科研費

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 7 日現在

機関番号: 12601

研究種目: 研究活動スタート支援

研究期間: 2022~2023 課題番号: 22K20349

研究課題名(和文)回転対称性の制御による時間反転対称性の破れた超伝導体の研究

研究課題名(英文)Study on time-reversal symmetry-breaking superconductors by controlling the rotational symmetry

研究代表者

石原 滉大(Ishihara, Kota)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・助教

研究者番号:00961690

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文): ウラン系超伝導体UTe2、カゴメ超伝導体AV3Sb5、鉄系超伝導体FeSe1-xSxに対して主に超伝導ギャップ対称性に注目することにより、これらの超伝導状態を明らかにした。具体的には、UTe2ではポイントノードが対称性の高い方向から離れた位置に存在するカイラル超伝導状態、AV3Sb5では符号反転の無い異方的s波超伝導状態、FeSe1-xSxでは正方晶領域で偶発的なボゴリューボフフェルミ面が存在することを明らかにした。また、正方晶FeSe1-xSxでは超伝導転移温度が一軸歪みによって大きく変化することも示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義時間反転対称性の破れた超伝導状態は古くから研究されてきた一方で、近年ではトポロジカル超伝導状態の文脈でも注目を集めている。さらに、FeSe1-xSxで提案されているボゴリューボフフェルミ面状態は、これまでの超伝導ギャップ構造の分類を超えた新しいタイプの超伝導状態と考えることができる。UTe2やFeSe1-xSxといった物質で時間反転対称性の破れた超伝導状態を明らかにした本研究は、超伝導状態の基礎的理解を発展させるのみならず、トポロジカル超伝導を用いた量子計算の研究対象を示したという意味でも意義深いものであると考えられる。

研究成果の概要(英文): I have elucidated the superconducting state in the Uranium-based superconductor UTe2, kagome superconductor AV3Sb5, and iron-based superconductor FeSe1-xSx by focusing mainly on the superconducting gap symmetry. Specifically, I revealed a chiral superconducting state in UTe2, where point nodes appear away from the high-symmetry directions, an anisotropic s-wave superconducting state with no sign change in AV3Sb5, and a presence of accidental Bogoluibov Fermi surfaces in tetragonal FeSe1-xSx. Furthermore, I found that the superconducting transition temperature of tetragonal FeSe1-xSx changes significantly with an external uniaxial pressure.

研究分野: 物性物理

キーワード: 時間反転対称性の破れ 超伝導 ボゴリューボフフェルミ面 カイラル超伝導 カゴメ超伝導体 一軸

歪み

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に ついては、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

時間反転対称性の破れた超伝導状態は、非従来型超伝導の一種として古くから研究されている一方で、近年ではトポロジカル超伝導状態の候補としても大きな注目を集めている。しかし、超伝導状態における時間反転対称性の破れの検証には非常に小さな自発磁化を検出する必要があり、その測定手法はミューオンスピン回転法や光学カー効果の測定に限られている。そのため、時間反転対称性の破れた超伝導状態のより多角的な検証は、超伝導状態の基礎的な理解を発展させるだけではなく、トポロジカル超伝導状態の研究舞台を整える意味でも非常に重要である。さらに、超伝導状態で時間反転対称性が破れることにより、従来のフルギャップ、ポイントノード、ラインノードといった超伝導ギャップ構造の分類を超えた、第4の超伝導状態「Bogoliubov フェルミ面状態」の実現が期待されている。この新奇超伝導状態の候補物質として、鉄系超伝導体の一種である Fe(Se,S)が注目されている。しかし、この Bogoliubov フェルミ面状態の研究は理論研究が先行しており、Bogoliubov フェルミ面状態特有の実験結果というのは得られていない。

2. 研究の目的

本研究では、従来用いられてきたミューオンスピン回転法や光学カー効果とは異なる手法を用いて超伝導状態における時間反転対称性の破れを検出し、超伝導状態の解明を試みる。本研究では特に、超伝導状態で時間反転対称性を破るためには、位相の異なる複数の超伝導秩序変数が存在する必要があることに注目する。これらの複数の超伝導秩序変数は一軸歪みなどの外場によって縮退を解くことができるため、一軸歪み下での精密物性測定を通じて、時間反転対称性の破れた非従来型超伝導状態の解明を試みる。

3. 研究の方法

本研究では、時間反転対称性の破れたカイラル超伝導状態が期待されている UTe₂やカゴメ格子超伝導体 AV₃Sb₅、Bogoliubov フェルミ面状態が期待されている鉄系超伝導体 Fe(Se,S)に注目する。まず、これらの物質の超伝導ギャップ構造を詳細に調べるため、極低温下までの磁場侵入長測定および高エネルギー電子線照射を用いた不純物効果の測定を行う。次に、一軸歪みを加えた状態での磁場侵入長測定といった物性測定を通じて、超伝導状態に対する一軸歪みの効果を検出する。

4. 研究成果

(1) 重い電子系超伝導体 UTe2

本研究ではまず、 UTe_2 に対して磁場侵入長測定を行い、ゼロ歪み下での超伝導ギャップ構造の決定を試みた。 UTe_2 は対称性の低い直方晶の結晶構造を持つため、スピントリプレット状態が実現している場合には、ポイントノードが k_x , k_y , k_z 軸のいずれかの軸上に存在するはずである。そこでそのポイントノードの位置を決定するため、磁場を試料の a 軸、b 軸、c 軸にそれぞれ印加した状態で磁場侵入長を測定し、超伝導準粒子励起の異方性を検出した。その結果、驚くべきことに磁場の方向に依らず磁場侵入長が低温で温度の二乗に従う温度依存性を検出することができた。この結果は、ポイントノードが対称性の高い軸上に存在するギャップ構造とは矛盾する結果である。この結果を説明するためには、複数の超伝導秩序変数が時間反転対称性を破った形で混成する必要がある。そのため、以上の測定結果は UTe_2 において時間反転対称性を破ったカイラル超伝導状態が実現していることを強く示唆していると言える。

また、 UTe_2 の超純良単結晶における下部臨界磁場の測定も行った。その結果、磁場をb軸とc軸方向に印加した場合にのみ、上部臨界磁場と熱力学的な関係式から期待される値よりも下部臨界磁場が大きく上昇していることが明らかとなった。この結果は UTe_2 の量子臨界的な磁気揺らぎと関係している可能性があり、カイラル超伝導の微視的起源との関連も期待される。この下部臨界磁場の上昇のより詳細な解明は今後の課題である。

(2) カゴメ格子超伝導体 AV₃Sb₅

本研究では、カゴメ格子超伝導体 AV_3Sb_5 (A=K, Rb, Cs)に対して磁場侵入長測定と不純物効果を調べることにより、超伝導状態の解明を試みた。まず初めに、 CsV_3Sb_5 の磁場侵入

長を測定したところ、ノードの無いフルギャップ状態が実現していることを明らかにした。さらに、電子線照射によって不純物を導入した試料でも同様の測定を行うことにより、 CsV_3Sb_5 では超伝導ギャップ関数に符号反転の無い、異方的s波超伝導状態が実現していることを明らかにした。この結果は、カゴメ格子超伝導体で期待されているカイラル超伝導状態とは相容れない結果である。また、ピストンシリンダーセルを用いた圧力実験も行い、圧力下の超伝導状態における不純物効果も調べた。その結果、不純物密度に対する超伝導転移温度の抑制度合いは常圧相と高圧相で類似しており、この結果から高圧下での超伝導状態もカイラル超伝導状態とは異なる状態であることを明らかにした。

次に、 KV_3Sb_5 と RbV_3Sb_5 の試料に対しても磁場侵入長測定とその不純物効果の測定を行った。その結果、これらの試料では CsV_3Sb_5 よりも等方的な超伝導ギャップ構造が実現していることを明らかにした。さらに、不純物を導入して電荷密度波状態を抑制することにより、超伝導転移温度が 2 倍以上に上昇する結果も得ることができた。この結果は、 KV_3Sb_5 と RbV_3Sb_5 では電荷密度波状態と超伝導状態が互いに競合していることを示している。

(3) 鉄系超伝導体 Fe(Se,S)

Fe(Se,S)に対してはまず、ミューオンスピン回転法を用いることにより、幅広い組成領域で時間反転対称性の破れた超伝導状態が実現していることを明らかにした。Fe(Se,S)ではS高置換領域の正方晶領域でBogoliubovフェルミ面状態が提案されているため、その領域の試料を用いて不純物効果と磁場侵入長測定を行った。その結果、不純物の導入によってノードが消失するような振る舞いを検出することができた。このことから、Fe(Se,S)におけるBogoliubovフェルミ面は結晶の対称性に守られたものではなく、ギャップの異方性によって生じる偶発的なものであることが明らかとなった。

さらに、正方晶 Fe(Se,S)に対して一軸歪みを印加したところ、超伝導転移温度が 1.5 倍程度にまで上昇する振る舞いが観測された。ミューオンスピン回転法により超伝導転移温度と超伝導電子密度が比例関係にあることが示されており、この超伝導転移温度の上昇は、Bogoliubov フェルミ面の消失に伴う超伝導電子密度の上昇に対応している可能性がある。一軸歪み下でのより詳細な超伝導状態の解明は今後の課題である。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件(うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 3件)	
1. 著者名	4.巻
M. Roppongi, K. Ishihara, Y. Tanaka, K. Ogawa, K. Okada, S. Liu, K. Mukasa, Y. Mizukami, Y. Uwatoko, R. Grasset, M. Konczykowski, B. R. Ortiz, S. D. Wilson, K. Hashimoto, and T. Shibauchi	14
2 . 論文標題 Bulk evidence of anisotropic s-wave pairing with no sign change in the kagome superconductor CsV3Sb5	5 . 発行年 2023年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Nature Communications	667
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1038/s41467-023-36273-x	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	該当する
4 *********	
1.著者名 Ishihara K.、Kobayashi M.、Imamura K.、Konczykowski M.、Sakai H.、Opletal P.、Tokiwa Y.、Haga Y.、Hashimoto K.、Shibauchi T.	4.巻 5
2 . 論文標題 Anisotropic enhancement of lower critical field in ultraclean crystals of spin-triplet superconductor candidate UTe2	5 . 発行年 2023年
3.雑誌名 Physical Review Research	6 . 最初と最後の頁 L022002
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1103/PhysRevResearch.5.L022002	有
オープンアクセス	国際共著
オープンアクセスとしている(また、その予定である)	該当する
1 . 著者名 Ishihara Kota、Roppongi Masaki、Kobayashi Masayuki、Imamura Kumpei、Mizukami Yuta、Sakai Hironori、Opletal Petr、Tokiwa Yoshifumi、Haga Yoshinori、Hashimoto Kenichiro、Shibauchi Takasada	4.巻 14
2 . 論文標題	5 . 発行年
Chiral superconductivity in UTe2 probed by anisotropic low-energy excitations	2023年
3.雑誌名 Nature Communications	6.最初と最後の頁 2966
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1038/s41467-023-38688-y	有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著
1 . 著者名 Matsuura K.、Roppongi M.、Qiu M.、Sheng Q.、Cai Y.、Yamakawa K.、Guguchia Z.、Day R. P.、Kojima K. M.、Damascelli A.、Sugimura Y.、Saito M.、Takenaka T.、Ishihara K.、Mizukami Y.、Hashimoto K.、Gu Y.、Guo S.、Fu L.、Zhang Z.、Ning F.、Zhao G.、Dai G.、Jin C.、Beare J. W.、Luke G. M.、Uemura Y. J.、Shibauchi T.	4.巻 120
2.論文標題	5 . 発行年
Two superconducting states with broken time-reversal symmetry in FeSe1-xSx	2023年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Proceedings of the National Academy of Sciences	e2208276120
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1073/pnas.2208276120	有
オープンアクセス	国際共著
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	該当する

〔学会発表〕 計26件(うち招待講演 3件/うち国際学会 11件)
1.発表者名 Kota Ishihara
Note Islimate
2 . 発表標題 Superconducting gap structure and chiral superconductivity in UTe2
3.学会等名
GIMRT, REIMEI and IRN Aperiodic joint international workshop(招待講演)(国際学会)
4 . 発表年 2022年
1 .発表者名 六本木雅生,石原滉大,田中優之介,小河弘樹,岡田昂,劉蘇鵬,向笠清隆,水上雄太,上床美也,R.Grasset,M.Konczykowski,
Brenden R. Ortiz, Stephen D. Wilson,橋本顕一郎,芝内孝禎
2 . 発表標題
カゴメ格子系超伝導体CsV3Sb5における超伝導対称性
3.学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年
4 · 光表年 2022年
1 . 発表者名
房センジェー,水上雄太,今村薫平,難波隆一,石原滉大,橋本顕一郎,芝内孝禎
2 . 発表標題
Ki taev候補物質Na2Co2Te06における磁場中比熱の角度依存性
3 . 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4.発表年
2022年
1.発表者名
石原滉大,小林雅之,六本木雅生,松浦康平,水上雄太,M. Konczykowski,橋本顕一郎,芝内孝禎
2 . 発表標題 Fe(Se,S)における不純物効果と超伝導ギャップ構造
U(UU,U) U(I) V(I) T(I) 別木C足山等T ドンノ特足

3 . 学会等名

4.発表年 2022年

日本物理学会2022年秋季大会

1	1	彩	丰	耂	夕	

難波隆一,今村薫平,池内萌,出倉駿,森初果,宮本辰也,岡本博,村山陽奈子,笠原裕一,松田祐司,石原滉大,橋本顕一郎,芝内孝禎

2 . 発表標題

キタエフスピン液体候補物質 -RuCl3のsublimation法による単結晶試料合成と特性評価

3.学会等名

日本物理学会2023年春季大会

4.発表年

2023年

1.発表者名

近藤玲央名,石原滉大,松浦康平,水上雄太,橋本顕一郎,芝内孝禎

2 . 発表標題

磁場角度分解抵抗測定を用いた正方晶Fe(Se,S)におけるネマティック超伝導状態の検証

3 . 学会等名

日本物理学会2023年春季大会

4.発表年

2023年

1.発表者名

小河弘樹,六本木雅生, Yipeng Cai, Guoqiang Zhao, Mohamed Oudah, Supeng Liu, 今村薫平, Marta-Villa de Toro Sanchez, C, Cyrus Young, Jinsong Zhang, Igor Markovic, 渡辺孝夫, 藤井武則, 松浦康平, 石原滉大, 橋本顕一郎, Douglas A. Bonn, 小嶋健児, 植村泰朋, 芝内孝禎

2 . 発表標題

ミュオンスピン回転法を用いたFeSe1-xTexにおける時間反転対称性の破れの検証

3.学会等名

日本物理学会2023年春季大会

4.発表年

2023年

1.発表者名

永島拓也,石原滉大,小林雅之,六本木雅生,松浦康平,水上雄太,Romain Grasset, Marcin Konczykowski,橋本顕一郎,芝内孝禎

2 . 発表標題

不純物効果を用いたFe(Se,S)の超伝導ギャップ構造の研究

3 . 学会等名

日本物理学会2023年春季大会

4 . 発表年

2023年

1.発表者名

Kota Ishihara, Masayuki Kobayashi, Masaki Roppongi, Kohei Matsuura, Yuta Mizukami, Marcin Konczykowski, Kenichiro Hashimoto, Takasada Shibauchi

2 . 発表標題

Superconducting gap structure and impurity effect in tetragonal FeSe1-xSx

3.学会等名

APS March Meeting 2023 (国際学会)

4.発表年

2023年

1.発表者名

Masaki Roppongi, Koki Ogawa, Yipeng Cai, Guoqiang Zhao, Mohamed Oudah, Supeng Liu, Marta-Villa De Toro Sanchez, Cyrus Young, Jinsong Zhang, Igor Markovic, Takao Watanabe, Takenori Fujii, Kohei Matsuura, Kota Ishihara, Kenichiro Hashimoto, Douglas A Bonn, Kenji M Kojima, Yasutomo J Uemura, Takasada Shibauchi

2.発表標題

Probing time-reversal symmetry breaking in FeSe1-xTex superconductors by muon spin relaxation

3. 学会等名

APS March Meeting 2023 (国際学会)

4 . 発表年

2023年

1.発表者名

Supeng Liu, Masaki Roppongi, Kota Ishihara, Brenden Ortiz, Stephen D Wilson, Romain Grasset, Marcin Konczykowski, Kenichiro Hashimoto, Takasada Shibauchi

2.発表標題

Study of magnetotransport properties in the novel kagome superconductor $\mbox{CsV3Sb5}$

3.学会等名

APS March Meeting 2023 (国際学会)

4.発表年

2023年

1.発表者名

Shengjie fang, Kumpei Imamura, Ryuichi Namba, Kota Ishihara, Yuta Mizukami, Kenichiro Hashimoto, Takasada Shibauchi

2 . 発表標題

Field dependent specific heat measurements of the Kitaev quantum spin liquid candidate Na2Co2Te06

3 . 学会等名

APS March Meeting 2023 (国際学会)

4.発表年

2023年

1. 発表者名 Kenichiro Hashimoto, Asato Onishi, Yoichi Kageyama, Masaki Roppongi, Kota Ishihara, Brenden Ortiz, Stephen D Wilson, Takasada Shibauchi
2. 発表標題 Nematic susceptibility in the kagome superconductor CsV3Sb5
3.学会等名 APS March Meeting 2023(国際学会)
4 . 発表年 2023年
1.発表者名 Kota Ishihara
2. 発表標題 Superconducting gap structure and anomalous lower critical field in UTe2
3.学会等名 Superstripes 2023(招待講演)(国際学会)
4 . 発表年 2023年
1.発表者名
石原滉大
2 . 発表標題 UTe2における超伝導ギャップ構造とカイラル超伝導状態
3.学会等名 日本物理学会第78回年次大会(招待講演)
4 . 発表年 2023年
1.発表者名 永島拓也,石原滉大,六本木雅生,今村薫平,Romain Grasset,Marcin Koczykowski,Brenden R. Ortiz, Andrea C. Salinas, Stephen D. Wilson,橋本顕一郎,芝内孝禎
2 . 発表標題 AV3Sb5(A = K, Rb)の超伝導ギャップ対称性の研究
3.学会等名 日本物理学会第78回年次大会

4 . 発表年 2023年

1.発表者名 房センジェー,今村薫平,難波隆一,水上雄太,石原滉大,橋本顕一郎,芝内孝禎
2 . 発表標題 キタエフ量子スピン液体候補物質Na2Co2Te06における比熱の磁場角度依存性
3 . 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4 . 発表年 2023年
1 . 発表者名 難波隆一,今村薫平,笠原裕一,松田祐司,石原滉大,橋本顕一郎,芝内孝禎
2 . 発表標題 sublimation法によるキタエフ候補物質 -RuCl3の純良単結晶試料合成と精密比熱測定
3.学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4 . 発表年 2023年
1.発表者名 今村薫平,池内萌,難波隆一,石原滉大,橋本顕一郎,栗田伸之,田中秀数,松田祐司,EG. Moon,芝内孝禎
2 . 発表標題 キタエフ物質 -RuCl3の磁気相における極低温磁場角度分解比熱測定
3.学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4 . 発表年 2023年
1 . 発表者名 小林夏野,有岡幸一郎,野原大和,板橋勇輝,岩佐義宏,今村薫平,石原滉大,芝内孝禎
2 . 発表標題 NbSe2ミスフィット積層カルコゲナイドにおける積層構造と超伝導
3.学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4 . 発表年 2023年

1.発表者名

近藤玲央名,石原滉大,松浦康平,劉蘇鵬,水上雄太,橋本顕一郎,芝内孝禎

2 . 発表標題

磁気トルク測定を用いた正方晶Fe(Se,S) におけるネマティック超伝導状態の検証

3.学会等名

日本物理学会2024年春季大会

4.発表年

2024年

1.発表者名

永島拓也,石原滉大,六本木雅生,Romain Grasset, Marcin Koczykowski, Brenden R. Ortiz, Stephen D. Wilson,橋本顕一郎,芝内孝 禎

2 . 発表標題

磁場侵入長測定によるAV3Sb5(A=K, Rb)の超伝導ギャップ対称性の研究

3 . 学会等名

日本物理学会2024年春季大会

4.発表年

2024年

1. 発表者名

Ryuichi Namba, Kumpei Imamura, Ying Xing, Yuichi Kasahara, Yuji Matsuda, Kota Ishihara, Kenichiro Hashimoto, Takasada Shibauchi

2 . 発表標題

Physical properties of high-quality single crystals of the Kitaev spin liquid candidate -RuCl3 grown by the sublimation method

3.学会等名

APS March Meeting 2024 (国際学会)

4.発表年

2024年

1.発表者名

Yuichi Kasahara, Ying Xing, Shota Suetsugu, Tomoya Asaba, Yuhki Kohsaka, Ryuichi Namba, Kumpei Imamura, Kota Ishihara, Kenichiro Hashimoto, Takasada Shibauchi, Yuji Matsuda

2 . 発表標題

Presence/absence of thermal conductivity oscillations and quantized thermal Hall effect in ultra-clean crystals of Kitaev magnet -RuCl3

3 . 学会等名

APS March Meeting 2024 (国際学会)

4 . 発表年

2024年

1	登夷老名
	. #./٧ = =

Reona Kondo, Kota Ishihara, Kohei Matsuura, Supeng Liu, Yuta Mizukami, Kenichiro Hashimoto, Takasada Shibauchi

2 . 発表標題

Study on nematic superconductivity in tetragonal Fe(Se, S) using magnetic torque measurements

3 . 学会等名

APS March Meeting 2024 (国際学会)

4.発表年

2024年

1.発表者名

Kota Ishihara, Takuya Nagashima, Masaki Roppongi, Kumpei Imamura, Romain Grasset, Marcin Konczykowski, Brenden R Ortiz, Andrea C Salinas, Stephen D Wilson, Kenichiro Hashimoto, Takasada Shibauchi

2 . 発表標題

Superconducting gap structure of AV3Sb5 (A=K, Rb) probed by magnetic penetration depth measurements

3 . 学会等名

APS March Meeting 2024 (国際学会)

4.発表年

2024年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

[その他]

_

6.研究組織

	- H/1 / C/MILINEW		
	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			
フランス	Ecole Polytechnique			
米国	University of California Santa Barbara	Columbia University		
カナダ	University of British Columbia	TRIUMF	McMaster University	
中国	Zhejiang University	Chinese Academy of Sciences		