

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 21 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25630059

研究課題名(和文)断熱消磁による極低温までの超高速物性測定法の開発

研究課題名(英文)Development of ultra-fast physical property measurement technique using adiabatic demagnetization method down to very low temperature

研究代表者

青木 大(Aoki, Dai)

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：30359541

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：クロムミョウバンを用いた断熱消磁冷凍機の製作に成功した。室温から0.1Kの極低温まで2時間以内に到達し電気抵抗測定が可能である。冷却速度は従来の方法と比べて桁違いに早く、新物質開発、超伝導探索、試料評価などさまざまな場面で有効活用できる。開発した冷凍機を用いて強磁性超伝導体URhGeなどのさまざまな試料の電気抵抗測定による評価を行い、RRRが100近くの純良単結晶を得ることに成功した。成果は、新聞等でも報道された。また、研究者からの問い合わせが多いために、製品化も予定されている。

研究成果の概要(英文)：We succeeded in developing an adiabatic demagnetization refrigerator using chromium alum. The lowest temperature down to 0.1K can be achieved within 2 hours from room temperature for the resistivity measurements. The cooling rate is extraordinary fast compared to the conventional method. This technique can be applied for many aspects, for example, the search for new materials, new superconductors, characterization for samples and so on. Using our ADR, we have measured the resistivity down to 0.1K in many materials, such as URhGe, where we obtained high quality single crystals with RRR~100. The development of ADR was reported in the press. Our ADR will be commercially available soon, because of many requests from researchers.

研究分野：固体物性

キーワード：極低温 断熱消磁 重い電子系

1. 研究開始当初の背景

物質の基底状態を明らかにする上で、極低温での物性測定はきわめて重要である。例えば、重い電子系の超伝導体は、転移温度が 1K 以下の場合が多い。これまでに 30 以上の物質が見つかったが、これらは高圧・極低温の極限環境下における実験による。高圧技術はここ数年で飛躍的な進歩を遂げたが、低温技術については、希釈冷凍機による従来の技術が主に使われてきた。新奇超伝導体探索の競争が激化する中で、簡便で安価に極低温までの物性測定を行いたいというニーズが国内外で高まっていた。新物質を探索する上で、これは重要な要素である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、そのようなニーズに応えるべく、(1)断熱消磁法による極低温までの冷凍機 (Adiabatic Demagnetization Refrigerator, ADR)を開発すること、(2) ADR 用に最適化された電気抵抗、比熱などの物性測定技術の開発を行なうことである。さらに、極低温までの迅速な物性測定を行うことで得られた純良単結晶を用いて、アクチノイド化合物における強磁性超伝導、「隠れた秩序」、重い電子系物質の量子臨界現象などを極限環境下における物性測定により研究する。

断熱消磁法とは常磁性体の磁場中とゼロ磁場のエントロピーの差を利用して冷却する方法である。これによりワンショットで 100mK 以下の極低温を簡便に得ることができる。

本研究で開発する冷凍機の特徴は、とにかく簡便・安価そしてきわめて短い時間で極低温に到達できるという点である。この方法が普及すれば、従来の極低温の物性測定概念ががらりと変わることになる。専門家でなくても、誰でも気軽に極低温までの物性測定ができるようになる。この技術により、極低温における新奇超伝導体や新現象の発見など大きな波及効果が期待できる。現在、ヘリウム価格の高騰し、液体ヘリウムの供給体制がきわめて不透明な状況であるが、将来にわたって極低温実験が安定して行なえるようになる。

3. 研究の方法

本研究で製作した断熱消磁冷凍機は、磁気冷凍材料としてクロムミョウバンを用いた。薄肉のステンレス管に多数の金線を配置し、過飽和のクロムミョウバン溶液を入れて、温度勾配をつけながら冷却してクロムミョウバンの結晶を成長させた。その後、スタイキャストで密封した後、温度計の取り付け、配線、温度較正等を行った。図 1 に本研究で製作した断熱消磁冷凍機の写真を示す。

これをカンタムデザイン社の物理特性測定システム (PPMS) にセットし、2K まで予冷

して磁場を 4T まで加えた後、断熱状態にし、磁場を下げることで 0.1K まで冷却することができた。図 2(a)に冷却時の温度の時間経過を示す。室温から 0.1K まで 2 時間以内に到達することができた。

通常、希釈冷凍機を用いた実験では室温から 0.1K 以下の最低温度まで約 2~3 日を必要とする。本研究で得られた冷凍機は従来の約 30 倍の冷却速度である。これは、0.1K の極低温を得る装置としては世界最速である。この成果については、プレス発表を行ない、日経新聞、河北新報、雑誌「子供の科学」などでも報道された。また、この技術は製品化され、国内はもとより国外からも多数の問い合わせを受けている。



図 1: 本研究で製作した断熱消磁冷凍機

4. 研究成果

開発した断熱消磁冷凍機を用いて、多数の試料を 0.1K までの電気抵抗測定を行い、ウラン化合物を含む重い電子系物質の純良単結晶得ることに成功した。純良単結晶を用いて極限環境下の物性測定を行なった[文献 1-19]。図 2(b)は断熱消磁冷凍機を用いて測定した URhGe の電気抵抗である。0.25K で超伝導転移を示す。URhGe は強磁性と超伝導が

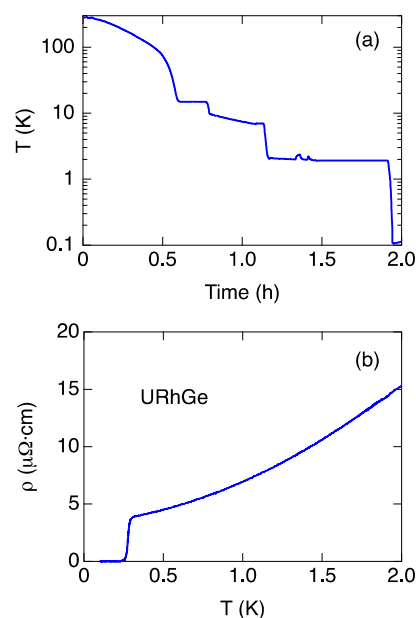


図 2: (a)冷却時の温度の時間経過と (b)URhGe の極低温電気抵抗

微視的に共存する物質である。超伝導は、磁性、非磁性不純物にきわめて敏感であり、純良単結晶が実験の成否を決める。本研究で用いられた URhGe の単結晶は、チョクラルスキー法により育成された単結晶を超高真空下で高温アニールし、さらに低温で長時間アニールすることで得られた。さらに、単結晶試料を方位だしした後、100 以上の試料をカットし全て 0.1K までの電気抵抗測定を行なって、高純度の単結晶試料を探索した。地道な作業であるが、その結果得られた成果は大きい。たとえば、URhGe の磁場誘起超伝導について、強磁性スピンゆらぎのみならずリフシツツ転移を含むフェルミ面の不安定性が重要な役割を果たしていることが実験的に明らかになった。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 19 件、全て査読有)

Large Cyclotron Effective Mass Detected by de Haas-van Alphen Effect in YbCu₂Si₂. [J. Phys. Soc. Jpn. 84 (2015) 035002] D. Aoki, F. Honda, Y. Homma, D.X. Li, R. Settai, H. Harima, Y. Onuki, DOI:10.7566/JPSJ.84.035002

Uniaxial-Stress-Induced Ferromagnetism in the Itinerant Metamagnetic Compound UCoAl Probed by Magnetostriction Measurements. [J. Phys. Soc. Jpn. 84 (2015) 023704] Yusei Shimizu, Bernard Salce, Tristan Combier, Dai Aoki, Jacques Flouquet DOI:10.7566/jpsj.84.023704

Lattice dynamics of the heavy-fermion compound URu₂Si₂ [Phys. Rev. B 91 (2015) 035129] J. Buhot, M. A. Méasson, Y. Gallais, M. Cazayous, A. Sacuto, F. Bourdarot, S. Raymond, G. Lapertot, D. Aoki, L. P. Regnault, A. Ivanov, P. Piekarz, K. Parlinski, D. Legut, C. C. Homes, P. Lejay, R. P. S. M. Lobo DOI:10.1103/PhysRevB.91.035129

Symmetry of the Excitations in the Hidden Order State of URu₂Si₂ [Phys. Rev. Lett. 113 (2014) 266405] J. Buhot, M.-A. Méasson, Y. Gallais, M. Cazayous, A. Sacuto, G. Lapertot, D. Aoki DOI:10.1103/PhysRevLett.113.266405

Magnetic fields above the superconducting ferromagnet UCoGe [Phys. Rev. B 90 (2014) 184501] D. J. Hykel, C. Paulsen, D. Aoki, J. R. Kirtley, and K. Hasselbach

DOI:10.1103/PhysRevB.90.184501

Superconducting gap of UCoGe probed by thermal transport [Phys. Rev. B 90 (2014) 180501R] M. Taupin, L. Howald, D. Aoki, and J.-P. Brison DOI:10.1103/PhysRevB.90.180501

Large reversible magnetocaloric effect in ferromagnetic semiconductor EuS [Solid State Comm. 193 (2014) 6] D. X. Li, T. Yamamura, S. Nimori, Y. Homma, F. Honda, D. Aoki DOI:10.1016/j.ssc.2014.05.024

Time-Reversal Symmetry in the Hidden Order and Superconducting States of URu₂Si₂ [J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 094720] Ikuto Kawasaki, Isao Watanabe, Adrian Hillier, Dai Aoki DOI:10.7566/JPSJ.83.094720

Fermi Surface Instabilities in Ferromagnetic Superconductor URhGe [J. Phys. Soc. Jpn., 83 (2014) 094719] Dai Aoki, Georg Knebel, Jacques Flouquet DOI:10.7566/JPSJ.83.094719

Spin fluctuation and Fermi surface instability in ferromagnetic superconductors [C. R. Physique 15 (2014) 630] Dai Aoki, Adrien Gourgout, Alexandre Pourret, Gael Bastien, Georg Knebel, Jacques Flouquet DOI:10.1016/j.crhy.2014.07.004

Lifshitz transition and metamagnetism: Thermoelectric studies of CeRu₂Si₂ [Phys. Rev. B 90 (2014) 075127] M. Boukahil, A. Pourret, G. Knebel, D. Aoki, Y. Onuki, J. Flouquet DOI:10.1103/PhysRevB.90.075127

Superconductivity and Ferromagnetic Quantum Criticality in Uranium Compounds [J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 061011] Dai Aoki, Jacques Flouquet DOI:10.7566/JPSJ.83.061011

Quantum Criticality and Lifshitz Transition in the Ising System CeRu₂Si₂: Comparison with YbRh₂Si₂ [J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 061002] Alexandre Pourret, Dai Aoki, Mounir Boukahil, Jean-Pascal Brison, William Knafo, Georg Knebel, Stephane Raymond, Mathieu Taupin, Yoshichika

Onuki, Jacques Flouquet
DOI:10.7566/JPSJ.83.061002

Fermi surface in the hidden-order state of URu₂Si₂ under intense pulsed magnetic fields up to 81 T [Phys. Rev. B 89 (2014) 165107] G. W. Scheerer, W. Knafo, D. Aoki, M. Nardone, A. Zitouni, J. Beard, J. Billette, J. Barata, C. Jaudet, M. Suleiman, P. Frings, L. Drigo, A. Audouard, T. D. Matsuda, A. Pourret, G. Knebel, and J. Flouquet
DOI:10.1103/PhysRevB.89.165107

Magnetic Order in Ce_{0.95}Nd_{0.05}CoIn₅: The Q-Phase at Zero Magnetic Field [J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 013707] S. Raymond, S.M. Ramos, D. Aoki, G. Knebel, V. P. Mineev, G. Lapertot
DOI:10.7566/jpsj.83.013707

Existence of anisotropic spin fluctuations at low temperature in the normal phase of the superconducting ferromagnet UCoGe. [Physical Review B 89 (2014) 041108] M. Taupin, L. Howald, D. Aoki, J. Flouquet, J. P. Brison
DOI:10.1103/PhysRevB.89.041108

Giant and isotropic low temperature magnetocaloric effect in magnetic semiconductor EuSe [Appl. Phys. Lett. 102 (2013) 152409] D.X. Li, T. Yamamura, S. Nimori, Y. Homma, F. Honda, D. Aoki
DOI:10.1063/1.4802260

Metamagnetic Transition in UCoAl Probed by Thermoelectric Measurements. [Phys. Rev. Lett. 110 (2013) 116404] A. Palacio-Morales, A. Pourret, G. Knebel, T. Combier, D. Aoki, H. Harima, J. Flouquet
DOI:10.1103/PhysRevLett.110.116404

Fermi Surface Reconstruction inside the Hidden Order Phase of URu₂Si₂ Probed by Thermoelectric Measurements. [J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) 034706] A. Pourret, A. Palacio-Morales, S. Kramer, L. Malone, M. Nardone, D. Aoki, G. Knebel, J. Flouquet
DOI:10.7566/JPSJ.82.034706

[学会発表](計 7 件)

D. Aoki, “ Spin fluctuation and Fermi surface instabilities and in uranium

ferromagnetic superconductors ”, 13th Bilateral German-Japanese Symposium, 2014年7月15日, Tegernsee(ドイツ)

D. Aoki, “ Fermi surface instabilities and ferromagnetic superconductivity in uranium compounds ”, IDWN2014, 2014年5月31日, Suwon(韓国)

D. Aoki, “ High field properties of actinide compounds ”, High field workshop, 2013年11月13日, 松島大観荘(宮城県松島町)

D. Aoki, “ Quantum oscillations and Fermi surfaces in URu₂Si₂ ”, URu₂Si₂ Workshop, 2013年11月5日, Nijmegen(オランダ)

D. Aoki, “ Recent advances in ferromagnetic superconductors ”, QPT conference, 2013年9月18日, Freudenstadt(ドイツ)

D. Aoki, “ Superconductivity and Ferromagnetic Quantum Criticality in Uranium Compounds ”, SCES2013, 2013年8月5日, 東大本郷キャンパス(東京都文京区)

D. Aoki, “ Field reentrant superconductivity and Fermi surface instabilities in uranium compounds ”, Actinide conference, 2013年7月22日, Karlsruhe(ドイツ)

[その他]

報道発表「世界最速、極低温冷凍機の開発」
日経新聞(2014年9月6日)
河北新報(2014年9月6日)
雑誌「子供の科学」12月号ほか

6. 研究組織

(1) 研究代表者

青木 大 (AOKI, Dai)
東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号: 30359541

(2) 研究分担者

本多 史憲 (HONDA, Fuminori)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号: 90391268