

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月4日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K18747

研究課題名(和文)ポメランチューク冷凍法による超低温技術開発

研究課題名(英文)Development of ultralow-temperature measurement systems by Pomeranchuk cooling

研究代表者

山下 穰(Yamashita, Minoru)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：10464207

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は市販の希釈冷凍機で到達可能な温度より低温の超低温領域(~ 1 mK)まで強相関電子系研究を拡張するための技術開発と物性測定を目的とした研究である。本研究によって小型ポメランチューク冷却セルが完成し、そのテスト運転を行った。いくつかの問題から最低温度の確認には至らなかったが、これらの問題を克服するめどが立ったことで超低温における物性測定を加速させるという当初の目的をほぼ達成することができた。加えて、CeCoIn5における超低温測定からこれまでの温度領域では観測できなかった秩序相が観測できた。この結果により、超低温領域における物性測定を様々な物質に応用できる礎ができたと考えられている。

研究成果の学術的意義や社会的意義

科学研究においてより低温までの研究を行う事は熱揺らぎに隠れていた物質の本質的性質を明らかにするために必須である。市販の冷凍機で達成可能な温度より低温の超低温領域(~ 1 mK)での実験には様々な実験的困難があつてこれまでほとんど行われてこなかったが、本研究成果はより簡易な方法で超低温を実現するものであり、この温度領域における研究の進展を加速させる結果である。さらに、超低温までのNMR測定からこれまで観測できなかった信号を得ることができ、様々な物質における超低温測定につながる成果である。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this research project is to develop a new cryostat and measurement systems to extend studies of strongly-correlated electron systems down to ultralow temperatures (~ 1 mK) from a temperature achieved by a commercial cryostat (~ 50 mK). We have developed a miniature Pomeranchuk cryostat, and have performed the cooling test of the cryostat. Although we could not confirm the lowest temperature of the cryostat owing to some technical issues, improvements required to resolve these issues have been clarified, accomplishing our goal for this project. In addition, we have succeeded measurements of CeCoIn5 down to ultralow temperatures. From the measurements, we revealed a new ordered phase at ultralow temperatures, which has not been obtained by a commercial cryostat. We believe that these results lay the first stone to extend our research of strongly-correlated electron materials down ultralow temperatures.

研究分野：低温物理学

キーワード：超低温 強相関電子物性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

科学研究は、より低温・高圧・高磁場など、いままで実現不可能であった研究環境を可能にすることで、その研究領域を広げてきた。特に、可能な限り低温までの測定を行う事は、熱揺らぎに隠れていた物質の本質的性質を明らかにするためには必須である。量子揺らぎが支配的な低温領域ではこれまでも、超流動、超伝導といった様々な新しい現象が発見され、低温における精密測定から新しい知見が得られてきた。現在までに様々な研究テーマにおいて市販の装置で実現可能な希釈冷凍機温度(~20 mK)までの測定が行われてきたが、それより下の超低温領域(~1 mK)における物性研究は液体ヘリウムの研究を除いてほとんど行われていない。

強相関電子系物質における量子臨界点近傍の物性など、様々なテーマにおいて超低温までの測定が重要になってきているが、電子系研究にとって超低温領域は未開拓の領域であり、実現のための技術的課題は多く、多くの試行錯誤が必要である。また、電子系研究の対象物質は非常に多く、本当に超低温領域に面白い未知の現象がある物質がどれかはやってみないとわからない。その為、様々な候補物質に対する測定を試みる必要がある。しかし、超低温冷凍法として最も一般に使われている核断熱消磁冷凍法は1回の測定準備に長時間が必要で、技術開発や未知の現象を様々な物質に対して探す目的には全く向いていない。

2. 研究の目的

そこで本研究では超低温までの冷却法として現在使われている核断熱消磁冷却法よりも迅速かつ簡便に超低温環境を実現できる小型ポメランチューク冷凍機を開発し、超低温領域での電子系研究開拓の端緒を切り開くことを目的とした。この方法は希釈冷凍機を用いた既存の測定システムに組み込み可能で、試料交換などの簡便さを保ったまま超低温実験への拡張が可能になる。この冷凍法を開発して超低温での量子振動測定などの技術開発を行い、重い電子系物質を中心とする量子臨界点近傍の新現象の探索を超低温まで行う。

現在、一般的な超低温装置では核断熱消磁法と呼ばれる方法が使われている。この方法では核断熱消磁法による冷却と測定に複数の超伝導マグネットが必要となり、装置全体が大型になるために試料交換に長時間を要するという問題がある。超低温領域における電子系研究はそもそもどのような測定が有効かもわかっておらず、様々な技術開発が必要である。また、強相関電子系研究においては新物質開発によって研究が大きく進展することが多く、様々な試料の測定を迅速に行うことが必須である。この為、測定に長時間必要な核断熱消磁冷凍法を強相関電子研究に応用することは困難である。また、市販の校正済み温度計が使える希釈冷凍機温度までの測定とは異なり、超低温での温度計測には特殊な方法が必要になる。

これに対して、本研究ではヘリウム3の固体と液体間のエントロピー差を利用するポメランチューク冷却法を用いる。固体ヘリウム3の核スピンエントロピーの影響で、ヘリウム3は液体と固体の間の相境界の傾きが低温で逆転するという特異な温度-圧力相図を持つ。このため、固液相境界の傾きが負になっている温度領域では加圧によって温度が減少する。これを利用したポメランチューク冷却法は1970年代に超流動ヘリウム3の発見に用いられた冷却法であるが、その後の核断熱消磁法の広まりによって使われなくなった手法である。

申請者はこのポメランチューク冷却法が電子系研究に非常に適していると考え、これを小型化して希釈冷凍機に組み込むという発想を得た。この冷却法は冷却用の超伝導磁石が不要であるから、汎用の希釈冷凍機と超伝導磁石のシステムに組み込み可能。小型で既存の希釈冷凍機に容易に実装可能で、試料交換が通常の希釈冷凍機と同様に1日程度で完了。固液共存相における圧力と温度の関係は既知であるから、温度計としても利用できるという利点がある。この

小型ポメランチューク冷凍機を開発して、超低温温度領域の実験を迅速に行えるようにし、そこでの技術開発および新物質測定を加速させる。

3. 研究の方法

ポメランチューク冷凍セルを希釈冷凍機の混合部と実験空間の間に設置する。ポメランチューク冷凍法は磁場の影響を受けないという利点があるから超伝導磁石の中の空間に収まるように設計する。ヘリウム3には固液相境界に極小点があるために室温からの加圧が不可能なので、低温部にヘリウム4を用いた加圧機構を設置する。この加圧機構に圧力を加えた際にペローズ間の銅熱リンクが離れるように設計することで熱スイッチとしても動作するようにする。ヘリウム3の固液相境界における圧力と温度の関係は既知なので、固液共存相に圧力計を設置することで実験空間における一次温度計としても活用する。

この小型ポメランチューク冷凍セルを既存の希釈冷凍機と超伝導マグネットの測定システムに組み込めるように設計し、その動作確認を行う。特に超低温領域までの冷却能力と低温保持時間を調べることで、実験空間に組み込める測定セルのサイズを決定する。

平行して、超低温領域における量子振動測定に挑戦する。キャパシタンス式カンチレバーを用いることで測定の発熱を抑えた測定を行う。量子振動測定では、振幅の温度変化から試料の温度が直接評価可能であり、超低温領域まで試料の温度を確認しながらの実験が可能である。量子臨界点を持つと考えられている強相関電子系物質に超低温までの量子振動測定を適用し、量子臨界点近傍に現れると期待されている有効質量の変化や未知の秩序相の探索を行う。

4. 研究成果

(1) ポメランチューク冷却セルの製作と動作テスト

ポメランチューク冷却を実現するためには固液共存相にあるヘリウム3を希釈冷凍機で冷却した後、低温で加圧する必要がある。極低温条件下での加圧のためには、絶対零度まで固化しない液体ヘリウム4を圧力媒体として可動ペローズによって加圧する。冷却と加圧に最適なヘリウム3空間と可動ペローズの設計を行い、その製作と組み立てを行った。可動ペローズの仕様条件が厳しいことが判明し、特注となってしまったためにその入手に時間を要したが、本計画2年目に組み立てとリークテストなどの初期テストを終了させることができた。

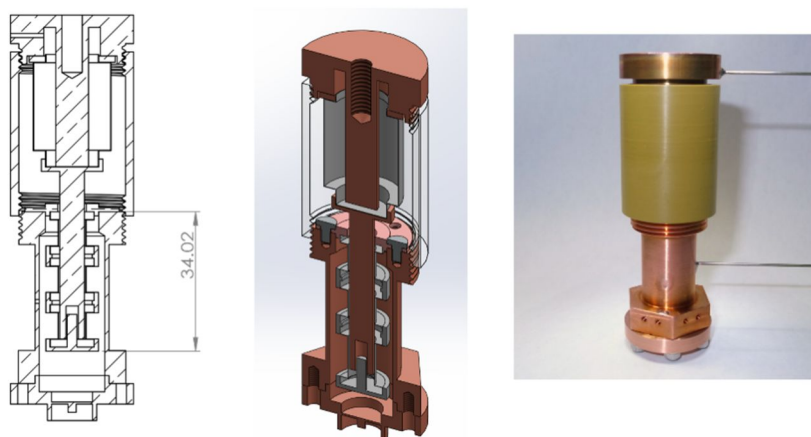


図 1 制作したポメランチューク冷凍セルの図面（左、中央）と写真（右）

製作したポメランチューク冷凍セルを希釈冷凍機に接続し、冷却テストを行った。その結果、設計通りに低温でペローズが稼働することを確認することができた。一方、ヘリウム3

の加圧に用いるヘリウム4の導入ラインを通じた熱流入が想定より大きかった事に加えて、冷却された液体ヘリウム3と実験空間との間の熱接触も想定より弱く、最低温度の確認をするまでには至らなかった。しかし、ヘリウム4ラインの熱流入を減少させるための熱アンカーの追加と、液体ヘリウム3との熱接触を改善させるための銀シンターの増強を行うことでこれらの問題を解決できる見通しが立っており、小型ポメランチューク冷却セルの開発はほぼ完成したと考えている。

(2) CeCoIn5 における超低温測定

ポメランチューク冷凍機の開発と並行して、超低温下における物性測定に挑戦した。この温度領域での物性測定は液体ヘリウムを除いてほとんど例がない。そのため、強相関電子系の測定を開発するにあたって、試料温度が超低温に冷却されているかどうかを確認することから始める必要があった。例えば、試料を冷却するための最も簡便な方法は試料を液体ヘリウム3の中に漬ける方法であるが、液体と固体との間の熱抵抗であるカピツア抵抗は100 mK以下の低温で非常に大きくなるから試料が1 mKの超低温まで冷却できるかどうかは自明でない。

そこで、量子振動の振幅の温度変化を測定することによって試料温度を確認することから始めた。量子振動の振幅はLifshitz-Kosevitch式に従って温度変化することが知られており、有効質量の大きい電子バンドの量子振動を超低温まで測定することで、試料温度を確認しながら測定を進めることができる。

この測定を代表的なf電子超伝導体であり、そのバンドの詳細が測定によって明らかになっているCeCoIn5で試みた。その結果が、次の図2(a)である。20 mKまではLifshitz-Kosevitch式に従って温度変化することから試料が期待通り冷却できることが分かったが、それ以下の温度で振幅が減少するという予想外の結果を得ることができた。その磁場依存性をまとめたのが図2(b)であり、様々な検討から反強磁性相である可能性が高いことが分かった。この研究成果をPhys. Rev. Lett. 誌に掲載した。

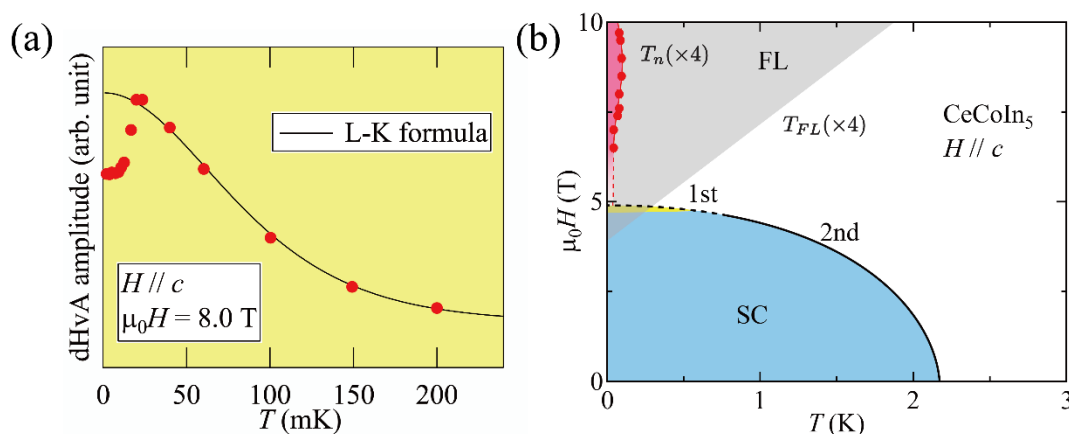


図 2 (a) CeCoIn5 で観測された量子振動の振幅の温度依存性。実線が Lifshitz-Kosevitch 式によるフィット。(b)量子振動振幅の異常が現れた温度 (T_n) の磁場依存性から求めた温度 磁場相図。超伝導相 (SC) とフェルミ液体相 (FL) も一緒に表示している。

さらにこの新しく見つかった相の詳細を明らかにするために超低温領域における NMR 測定に挑戦した。NMR 測定においても試料の温度を確認しながら測定を行う方法を検討した。特に、NMR 測定ではパルス磁場を試料に印加することから、それによる発熱の影響が懸念された。一方で、試料を電氣的に接地しても測定に影響がないため、試料と冷凍機との熱接触を強くとることができた。

CeCoIn₅におけるCo核のNMR測定を超低温まで行ったところ。NMR信号強度が温度低下とともに増大し、10 mK付近にピークを持つことが分かった。これは磁場によるゼーマンギャップと温度揺らぎのエネルギーが同程度になることによる変化であり、この温度依存性を使って試料の温度を確認できることが分かった。このNMR信号強度の温度依存性を用いることで、発熱の影響が問題にならないパルス条件を見出すことができた。その結果、縦磁気緩和率の温度依存性が超低温領域で臨界的に温度変化することを明らかにした。現在、これらの結果を論文に執筆中である。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

1. Anomalous Change in the de Haas-van Alphen Oscillations of CeCoIn₅ at Ultralow Temperatures
Hiroaki Shishido, Shogo Yamada, Kaori Sugii, Masaaki Shimozawa, Youichi Yanase, Minoru Yamashita
Phys. Rev. Lett. 120, 177201 (2018). 査読有
doi:10.1103/PhysRevLett.120.177201
2. Unusual thermal Hall effect in a Kitaev spin liquid candidate α -RuCl₃
Y. Kasahara, K. Sugii, T. Ohnishi, M. Shimozawa, M. Yamashita, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, Y. Matsuda
Phys. Rev. Lett. 120, 217205 (2018). 査読有
doi:10.1103/PhysRevLett.120.217205
3. Spin Thermal Hall Conductivity of a Kagomé Antiferromagnet
Hayato Doki, Masatoshi Akazawa, Hyun-Yong Lee, Jung Hoon Han, Kaori Sugii, Masaaki Shimozawa, Naoki Kawashima, Migaku Oda, Hiroyuki Yoshida, and Minoru Yamashita
Phys. Rev. Lett. 121, 097203 (2018). 査読有
doi:10.1103/PhysRevLett.121.097203

〔学会発表〕(計 4 件)

1. Spin Thermal Hall Conductivity of a Kagome Antiferromagnet, Minoru Yamashita, Topological Phases and Functionality of Correlated Electron Systems 2019 (国際学会), 2019年
2. CeCoIn₅における超低温下NMR測定 III、山下穰、日本物理学会 2018年秋季大会、2018年
3. Spin Thermal Hall Conductivity of a Kagome Antiferromagnet, Minoru Yamashita, APCTP-KIAS Quantum Materials Symposium 2019 (招待講演)(国際学会), 2019年5月31日
4. Universal thermal Hall conductivity of a kagome antiferromagnet, Minoru Yamashita, Novel Phenomena in Quantum Materials driven by Multipoles and Topology (招待講演)(国際学会), 2018年

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:

発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：
ローマ字氏名：
所属研究機関名：
部局名：
職名：
研究者番号（8桁）：

(2)研究協力者

研究協力者氏名：
ローマ字氏名：

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。