

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 4 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25800198

研究課題名(和文)パルス強磁場を用いた多重極限環境下精密物性測定装置の開発

研究課題名(英文)Development of a transport measurement system under multiple extreme conditions

研究代表者

木田 孝則 (Kida, Takanori)

大阪大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：50452412

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究ではTDO法を用いた非接触の表面インピーダンス測定装置を開発し、パルス強磁場・高圧力下における鉄系超伝導体Fe(Te,Se)単結晶($T_c \sim 14$ K)の上部臨界磁場の評価を実施した。常圧下では超伝導転移に対応する明瞭な周波数変化が観測された。これは、これまでのパルス強磁場中電気抵抗測定に比べてかなり高感度な測定結果であった。一方、 $P=2.1$ GPaの場合、磁場変化に対して大きなヒステリシスが観測された。これは、圧力保持に用いている金属ガスケット(SUS310製)からの渦電流によるジュール発熱に起因していると考えられる。これを解決するために今後は非金属製ガスケットの開発が必要である。

研究成果の概要(英文)：We have developed a contactless conductivity measurement apparatus utilizing an rf oscillator based on a proximity detector circuit under high pressure and high magnetic fields. High pressures of up to 6 GPa are generated with a diamond anvil cell (DAC) made of Ni-Cr-Al alloys. High magnetic fields of up to 40 T are generated with a non-destructive pulse magnet. Utilizing this apparatus, we measured the frequency change to determine the upper critical fields (H_{c2}) of Fe(Te,Se). At ambient pressure, $H_{c2}(T)$ for $H \parallel c$ was almost linear against T near T_c and was suppressed at low temperatures compared to the conventional one-band Werthamer-Helfand-Hohenberg (WHH) prediction. Under high pressure, suppression of the $H_{c2}(T)$ at low temperatures became more pronounced. However, we found that the effect of the eddy current heating from the gasket cannot be negligible during field descending process. It is necessary to develop non-metallic gaskets for preventing the Joule's heating.

研究分野：強磁場物性

キーワード：多重極限環境 パルス強磁場 高温超伝導体 上部臨界磁場

1. 研究開始当初の背景

2008年に東工大の細野グループにより鉄を含む物質 $\text{LaFeAs}(\text{O},\text{F})$ が約 26 K で超伝導を示すことが報告され、さらにその後の研究で La を他の希土類元素に変えると 50 K を超す超伝導転移温度 (T_c) が実現されたことから、世界中で鉄系超伝導体の研究が集中的に行われている。鉄系超伝導体物質群の中でも「122系」と呼称・分類される AFe_2As_2 (A; アルカリ土類金属) は比較的良好で大きな単結晶の作製が可能であるため、最も多くの実験的・理論的研究報告がなされている。「122系」は四面体構造の Fe_2As_2 層と A 層が c 軸方向に積層した二次元的な結晶構造を有し、母体では反強磁性金属を示し、元素置換によるキャリア注入あるいは物理圧力印加により反強磁性相関が抑制され、超伝導が誘起される。これまで研究代表者らは、鉄系超伝導体の磁場-温度相図を調べるために磁場中電気抵抗率を測定し、超伝導が壊れる磁場、いわゆる上部臨界磁場 (H_{c2}) を評価してきた。銅酸化物高温超伝導体や鉄系超伝導体では、その T_c が高いことに伴って低温での H_{c2} も非常に大きな値を示し、銅酸化物超伝導体では通常 100 テスラのオーダーとなる。このため H_{c2} の温度依存性や、磁場で超伝導を壊した時の常伝導状態の研究にはパルスマグネットやハイブリッドマグネット (定常磁場) を用いた強磁場中電気抵抗測定が強力なツールとなる。パルス強磁場中電気抵抗測定は一般的に直流法で行われることが多いが、磁場発生時に伴う誘導起電力やノイズが出力電圧に重畳するため、特に低電気抵抗試料 ($R < 0.1 \Omega$) では測定が困難であった。この状況を打開するために、最近我々は高速ロックインアンプを用いたパルス磁場中交流電気抵抗測定装置を開発し、直流法に比べて 10 倍程度 S/N 比を向上させることに成功している (測定限界: $R \sim 0.01 \Omega$)。

本研究ではパルス強磁場中での圧力下輸送現象測定装置の開発を目指している。過去に研究代表者らはピストンシリンダ型圧力セルを用いて、最大磁場 50 テスラまでのパルス強磁場・高圧力下磁化測定装置の開発に成功している (T. Matsunaga *et al.*, *J. Low Temp. Phys.* **159** (2010) 7-10.)。しかしながら、ピストンシリンダ型圧力セルでは最高圧力が 1 GPa 程度であるため、 BaFe_2As_2 の磁場誘起超伝導転移のように、さらに高圧力領域で発現する相転移現象を観測するには不十分である。そこで、近年度我々はパルス磁場中で使用可能な Ni-Cr-Al 製の 30 GPa 級ダイヤモンドアンビル圧力セル (DAC) を開発した。従来の DAC は Cu-Be 合金製が主であるが、Ni-Cr-Al の電気抵抗率は Cu-Be のそれに比べて 1/10 程度であり、さらにセルのサイズを外径 $\square 20 \text{ mm}$ 、長さ 56 mm と小さくすることで、パルス磁場発生時に伴う渦電流によるジュール発熱を抑制することができる。予備実験として、巨大な磁気抵抗を示す半金属のピス

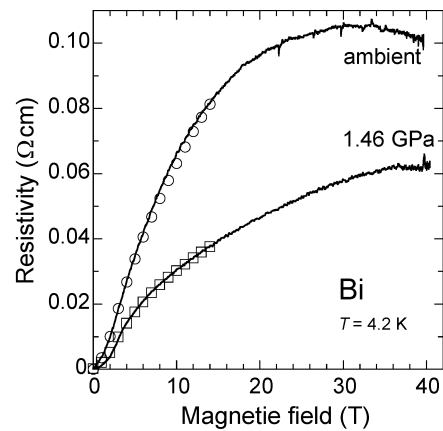


Fig.1 : Resistivity on Bi in pulsed high magnetic fields

マスをを用いてパルス磁場中・高圧力下電気抵抗測定を行ったところ、Fig.1 に示すように、 $T = 4.2 \text{ K}$ 、40 テスラの低温・高磁場で精度良く磁気抵抗の観測に成功した (白抜きシンボルは定常磁場中での実験結果であり、パルス磁場中での実験値と良く一致している。)。DAC は容易に高圧力を発生できる利点があるが、圧力発生空間が狭いことが難点である。現在申請者らが用いている DAC は、ダイヤモンド先端のキュレット径が $\phi 0.55 \text{ mm}$ であり、圧力を封止するガスケットを介すと実際の試料空間は $\phi 0.3 \text{ mm}$ 程度となる。従って、鉄系超伝導体のように低電気抵抗試料では端子間距離が短く制限されてしまうため、通常の四端子法による電気抵抗測定では十分な出力電圧を稼ぐことが非常に困難である。そこで本研究では、トンネルダイオード振動 (Tunnel Diode Oscillation; TDO) 法 (E. Ohmichi *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **75** (2004) 2094.) と呼称される、試料への端子付けが不要な非接触型の電気抵抗測定技術を導入した。

2. 研究の目的

超強磁場、超高压及び極低温などに代表される環境は極限環境と呼ばれる。このような極限環境を組み合わせた多重極限環境下では、物質系が様々な新奇現象を示すことはよく知られている。本申請研究では、非破壊型パルスマグネットとダイヤモンドアンビル圧力セルを組み合わせた、パルス磁場中・高圧力下輸送現象測定装置を開発し、圧力誘起超伝導転移を示す鉄系超伝導体の母物質 (BaFe_2As_2 など) の上部臨界磁場およびその異方性を調べ、この物質群の超伝導発現機構の解明に向けた指針を得ることを目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、TDO 法を用いた非接触の表面インピーダンス測定装置を開発した。TDO 法の利点は、輸送現象における磁場変化あるいは温度変化に伴う相転移現象を非接触で測定できること、またセンサーコイルの巻き数

がわずか数ターンで十分な測定感度を得られることである。これは極めて狭い空間での測定が可能であることを意味しており、DACを用いた測定に適している。

4. 研究成果

$\text{Fe}_{1+\delta}\text{Se}$ は $T_c \sim 8$ K の超伝導体であり、 $P = 4$ GPa の圧力印加で T_c が 37 K まで大きく上昇することが知られている。Fig.2(a) は $\text{Fe}_{1+\delta}\text{Te}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$ 単結晶 ($T_c \sim 14$ K) の常圧下の測定結果であり、超伝導転移に対応する明瞭な周波数変化が観測された。これは、これまでのパルス強磁場中電気抵抗測定に比べてかなり高感度な測定結果である。Fig.2(b) は 2.1 GPa の場合の結果であるが、磁場変化に対して大きなヒステリシスが観測された。これは、圧力保持に用いている金属ガスケット (SUS310 製) からの渦電流によるジュール発熱に起因していると考えられる。これを解決するために今後は非金属製ガスケットの開発が必要である。

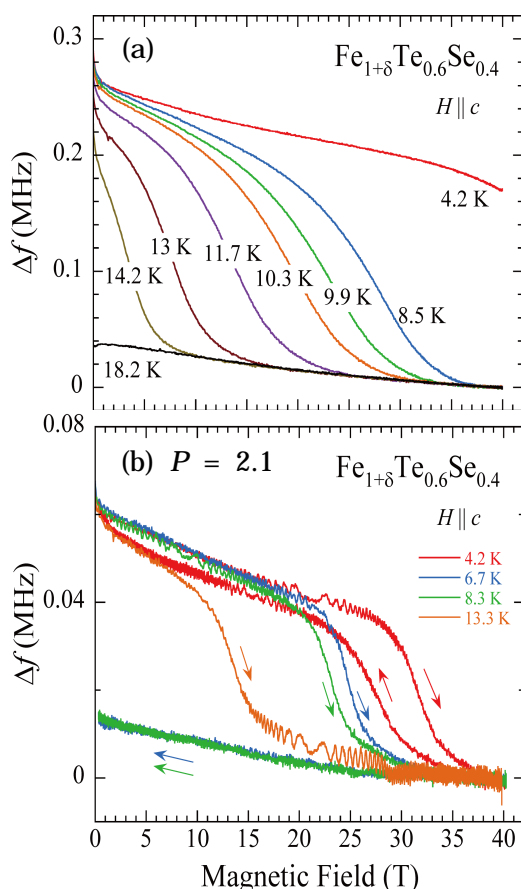


Fig.2. Frequency response for the critical magnetic field behavior of single crystals of $\text{Fe}_{1+\delta}\text{Te}_{0.6}\text{Se}_{0.4}$ at several temperatures at (a) ambient pressure, and (b) $P = 2.1$ GPa.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計8件)

(全て査読有り)

Z. Honda, T. Kodama, R. Kikukawa, M. Hagiwara, T. Kida, M. Sakai, T. Fukuda, T. Fujihara, and N. Kamata, “Crystal Structure of the Spin 1/2 Honeycomb-Lattice Antiferromagnet $\text{Cu}_2(\text{pymca})_3(\text{ClO}_4)$ ”, J. Phys. Soc. Jpn. **84** (2015) 034601(p1-p4).

DOI: 10.7566/JPSJ.84.034601

M. Hagiwara, M. Ikeda, T. Kida, K. Matsuda, S. Tadera, H. Kyakuno, K. Yanagi, Y. Maniwa, and K. Okunishi, “Haldane State Formed by Oxygen Molecules Encapsulated in Single-Walled Carbon Nanotubes”, J. Phys. Soc. Jpn. **83** (2014) 113706(p1-p4).

DOI: 10.7566/JPSJ.83.113706

K. K. Huynh, Y. Tanabe, T. Urata, S. Heguri, K. Tanigaki, T. Kida, and M. Hagiwara, “Mobility spectrum analytical approach for intrinsic band picture of $\text{Ba}(\text{FeAs})_2$ ”, New J. Phys. **16** (2014) 093062(p1-p14).

DOI: 10.1088/1367-2630/16/9/093062

Z. Honda, K. Sato, M. Hagiwara, T. Kida, M. Sakai, T. Fukuda, and N. Kamata, “Room temperature ferromagnetism in a phthalocyanine based carbon material”, J. Appl. Phys. **115** (2014) 054306(p1-p4).

DOI: 10.1063/1.4863539

T. Kida, M. Hagiwara, Y. Mizuguchi, and Y. Takano, “Angular dependence of the resistive upper critical field of the iron-based superconductor $\text{Fe}_{1+\delta}(\text{Te},\text{Se})$ in high magnetic fields”, J. Korean Phys. Soc. **62** (2013) 1997(p1-p4).

DOI: 10.3938/jkps.62.1997

Y. Han, T. Kida, M. Ikeda, M. Hagiwara, J. Strečka, and Z. Honda, “High-field magnetization of a bimetallic ferrimagnetic chain with alternating Ising and Heisenberg spins”, J. Korean Phys. Soc. **62** (2013) 2050(p1-p4).

DOI: 10.3938/jkps.62.2050

T. Fujita1, S. Kimura, T. Kida, T. Kotetsu, and M. Hagiwara, “High-Field Magnetism of the $S = 5/2$ Triangular-Lattice Antiferromagnet $\text{CuFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_2$ ($x=0-0.028$)”, J. Phys. Soc. Jpn. **82** (2013) 064712(p1-p9).

DOI: 10.7566/JPSJ.82.064712

T. Kakeshita, T. Terai, H. Sonomura, M. Yasui, T. Kida, and M. Hagiwara, “Magnetization processes in rare earth intermetallic compound DyCu ”, Physica B: Cond. Matt. **420** (2013) 32(p1-p4).

DOI: 10.1016/j.physb.2013.03.037

〔学会発表〕(計 16 件)

(国内会議)

名田將人, 田原大夢, 杉山清寛, 木田孝則, 池田修悟, 萩原政幸, “希土類金属間化合物 EuPtIn_4 の強磁場磁性”, 日本物理学会第 70 回年次大会(2015 年 3 月 22 日, 早稲田大学).

米村潤一郎, 木田孝則, 吉澤大智, 高阪勇輔, 秋光純, 西原禎文, 井上克也, 岸根順一郎, 戸川欣彦, 萩原政幸, “カイラル磁性体 CrNb_3S_6 における磁気トルク測定”, 日本物理学会第 70 回年次大会(2015 年 3 月 22 日, 早稲田大学).

篠崎真一, 池田真実, 奥谷顕, 吉澤大智, 木田孝則, 萩原政幸, 竹内徹也, 本多善太郎, O. Risset, D. R. Talham, M. W. Meisel, “ $S=2$ ハイゼンベルグ反強磁性鎖 $\text{MnCl}_3(\text{bpy})$ 単結晶の強磁場磁性”, 日本物理学会第 70 回年次大会(2015 年 3 月 21 日, 早稲田大学).

吉澤大智, 木田孝則, 中辻知, 入谷健資, Mario Halim, 竹内徹也, 萩原政幸, “希土類スピネル化合物 CdYb_2S_4 の磁場誘起相転移”, 日本物理学会第 70 回年次大会(2015 年 3 月 21 日, 早稲田大学).

木田孝則, “阪大先端強磁場における複合極限環境下物性測定の現状と展望” 大阪学先端強磁場科学研究センター強磁場科学研究会「強磁場が切り拓く物質科学のフロンティア」(2014 年 12 月 5 日, 大阪大学).

木田孝則, “阪大強磁場施設における多重極限環境下輸送現象測定の現状と展望” 第一回西日本強磁場科学研究会(2014 年 5 月 19 日, 大阪大学).

吉澤大智, 木田孝則, 中辻知, 入谷健資, 竹内徹也, 萩原政幸, “希土類スピネル化合物 CdYb_2S_4 の強磁場磁性”, 日本物理学会第 69 回年次大会(2014 年 3 月 27 日, 東海大学).

奥谷顕, 木田孝則, 吉田紘行, 萩原政幸, “二次元三角格子反強磁性体 Ag_2CrO_2 の強磁場磁性”, 日本物理学会第 69 回年次大会(2014 年 3 月 27 日, 東海大学).

木田孝則, 大橋奨平, 奥谷顕, 谷口一也, 金道浩一, 萩原政幸, “2 軸回転機構を用いたパルス強磁場中物性測定装置の開発 III”, 日本物理学会第 69 回年次大会(2014 年 3 月 27 日, 東海大学).

金澤順二, 明石孝一, 木田孝則, 谷口一也, 三宅厚志, 清水克哉, 角谷均, 金道浩一, 萩原政幸, 水口佳一, 高野義彦, “トンネルダイオード振動法によるパルス強磁場・高圧下物性測定装置の開発”, 日本物理学会第 69 回年次大会(2014 年 3 月 27 日, 東海大学).

木田孝則, 陽明, 王俊峰, 夏正才, 萩原政幸, “インデーター型圧力セルを用いたパルス強磁場・圧力下電気抵抗測定装置の開発”, 日本物理学会 2013 年秋季大会(2013 年 9 月 25 日, 徳島大学).

大橋奨平, 木田孝則, 谷口一也, 金道浩一, 萩原政幸, “二軸回転機構を用いたパルス強磁場中物性測定装置の開発 II”, 日本物理学会 2013 年秋季大会(2013 年 9 月 25 日, 徳島大学).

吉澤大智, 木田孝則, 藤田崇仁, 木村尚次郎, 萩原政幸, “ $S=5/2$ 三角格子反強磁性体 CuFeO_2 の面内磁場方向の ESR”, 日本物理学会 2013 年秋季大会(2013 年 9 月 25 日, 徳島大学).

(国際会議)

D. Yoshizawa, T. Kida, S. Nakatsuji, K. Iritani, T. Takeuchi, and M. Hagiwara, “High-Field Multi-Frequency ESR in the Rare-Earth Spinel Compound CdYb_2S_4 ”, Joint Conference of APES2014・IES・SEST2014 (Nov. 12th-16th, 2014, Nara, Japan).

T. Kida, J. Kanazawa, A. Miyake, K. Shimizu, Y. Mizuguchi, Y. Takano, K. Kindo, and M. Hagiwara, “Contactless conductivity measurements of iron-based superconductors $\text{Fe}(\text{Te}, \text{Se})$ under high pressure in high magnetic fields”, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2014) (July 7th-11th, 2014, Grenoble, France).

T. Kida, K. Akashi, J. Nishido, K. Taniguchi, A. Miyake, K. Shimizu, Y. Onuki, K. Kindo, and M. Hagiwara, “High-Field Magnetoresistance of CeCu_2Si_2 under High Pressure”, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2013) (Aug. 5th-9th, 2013, Tokyo, Japan).

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.ahmf.sci.osaka-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木田 孝則 (KIDA TAKANORI)

大阪大学・理学研究科・助教

研究者番号: 50452412