

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 22 日現在

機関番号：13101

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25610090

研究課題名(和文)超強磁場・極低温・高圧下での電氣的・磁氣的測定のための非金属製圧力セルの開発

研究課題名(英文)Development of non-metallic pressure cell for electrical and magnetic measurements under pulsed high magnetic field, low temperature and high pressure

研究代表者

摂待 力生 (Settai, Rikio)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：00251041

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：一般に重い電子系の磁気秩序温度は数K，超伝導転移温度は1K程度と低いのに対し，磁氣的な性質が変化する磁場は数～数十Tと高い。このような系の研究にはパルス強磁場を用いた数十Tの磁場が必要となる。パルス強磁場で大きな問題となるのは，渦電流による発熱である。これが重い電子系の強磁場・極低温・高圧実験を困難なものとしている。そこで，本研究では，1K以下の極低温・40Tを超えるパルス強磁場下で数GPaの圧力を発生できる圧力セルの開発を目指した。その結果，1.5K，60Tで4GPaの圧力を発生できる圧力セルの開発に成功するとともに，CeRh₂Si₂における4f電子の局在的性質と遍歴的性質の分離に成功した。

研究成果の概要(英文)：Strongly correlated electron systems (SCES) with 4f electrons usually possess low ordering temperature of order of 1-10 K, while they need high magnetic field of 10-100 T to change the electronic and magnetic properties. For high magnetic field experiments above 20 T, a pulsed-magnet is generally used. However, the eddy current due to the pulsed magnetic field invokes the crucial heating around the measured substance at very low temperature. Especially a high pressure cell made by metallic materials are used with the pulsed magnetic field to tune the electronic, magnetic and superconducting properties in SCES. This study aimed the development of non-metallic pressure cell for pulsed magnetic field experiment at very low temperature and succeeded to achieve 4 GPa using the non-metallic ZrO₂ anvil and pyrophyllite gasket. We also succeed to observe a decoupling between the localized nature and itinerant one on the metamagnetic behavior in CeRh₂Si₂ using the newly developed pressure cell.

研究分野：固体物性

キーワード：強相関電子系 重い電子系 パルス強磁場 圧力 圧力セル 極低温

1. 研究開始当初の背景

これまで物性研究者は、超低温・超強磁場、超高圧といった、それまでの限界を「超」えることで多くの新現象を発見してきた。さらにこれらの極限環境を複合的に組み合わせることで、物質の示す多様性が飛躍的に増大するとともに、あらたな新奇現象が発見されるようになった。アルカリクラスタやカーボンナノチューブの s, p 電子系から、遷移金属酸化物や銅酸化物超伝導体・鉄砒素系超伝導体といった d 電子系、希土類やアクチナイド化合物の f 電子系に至るまで、特に電子相関の強い系では、その電子状態は温度 T・磁場 H・圧力 P により劇的にその性質が変化する。低温では、磁性や超伝導といった非秩序状態から秩序状態への相転移が現れるため、固体物理では、極低温での磁場制御、圧力制御が重要な実験技術となる。特に、ここ 10 年来の高圧技術の普及により、超伝導マグネットと希釈冷凍機を用いた 15T, 1K 以下の圧力実験が数多く行なわれ、圧力誘起超伝導体の発見に代表される様な量子臨界点の研究が盛んになっている。しかしながら、そうした研究が進むにつれて、超えるべき限界も見えてきた。

2. 研究の目的

一般に希土類化合物やアクチナイド化合物等の重い電子系の磁気秩序温度 T_N は数ケルビン(K)であり、超伝導転移温度 T_c は 1K ないしそれ以下と低いのに対し、電子的あるいは磁氣的な性質が変化する磁場は数テスラ(T)~数十 T と高いものが多い。したがって、このような系の電子状態や磁性の磁場依存性を調べるためには、しばしば、パルス強磁場を用いた 40T あるいはそれ以上の磁場が必要となる。

超伝導マグネットの定常磁場とは異なり、パルス強磁場で大きな問題となるのは、金属材料における渦電流による発熱である。特に高圧セルは強度を必要とするため、金属材料で作られる部品が多く、パルスによって大きく発熱する。これが重い電子系の強磁場・極低温・高圧実験を困難なものとしている。そこで、本研究では重い電子系の極限物性の探索を念頭に、1K 以下の極低温・40T を超えるパルス強磁場下で数 GPa の圧力を発生できる圧力セルの開発を目標とした。本研究で開発する圧力セルは、パルス強磁場ないし今後実用化が進むであろうフライホイールによる数秒程度の準定常強磁場マグネットを用いた多様な物質の物性研究において大きな役割を担うものであり、重い電子系のみならず、他分野への波及効果も大きいものである。

3. 研究の方法

パルス強磁場での圧力セルを開発するにあたっては、圧力セルを構成する部品の非金属

化を進めることが重要である。ただし、シリンダーやクランプナットは、非金属化することにより破壊されやすいため、セルのデザイン、材料の試験を行ないつつ到達圧力を調べていくことになる。圧力セルを用いたパルス強磁場実験では、強磁場のパルス幅が重要となるので、パルス強磁場の特性の違いによる温度上昇と適した測定手段を考慮し、国内外のパルス強磁場施設の共同利用を活用し、開発を進めていく。さらに、 $CeRh_2Si_2$ など、極低温で特徴的な圧力・磁場相図を示す系での実験を行なう。

研究代表者の携持は、平成 24 年度 4 月より新潟大学理学部へ異動した。平成 25 年度から大学院生が研究室に配属されてくるため、研究室の立ち上げを兼ね、新たな学生達と萌芽的で挑戦的な本研究課題を開始した。研究代表者は、これまで主にセリウム化合物やウラン化合物の重い電子系を対象とし、加圧下での電気抵抗、磁化率、ドハース・ファンアルフェン効果を観測する圧力セルの開発を行ってきた。測定手段や必要となる圧力に応じて、ピストンシリンダー型圧力セル、インデンター型圧力セル、ブリッジマン型圧力セル、ダイヤモンド型圧力セルを使い分ける必要があり、それぞれの技術を学生達に伝授するとともに、新たな圧力セルの開発を学生達と行なっていくこととした。

パルス強磁場での圧力セルを開発するにあたっては、圧力セルを構成する部品の非金属化を進めることが重要である。ただし、シリンダーやクランプナットは、非金属化することにより破壊されやすいため、セルのデザイン、材料の試験を行ないつつ、到達圧力を調べていくことになる。まずは、ブリッジマンアンビル型圧力セルを用いて、(1) ガasket の非金属化、(2) シリンダー・クランプナットの非金属化あるいは、金属と非金属のハイブリッド化を行なうこととする。金属部はパルス磁場によりすぐに温度が上昇すると思われるが、試料空間は圧力媒体で覆われている。試料空間に渦電流による熱が伝わるのには、多少時間の遅れがあると期待される。したがって、最も試料空間に近いガasket を金属化することが有効であると考えられる。さらに、シリンダー・クランプナット部の温度の急上昇は、液体ヘリウムの急激な蒸発によるクライオスタットの破壊につながるため、シリンダー・クランプナット部も非金属化を進める必要がある。シリンダー部の非金属化は、到達圧力の大きな低下につながるため、高抵抗金属材料と非金属のハイブリッドといった材料とデザイン的な工夫を試行錯誤していく必要がある。

こうした圧力セルの開発に加え、実際にパルス強磁場磁場による温度上昇試験を行なう。温度上昇は強磁場パルス幅による。強磁場パルスが長い方が渦電流が小さく、温度上昇が小さいと考えられる。一方、強磁場パルスを短くして、シリンダー部の熱が圧力媒体

を通して試料に伝わる前に測定を終えてしまおうという考え方もある。また、パルスが長い方が電気抵抗は精度が良くなるであろうし、パルスは短い方が磁化の感度が上がるであろう。こうしたパルス強磁場の特性の違いによる温度上昇と適した測定手段を考慮し、国内外のパルス強場施設の共同利用を活用し、開発を進めた。また、本圧力セルを用いて、圧力誘起超伝導体 CeRh_2Si_2 の温度・磁場・圧力相図を作成し、局在的な $4f$ 電子による $H_c=26\text{T}$ のメタ磁性が、圧力とともにどのように変化するか、とくに量子臨界圧力である 1GPa を越えるとき、 H_c がどのように変化するのか、類似物質の CeRu_2Si_2 のメタ磁性とどのようにつながるのかを明らかにする。

4. 研究成果

まず、初年度はブリッジマン型アンビルセルを用いて、アンビルとガスケットの非金属化を行った。これまではアンビルにタングステンカーバイト WC、ガスケットに BeCu-MP35N のハイブリッドガスケットを用いて、極低温で 6GPa 程度での実験を行ってきた。本研究では、WC をジルコニアアンビルに変え、ガスケットをパイロフェライトとした。方式を変更するため、アンビルのデザイン、ガスケットの最適条件をさぐった。また、実際に興味ある対象物質で実験を行った。対象としたのは、 CeRh_2Si_2 である。 CeRh_2Si_2 は 36K のネール温度を有し、約 1GPa の臨界圧力で常磁性体となる。常圧では $H_c=26\text{T}$ の磁場で、反強磁性の磁気モーメントが強磁性的にそろろう。本圧力セルを用いて、フランス・トゥールーズのパルス強磁場施設で、W. Knafo 博士と共同実験を行い、圧力下でメタ磁性の変化を調べた。その結果、 0.6GPa までは、常圧と同様のメタ磁性が観測されるが、それ以上の圧力では、重い電子系に由来するメタ磁性 H_M へとクロスオーバーしていくことが明らかとなった。

CeRh_2Si_2 のようなイジング型の反強磁性体では、磁場は反強磁性秩序を破壊したり ($H=H_c$)、また偏極した常磁性状態を誘起する ($H=H_m$)。これら二つの現象は、1 次のメタ磁性転移を伴って同時に起きる場合もあれば、反強磁性秩序の破壊が、磁場誘起のメタ磁性よりも低い磁場で起きることもある。 CeRh_2Si_2 では、これが同時に起きている。一方、常磁性体 CeRu_2Si_2 に Rh をドーブした系では、反強磁性秩序が誘起されるとともに、 H_c と H_m の分離が観測されている。ドーピングに比べて圧力は、反強磁性セリウム化合物を量子臨界点へと導く上でクリーンな手段である。圧力は H_m を増大させる一方、 H_c を減少させ、 H_m と H_c の分離を引き起こすものと期待される。これを CeRh_2Si_2 で検証すべく、本研究では、フランス CEA の D. Braithwaite 博士

と協力し、アンビルを支える圧力セルの本体にスリットを 4 箇所入れ、渦電流の発生を抑えた圧力セルの製作を行った。その結果、 4.5GPa の高圧力、 1.5K の極低温、 60T の強磁場での実験が可能となった。この圧力セルを用いて、トゥールーズのパルス強磁場施設で、W. Knafo 博士と CeRh_2Si_2 のメタ磁性の研究を行った。 $P_c=1\text{GPa}$ より低圧では、一つの鋭いメタ磁性が H_c で観測される。 H_c は加圧とともに減少していく。しかしながら、 P_c に近い圧力では、 H_c より低い磁場にブロードな肩構造が H_m で磁気抵抗に観測された。加圧により H_c と H_m が一致したのち、ブロードなピークとして、 H_m がさらに増大していくことを見出した。これらの結果は、当初の期待を裏付ける結果であった。また、本研究課題に関連して、他の圧力誘起超伝導体 CePt_2In_7 の超伝導状態の研究や、圧力下の超音波計測システムへの開発へと波及した。

また、本研究の主要部分は、2015 年にイタリア・バルセロナで開催される磁性に関する国際会議 ICM2015 およびフランス・グルノーブルで開催される強磁場に関する国際会議で発表する予定である。

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 2 件)

1. “Anisotropy of the superconducting upper critical field and antiferromagnetism in pressure-induced superconductor CePt_2In_7 ”, S. Kurahashi, S. Ota, S. Tomaru, Y. Hirose and R. Settai, J. Phys.: Conf. Ser. 592, (2015) 012006/1-6, 査読有り

2. “Development of non-metallic diamond anvil cell and quantum oscillation measurement of CePt_2In_7 in a pulsed-magnet”, A. Miyake, Y. Kohama, S. Ohta, Y. Hirose, R. Settai, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, A. Matsuo, K. Kindo, and M. Tokunaga, J. Phys.: Conf. Ser. 592, (2015) 012034/1-6, 査読有り

[学会発表](計 19 件)

1. “圧力下超音波実験による重い電子 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の研究”, 根本祐一, 星野和也, 三本啓輔, 赤津光洋, 後藤輝孝, 広瀬雄介, 摺待力生, 大貫惇睦, 日本物理学会, 早稲田大学, ポスター, 審査なし, 2015/03/22.

2. “重い電子系 CeIrIn_5 の強磁場中の Ce 価数”, 松田康弘, 寺島拓, 摺待力生, 河村直

己, 水牧仁一郎, 稲見俊哉, 日本物理学会, 早稲田大学, ポスター, 審査なし, 2015/03/22.

3. “重い電子系反強磁性体 CeAl_2 の圧力下 de Haas-van Alphen 効果”, 佐瀬芳行, 太田俊平, 広瀬雄介, 撰待力生, 日本物理学会, 早稲田大学, ポスター, 審査なし, 2015/03/21.

4. “重い電子系反強磁性体 CeAl_2 のドハース・ファンアルフェン効果”, 佐瀬芳行, 太田俊平, 広瀬雄介, 撰待力生, 物理学会新潟支部会, 新潟大学, ポスター, 審査なし, 2014/12/13.

5. “ RPt_2In_7 (R:Ce,Pr) のカンチレバーによる de Haas-van Alphen 効果”, 太田俊平, 倉橋秀平, 都丸駿, 広瀬雄介, 本多史憲, 李徳新, 青木大, 三宅厚志, 徳永将史, Ilya Sheikin, Albin de Muer, 撰待力生, 物理学会新潟支部会, 新潟大学, ポスター, 審査なし, 2014/12/13.

6. “ CePt_2In_7 の圧力誘起超伝導”, 倉橋秀平, 太田俊平, 都丸駿, 広瀬雄介, 撰待力生, 物理学会新潟支部会, 新潟大学, ポスター, 審査なし, 2014/12/13.

7. “超音波による重い電子系カゴ状化合物 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の静水圧下弾性定数測定 II”, 星野和也, 三本啓輔, 赤津光洋, 根本祐一, 後藤輝孝, 広瀬雄介, 撰待力生, 大貫惇睦, 物理学会新潟支部会, 新潟大学, ポスター, 審査なし, 2014/12/13.

8. “超音波による圧力誘起超伝導体 CeRhIn_5 の研究”, 伊藤基樹, 星野和也, 三本啓輔, 赤津光洋, 根本祐一, 後藤輝孝, 広瀬雄介, 撰待力生, 物理学会新潟支部会, 新潟大学, ポスター, 審査なし, 2014/12/13.

9. “ CePt_2In_7 の圧力誘起超伝導II”, 倉橋秀平, 太田俊平, 都丸駿, 広瀬雄介, 撰待力生, 日本物理学会, 中部大学, ポスター, 審査なし, 2014/09/08.

10. “超音波による重い電子系カゴ状化合物 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の静水圧効果 II”, 星野和也, 三本啓輔, 赤津光洋, 根本祐一, 後藤輝孝, 広瀬雄介, 撰待力生, 大貫惇睦, 日本物理学会, 中部大学, ポスター, 審査なし, 2014/09/08.

11. “ CePt_2In_7 の de Haas-van Alphen 効果と強磁場物性”, 太田俊平, 倉橋秀平, 都丸駿,

広瀬雄介, 本多史憲, 李徳新, 青木大, 三宅厚志, 徳永将史, Albin de Muer, Ilya Sheikin, 撰待力生, 日本物理学会, 中部大学, 口頭, 審査なし, 2014/09/07.

12. “Investigation of the heavy-fermion antiferromagnet CeRh_2Si_2 under intense pulsed magnetic fields combined with high pressures”, W. Knafo, R. Settai, D. Braithwaite, S. Kurahashi, D. Aoki, J. Flouquet, SCES’2014 (The international Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2014), Grenoble, France, ポスター, 審査あり, 2014/07/09.

13. “Anisotropy of upper critical field and antiferromagnetism in pressure-induced superconductor CePt_2In_7 ”, S. Kurahashi, S. Ohta, S. Ota, Y. Hirose, R. Settai, SCES’2014 (The international Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2014), Grenoble, France, ポスター, 審査あり, 2014/07/08.

14. “Development of quantum oscillations measurements under multiple extreme conditions combining a pulsed-magnet and non-metallic diamond anvil cell”, A. Miyake, Y. Kohama, S. Ohta, Y. Hirose, R. Settai, F. Honda, D. Aoki, Y. Ōnuki, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, A. Matsuo, K. Kindo, M. Tokunaga, SCES’2014 (The international Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2014), Grenoble, France, ポスター, 審査あり, 2014/07/07.

15. “パルス強磁場・高圧力下における量子振動測定法の開発II”, 三宅厚志, 小濱芳允, 太田俊平, 広瀬雄介, 本多史憲, 青木大, 大貫惇睦, 撰待力生, 松林和幸, 上床美也, 松尾晶, 金道浩一, 徳永将史, 日本物理学会, 東海大学, ポスター, 審査なし, 2014/03/28.

16. “ RPt_2In_7 (R=Ce,Pr)の単結晶育成と de Haas-van Alphen 効果”, 太田俊平, 倉橋秀平, 都丸駿, 広瀬雄介, I. Sheikin, 撰待力生, 日本物理学会, 東海大学, ポスター, 審査なし, 2014/03/28.

17. “ CePt_2In_7 の圧力誘起超伝導”, 倉橋秀平, 太田俊平, 都丸駿, 広瀬雄介, 撰待力生, 日本物理学会, 東海大学, ポスター, 審査なし, 2014/03/28.

18. “ RPt_2In_7 (R;Ce,Pr)の単結晶育成”, 太田俊平, 倉橋秀平, 都丸駿, 広瀬雄介, 撰待力生,

物理学会新潟支部会, 新潟大学, ポスター,
審査なし, 2013/12/14

19. “Fermi surface properties around quantum
critical point in CeIrSi₃”, R.Settai, Y.Miura, Y.
Ōnuki, International Conference on Strongly
Correlated Electron Systems, Tokyo, ポスタ
ー, 審査有り, 2013/08/08

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

摂待 力生 (SETTAI RIKIO)
新潟大学・自然科学系・教授
研究者番号：00251041

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

広瀬 雄介 (HIROSE YUSUKE)
新潟大学・自然科学系・助教
研究者番号： 00647125