

令和 4 年 6 月 23 日現在

機関番号：13201

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18K03508

研究課題名(和文) 精密体膨張係数測定による非従来型超伝導と反強磁性量子臨界点の解明

研究課題名(英文) Clarification of the relationship between unconventional superconductivity and antiferromagnetic quantum critical points by the measurement of the coefficient of volume thermal expansion

研究代表者

田山 孝 (TAYAMA, Takashi)

富山大学・学術研究部理学系・准教授

研究者番号：20334344

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)：Zn置換したCeCoIn5の熱膨張係数とDC磁化を精密に測定し、負圧領域の温度-圧力相図を調べた。その結果から常圧下におけるCeCoIn5の反強磁性量子臨界点の位置を特定し、超伝導と反強磁性量子臨界点の関係について議論した。結果として、CeCoIn5にはゼロ磁場付近と上部臨界磁場付近の2つの反強磁性量子臨界点の存在の可能性が示唆された。つまりゼロ磁場近傍の反強磁性量子臨界点が超伝導の発現機構に密接に関係しており、上部臨界磁場近傍の反強磁性量子臨界点が高磁場超伝導相、いわゆるQ相の起源に密接に関係している可能性がある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

非従来型超伝導の発現機構はいまだ解明されておらず、固体物理学において最も重要な研究課題の一つとなっている。特に非従来型超伝導の量子臨界点の場所の特定は大きな課題となっているが、量子臨界点の場所は超伝導の発現によって隠れてしまうため正確な位置を特定するのが難しい。本研究はCeCoIn5の体膨張係数とDC磁化の精密測定により超伝導相内の短距離的な反強磁性相関を捉え、反強磁性量子臨界点の場所を探ったものである。この研究手法はCeCoIn5だけでなく他の強相関電子系の異方的超伝導体の研究にも用いることができることから、非従来型超伝導の研究全般に貢献できる可能性がある。

研究成果の概要(英文)：The thermal expansion coefficient and DC magnetization of Zn-substituted CeCoIn5 were precisely measured, and the temperature-pressure phase diagram in the negative pressure region was investigated. From the results, the position of the antiferromagnetic quantum critical point of CeCoIn5 under ambient pressure was determined, and the relationship between superconductivity and the antiferromagnetic quantum critical point was discussed. As a result, the possibility of the existence of two antiferromagnetic quantum critical points in CeCoIn5, one near zero field and the other near the upper critical field, is suggested. In other words, the antiferromagnetic quantum critical point near zero field is closely related to the mechanism of superconductivity, and the antiferromagnetic quantum critical point near the upper critical field may be closely related to the origin of the high-field superconducting phase, so-called Q phase.

研究分野：物性物理学

キーワード：異方的超伝導 量子臨界点 体膨張係数 体積磁歪係数 DC磁化 置換効果

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

重い電子系超伝導体 CeCoIn_5 ($T_c=2.3\text{K}$) は常圧下で反強磁性量子臨界点 (AFM-QCP) 近傍にあり、反強磁性磁気揺らぎを媒介とした非従来型超伝導体であると考えられている。しかし AFM-QCP の正確な位置については、零磁場近傍にあると主張するものと上部臨海磁場 H_{c2} 近傍にあると主張するものの 2 つがあり、反強磁性磁気揺らぎと超伝導の関係はまだ十分に理解されていなかった。またこの超伝導体は 10.5T 以上の ab 面内磁場下では 0.3K 以下において磁気秩序と超伝導状態が共存した Q-phase を発現し、 CeRhIn_5 で見られる反強磁性秩序とは異なる反強磁性秩序が超伝導相内に現れる。この反強磁性秩序の起源についても未解明のままであった。

2. 研究の目的

CeCoIn_5 の In サイトを Zn でわずかに置換した Zn 置換系 $\text{CeCo}(\text{In}_{1-x}\text{Zn}_x)_5$ の体膨張係数、体磁歪係数、DC 磁化の精密測定を行う。そしてこれらの物理量のあいだの熱力学的関係式を用いて相転移点を決めて負圧領域の温度-圧力相図を作成し、反強磁性量子臨界点のより正確な場所を特定する。それによって超伝導と反強磁性のあいだの関係について新たな知見を得ることを研究目的とする。

3. 研究の方法

CeCoIn_5 の Zn 置換系 $\text{CeCo}(\text{In}_{1-x}\text{Zn}_x)_5$ の線膨張係数・線磁歪係数、DC 磁化の測定を 4K から 0.3K までの低温で行った。Zn 置換系の単結晶試料 ($x=0, 0.025, 0.035, 0.0425, 0.05, 0.07$) は茨城大学の横山淳准教授の研究室から提供していただいたものを用いた。体膨張係数、体磁歪係数の測定は CeCoIn_5 の結晶構造が正方晶であることから a 軸と c 軸の 2 方向の線膨張係数を測定し、それらの結果から求めた。 CeCoIn_5 の単結晶試料は c 軸方向に薄く、サイズも小さなものしか作製できない。そのため、試料の形状に依存せず測定でき、かつ高感度な膨張計が必要となる。そこで本研究では、独自に開発したキャパシタンス式の超高感度膨張計 (図 1) による熱膨張・磁歪測定装置を用いた。本膨張計の感度はおよそ 100 分の 1 オングストロームと非常に高く、また試料の形状に依存せず微小な試料でも高い精度で測定を行うことが可能である。磁場中の測定については、ソレノイド型 13T/15T 超伝導マグネットとスプリットペア型 8T 超伝導マグネットの 2 種類の超伝導マグネットを用いることによって、縦磁歪 (L/H) と横磁歪 (L/H) の測定をそれぞれ行い、その結果から体積磁歪係数を求めた。DC 磁化測定はキャパシタンス式ファラデー法を用いて行った。本研究で用いた磁力計はバックグラウンドが非常に小さく感度も高いことから、本研究で用いた磁化の小さな微小試料の測定でも精度良く測定を行うことができる。



図1. 高感度キャパシタンス式膨張計。

通常、相転移温度は比熱 (C) の結果から決めることが一般的である。しかし二つの相転移がありそれらの転移温度が近い場合、これらの転移温度を比熱で決めることはかなり難しくなる。一方比熱に似た物理量として体膨張係数 (β) があり、これら二つの物理量のあいだには熱力学的関係式が成り立つ。さらに相転移が二次相転移の場合、Ehrenfest の関係式と呼ばれる以下の式

$$\frac{dT_i}{dp} = \frac{T_i V \Delta \beta}{\Delta C}$$

が成り立つ。ここで T_i は T_c や T_N などの相転移温度、 p は静水圧力、 β と C は T_i におけるそれぞれ体膨張係数と比熱の跳びの大きさ、 V はモル体積である。 C が正の値になるように選ぶと、 T_i 、 V は常に正の値であるため試料を加圧したときに転移温度が増大するか減少するかは β の符号だけで決まることになる。一方これまでの研究から CeCoIn_5 における超伝導転移と反強磁性転移の dT_i/dp の符号は異なっていることがわかっているため、 β が正の場合は超伝導転移、負の場合は反強磁性転移と明瞭に判別することが可能となる (図 2)。したがって、二つの転移温度が近い場合にはこの方法を用いることにより T_c と T_N の値をより正確に決めることができる。

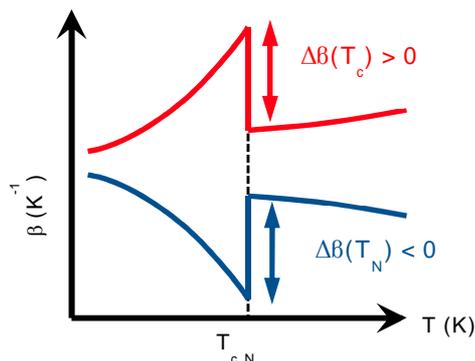


図2. $\text{CeCo}(\text{InZn})_5$ における T_c と T_N で予想される $\beta(T)$ の定性的振舞い。

したがって、二つの転移温度が近い場合にはこの方法を用いることにより T_c と T_N の値をより正確に決めることができる。

4. 研究成果

図3に今回の熱膨張、磁歪、磁化測定から得られた Zn 置換系 $\text{CeCo}(\text{In}_{1-x}\text{Zn}_x)_5$ の磁気相図を示す。Zn 濃度が増えるにしたがって超伝導相(SC)が小さくなる一方、反強磁性相(AFM)相が $x=0.035$ で現れ、 x の増加とともに AFM 相が徐々に広がっていることがわかる。特に $x=0.05$ では T_c と T_N の値が近く、過去の報告では $T_N > T_c$ とされていた。しかし今回の実験では $T_N < T_c$ という結果が得られた。この零磁場での反強磁性転移温度 T_N の x 依存性から $x=0$ への外挿により CeCoIn_5 における反強磁性転移温度を見積もると絶対零度近くの数となり、反強磁性量子臨界点はゼロ磁場近傍にあるというシナリオと一致する結果が得られた。一方 $x=0.07$ の試料における高磁場での物性測定から上部臨界磁場 H_{c2} 近傍にも反強磁性相の存在が報告されている[1]。これらの結果を考慮すると、 CeCoIn_5 は零磁場近傍と上部臨界磁場近傍の二つに反強磁性量子臨界点が存在している可能性がある。つまり零磁場近傍の反強磁性量子臨界点は主要となる超伝導相の発現機構に関与し、上部臨界磁場の反強磁性量子臨界点が高磁場超伝導相 Q 相の存在と密接に関連しているという推測が成り立つ。今後、他の実験によってこのシナリオについて検討することが重要となるであろう。なお、本研究では $\text{CeCo}(\text{In},\text{Zn})_5$ の研究以外にも以下の SmPt_2Si_2 と $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$ の実験も行い研究成果を論文にまとめた。

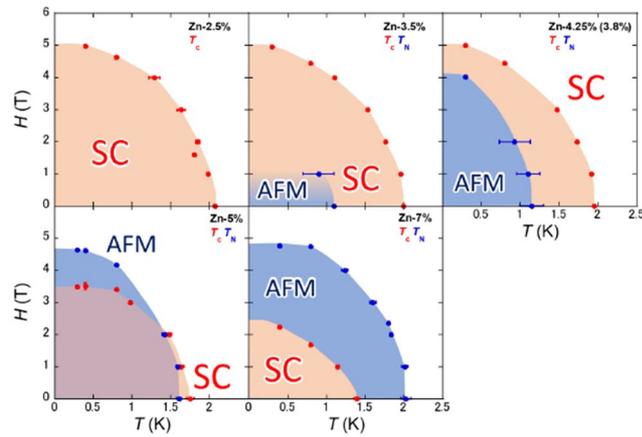


図3. $\text{CeCo}(\text{InZn})_5$ ($x=0, 0.025, 0.035, 0.0425, 0.05, 0.07$) における磁場-温度相図。

(1) SmPt_2Si_2 は $T_{N1}=5.6\text{K}$ で反強磁性転移を起こすが、 T_{N1} 以下でも一部の Sm イオンの磁気モーメントは無秩序のままであることが報告されている。われわれは SmPt_2Si_2 の熱膨張、磁歪、DC 磁化測定からこの無秩序状態について詳しく調べた。磁化や熱膨張の結果から $T_g \sim 2.4\text{K}$ 以下の温度で明瞭な不可逆現象を示すことがわかった。これらの結果は、Sm イオンの部分的な乱れた状態が T_g 以下ではクラスタースピングラスとなり、反強磁性の長距離秩序と共存していることを示唆する。しかし従来のスピングラスと反強磁性の共存とは異なり、 0.26K での等温磁化過程は残留磁化をほとんど持たない。この観測結果は、クラスタースピングラス状態がゼロ磁場では緩和時間の短い特異な状態である可能性を示唆している。

(2) 近藤半導体 $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$ の dc 磁化、熱膨張、磁歪の実験を行い、立方晶の 3 つの主軸に対する磁場-温度相図を作成し、A、B、C の 3 つの秩序相の磁気異方性を明らかにした。また低温では磁化は高磁場中で明瞭な磁気異方性をもつことがわかった。この結果から結晶場基底状態は 67 カルテットであることと、c-f 混成効果はほぼ等方的であることを示した。さらに今回の実験結果と平均場近似を用いた 2 副格子モデルの数値計算結果を比較したところ、C 相は強い c-f 混成効果があるにもかかわらず、5 型の反強四極秩序状態の可能性がわかった。

引用文献

[1] M. Yokoyama et al., Phys. Rev. B 95, 224424 (2017).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Tayama Takashi, Matsuda Tatsuma D., Higashinaka Ryuji, Aoki Yuji	4. 巻 104
2. 論文標題 Magnetization and thermal expansion measurements on the Ising magnet SmPt ₂ Si ₂ : Potential coexistence of spin glass and antiferromagnetic states	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174418-1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.174418	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 Tayama Takashi, Kani Yusuke, Imai Momota, Kanai Yuta, Sugawara Hitoshi	4. 巻 104
2. 論文標題 Possible antiferroquadrupolar order in the Kondo semiconductor CeOs ₄ Sb ₁₂	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 195144-1-11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.104.195144	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9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 蟹雄介, 小島隆志, 松本裕司, 田山孝
2. 発表標題 重い電子系超伝導体Ce _{1-x} NdxCoIn ₅ の精密熱膨張・磁歪測定
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 長谷川奈那, 田山孝, 横山淳
2. 発表標題 CeCo(In _{1-x} Znx) ₅ のZn濃度-温度-磁場相図
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小島隆志, 國吉洋泰, 蟹雄介, 松本裕司, 谷田博司, 田山孝
2. 発表標題 キャパシタンス式ファラデー法磁化測定によるCeCoSiの逐次相転移の研究
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小島隆志, 國吉洋泰, 蟹雄介, 松本裕司, 谷田博司 A, 田山孝
2. 発表標題 熱膨張測定による CeCoSi の常圧下における逐次相転移の磁気異方性
3. 学会等名 2020年度日本物理学会北陸支部 定例学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 蟹雄介, 小島隆志, 松本裕司, 田山孝
2. 発表標題 CeCoIn5 の Nd 置換系における精密熱膨張・磁歪測定
3. 学会等名 2020年度日本物理学会北陸支部 定例学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 蟹雄介, 小島隆司, 松本裕司, 田山孝
2. 発表標題 重い電子系超伝導体 Ce _{1-x} NdxCoIn ₅ の極低温磁化測定
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会 (2021年)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 長谷川奈那, 田山孝, 横山淳
2. 発表標題 CeCo(In _{1-x} Zn _x) ₅ の精密磁化・熱膨張・磁歪測定 による熱力学的考察
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会 (2020年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小島 隆志, 蟹雄介, 田山 孝, 谷田博司
2. 発表標題 熱膨張測定によるCeCoSiの逐次相転移の研究
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会 (2020年)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小島隆志, 田山孝, 谷田博司
2. 発表標題 熱膨張測定による CeCoSi の逐次相転移の研究
3. 学会等名 2019年度 日本物理学会北陸支部 定例学術講演会
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
---------	---------