特集 —— 低温と高圧力下物性研究の未来 ——

高圧力発生装置の小型化による
物性測定環境の拡張

Recent Progress in Multi-Extreme Condition by Miniature High-Pressure Cell

松林 和幸^{1,*}Kazuyuki MATSUBAYASHI^{1,*}久田 旭彦¹Akihiko HISADA¹河江 達也²Tatsuya KAWAE²上床 美也¹Yoshiya UWATOKO¹

In this article, we report recent development of miniature high-pressure apparatus for bulk measurements at low temperature and in magnetic field. The new compact multi-anvil type “Palm cubic anvil cell” extends the temperature range down to ~ 0.45 K by using a ^3He refrigerator. We also present a technique for measuring the specific heat under pressure and magnetic field using newly developed miniature piston cylinder cell made of Ag-Pd-Cu alloy. Its application to the heavy fermion compound $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ is presented.

[cubic anvil cell, piston cylinder cell, hydrostatic pressure, ac susceptibility, specific heat]

1. はじめに

強相関電子系物質の物性研究において、高圧力、極低温、強磁場を組み合わせる実現される複合極限環境は量子相転移とその臨界現象、圧力誘起超伝導といった興味ある物性現象の宝庫となっている。圧力によってチューニングされる量子臨界現象の普遍性を解明するためには、より高圧力・低温へと実験可能な測定領域を拡張し、多くの例を研究することがその本質を見極めるために重要な鍵となることは言うまでもない。また、これまでの研究の蓄積から圧力誘起量子相転移の相境界近傍での正確な相図を得るためには、圧力の不均一性を抑えた高い静水圧環境が必要不可欠であることがわかってきた。我々の研究グループでは、種々の精密物性測定に応用可能な比較的広い試料空間を有すると同時に、高い静

水圧を発生出来る高圧装置として、10 GPa 級の高圧まで良い静水圧を発生出来るマルチアンビル型のキュービックアンビルセルとより広い試料空間を持つピストンシリンダーセルの開発を行ってきた[1,2]。しかし、キュービックアンビルセルでは圧力装置が大型であるために極低温への冷却が困難であることが問題となっていた。キュービックアンビルセルを小型化するためには、高い荷重を保持できる高強度材料が必要であるが、さらに磁場中での測定には非磁性材料という条件も満たさなければならない。また、後半で紹介するピストンシリンダーセルを用いた断熱法による高圧下・磁場中比熱測定の場合は、セルに用いる材料自身の熱容量が小さいことに加えて、磁場中の核比熱増大も考慮する必要があった。本稿ではこれらの問題点を克服すべく新しくデザインされた ^3He 冷凍機に搭載可能な小型キ

¹ 〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5 東京大学物性研究所
Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8581

² 〒819-0395 福岡市西区元岡 744 九州大学大学院 工学研究院 エネルギー量子工学部門
Department of Applied Quantum Physics and Nuclear Engineering, Faculty of Engineering, Kyushu University, 744 Motoooka, Nishi-ku, Fukuoka 819-0395

* Electronic address: kazuyuki@issp.u-tokyo.ac.jp

キュービックアンビルセルと、銀系新材料製のピストンシリンダーセルの開発状況について述べる。小型キュービックアンビルセルの開発については、本誌で既に解説しているが[2]，本稿では ^3He 冷却システムの詳細と圧力発生効率の向上について述べる。また，我々は銀系新材料を使用した小型ピストンシリンダーセルを用いることで，高圧下・磁場中比熱測定を希釈冷凍機温度領域で精密に測定することに最近成功したが[3]，その時使用した銀パラジウム合金の特性および，その測定例として重い電子系物質 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ における高圧下・磁場中比熱測定の結果を紹介する。

2. 小型キュービックアンビル圧力発生装置を用いた ^3He 温度領域での高圧実験

キュービックアンビルセルは，3軸方向から試料を等方的に加圧することで，良い静水圧性を保ちながら，高い圧力を発生させることができる圧力装置である。試料空間も比較的大きいことから，電気抵抗のみならず，AC帯磁率，AC比熱さらには，X線回折や中性子回折などの多くの物性測定が可能となる[4]。我々はこれまで小型軽量化を推し進めてきたが，従来装置の長所である大きな試料空間と高い静水圧性を損なうことなく小型化に成功した。そのため，装置の設置場所を選ばない利点が生まれ，中性子回折実験のような大型施設での実験も容易となった。液体 ^3He 冷凍機との組み合わせによる極低温下での測定では，これまでの測定最低温度である 0.57 K を，0.45 K 以下に更新し，さらに定常運転で実験する事に成功した。この改良は，測定の温度領域が広がっただけでなく，低温での温度一定状態で物性測定，例えば磁場依存性の研究が可能となり，多重環境下の物性研究としての測定の幅も広がった。

2.1 トップローディング型 ^3He 冷凍機の冷却システム

Fig. 1 は小型キュービックアンビルセルの冷却に用いている ^3He 冷凍機の外観写真である。外径 $\phi 106\text{ mm}$ （ガイドブロックの外径： $\phi 80\text{ mm}$ ）のクランプセルを収納できるよう， ^3He インサート自体も内径 $\phi 111.5\text{ mm}$ という大口径の空間となっている。また，圧力セルをぶら下げたプローブを出し入れする際に，空気の流入と ^3He ガスの流出を防ぐ

Fig. 1. (Color online) Photograph of top loading ^3He cryostat for palm cubic cell.

Fig. 2. (Color online) Cross sectional view of the ^3He cryostat.

ための大型ゲートバルブによって仕切られたチャンバー（高さ 660 mm）を備えている。本装置の冷却システムは，熱容量の大きい圧力セルを長時間，安定して冷やせるよう，液体 ^3He に直接浸して冷却するトップローディング式の ^3He 循環冷却システムを採用している。

Fig. 2 に本装置の ^3He インサート下部の断熱管内の冷却システムの概略図を示す。断熱空間には ^4He

1 K 冷却・熱交換ラインと ^3He 冷却ラインの二種類のラインがセットされている。 ^4He 1 k 冷却ラインは、断熱管の外のクライオスタットからニードルバルブをへて 1 K ポットへ導入されている。この 1 K ポットを減圧することにより、クライオスタットから液体 ^4He が吸い込まれ、Cu 製の 1 K ポットに液体 ^4He が溜まる。さらに、ニードルバルブを調整することで、1 K ポット全体が 1.5 K 以下にまで冷却される。1 K ポットには、Cu ブロックを介して ^3He インサート本体と ^3He 冷却ラインの ^3He 熱交換器が接触している。この熱交換器内部では、外から送りこまれた室温の ^3He ガスが、2 K 以下に冷却され液化する。この ^3He 熱交換器は、 $\phi 14 \times 32$ mm の銅製の円筒に Cu パウダーを押し固め、それを水素中で焼結して作成した。本装置ではこれを二つ並列につなぐことで容積を増やしている。熱交換器の先にはニードルバルブがセットされ、液体 ^3He は、インサートの外周にらせん状にとりつけられた ^3He ラインを通してインサートの底から試料室へ導入されている。 ^3He ラインは、途中数か所、はんだ付けでインサート本体に固定されている。これは、熱接触によって試料空間の壁面全体を均等に 1.0 K 以下に冷やす目的である。インサートの底からは、ニードルバルブで調整され、減圧された液体 ^3He が流れ出し、試料空間を 0.45 K 以下に冷却している。現在、一連の循環冷却時に用いている ^3He ガスの量は 5 L 程度であり、非常に少ない。この事実は、圧力セル全体が液体 ^3He に浸っているのでは無く、ガスによる冷却によって 0.45 K 以下が得られている事を示唆している。なお、実際の連続運転時間を決めているのはクライオスタット側の液体 ^4He であり、1 K ポットへの液体 ^4He 吸い込み口よりも液面が上であれば連続運転が可能である。

より低温まで冷却するためには、リード線やプローブからの熱流入および大口径インサートからの放射熱を防ぐ工夫が必要となるため、インサートプローブの断熱も新たに工夫した。Fig. 3 インサートプローブの下部の写真を示す。 ^3He インサート回りは、液体 ^4He 温度であるので、リード線からの熱流入が問題となるのは、1 K ポットより下の位置である。そこで、インサートプローブには複数枚の放射シールド板をセットした。1 K ポットに最も近い一番上の放射シールド板には、Cu 製のアンカーを取り付け、そこにリード線を巻きつけてワニスで固めることにより、リード線を 1 K ポットと同程度の

Fig. 3. (Color online) Photograph of probe with palm cubic cell.

温度まで冷やす。1 K ポットより下部は、熱伝導性の低いコンスタンタン線（または超伝導線）をリード線として用いることで、1 K ポットからの熱流入を抑えた。 ^3He 温度域では室温からの放射熱による温度上昇も無視できない。大口径インサートによる、室温からの熱放射を防ぐため、5 枚の放射シールド板を 70 mm 間隔で取り付け、その先に圧力セルをセットした。この放射シールド板の長さは、圧力セルをインサートの底まで降ろした時に、一番上の放射シールド板が 1 K ポットとほぼ同じ高さにくるように設計した。なお、室温から 1 K までの熱シールドは、上部の熱放射板およびプローブを熱伝導性の低いステンレスのパイプを使用する事により防いでいる。この他、磁場スイープ中の渦電流による発熱を防ぐ為、放射シールド板には中心に向かって切り込みを設けた。

以上の対策は低温測定技術としては基本的なものであるが、これらの対策を十分に行うことで、従来のワンショット冷却時における最低温度 0.57 K（循環冷却時では 0.81 K）を大幅に更新し、0.45 K

以下での物性測定を安定して行えるようになった。

2.2 極低温・10 GPa 級高压下物性測定に向けた取り組み

小型キュービックアンビル圧力発生装置は、従来装置と同等の性能が得られるよう設計し、ガイドブロックの材質に SKD61 を、アンビルの材質に非磁性タングステンカーバイド (WC) を用いている。従来装置と同じパイロフェライトガスケット (固体圧力媒体) と、同じ加圧面積 $4 \times 4 \text{ mm}^2$ のアンビルを用いることにより、同程度の圧力効率 (室温において 93 ton の荷重に対して発生圧力 7.7 GPa) での圧力が得られている。装置の詳細については過去の記事を参照して頂きたい[2]。

前節でも述べたように、低温実験において熱流入を防ぐことは重要な課題である。特に ^3He 温度域での測定に対して、従来装置と同じ定荷重方式ではプローブからの熱流入が大きくなりすぎる。そこで本装置では、非磁性 CuBe 合金製クランプケースによるクランプ式の圧力装置にし、荷重を保持している。この方式は、インサートプローブを細くし、熱流入を抑えられるというメリットがある反面、冷却

時に圧力の変動が生じるというデメリットもある。これは、各部品の材質の熱収縮率の違いによるものであり、例えば従来の固体圧力媒体とアンビルの組み合わせの場合、低温での最大発生圧力は約 7 GPa (室温における最大発生圧力の 90%) に減少する。そこで我々は、 ^3He 温度域での 10 GPa 級測定を目標とし、圧力発生効率を高める研究を行ってきた。以下に、現在行っている二つのアプローチについて述べる。

2.2.1 ガスケットの材質の変更

キュービックアンビル圧力発生装置では、6 つのアンビルの中心に置かれた立方体のガスケットは 3 軸方向から等方的な圧縮により、アンビル間の隙間にガスケットが押し延ばされフィンが出来る。このフィンとアンビルの摩擦によってガスケット内の圧力が維持され、如何にフィンを上手に作るかが圧力発生効率を良くするポイントである。したがって、ガスケットとアンビルの材質の組み合わせを調整し摩擦を大きくすることで、圧力発生効率を高めることができる。従来装置では、焼結ダイヤモンド製アンビルとマグネシア (MgO) 製ガスケットの組み合わせによって、100 ton の荷重で約 12 GPa の発

Fig. 4. (Color online) Pressure calibration curve for the palm cubic anvil cell at room temperature (a) and at low temperature (b).

生圧力が得られる。小型キュービックアンビルセルにおいても圧力効率の向上を目指すべく、非磁性 WC アンビルと MgO ガasket の組み合わせを試した。Fig. 4a, b は、それぞれ室温と低温における荷重に対する発生圧力を示した校正曲線である。室温での圧力校正には Bi, Te, Sn の圧力誘起相転移 [5,6] を、低温での圧力校正には Pb の超伝導転移 [7] を用いた。室温では 9.4 GPa の圧力が発生出来た。これは非磁性 WC アンビルとパイロフェライトガasket の組み合わせのときよりも 20% 程度向上している。また、クランプ状態で低温にしたときの圧力は、室温での圧力から 10% 程度低下したが、93 ton の荷重に対して約 8.3 GPa の圧力をクランプすることができた。

2.2.2 加圧アンビル面積の変更

原理的に、圧力発生装置の発生圧力は加圧面積当たりの荷重で決定される。即ち、圧力は加圧面積に反比例する。これまでの装置ではアンビルの加圧面積を $4 \times 4 \text{ mm}^2$ であったが、今回、新たに小さい加圧面積の $2.5 \times 2.5 \text{ mm}^2$ のアンビルと、パイロフェライトガasket との組み合わせによる圧力校正を

行った。Fig. 5 に室温での Bi, Te, Sn の圧力誘起相転移による圧力校正曲線を示す。圧力発生効率が良くなり、従来よりも小さい 72 ton の荷重に対して 9.4 GPa の圧力が発生している。しかし、校正曲線から明らかなように高圧領域では圧力発生効率が低下し、70 ton 以上の荷重を加えても発生圧力がほとんど上昇せず飽和傾向を示している。これを回避するためには、Fig. 4 で示されたように、MgO ガasket を使用することが有効であると思われる。現在、 $2.5 \times 2.5 \text{ mm}^2$ アンビルと MgO ガasket を組み合わせることで、10 GPa 以上の圧力を発生すべく実験を行っている。10 GPa 以上の圧力を発生させるためには、アンビル強度の不足も懸念されるためより強度の高い WC アンビルのテストも行い、改良を続けている。

3. 銀パラジウム合金製ピストンシリンダーセルを用いた高圧下・磁場中比熱測定

比熱は相転移や電子の有効質量を反映した電子比熱係数などを直接的に観測することが可能である重要な物理量である。代表的な比熱測定法としては、主に断熱法、緩和法、交流法の 3 つが知られている。これまでにそれぞれの手法を用いて高圧下における比熱測定が試みられているが、いずれも一長一短がある [8-11]。交流法の測定原理としては、試料に周波数 ω の交流熱流 P を与えた際に、試料の温度が変調する振幅 T_{ac} が比熱 C との間に $T_{ac} = P/\omega C$ という関係が成り立つことを利用している。ただし上記の関係式が成り立つ周波数は、試料から熱浴への熱の逃げと試料内の熱の緩和に依存するカットオフ周波数の範囲内に限られることに注意を要する [12]。交流法は微小な試料を用いて測定でき、かつ測定感度が高いため、DAC などの高圧装置を用いて超高圧領域までの測定が行われ、10 GPa 級の超高圧領域においては唯一の比熱測定手法であると言って良い。最近、我々の研究グループでもキュービックアンビルセルを用いた交流比熱測定にも成功している [13]。しかし交流法の欠点は、試料からの熱の逃げの評価が困難であることに起因した比熱の絶対値が得られないことである。一方、比熱の絶対値も議論できる測定手法としては、断熱法による高圧比熱測定が知られている。高圧下における測定では、試料が封じられた圧力セルごと熱容量を測定し、あらかじめ測定しておいた圧力セルの寄与（バックグラウ

Fig. 5. (Color online) Comparison of the pressure calibration curve using anvil top with $2.5 \times 2.5 \text{ mm}^2$ and $4.0 \times 4.0 \text{ mm}^2$.

Fig. 6. (Color online) Schematic view of miniature piston cylinder pressure cell.

ンド)を差し引くことで試料の比熱が求まる。従って、高精度の実験を行うための必要条件として、試料とパップグラウンドの比熱比を出来るだけ大きくするための、圧力セルの小型化とより大きな試料スペースの確保が要求される。我々の研究グループでは、CuBe合金(C1720B HT)を用いた小型ピストンシリンダーセルを用いることで最高発生圧力2 GPa、測定最低温度80 mKの高圧下比熱測定を行ってきた(Fig. 6 参照) [8]。なお、小型ピストンシリンダーセルの外形は $\phi 8.8$ mm となっているため、汎用のSQUID磁化測定装置(カンタムデザイン社製)を用いて、同じ圧力環境で磁化測定も行うことができる。CuBe合金の磁化は比較的小さく、磁場中の磁化測定にはあまり支障は無いが、磁場中の比熱測定となるとCuBe合金に含まれる銅(Cu: 98%, Be: 2%)の核比熱の寄与のために、バックグラウンドが低温・磁場中では急激に大きくなり、精度のよい測定を行うことは難しくなる。この点を解決すべく、圧力セルとして十分な機械的強度をもち、さらにその核比熱の寄与が小さい材料として歯科材料として用いられている銀パラジウム合金(Ag: 40%, Pd: 40%, Cu: 20%, 石福金属興業社製)に着目した。合金を構成するそれぞれの元素に対して核のキュリー一定数を計算すると、1 g 当たりCuBe合金および銀パラジウム合金において、それぞれ 5.1×10^{-8} (J K/T²), 1.0×10^{-8} (J K/T²)となる。密度を考慮しても、銀パラジウム合金の磁場中における核比熱の寄与はCuBe合金の約1/4程度に抑えられることが期待される。

Fig. 7. (Color online) The aging time dependence of hardness at different aging temperatures.

Table 1. The hardness and 0.2% yield strength of AgPdCu and CuBe alloy.

Materials	HRC	0.2% Yield strength
Ag-Pd-Cu (70-20-10)	25	810 MPa
Ag-Pd-Cu (40-40-20)	45	1460 MPa
CuBe alloy C1720HT	42	1520 MPa

3.1 銀パラジウム合金の時効硬化と小型圧力セルと特性

銀パラジウム合金のももとの硬度はHRC(ロックウエル硬度Cスケール)で25程度とCuBe合金(HRC~42)と比較して小さいため、圧力セルの材料としては不十分であった。一般に金属材料の強度を向上させるには加工(wrought)や時効(aging)処理が有効であるので、まず棒状の銀パラジウム合金の原材料に対してスウェーピングを施し($\phi 12$ mm から $\phi 10$ mm), さらに適当な熱処理による時効硬化させることで、圧力セル材料としての最適化を目指した。Fig. 7に銀パラジウム合金のそれぞれの時効温度に対する硬度の保持時間依存性を示す。370 °Cでは70分程度、400~430 °Cでは約40分の保持時間で硬度はピークを示している。驚くことに、最大の硬度はHRC 43と僅かながら、CuBe合金を上回った。さらに、380 °C・90分の時効処理を行った試験片に対して圧縮強度測定を行い、0.2%降伏応力を調べた結果をCuBe合金のものと比較してTable 1に示す(表中にはCuの含有量がより小さな合金(Ag: 70%, Pd: 20%, Cu: 10%)に対する結果も合わせて示した)。以上の結果から、

適当な時効処理を行うことで銀パラジウム合金は CuBe 合金と同程度の機械的強度が得られることがわかった。

次に、銀パラジウム合金を用いて小型ピストンシリンダーセル（外径 $\phi 8.8$ mm 内径 $\phi 2.5$ mm）を試作し、加圧試験を行った。ここで圧力媒体には Daphne7373、ピストンやバックアップには従来通りジルコニアを用いた。また、低温における圧力は錫の超伝導転移温度の圧力依存性を測定することで決定した。発生圧力は加圧に対して直線的に増大し、最大で 1.5 GPa までの加圧に成功している。

3.2 銀パラジウム合金を用いた高圧下・磁場中比熱測定

3.2.1 圧力セルのバックグラウンド比熱

断熱法による高圧下比熱測定では、圧力セルは銀製の円盤状の治具（swivel）にネジを介して固定され、テグスによって宙ぶりにすることで擬断熱の状態が実現される。上下の swivel にはそれぞれ温度計とヒーターが超伝導線（NbTi）をリード線として取り付けられている。温度計には磁場依存性が小さい酸化バナジウム抵抗温度計を、ヒーターには歪みゲージを用いた。Fig. 8 の内挿図には銀パラジウム合金製圧力セルの約 125 mK における緩和曲線を示す。ヒーターによる加熱に対して、オーバーシュートなどがみられないことから、圧力セルの熱伝導は良好であることがわかる。Fig. 8 には磁場中において測定された銀パラジウム合金製圧力セルの熱容量の温度依存性を示す。磁場 1.5 T 以上、温度 200 mK 以下において観測される熱容量の増大は核

Fig. 8. (Color online) Temperature dependence of the heat capacity for AgPdCu alloy pressure cell in magnetic fields. The inset shows the relaxation curve taken at ~ 125 mK.

磁気比熱によるものであるが、先に述べた計算結果から期待されるように、CuBe 合金を用いた場合と比較してその大きさは格段に小さい。ただし、比熱の温度依存は磁場に強く依存するため、試料と同じ磁場で測定した圧力セルのバックグラウンドを差し引くことが高精度の実験を行うためには重要である。

3.2.2 実際の測定例：重い電子系物質 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の磁場中・高圧比熱

$\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ は常圧において 20 mK の低温まで磁気秩序を示さず、非常に大きな電子比熱係数 ($\gamma \sim 8 \text{ J/mol K}^2$) を有しており[14]、わずか 1.6 GPa 以上で圧力誘起反強磁性秩序を示すことから[15]、Yb 系における量子臨界現象を研究する上で格好の研究対象である。さらに興味深いことに、磁場中では $H_m \sim 0.6 \text{ T}$ でメタ磁性クロスオーバーを示すことから[16]、そのメタ磁性の起源と圧力誘起反強磁性秩序相との関係について興味を持たれている。Fig. 9 に銀パラジウム合金圧力セルを用いて高圧下で測定された電子系からの寄与 C_e/T の 130 mK における磁場依存性を示す。常圧ではメタ磁性クロスオーバーに対応する H_m での特徴的なダブルピーク構造が見ら、図中の矢印で示すこの極小点 H_m が加圧とともに低磁場へとシフトすることが明らかとなった。特に興味深いことに、圧力誘起反強磁性転移を示す臨界圧力近傍においても H_m は有限であることである。今後はより高い圧力域における測定を行い、近藤効果に起因するエネルギー尺度でもある H_m が圧力誘起反強磁性秩序を示す臨界圧力

Fig. 9. (Color online) Field dependence of the electronic contribution of the specific heat for $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ under pressure.

(1.6 GPa) に向かってどのような振る舞いを示すかを明らかにしていくつもりである。

4. おわりに

改良を加えた ^3He 冷凍機に搭載可能な小型キュービックアンビルセルの開発は、その圧力効率の向上により 10 GPa 級の高圧力と 0.45 K 以下の極低温環境を実現することに成功した。本装置を用いることで、重い電子系物質などの強相関電子系物質に対して興味深い実験結果が得られているので、また別の機会に紹介したい。もちろん、重い電子系物質に対してはより低温までの測定を行うことが重要であると考えられるため、希釈冷凍機に搭載できるようにさらに改良を進めている。また、高圧下・磁場中比熱測定に関しても、断熱法と交流法による測定を相補的に用いることで、近い将来 10 GPa 級の超高圧下においても、より精度の高い絶対値が得られる新しい比熱測定法の開発にも挑戦したいと考えている。

謝 辞

本稿で紹介した実験結果の一部は、平山貴士氏（東京大学）、山中里奈氏（東京大学）、田中斗志貴氏（日本大学）、八坂克仁氏（九州大学）、宗像孝司氏（総合科学研究機構）によって行われた。 ^3He クライオスタットの圧力装置の開発には、石本英彦氏（元東京大学）、辺土正人氏（琉球大学）、柄木良友氏（琉球大学）、松本武彦氏（物材機構）らの多大な協力とアドバイスを頂いた。改めて感謝致します。本研究は文部科学省の科学技術研究補助金（No. 21340092, No. 22740217, No. 20102007）から一部補助を受けて行われた。ここに感謝いたします。

参考文献

- [1] 上床美也：高圧力の科学と技術，**12**, 306 (2002).
- [2] 上床美也，松林和幸，松本武彦，阿曾尚文，西正和，藤原哲也，辺土正人，田端諭史，高木克啓，田渡正史，鍵裕之：高圧力の科学と技術，**18**, 230 (2008).
- [3] T. Kawae, K. Yaita, Y. Yoshida, Y. Inagaki, M. Ohashi, G. Oomi, K. Matsubayashi, T. Matsumoto, Y. Uwatoko: *Rev. Sci. Instrum.*, **80**, 025102 (2009).
- [4] N. Mori, H. Takahashi, N. Takeshita: *High Press. Res.*, **24**, 225 (2004).
- [5] P.W. Bridgman: *Proc. Am. Acad. Arts, Sci.*, **81**, 165 (1952).
- [6] V.E. Bean, S. Akimoto, P.M. Bell, S. Block, W.B. Holzapfel, M.H. Manghnani, M.F. Nicol, S.M. Stishov: *Physica*, **139 & 140B**, 52 (1986).
- [7] B. Bireckoven, J. Wittig: *J. Phys. E: Sci. Instrum.*, **21**, 848–850 (1988).
- [8] I. Umehara, M. Hedo, F. Tomioka, Y. Uwatoko: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **76**, 206 (2007).
- [9] H. Kubo, K. Umeo, K. Katoh, A. Ochiai, T. Takabatake: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77**, 023704, (2008).
- [10] 芳賀芳範：高圧力の科学と技術，**14**, 353 (2004).
- [11] S. Nishigori, N. Miyamoto, T. Ikeda, T. Ito: *Physica B*, **359–361**, 172–174, (2005).
- [12] P.F. Sullivan, G. Seidel: *Phys. Rev.*, **173**, 679 (1968).
- [13] K. Matsubayashi, M. Hedo, I. Umehara, N. Katayama, K. Ohgushi, A. Yamada, K. Munakata, T. Matsumoto, Y. Uwatoko: *J. Phys.: Conf. Ser.* **215**, 012187 (2010).
- [14] M.S. Torikachvili, S. Jia, E.D. Mun, S.T. Hannahs, R.C. Black, W.K. Neils, D. Martien, S.L. Bud'ko, P.C. Canfield: *PNAS.*, **104**, 9960 (2007).
- [15] Y. Saiga, K. Matsubayashi, T. Fujiwara, M. Kosaka, S. Katano, M. Hedo, T. Matsumoto, Y. Uwatoko: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77**, 053710 (2008).
- [16] M. Ohya, M. Matsushita, S. Yoshiuchi, T. Takeuchi, F. Honda, R. Settai, T. Tanaka, Y. Kubo, Y. Ōnuki: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **79**, 083601 (2010).

[2012 年 3 月 21 日受付，2012 年 4 月 18 日受理]

© 2012 日本高圧力学会