

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 6 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25800187

研究課題名(和文)70Tパルス強磁場下における比熱測定装置の開発

研究課題名(英文)Development of specific heat measurement device for 70 T pulsed-high magnetic fields

研究代表者

小濱 芳允 (Kohama, Yoshimitsu)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：90447524

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)：本研究の目標であった、「パルス強磁場下における比熱測定装置の開発」に成功した。これまで36 msという短いパルス磁場下での比熱測定の報告は全く無かったが、本研究により、短パルス強磁場下という環境下での比熱測定が世界で初めて成功した。開発した測定手法は他の研究にも応用でき、磁気熱量効果という類似の熱測定手法もパルス磁場下で確立された。

この研究では、上のような測定技術の開発だけではなく、さらにBiCu2P06およびCu3Mo209における比熱を50 T以上のパルス強磁場下で測定し、磁気相図などを明らかにした。これらの結果は物理専門誌で報告した。

研究成果の概要(英文)：The device for measuring specific heat under pulsed-high magnetic fields have been developed. Although there was no successful measurement of specific heat in the short pulsed-magnetic fields (duration of ~36 ms), here the measurements have been done for the first time. The developed technique can be also applied to other measurements, and the measurements of magnetocaloric effect in pulsed magnetic fields have been also established.

In this research, the specific heat on BiCu2P06 and Cu3Mo209 were also measured under pulsed high magnetic field (>50T), and the magnetic fields-temperature phase diagrams were mapped out. These researches were reported in the peer-reviewed physics journals.

研究分野：低温物理

キーワード：パルス磁場 比熱 熱力学 磁性

## 1. 研究開始当初の背景

100年以上の昔から、比熱測定は広く使われてきた物性測定手法である。例えば相転移現象の研究では、比熱ピークの形状やエントロピー変化量が議論され、金属の研究においては、古くから電子比熱係数が調べられている。このように比熱は、測定手法の一つとして非常に有用であり、磁場下での研究も盛んである。しかしながら比熱測定には通常秒オーダーの時間が必要であり、特にパルス磁場下という短いタイムスケールでの比熱測定は、非常に困難である。このため2012年当時では、パルス磁場下の比熱測定は、5つの報告しかなされていなかった。[1-5]

もっとも古いパルス磁場下での比熱測定は、ロスアラモス研究所(米国)にて2000年に成功し、この結果はNature誌で報告された。[1]ここでは比熱の絶対値を測定可能な準断熱法を用い、2-3秒の非常に長い時間スケールを持つパルス磁場下(これをロングパルスという)で60 T, 2 K以上の比熱測定を成功させている。しかしながらロスアラモスでは、2-3秒幅のパルス磁場を作れるマグネットが壊れたこともあり、[6]準断熱法による比熱測定は2000年以降一回しか報告されていない。[2]準断熱法を用いたそれ以外の結果は、1.5秒幅のロングパルス磁石を用いたドレスデンのパルス強磁場施設からの報告があるのみである。[3]これらの準断熱測定は測定周波数が40Hz程度と非常に遅いという致命的欠陥があり、秒パルス幅を持つロングパルス磁石を用いても、一回の測定で数点しかデータが取れない。加えて1秒以上の長いパルス幅を持つロングパルスは、装置の取り扱いが大変危険で難しく、[6]この使用自体が

かなり制限されている。

一方、1秒を下回るパルス幅を持つ”ミリ秒パルス磁場”は安全で、簡単に利用できる。このようなパルス磁場下での比熱測定は、2010年に申請者がAC比熱測定手法を用い、世界で初めて成功させていた。[4]これはロスアラモス研究所所有の250ミリ秒のパルス磁場を用い、1-3kHzという高周波でのAC比熱測定を成功させたものであり、60Tまでの高磁場、0.8Kまでの低温まで測定が可能である。この装置はミリ秒幅のパルス磁場下で作動するため、より頻繁に利用され、例えば、低次元有機磁性体([Cu(py<sub>z</sub>)<sub>2</sub>(py<sub>0</sub>)<sub>2</sub>](PF<sub>6</sub>)<sub>2</sub>)の研究に続き[5]、最近ではCeRhIn<sub>5</sub>などの重い電子系化合物における(B, T)相図に関する研究の報告がある[主な発表論文2]。しかしながらAC法は比熱の絶対値測定には不向きであり、エントロピーの議論ができないという欠点があった。

## 2. 研究の目的

研究代表者がロスアラモスで開発したAC比熱測定技術を、日本で再現するのは簡単である。しかしながらAC比熱測定のみでは、エントロピーの定量的議論を可能とする比熱測定は実現しない。このため、高い定量性が期待できる準断熱測定法を100ミリ秒以下の短いパルス幅の磁場下で高周波測定することを研究の目標とした。ミリ秒幅のパルス磁場は安全で利用が簡単なため、広く多くの研究者に比熱測定が可能となるのみならず、かなりの高磁場を発生させることができ、これにより、前人未到の70 Tという高磁場領域での比熱測定が、将来的に可能となると期待できるよう。

### 3. 研究の方法

(1) 高周波領域での比熱測定実現のため、非常に短い熱的緩和時間を持つ、薄膜温度計と薄膜ヒータを用いた熱量計を構築した。さらに、測定精度および確度の上昇を狙い、ニューメリカルロックイン手法を用いた測定機器の整備を行った。構築した比熱測定系は東大物性研所有の36 ミリ秒56 Tパルス磁石を用いたテストを行った。

(2) 測定した化合物は、高磁場で2/3プラトーを持つ $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$  および 異方的な磁場相図を持つ $\text{BiCu}_2\text{PO}_6$  である。これらの化合物について60 Tまで比熱測定を行なった。

### 4. 研究成果

(1) パルス磁場下での比熱測定の実現のため、NiCr 薄膜ヒータ、AuGe 薄膜温度計を導入した。NiCr ヒータの開発では、幾つかの NiCr 組成を調査し、もっともヒータ薄膜として最適な組成( $\text{Ni}_{50}\text{Cr}_{50}$ )を得た。AuGe 薄膜の作成では、勝本信吾教授(物性研)の協力の下、独自にスパッタによる薄膜温度計を製作した。ここでは、蒸着法により幾つかの先行研究を行っていた、木原工研究員(物性研徳永研)の協力もあった。さらにはナショナルインスツルメンツ社の鴨志田敦史様の協力の下、ニューメリカルロックイン法を使った、先駆的な AC 抵抗測定手法を開発した。この装置は、AC 抵抗測定をしつつ、任意の波形の熱を与えるため、比熱測定に最適な装置である。

(2) 図 1 に示すように、製作した比熱セル、および測定装置を用い、世界で初めて 36 ミリ秒という短パルス磁場下での比熱測定を成功

させた。[主な発表論文 9] また、東大物性研の徳永研究室との共同研究の結果として、磁気熱量効果の断熱測定手法も確立した。[主な発表論文 10] これにより、本研究の主目的であった、“ミリ秒パルス磁場を用いた高磁場での比熱測定”を完全に達成できた。

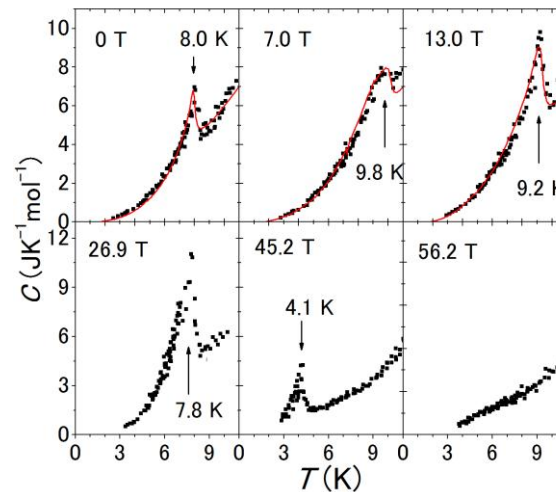


図 1  $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$  における高磁場比熱の温度依存性( $C$  vs  $T$ ). 赤線のデータは PPMS により、黒丸はパルス磁場下の測定により得られた。

$\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$  という低次元磁性体における比熱測定では、その磁場相図を明らかにできた。これについては、2/3 磁化プラトーの機構探索のために、磁気熱量効果を併せた、包括的な測定が続いている。[主な発表論文 6,9] 20T 以上の高磁場で量子ソリトン相の出現が示唆されていた  $\text{BiCu}_2\text{PO}_6$  においては、開発した比熱および磁気熱量効果測定を用い、詳細な熱的研究を行なった。結果として図 2 に示すように、高磁場領域までエントロピーの磁場および温度変化を明らかにでき、量子ソリトン相の出現に対応したエントロピーの増大を発見した。[主な発表論文 4] このような

物理的な研究のみならず，開発した技術の定常磁場への応用なども積極的に行った．このように本研究では，当初の目的を達成しただけではなく，付随する様々な研究にも利用でき[[主な発表論文 1,2,3,5,7,8,11], 予想以上の成果を得られたと確信している．

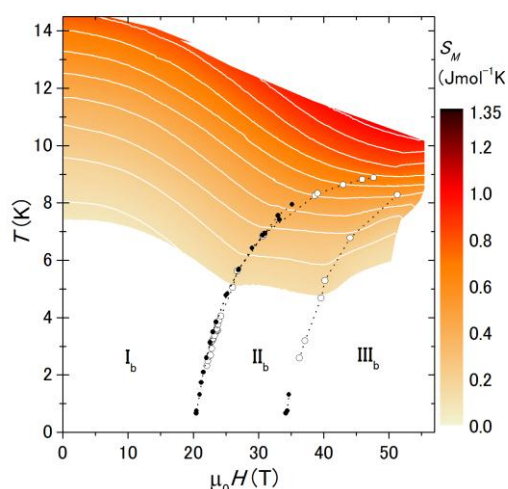


図2 BiCu<sub>2</sub>PO<sub>6</sub> の等エントロピープロット．磁場は  $H||b$  に印加．黒丸および白丸は相境界を表す．

#### 参考文献

- [1] M. Jaime, R. Movshovich, G. R. Stewart, W. P. Beyermann, M. G. Berisso, M. F. Hundley, P. C. Canfield, and J. L. Sarrao, *Nature(London)* **405**, 160 (2000).
- [2] M. Jaime, R. Movshovich, G. R. Stewart, W. P. Beyermann, P. C. Canfield, *Physica B* **294-295**, 240-244 (2001).
- [3] F. Weickert, B. Meier, S. Zherlitsyn, T. Herrmannsdörfer, R. Daou, M. Nicklas, J. Hasse, F. Steglich, and J. Wosnitzer, *Meas. Sci. Technol.* **23**, 105001 (2012).
- [4] Y. Kohama, C. Marcenat, T. Klein, and

M. Jaime, *Rev. Sci. Instrum.* **81**, 104902 (2010).

[5] Y. Kohama, M. Jaime, O. E. Ayala-Valenzuela, R. D. McDonald, E. D. Mun, J. F. Corbey, and J. L. Manson, *Phys. Rev. B* **84**, 184402 (2011).

[6] James R. Sims, Josef B. Schilling, Gregory S. Boebinger, Hideyoshi Coe, Alan W. Paris, Michael J. Gordon, Michael D. Pacheco, Terri G. Abeln, Richard G. Hoagland, Martin C. Mataya, Ke Han, and Aferdita Ishmaku, *IEEE T. Appl. Supercon.* **12**, 480 (2002).

#### 5. 主な発表論文

(研究代表者には下線)

[雑誌論文] (計 11 件)

[1] J. L. Her, Y. Kohama, Y. H. Matsuda, K. Kindo, Wen-Hsin. Yang, D. A. Chareev, E. S. Mitrofanova, O. S. Volkova, A. N. Vasiliev, and Jiunn-Yuan. Lin,

“Anisotropy in the upper critical field of FeSe and FeSe<sub>0.33</sub>Te<sub>0.67</sub> single crystals”, *Supercond. Sci. Technol.* **28**, 045013 (2015).  
査読有

[2] Lin Jiao, Ye Chen, Yoshimitsu Kohama, David Graf, E. D. Bauer, John Singleton, Jian-Xin Zhu, Zongfa Weng, Guiming Pang, Tian Shang, Jinglei Zhang, Han-Oh Lee, Tuson Park, Marcelo Jaime, and J.D. Thompson,

”Fermi surface reconstruction and multiple quantum phase transitions in the antiferromagnet CeRhIn<sub>5</sub>” *PNAS* **112**,

673-678 (2015). 査読有

[3] Atsushi Miyake, Yoshimitsu Kohama, Shumpei Ohta, Yusuke Hirose, Rikio Settai, Kazuyuki Matsubayashi, Yoshiya Uwatoko, Akira Matsuo, Koichi Kindo, Masashi Tokunaga,

“Development of non-metallic diamond anvil cell and quantum oscillations measurements of  $\text{CePt}_2\text{In}_7$  in a pulsed-magnet” *J. Phys.: Conf. Ser.* **592**, 012149 (2015). 査読有

[4] Yoshimitsu Kohama, Kenji Mochidzuki, Taku Terashima, Atsuhiko Miyata, Albin DeMuer, Thierry Klein, Christophe Marcenat, Z. L. Dun, Haidong Zhou, Gang Li, Luis Balicas, Nozomu Abe, Yasuhiro H. Matsuda, Shojiro Takeyama, Akira Matsuo, and Koichi Kindo,

“Entropy of the Quantum Soliton Lattice and Multiple Magnetization Steps in  $\text{BiCu}_2\text{PO}_6$ ” *Phys. Rev. B* **90**, 060408(R) (2014). 査読有

[5] J. Shibuya, M. Akaki, Y. Kohama, A. Miyake, M. Tokunaga, and H. Tanaka, “Novel multiferroic phase of  $\text{CsCuCl}_3$  in High Magnetic Fields” *J. Phys.: Conf. Ser.* **568**, 042030 (2014). 査読有

[6] Haruhiko Kuroe, Kento Aoki, Ryo Kino, Tasuku Sato, Hideki Kuwahara, Tomoyuki Sekine, Takumi Kihara, Mitsuru Akaki, Yoshimitsu Kohama, Masashi Tokunaga, Akira Matsuo, Koichi Kindo, Masashi Hase, kanji Takehana, Hideaki Kitazawa, Kunihiko Oka, Toshimitsu Ito, and Hiroshi Eisaki, “Magnetic and Dielectric Properties in Multiferroic  $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$ ” *JPS Conf. Proc.* **3**,

014036 (2014). 査読有

[7] Takumi Kihara, Yoshimitsu Kohama, Yoshiaki Hashimoto, Shingo Katsumoto, and Masashi Tokunaga, “Heat Pulse Measurements of Specific Heat under High Magnetic Fields at Low Temperature” *JPS Conf. Proc.* **3**, 017025 (2014). 査読有

[8] Akihiro Kondo, Koichi Kindo, Yoshimitsu Kohama, Marcelo Jaime, Michio Nakamura, Hiroki Nohara, Hiroshi Tanida, Masafumi Sera, and Takashi Nishioka,

“Transport Properties of  $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$  ( $T = \text{Ru}$  and  $\text{Os}$ ) in Pulsed High Magnetic Fields” *JPS Conf. Proc.* **3**, 011009 (2014). 査読有

[9] Yoshimitsu Kohama, Yoshiaki Hashimoto, Shingo Katsumoto, Masashi Tokunaga, and Koichi Kindo,

“Heat pulse measurements of specific heat in the 36 ms pulsed magnetic fields” *Meas. Sci. Technol.* **24**, 115005 (2013). 査読有

[10] Takumi Kihara, Yoshimitsu Kohama, Y. Hashimoto, S. Katsumoto, and M. Tokunaga,

“Adiabatic measurements of magneto-caloric effects in pulsed high magnetic fields up to 55 T” *Rev. Sci. Instrum.* **84**, 074901 (2013). 査読有

[11] Malika Rani, Hiroya Sakurai, Susumu Okubo, Keisuke Takamoto, Ryohei Nakata, Takahiro Sakurai, Hitoshi Ohta, Akira Matsuo, Yoshimitsu Kohama, Koichi Kindo, and Javed Ahmad,

“Antiferromagnetic ordering in  $\text{Sr}_2\text{CrO}_4$ ” *J. Phys.: Condens. Matter* **25**, 22601 (2013). 査読有

[学会発表] (計 9 件)

① Yoshimitsu Kohama and Koichi Kindo,  
「A Device for Precise Measurements of Specific Heat in Pulsed Magnetic Fields」  
2015 年 7 月 1 日(発表確定), Grenoble (France)

② 小濱芳允, 横山淳, 金道浩一, 網塚浩  
「重い電子系反強磁性体  $CeRu_2Si_2$  における  
エントロピー」

日本物理学会 第 70 回年次大会, 2015 年 3  
月 23 日, 早稲田大 (東京都、新宿区)

③ 齊藤優, 小濱芳允, 笠原裕一, 叶劍挺, 徳永  
将史, 野島勉, 岩佐義宏

「 $MOS_2$  電界誘起超伝導における巨大臨界磁  
場」日本物理学会 第 70 回年次大会, 2015  
年 3 月 21 日, 早稲田大 (東京都、新宿区)

④ 岩佐歩, 近藤晃弘, 小濱芳允, 河智史朗, 徳  
永将史, 金道浩一,

「半金属  $Bi$ ,  $Bi_{1-x}Sb_x$  における新規磁場誘起  
相転移の実験的探索」

日本物理学会 第 70 回年次大会, 2015 年 3  
月 21 日, 早稲田大 (東京都、新宿区)

⑤ 三宅厚志, 小濱芳允, 山田瑛, 松田達磨, 青  
木勇二, 徳永将史

「重い電子系  $CeFe_2Ge_2$  のメタ磁性転移」  
日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月  
8 日, 中部大 (愛知県、春日井市)

⑥ 小濱芳允, 金道浩一

「パルス磁場中における熱伝導度測定装置の  
開発」日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014  
年 9 月 7 日, 中部大(愛知県、春日井市)

⑦ 渋谷純平, 赤木暢, 小濱芳允, 三宅厚志,  
徳永将史, 田中秀数

「パルス強磁場における  $CuCuCl_3$  の電気磁  
気効果 III」日本物理学会 2014 年秋季大会,

2014 年 9 月 7 日, 中部大(愛知県、春日井市)  
⑧ 望月健生, 小濱芳允, 松尾晶, 川口考志,  
金道浩一

「準定常磁場を用いた物性測定装置の開発」  
日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月  
7 日, 中部大(愛知県、春日井市)

⑨ Kenji Mochizuki, Yoshimitsu Kohama,  
Akira Matsuo, Koushi Kawaguchi, and  
Koichi Kindo,

「Development of specific heat and  
resistivity measurement system for flat-top  
pulsed magnetic fields」

2014 年 7 月 7 日, Grenoble (France)

[図書] (計 1 件)

木原工, 小濱芳允, 徳永将史, 金道浩一,

「パルス強磁場における磁気熱量効果/比熱  
測定手法の開発」

アグネ技術センター, 固体物理, 発行確定

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

小濱 芳允 (KOHAMA YOSHIMITSU)

東京大学・物性研究所・特任助教

研究者番号 90447524