

令和 4 年 5 月 20 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K21842

研究課題名(和文)熱膨張率測定による超低温電子系研究

研究課題名(英文)Studies of strongly-correlated electrons at ultralow temperatures by thermal-expansion measurements

研究代表者

山下 穰(Yamashita, Minoru)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：10464207

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は市販の希釈冷凍機で到達可能な温度より低温の超低温領域( $\sim 1$  mK)まで強相関電子系研究を拡張するための測定技術開発を目的とした研究である。本研究によって超低温まで測定可能な熱膨張率測定セルが完成した。超伝導体CeCoIn5を用いたテスト運転によってその超伝導転移の明瞭な観測に成功した。今後、様々な物質の測定への展開をすすめる。並行して超低温までの電気抵抗測定に挑戦し、低温アンプを用いることでYbRh2Si2の超低温までの電気抵抗測定を実現し、超伝導転移によるものと思われる電気抵抗の減少を確認することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

科学研究においてより低温までの研究を行う事は熱揺らぎに隠れていた物質の本質的性質を明らかにするためには必須である。市販の冷凍機で達成可能な温度より低温の超低温領域( $\sim 1$  mK)での実験には様々な実験的困難があつてこれまでほとんど行われてこなかったが、本研究結果によって熱膨張率の超低温測定が実現したことで相転移をはじめとする様々な熱力学量の測定が可能になった。これは、様々な物質における超低温測定につながる成果である。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research is to develop measurement technology to extend the strongly correlated electron system research to the ultra-low temperature region (about 1 mK), which is lower than the temperature that can be reached by a commercially available dilution refrigerator. This research completed a thermal expansion measurement cell that can work even at ultra-low temperatures. A clear signal caused by the superconducting transition of CeCoIn5 was resolved at 5 mK, demonstrating the performance of the thermal-expansion cell.

At the same time, we challenged the resistivity measurement of down to ultra-low temperatures. By using a low temperature amplifier, we succeeded the resistivity measurement of YbRh2Si2, and observed the decrease in electrical resistance that seems to be related to the superconducting transition.

研究分野：低温物理学

キーワード：超低温測定 熱膨張率 強相関電子系

## 1. 研究開始当初の背景

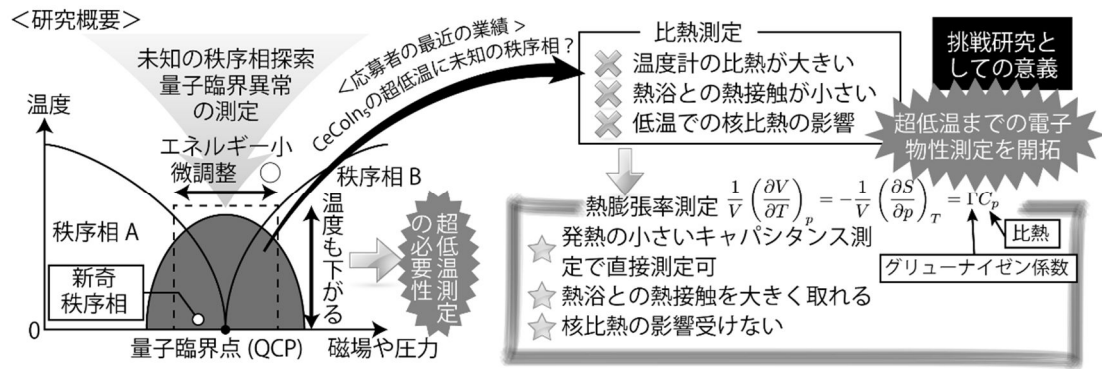
物性研究において可能な限り低温までの測定は、未知の凝縮相の探索や物質の基本的性質を明らかにするうえで最も重要な測定である。金属の電気抵抗をより低温まで測定しようという探索は超伝導の発見につながり、固体ヘリウム3の核磁気秩序の超低温領域(~1 mK)までの探索は、液体ヘリウム3の超流動の発見につながった。未開の低温にまで測定領域を広げることで、我々の物理に対する理解を大きく変革させる現象が発見されてきた。

そうした観点で現在の強相関電子系の研究を俯瞰すると、市販の希釈冷凍機の下限温度(~20 mK)によって研究の進展が阻害されている重要な研究テーマが現れているように見える。その最も重要な例は、絶対零度で2つの異なる秩序相が競合する量子臨界点(QCP)近傍における電子状態の解明である。磁場や圧力を用いて系の状態をQCP近傍に精密に制御すると、発達した量子揺らぎの効果によって電子状態は2つの異なる相の間でどっちつかずになり、非常に大きなエントロピーを保ったまま低温になる。その結果、非従来型超伝導状態を始めとする様々な新奇秩序相が発現する。この研究のためには系のエネルギースケールが小さく、電子状態が制御しやすいf電子を含む希土類化合物が適しているが、その低エネルギースケールのためにより低温までの測定が必要で、市販の希釈冷凍機による測定ではQCPを生み出している秩序相が観測できないなどの問題があった(下図参照)。

より低温の超低温領域ではこれまでヘリウムの物性研究が行われており、そこで開発された**核断熱消磁冷凍機を用いれば超低温環境を得ることはできるが、固体中の電子物性を超低温領域まで測定する手法が確立されていない。**低温までの秩序相探索に対して最も有効な手段は比熱測定であるが、強相関電子系物質の比熱を超低温まで測定するためには次のような問題がある。(1)超低温領域で有効な温度計は試料に比べて大きく、試料の比熱が温度計の比熱に埋もれてしまっていて測定できない。(2)比熱測定では試料を熱浴に対して弱く熱接触させる必要があるが、これでは試料を超低温まで冷却できない(3)低温で大きくなる核ショットキー比熱の影響で電子系由来の比熱の測定が困難になる。

## 2. 研究の目的

**そこで本研究では熱膨張率測定を応用することでこれらの困難を克服し、超低温までの未知の秩序相探索を可能にすることを目的とする。**熱膨張率はグリューナイズン係数を通じて比熱に比例するため、比熱測定と同様に相転移に敏感な測定である。高磁場下でも高精度の測定が可能であるから磁場誘起相転移の観測にも応用可能である。特に、超低温領域に応用できる以下のような特色がある。(1)試料の熱膨張率測定は電極のキャパシタンスの変化として直接測定できるから、温度計の問題を回避できる。さらに、キャパシタンス測定による発熱は無視できるほど小さく、超低温測定に向いている。(2)試料を直接熱浴に接した状態で測定可能であるから、熱接触の問題がない。(3)熱膨張率はエントロピーの圧力微分であり、圧力で変化しない核ショットキー比熱の影響などを受けない。



### 3. 研究の方法

この目的の達成のため、本研究計画では f 電子超伝導物質 CeCoIn<sub>5</sub> の超低温熱膨張率測定に挑戦する。この物質には次のような特徴がある。(1)ゼロ磁場では超伝導状態へと転移するが、高磁場(~10 T)下では通常金属と同じフェルミ液体的性質を示し、熱膨張率は温度に比例して変化することが知られている。この既知の温度依存性を利用すれば**試料が確実に超低温まで冷却されていることを確認しながら研究を進めることが可能**である。(2)f 電子物質における強相関の効果によって**電子の有効質量が1,000倍近くまで増加しているために、熱膨張率も通常金属よりも1,000倍大きく**、低温までの測定に適している。(3)**上部臨界磁場(~5 T)近傍に QCP**がある可能性が指摘されており、磁場による状態の精密制御が可能である。応募者の QCP 近傍での量子振動測定から得られた未知の相への転移が確認できれば、超低温までの熱膨張率測定から秩序相を発見した最初の例となるため、その意義は非常に大きい。

また、並行して超低温度までの電気抵抗測定に挑戦する。電気抵抗率は超伝導体をはじめとする金属の基礎物性の一つであるが、測定には電流を印可する必要があるために超低温測定のためのハードルは高い。高性能低温アンプを超低温部分に導入することで、極めて小さな励起電流下での電気抵抗測定を実現し、その技術検証を行う。

### 4. 研究成果

本研究予算によって小型膨張計を購入し、それを超低温装置に組み込むための周辺装置の設計・製作を行った。通常の冷凍機では、冷凍機との接合部分には熱伝導率の良い銅を用いるが、超低温で高磁場が印可される領域では銅の核スピン比熱が大きくなってしまいうため全て銀を加工して製作した。また、磁場中で試料を回転させて試料軸に対する磁場印可方向を変えられるようにするためにピエゾローテータに固定できるように設計した。加えて、小型膨張系のキャパシタンスの読み取り精度を上げるため、シールド側がクライオスタットトップでだけ接地されている超伝導同軸配線を室温部分から最低温度の試料空間まで新たに導入した。この新規同軸配線と合わせ、低温部分にリファレンス用のキャパシタンスを同じ温度領域に設置した。測定に当たっては、この低温リファレンスと小型膨張計でホイートストンブリッジを形成し、温度ドリフトの軽減を実現させた。

設計した周辺機器の製作や超伝導同軸配線の導入に当たっては、この研究計画の初年度後半から世界中で新型コロナウイルスの感染が広がった影響を受け、装置購入や周辺機器製作も長期中断を余儀なくされた。計画より時間はかかってしまっただが、最終的には図1のように完成させることができた。

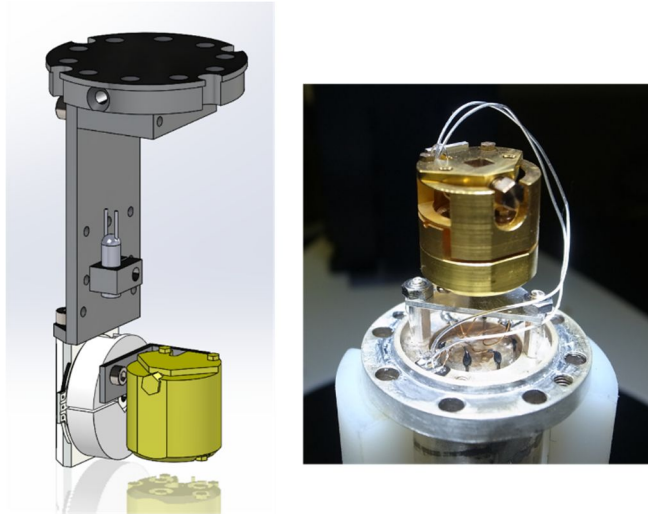


図1 設計した熱膨張率測定セル（左）とセットアップの写真の一例（右）。

この熱膨張率測定セルを用いて超伝導体  $\text{CeCoIn}_5$  の熱膨張率測定を超低温まで行った。図2は試料の  $c$  軸に磁場を印可したときの、5 mK における磁歪測定の結果である。図にあるように 5 T 付近の超伝導転移に伴う転移が明瞭に観測されており、その前後における磁歪も観測できた。

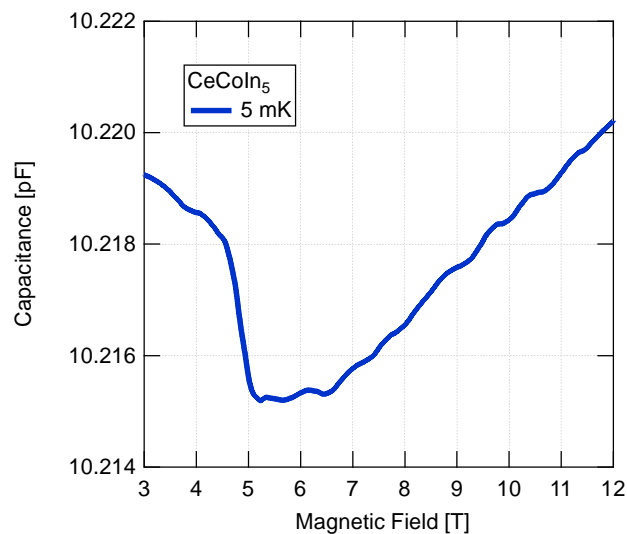
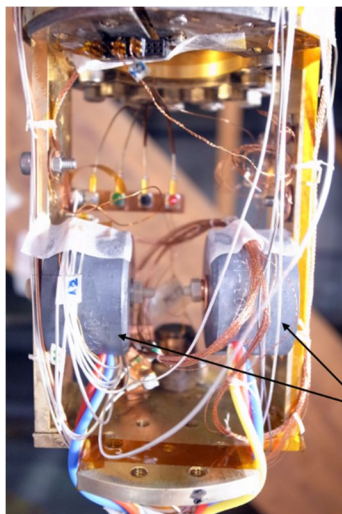


図2 超伝導体  $\text{CeCoIn}_5$  の 5 mK における磁歪測定の結果。磁場は試料の  $c$  軸に印可した。

この  $\text{CeCoIn}_5$  の測定と並行して、重い電子系物質  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  における電気抵抗測定を並行して行った。この物質では 2 mK の超低温領域に超伝導状態が存在する可能性が磁化測定などから示唆されたが、電気抵抗測定によるゼロ抵抗の確認はまだであった。その検証を目指して超低温までの電気抵抗測定に挑戦した。超低温における電気抵抗測定では、その印可電流に対する発熱を抑える必要がある。その目的のために図3（左）にあるようなコイルを用いた低温アンプを超低温におけるゼロ磁場領域に設置した。このコイルによって電圧増幅を低温部分で行うことで、S/N 比を向上させ、より小さな励起電流による測定を可能にした。

その結果、図3の右にあるようにゼロ磁場の 10 mK 以下の温度領域で電気抵抗の減少を観測することに成功した。しかし、ゼロ抵抗を観測するには至らなかった。今後、試料依存性を調べることや、電気抵抗に用いた配線の接触抵抗を改善する必要があると考えている。



導入した  
低温アンプ

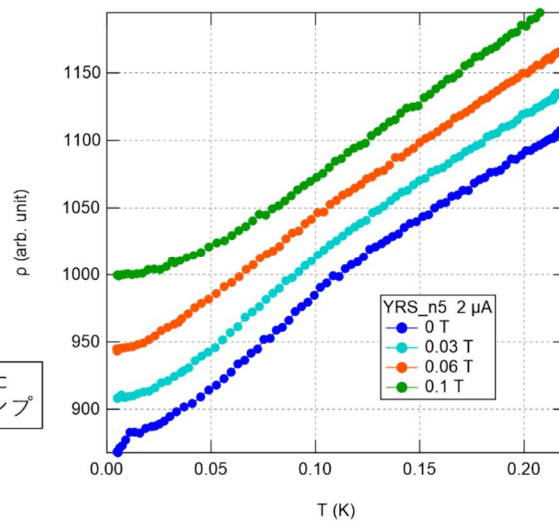


図3 (左) 超低温部分に導入した低温アンプ。(右)  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  の電気抵抗の温度依存性。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Yamashita Minoru, Sugiura Shiori, Ueda Akira, Dekura Shun, Terashima Taichi, Uji Shinya, Sunairi Yoshiya, Mori Hatsumi, Zhilyaeva Elena I., Torunova Svetlana A., Lyubovskaya Rimma N., Drichko Natalia, Hotta Chisa	4. 巻 6
2. 論文標題 Ferromagnetism out of charge fluctuation of strongly correlated electrons in $(\text{BEDT-TTF})_2\text{Hg}(\text{SCN})_2\text{Br}$	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 npj Quantum Materials	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41535-021-00387-6	査読の有無 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 該当する

1. 著者名 Ishihara K., Takenaka T., Miao Y., Mizukami Y., Hashimoto K., Yamashita M., Konczykowski M., Masuki R., Hirayama M., Nomoto T., Arita R., Pavlosiuk O., Wisniewski P., Kaczorowski D., Shibauchi T.	4. 巻 11
2. 論文標題 Tuning the Parity Mixing of Singlet-Septet Pairing in a Half-Heusler Superconductor	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review X	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevX.11.041048	査読の有無 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 該当する

1. 著者名 Yan J., Jiang Z. Z., Xiao R. C., Lu W. J., Song W. H., Zhu X. B., Luo X., Sun Y. P., Yamashita M.	4. 巻 4
2. 論文標題 Field-induced topological Hall effect in antiferromagnetic axion insulator candidate $\text{EuIn}_2\text{As}_2$	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.4.013163	査読の有無 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 該当する

1. 著者名 Yamashita M., Tashiro M., Saiki K., Yamada S., Akazawa M., Shimosawa M., Taniguchi T., Takeda H., Takigawa M., Shishido H.	4. 巻 102
2. 論文標題 Ultralow temperature NMR of $\text{CeCoIn}_5$	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 165154
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.165154	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 Yamashita M., Gouchi J., Uwatoko Y., Kurita N., Tanaka H.	4. 巻 102
2. 論文標題 Sample dependence of half-integer quantized thermal Hall effect in the Kitaev spin-liquid candidate -RuCl <sub>3</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 220404(R)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.220404	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 Akazawa Masatoshi, Shimozawa Masaaki, Kittaka Shunichiro, Sakakibara Toshiro, Okuma Ryutaro, Hiroi Zenji, Lee Hyun-Yong, Kawashima Naoki, Han Jung Hoon, Yamashita Minoru	4. 巻 10
2. 論文標題 Thermal Hall Effects of Spins and Phonons in Kagome Antiferromagnet Cd-Kapellasite	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review X	6. 最初と最後の頁 41059
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevX.10.041059	査読の有無 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 該当する

1. 著者名 Takenaka T., Ishihara K., Roppongi M., Miao Y., Mizukami Y., Makita T., Tsurumi J., Watanabe S., Takeya J., Yamashita M., Torizuka K., Uwatoko Y., Sasaki T., Huang X., Xu W., Zhu D., Su N., Cheng J.-G., Shibauchi T., Hashimoto K.	4. 巻 7
2. 論文標題 Strongly correlated superconductivity in a copper-based metal-organic framework with a perfect kagome lattice	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eabf3996
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.abf3996	査読の有無 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 該当する

1. 著者名 Nakamura Shota, Hyodo Kazushi, Matsumoto Yuji, Haga Yoshinori, Sato Hitoshi, Ueda Shigenori, Mimura Kojiro, Saiki Katsuyoshi, Iso Kosei, Yamashita Minoru, Kittaka Shunichiro, Sakakibara Toshiro, Ohara Shigeo	4. 巻 89
2. 論文標題 Heavy Fermion State of YbNi <sub>2</sub> Si <sub>3</sub> without Local Inversion Symmetry	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 024705 ~ 024705
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.024705	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

1. 著者名 Yamashita M., Sato Y., Tominaga T., Kasahara Y., Kasahara S., Cui H., Kato R., Shibauchi T., Matsuda Y.	4. 巻 101
2. 論文標題 Presence and absence of itinerant gapless excitations in the quantum spin liquid candidate EtMe3Sb[Pd(dmit)2]2	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 140407 ~ 140407
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.140407	査読の有無 有
オープンアクセス 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	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 赤澤仁寿, 武田晃, 山下穰, 藤間友理, 有馬孝尚
2. 発表標題 磁気スキルミオンホスト物質 GaV4Se8の熱輸送特性
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 赤澤仁寿, 下澤雅明, 山下 穰, 高阪勇輔, 秋光 純, 土屋直人, 井上克也, J. Zaccaro, I. Gautier-Luneau, D. Luneau
2. 発表標題 キラル反強磁性体CsCuCl3のc軸熱輸送特性II
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 齊木克祥, 山下穰, 下澤雅明, 武田晃, 瀧川仁, 宍戸寛明
2. 発表標題 CeCoIn5における超低温下NMR測定 IV
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 Minoru Yamashita
2. 発表標題 Anomalous Thermal Hall Effect in Chiral Antiferromagnet Mn <sub>3</sub> Sn
3. 学会等名 2019 KPS Fall Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 赤澤仁寿, 武田晃, 山下穰, 藤間友理, 徳永祐介, 有馬孝尚, Hyun-Yong Lee, Jung Hoon Han
2. 発表標題 磁気スキルミオンホスト物質GaV <sub>4</sub> Se <sub>8</sub> の熱ホール効果における磁場中冷却の影響
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田村響, 武田晃, 赤澤仁寿, Jian Yan, 山下穰, 鳴海康雄, 佐藤和樹, 萩原政幸, 和氣剛, 中村裕之
2. 発表標題 ダイヤモンド格子反強磁性体MnSc <sub>2</sub> S <sub>4</sub> の熱輸送測定
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 麦健聡, 武田晃, 赤澤仁寿, 田村響, Jian Yan, 山下穰, R. Kalaivanan, R. Sankar, K. Y. Choi
2. 発表標題 キタエフスピン液体候補物質Na <sub>2</sub> Co <sub>2</sub> Te <sub>06</sub> の熱輸送測定
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	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
---------	---------