

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05171

研究課題名(和文) トンネルダイオード発振回路を用いた多重極限環境下物性測定装置の開発

研究課題名(英文) Development of a measurement system of physical properties under multiple extreme conditions utilizing tunnel-diode-oscillator circuit

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、非破壊型パルスマグネットとダイヤモンドアンビル型圧力セル(DAC)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、鉄系超伝導体の上部臨界磁場およびその異方性を調べ、その超伝導発現機構について理解することを目的とした。輸送測定の手法として、四端子法による電気抵抗測定だけでなく、トンネルダイオード振動法による表面インピーダンス測定も実施した。鉄系超伝導体のFe(Te,Se)の表面インピーダンス測定では、Ni-Cr-Al合金製のDACおよび金属製のガスケットを用いると、ヘリウムガス雰囲気中ではパルス磁場中では渦電流の発生に伴うジュール発熱があることが分かった。

研究成果の概要(英文)：Radio frequency (rf) techniques are quite useful in transport measurements under high pressure due to the contactless configuration of a compact searching coil and the extremely high sensitivity. In the present study, we have developed a contactless conductivity measurement apparatus utilizing an rf oscillator 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. 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} for $H \parallel c$ of FeTe_{0.6}Se_{0.4} was almost linear against T near T_c (~14 K) and was suppressed at low temperatures compared to the conventional one-band the WHH prediction. Under high pressure, suppression of the H_{c2} 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.

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 トンネルダイオード振動法 鉄系超伝導体

1. 研究開始当初の背景

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 (T. Kida *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 113701 (2009); J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 074706 (2010).)。銅酸化物高温超伝導体や鉄系超伝導体では、その超伝導転移温度 (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: $R \sim 0.01 \Omega$)。また、本研究の核は強磁場と高圧力を組み合わせた多重極限環境での物性測定装置の開発である。これまでに、パルス強磁場中で使用可能な圧力セルはいくつか開発されてきたが、未だ発展途上である。特に、パルス磁場発生時の圧力セルの金属部品の渦電流によるジュール発熱は深刻な問題となっている。

2. 研究の目的

超強磁場、超高圧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型圧力セル (DAC) を組み合わせた、パルス強磁場中・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 (FeSe や 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

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。現在我々が用いている 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**, 2094 (2004).) 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。

4. 研究成果

初年度は、クライオスタット、測定系の組み立ておよび TDO 回路の製作を実施し、鉄系超伝導体の Fe(Te,Se) の表面インピーダンス測定を実施した。その結果、Ni-Cr-Al 合金製の DAC および金属 (SUS316) 製のガスケットを用いると、ヘリウムガス雰囲気中ではパルス磁場中では渦電流の発生に伴うジュール発熱があることが分かった。パルス強磁場と高圧力を組み合わせた実験環境では、このジュール発熱を除去することは困難であるので、次年度はパルス磁場発生中の試料の物性 (今の場合は電気抵抗) の温度変化も合わせて評価することを試みた。予備実験として、カーボンペーストあるいは RuO_2 ペーストで作製した温度センサーを用いて、パルス磁場発生中の各部品の温度を測定した。40 T までのパルス強磁場発生時に、液体ヘリウムによる蒸発冷却環境下 (4.2 K) では温度変化はほとんど観測されなかったが、ヘリウムガス雰囲気中では最大で 20 K 程度の発熱が観測された。また、ジュール発熱の低減を目指して、ダイヤモンドパウダーとエポキシ樹脂を用いた非金属製ガスケットの試作も実施した。最終年度はパルスマグネットのボア内にインナー閉コイルを挿入し、その相互誘導効果を利用して磁場の立ち上がりの傾きを低下させることを試みた。以上の成果を主に日本物理学会で報告した。

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 12 件)

(全て査読有り)

H. Yamaguchi, D. Yoshizawa, T. Kida, M. Hagiwara, A. Matsuo, Y. Kono, T. Sakakibara, Y. Tamekuni, H. Miyagai, and Y. Hosokoshi, "Magnetic-field-induced Quantum Phase in $S = 1/2$ Frustrated Trellis Lattice", J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 043701. (2018).
DOI: 10.7566/JPSJ.87.043701

K. Yokoi, H. Murakawa, M. Komada, T. Kida, M. Hagiwara, H. Sakai, and N. Hanasaki, "Enhanced magnetoresistance in the binary semimetal NbAs_2 due to improved crystal quality", Phys. Rev. Materials **2**, 024203 (2018).
DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.024203

Y. Iwasaki, T. Kida, M. Hagiwara, T. Kawakami, Y. Hosokoshi, Y. Tamekuni, and H. Yamaguchi, "Effective $S = 2$ antiferromagnetic

spin chain in the salt (*o*-MePy-V)FeCl₄”, Phys. Rev. B **97**, 085113 (2018).

DOI: 10.1103/PhysRevB.97.085113

J. Yonemura, Y. Shimamoto, T. Kida, D. Yoshizawa, Y. Kousaka, S. Nishihara, F. J. T. Goncalves, J. Akimitsu, K. Inoue, M. Hagiwara, and Y. Togawa, “Magnetic solitons and magnetic phase diagram of the hexagonal chiral crystal CrNb₃S₆ in oblique magnetic fields”, Phys. Rev. B **96**, 184423 (2017).

DOI: 10.1103/PhysRevB.96.184423

M. Akaki, D. Yoshizawa, A. Okutani, T. Kida, J. Romhányi, K. Penc, and M. Hagiwara, “Direct observation of spin-quadrupolar excitations in Sr₂CoGe₂O₇ by high-field electron spin resonance”, Phys. Rev. B **96**, 214406 (2017).

DOI: 10.1103/PhysRevB.96.214406

A.I. Smirnov, T.A. Soldatov, O.A. Petrenko, A. Takata, T. Kida, M. Hagiwara, A.Ya. Shapiro, and M.E. Zhitomirsky, “Order by Quenched Disorder in the Model Triangular Antiferromagnet RbFe(MoO₄)₂”, Phys. Rev. Lett. **119**, 047204 (2017).

DOI: 10.1103/PhysRevLett.119.047204

Y. Hirose, T. Takeuchi, H. Doto, F. Honda, A. Miyake, M. Tokunaga, D. Yoshizawa, T. Kida, M. Hagiwara, Y. Haga, and R. Settai, “Characteristic Physical Properties of the Non-Kramers Γ_3 Ground State in PrPt₂Cd₂₀”, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 074711 (2017).

DOI: 10.7566/JPSJ.86.074711

M. Kakihana, H. Akamine, K. Tomori, K. Nishimura, A. Teruya, A. Nakamura, F. Honda, D. Aoki, M. Nakashima, Y. Amako, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, T. Takeuchi, T. Kida, M. Hagiwara, Y. Haga, E. Yamamoto, H. Harima, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Ōnuki, “Superconducting, Fermi surface, and magnetic properties in SrTGe₃ and EuTGe₃ (*T*: transition metal) with the Rashba-type tetragonal structure”, J. Alloys Compd. **694**, 439-451 (2017).

DOI: 10.1016/j.jallcom.2016.09.287

H. Yoshida, N. Noguchi, Y. Matsushita, Y. Ishii, Y. Ihara, M. Oda, H. Okabe, S. Yamashita, Y. Nakazawa, A. Takata, T. Kida, Y. Narumi, and M. Hagiwara, “Unusual Magnetic State with Dual Magnetic Excitations in the Single Crystal of *S* = 1/2 Kagome Lattice Antiferromagnet CaCu₃(OH)₆Cl₂·0.6H₂O”, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 033704 (2017).

DOI: 10.7566/JPSJ.86.033704

I. Terasaki, T. Igarashi, T. Nagai, K. Tanabe, H. Taniguchi, T. Matsushita, N. Wada, A. Takata,

T. Kida, M. Hagiwara, K. Kobayashi, H. Sagayama, R. Kumai, H. Nakao, and Youichi Murakami, “Absence of Magnetic Long Range Order in Ba₃ZnRu₂O₉: A Spin-Liquid Candidate in the *S* = 3/2 Dimer Lattice”, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 033702 (2017).

DOI: 10.7566/JPSJ.86.033702

R.S. Fishman, S. Shinozaki, A. Okutani, D. Yoshizawa, T. Kida, M. Hagiwara, and M.W. Meisel, “Long-range magnetic order and interchain interactions in the *S* = 2 chain system MnCl₃(bpy)”, Phys. Rev. B **94**, 104435 (2016).

DOI: 10.1103/PhysRevB.94.104435

M. Ikeda, T. Kida, T. Tahara, H. Murakawa, M. Nishi, M. Matsuda, M. Hagiwara, T. Inabe, and N. Hanasaki, “High magnetic field study on giant negative magnetoresistance in the molecular conductor TPP[Cr(Pc)(CN)₂]₂”, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 064713 (2016).

DOI: 10.7566/JPSJ.85.064713

[学会発表](計26件)
(国際会議)

K. Huynh, T. Ogasawara, K. Kitahara, T. Aoyama, K. Ohgushi, T. Tahara, T. Kida, M. Hagiwara, and K. Tanigaki, “Giant magnetoresistive effects in antiferromagnetic semiconductors BaMn₂Pn₂ (*Pn* = As, Sb, Bi)”, APS March Meeting 2018 (Los Angeles, USA, March 5th-9th, 2018).

T. Tahara, T. Kida, Y. Kohama, A. Miyake, M. Tokunaga, K. Kindo, and M. Hagiwara, “Evaluation of temperature-rise due to Joule heating in NiCrAl-DAC in pulsed high magnetic fields”, The 28th International Conference on Low Temperature Physics (LT28) (The Swedish Exhibition and Congress Centre, Gothenburg, Sweden, August 9th-16th, 2017).

A.I. Smirnov, T.A. Soldatov, O.A. Petrenko, T. Kida, A. Takata, M. Hagiwara, A.Y. Shapiro, and M.E. Zhitomirsky, “Competition of dynamic and structural disorder in a doped “triangular” antiferromagnet RbFe(MoO₄)₂”, The 28th International Conference on Low Temperature Physics (LT28) (The Swedish Exhibition and Congress Centre, Gothenburg, Sweden, August 9th-16th, 2017).

H. Yamaguchi, Y. Iwasaki, Y. Hosokoshi, T. Kida, and M. Hagiwara, “Magnetic properties of quasi-two-dimensional *S* = 1/2 Heisenberg antiferromagnet with distorted square lattice”, The 28th International Conference on Low Temperature Physics (LT28) (The Swedish Exhibition and Congress Centre, Gothenburg, Sweden, August 9th-16th, 2017).

T. Soldatov, A.I. Smirnov, T. Kida, A. Takata, M. Hagiwara, O.A. Petrenko, M.E. Zhitomirsky, and A.Y. Shapiro, “ESR uncovers doping-induced change of spin structure in a “triangular” antiferromagnet $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ ”, The 28th International Conference on Low Temperature Physics (LT28) (The Swedish Exhibition and Congress Centre, Gothenburg, Sweden, August 9th-16th, 2017).

T. Kakuto, J.-H. Lee, T. Tahara, T. Kida, M. Hagiwara, and T. Kambe, “Upper critical fields of $\text{Li}_x(\text{NH}_3)_2\text{Fe}_{2-x}\text{Se}_2$ single crystal”, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SECS2017) (The Clarion Congress Hotel, Prague, Czech, July 17th-21th, 2017).

T. Kida, J. Kanazawa, T. Tahara, A. Miyake, K. Shimizu, Y. Mizuguchi, Y. Takano, and M. Hagiwara, “Contactless conductivity measurements of an iron-based superconductor $\text{Fe}(\text{Te},\text{Se})$ under high pressure in high magnetic fields”, 25th Annual Meeting of MRS-Japan 2015 (Yokohama, Japan, Dec. 8-10, 2015).

T. Kida, A. Okutani, H. Yoshida, and M. Hagiwara, “Transport Properties of the Metallic Two-dimensional Triangular Antiferromagnet Ag_2CrO_2 ”, 20th International Conference on Magnetism (Barcelona, Spain, July 5-10, 2015).

(国内会議)

角藤壮, 李智鉉, 神戸高志, 安部大貴, 三井理功, 小林達生, 田原大夢, 木田孝則, 萩原政幸, “ $\text{Li}_x(\text{NH}_3)_2\text{Fe}_2\text{Se}_2$ の超伝導物性”, 日本物理学会第 73 回年次大会 (東京理科大学, 2018 年 3 月 22 ~ 25 日).

田原大夢, 木田孝則, 垣花将司, 竹内徹也, 辺土正人, 仲間隆男, 大貫惇睦, 萩原政幸, “反強磁性金属 MnSn_2 の強磁場物性”, 日本物理学会第 73 回年次大会 (東京理科大学, 2018 年 3 月 22 ~ 25 日).

竹内徹也, 谷口年史, 芳賀芳範, 中島美帆, 天児寧, 田原大夢, 木田孝則, 萩原政幸, 安次富洋介, 屋良朝之, 伊覇航, 辺土正人, 仲間隆男, 大貫惇睦, “スピングラスを示す EuCu_2Si_2 単結晶におけるホール効果”, 日本物理学会第 73 回年次大会 (東京理科大学, 2018 年 3 月 22 ~ 25 日).

太田麗嗣, 田原大夢, 木田孝則, 谷口一也, 鳴海康雄, 萩原政幸, “インナー閉コイルによるパルス磁場発生時の渦電流の抑制”, 日本物理学会第 73 回年次大会 (東京理科大学, 2018 年 3 月 22 ~ 25 日).

駒田盛是, 村川寛, 横井滉平, 木田孝則, 萩原政幸, 酒井英明, 花咲徳亮, “ワイル半金属 NbAs における磁場方位に依存したペリー位相の観測”, 日本物理学会第 73 回年次大会 (東京理科大学, 2018 年 3 月 22 ~ 25 日).

萩原政幸, A.I. Smirnov, T.A. Soldatov, 高田篤, 木田孝則, O.A. Petrenko, M.E. Zhitomirsky, A.Y. Shapiro, “三角格子反強磁性体 $\text{Rb}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}(\text{MoO}_4)_2$ における動的無秩序と構造的無秩序の競合”, 日本物理学会第 73 回年次大会 (東京理科大学, 2018 年 3 月 22 ~ 25 日).

赤木暢, 吉澤大智, 奥谷顕, 木田孝則, J. Romhányi, K. Penc, 萩原政幸, “ $\text{Sr}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ におけるスピン四極子励起の観測 (実験)”, 日本物理学会第 73 回年次大会 (東京理科大学, 2018 年 3 月 22 ~ 25 日).

田原大夢, 木田孝則, 小濱芳允, 三宅厚志, 徳永将史, 金道浩一, 萩原政幸, “パルス強磁場下における NiClAl - DAC の渦電流による発熱量の評価”, 強磁場研究会「強磁場コラボラトリーが拓く未踏計測領域への挑戦と物質・材料科学の最先端」(物質・材料研究機構, 2017 年 11 月 29 ~ 30 日).

萩原政幸, R.S. Fishman, 篠崎真一, 奥谷顕, 吉澤大智, 木田孝則, 竹内徹也, O.N. Risset, D.R. Talham, M.W. Meisel, “ $S=2$ 擬一次元反強磁性体 $\text{MnCl}_3(\text{bpy})$ の磁気秩序と反強磁性共鳴”, 日本物理学会 2017 年秋季大会 (岩手大学, 2017 年 9 月 21 ~ 24 日).

木田孝則, 田原大夢, 垣花将司, 辺土正人, 仲間隆男, 大貫惇睦, 萩原政幸, “反強磁性金属 FeSn_2 の磁気輸送物性”, 日本物理学会 2017 年秋季大会 (岩手大学, 2017 年 9 月 21 ~ 24 日).

田原大夢, 木田孝則, 鳴海康雄, 中村裕之, 萩原政幸, “金属絶縁体転移を示す BaV_3S_3 の圧力効果”, 日本物理学会 2017 年秋季大会 (岩手大学, 2017 年 9 月 21 ~ 24 日).

浅岡俊介, 木田孝則, 奥谷顕, 吉田紘行, 萩原政幸, “二次元三角格子反強磁性体 Ag_2CrO_2 の強磁場輸送現象”, 日本物理学会第 72 回年次大会 (大阪大学, 2017 年 3 月 17 ~ 20 日).

木田孝則, 田原大夢, 大貫惇睦, 萩原政幸, “反強磁性金属 FeSn_2 の異常な磁気輸送現象”, 日本物理学会 2016 年秋季大会 (金沢大学, 2016 年 9 月 13 ~ 16 日).

木田孝則, 田原大夢, 大貫惇睦, 萩原政幸, “遍歴反強磁性体 FeSn_2 の磁気輸送現象”, 第三回西日本強磁場科学研究会 (福井大学, 2016 年 9 月 12 日).

木田孝則, “複合極限環境下物性測定 of 現状と展望”, 東京大学物性研究所短期研究会「強磁場コラボラトリー, 国際協力と強磁場科学の将来」(東京大学, 2016年6月23~24日).

木田孝則, 田原大夢, 大橋奨平, 赤木暢, 萩原政幸, “トンネルダイオード振動法を用いたパルス強磁場中磁化率測定装置の開発”, 日本物理学会第71回年次大会(東北学院大学, 2016年3月19~22日).

木田孝則, 奥谷顕, 浅岡俊介, 吉田紘行, 萩原政幸, “二次元三角格子反強磁性体 Ag_2CrO_2 の磁気輸送現象”, 日本物理学会2015年秋季大会(関西大学, 2015年9月25~28日).

木田孝則, “トンネルダイオード振動法による複合極限下物性測定 of 現状と展望”, 第二回西日本強磁場科学研究会(神戸大学, 2015年11月24日).

〔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