

一軸圧力印加による負圧領域に隠された 反強磁性相の探索

細 井 優*

Exploring Hidden Antiferromagnetism in a Negative Pressure Region by Uniaxial Pressure

Suguru HOSOI*

Unconventional superconductivity in strongly correlated electron systems often emerges near the verge of electronically ordered phases, indicating a strong correlation with the superconducting pairing mechanism. Antiferromagnetism, as a typical example, can host superconductivity near its critical point. To investigate the relationships between superconductivity and antiferromagnetism, the heavy fermion superconductor CeCoIn_5 , which has the highest $T_c = 2.3$ K among Ce-based Compounds, has attracted much attention. While the normal state of CeCoIn_5 is paramagnetic, antiferromagnetic fluctuations may play a pivotal role in hosting high temperature superconductivity, as suggested by its similarity to the antiferromagnet CeRhIn_5 . However, there are no direct evidence for the presence of antiferromagnetism at zero magnetic field. The most plausible reason for this is that antiferromagnetism might be hidden in a negative pressure region, which cannot be accessed using standard hydrostatic pressure techniques. Here, we focused on uniaxial stress that can apply both positive and negative pressure as an alternative method to explore the putative hidden antiferromagnetism. To achieve this goal, we developed uniaxial stress apparatus capable of applying large strain using the thermal expansion. Furthermore, to explore the antiferromagnetism in the superconducting phase, we also developed a novel microwave probe that operates within the uniaxial stress device.

1. 背景と狙い

銅酸化物高温超伝導体や重い電子系超伝導体などに現れる非従来型超伝導はしばしば反強磁性相近傍に発現することから、その超伝導の発現機構を紐解く上で反強磁性相との関係解明は重要課題の一つである。中でも重い電子系超伝導体 CeCoIn_5 は、発見以来最も注目を集める超伝導体の一つである。この物質はCe化合物の中で常圧下における最も高い超伝導転移温度 $T_c = 2.3$ Kを示し、この高い T_c の背景には反強磁性ゆらぎが大きく関与されていることが示唆されている。しかしながら、 CeCoIn_5 において磁場によって誘起される反強磁性相の存在は報告されているものの¹⁾、ゼロ磁場下での反強磁性相は見つかっていないのが現状である。その考えられる最大の要因として、反強磁性相が従来の静水圧力印加技術では実現し得ない、負圧領域に反強磁性相が隠れていることが挙げられる。これは類似物質の反強磁性体 CeRhIn_5 の圧力下の振る舞いなどからも示唆される²⁾。この負圧領域に隠された反強磁性相を見つける上で、試料の引っ張りと圧縮の両方向に圧力を加えることができる一軸圧力に注目した。正方晶の CeCoIn_5 に静水圧力を印加すると、 a 軸長と c 軸長の格子パラメータ比 c/a が増大することから³⁾、 c 軸方向に圧縮する一軸圧力を印加することにより、負圧領域を開拓できる可能性がある。ゼロ磁場下での反強磁性相の発見に至れば、 CeCoIn_5 における超伝導の発現機構に迫る決定的な情報を得られると期待される。さらに、従来の一軸圧力ではもっぱら系に異方性を導入する対称性を破る外場として活用されてきたが、本研究が成功すれば、系の次元性を制御するより普遍的な外場としての有用性を新たに見出すことができる。

2. 実験手法

一軸圧力下の反強磁性相を探索する上で、本研究では大きく2つの課題設定を行なった。第一に、反強磁性相を誘起できるほど十分な一軸圧力印加手法を確立することである。圧力印加にはピエゾ素子を駆動源にした低温環境下においても自在に圧力を印加できる一軸圧力装置を用いた⁴⁾。しかしながら一軸圧装置を運用するにはある程度大きな試料が要求されるが、 CeCoIn_5 は1 mm以上の大型の単結晶育成が可能な化合物であるものの、 c 軸方向に十分長い試料を得るのはしばしば困難であることや、試料にわずかなクラック等が含まれていると圧力が適切に印加できないなどの問題があり、実際

2025年3月1日 受理

* 豊田理研スカラー

米国ロスアラモス研究所

(元 大阪大学大学院基礎工学研究科物質創成専攻)

に使用できる試料サイズは限られてしまうのが現状である．そこで小さな試料にも歪みを印加できるように，試料を基板に貼り付け，この基板を介して一軸圧力を印加する手法を本研究では採用した．この手法でさらに大きな歪みを導入するために，基板の熱収縮を積極的に活用することを目指した．というのも多くの物質は温度を下げると収縮する傾向にあり，試料よりも大きく熱収縮する材料を基板に用いれば，超伝導が起こる極低温において大きな圧縮効果が期待されるからである．もう一つの課題は，一軸圧力によって誘起される反強磁性相が超伝導相に隠れてしまう可能性である．特にゼロ抵抗を示す超伝導状態中では，反強磁性相を検出することが電気抵抗測定では不可能であり，超伝導状態中でも電子状態を調べることができる別のプローブが必要である．そこで，超伝導中の準粒子状態を鋭敏に検知できるマイクロ波表面インピーダンス測定を一軸圧力環境下で測定できる新しい技術開発を試みた．

3. 結果

【基板の熱収縮を用いた一軸圧力印加】

低温で大きく熱収縮する材料は主に樹脂材料が挙げられるが，その多くはヤング率が低く圧力を印加する素材としては不適合である．ある程度大きな熱収縮を示しかつ硬さを保持する物質として，本研究ではガラスエポキシを選定した．このガラスエポキシを基板に用いることで図1に示すように超伝導転移が減少する振る舞いが見られた．これは静水圧力における負圧方向に制御できていることを示唆する．文献^{5,6)}や予備実験での超伝導転移の歪み依存性から，およそ0.27 %の圧縮ひずみの導入ができていると考えられる．しかしながら，さらに圧縮歪みをピエゾ素子により導入すると超伝導転移はむしろ上昇する傾向が見られた．この振る舞いは大きな一軸圧力領域では単純な負圧効果では説明つかない非単調な寄与があることが示唆される．

【一軸圧力下マイクロ波表面インピーダンス測定系の開発】

マイクロ波表面インピーダンス測定には，マイクロ波を密閉空間に閉じ込めた際の共振現象を利用する．多くは金属銅や超伝導体できた空洞共振器を用いるが，十分低い共振周波数で駆動するには空洞共振器のサイズが非常に大きくなってしまうため，一軸圧力装置と組み合わせることは非常に難しい．そこで本研究では高い誘電率を有するルチル結晶に着目し，ルチル内にマイクロ波を真空よりも狭い空間内に共振させることにより，一軸圧力装置と組み合わせることに成功した(図2)．テスト測定として，鉄系超伝導体FeSe ($T_c = 9$ K)を対象に，マイクロ波スペクトルを測定し，その超伝導転移を観測することに成功した．さらに，他の鉄系超伝導体BaFe₂(As_{1-x}P_x)₂についても実際に一軸圧力装置を駆動させながら，表面インピーダンスの圧力依存性を観測することにも成功している．

4. 結論と今後の方針

熱収縮基板を用いた巨大一軸圧力印加や，一軸圧力下のマイクロ波共振器の開発など，本研究で狙いとしていた技術開発は成功している．特に一軸圧力に対する非単調な超伝導転移依存性の詳細について近く論文にまとめる予定である．

また研究期間の途中で海外機関への異動により研究を中断せざるを得ない事情もあり，特に後者のマイクロ波測定をCeCoIn₅に対して行うことは叶わなかったが，鉄系超伝導体の測定結果について論文投稿の準備を進めている．

REFERENCES

- 1) H. Shishido, *et al.*, *PRL*, **120** (2018) 177201.
- 2) G. Knebel, *et al.*, *JPSJ*, **77** (2008) 114704.
- 3) R. S. Kumar, *et al.*, *PRB*, **70** (2004) 214526.
- 4) C. W. Hicks, *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.*, **85** (2014) 065003.
- 5) M. He, *et al.*, *Nat. Commun.*, **8** (2017) 504.
- 6) T. Takeuchi, *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter*, **14** (2002) L261.

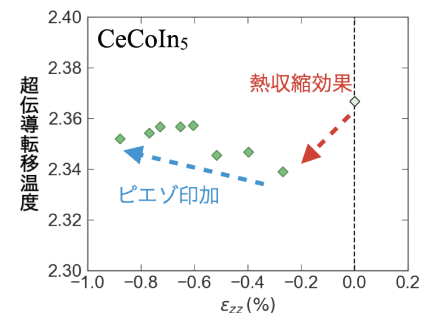


図1 熱収縮基板を用いた一軸圧力下の超伝導転移依存．

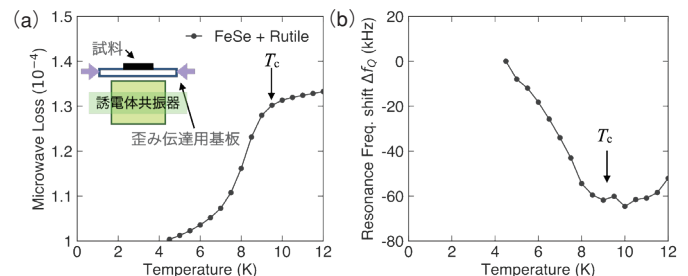


図2 一軸圧力下中でのマイクロ波表面インピーダンス測定．マイクロ波損失の減少 (a) と共振周波数の増大 (b) は鉄系超伝導体FeSeの超伝導転移に由来する．挿入図はマイクロ波共振器の概念図．