

博士論文

重い電子系化合物CeIrSi₃における
超伝導と電子構造の磁場・圧力特性

飯田 祐己

平成26年

目次

第 1 章	序論	1
1.1	強相関 f 電子系の磁性と電子構造	1
1.1.1	強相関 f 電子系の磁性と Doniach の相図	1
1.1.2	強相関 f 電子系の $4f$ 電子状態と電子構造	3
1.1.3	BaNiSn ₃ 型の Ce 化合物の $4f$ 電子状態と電子構造	4
1.2	重い電子系圧力誘起超伝導体	13
1.2.1	圧力-温度相図と重い電子系超伝導	13
1.2.2	CeRhIn ₅ の圧力-温度相図と磁性と超伝導の共存	16
1.2.3	CeIrSi ₃ と CeRhSi ₃ の圧力-温度相図	20
1.3	研究目的	25
第 2 章	実験方法	26
2.1	試料作製と評価	26
2.2	電気抵抗率測定用試料の準備	26
2.3	加圧方式	28
2.4	比熱測定	28
2.5	電気抵抗率測定	29
第 3 章	実験結果と考察 :	
	CeIrSi ₃ の反強磁性相内の超伝導	30
3.1	CeIrSi ₃ のアニール効果と超伝導の圧力-温度相図	30
3.1.1	常圧における超伝導の振る舞い	30
3.1.2	圧力下における電気抵抗の振る舞い	34
3.2	考察	52
3.2.1	電気抵抗測定による CeIrSi ₃ のバルク超伝導の検証	52
3.2.2	CeIrSi ₃ の圧力-温度相図	56
3.2.3	ひずみによる超伝導と重い電子系圧力誘起超伝導体	58
第 4 章	実験結果と考察 :	
	CeIrSi ₃ の横磁気抵抗測定	61
4.1	常圧における反強磁性相内の異常	61
4.2	横磁気抵抗測定	64

4.2.1	$H//b$ -axis、 $j//a$ -axis	66
4.2.2	$H//b$ -axis、 $j//c$ -axis	68
4.2.3	初回励磁後の残留抵抗の変化	72
4.3	考察	76
4.3.1	常圧における $j//c$ -axis の異常	76
4.3.2	電子構造の圧力変化	77
第 5 章 総括と今後の展望		85
参考文献		87
論文リスト		91
発表リスト		93

論文要約

研究背景及び目的

Ce 化合物をはじめとする重い電子系では、しばしば磁気秩序が消失する圧力近傍で超伝導が出現する。典型物質の 1 つである CeRhIn_5 では、磁性と超伝導が共存している状態が見いだされている。超伝導は、Ce の $4f$ 電子が伝導電子と混成することによって生じた重い準粒子が担っている。 $4f$ 電子は同時に磁性の起源ともなっているが、磁性と超伝導の両方の性質をみたす状態がどのようなものか具体的な描像は分かっていない。また、磁性と超伝導が共存する状態がこの系に普遍的に現れる現象か明らかではない。本研究で対象とする重い電子系圧力誘起超伝導体 CeIrSi_3 は、反強磁性相内に超伝導相が深く入り込んだ CeRhIn_5 と類似の圧力-温度相図が電気抵抗測定より得られているが、反強磁性相内の超伝導は詳しく調べられていない。また、 CeRhIn_5 は $4f$ 電子の局在性が強いと考えられるのに対して、 CeIrSi_3 は遍歴性が強いと考えられる。両者で f 電子の混成の強さが異なっている可能性があり、 CeIrSi_3 の反強磁性相内の超伝導特性を明らかにすることは、重い電子系の超伝導を理解するうえで非常に重要である。

$4f$ 電子系では、磁気秩序を形成する局在状態から非磁性の遍歴状態 (重い電子状態) にどのように移り変わるのか、多くの研究がなされているが共通の理解は得られていない。磁気秩序の消失とともに量子臨界点で電子構造の変化が起こるという考え方と、磁気相転移とは別の場所で電子構造の 1 次相転移が起こるという考え方が提案され、議論されている。 $4f$ 電子の性質を理解することは、磁気秩序が消失する圧力近傍で生じる重い電子系超伝導の物性を理解する上で重要である。本研究で注目した CeIrSi_3 と、同一結晶構造の CeRhSi_3 は、中性子回折実験から SDW と考えられている。また、両化合物は、似た磁気構造と c - f 混成の強さを持つことから、似た電子構造を持つことが期待されるが、dHvA 効果測定より観測されたフェルミ面は似ていない。また、圧力下 dHvA 測定より、 CeIrSi_3 のみフェルミ面の変化を示唆する結果が得られているが、観測されているフェルミ面は部分的で電子構造全体の変化かどうかは明らかでない。

本研究では、上記 2 つの視点から、遍歴磁性を示す重い電子系圧力誘起超伝導体における磁性と超伝導の共存、磁性が消失する近傍に位置する CeIrSi_3 の電子構造及びその圧力変化について明らかにすることを目的とし、 CeIrSi_3 の超伝導特性と磁気抵抗の圧力変化を調べた。

CeIrSi_3 反強磁性相内の超伝導

本研究の過程において、常圧の電気抵抗の振る舞いに、超伝導に起因すると考えられる抵抗の落ち込みを観測した。この抵抗の落ち込みは、電流密度を増やすと回復する。今回の測定で印加した電流密度は、バルクの超伝導から期待される臨界電流密度より遥かに小さいことから、試料内の微小な領域の超伝導に起因すると考えられる。また、抵抗の落ち込みは、アニール処理を行うと消失する。これらの結果は、ひずみによって局所的に高圧な領域が試料内に僅かに生じ、 CeIrSi_3 が圧力誘起の超伝導体であるために、

バルクではない超伝導を誘起したと解釈できる。

CeIrSi₃ の本質の超伝導特性を調べるために、整形後にアニール処理しひずみの低減を図った試料に対して、圧力下の電気抵抗測定を行った。およそ 1~2 GPa の圧力域の超伝導は、アニール前に常圧でみられた振る舞いと同様の電流密度依存性を持つ不均一な状態であった。電流密度依存性の解析より、バルクの超伝導と期待されるのは、2.17~2.31 GPa 以上の圧力で、この見積もりは、過去の比熱測定の結果と一致する。本研究から、電気抵抗率測定で観測される反強磁性相内の超伝導の大部分は、局所的なひずみに起因する可能性が高いことを明らかにした。バルクの相図からは、反強磁性相への超伝導相の入り込みは非常にせまいように見える。これは、CeIrSi₃ の超伝導と反強磁性が相容れず、競合に近い関係にあることを示唆している。このことは、過去に比熱測定を行ったグループにより示唆されていたが、今回の電気抵抗率測定の結果はこれを強く支持するものである。

CeIrSi₃ の電子構造の圧力変化

CeIrSi₃ の磁氣的性質および電子構造の圧力変化を調べるために、横磁気抵抗測定を行った。常圧及び圧力下で、電子構造 (及び磁気構造) の変化に対応すると考えられる磁気抵抗の異常を観測した。これらの異常は、磁場ヒステリシスを伴うため、1 次相転移であると考えられる。常圧の異常は、dHvA 測定より観測される電子構造が、CeRhSi₃ と大きく異なる理由を与えるものと考えられる。圧力下では、特に 2 GPa 近傍に急激な抵抗率の減少がみられた。この結果は、過去に報告された dHvA 測定の特異な圧力変化と対応する。また、磁場誘起の反強磁性と考えられる抵抗の振る舞いが、今回測定した最高圧の約 2.5 GPa まで観測されるため、電子構造の変化は反強磁性相内で起きていると考えられる。また、磁気抵抗には、2 GPa の異常以外にも、いくつかの圧力域で磁気抵抗の変化がみられた。この結果は、測定した圧力域で逐次的に電子構造の変化が起きていることを示唆している。実際の物質では、複数の伝導バンドが存在することを考慮すると、バンドごとに 4f 電子との混成強度が異なり得ることから、1 回の相転移ではなく逐次的に相転移が起こる可能性がある。

総括

本研究により、CeIrSi₃ の電気抵抗率測定で観測される、反強磁性相内の超伝導の大部分は、局所的なひずみに起因する可能性が高いことを明らかにした。バルクの CeIrSi₃ の圧力-温度相図は、反強磁性と超伝導の共存相が広い圧力域で見出されている CeRhIn₅ の相図とは定性的に異なり、反強磁性と超伝導の共存が普遍的にみられる状態ではないことを示唆するものである。

本研究で指摘した局所的なひずみが誘起する超伝導は、これまで考慮されることがほとんどなかったが、圧力誘起の超伝導体に一般に起こり得る現象である。電気抵抗測定から作成した超伝導相図には、今回のケースのように、本質ではないひずみによる超伝導の領域を含んでしまう可能性がある。例えば、CeRhIn₅ でみられていた、電気抵抗測

定と比熱測定から決定されるそれぞれの超伝導転移温度のずれや、 CeRhSi_3 で反強磁性相内の広い圧力域で電気抵抗測定から観測される特徴的でブロードな超伝導転移は、局所的なひずみによる超伝導でも説明が可能であることを示した。

本研究で観測した、電子構造の変化は反強磁性相内で起こっており、磁気相転移とは別の場所で電子構造の1次相転移がおきるとするシナリオで解釈できる。なお、磁気抵抗の結果からは、電子構造が逐次的に複数の相転移を起こしていることが推察される。