

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25年 5月21日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2012

課題番号：22340088

研究課題名（和文） 空間反転対称性の破れた重い電子系物質のスピン軌道相互作用と超伝導

研究課題名（英文） Spin-Orbit Coupling and Superconductivity in Noncentrosymmetric Heavy Fermion Materials

研究代表者

木村 憲彰 (KIMURA NORIAKI)

東北大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：30292311

研究成果の概要（和文）：これまで、重い電子系における重い電子の起源、あるいは超伝導の形成において、スピン軌道相互作用の役割がよくわかっていなかった。本研究では結晶の空間反転対称性の破れによってあらわになるスピン軌道相互作用を、ドハース・ファンアルフェン効果をはじめとする輸送現象の測定によって明らかにし、質量増強のスピン依存性、異方的常磁性対破壊効果によって増強された超伝導上部臨界磁場を明らかにした。また、超伝導揺らぎの可能性や空間反転対称性の破れに共通した特異な超伝導状態を見出した。

研究成果の概要（英文）：Although spin-orbit coupling influences properties of heavy fermion and superconducting materials, its nature is still unclear. In this research project, we attempted to elucidate the role of the spin-orbit coupling via the de Haas-van Alphen effect and other transport measurements for non-centrosymmetric compounds. We revealed spin-dependent mass-enhancement and extremely high upper-critical field due to the anisotropic paramagnetic de-pairing effect. We also discussed possibilities of superconducting fluctuation arising in the magnetic ordered state for a heavy fermion superconductor and an anomalous superconducting property commonly appearing in non-centrosymmetric materials with low GL parameters.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	6,400,000	1,920,000	8,320,000
2011年度	6,500,000	1,950,000	8,450,000
2012年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
総計	14,500,000	4,350,000	18,850,000

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：強相関系

1. 研究開始当初の背景

近年、結晶の空間反転対称性の破れ (Non-centrosymmetric 以下 NC と略す) に起因した新しい物性(マルチフェロイクスやスピンホール効果など)が注目を集めている。超伝導の分野でも、空間反転対称性の破れによ

って引き起こされる特異な超伝導状態について理論的に議論されるようになった。空間反転対称性が破れると、スピン軌道相互作用によって伝導バンドが分裂する。そのため、軌道とスピンの混合によってクーパー対のパリティ混合が起きる。その結果、超伝導多

重相図や異方的なギャップ構造、電流磁気効果、空間変調した対波動関数、異方的常磁性対破壊効果など、新奇な超伝導現象が期待されている。しかしながら、NC 構造を持つ超伝導体の多くは従来型の超伝導特性を示し、実験的な研究はあまり進んでいない。本研究では、空間反転対称性の破れに起因する新奇な超伝導現象が強相関 f 電子系物質で顕著に現れることに着目した。

2. 研究の目的

本研究では理論的に予想されている新奇な NC 超伝導特性のうち検証可能なものについて実験を行い、起源となる強く相関した伝導電子のスピンの軌道相互作用を明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究の目的のために、典型的な重い電子系 NC 超伝導の 1 つである CeRhSi_3 およびそれらの参照物質として、価数揺動系の CeCoSi_3 と f 電子を含まない LaRhSi_3 の純良単結晶を育成した。これらは非調和溶融性化合物であることがわかっており、一般的に単一組成の結晶を得るのは難しい。そこで、組成比の最適化や育成条件の最適化を行った。得られた単結晶について真空中でアニールを行い、純良化を行った。

このようにして育成した純良単結晶について、 CeCoSi_3 はドハース・ファンアルフェン (dHvA) 効果の測定を行い、フェルミ面を実験的に決定し、反対称性スピン軌道相互作用によって分裂したフェルミ面を同定した。 CeRhSi_3 は圧力下における電気抵抗測定および交流帯磁率測定を行い、上部臨界磁場の決定や超伝導混合状態における磁束に関する知見を得た。 LaRhSi_3 については、極低温で磁化を測定するために、ホール素子を用いたシステムを開発し、バルクの超伝導状態の相図を作成した。これと、電気抵抗で決定した相図とを比較して、空間反転対称性の破れ特有の新現象の有無を検証した。

4. 研究成果

おもに得られた研究成果は以下のとおりである。

- (1) CeTSi_3 系 ($T=\text{Co, Rh}$) では Si の仕込み比を過剰にすることによって BaNiSn_3 型単相の結晶を得ることができることを明らかにした。
 - (2) CeCoSi_3 の dHvA 効果の観測に成功した。dHvA 信号の磁場角度依存性から、フェルミ面を実験的に明らかにし、バンド計算から予想されるモデルと定性的によく合うことを明らかにした。
- また、 CeCoSi_3 で多重分裂した dHvA 振動を観測し、その原因が空間反転対称性の破れによる反対称性スピン軌道相互作用によって分

裂したフェルミ面およびそのバンド間の磁気貫通によって説明できることを明らかにした。この解析をもとにして、分裂したフェルミ面の有効質量が大きく異なることを見出した。これまで、空間反転対称性の破れていない重い電子系で、質量増強がスピン依存性を持つことが示唆されていたが、本研究によって直接的に質量増強のスピン依存性をとらえたことになる。これらの実験結果から、重い電子系においては一般的に、質量増強が運動量ベクトルの方向だけでなく、スピンの方向によっても大きく異なることが分かった。このことは、重い電子系の質量増強のメカニズムがスピン軌道相互作用に依存していることを示唆するものであり、重い電子の起源を探るうえで、重要な意味を持つといえる。

(3) CeRhSi_3 の圧力下の電気抵抗より、空間反転対称性の破れた超伝導において、非常に高い上部臨界磁場を観測した。超伝導転移温度がたかだか 1.1K なのに対して、上部臨界磁場は 30T に届くほどで、通常の超伝導体の 20 倍程度増強されている。この性質は、空間反転対称性の破れによって生じる異方的な常磁性破壊効果によって部分的に説明できる。一方、図 2 で示したように、反強磁性によ

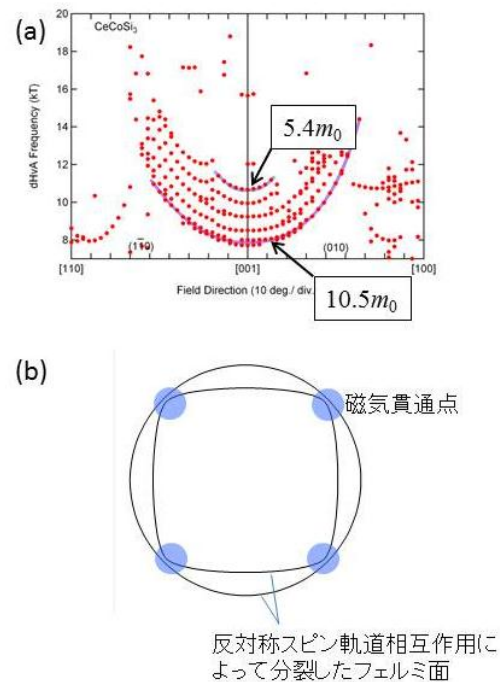


図 1 (a) CeCoSi_3 の dHvA 周波数の角度依存性。一番上と一番下の信号がそれぞれ分裂したフェルミ面からの信号で、間にある信号が磁気貫通によるもの。数字は各フェルミ面の有効質量を静止質量 m_0 単位で示したもの。(b) 反対称性スピン軌道相互作用で分裂したフェルミ面の模式図。磁気貫通点を青で示した。

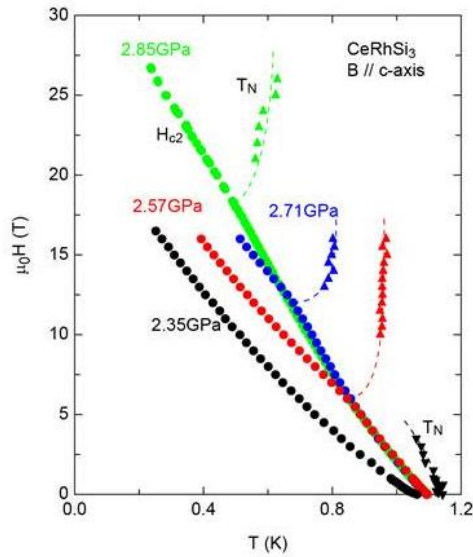


図 2 CeRhSi₃ の各圧力における上部臨界磁場 H_{c2} の温度依存性。 T_N は磁気秩序温度。

て超伝導が抑制されていることが本研究で明らかとなった。
 この結果を契機として、改めて磁気秩序と超伝導が共存する圧力領域における電気抵抗および交流帯磁率の測定を行った。その結果、この圧力領域では電気抵抗の超伝導による落ち込みはブロードで、磁場の印加によって非自明な変化を示し、交流帯磁率は弱いシールド性しか示さない温度領域が存在することが明らかとなった。この温度域では、エネルギー損失がバルク全体からと思えるほど大きいことから、弱いシールド性は、超伝導の体積分率の低さを表しているわけではなく、ピン止めがほとんど効いていないことを意味している。これらの特異な性質は、圧力印加によって磁気秩序が抑制されるとともに失われていくことから、超伝導揺らぎが誘起されている可能性がある。超伝導揺らぎを仮定すると、超伝導による比熱のとびが小さいことが説明できる。通常超伝導揺らぎが起きるためには、高い超伝導転移温度と大きいギンツブルグ・ランダウ (GL) 因子が必要条件であり、重い電子系では超伝導転移温度が降温超伝導体に比べて 2 桁低いことから、超伝導揺らぎは観測されないと考えられてきた。しかしながら、超伝導を担うキャリアが極端に少ないと仮定すると、GL 因子は大きくなり、超伝導揺らぎが誘起される。キャリアの大多数が磁性を担っていて、磁性に寄与しないわずかなキャリアが超伝導対を形成しているとする、このようなことは実現しうる。実際、dHvA 効果の実験からは、超伝導混合状態で振動振幅の減衰がほとんど起きないことがわかっており、本研究で立てた

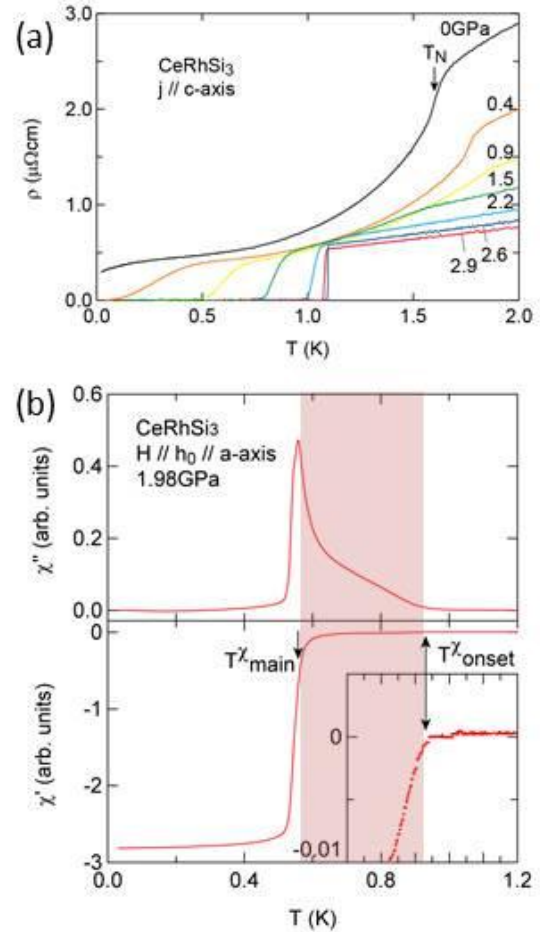


図 3 (a) CeRhSi₃ の電気抵抗の温度依存性の圧力変化。(b) 交流帯磁率の温度依存性。上パネルがエネルギー損失の大きさを表し、下パネルがシールド性の強さを表す。

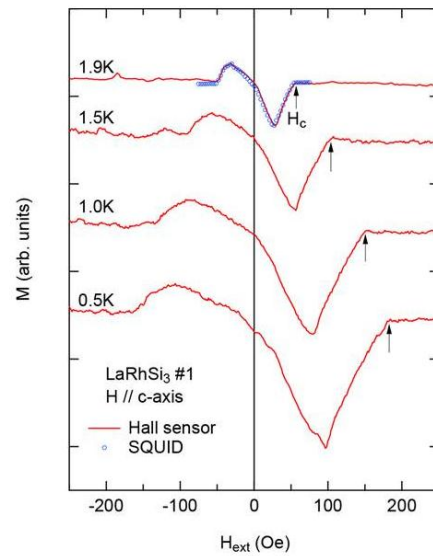


図 4 ホール素子を用いて測定した磁化曲線。

過程と矛盾しない。以上より、磁気秩序下で起きる超伝導は、磁性と超伝導が競合するために強く揺らいでいて、運動量空間で磁性と超伝導が相分離している可能性があることが分かった。

(4) これまで、弱相関と呼ばれる NC 超伝導体で、空間反転対称性の破れに起因した特異な超伝導の性質はあまり見出されてこなかった。本研究では、LaRhSi₃において、バルクの性質と表面あるいは電気抵抗で観測する超伝導の性質が異なっている可能性があることを見出し、その検証を行った。一般的に極低温で磁化の測定を行うには特殊な装置が必要で、一部の研究グループに限られていた測定技術であった。本研究では、研究方法で述べたように、市販のホール素子を用いて磁化の測定を試みた。図4がその結果で、市販の SQUID 磁束計とよく一致しており、正しく測定できていることを示している。この手法を用いて、バルクの反磁性が消失する臨界磁場を決定した。一方で、電気抵抗がゼロから外れる磁場を臨界磁場として定義すると、後者の臨界磁場が前者の3倍以上大きな値を取ることが分かった。これはこれまで知られていた表面超伝導のメカニズムと大きく異なる結果である。このような、性質は他の NC 超伝導でも、特に GL パラメータ比較的小さい物質で見られる現象であり、NC 超伝導に共通した性質の可能性もある。一方で、空間反転対称性の破れていない超伝導で似たような性質を持つ超伝導が存在する可能性もあり、今後より詳細な検証が必要である。

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 31 件)

- ① H. Iida, T. Sugawara, H. Aoki and N. Kimura, Search for a quantum critical point in CeRhSi₃ via electrical resistivity, *Physica Status Solidi (b)*, 査読有, 250, 2013, 502-505
DOI:10.1002/pssb.201200772
- ② 木村憲彰, 空間反転対称性の破れた超伝導, *固体物理*, 査読有, 47, 2012, 593-606
- ③ T. Sugawara, H. Iida, H. Aoki and N. Kimura, Absence of Quantum Criticality and Presence of Superconducting Fluctuation in Pressure-Induced Heavy-Fermion Superconductor CeRhSi₃, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, 81, 2012, 054711/1-6
DOI:10.1143/jpsj.81.054711
- ④ T. Sugawara, N. Kimura and H. Aoki, Ac-Susceptibility of Heavy-Fermion

Superconductor CeRhSi₃ under Pressure, *J. Phys. Soc. Jpn. Suppl.*, 査読有, 80, 2011, SA067/1-3

DOI:10.1143/JPSJS.80SA.SA067

- ⑤ N. Kimura, T. Sugawara and H. Aoki, Magnetic and Superconducting Phase Diagram of Noncentrosymmetric CeRhSi₃, *J. Phys. Soc. Jpn. Suppl.*, 査読有, 80, 2011, SA019/1-6
DOI:10.1143/JPSJS.80SA.SA019
- ⑥ H. Iida, Y. Kadota, M. Kogure, T. Sugawara, H. Aoki and N. Kimura, Fermi Surface Properties and Antisymmetric Spin-Orbit Coupling in Noncentrosymmetric CeCoSi₃, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, 80, 2011, 083701/1-4
DOI:10.1143/jpsj.80.083701
- ⑦ T. Sugawara, N. Kimura, H. Aoki, F. Levy, I. Sheikin and T. Terashima, Anomalous Behavior of the Upper-Critical-Field in Heavy-Fermion Superconductor CeRhSi₃, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, 79, 2010, 063701/1-4
DOI:10.1143/jpsj.79.063701

[学会発表] (計 40 件)

- ① 飯田祐己, CeRhSi₃ の電子状態と超伝導 II, 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 27 日, 広島大学
- ② 木村憲彰, CeRhSi₃ における超伝導揺らぎの可能性, 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 19 日, 横浜国立大学
- ③ H. Iida, Verification of the Quantum Critical Point in CeRhSi₃ via Electrical Resistivity, International Conference on Quantum Criticality and Novel Phases 2012, 2012 年 8 月 27 日, DREIKÖNIGSKIRCHE (ドレスデン、ドイツ)
- ④ N. Kimura, Possible superconducting fluctuation in pressure-induced heavy fermion superconductor CeRhSi₃, International Conference of Magnetism 2012, 2012 年 7 月 10 日, BEXCO (プサン、韓国)
- ⑤ 飯田祐己, CeRhSi₃ の電子状態と超伝導, 日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 24 日, 関西学院大学
- ⑥ N. Kimura, Novel Properties of Noncentrosymmetric Heavy-Fermion Superconductor CeRhSi₃, TOKIMEKI 2011 (International workshop on heavy fermions), 2011 年 11 月 26 日, 大阪大学
- ⑦ N. Kimura, Magnetic and

Superconducting Phase Diagram of
Noncentrosymmetric CeRhSi_3 ,
International Conference of Heavy
Electron 2010, 2010年9月20日, Tokyo

〔図書〕 (計 1 件)

N. Kimura and I. Bonalde (ed. M. Sigrist
and E. Bauer), Springer,
Non-Centrosymmetric Superconductors,
2012, 47 (pp.35-80)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木村 憲彰 (KIMURA NORIAKI)

東北大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号 : 30292311