

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 9 日現在

機関番号：16401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740219

研究課題名(和文)新規開発超高压下核磁気共鳴技術による強相関電子物性の開拓

研究課題名(英文)Development of ultrahigh-pressure NMR technique and study of strongly correlated electron systems

研究代表者

北川 健太郎(KITAGAWA, Kentaro)

高知大学・教育研究部自然科学系・講師

研究者番号：90567661

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：低温物性分野では3万気圧以上の超高压下で磁性および超伝導の内部状態を探る手段がほぼ皆無であった。そこで本計画では、超高压技術の改良(高压化、簡単化)を行うこと、強相関電子系化合物等に対し先端の超高压核磁気共鳴(NMR)実験を行うことを目指した。超高压技術の改良の、「誰でも使える小型圧力装置」の実現に関しては大きな進展があり、13万気圧超まで安定して多数の電気配線と光ファイバーを非常に歩留まり良く導入する配線方法を開発することができた。その結果、電気抵抗測定・ac帯磁率測定などにも非常に有効な装置を開発した。また、3He循環冷凍機と小型化圧力セルにより、極低温超高压NMR測定を可能にした。

研究成果の概要(英文)：It had been almost impossible to measure magnetism and superconductivity by microscopic probes under ultrahigh pressure over 3GPa in the field of the condensed matter physics. This study aims to develop such a ultrahigh-pressure technique (expanding pressure range and simplifying) and to perform ultrahigh-pressure NMR experiments on several strongly correlated electron systems. The development for "Small high-pressure apparatus for general usage" has been quite successfully performed. Our new wiring setup allows a lot of electrodes and optical fibers to be inserted over 13GPa with high reliability. Namely, our cell become quite useful also for resistivity, ac-susceptibility, and other bulk experiments. In addition, we developed smaller ultrahigh-pressure cell and 3He-circulative fridge for it, which makes ultralow-temperature, ultrahigh-pressure NMR measurement possible.

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：核磁気共鳴 高压研究 超高压NMR 鉄系高温超伝導

### 1. 研究開始当初の背景

極限環境技術の進歩は、物性物理上の新現象の発見に重要である。極低温・強磁場実験に関しては現在では非常に一般的になっている。一方圧力に関して言えば、低温物性分野では 3 GPa 以上で磁性および超伝導の内部状態を探るプローブがほぼ皆無であった。というのは、ピストンシリンダー型が適用不可能な 3 GPa 以上の超高压域では、大きな試料体積を要求し実験的制約も大きい微視的実験は困難であった為である。NMR 法は磁性・超伝導の両方を in-situ で測定可能な希な微視的測定であるが、超高压域では 10 GPa 弱までの試行的な測定(千葉大・名古屋大等)が存在したが、信号強度や静水圧性の点で実用性は低かった。これまで代表者らは、独創的な超高压装置を開発し、体積効率が今までより2-3桁大きく、磁場中2軸回転が可能で静水圧性も確保した、初めての本格的な 10 GPa 級超高压 NMR 測定技術を開発してきており、鉄系高温超伝導体の高压下超伝導相を研究してきた。

### 2. 研究の目的

今まで微視的磁性研究が未開拓の、4GPa 以上の超高压域において固体物性物理学分野の強相関電子系(特に、磁性、超伝導)の種々の物性を明らかにし、また新現象の発見を目指す。方法としては、最近開発した初の実践的な超高压 NMR 技術により磁性・超伝導の微視的測定を行う。純良な系と物理圧力を物性制御に用いることから、鉄系超伝導関連物質や 4f 電子系化合物において量子相転移に関連した多彩な現象(磁性共存超伝導等)を発見することを目指す。さらに、「誰でも使える小型超高压装置」を実現させる改良も行う。

### 3. 研究の方法

計画初年度に高知大学に赴任することになり研究室を新たに立ち上げる必要があった為、まず高压研究及び NMR 装置の環境を整備した。具体的には、50トンプレス機とファイバールビー蛍光装置を組み上げ、横磁場無冷媒 7T 超伝導マグネットを用いた NMR システムを立ち上げた。長期間安定して低温実験を行うために、He ガス用マスフローコントローラーを導入し、温度制御を自動化した。また、コンパクトな真空中ダブルコンデンサボトムチューニング NMR プローブを作成し、ステップモータと同軸リレーによる自動同調を実現した。従って、超高压 NMR 実験をこれまで以上に円滑に進められる環境を高知大学において整備することができた。

より高い圧力の発生を目指した改良としては、非線形弾塑性接触構造解析を行い実際の実験データとほぼ同じ荷重-圧力曲線を再現

することに成功し、試料室体積を増大させるために最適なガスケット形状を計算させることが可能となった。実際の最高圧カトライ実験ではこれまで多数のアンビルが破壊されてしまっており、非常に開発効率が悪かったが、このような計算により開発が効率化した。

### 4. 研究成果

本計画では、超高压技術の改良(高压化、簡単化)を行うこと、強相関電子系化合物等に対し先端の超高压 NMR 実験を行うことを目指した。超高压技術の改良の、「誰でも使える小型圧力装置」の実現に関しては大きな進展があり、13GPa 超まで安定して多数の電気配線と光ファイバーを非常に歩留まり良く導入する配線方法を開発することができた。その結果、元々 NMR 測定用に開発してきた本技術が、電気抵抗測定・ac 帯磁率測定・ac 比熱測定に非常に有効であることとなった。その理由は、極低温まで使用可能な程度に小さく、良好な静水圧性を持ち、簡単に使用可能な配線方法と試料室サイズを持つ技術が 10 GPa 級としては他に全く存在しないからで、実際、東京大学物性研究所上床研究室によって本装置を用いて多数の成果が出始めている。一例として、強四重極秩序およびそのゆらぎに関係した超伝導状態を持つと言われている Pr 化合物の PrTi<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の高压化相図を完成させるこ

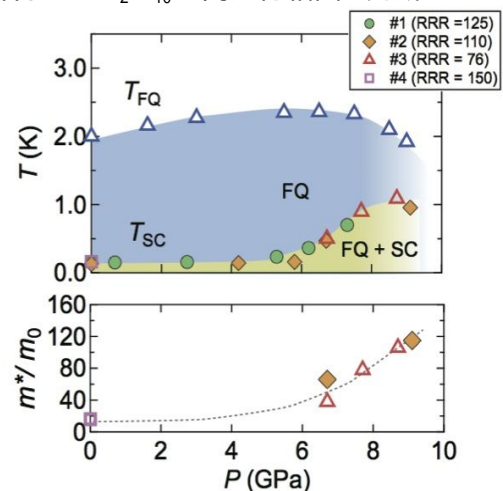


図 1: PrTi<sub>2</sub>Al<sub>10</sub> の高压下相図[1]。強四極子相 (FQ) 内部に超伝導相(SC)が存在し、有効質量の増大(下図)などから強四極子ゆらぎに関係した超伝導の発現が示唆される。

とに利用された(図1、論文1)。

さらなる発展として、極低温での超高压実験を目指して、 $^3\text{He}$  のハンドリングシステム、循環式  $^3\text{He}$  冷凍 NMR プローブ、22 に小型化した超高压セル(図2)をそれぞれ開発した。極低温・超高压域での NMR 実験は、試行を含めてこれまで存在してこなかったもので、組み合わせると初めてのことであり、今後実際の超高压 NMR 実験を行う予定である。

計画には含まれていなかったことであるが、本研究室において新構造をもつ重希土類化合物群を発見した(学会発表1)。特にその内の  $\text{YbCo}_2\text{Ge}_4$  は、20 mK まで秩序化しないこと、抵抗率・磁化率・比熱・NMR 緩和率において 0.5 K 程度まで非フェルミ液体的ふるまいを保つことが分かってきており、常圧下において量子臨界点に非常に近い物質であることが分かった。このような物質は Ce 化合物では多く見られるが、Yb 系では数種類しか見つかってきておらず、今後の高压研究において相図と量子臨界性を明らかにしていく予定である。



図2: 本研究期間に開発した、循環式  $^3\text{He}$  冷凍 NMR プローブ(上)と小型化超高压セル(下)。これらの組み合わせにより、世界初の超高压・極低温 NMR 実験が可能になる。

まとめとして、研究室の立ち上げを伴ったことを考えると、研究は順調に進んできたと考えらる。

## 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)

1. Heavy fermion superconductivity under pressure in the quadrupole system  $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$   
K. Matsubayashi, T. Tanaka, J. Suzuki, A. Sakai, S. Nakatsuji, K. Kitagawa, Y. Kubo, Y. Uwatoko,

JPS Conference Proceedings 誌, Proceedings of the International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013) 掲載決定、査読あり

2. Phase diagram and superconductivity of  $\text{NaFeAs}$  studied by single-crystal  $^{75}\text{As}$ -NMR under pressure up to 7.3 GPa

Kentaro Kitagawa, Yuji Mezaki, Kazuyuki Matsubayashi, Yoshiya Uwatoko, and Masashi Takigawa,

JPS Conference Proceedings 誌, Proceedings of the International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013) 掲載決定、査読あり

3. Hideyuki Takahashi, Tatsunori Okada, Yoshinori Imai, Kentaro Kitagawa, Kazuyuki Matsubayashi, Yoshiya Uwatoko, and Atsutaka Maeda,

"Investigation of the superconducting gap structure in  $\text{SrFe}_2(\text{As}_{0.7}\text{P}_{0.3})_2$  by magnetic penetration depth and flux flow resistivity analysis"

Physical Review B **86**, pp. 144525-1-5 (2012), 査読あり

4. 北川健太郎, 松林和幸, 後藤弘匡, 松本健彦, 上床美也, 八木健彦, 瀧川 仁  
「容積効率にこだわった高压セルによる 10 GPa 級 NMR 測定」

高压力の科学と技術 **22** 巻, 198-205 頁, 2012 年, 9 月, 査読あり

5. Tatsunori Okada, Hideyuki Takahashi, Yoshinori Imai, Kentaro Kitagawa, Kazuyuki Matsubayashi, Yoshiya Uwatoko, and Atsutaka Maeda,

"Microwave surface-impedance measurements of the electronic state and dissipation of magnetic vortices in superconducting  $\text{LiFeAs}$  single crystals"

Physical Review B **86**, pp. 064516-1-5 (2012), 査読あり

6. T. Hanaguri, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, Y. Mazaki, Y. Uwatoko, and H.

Takagi,  
"Scanning tunneling microscopy/spectroscopy  
of vortices in LiFeAs"  
Physical Review B **85**, pp. 214505-1-9 (2012)  
June. , selected as "Editors' Suggestion", 査  
読あり

[学会発表](計 6件)

1. 北川健太郎, 岩谷誠, 小松健良, 西岡孝, 岸本恭来, 松村政博, 真木祥千子, 山浦淳一, 片山尚幸, 澤博, 松林和幸, 上床美也  
「Yb-Co-X 新化合物の物性評価と NMR」  
日本物理学会2014年年次大会、29pCM-11、  
東海大学湘南キャンパス、2014/03/29、口頭。
2. 賀来真司、松林和幸、上床美也、北川健太郎、  
「10GPa 超級超高压 NMR 技術の高压化・大容積化」  
第54回高压討論会、2P31、朱鷺メッセ(新潟市)、2013/11/15、ポスター。
3. 北川健太郎、小松健良、西岡孝、藤原哲也、繁岡透  
「LaRu<sub>2</sub>P<sub>2</sub> 超伝導体の NQR/NMR 研究」  
日本物理学会2013年秋季大会、27aEC-12、  
徳島大学常三島キャンパス、2013/9/27、口頭。
4. K. Kitagawa, Y. Mezaki, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, and M. Takigawa,  
"NMR Study on Pressure-Induced Superconductivity of NaFeAs Single Crystals up to 7 GPa."  
SCES2013 (Strongly Correlated Electron Systems), 5 6p I-1-6, Tokyo, August, 2013/8/6、口頭。
5. 北川健太郎、松林和幸、後藤弘匡、松本健彦、上床美也、八木健彦、瀧川 仁  
「10GPa 超級大容積超高压セルによる NMR 技術の開発」  
第53回高压討論会、2P40、大阪大学豊中キャンパス、2012/11/8、ポスター。
6. 北川健太郎、松林和幸、後藤弘匡、松本健彦、上床美也、八木健彦、瀧川 仁  
「10GPa 超級高体積超高压装置の開発による NMR 及びマクロ測定」  
日本物理学会2012年秋季大会、20pPSB-28、  
横浜国立大学、2012/9/20、ポスター。

[その他]

ホームページ等

<http://www.cc.kochi-u.ac.jp/~kitag/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

北川 健太郎 (KITAGAWA, Kentaro)

高知大学・教育研究部自然科学系・講師