

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 20 日現在

機関番号：82626

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23340110

研究課題名(和文) 制御された異方的超高压力下の物理

研究課題名(英文) Physical properties in homogeneous uniaxial high pressure

研究代表者

竹下 直 (TAKESHITA, Nao)

独立行政法人産業技術総合研究所・電子光技術研究部門・主任研究員

研究者番号：60292760

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,700,000円、(間接経費) 3,510,000円

研究成果の概要(和文)：従来なかった「一様かつ異方的」な高圧力を発生する技術開発を行い、そのような圧力下において物性測定を行うことによって、層状構造など、異方的な構造を持った物質において新奇な物性を発現させることを目指した。異方的な圧力発生は試行錯誤の結果、試料形状を極端に薄いものにする等の方法で実現できることが分かった。この結果はBaFe₂As₂の圧力有機超伝導の観測によって実証することができた。銅酸化物では単結晶試料の作成が非常に難しかったため異方性圧力による結果は得られなかったが、対照実験として行ったHg-1223において15万気圧でT_c=153Kの史上最も高い温度での超伝導状態の実現に成功した。

研究成果の概要(英文)：We have developed an experimental technique which enable us to generate "homogeneous uniaxial high pressure" by using cubic anvil type high pressure apparatus. We have succeeded in generating 'effective' uniaxial high pressure by contriving the shape of specimen, which is set in the sample space in cubic anvils. We have confirmed uniaxiality by observing pressure induced superconductivity in BaFe₂As₂. Because of difficulties in synthesis for single crystals of mercury based high-T_c cuprate, we can not perform same uniaxial pressure study in cuprates. However, we observed superconductivity in Hg-1223 polycrystal at isotropical high pressure as a comparison experiment for uniaxial high pressure measurement, then we succeeded in observation for the highest bulk superconducting transition temperature with zero resistivity ever reported(T_c=153K at P=15GPa).

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学物性II

キーワード：高温超伝導 異方的圧力

1. 研究開始当初の背景

高圧力下の物性測定は、2~3万気圧の所謂ピストンシリンダー型高圧力装置の発生圧力の限界を超えると、急に難しいものとなる。圧力値のみを追求するのであればそれほど難易度も高くなく、ダイヤモンドアンビルセルを用いた数十万気圧下での電気抵抗測定などは比較的多く行われている。しかしこの場合、発生する圧力が等方的なものになりづらく、結果に再現性、定量性を求めるのは難しいことが多い。これを克服するためにキュービックアンビル型高圧装置が開発された。研究代表者はここに大幅な改良を施すことで世界で最も高い最大 20 万気圧を発生可能なキュービックアンビル装置を開発し、この 10 年間ほど運用し成果を挙げてきた。これは静水圧的な圧力発生をおこなう圧力下物性測定装置としては世界で最も高いスペックであるといえる。

一方、等方的ではなく異方的であるが、一樣な圧力発生、たとえば面内選択的に圧縮するような実験手法、はさらに難しく、これまで行われてきた例はほとんどない。現在興味を持たれている物質は等方的なものに加え、層状構造、ラダー構造等、何らかの次元性をもったものが多く存在する。これらの結晶に対する圧力効果は、静水圧力下のそれと、結晶の方位を考慮した異方的な圧力のそれとは当然異なると考えられる。意図的に巨大な圧力に対する応答を引き出すことも可能であるかもしれない。また、薄膜も基盤によって加えられる一種の異方的圧力の実験的な生成方法であるといえ、もしもこの異方的で一樣な圧力発生という実験的手段を実現することができれば、薄膜の物性開拓に対する一助となりえるかもしれない。

2. 研究の目的

このような背景の元、研究の目的として(1)「一樣でかつ異方的な圧力発生」を何らかの方法でキュービックアンビル装置の試料空間内に発生させるための技術的な開発(2)これをもちいて、単結晶試料を対象にして実験的に異方的な圧力発生によって静水圧の場合とは違う圧力効果が出現していることを実証する、ことを掲げ、研究を遂行した。

3. 研究の方法

(1)の「一樣でかつ異方的な圧力発生」に関しては、アンビル形状の変更による方法、および試料形状による実効的に異方的な圧力発生、の二つの方法を用いて技術開発を行った。アンビル形状の変更は、現有の小型のキュービックアンビル装置を用いて、アンビルの試作と圧力発生試験を行った。試料形状に関しては、鉄ヒ素系高温超伝導体の母物質である BaFe_2As_2 単結晶試料を用意し、これを ab 面の出た非常に薄い形状の試料とそうではないブロック状の試料とに加压し結果を比較検討することで行った。このような形状

の違いによって試料に加わる実効的な圧力の方向成分が変わる(具体的にはこの薄い試料の場合には ab 面が圧縮される)ことをこれまで経験してきているので、それを具体的に実証しようとしたものである。銅酸化物でも同様の実験を行うため、これに必要な単結晶を合成することを計画した。これは考えていたよりもずっと困難であったため、当初の研究計画にくわえて、結晶育成を行う研究分担者を二人加えた(山本、石角)。

4. 研究成果

まず(1)に関して、アンビル形状の変更をおこなった。具体的には、たとえば上下のアンビルのみ先端径を変更するなどの方法でそちら方向の圧力を低減するなどの方法を試したが、あまり効果的ではなかった。これはおそらく試料空間が MgO ガスケット材のさらに内部に位置しており、ガスケットの表面における圧力の異方性を結果的に試料部分では緩和してしまうからではないかと考えている。更に、例えば6つのアンビルが現在は等距離の圧縮を行うような幾何学的配置になっているが、これを根本的に変更することも考えられる。しかしその場合、機構的に複雑になる、あるいは本来の静水圧的な実験ができなくなる等の問題点が考えられ、実現は難しいと考えられた。

つぎに、試料形状の変更による実効的な異方的圧力発生の試みは、定量性には欠けるが結果的にかなりうまくいった。(2)の単結晶試料を用いた異方性圧力発生の確認に関する内容となるが、 BaFe_2As_2 は鉄ヒ素系の母物質の中では最も明瞭な圧力誘起の超伝導性を示すが、その圧力値が c 軸方向の加压に非常に敏感であることが知られていた。この BaFe_2As_2 単結晶試料の非常に薄く切り取った試料での結果と同クオリティの塊形状での試料での実験を比べると、ab 面の出ている薄い試料が超伝導性を 10 万気圧近くまで示さなかったのに対し、塊形状の試料は 7 万気圧程度からゼロ抵抗状態が出現した。このことは薄膜試料の場合は、その面に対する圧縮のほうが強いような異方的かつ一樣な圧力発生が行われていることを示している。

この様に、試料形状に手を加えることで、静水圧的圧力発生を行ったままで、試料に加わる圧力を実効的に軸性のもの、かつ均一性の高いもの、にすることができることを確立した。次にこの方法を用いて、おそらく ab 面内の圧縮を行うと T_c の上昇に有利になる銅酸化物について単結晶において実験を行おうと考えた。そうすることによって、選択的により大きな正の T_c の圧力効果を得ることが可能になると考えられるからである。しかしながら今回は絶対的に高い T_c の記録を狙うために水銀系の銅酸化物高温超伝導体の単結晶作成を行ったが、これが非常に難しく、2 年度目から山本、石角の物質合成のエキスパートを招き入れ何とか実現させよう

としたが、結果的に満足できる品質の単結晶試料が得られなかったため、銅酸化物に関する異方的圧力の実験に関しては断念せざるを得なかった。

一方、その実験の準備段階として、異方的圧力の結果に対して比較対象となる静水圧力下の実験は単結晶ではなく多結晶試料での実験のほうがより等方性を得やすいため、高圧合成によって作成したの多結晶試料 Hg-1223 ($\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+x}$) を用意し、これをキュービックアンビル装置を用いて 15 万気圧まで加圧しその超伝導転移温度 T_c の変化を電気抵抗率測定によって検証した。

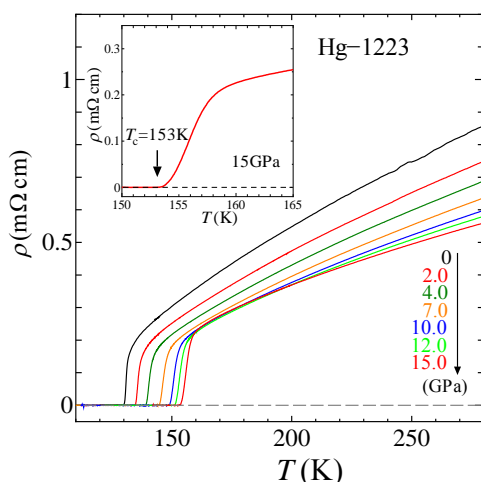


図 1 Hg-1223 の圧力による T_c の上昇

このとき T_c は最高圧力まで増強され続け、最終的にゼロ抵抗状態が 153K にまで上昇した。これは史上最も高い温度での超伝導現象の観測である。この結果は新聞報道などがなされ、広く周知されることとなった。またこれに伴う招待講演等も多く行った。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

Nao Takeshita, Ayako Yamamoto, Akira Iyo, Hiroshi Eisaki, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有、82(2013)023711.
DOI:10.7566/JPSJ.82.023711

〔学会発表〕(計 18 件)

竹下直、伊豫彰、永崎洋、 $\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.8}\text{F}_{1.2}$ の T_c の静水圧力下相図、日本物理学会 2012 年秋季大会
石田茂之、竹下直、永崎洋、鉄ヒ素系化合物の輸送現象と超伝導、日本物理学会 2012 年秋季大会
竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、銅酸化物高温超伝導体の T_c の圧力変化、第 53 回高圧討論会
竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、Hg-1223 の高圧下におけるゼロ抵抗 153K の実現、日本物理学会第 68 回年会
山本文子、竹下直、伊豫彰、永崎洋、

Hg-1223 の高圧下における電気抵抗率 - ドーピング依存性、日本物理学会第 68 回年会

竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、水銀系銅酸化物高温超伝導体の圧力効果、第 1 回パイロクロアワークショップ「高対称性格子状の変幻自在電子」

竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、水銀系銅酸化物高温超伝導体の圧力効果、CMRC 研究会「鉄系・銅酸化物系超伝導研究の新展開」

竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、水銀系銅酸化物高温超伝導体の T_c の圧力効果、日本物理学会 2013 年秋季大会

鶴田一樹、庄司和平、堤一馬、松井英明、美藤正樹、出口博之、山本文子、竹下直、銅酸化物超伝導体 Hg-1223 高圧力下交流磁化測定、日本物理学会 2013 年秋季大会

竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、Enhancement of T_c in Hg-based high- T_c cuprate by isotropic high pressure、Superconductivity research advanced by new materials and spectroscopies(招待講演)

竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、Bulk superconductivity at 153K in $\text{HgBa}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8+x}$ by homogeneous high pressure、26th International Symposium on Superconductivity (招待講演)

竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、銅酸化物の超伝導転移温度はどこまであげられる?、第 54 回高圧討論会(招待講演)

竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、 $T_c = 153\text{K}$ でのゼロ抵抗状態の達成、特別企画(学術講演会、日本物理学会四国支部)

平林輝、竹下直、伊豫彰、永崎洋、石角元志、西尾太一郎、銅酸化物の高温超伝導体の T_c の圧力効果、第 54 回高圧討論会

竹下直、山本文子、伊豫彰、永崎洋、153K の超伝導、日本物理学会 JPSJ フレンドシップミーティング(招待講演)

磯崎捺実、佐久間夏輝、成田琴音、檜山真里奈、平林輝、金城達矢、西尾太一郎、伊豫彰、永崎洋、竹下直、Cu,C 系銅酸化物高温超伝導体の T_c の圧力依存性、日本物理学会第 69 回年会

平林輝、西尾太一郎、竹下直、伊豫彰、永崎洋、 $\text{HgBa}_2\text{Ca}_{n-1}\text{Cu}_n\text{O}_{2n+2+x}$ (Hg-1,2,n-1,n)系高温超伝導体(n=3-6)の T_c の圧力効果、日本物理学会第 69 回年会

竹下直、水銀系銅酸化物の圧力下の超伝導相図、高知大学強相関電子物性研究会

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

竹下 直 (TAKESHITA, Nao)
独立行政法人産業技術総合研究所・電子光
技術研究部門・主任研究員
研究者番号： 60292760

(2) 研究分担者

山本 文子 (YAMAMOTO, Ayako)
独立行政法人理化学研究所・創発物性科学
研究センター・上級研究員
研究者番号： 50398898
(平成24年度より連携研究者)

石角 元志 (ISHIKADO, Motoyuki)
一般財団法人総合科学研究機構・総合科学
研究センター(総合科学研究室)および東
海事業センター・技師
研究者番号： 90513127
(平成24年度より連携研究者)

(3) 連携研究者

伊豫 彰 (IYO, Akira)
独立行政法人産業技術総合研究所・電子光
技術研究部門・上級主任研究員
研究者番号： 50356523

永崎 洋 (EISAKI, Hiroshi)
独立行政法人産業技術総合研究所・電子光
技術研究部門・超伝導エレクトロニクスグ
ループ長
研究者番号： 20242018