

令和 2 年 9 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05534

研究課題名(和文) 強磁場中の高感度磁歪測定法の開発と応用

研究課題名(英文) Development and application of the technique of high sensitive magnetostriction measurements in high magnetic fields

研究代表者

三田村 裕幸 (Mitamura, Hiroyuki)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：60282604

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：本課題ではパルス磁場中でのキャパシタンス法による磁歪測定の高感度化を実現し、それを用いて純良金属やトポロジカル絶縁体の候補物質の測定を目指した。計測器等の最適化や数値位相検波法の導入により垂直分解能の向上は実現できたが、磁場掃引に伴う誘導起電力による発熱が原因で予定していた物質の測定はうまくゆかなかった。この測定では、輸送測定等とは異なり試料空間が真空である必要性から試料の熱接触が弱くなり、磁場掃引に伴う温度変化の影響を排除しにくいという欠点が明らかになった。これらの結果から、キャパシタンス法による磁歪測定には磁場の発生時間が相対的に長いロングパルス磁場が有効であろうということがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題における当初目的は達成できなかったものの、その過程で信号処理技術の基幹である数値位相検波法が飛躍的に進歩した。これらは研究代表者三田村により2本の国際特許として出願されている。この方法は、交流測定において変調周波数を上げられない場合に如何に時間分解能を確保するかを突き詰めたもので、様々な分野への応用が期待できる。例えば、現状で携帯電話や地上波デジタル放送、ブロードバンド通信などで複数の周波数成分の復調に使われている直交多重周波数分割法(OFDM法)よりも原理的に高速での信号分離が可能であることが明らかになっており、より高い密度でのデータ送受信を可能にすると考えられる。

研究成果の概要(英文)：In the present study, we have realized higher sensitivity of magnetostriction measurement by capacitance method in pulsed magnetic field, and attempted to measure highly conductive pure metals and candidate substances of topological insulators by using it. Although the vertical resolution has been improved by optimizing the measuring instruments and introducing numerical phase detection technique, the planned measurement of the substance was unsuccessful due to the heat generated by the induced electromotive force accompanying the magnetic field sweep. In this measurement, unlike the transport measurement and the like, it became clear that the thermal contact of the sample is weakened because the sample space needs to be vacuum, and it is difficult to eliminate the influence of the temperature change due to sweeping magnetic fields. From these results, we have found that longer-pulsed-magnetic fields would be effective for magnetostriction measurement by the capacitance method.

研究分野：低温強磁場物性、強相関電子物性、磁性

キーワード：パルス磁場 磁歪 キャパシタンス法 数値位相検波 Bi

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、トポロジカル絶縁体の研究が盛んに進められている。これはバルクの性質が絶縁体で表面のみ電気伝導性を持つものであり、その理論的美しさだけでなく応用面からも物性物理学の新しいテーマとして注目を浴びている。最近ではさらに進んで電子相関の強い系でのトポロジカル絶縁体に興味を持たれていて、 SmB_6 はその候補の1つとして考えられている。 SmB_6 の電気抵抗については高温で絶縁体的だが低温では飽和する理由が謎とされてきた。そのような中、トポロジカル絶縁体の概念の導入によりこの謎が一気に解決するかに見えた。しかしごく最近になって磁気トルク測定で量子振動が観測され、その角度依存性からフェルミ面で囲まれた部分が3次元的構造を持つのではないかと報告された[1-2]。もしこれが本当であるとする、この量子振動が表面からではなくバルクの部分から生じていて、「バルクの性質が絶縁体である」というトポロジカル絶縁体の基本概念と真っ向から矛盾することになる。ただ、この量子振動が表面から来ている可能性を完全に排除するには至っておらずこの問題は未だ決着に至っていない。

2. 研究の目的

このような系における実験的研究で重要なのは表面の効果とバルクの効果とを良く分離することである。そういった観点から考えると磁気トルク測定は表面の効果とバルクの効果とを良く分離する実験とは言い難い。磁気抵抗も然りである。一般的に言って、表面についての研究手段は様々なものが開発されているものの、これと対極であるバルクの効果とを効果的に抽出できる測定手段は意外と限られている。表面の効果に対し究極的に鈍感な測定量としては、比熱や(磁歪・熱膨張などの)線膨張が考えられる。もしこういった測定で量子振動が観測できれば、その起源はバルクによるものと結論づけることができるであろう。

報告によれば SmB_6 の量子振動の観測には40 T程度までの強磁場が必要であり、この磁場領域での比熱測定による量子振動の観測(磁場スキャン)は感度と測定時間の面で現実的ではない。他方、磁歪測定による量子振動の観測については、定常磁場中ではあるが申請者が金属アルミニウムに関して行ったことがある(図1)。また、磁歪測定は比熱測定に比べてパルス強磁場との相性ははるかに良い。かような訳で本課題ではパルス強磁場中での磁歪測定を念頭に置き、主として SmB_6 の量子振動の観測を目指す。

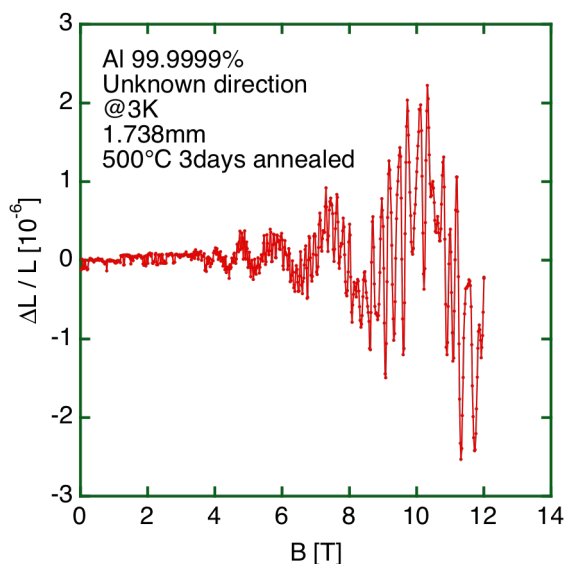


図1 定常磁場中のAlの磁歪のde Haas振動の様子。三田村の測定による。

最近、ファイバースラッグ回折格子法によりパルス強磁場中で $\Delta L/L \sim 3 \times 10^{-7}$ 程度 (L : 試料長、 ΔL : 試料の伸縮) の世界最高分解能を更新する磁歪測定結果が報告された [3]。しかしこの方法では試料の伸縮の測定方向に長く接着剤を塗布する必要がありこれが再現性のない突発的な伸縮を引き起こすので数字ほど性能は高くない。ストレインゲージ法も然りでこちらは更に分解能が悪い。一方、キャパシタンス法では接着剤を試料の伸縮の測定方向に薄く使う設計ができるのでその影響を極力抑えることができる。定常磁場中でのキャパシタンス法による磁歪測定については、近年の市販の自動キャパシタンスブリッジの性能の向上により $\Delta L/L = 10^{-7}$ 程度 (L : 試料長、 ΔL : 試料の伸縮) の分解能が容易に実現できるが、パルス強磁場中ではいまのところさほど性能は良くなく $\Delta L/L = 10^{-5}$ 程度が一般的である [4]。他の測定技術に目を向けると、パルス強磁場中の磁気抵抗測定では数値位相検波法の導入により垂直分解能が格段に向上しており、従来パルス強磁場が苦手としてきた純良金属の測定が容易にできるようになった (図 2)。研究代表者三田村はこの検波方法を磁歪測定に導入することにより既にパルス強磁場中で $\Delta L/L \sim 1 \times 10^{-6}$ 程度の分解能を実現しているが、それ以降の数値位相検波法におけるノイズ除去技術の発達や後述の新たなアイデアを考慮すれば $\Delta L/L = 1 \times 10^{-7}$ 程度の分解能が容易に実現できると思っている。また、(弾性定数にもよるが) これくらいの分解能が実現できたなら磁歪による量子振動の観測の可能性もかなり高まるのではないかと考えている。

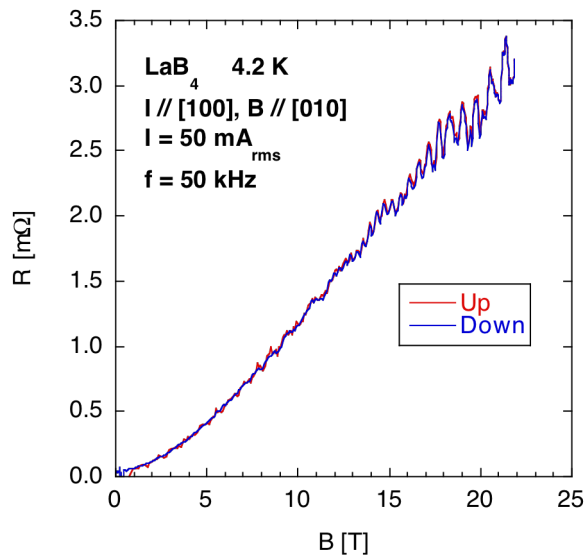


図 2 パルス磁場中における純良金属単結晶 LaB_4 の SdH 振動の様子。申請者らの測定による。2012 年日本物理学会秋季大会 18aCD-3 綿貫、三田村、鈴木、榊原ほか。

3. 研究の方法

本研究では極低温パルス強磁場中で SmB_6 などの単結晶試料の磁歪測定をキャパシタンス法により行なう。キャパシタンス法は、試料の伸縮が 2 つの平行電極間の距離 (約 $50 \mu\text{m}$ 程度) に連動しその電気容量の変化として観測するものである。従来型の試料セル (図 3 左参照) は接着部分が試料の伸縮方向に長い為、温度や磁場変化に対し再現性のない接着剤の収縮が起き、電極間距離が大きく変化してしまう欠点があった。接着剤の問題は、ストレインゲージ法やファイバースラッグ回折格子法でも根本的に同じである。申請者が開発したセル (図 3 右参照) は接着部分が試料の伸縮方向に薄いため、接着剤の伸縮の影響を極限的に抑えることが出来る。またこのセルは石英を用いているため磁場・温度変化に対するバックグラウンドが非常に小さい。図 4 にこのセルで測定した Cu の熱膨張の測定結果を示す。磁歪だけでなく熱膨張測定にもそのまま使えるだけの性能を有することが判る。

3. 研究の方法

本研究では極低温パルス強磁場中で SmB_6 などの単結晶試料の磁歪測定をキャパシタンス法により行なう。キャパシタンス法は、試料の伸縮が 2 つの平行電極間の距離 (約 $50 \mu\text{m}$ 程度) に連動しその電気容量の変化として観測するものである。従来型の試料セル (図 3 左参照) は接着部分が試料の伸縮方向に長い為、温度や磁場変化に対し再現性のない接着剤の収縮が起き、電極間距離が大きく変化してしまう欠点があった。接着剤の問題は、ストレインゲージ法やファイバースラッグ回折格子法でも根本的に同じである。申請者が開発したセル (図 3 右参照) は接着部分が試料の伸縮方向に薄いため、接着剤の伸縮の影響を極限的に抑えることが出来る。またこのセルは石英を用いているため磁場・温度変化に対するバックグラウンドが非常に小さい。図 4 にこのセルで測定した Cu の熱膨張の測定結果を示す。磁歪だけでなく熱膨張測定にもそのまま使えるだけの性能を有することが判る。

電気容量の測定にはキャパシタンスブリッジを使う。市販の自動ブリッジは時定数が長過ぎてパルス磁場中では使えない。そこで手動式のブリッジを本補助金で購入する。外部か

ら交流電圧をかけてやり、検流計Gの部分に発生した電圧を外部のレコーダーで取り込む。この方法では未知キャパシタンス (図5 C_x) と参照キャパシタンス (図5 C_{ref}) の大きさの比が 1 : 1 のときに $\Delta C_x / C_x$ に対応するGの電位差が計算上最も大きくなる。未知キャパシタンスの大きさはおよそ 3 pF 程度であるが、キャパシタンスブリッジに標準で装備されている参照キャパシタは 2 桁ほど大きくあまり適切ではない。そこで本研究では試料セルを作成する際にほぼ同じ電気容量の石英製参照キャパシタンスを製作し感度が最大になるようにする。

本研究では極低温パルス強磁場中で SmB₆ などの単結晶試料の磁歪測定をキャパシタンス法により行なう。キャパシタンス法は、試料の伸縮が2つの平行電極間の距離 (約 50 μ m 程度) に連動しその電気容量の変化として観測するものである。従来型の試料セル (図3 左参照) は接着部分が試料の伸縮方向に長いため、温度や磁場変化に対し再現性のない接着剤の収縮が起き、電極間距離が大きく変化してしまう欠点があった。接着剤の問題は、ストレーンゲージ法やファイバースラッグ回折格子法でも根本的に同じである。申請者が開発したセル (図3 右参照) は接着部分が試料の伸縮方向に薄いため、接着剤の伸縮の影響を極限的に抑えることが出来る。またこのセルは石英を用いているため磁場・温度変化に対するバックグラウンドが非常に小さい。図4にこのセルで測定した Cu の熱膨張の測定結果を示す。磁歪だけでなく熱膨張測定にもそのまま使えるだけの性能を有することが判る。

電気容量の測定にはキャパシタンスブリッジを使う。市販の自動ブリッジは時定数が長過ぎてパルス磁場中では使えない。そこで手動式のブリッジを本補助金で購入する。外部から交流電圧をかけてやり、検流計Gの部分に発生した電圧を外部のレコーダーで取り込む。この方法では未知キャパシタンス (図5 C_x) と参照キャパシタンス (図5 C_{ref}) の大きさの比が 1 : 1 のときに $\Delta C_x / C_x$ に対応するGの電位差が計算上最も大きくなる。未知キャパシタンスの大きさはおよそ 3 pF 程度であるが、キャパシタンスブリッジに標準で装備されている参照キャパシタは 2 桁ほど大きくあまり適切ではない。そこで本研究では試料セルを作成する際にほぼ同じ電気容量の石英製参照キャパシタンスを製作し感度が最大になるようにする。

4. 研究成果

Al 単結晶の磁歪については、定常磁場中で見られた de Haas 振動的な振る舞いは見られず、 $\{dB(t)/dt\}^2$ の時間積分に比例するような時間推移が見られた。これは Eddy current により試料の温度が上昇したため de Haas 振動が見られず、かつ熱膨張の時間推移が観測されてしまったことを示唆している。キャパシタンス法による磁歪測定は、試料空間が真空である必要性から熱浴との熱接触が弱いので、高速の磁場掃引に対する Eddy current による昇温や準断熱過程に伴う温度変化の影響を排除しにくいという欠点がある。SmB₆ の磁歪についても当初期待した de Haas 振動は見られず、大きな履歴が観測されており測定時間内の温度変化の影響が大きかったものと解釈できる。

当初目的が達成されなかったものの、これらの結果から本研究課題ではキャパシタンス法による磁歪測定は磁場の発生時間が相対的に長い所謂‘ロングパルス磁場’が有効であろうということがわかった。一方、申請者による最近の研究では、パルス磁場中での輸送測定において SN を向上させる目的での長時間のデータ積算は必ずしも要らないことが明らかになっている。これは磁場発生時固有の主たるノイズが、不均一磁場中での配線のループ部分の機械的な振動による誘導起電力によるものであると解明されたため、データ積算

の時間を長くするよりは、配線やプローブ、マグネットの機械的振動を抑える方が経済的かつ有効であると考えられるためである。ただしこれは輸送測定では試料の熱接触が比較的良好であることから可能であるとも言える。

現在、各種の測定において従来の所謂‘ミッドパルス磁場’ではなく‘ロングパルス磁場’を必要とするかどうかの線引きは、要求される SN 比の大小で語られているが、本研究では試料の熱接触の良否が判断基準として重要であることがわかった。ロングパルス磁場中での実際の磁歪測定は、SN 向上のための防震対策が施設側の同意を得られなかったことや、電源の不安定性によるマシンタイムの逼迫の影響もあり、残念ながら実現に至らなかった。しかしながら純良金属のキャパシタンス法による磁歪測定においてはロングパルス磁場’が有効な手段であることが予想されるので今後とも実現に向け努力したい。

本課題の中で発展させられた数値位相検波におけるノイズ除去法の一部を国際特許出願し、その方法の詳細を磁気抵抗測定法に関する論文の一部として *Review of Scientific Instruments* 誌に投稿し本報告書提出時で審査中である。Bi 単結晶の磁歪測定の結果については、東大物性研三宅厚志氏の同じく *Review of Scientific Instruments* 誌に投稿中の論文において共著者としてそのデータを提供した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Y. Fujishiro, N. Kanazawa, T. Shimojima, A. Nakamura, K. Ishizaka, T. Koretsune, R. Arita, A. Miyake, H. Mitamura, K. Akiba, M. Tokunaga, J. Shiogai, S. Kimura, S. Awaji, A. Tsukazaki, A. Kikkawa, Y. Taguchi, Y. Tokura	4. 巻 9
2. 論文標題 Large magneto-thermopower in MnGe with topological spin texture	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 408 (7 pages)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-018-02857-1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Y. Fujishiro, N. Kanazawa, T. Nakajima, X. Z. Yu, K. Ohishi, Y. Kawamura, K. Kakurai, T. Arima, H. Mitamura, A. Miyake, K. Akiba, M. Tokunaga, A. Matsuo, K. Kindo, T. Koretsune, R. Arita and Y. Tokura	4. 巻 10
2. 論文標題 Topological transitions among skyrmion- and hedgehog-lattice states in cubic chiral magnets	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1059(1-8)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-019-08985-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 三田村裕幸、松尾晶、藤代有絵子、Max Hirschberger、徳永将史、金道浩一、金澤直也、十倉好紀
2. 発表標題 ロングパルス磁場を用いた高分解能輸送測定
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Mitamura, E. Kampert, T. Foerster, K. Goetze, S. Zherlitsyin, J. Wosnitza, T. Sakakibara, K. Wakiya, K. Matsumoto, T. Onimaru, T. Takabatake
2. 発表標題 Magnetoresistance measurement of intermetallic compounds PrT ₂ Zn ₂₀ (T=Ir, Rh) in pulsed high magnetic fields
3. 学会等名 The 16th International Conference on Megagauss Magnetic Field Generation and Related Topics (MG-XVI) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 三田村裕幸, 三宅厚志, 徳永将史, 榊原俊郎
2. 発表標題 SmB6のパルス強磁場中磁歪測定
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 H. Mitamura, R. Watanuki, K. Kaneko, N. Onozaki, Y. Amou, S. Kittaka, R. Kobayashi, Y. Shimura, I. Yamamoto, K. Suzuki, S. Chi and T. Sakakibara
2. 発表標題 Spin-Chirality-Driven Ferroelectricity on a Perfect Triangular Lattice Antiferromagnet RbFe(MoO ₄) ₂
3. 学会等名 The 9th APCTP Workshop on Multiferroics (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 三田村裕幸
2. 発表標題 パルス強磁場下での低周波交流測定の展開
3. 学会等名 強磁場科学研究会「強磁場が切り拓く物質科学のフロンティア」
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計2件

産業財産権の名称 フィルタリング装置及びフィルタリング方法	発明者 三田村裕幸	権利者 東京大学
産業財産権の種類、番号 特許、PCT/JP2019/015560	出願年 2019年	国内・外国の別 外国

産業財産権の名称 フィルタリング装置及びフィルタリング方法	発明者 三田村裕幸	権利者 東京大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018- 75231	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	榊原 俊郎 (Sakakibara Toshiro) (70162287)	東京大学・物性研究所・教授 (12601)	