

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 8日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21540371

研究課題名（和文） 重い電子系超伝導体の圧力下トンネル現象の研究

研究課題名（英文） Tunneling phenomena of heavy-fermion superconductor under pressure

研究代表者

住山 昭彦 (SUMIYAMA AKIHIKO)

兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・教授

研究者番号：30226609

研究成果の概要（和文）：重い電子系の UPt_3 について、超伝導C相は強磁場で出現するためジョセフソン効果の実験は不可能だったが、圧力を印加して低磁場で出現させることで、初めて観測することに成功し、B相と振舞いに顕著な差はないことがわかった。また、重い電子系の URu_2Si_2 について、圧力下で点接合分光を行うことで、「隠れた秩序」相、及び圧力下で現れる反強磁性相の間で、点接合スペクトルに現れるフェルミエネルギー付近の電子状態に顕著な違いはないことがわかった。

研究成果の概要（英文）：We have succeeded in measuring the Josephson effect of UPt_3 in the superconducting C phase for the first time by applying pressure and making the C phase appear in low magnetic fields, and found no qualitative difference between the B and C phases. The point-contact spectroscopy of URu_2Si_2 under pressure suggests that the “hidden order” phase and antiferromagnetic phase has a similar electronic state near the Fermi energy.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2010年度	600,000	180,000	780,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：①超伝導材料・素子 ②強相関電子系 ③低温物性 ④物性実験

1. 研究開始当初の背景

f 電子を持つ希土類、アクチノイド化合物の中には、強い電子間斥力により電子の有効質量が極めて大きくなっている物質群があり、重い電子系と呼ばれている。これらの中には低温で超伝導に転移するものがあり、重い電子間の強い斥力に打ち勝ってクーパー対が形成されていることから、スピン-重項s 波の

いわゆるBCS 状態とは異なる秩序変数を持つ可能性が高い。その中には、 UPt_3 のように超伝導秩序変数が内部自由度を持つため多重超伝導転移を示すものや、 URu_2Si_2 , $CePt_3Si$ のように別の秩序と共存するものなど、複雑な相変化を示すものが多い(図1)。

我々はこれまで、非BCS 超伝導状態を明らかにするため、s 波超伝導体との間のジョセフソン効果、常伝導金属との間のトンネル分

光などのトンネル現象の研究を行ってきた。中でも、 UPt_3 においては、温度と磁場で決定される3つの超伝導相(A,B,C相)のうち、低磁場下で現れるA相,B相間の相転移に伴うジョセフソン効果の異方性を検出し、2つの相の秩序変数を特定するための情報が得ることができた[1]。一方、残されたC相については、高磁場下で現れる相であるため、弱磁場下でのみ測定可能なジョセフソン効果の研究を行うことは不可能であった。ただ、 UPt_3 に圧力を印加することにより、A相が消失して、低磁場下でもC相が出現することが報告されており[2]、圧力下でジョセフソン効果を測定できれば、C相の秩序変数の情報を得られると期待された。

一方、 URu_2Si_2 では17.5Kで常磁性(PM相)から何らかの相転移が生じていることが様々な物性測定を通じて知られているが、どのような秩序が生じているかについては、まだ分かっておらず、「隠れた秩序」(HO相)と呼ばれている。相転移に伴って電子状態が変化していることは、点接合、STMを用いたトンネル分光で報告されているが、一方、この物質は圧力をかけることによって反強磁性 (AFM相)に転移することが知られており、圧力下でのトンネル分光を行うことにより、反強磁性状態との電子状態の比較が可能になると期待された。

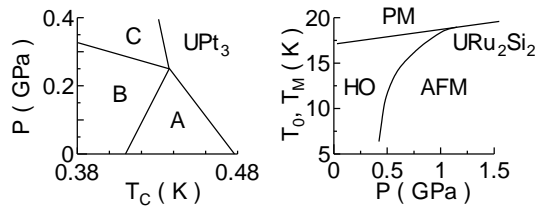


図 1: UPt_3 と URu_2Si_2 の圧力相図

2. 研究の目的

本研究は、背景に示したように、有益な成果が期待される圧力下でのトンネル現象の測定を実現するため、新たな実験技術の開発を行うことを第1の目的としている。

次に、その応用として、重い電子系超伝導体 UPt_3 の3つの超伝導相のうち、常圧では高磁場下で出現するためジョセフソン効果を測定できなかったC相について、圧力下で測定を行うことにより、ジョセフソン効果の検出を行うことを目的としている。また、低圧で現れるB相と比較を行い、秩序変数の変化の情報を得ることも目指す。

さらに、重い電子系物質 URu_2Si_2 の「隠れた秩序」相の情報を得るため、フェルミ面付近の状態密度を反映する点接合分光を行い、高温での常磁性相、及び圧力下で出現する反強磁性相の点接合スペクトルと比較することにより、3つの相の間の電子状態の差異を

明らかにするを目的としている。

3. 研究の方法

(1) 圧力下ジョセフソン効果の研究

① ジョセフソン素子の作成

ジョセフソン効果の測定を行った UPt_3 単結晶は、日本原子力研究開発機構の先端基礎研究センターでチョクラルスキー法により育成された単結晶で、試料の純度を示す残留抵抗比(RRR)は500を超えている。この単結晶は $a[11\bar{2}0]$ 軸、 $b[10\bar{1}0]$ 軸、 $c[0001]$ 軸に沿った3辺を持つ約3mm角の立方体状に切り出されており、今回は b 軸に垂直な面上にジョセフソン素子を作成した。

ジョセフソン素子の構造については、予備的な実験として、 $CeIrIn_5$ のジョセフソン効果の研究に使用した素子に0.16GPaまで圧力をかけて測定しても接合の破壊は見られなかったため、これまでと同一構造の素子を採用することにした。

まず、結晶表面を平滑にするため、ダイヤモンドスラリーを用いて研磨した。粒径としては、 $9\mu m, 3\mu m, 1\mu m$ の順で小さくしながら研磨を行ったが、特に $1\mu m$ のスラリーを用いた場合には、ばふ研磨を行うことで表面を鏡面にまで磨きあげた。次に、素子作成に先だって試料表面をArイオンにより真空中でクリーニングした。その後、真空を破らずに直ちにRFスパッタ法により、常伝導金属Cu(Al)を成膜し、さらに絶縁膜 $SiO_2(1.5\mu m)$ 、超伝導金属Al($0.6\mu m$)の順に成膜することで、図2のような構造の素子を作成した。

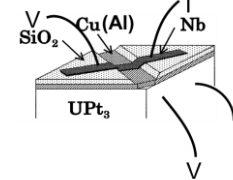


図 2: ジョセフソン素子の概略図

② 圧力下ジョセフソン効果の測定

ジョセフソン素子、及び圧力校正用のInは図3のコイル内に設置され、2次コイルにつながれたSQUIDを用いてInの超伝導転移温度を測り、圧力を決定した。また、図2のV端子につながった別のSQUIDを用いて、I端子に交流電流を流して素子の抵抗Rを、直流電流を流してジョセフソン効果を検出した。試料を設置

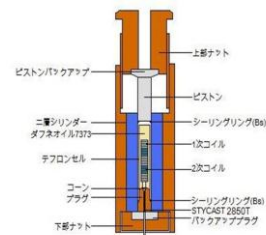


図 3: 圧力セルの概略図

(2) 圧力下トンネル分光の研究

① 点接合分光素子の作成

点接合分光の測定を行った URu_2Si_2 単結晶は、本学の本山助教によりチョクラルスキー法により育成された単結晶で、測定に用いた試料の大きさは、約 $3.0 \times 2.0 \times 2.0 \text{ mm}^3$ 程度である。点接合を作成する面は c 軸に垂直に研磨して出した。

点接合の作成は図 4 に示した通り、研磨した試料表面に Stycast (2850GT) を塗り、針を立てて固まるまで放置した。次に、針を抜いて、固化した Stycast の上部を紙やすりで研磨した後、穴の中に入り込んだ Stycast の粉末を取り除いた。この結果、試料表面に直径約 $10 \mu\text{m}$ の穴があいた状態になっている。最後に、対向電極として、真空蒸着法により銀の薄膜を成膜した。

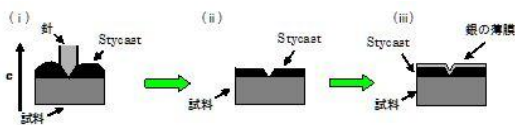


図 4: 点接合の作成法

② 圧力下点接合分光

点接合試料の Ag 膜、及び URu_2Si_2 試料に銀ペーストを用いて電流、及び電圧端子用銅線を取り付け、4 端子法で測定を行った。

試料は、圧力校正用に In を設置した相互インダクタンスコイルとともに、ピストン・シリンダー型圧力セル内に入れられ、ダフネオイル 7373 を圧力媒体として、圧力が印加された。

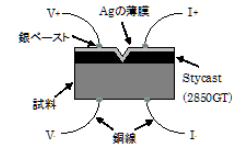


図 5: 点接合試料の概略図

微分抵抗の測定には、KEITHLEY 製の 6221 Current Source と 2182 Nanovolt Meter を用いて Differential Conductance モードで行った。

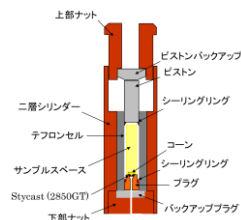


図 6: 圧力セルの概略図

4. 研究成果

(1) 圧力下ジョセフソン効果の研究

① 常圧下でのジョセフソン素子の特性

図 7 は、 b 軸に垂直な面上の 3 つの $\text{UPt}_3\text{-Cu(Al)-Nb}$ 素子の特性を常圧下で比較したものである。黒丸は交流法で測定した素子の抵抗であり、 $\text{UPt}_3, \text{Cu(Al)}, \text{Nb}$ の抵抗からなっている。このうち、 Nb の抵抗は超伝導状態にあるため既に 0 であるので、図の急

激な変化は UPt_3 の超伝導転移に伴う電気抵抗の消失を反映していることがわかる。この減少が終わった温度が超伝導 A 相への転移温度 T_c^+ であり、 Cu(Al) の抵抗が残留しているが、さらに温度を下げるとジョセフソン効果により電圧 0 で電流が流れ始める。その臨界電流は温度を下げると一度増加が滞留した後、さらに増加し始めるため、温度依存性に折れ曲がりが見られ、この温度が超伝導 A 相から B 相への転移温度 T_c^- を表している。3 つの素子はいずれもよく似た特性を示しているが、今回は真ん中の素子を用いて圧力依存性を測定した。

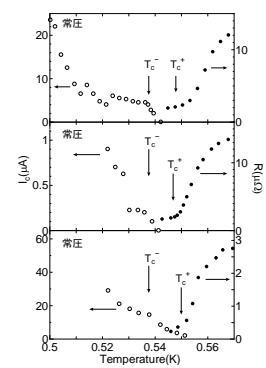


図 7: 常圧下 b 軸方向の接合の抵抗と臨界電流の温度変化

② 圧力下帯磁率の測定

本研究では圧力校正のために、In の超伝導転移を SQUID を用いた直流帯磁率測定により検出しているが、検出コイル内にジョセフソン素子を導入しているので、 UPt_3 の帯磁率を測定することも可能である。図 8 は、零磁場下で冷却し、転移温度以下で磁場を印加して昇温しながら測定した零磁場冷却帯磁率と、磁場中で冷却して測定した磁場中冷却帯磁率を示したものである。前者の帯磁率は表面電流による反磁性を表しており、試料全体が超伝導となった $4\pi\chi = -1$ の値を取っており、一方後者の帯磁率はマイスナー効果を表しているため、

それより小さな値となっている。圧力増大により、特にマイスナー効果の転移幅が広がっており、本質的な原因の他、試料内に圧力分布が存在している可能性もある。

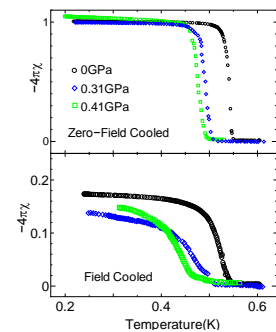


図 8: UPt_3 試料の帯磁率

③ 圧力下ジョセフソン効果の測定

図 9(a) はジョセフソン素子の圧力印加前 (Δ) と印加後 (\circ) の常圧での臨界電流を比較したもので、圧力印加後も T_c の転移が再現されている。また、挿図にあるようにジョセフソン臨界電流の現れた電流-電圧特性はヒステ

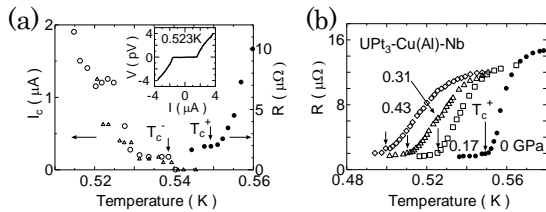


図 9: (a) ジョセフソン素子の常圧下での臨界電流と抵抗の温度依存性、挿入は典型的な電流-電圧特性 (b) 抵抗の圧力依存性

リシスのない、常伝導金属を挟んだ素子に特有の特性を示している。

図 9 (b) は素子の抵抗の圧力依存性を示したもので、常伝導から超伝導状態への転移温度 T_c^+ を矢印で示している。圧力増大により転移幅が広がり、転移温度が低下することがわかる。

一方、図 10(a) は臨界電流の圧力変化を示したもので、圧力増大によりジョセフソン効果の現れる温度が低下する他、出始めの臨界電流の増加の傾き $-dI_c/dT$ が急になっていくことが見てとれる。

図 10(b) は、報告されている零磁場での圧力-温度相図 [2] に今回の実験で得られた超伝導への転移温度 T_c^+ とジョセフソン効果が検出された温度 T_0 を書き入れたものである。黒丸と実線は報告された相図であるが、その測定に使用された単結晶は今回使用した単結晶に比べて転移温度がかなり低いことがわかる。我々の単結晶で圧力下での相図を調べた実験がないので、A, B, C 相が一致する圧力 P_c の正確な値はわからないが、転移温度のみがずれていると考え、本研究の 0.31 GPa 以上では T_c^+ での超伝導転移により C 相が現れていると期待され、C 相、B 相間の相転移温度が圧力の上昇により著しく低温に低下することを考慮すると、ジョセフソン効果の現れる温度 T_0 は 0.31 GPa 以上では、C 相に入っていると考えられる。即ち、当初の目標であった常圧では低温高磁場でしか現れない C 相でのジョセフソン効果の検出に成功したことになる。

ここで、特に T_0 直下での臨界電流の増加率を比較するため示したのが図 11(a) である。一般に、 T_c の異なる BCS 超伝導体で常伝導金属を挟んだ SNS' 型素子では、低い方の T_c 以下でジョセフソン臨界電流が $A(T_c - T)$ の形

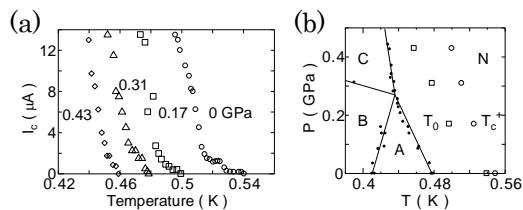


図 10: (a) ジョセフソン素子の臨界電流の温度依存性 (b) 零磁場での圧力相図、実線は文献で報告されたもの

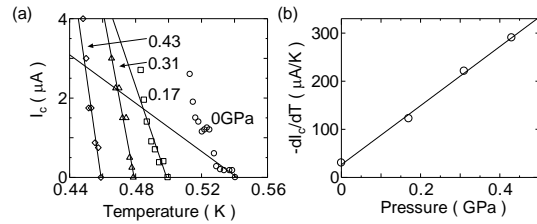


図 11: (a) ジョセフソン効果出現温度 T_0 付近の臨界電流の温度依存性、(b) (a) で直線で示した臨界電流の傾きの圧力依存性

で温度に比例して増大することが、GL 理論を用いて予想され、観察されている [3]。図中の直線は線形フィッティングした結果で、0.17 GPa 以上では圧力増大とともに傾きが増加していることが見て取れる。常圧の温度依存性は T_c 付近の複雑な温度依存性のため、任意性があるが、試みに図中のような直線を引くと、図 11(b) にあるように、傾き $-dI_c/dT$ は圧力に対し比例する形で増大していることがわかる。このような圧力依存性が現れる原因は分かっていないが、報告されている 4 重点の圧力 $P_c \sim 0.26$ GPa を境にして圧力依存性に顕著な差は現れていないことから、本研究の範囲内では B 相と C 相におけるジョセフソン効果の振る舞いに顕著な差は見られないことが分かった。

尚、以上の結果は論文にまとめて、現在投稿中である。

(2) 圧力下トンネル分光の研究

① 常圧下点接合分光

図 12(a), (b) は本研究で開発した方法で作成した点接合のうち、代表的な 2 つの例について常圧下での点接合分光の特性 (微分抵抗のバイアス電圧依存性) を示したものである。両者に共通して、「隠れた秩序」への転移温度 $T_0 \sim 17.5$ K 以下で、零バイアスに対して非対称な成分が現れていることがわかる。特に (b) の接合では高バイアスでも異常が現れているので、それをよりわかりやすくするため、 $V=0$ に対して対称な成分と非対称な成分に分離したのが図 13 である。図からわかるように、 T_0 以下で対称成分に零バイアス付近の微分抵抗の増大が現れていることがわかる。一般にトンネル分光では、フェルミ面を

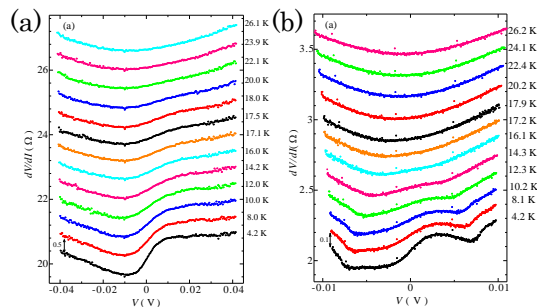


図 12: 2 つの点接合の常圧での点接合スペクトル (微分抵抗のバイアス電圧依存性)

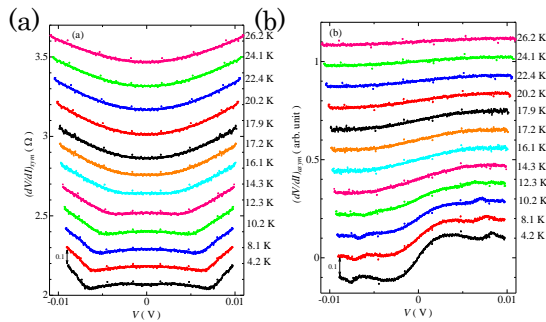


図 13: 前図(b)の(a)対称成分と(b)非対称成分

$eV=0$ としたとき、微分伝導度が各エネルギー eV での状態密度に比例しているため、この結果はフェルミ面付近に状態密度のギャップが発生していることを示唆している。このような、非対称性やギャップ構造はこれまでの点接合の研究でも観察されており、本研究で開発した接合が期待される特性を持つことが確認できた。

② 圧力下点接合分光

点接合素子を圧力セルに入れて圧力を印加したところ、上述の接合はすべて抵抗が非常に小さくなり、スペクトルは現れなくなった。この原因として、接触面積が著しく増大したことが考えられる。一方、圧力下でもスペクトルが現れた接合の結果を図 14 に示す。

図の青は常磁性相、黒は低温で出現した「隠れた秩序」相、赤は圧力下で現れた反強磁性相におけるスペクトルであることを示している。図からわかるように、温度を下げて行く場合のスペクトルの変化は「隠れた秩序」相か、反強磁性相かによらず、定性的によく似た変化を示していることがわかる。この様子をより明確にするため、先と同様に対称、非対称成分に分離したのが、図 15 である。

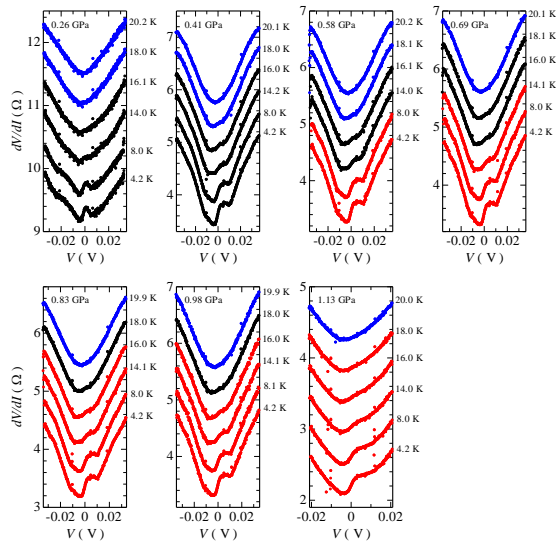


図 14: 点接合スペクトルの圧力依存性

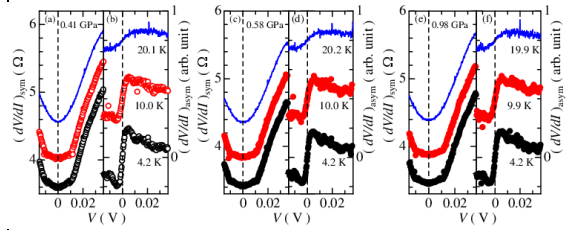


図 15: 点接合スペクトルの対称成分、非対称成分の圧力変化

圧力が異なっても、線でつながれた常磁性相、○の「隠れた秩序」相、●の反強磁性相の間で各成分に大きな違いはないことがわかる。即ち、点接合分光で見える限りは、2つの相の間でフェルミ面付近の状態密度が類似していることになる。この結果は、以前に行われた NMR の結果とも合致している [4]。

上図で、対称成分は常磁性状態で V 字型であるのに対し、低温では零バイアス付近で抵抗の増大が生じ、0.01V 付近に折れ曲がりが見れている。これは図 13 のギャップ構造に対応していると考えられるので、ギャップの値を決定して温度変化を示したのが、図 16 である。ギャップは「隠れた秩序」相、或いは反強磁性相への相転移温度付近で消失する、2次の相転移を示唆する振る舞いを見せている。また、得られた約 9mV というギャップの値はこれまで報告された値ともよく合っている。

以上の内容をまとめた論文は、雑誌に掲載が決まっているが、投稿後に報告された他のグループの圧力下点接合分光の結果でも、やはり「隠れた秩序」相と反強磁性相の電子状態の類似が観測されている [5]。

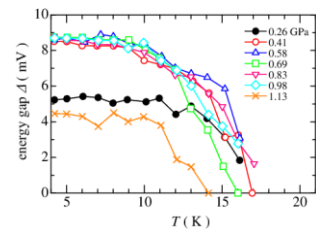


図 16: 点接合スペクトルから得られたギャップ・エネルギーの温度依存性

References

- [1] A. Sumiyama et al.: Phys. Rev. Lett., 81 (1998) 5213.
- [2] M. Boukhny et al.: Phys. Rev. Lett., 73 (1994) 1707.
- [3] S. Kobayashi et al.: Proc. of the 12th Int. Conf. on Low Temp. Phys., (1970) 441.
- [4] K. Matsuda et al.: Phys. Rev. Lett., 87 (2001) 087203.
- [5] Xin Lu et al.: Phys. Rev B, 85 (2012) 20402.

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3件)

- ① Y. Sakai, G. Motoyama, A. Yamaguchi, A. Sumiyama, A. Yamamura, and I. Sato, Development of Point-Contact Spectroscopy of Heavy-Fermion Superconductors under Pressure, *J. Phys. Soc. Jpn. Suppl.*, 査読有、掲載予定
- ② A. Sumiyama, Y. Tsuji, N. Ikeda, Y. Oda, H. Shishido, R. Settai, Y. Onuki, Comparison of Josephson effect of heavy-fermion superconductor CeTIn₅ (T = Co, Ir), *Physica C*, 査読有, Vol. 470, 2010, S577-578
DOI:10.1016/j.physc.2009.12.020

[学会発表] (計9件)

- ① 酒井佳央、URu₂Si₂のHO相とAFM相における点接合スペクトルの比較、日本物理学会第67回年次大会、平成24年3月24日、関西学院大学
- ② 酒井佳央、Development of Point-Contact Spectroscopy of Heavy-Fermion Superconductors under Pressure、International Workshop on Heavy Fermions TOKIMEKI 2011、平成23年11月24日、大阪大学
- ③ 酒井佳央、URu₂Si₂における圧力下点接合分光測定日本物理学会2011年秋季大会、平成23年9月23日、富山大学
- ④ 郷地順、重い電子系超伝導体UPt₃の圧力下ジョセフソン効果、日本物理学会2011年秋季大会、平成23年9月23日、富山大学
- ⑤ 住山昭彦、重い電子系超伝導体UPt₃のジョセフソン効果、日本物理学会第66回年次大会、平成23年3月27日、新潟大学
- ⑥ 酒井佳央、URu₂Si₂における圧力下点接合分光測定、日本物理学会第66回年次大会、平成23年3月27日、新潟大学

6. 研究組織

(1)研究代表者

住山 昭彦 (SUMIYAMA AKIHIKO)
兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・教授
研究者番号：30226609

(2)研究分担者

本山 岳 (MOTOYAMA GAKU)
兵庫県立大学・大学院物質理学研究科・助教
研究者番号：20360050