でも回転磁場中比熱測定を行い、水平ラインノードの検証にも取り組んだ。

CeCu_2Si_2 の高圧超伝導相を調べるためにはピストンシリンダー型圧力セルの限界圧力を超える 4 GPa 級の圧力を発生させた上で比熱の温度・磁場・磁場方位依存性を精密測定できる装置が必要である。そこで、高圧下交流比熱測定装置の開発を目指した。具体的には、試料空間を大きくとれる 10 GPa 級対向アンビル型圧力セルを導入し、市販の厚膜チップ抵抗器の中から高圧下でも高感度低温用温度計として使用できるものを選定して、高圧下比熱の温度・磁場・磁場角度変化を精密測定できる手法の確立を目指した。

4. 研究成果

以下に主要な研究成果の概要を記す。

【重い電子系超伝導体のギャップ構造の解明】

(a) URu_2Si_2

カイラル *d* 波超伝導の実現が有力視される URu_2Si_2 について磁場角度分解比熱測定を行った。低磁場では *ab* 面内で比熱振動は観測されず、*c* 軸周りに回転対称性を持つギャップ構造であることが示唆された。さらに、*ac* 面内でも回転磁場中比熱測定を行い、低磁場で肩構造

を伴う異常を見出した。微視的理論計算結果との比較からその異常が水平ラインノードに起因することを示し、期待されたカイラル d 波超伝導と整合するギャップ構造であることを報告した。結果の詳細をまとめた論文は J. Phys. Soc. Jpn. 誌で公表し、Editors' choice に選ばれた。

(b) UPd₂Al₃

URu₂Si₂ の研究で確立した磁場角度分解比熱測定による水平ラインノードの検証手法を UPd₂Al₃ の研究にも応用した。URu₂Si₂ では高磁場でパウリ常磁性効果の影響が支配的であったが、UPd₂Al₃ においては微視的理論計算結果を再現するような比熱の磁場角度依存性をより広い磁場範囲で観測するに至った(下図)。これら一連の研究により、水平ラインノード超伝導体に普遍的な準粒子状態密度の磁場角度依存性を明確にすることができた。また、UPd₂Al₃ が超伝導ギャップに水平ラインノードを持つ強い実験証拠を提供し、これまで期待されてきた A_{1g} 型超伝導と矛盾が無いことを報告した。UPd₂Al₃ の研究成果をまとめた論文は Phys. Rev. Lett. 誌で公表し、Editors' suggestion に選ばれた。

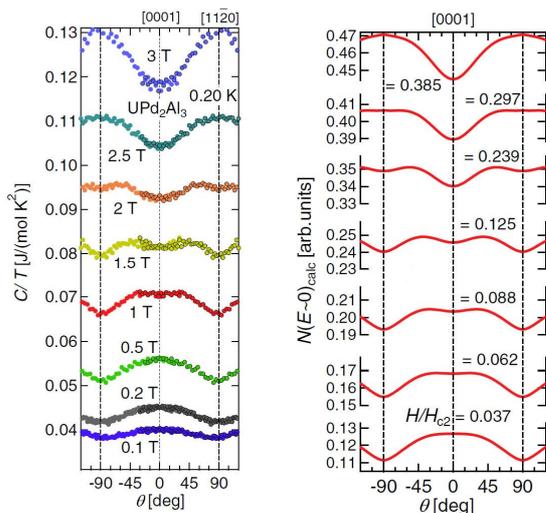


図 3: (左) 様々な磁場で測定した UPd₂Al₃ の低温比熱の ac 面内磁場角度依存性。 θ は c 軸から測った磁場角度。(右) 水平ラインノードギャップを仮定した微視的理論に基づく数値計算結果[発表論文 8]。

(c) U_{1-x}Th_xBe₁₃

最近我々は、磁場角度分解比熱測定から UBe₁₃ でもフルギャップ超伝導状態が実現していることを突き止めた。さらに UBe₁₃ の超伝導秩

序変数を絞り込むために、U サイトに Th を 3% 置換した試料で同様の測定を行った。Th3% 置換の試料では、ゼロ磁場比熱に 2 段の超伝導転移が現れ、複数の秩序変数が縮退した超伝導多重相が出現する。U_{0.97}Th_{0.03}Be₁₃ の低温低磁場相で磁場角度分解比熱測定を行った結果、多重相内部においてもフルギャップ超伝導状態が実現していることが示唆された。以上の結果から有力なギャップ対称性として E_u 対称性を提案した。研究成果をまとめた論文は Phys. Rev. B 誌で公表し、Editors' suggestion に選ばれた。

(d) FeSe

多バンド鉄系超伝導体 FeSe のギャップ構造を明らかにすべく、磁場角度分解比熱測定を行った。比熱の磁場依存性から、サイズの異なる 3 つの超伝導ギャップの存在を示唆する振る舞いを見出した。さらに、比熱の磁場角度依存性からそれぞれのギャップ構造を検証し、最も小さいギャップには 2 本の縦状ラインノード(あるいはギャップ極小)が備わっていることを指摘した。結果をまとめた論文は Phys. Rev. B 誌で公表した。また、試料依存性についても検証し、試料の純度が低下するとノード的な比熱の振る舞いは抑えられ、フルギャップ的になることも明らかにした。

(e) Sr₂RuO₄

多バンド超伝導体 Sr₂RuO₄ はカイラル p 波超伝導体の有力候補であり、そのギャップ構造を磁場角度分解比熱測定から検証した。極低温で比熱の磁場依存性を精密に測定したところ、先行研究の報告とは異なり、単一バンド描像で結果を比較的良く説明できることが分かった。つまり、3 つのバンドのギャップは同程度に強固であることが示唆される。さらに、比熱の ab 面内磁場角度依存性を極低温まで測定し、低磁場で見られる 4 回対称の比熱振動が 60 mK まで符号変化が見られないことを明らかにした。本結果をもとに、ギャップに縦状のラインノード(あるいはギャップ極小)を有する超伝導体とは異なり、異方的なフェルミ速度を持つ水平ラインノード超伝導体と比較的良く符合することを指摘した。本研究は Sr₂RuO₄ の超伝導パリティ問題とも深く関係しており、研究成果をまとめた論文は現在査読中である。

(f) CeCu₂Si₂

URu₂Si₂ と UPd₂Al₃ の研究で確立した研究手法を用いて水平ラインノードの検証を行った。その結果、水平ラインノードに普遍的な振る舞いは観測されず、フルギャップ超伝導状態にあることがより確実となった。また、これまでラインノード超伝導体の証拠とされてきた中間温度領域のゼロ磁場の比熱や核磁気緩和率の温度依存性が、フルギャップ超伝導でも矛盾なく説明できることを多バンド効果を取り入れた単純なモデルによる数値計算から示した。本研究成果をまとめた論文は Phys. Rev. B 誌で公表した。さらに、京都大学のグループを中心とする共同研究(熱伝導・磁場侵入長・不純物効果など)から、符号反転を伴わない *s* 波超伝導である可能性が高いことを報告した。

【圧力下磁場角度分解比熱測定装置の開発】

市販の厚膜チップ抵抗器の中から、圧力下でも使用できる個体をいくつか探し出し、低温用温度計・ヒーターとして適したものを選定した。それを用いてまずはピストンシリンダー型圧力セル中の CeCoIn₅ 単結晶試料の圧力下交流比熱測定を行った。0.2 GPa 程度で試料系の熱緩和時間が 1 桁小さくなること、および、それ以上の圧力下では変化が小さいことを明らかにした。圧力下では熱緩和時間が短くなるため、短い時定数で温度計の測定ができるようにロックインアンプや RC フィルターの条件を最適化した。試料の比熱が変わると熱の漏れの量も変化するので、磁場依存性測定時には各点で周波数測定を行い比熱の絶対値を評価できる手法を確立した。その結果、CeCoIn₅ の比熱の温度・磁場・磁場方位依存性を比較的精度よく測定できるようになった。その後、対向アンビル型圧力セルでも予備測定に成功し、今後の研究発展が期待できる測定技術の確立を達成できた。

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 17 件)

(以下、主要な論文を抜粋)

1. Y. Sun, S. Kittaka, S. Nakamura, T. Sakakibara, K. Irie, T. Nomoto, K. Machida, J. Chen, and T. Tamegai “Gap structure of FeSe determined by angle-resolved specific heat measurements in applied rotating magnetic field” *Phys. Rev. B*, 査読有, **96**, 220505(R)(1-5) (2017).

DOI: 10.1103/PhysRevB.96.220505

2. Y. Shimizu, S. Kittaka, S. Nakamura, T. Sakakibara, D. Aoki, Y. Homma, A. Nakamura, and K. Machida “Quasiparticle Excitations and Evidence for Superconducting Double Transitions in Monocrystalline U_{0.97}Th_{0.03}Be₁₃” *Phys. Rev. B*, 査読有, **96**, 100505(R)(1-5) (2017).

DOI: 10.1103/PhysRevB.96.100505

3. T. Yamashita, T. Takenaka, Y. Tokiwa, J. A. Wilcox, Y. Mizukami, D. Terazawa, Y. Kasahara, S. Kittaka, T. Sakakibara, M. Konczykowski, S. Seiro, H. S. Jeevan, C. Geibel, C. Putzke, T. Onishi, H. Ikeda, A. Carrington, T. Shibauchi, and Y. Matsuda “Fully gapped superconductivity with no sign change in the prototypical heavy-fermion CeCu₂Si₂” *Sci. Adv.*, 査読有, **3**, e1601667(1-7) (2017)

DOI: 10.1126/sciadv.1601667

4. 橘高 俊一郎 「磁場角度回転比熱測定による超伝導研究」物性研究・電子版, 査読無, **6**, 061204(85-125) (2017).

DOI: 10.14989/225165

5. T. Sakakibara, S. Kittaka, and K. Machida “Angle-resolved heat capacity of heavy fermion superconductors” *Rep. Prog. Phys.*, 査読有, **79**, 094002(1-19) (2016).

DOI: 10.1088/0034-4885/79/9/094002

6. S. Kittaka, Y. Aoki, Y. Shimura, T. Sakakibara, S. Seiro, C. Geibel, F. Steglich, Y. Tsutsumi, H. Ikeda, and K. Machida “Thermodynamic study of gap structure and pair-breaking effect by magnetic field in the heavy-fermion superconductor CeCu₂Si₂” *Phys. Rev. B*, 査読有, **94**, 054514(1-9) (2016).

DOI: 10.1103/PhysRevB.94.054514

7. 橘高 俊一郎, 榊原 俊郎, 町田 一成 「重い電子系における超伝導研究の新展開—磁場角度分解比熱測定からみたギャップ対称性—」 固体物理, 査読有, Vol. 51, No. 8, 411-427 (2016).

8. Y. Shimizu, S. Kittaka, T. Sakakibara, Y. Tsutsumi, T. Nomoto, H. Ikeda, K. Machida, Y. Homma, and D. Aoki “Omni-directional measurements of angle-resolved heat capacity for complete detection of superconducting gap structure in the heavy-fermion antiferromagnet UPd₂Al₃” *Phys. Rev. Lett.*, 査読有, 117, 037001(1-5) (2016).

DOI: 10.1103/PhysRevLett.117.037001

9. S. Kittaka, Y. Shimizu, T. Sakakibara, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Onuki, Y. Tsutsumi, T. Nomoto, H. Ikeda, and K. Machida “Evidence for chiral *d*-wave superconductivity in URu₂Si₂ from the field-angle variation of its specific heat” *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, 85, 033704(1-4) (2016).

DOI: 10.7566/JPSJ.85.033704

{学会発表} (計 27 件)
(以下、主要な発表を抜粋)

1. S. Kittaka, “Gap structure of uranium superconductors studied by specific heat”, Physics of Uranium-based Unconventional superconductors, 2017 年 9 月 29 - 30 日, Tokai (Japan)

2. 橘高 俊一郎 他, “磁場角度分解比熱測定による Sr₂RuO₄ の超伝導ギャップ構造の再検証”, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 21 - 24 日, 岩手大学(岩手県盛岡市)

3. S. Kittaka *et al.*, “Superconducting gap structure of Sr₂RuO₄ revisited by the field-angle-dependent specific heat at very low temperatures”, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2017 (SCES2017), 2017 年 7 月 17 - 21 日, Prague (Czech Republic)

4. S. Kittaka, Y. Shimizu, and T. Sakakibara, “Field-angle-resolved Specific Heat of Uranium Superconductors”, ACTINIDES2017, 2017 年 7 月 9 - 14 日, Sendai (Japan)

5. 橘高 俊一郎, “準粒子励起構造から探る Sr₂RuO₄ のノード構造と対称性”, 基研研究会 「超伝導研究の最先端: 多自由度、非平衡、電子相関、トポロジ、人工制御」, 2017 年 6 月 19 - 21 日, 京都大学(京都府京都市)

6. 橘高 俊一郎, “(若手奨励賞) 磁場方位制御下の精密比熱測定による重い電子系超伝導の研究”, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 17 - 20 日, 大阪大学(大阪府豊中市)

7. 橘高 俊一郎, “(シンポジウム講演) 比熱測定から見た重い電子系超伝導体のギャップ構造”, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 17 - 20 日, 大阪大学(大阪府豊中市)

8. 橘高 俊一郎 他, “極低温における Sr₂RuO₄ の磁場角度分解比熱”, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 17 - 20 日, 大阪大学(大阪府豊中市)

9. S. Kittaka *et al.*, “Searching for Gap Nodes in the Heavy-fermion Superconductor CeCu₂Si₂ from Specific-heat Measurement”, 29th International Symposium on Superconductivity, 2016 年 12 月 13 - 15 日, Tokyo (Japan)

10. S. Kittaka *et al.*, “Nodal gap structure of the heavy-fermion superconductor URu₂Si₂ revealed by field-angle-dependent specific-heat measurements”, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2016 (SCES2016), 2016 年 5 月 8 - 13 日, Hangzhou (China)

11. 橘高 俊一郎 他, “超伝導ギャップ構造の解析に適した圧力下角度分解磁場中比熱測定装置の開発”, 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 19 - 22 日, 東北学院大学(宮城県仙台市)

12. 橘高 俊一郎 他, “URu₂Si₂ 純良単結晶の極低温磁場中比熱”, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 16 - 19 日, 関西大学 (大阪府吹田市)

13. S. Kittaka, “Recent progress on the gap determination of heavy-fermion superconductors”, Electron correlation in nanostructures, 2015 年 9 月 3 - 6 日, Odessa (Ukraine)

[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

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

榊原 俊郎 (SAKAKIBARA, Toshiro)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号: 70162287