

重い電子系超伝導体 CeCoIn₅における超低温下 NMR 測定

物質系専攻 47-166032 田代 光輝

指導教員：山下 穰（准教授）

キーワード：重い電子系、磁気共鳴、量子臨界点、超低温、非従来型超伝導

【研究背景と目的】

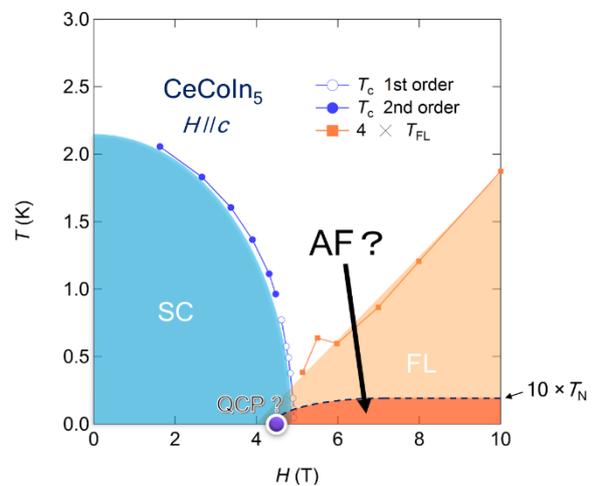
超伝導体は大きく二つに分けられる。1つはフォノン—電子相互作用が起源の従来型超伝導であり、運動量空間において等方的な超伝導ギャップ構造を持つ。もう1つは起源が明らかになっていない非従来型超伝導であり、よく異方的なギャップ構造を持っている。前者はアルミニウムやスズ、鉛などの単金属で、後者は例えば銅酸化物系や鉄系、重い電子系といった強相関物質群で見られる。

非従来型超伝導は量子臨界点(Quantum Critical Point, QCP)の近くでよく観測される。QCPとは秩序相と無秩序相の間の2次の相転移が絶対零度で起こる相図上の点のことである。QCPの近くでは比熱や電気伝導率などの物理量が、QCP起源の強い量子揺らぎにより、有限温度で非フェルミ液体的な振る舞いを示す。非従来型超伝導への転移温度 T_c が QCP 直上で最大になることが多いため、QCPの強い量子揺らぎが非従来型超伝導を引き起こしていると考えられている。

QCP 近傍の非従来型超伝導が観測される物質系の1つに、 f 電子系化合物を含む重い電子系物質群がある。重い電子系物質群では、 f 電子と伝導電子の混成により有効質量 m^* が自由電子の100-1000倍の大きさであり、系のエネルギースケールが比較的小さい。それゆえ、磁場や圧力といった外部パラメータを調節することで、電子状態を容易に変えることができる。このことから重い電子系物質群は、QCPと非従来型超伝導の間の相互作用を研究するのに適している。

重い電子系物質群に属する CeCoIn₅ は、非従来型の d 波超伝導を示す。転移温度は $T_c = 2.3$ K と Ce 系化合物の中で最も高く、常圧下で超伝導が現れる。電気抵抗率[1]や比熱[2]などの温度依存性が低温で非フェルミ液体的な振る舞いを示すため、QCPに近い物質であると考えられている。 c 軸方向の上部臨界磁場 $H_{c2} = 5$ T において、⁵⁹Co の $1/T_1T(T_1$:核スピン緩和時間)が低温で温度降下とともに発散し、 H_{c2} の近傍に磁場誘起の反強磁性 (AFM) QCP が存在することが示唆されている[3]。一般的に QCP の近くには磁気秩序相の存在が期待されるが、これまで希釈冷凍機を用いて行われた実験では、20 mK 以上の温度領域で AFM 秩序相は観測されていない。

AFM 相が本当に存在するのか確かめるため、我々の研究室では以前、 c 軸方向の磁場中で CeCoIn₅ のド・ハース・ファン・アルフェン (de Haas-van Alphen, dHvA) 振動の測定を行った[4]。その結果 dHvA 振幅が 20 mK 以下で減少し、20 mK 以下の超伝導相外に反強磁性転移が示唆された(図 1)。しかし、dHvA 測定だけでは 20 mK 以下にどのような秩序が現れているのかを確定することはできない。

図 1: 予想される CeCoIn₅ の新しい相図(c 軸磁場中)

20 mK 以下の温度領域で反強磁性転移が起きるのかをはっきりさせるため、今回我々は CeCoIn₅ の核磁気共鳴(Nuclear Magnetic Resonance, NMR)測定を行い、縦磁気緩和率 T_1 の温度依存性を調べた。 T_1 の大きさはスピン揺らぎの強さを表し、磁気転移温度で極大を示すために反強磁性転移の有無を調べることができる。

【セットアップ】

CeCoIn₅ の単結晶を用意し、 c 軸方向に 8 T の磁場を印加した。核断熱消磁冷凍機によりサンプルを ~5 mK まで冷却し、パルス NMR 法により ⁵⁹Co(核スピンモーメント $I=7/2$) の中央の遷移($1/2 \leftrightarrow -1/2$) の $1/T_1$ の温度依存性測定を行った。

【結果と考察】

始めはサンプルを確実に冷却するために液体 ³He にサンプルを浸した。まず、NMR パルスによる発熱効果を確認するために、⁵⁹Co の $1/T_1$ の rf パルスパワー依存性を測定した。各温度において低パワー領域で $1/T_1$ がパルスパワーに依存しないことを観測し、その領域での $1/T_1$ を各温度での値とした。これにより得られた $1/T_1 T$ の温度依存性が図 2 の緑のプロットである。60 mK 以上では $1/T_1 T$ は先行研究[3]と一致した。一方、50 mK 以下では $1/T_1 T$ が高温とともに増大したが、 $1/T_1$ のピークは観測されなかった。すなわち、20 mK において磁気秩序転移を観測することはできなかった。

その後、NMR のパルス条件を詳細に見直したところ、 $1/T_1$ がパルスパワーに依存していても、サンプルに発熱の影響がある可能性が示された。

サンプルの発熱効果を抑制するために、サンプルに銀線をインジウム半田で接続し、クライオスタットとの熱接触を改善した。また、発熱効果の指標としてスピンエコー強度の温度依存性に注目した。エコーの強度はボルツマン因子を介して温度に依存し、~10 mK で最大値を取るため(図 3 の実線)、発熱を無視できるパルス条件ならばこの極値構造が再現されると期待される。

図 3 の緑のプロットは、可能な限りパルスを弱めて測定した ⁵⁹Co のセンターピーク強度の温度依存性であり、降温と共に単調に増加する振る舞いが見られた。この挙動は発熱効果では説明できない。そこで我々は、⁵⁹Co のスピンエコー減衰率 $1/T_2$ の温度依存性測定を行った。その結果、 $1/T_2$ が降温と共に小さくなるためにエコー強度が増大することが分かった(図 4 のプロット)。また、この $1/T_2$ の挙動は中央遷移の 2 準位のスピン占有数平均の温度依存性(図 4 の実線)に良く似ており、共鳴する核スピンと同じエネルギー準位にいるスピンの T_2 緩和を起こすことが

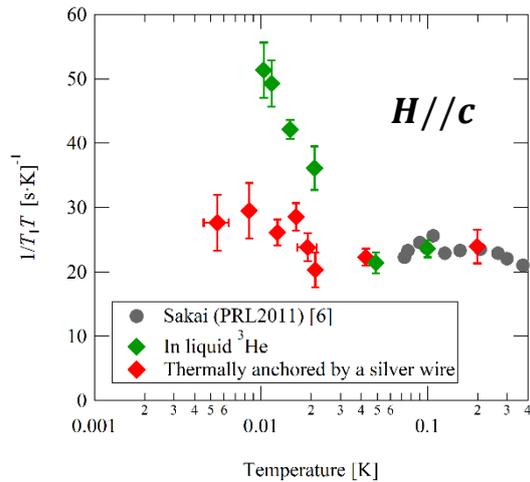


図 2: ⁵⁹Co の $1/T_1 T$ の温度依存性

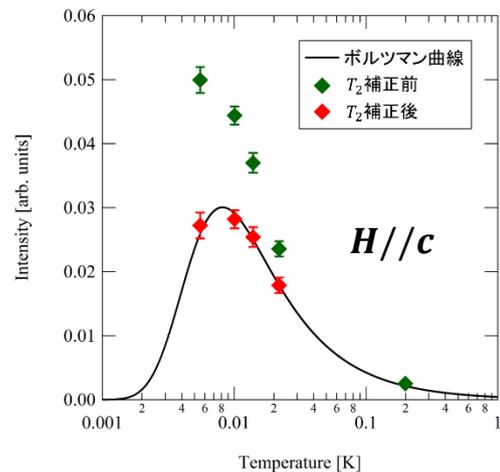


図 3: ⁵⁹Co センターピーク強度の温度依存性
ボルツマン曲線は T_2 補正後のプロットに合わせて定数倍している。

示唆された。

エコー強度の温度依存性から $1/T_2$ の寄与を除くと、図3の赤いプロットが得られた。10 mK以下で減少する挙動を観測でき、ボルツマン曲線でフィットできたため(図3の実線)、この測定で用いたパルスの条件で発熱の影響を無視できると判断した。

このパルス条件で再び $1/T_1T$ の温度依存性測定を行うと、図2の赤いプロットで示すように、5 mKまで $1/T_1T$ がほとんど一定となるコリンハ則に従う温度依存性が観測された。この測定結果から、始めに観測された $1/T_1T$ の増大(図2の緑のプロット)が発熱効果によるものであることが明らかになったと同時に、 ^{59}Co の NMR 測定では磁気秩序の証拠は見られないことが分かった。

CeCoIn₅ の類似物質である CeRhIn₅ では QCP 近傍で $\mathbf{Q} = (1/2, 1/2, 1/2)$ の AFM が観測されており [5]、もし我々の期待している CeCoIn₅ の AFM の \mathbf{Q} ベクトルが同じである場合、結晶の対称性から Co サイトでは AFM は観測できず、2種類ある In サイトの内の片方(In(2)サイト)で NMR 測定をする必要がある。しかし、In(2)サイトでは T_2 が短いために発熱を抑えたパルス条件での測定が難しかった。

【まとめと今後の展望】

我々は CeCoIn₅ の単結晶を 20 mK 以下の超低温領域まで冷却して NMR 測定を行い、 c 軸磁場で AFM 相が出現するかどうか調べた。サンプルとクライオスタットの熱接触を改善することで 10 mK 以下まで ^{59}Co の T_1 測定を行えた。また、NMR のスピンエコー強度の温度依存性を測定して T_2 補正を行うと理論曲線を再現し、発熱を抑えた測定ができていることを確認できた。 ^{59}Co の $1/T_1T$ の温度依存性には AFM による変化を観測されなかったことから、20 mK 以下で観測された dHvA 振幅の温度変化は $\mathbf{Q} = (1/2, 1/2, 1/2)$ の AFM によるもの、もしくは AFM 以外の原因によるものと考えられる。今後の展望としては、NMR の信号強度を改善することによって In(2)サイトの測定を行うことや、比熱や熱膨張率、磁気抵抗の測定を行うことで、本当に AFM 相があるかどうか明らかにすることなどがあげられる。

【参考文献】

- [1] Bianchi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 257001 (2003).
- [2] Ikeda *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **70**, 2248 (2001).
- [3] Sakai *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 137001 (2011).
- [4] 山田章悟 修士論文(新領域創成科学研究科、山下研究室) (2017).
- [5] M. Yashima *et al.*, *Phys. Rev. B* **79**, 214528 (2009).

【学会発表】

1. 日本物理学会 2016 年秋季大会 「CeCoIn₅ における超低温下 NMR 測定」
2. 日本物理学会 第 72 回年次大会 「CeCoIn₅ における超低温下 NMR 測定 II」

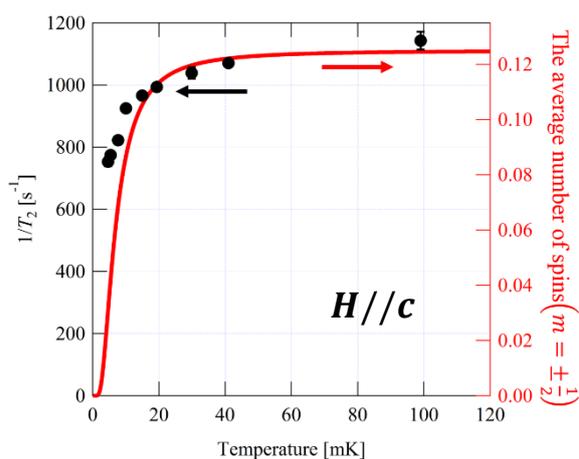


図 4: ^{59}Co の $1/T_2$ の温度依存性(プロット、左軸)と、中央遷移に関わる 2 準位のスピンの平均占有数の温度依存性(実線、右軸)。