

平成22年 3月31日現在

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2008～2009

課題番号：20740185

研究課題名（和文）10万気圧級核磁気共鳴によって切り開く異常金属相の微視的研究

研究課題名（英文）Microscopic study of anomalous metals by nuclear magnetic resonance under 10 GPa-class pressure

研究代表者

深澤 英人 (FUKAZAWA HIDETO)

千葉大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：90361443

研究成果の概要（和文）：10万気圧級の圧力下での強相関電子系の核磁気共鳴実験の実現を目指し、装置の安定性を含めた開発・研究を行なった。特に、新規鉄系超伝導体の圧力誘起超伝導に注目し、その核磁気共鳴実験を視野に入れた。また、鉄系超伝導体  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  においてこれまで報告のなかったノードをもつ超伝導クーパー対の可能性を実験的に初めて示唆し、報告を行なった。

研究成果の概要（英文）：High pressure apparatus was developed and studied in order to perform nuclear magnetic resonance of strongly correlated electron system under 10 GPa class pressure. Especially, newly-discovered iron-based superconductors were focused to study by nuclear magnetic resonance. In addition, possibility of nodal-line superconductivity, which was ever reported in iron-based superconductors, was indicated and reported in an iron-based superconductor  $\text{KFe}_2\text{As}_2$ .

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2009年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,100,000	930,000	4,030,000

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：強相関電子系、高圧物性、鉄系超伝導、物性実験、低温物性

## 1. 研究開始当初の背景

強相関電子系では、電荷・スピン・軌道の自由度が互いに共存または競合し、興味深い物理現象を引き起こす。このような多彩な物理現象を示す強相関電子系に対して、外部パ

ラメータを制御して、系の相の状態を明らかにする研究が行なわれている。特に、量子臨界点近傍に存在し、物理量が特異なふるまいを示す異常金属相に興味が集まっている。

超高圧環境は現在一般化されつつある外部パラメータである。つまり、圧力は電子状

態に大きく変化を及ぼし、異常金属相の解明に重要な外部パラメータである。

近年、NMR/NQR 法においてはピストンシリンダーセルを用いた 3 GPa 程度までの実験がほぼ一般的に行なわれている。しかし、5 GPa を越え 10 GPa に至る圧力域においては試料空間の制限のために微視的なプローブを利用できず、その解明が滞ってきた。

## 2. 研究の目的

研究開始当初の背景に基づき、本研究では、5 GPa (= 5 万気圧) を越え 10 GPa に至る圧力域において、強相関電子系物質に対して核磁気共鳴 (NMR) 法、核四重極共鳴 (NQR) 法を適用し、これまでこの圧力域では得られなかった微視的な物理学情報を明らかにすることを目的とした。またそのための、電気抵抗等の巨視的測定手段による事前研究、常圧での NMR/NQR 法による研究においても異常金属相の研究を行なうことも目的とした。

## 3. 研究の方法

これまでの改良型ブリッジマンアンビルセルの利用に関して、千葉大学大学院理学研究科・小堀洋教授、産業技術総合研究所・竹下直博士と共同で進めてきた経緯から、この両名と協力して以下の改善点について改良を施していった。

1. 試料空間の拡大 (径  $\Phi$  1.5  $\rightarrow$  2.5 mm)
2. アンビル端の縮小 (アンビル端の径  $\Phi$  8  $\rightarrow$  7 mm)

以上の改良点について、圧力定点物質を用いた Bi (約 2.2, 2.5, 7.7 GPa) の電気抵抗測定により転移幅や転移荷重を吟味することにより発生圧力の質について検討を行なった。これまで、ブリッジマンセルを利用するために竹下博士の下に出向き、すべての設定を行っていた。しかし、本研究の根幹である強相関電子系での 10 GPa 級 NMR/NQR を一刻も早く実行に移すため、すべての設定を申請者の所属機関である千葉大学で行なう必要があると判断した。そこで、特に低い荷重領域において圧力を連続的に印加できる油圧ポンプ、また試料設定の際に必要な部品を加工するための簡易フライス機械、封入する圧力の再現性を高めるデジタル圧力計、寒剤である液体ヘリウムを主に購入・導入を行なった。

当初の研究対象であった重い電子系物質やルテニウム酸化物の他に、研究開始直前になって新規鉄系超伝導の発見が報告され、その超伝導転移温度の高さ、超伝導対称性について世界的な注目が集まった。そのため、一部計画を変更し、この関連物質に関して、高圧下での電気抵抗および常圧での NMR/NQR を

中心とした研究を行なった。試料に関しては、産業技術総合研究所・伊豫・永崎グループから提供を受け、研究を遂行した。

## 4. 研究成果

本研究の目的である 10 万気圧級核磁気共鳴を行なうために、3次元プロッターを購入し、まず改良型ブリッジマンセルに必要な消耗部品を申請者の研究室でも作成可能な状況にした。また、既存の 20t プレス機に微量吐出ポンプを増設し、連続的な荷重が可能になるようにした。これにより初期荷重に敏感である改良型ブリッジマンセルの圧力印加の成功率が飛躍的に高まった。20年度は NMR/NQR まで行なう予定ではあったが、実際に手元で行なってみると失敗することも多く、成功率をより高めるために、最適条件を探っていた段階となった。また、小型キュービクアンビル装置を用いた NQR 測定に成功し、この成果について論文にて公表するとともに、LT25 (国際低温会議 2008) にてポスター発表を行なった (5. 主な発表論文等 [雑誌論文] ②及び図 1)。

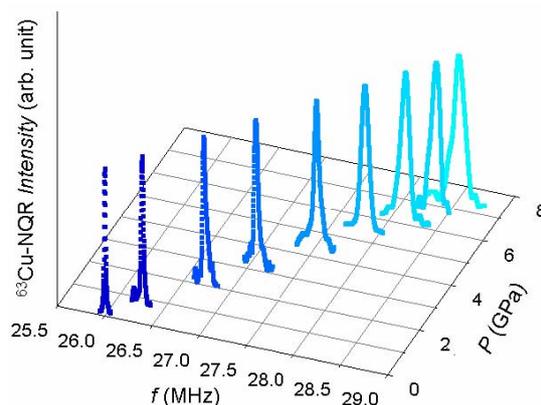


図 1 : キュービクアンビル装置における核四重極共鳴の実験例 ( $\text{Cu}_2\text{O}$  の  $^{63}\text{Cu}$ -NQR) .

ポスター発表を見学していった研究者はほとんどが海外の研究者で、本研究への世界的な関心の高さを実感することができた。小型キュービクについては、現在安定して荷重を成功させるために、MgO ガスキットの選定を行なった。20年度は、新規鉄系超伝導体の研究が世界的に大流行し、申請者もこの超伝導体の研究を開始した。というのも、本物質が圧力に対して敏感であることと、必要な圧力域が本研究で目標としている 10 万気圧級のものであるからである。このことを示す論文を執筆するとともに、まずは常圧での物性を明らかにするために、関連の論文を執筆し公表した。特に、圧力下での論文に関しては、それまでに静水圧性の低い圧力装置でバルク超伝導の報告があったものの、静水圧性の高いキュービクアンビル装置を用い

た場合は、バルク超伝導が13万気圧までは見られないという報告であり、これはその後国内外の他グループからも報告のあるこの系の物質の圧力の静水圧性への応答の敏感さを初めて世に示す結果となった(5. 主な発表論文等 [雑誌論文] ③)。

20年度からの研究で得られた成果については、国際高压会議 (AIRAPT2009) および第9回超伝導国際会議 (M2S-HTSC IX) において発表を行なった。特に、国際高压会議においては、招待講演ではなかったものの、口頭発表に採択された。昨年度整備した装置を継続して使い、改良型ブリッジマンアンビルセルで10 GPa級圧力下でのNMR/NQRを試みたものの、幾度となくわずか1~2 GPaで測定不能に陥った。この原因はガスケットとして用いたパイロフェライトの硬度によるものであることがわかり、その後は比較的安定して圧力を印加することができるようになった。しかし、ピストンシリンダーセルと比べると狭い試料空間では、十分な信号を得るまでには至っていないのが現状である。そこで並行してキュービックアンビル装置を産業技術総合研究所の竹下直博士から借用し、より静水圧性の高い状況での新規鉄系超伝導体の物性について電気測定を中心に研究を行なった。試料は、5. 主な発表論文等 [雑誌論文] ③においては多結晶で行なっていたBaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>について単結晶試料を用いて行ない、これらの結果を得たのと同じバッチの試料について改良ブリッジマンアンビルセル

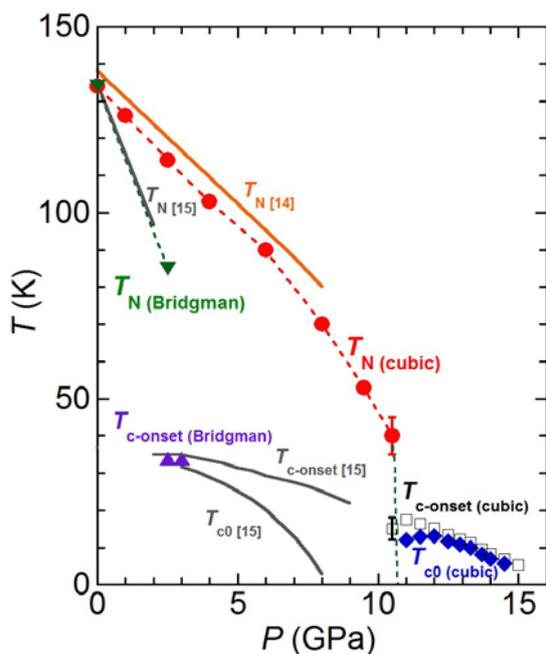


図2: BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>の圧力下相図. cubic: キュービックアンビル装置、Bridgman: 改良型ブリッジマンアンビルセルである。圧力装置の差により、明確にバルク超伝導が発現する圧力に差が見出された。

ルを用いて電気抵抗測定を行ない、圧力媒体が一軸圧力性の残る圧力を受けた場合、鉄系超伝導体の母物質は極めて敏感に超伝導を発現することを見出した。これらの結果については、平成21年度末の日本物理学会で発表を行なった。本研究成果は、これまでに別々のグループから報告されていた圧力の静水圧性に関する諸現象について、同一バッチの試料を用いて明確にそのバルク超伝導の特性について示したものである(図2)。本成果については、論文にまとめ、現在投稿中であり、今後改良ブリッジマンアンビルセルを用いてNMR/NQR実験をすすめる予定である。

また、ホールを過剰にドーブした鉄系超伝導体 KFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> においてノードをもった極端なサイズ差をもつマルチギャップ超伝導を指摘し、論文誌にて公表した(5. 主な発表論文等 [雑誌論文] ③)。特に重要だと考えられるのは、エンド物質である KFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> においては、これまで多くの報告がある最適ドーブ域の物質で議論されてきたフルギャップの超伝導ではなく、ラインノードをもつ超伝導の可能性が示唆されたことである。Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> では、広い範囲で超伝導が見出されているが、エンド物質に相当する KFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> については、当該論文が公表されるまでは、超伝導対称性に言及した論文は全くなかった。しかし、本論文の公表を皮切りに、共同研究も含めて現在その超伝導対称性について活発に報告がなされるようになってきた。前述の圧力効果とともに、この系の超伝導対称性について、核磁気共鳴を主な手段として解明することにより、高い超伝導転移温度の原因を追究することが可能になりうる(図3)。

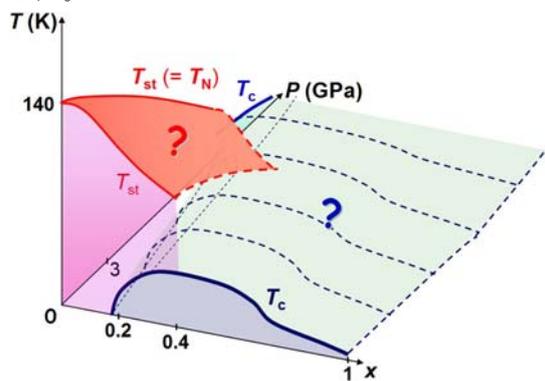


図3: Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>におけるドーブ・圧力相図の概念図。

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6件)

①H. Fukazawa 他 14 名, “Possible Multiple Gap Superconductivity with Line Nodes in Heavily Hole-Doped Superconductor  $\text{KFe}_2\text{As}_2$  Studied by  $^{75}\text{As}$  Nuclear Quadrupole Resonance and Specific Heat”, J. Phys. Soc. Jpn. 査読有 Vol. 78 (2009) 083712-1-4. 2009 年 8 月

②K. Hirayama, T. Yamazaki, H. Fukazawa 他 3 名, “Application of Nuclear Quadrupole Resonance under 10 GPa Class Pressure at Low Temperature”, J. Phys: Conf. Ser. 査読有 Vol. 150 (2009) 012107-1-4. 2009 年 3 月

③H. Fukazawa 他 9 名, “Suppression of Magnetic Order by Pressure in  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ ”, J. Phys. Soc. Jpn. 査読有 Vol. 77 (2008) 105004-1-2. 2008 年 10 月

[学会発表] (計 24 件)

①H. Fukazawa 他 8 名, “ $^{31}\text{P}$ -NMR,  $^{101}\text{Ru}$ -NQR, •SR study of filled skutterudite  $\text{TbRu}_4\text{P}_{12}$ ”, LT 25 (国際低温会議 2008) 2008 年 8 月 9 日 オランダ・アムステルダム

②R. Kobayashi, Y. Uchida, K. Hirayama, T. Yamazaki, H. Fukazawa 他 2 名, “Development of Nuclear Magnetic and Quadrupole Resonance Spectroscopy under 10 GPa Class Pressure”, International Conference on High Pressure Science and Technology 2009 年 7 月 29 日 東京国際交流館、台場

[その他]

ホームページ等

<http://physics.s.chiba-u.ac.jp/teion/index.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

深澤 英人 (FUKAZAWA HIDETO)

千葉大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号: 90361443