

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K13514

研究課題名(和文) ウラン化合物におけるカイラル超伝導の検証

研究課題名(英文) Investigation of chiral superconductivity in uranium-based compounds

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

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)：強相関電子系における時間反転対称性の破れたカイラル超伝導状態を調べる2つの実験方法を提案し、その装置開発及び候補物質における測定を行った。1つは走査型磁気プローブ顕微鏡を用いた高分解能磁場分布測定であり、もう1つは極低温精密磁場侵入長異方性測定である。前者については、微小ホール素子およびSQUIDを用いた装置の立ち上げがほぼ完成し、カイラル磁性体における測定に成功した。後者については、30ミリケルビンまでの測定が可能となり、ウラン化合物においてカイラル超伝導状態で期待される温度依存性を得た。また、鉄系超伝導体FeSeの双晶境界近傍におけるカイラル超伝導の出現という予期せぬ結果も得られた。

研究成果の概要(英文)：We propose two experiments detecting chiral superconducting state with broken time reversal symmetry which has been discussed in strongly correlated systems. One is high-resolution measurements of magnetic field distribution by using scanning magnetic probe microscopy, and the other is high-precision anisotropic measurements of penetration depth down to very low temperatures. We have been developing the former microscopy with a miniature Hall probe as well as superconducting quantum interference device, and have succeeded in testing it for a chiral magnet. For the latter, low-temperature measurements down to 30 mK became available, and for a uranium compound we have obtained temperature dependence expected for the chiral superconducting state. In addition, we obtained unexpected results of the emergence of chiral superconductivity in the vicinity of twin boundaries in the iron-based superconductor FeSe.

研究分野：物性物理学

キーワード：時間反転対称性 カイラリティ ドメイン 強相関超伝導 重い電子系 磁場侵入長 走査型プローブ顕微鏡 超伝導ギャップ

1. 研究開始当初の背景

格子振動を媒介とした電子対形成による従来金属の超伝導とは異なるメカニズムで発現する非従来型超伝導の研究は、高温超伝導体をはじめとする電子間の相互作用が強い強相関電子系の超伝導の理解を目指すものである。このような強相関超伝導においては、超伝導状態において様々な対称性の破れが起きることが理論的に示されており、特に、時間反転対称性の破れたカイラル超伝導は、トポロジカル超伝導の研究が進むにつれその重要性が注目されている。

しかしながら、カイラル超伝導状態の実験的な実証がされている状態とは程遠く、今までスピン 3 重項状態が議論されている Sr_2RuO_4 、スクッテルダイト化合物 $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$ や重い電子系超伝導体 UPt_3 などにおいて、おもにミューオンスピン緩和やカー効果の測定からその可能性が議論されてきた。いずれも時間反転対称性の破れに伴い、外部磁場をかけない状態で自発的な内部磁場が発生することを実験的に明らかにすることが重要な点であるが、これらの実験では、ミューオンや高周波電磁場である光などを入射して調べるため、これらの外部からの刺激との相互作用により状態が変化する可能性を排除できないという欠点があり、確立しているとは言えない状況にある。

このような背景において、様々な候補物質において、カイラル超伝導状態を実験的に確立することは非常に重要である。

2. 研究の目的

我々は、このような時間反転対称性を破ったカイラル超伝導状態を実験的に検証可能な 2 つのアプローチを提案し、そのための実験技術の整備、および測定を行い、カイラル超伝導体特有の新奇な物性が実現するかどうかを明らかにすることを目的とした。

(1) 1 つ目のアプローチは、カイラル超伝導において理論的に予想されている自発磁化の発生を直接観測するための、走査型微小磁気プローブを用いた、高分解能磁場分布の観測である。この手法により、カイラルドメインの発生やその長さのスケールなど、カイラル超伝導に特徴的な情報を得ることが可能である。

(2) 2 つ目のアプローチは、超伝導対称性とカイラリティの有無との関係に着目し、超伝導の秩序パラメータであるエネルギーギャップの構造を明らかにし、秩序パラメータが複素数の形式であるかどうかを明らかにするというものである。一般に、時間反転対称操作は量子力学では波動関数に対して複素共役をとることに対応するため、時間反転対称性の破れたカイラル超伝導状態では、秩

序パラメータが複素数の形をとり、その結果、超伝導ギャップに特徴的な性質が現れる。したがって、超伝導ギャップおよびギャップを超えて励起される準粒子に敏感な物性測定により、秩序パラメータを決定することにより、カイラル超伝導状態が実現しているかどうかを明らかにすることができる。

3. 研究の方法

前節で述べた 2 つのアプローチについて、それぞれ以下の方法を用いた。

(1) 高分解能磁場分布測定を極低温の環境で実現するための、走査型磁気プローブ顕微鏡の作製を行った。磁気プローブとしては、微小ホール素子、および超伝導量子干渉素子 (SQUID) を用いたものを使用した。微小ホール素子についてはエコールポリテクニクとの共同研究により作製し、SQUID については連携研究者の下澤が担当した。

(2) 超伝導ギャップ構造を決定するための極低温精密磁場侵入長測定装置の開発を行った。希釈冷凍機温度において、トンネルダイオードを用いた超安定化 LC 発振回路により、共振周波数の温度依存性により準粒子励起に敏感な磁場侵入長の精密測定が可能となる。また、理化学研究所および物性研究所との共同研究により走査型トンネル分光、および角度分解光電子分光をもちいたギャップ構造の研究も行った。

4. 研究成果

2 つのアプローチについてそれぞれ以下の研究成果を得た。

(1) 走査型磁気プローブ顕微鏡について、システムの立ち上げを行った。現在までに、ホール素子による 4 K までの走査が可能となっており、SQUID による希釈冷凍機温度に向けての装置の整備を引き続き行っているところである。後者についても、装置上の問題はほぼ解決しており、近い将来の完成が見込まれ、当初の目的である転移温度の低いウラン系重い電子系超伝導体の測定が可能になる見込みである。

走査型ホール素子顕微鏡を用い、高温での測定が可能なカイラル磁性体 Mn_3Sn の磁場分布の測定を行った。この物質は、反強磁性体にも関わらず巨大な異常ホール効果が室温でも見られるため、大きな注目を浴びている。磁場分布の詳細な解析の結果、通常の磁性体では見られない成分の検出に成功した。この新しい成分の発見は、異常なホール効果の機構の理解につながる重要な結果である。

(2) 超伝導ギャップ構造決定のための、極低温磁場侵入長精密測定装置の整備を行っ

た。具体的には、希釈冷凍機に設置したトンネルダイオード回路の冷却部分の改良を行うことにより、今まで試料導入時に 100 ミリケルビン程度に限られていた最低温度を、50 ミリケルビン以下に更新することに成功した。ギャップ構造を決定するためには、できるだけ低温における磁場侵入長の温度依存性が重要であるため、この改良装置を用いることにより、低い転移温度を持つ超伝導体での測定が可能となった。

まず、この装置を用いて最初に発見された重い電子系超伝導体である CeCu_2Si_2 の磁場侵入長の測定を行った。この物質は転移温度が 0.6 ケルビンと低く、今までそのギャップ構造は高温超伝導体と同じ d 波型であると信じられてきたが、極低温までの測定により、この超伝導体はギャップにゼロ点を持たず、 d 波ではないことを明らかにした。さらに、電子線照射により不純物散乱を導入した試料においても、同様なしっかり開いたギャップ構造が維持されることを明らかにした。このことは不純物散乱により低エネルギー励起が誘起されないという s 波型超伝導の特徴である。これらの結果から、今まで典型的な強相関電子系超伝導体で、反強磁性揺らぎによる d 波超伝導体と思われてきたこの重い電子系物質で、従来超伝導体と同じ s 波型超伝導がおきているという驚くべき結論が導かれる。これは、この数十年間発展してきた強相関電子超伝導の理論を見直すべき重要な結果である。

次に、転移温度 1.4 ケルビンの重い電子系ウラン化合物 URu_2Si_2 について、磁場を 2 方向にかけた測定を独立に行うことから、 a 軸方向および c 軸方向に電流が流れるときの磁場侵入長 λ_a および λ_c の温度依存性をそれぞれ分離する実験を行った。その結果、 λ_a と λ_c において異なる温度依存性が得られ、さらに、超伝導転移に伴う急激な変化が起こる温度も 2 つの方向で異なることが明らかとなった。この結果から、超伝導転移直下より少し低い温度で、ギャップ構造が変化しカイラル超伝導状態に変化したことが示唆される。このような変化は、この系の常伝導状態が「隠れた秩序」相とよばれる特殊な電子状態であり、 ab 面内の回転対称性を破る状態であるときに期待される振る舞いである。従って、この結果は、この系で議論されていたカイラル超伝導状態を支持する結果であるとともに、隠れた秩序相に関しても重要な情報を提供するものであると考えられる。現在、試料依存性などの詳細な研究を継続して行っている段階であり、近い将来、論文発表を予定している。

さらに、理化学研究所の花栗グループとの共同研究により、鉄系超伝導体 FeSe におけるギャップ構造の研究を、走査型トンネル分光法を用いて行った。この物質は 90 ケルビンにおいて構造相転移を起こし、 ab 面内異方性を有する直方晶において 9 ケルビンの超伝

導転移を示す物質であり、 d_{xz} および d_{yz} 軌道が関連した大きな面内電子異方性が生じる「電子ネマティック状態」が議論されている。超伝導状態におけるトンネル分光スペクトルの位置依存性の解析から、双晶境界近傍でスペクトルが大きく変化し、低エネルギー励起が抑えられる傾向があることが明らかになった。このことは、面内異方性に起因する 2 回対称性成分が境界で反転することに伴い、超伝導秩序パラメータに虚数成分が生じて低エネルギー励起を抑制していることを示唆している。このような虚数成分の出現は、時間反転対称性の破れた超伝導状態を意味しており、以前理論的に高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ の双晶境界近傍で見られる可能性が指摘されていたが、実験的に FeSe においてはじめて観測されたことになる。

この結果を受けて、物性研究所の辛・岡崎グループとの共同研究により角度分解光電子分光により FeSe のギャップ構造の詳細を調べた。その結果、シングルドメインの試料では、ギャップにゼロ点が生じているのに対し、マルチドメインの試料ではそのゼロ点付近のギャップが回復し、ノードが消失することが明らかとなった。このことは先のトンネル分光の結果と合致し、双晶境界付近でカイラル超伝導が実現していることを裏付ける結果である。

以上のように、新たな極低温物性測定技術の導入により、 URu_2Si_2 におけるカイラル超伝導状態を支持する結果が得られたとともに、当初は予期していなかった FeSe におけるカイラル超伝導の出現という新しい物理を展開することができた。今後予定している走査型 SQUID 顕微鏡測定により、カイラル超伝導に関するさらなる理解が進むことが期待される。

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 2 件)

T. Yamashita, T. Takenaka, Y. Tokiwa, J. Wilcox, Y. Mizukami, D. Terazawa, Y. Kasahara, S. Kittaka, T. Sakakibara, M. Konczykowski, S. Seiro, H. 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 CeCu_2Si_2 ”, *Sci. Adv.* (査読有), 掲載予定.

<https://arxiv.org/abs/1703.02800>

T. Watashige, Y. Tsutsumi, T. Hanaguri, Y. Kohsaka, S. Kasahara, A. Furusaki,

M. Sigrist, C. Meingast, T. Wolf, H. v. Loehneysen, T. Shibauchi, and Y. Matsuda,
“Evidence for Time-Reversal Symmetry Breaking of the Superconducting State near Twin-Boundary Interfaces in FeSe Revealed by Scanning Tunneling Spectroscopy”, Phys. Rev. X (査読有), **5**, 31022 (2015).
DOI: 10.1103/PhysRevX.5.031022

〔学会発表〕(計 7 件)

向笠清隆, 下澤雅明, 鈴木喜貴, 山下穰, Muhammad Ikhras, 富田崇弘, 肥後友也, 中辻知, Marcin Konczykowski, 松田祐司, 松浦康平, 水上雄太, 芝内孝禎, 近藤潤, 杉井かおり, 中村壮智, 勝本信吾,
「カイラル反強磁性体 Mn_3Sn の局所磁化測定」, 日本物理学会 第 72 回年次大会, 2017 年 03 月 17 日~2017 年 03 月 20 日, 大阪大学(大阪府・豊中市)

T. Takenaka, Y. Mizukami, M. Konczykowski, S. Seiro, H. S. Jeevan, C. Geibel, J. A. Wilcox, C. Putzke, A. Carrington, Y. Tokiwa, Y. Matsuda, and T. Shibauchi,
“Effect of controlled point like disorder on low-energy quasiparticle excitations in $CeCu_2Si_2$ ”, American Physical Society March Meeting 2017, 2017 年 3 月 13 日~2017 年 3 月 17 日, ルイジアナ州ニューオーリンズ(アメリカ合衆国)

橋本嵩, 大田由, 山本遇, 鈴木裕也, 下志万貴博, 渡部俊太郎, C.-T. Chen, 綿重達哉, 小林遼, 笠原成, 松田祐司, 芝内孝禎, 岡崎浩三, 辛埴,
「レーザー角度分解光電子分光による FeSe の軌道秩序状態における超伝導ギャップ異方性の観測 2」, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 09 月 13 日~2016 年 09 月 16 日, 金沢大学(石川県・金沢市)

竹中崇了, 水上雄太, 新井佑基, J. Wilcox, C. Putzke, A. Carrington, S. Seiro, H. S. Jeevan, C. Geibel, M. Konczykowski, 常盤欣文, 松田祐司, 芝内孝禎,
「極低温磁場侵入長測定と不純物効果から見た重い電子系超伝導体 $CeCu_2Si_2$ のギャップ構造」, 日本物理学会 第 71 回年次大会, 2016 年 03 月 19 日~2016 年 03 月 22 日, 東北学院大学(宮城県・仙台市)

下澤雅明, 鈴木喜貴, 杉井かおり, 山下穰, 小山大介, 河端美樹, 河合淳, 笠原

成, 松田祐司, 末吉孝充, 水上雄太, 芝内孝禎,
「走査型 SQUID 顕微鏡システムの試作と検証」, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 09 月 16 日~2015 年 09 月 19 日, 関西大学(大阪府・吹田市)

竹中崇了, 水上雄太, H. S. Jeevan, C. Geibel, M. Konczykowski, 芝内孝禎,
「重い電子系超伝導体 $CeCu_2Si_2$ における磁場侵入長測定」, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 09 月 16 日~2015 年 09 月 19 日, 関西大学(大阪府・吹田市)

T. Shibauchi,
“Exotic superconductivity in FeSe with small Fermi energy” (招待講演), Workshop on Strongly Correlated Electronic Systems - Novel Materials and Novel Theories, 2015 年 08 月 17 日~2015 年 08 月 21 日, トリエステ(イタリア)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://qpm.k.u-tokyo.ac.jp/>

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

(3) 連携研究者

下澤 雅明 (SHIMOZAWA MASA AKI)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号: 40736162