

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：32641

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K20893

研究課題名（和文）磁場方位制御可能なサブピコメートル膨張計の開発と新奇超伝導相の研究

研究課題名（英文）Development of a sub-picometer dilatometer and its application to the research of novel superconducting phases under a precise control of the magnetic-field orientation

研究代表者

橘高 俊一郎（Kittaka, Shunichiro）

中央大学・理工学部・准教授

研究者番号：80579805

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）：本研究では、サブピコメートルにまで分解能を向上させた膨張計を開発し、「磁場方位」も制御要素に加えた極低温磁歪測定を実施して超伝導内部相転移の観測・解明を目指した。当初の計画通りに膨張計の高感度化を実現し、さらに膨張計の小型化にも成功した。非従来型超伝導体CeCoIn5とSr2RuO4の研究に応用し、上部臨界磁場より僅かに低い磁場領域において超伝導内部相転移を示唆する微弱な磁歪異常を検出した。特に、CeCoIn5においては磁歪異常が試料長の測定方位に依存することを磁場角度分解測定から明らかにした。本研究により、新奇超伝導相の秩序変数を同定するための新たな実験アプローチを確立することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、試料長の変化をサブピコメートルの高感度で検出できるキャパシタンス式膨張計を開発し、ベクトルマグネットおよび希釈冷凍機と組み合わせることで、0.1 K以下の極低温まで磁場角度分解磁歪測定が可能な実験装置を実現した。本装置を用いて超伝導相内部で発現するFFLO相転移の検出にも成功し、CeCoIn5のFFLO相転移が異方的な試料長変化を伴うことを見出した。以上のように、本研究の実施によりFFLO超伝導の新たな研究アプローチを開拓することができた。本装置の応用可能性は極めて広く、非自明な相転移を示す様々な系の研究に応用していくことで物性物理学の発展に今後も幅広く貢献することが期待できる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed a compact homemade dilatometer with a high resolution better than sub-picometer, and performed low-temperature magnetostriction measurements with precise control of the magnetic-field orientation, in order to study novel superconducting phases. We used this dilatometer for the study of unconventional superconductors CeCoIn5 and Sr2RuO4, and detected weak magnetostriction anomaly suggesting the occurrence of a novel superconducting phase in the field region slightly below the upper critical field. In particular, we found from field-angle-resolved measurements that the magnetostriction anomaly in CeCoIn5 depends on the measured direction of the sample length. This technique established a new experimental approach to identify the order parameter of novel superconducting phases.

研究分野：Condensed matter physics

キーワード：膨張計 磁歪 FFL0超伝導 磁場方位制御

## 1. 研究開始当初の背景

磁性体が磁場中で別の秩序状態へ相転移するように、超伝導体もクーパー対の内部自由度を利用して異なる超伝導状態へ相転移することが起こり得る。例えば、パウリ常磁性効果の強い第二種超伝導体では、強磁場下でクーパー対が有限の重心運動量を持つ特殊な超伝導状態（所謂、Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov 状態、以下 FFLO 状態）に相転移すると予言されている。こうした超伝導の標準理論の枠組みを超えた新奇現象は新たな学理を切り拓く鍵となるが、実験的に確立された例は多くない。その要因として、相転移に伴う物理量の異常が微弱である可能性や FFLO 状態の発現条件に厳しい制約が課されることなどが挙げられる。

## 2. 研究の目的

本研究では、サブピコメートルにまで分解能を向上させた膨張計を開発し、「磁場方位」も制御要素に加えた極低温磁歪測定を実施して、超伝導内部相転移の観測やその機構解明を目指した。特に、従来の測定では見逃されてきた微弱な異常も実験事実として提供し、超伝導内部相の秩序変数の同定、およびその発現メカニズムに迫る新たな実験的アプローチを確立することを目的とした。

## 3. 研究の方法

### 磁歪測定の原理

磁歪測定には、図 1 のような小型のキャパシタンス式膨張計を用いる。応募者らが磁化測定用に独自に開発・改良を進めてきた高感度キャパシタンス式磁力計(単色部分)に試料固定用部品(斜線部分)を加えることで磁歪測定を可能にする。細い弾性ワイヤーで支えられた可動電極および対向する固定電極からなる平行平板コンデンサーで試料の長さの変位 $\Delta L$ を電気容量の変化として検出する。電気容量が 10 pF 程度になるように試料固定用ネジを締めつけて可動電極を接近させれば、読み出しに高分解能( $10^{-7}$  pF)のキャパシタンスブリッジを用いることで 1 pm 以下の高分解能を達成できる。

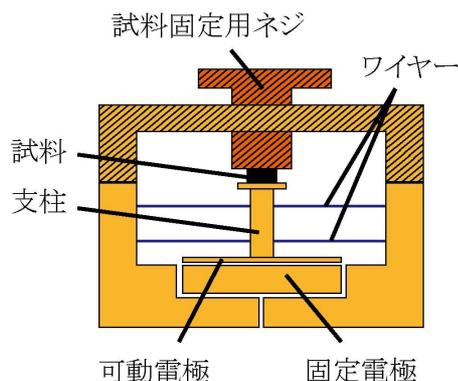


図 1: キャパシタンス式膨張計の概略図。

## 4. 研究成果

本研究課題の主要な成果を以下に述べる。

### 1. キャパシタンス式膨張計の高感度化と小型化

### 膨張計 1 号機の製作

試作した膨張計を用いて熱膨張・磁歪測定を行ったところ、測定分解能は 2 pm 程度であった。そこで、以下のような改良を施し、1 pm 以下の測定分解能を達成した（図 2：膨張計 1 号機）。

- (1) 電極間の水平性が安定するように支柱を長くし、ばねの役割を担うワイヤーの間隔を広げ、可動電極および支柱の傾きを抑制した。
- (2) 試料固定用ネジをロックナット式に変更し、僅かなネジの緩みによる誤差も防ぐデザインに改善した（再現性の向上）。
- (3) 材料毎の膨張率の差による膨張計の局所的な歪みや電極間距離への影響を防ぐため、全ての部品をリン青銅製に統一した（バックグラウンドの低減・再現性の向上）。
- (4) 従来は数秒間であった電気容量測定の積算時間を数十秒にまで増やした（測定感度の向上）。



図 2: 自作した膨張計 1 号機。

開発した膨張計 1 号機は  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  と  $\text{CeCoIn}_5$ （試料 1, 2）の  $c$  軸磁歪測定に用いた。

### 膨張計 2 号機の製作

膨張計 1 号機では対策(1)で長い支柱を採用したが、膨張計の素材の熱膨張・磁歪の寄与が大きくなることや、膨張計のサイズが大きくなるデメリットもある。特に、後者は冷凍機内の狭い試料空間（ $\phi 30$  mm）で設置自由度が低下することにも繋がった。膨張計 1 号機を用いて様々な試料の磁歪測定を行った結果、支柱が傾く効果は、試料固定用ねじに取り付ける試料の結晶性や接着剤を適切に選ぶことで、ある程度は抑制できることが分かった。そこで、支柱の長さを短くし、膨張計のフレーム直径を 25 mm から 20 mm に小型化した膨張計 2 号機を製作した（図 3 左）。

この改良により、測定分解能をサブピコメートルに保ったまま、冷凍機内で膨張計を様々な方向に取り付けることが可能になった（図 3 右）。例えば、水平方向に磁場を印加できる超伝導マグネットと組み合わせて膨張計（冷凍機）を鉛直軸中心に回転させることにより、試料長の測定方向に対して磁場を垂直にしたり、平行にしたりすることが可能となった。また、膨張計 2 号機では試料固定用ねじを取り付けるブリッジ部とフレーム部を一体型にして、フレーム部の歪み解消を試みた。



図 3: 自作した膨張計 2 号機。測定方向が水平方向と平行になるように冷凍機に取り付けたときの様子（右）。

開発した膨張計 2 号機は  $\text{CeCoIn}_5$ （試料 3, 4）の  $c$  軸磁歪測定に用いた。

### 膨張計 3 号機の製作

膨張計 2 号機ではブリッジ部とフレーム部を一体型にしたが、1 号機と比べてもその効果は顕著には現れなかった。分離型の方が取り扱い易いため、2 号機と同様のデザインで分離型の膨張計 3 号機を製作した(図 4)。膨張計 2 号機では極板間距離を近づけた際にキャパシタンスの LOSS(電気抵抗の逆数)が大きくなる不具合が生じたため、膨張計 3 号機では固定電極と可動電極の表面を研磨する対策を施した。その結果、電極表面の凹凸を軽減したことにより LOSS の上昇が抑えられ、膨張計 2 号機よりも若干ではあるが高精度に測定することが可能となった。



図 4: 自作した膨張計 3 号機。

開発した膨張計 3 号機は  $\text{CeCoIn}_5$  (試料 4) の  $a$  軸磁歪測定に用いた。

## II. $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$ の面内磁場下における磁歪測定

開発したキャパシタンス式膨張計を用いて、磁場方位を精密に制御しながら非従来型超伝導体  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の  $c$  軸方向の試料長  $L_c$  の変化を精密に測定した。その結果、 $ab$  面に平行な磁場下において上部臨界磁場  $H_{c2}$  で明瞭な 1 次相転移を観測し、 $H_{c2}$  では試料長が  $\Delta L_c/L_c \sim 10^{-8}$  程度変化することを明らかにした(図 5)。1 mm の試料長に対して、変化の大きさ  $\Delta L_c$  は 10 pm 程度であり、超伝導内部相転移を検証するためには測定分解能が 1 pm 以下であることが望まれる。本研究で開発した膨張計はその水準を満たしており、 $H_{c2}$  よりも少し低い磁場 ( $H_k$ ) で弱い磁歪異常を見出すことができた。同一試料を用いてキャパシタンス式ファラデー法による極低温磁化測定も行ったが、磁化で観測した  $H_{c2}$  転移はややブロードであり、超伝導相内部の異常も不明瞭であった。これはファラデー法で磁場勾配を用いたことが一因であり、比較的大きな試料では磁場の不均一性によって転移がブロードになったと考えられる。以上のように、従来の磁化測定では困難であった  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の超伝導相内部における微弱な変化を高感度磁歪測定から検出することができた。一方、この磁歪異常が FFLO 相転移と関連するかについては議論の余地がある。そこで、FFLO 相の実現が期待され、磁歪の変化も格段に大きい重い電子系超伝導体  $\text{CeCoIn}_5$  の磁歪測定を行った。

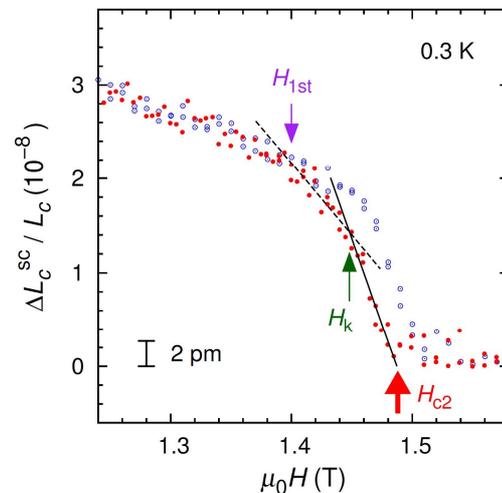


図 5:  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  の  $c$  軸磁歪測定結果の一例 (0.3 K,  $H // [110]$ )。赤(青)色が磁場下げ(上げ)過程の結果。

### III. 重い電子系超伝導体 $\text{CeCoIn}_5$ の $c$ 軸磁場下における磁歪測定

$\text{CeCoIn}_5$  は超伝導 1 次相転移を伴う強いパウリ常磁性効果を示し、 $ab$  面方向の磁場下では FFLO 超伝導の実現が有力視されている。一方、 $c$  軸方向の磁場下においては、 $ab$  面と同様に強いパウリ常磁性効果が観測されるが、FFLO 超伝導の実現可能性は未だ明らかになっていない。そこで、本研究では開発した自作の膨張計を  $\text{CeCoIn}_5$  の研究に応用し、まずは  $c$  軸方向の磁場下における磁歪測定を 0.1 K 程度の極低温まで行った。4 つの試料について磁歪測定を行った結果、2 つの試料 (試料 2, 3) については超伝導 1 次相転移が観測されず、試料依存性が比較的顕著であることが分かった。残り 2 つの試料 (試料 1, 4) については、 $c$  軸方向の磁場下で履歴を伴う超伝導 1 次相転移の観測に成功したので、温度変化についても詳細に調べた。その結果、いずれの試料においても、極低温では 1 次相転移点近傍で磁歪の多段構造が観測された。さらに、最も鋭い 1 次相転移が見られた試料 4 については、 $c$  軸方向に加えて  $a$  軸方向の試料長変化も測定した。ベクトルマグネットを用いて磁場方位を精密制御し、それぞれの方位の試料長変化について  $bc$  面内磁場角度依存性まで調べた結果、 $c$  軸磁場下の上部臨界磁場近傍で  $c$  軸磁歪は 2 段構造を示すが、 $a$  軸磁歪は単一の相転移しか示さないことが分かった。その原因として、FFLO 相転移において異方的な試料長変化が伴う可能性を指摘した。得られた結果の詳細は日本物理学会等で口頭発表を行った。本研究期間終了後に研究成果をまとめた論文を *Physical Review B* 誌に投稿し、掲載されることが決定している。

本研究の実施により、キャパシタンス式膨張計の開発・改良が進み、サブピコメートルの高感度を達成した上で膨張計を小型化することにも成功し、精密磁歪測定の実用可能性を当初想定した以上に広げることができた。FFLO 超伝導の実現が期待される非従来型超伝導体  $\text{Sr}_2\text{RuO}_4$  と  $\text{CeCoIn}_5$  において微弱な磁歪異常を検出することにも成功し、FFLO 超伝導研究においても重要な進展があった。また、本研究で開発した磁場角度分解磁歪測定装置の実用可能性を広げるために  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  など磁場角度に敏感に応答する量子現象の研究を並行して進めた。本研究の実施により、試料長の温度・磁場・磁場角度依存性をサブピコメートルの分解能で測定することが可能となり、精密物性研究の新たな扉を拓くことができた。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Y. Shimizu, Y. Kono, T. Sugiyama, S. Kittaka, Y. Shimura, A. Miyake, D. Aoki, and T. Sakakibara	4. 巻 92
2. 論文標題 Development of high-resolution capacitive Faraday magnetometers for sub-Kelvin region	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 123908(1-9)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0067759	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 Shunichiro Kittaka, Yohei Kono, Suguru Tsuda, Toshiro Takabatake, and Toshiro Sakakibara	4. 巻 90
2. 論文標題 Field-Angle-Resolved Landscape of Non-Fermi-Liquid Behavior in the Quasi-Kagome Kondo Lattice CeRhSn	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 064703(1-6)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.90.064703	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 Makoto Yokoyama, Yutoku Honma, Yoshiki Oshima, Rahmanto, Kohei Suzuki, Kenichi Tenya, Yusei Shimizu, Dai Aoki, Akira Matsuo, Koichi Kindo, Shota Nakamura, Yohei Kono, Shunichiro Kittaka, and Toshiro Sakakibara	4. 巻 105
2. 論文標題 Nature of field-induced antiferromagnetic order in Zn-doped CeCoIn <sub>5</sub> and its connection to quantum criticality in the pure compound	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 054515(1-9)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.105.054515	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 Shota Nakamura, Shunichiro Kittaka, Kazushige Machida, Yusei Shimizu, Ai Nakamura, Dai Aoki, and Toshiro Sakakibara	4. 巻 106
2. 論文標題 Anisotropic field response of specific heat for a ferromagnetic superconductor UCoGe in magnetic fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 035152(1-9)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.106.035152	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 Yusei Shimizu, Shunichiro Kittaka, Yohei Kono, Toshiro Sakakibara, Kazushige Machida, Ai Nakamura, Dexin Li, Yoshiya Homma, Yoshiki J. Sato, Atsushi Miyake, Minoru Yamashita, and Dai Aoki	4. 巻 106
2. 論文標題 Anomalous electromagnetic response in the spin-triplet superconductor UTe2	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214525(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.214525	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 Shunichiro Kittaka, Yohei Kono, Kaito Tsunashima, Daisuke Kimoto, Makoto Yokoyama, Yusei Shimizu, Toshiro Sakakibara, Minoru Yamashita, and Kazushige Machida	4. 巻 -
2. 論文標題 Modulation vector of the Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov state in CeCoIn5 revealed by high-resolution magnetostriction measurements	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	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) なし	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9件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Y. Kono, G. Lapertot, Y. Shimizu, D. Aoki, T. Sakakibara, and S. Kittaka
2. 発表標題 Field-angle-resolved specific-heat measurements of YbRh2Si2
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (LT29) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, N. Kikugawa, T. Terashima, S. Uji, D. Sokolov, and K. Machida
2. 発表標題 Detection of a first-order superconducting transition in Sr2RuO4 by ultra-high-resolution magnetostriction measurements
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2020/2021 (SCES2020/21) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 橘高 俊一郎, 綱島 海斗, 木元 大介, 河野 洋平, 清水 悠晴, 山下 穰, 榊原 俊郎, 横山 淳, 町田 一成
2. 発表標題 磁場角度分解磁歪測定から探るCeCoIn5のFFLO相転移
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 河野 洋平, G. Lapertot, 清水 悠晴, 青木 大, 榊原 俊郎, 橘高 俊一郎
2. 発表標題 YbRh2Si2の磁場角度分解磁気熱量効果とエントロピー
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 橘高 俊一郎
2. 発表標題 磁場方位精密制御下における磁歪・比熱測定による超伝導研究
3. 学会等名 広島大学大学院先進理工系科学研究科設立3周年記念ポストシンポジウム「量子物質研究の新展開」(招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 河野 洋平, G. Lapertot, 清水 悠晴, 青木 大, 榊原 俊郎, 橘高 俊一郎
2. 発表標題 YbRh2Si2の磁場角度分解比熱と磁気熱量効果測定
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 橘高 俊一郎
2. 発表標題 磁場方位制御下での極低温熱量測定から拓く新奇量子現象
3. 学会等名 第1回アシンメトリ量子研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 河野 洋平, Gerard Lapertot, 清水 悠晴, 青木 大, 榊原 俊郎, 橘高 俊一郎
2. 発表標題 量子臨界領域におけるYbRh <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の磁場角度分解比熱
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 河野 洋平, 橘高 俊一郎, 榊原 俊郎, 菊川 直樹, 寺嶋 太一, 宇治 進也, Dmitry Sokolov, 町田一成
2. 発表標題 熱力学量からみたSr <sub>2</sub> RuO <sub>4</sub> の上部臨界磁場近傍の超伝導状態
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究室ホームページ <a href="https://www.phys.chuo-u.ac.jp/labs/kittaka/index.html">https://www.phys.chuo-u.ac.jp/labs/kittaka/index.html</a>
--

## 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
連携研究者	河野 洋平  (Kono Yohei)  (60827252)	中央大学・理工学部・助教    (32641)	

## 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			
ドイツ	マックス・プランク研究所			
フランス	CEA Grenoble			