

平成 21 年 6 月 8 日現在

研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18540339
 研究課題名（和文） ケルビンダブルブリッジを用いたパルス磁場中
 微小抵抗変化測定法の開発とその応用
 研究課題名（英文） Developments and applications of a Kelvin double bridge technique
 for small deviations of magnetoresistance in pulsed magnetic field.
 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

研究成果の概要：

磁気抵抗効果からはその物質の電子状態の重要な知見が得られるが、一般に金属磁性体では抵抗とその変化が小さいことからパルス強磁場中での計測は技術的に困難とされ、是迄測定実績は殆ど無かった。本研究ではケルビンダブルブリッジ法という特殊な方法を用いた測定システムの開発を行なった。是に由り非常に高い磁場領域で金属磁性体の抵抗が簡便に精度良く測定出来る様になり、今後この分野の進展に大きく寄与すると期待される。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	2,300,000	0	2,300,000
2007年度	600,000	180,000	780,000
2008年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	360,000	3,860,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：強相関電子系、金属物性、磁性、低温物性、物性実験

1. 研究開始当初の背景

一般にパルス磁場中の物性測定は、定常磁場より高い磁場が得られる反面短時間でデータを取り込む必要があるため、積算時間の制約により精度が落ちる欠点を持つ。これまでパルス強磁場中の電気伝導の研究は少数キャリア系のフェルミオロジーに関連した量子現象や、金属絶縁体転移、酸化物高温超伝導体などで精力的に行われてきた。これらは比較的抵抗率やその変化が大きいか、あるいは高度な薄膜成形技術を駆使して試料の

抵抗の絶対値を大きくすることで測定を可能にしていた。

2. 研究の目的

一方、金属間化合物磁性体の磁気抵抗効果は、f 電子系における高濃度近藤効果や d 電子系におけるスピンの揺らぎの発現等に関する重要な知見が得られるが、一般に試料の抵抗率自体が小さいことと更にその変化も小さいことからパルス磁場領域で測ることは技術的に困難であり、国内外でもほとんど

と言ってよいほど測定実績は無かった。この分野においてパルス強磁場中での低抵抗・微小抵抗変化測定を必要とするテーマは多く残されている。

3. 研究の方法

そこで本研究ではこれらの測定を目的として汎用の低抵抗高分解能測定システムの開発を行なった。本課題で製作するものは非破壊パルス磁場中で高分解能の低抵抗測定ができる汎用システムである。この目的のためにケルビンダブルブリッジ法という特殊な方法とデジタル位相検波法という新しい方法を取り入れた。これの実用化により定常磁場では届かない高い磁場領域で簡便に金属間化合物磁性体などの低抵抗試料の測定が精度良く測定出来るようになったので、今後この分野の進展に大きく寄与できるものと考えられる。

(1) パルス磁場下での各種の電気伝導測定法

パルス磁場下での電気伝導測定には、4端子法、ホイートストーンブリッジ法、非接触型高周波透過法あるいはインピーダンス不整合法が主に使われてきた。本研究の目的で要求されるような低い抵抗の測定に対し定常磁場では端子での接触抵抗による電圧降下の影響を避けるために直流ないし交流低周波の4端子法が使われている。ホイートストーンブリッジ法は4端子法に比べると分解能に優れるが端子での電圧降下の影響を除去できないので低抵抗測定では使えない。一方で4端子法はホイートストーンブリッジ法に比べると分解能が小さい。データの読み込みには定常磁場中ではデジタルポルトメータが使えるがパルス磁場中ではトランジエントレコーダ(デジタルオシロスコープ)を使うことになる。後者に比べ前者の電圧分解能の低さを考えると金属相内の抵抗変化の測定などでは変化が小さく分解能不足に陥ることがある。

(2) ケルビンダブルブリッジ法導入の理由

4端子法のこの欠点を解消するのがケルビンダブルブリッジ法であり、これは4端子接続された試料の電位差と参照抵抗の電位差の平衡をとり残差を測定するもので4端子法より高分解能が期待できる。パルス磁場中での抵抗測定でケルビンダブルブリッジ法が使われたことはこれまで無くこれは技術的にも新しい試みである。

(3) デジタル位相検波法導入の理由

一般に電気伝導測定には直流法と交流法がある。パルス磁場下での直流法は磁場による測定回路への誘導起電力が信号に重畳する。これは補償回路を用いることと電流を反転して2回測定することである程度取り除くことが出来るが、低い抵抗の測定には無視出来ず本研究の目的には不向きである。他方、交流測定は磁場による測定回路への誘導起電力をうまく打ち消すことが出来るが、従来のアナログ位相検波法では1点の検波に対し最低でも数十回の変調振動が必要とされる。パルス磁場中での測定で十分なデータ数を得ようとするならば低く見積もっても50kS/sec程度のサンプリングレートが必要なので通常は数MHz以上の高周波が必要となる。高周波回路はインピーダンスマッチングを必要とし回路が複雑になる割には精度・感度が出ない難点がある。

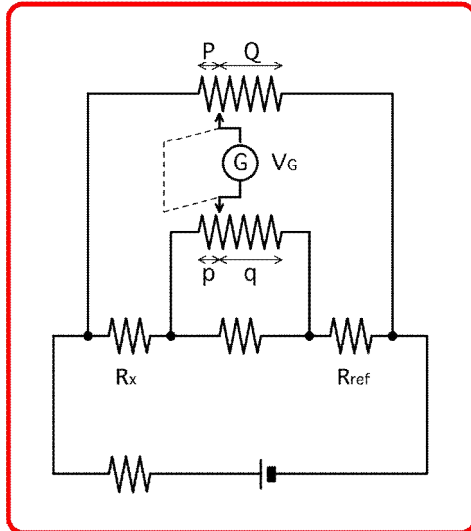
近年申請者によりパルス磁場用のデジタル位相検波技法が日本で初めて実用化され、1点の検波に対して1回分の変調振動で済むようになった。これは、変調周波数を低く抑えつつサンプリングレートを1周期あたり数十ポイント以上に増やし、正弦(余弦)関数をかけてちょうど振動の1周期分の区間で数値積分をすることで位相検波を行うものである。変調周波数とサンプリングの同期が重要であるが、同期が無くても参照信号を同時に取り込んで同様の検波を行い位相のずれを検出することによりある程度補正が効く。また、この方法では高調波振動成分が自動的に落ちる為に急峻な特性のローパスフィルタが不要となり回路上の制約が相当少なくなった。この検波方法は積算時間が短いのでQ値が小さいが、(最大の除去対象である)磁場による誘導起電力の帯域(67Hz相当)は変調周波数から十分離れておりハイパスフィルターも含めて十分除去できる。デジタル位相検波の実用化によりパルス磁場中で50kHz程度の低周波で十分な時間分解能を持つ検波が出来るようになりインピーダンスマッチングが不要となった。従ってブリッジのような平衡回路の活用が可能になり様々な量の高精度高分解能測定への可能性が開かれた。

(4) 磁場発生ファシリティ

非破壊パルス磁場発生装置は横浜国立大学工学部にある60kJコンデンサバンクとマグネットおよびヘリウム4冷凍機を用いた。現状では最高磁場30Tでパルス幅75msecの磁場発生環境が利用可能である。

(5) ケルビンダブルブリッジの基礎と実践

先に述べたように4端子接続された試料の電位差と参照抵抗の電位差の平衡を可変抵抗器で調整しこれらの抵抗比から未知抵抗を求める方法をケルビンダブルブリッジ法といい回路構成は下図のようになっている。



ここで未知抵抗は R_x [] で、参照抵抗は R_{ref} [] である。 $P + Q$ []、 $p + q$ [] はそれぞれ可変抵抗器になっていて常に $P : Q = p : q$ になるように互いに連動するようになっている。検流計 G に流れる電流が零になるよう $P : Q$ (あるいは $p : q$) を調整出来たならば、このとき $R_x = (P / Q) \cdot R_{ref}$ になる。 R_x が既知で P / Q (あるいは p / q) が求まるようになっていれば配線の抵抗 r [] によらず R_x が求まる。

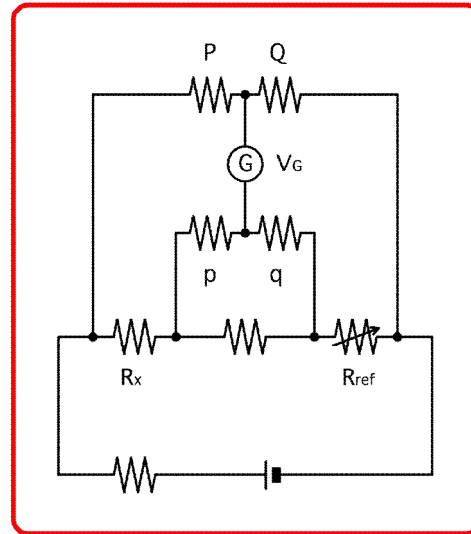
出典：社団法人日本電気技術者協会HP、福田務著

<http://www.jeea.or.jp/course/contents/02101/>

本課題で実際に採用した回路は右上図のようになっている。 $P : Q = p : q$ を常に実現する可変機構は既製品もあるが高価であり交流測定での性能が保証されておらずまた自作も困難なのでこれらの部分は固定抵抗にし、その代わりに R_{ref} を市販の4端子式のディケードレジスタ(離散式可変抵抗器)にした。これは少なくとも100kHzまでの使用に耐えられる。これにより特殊部品を排する形で回路を構成することが出来た。

パルス磁場の発生時間中に平衡調整を逐次行なうのは困難なので、あらかじめおおまかに平衡調整を行っておき G の両端の電位差 V_G をトランジエントレコーダ(オシロスコープ)で読み込むようにした。 R_x の微小変位 ΔR_x は1次近似で V_G の微小変位 ΔV_G に比例し、その比例係数は R_{ref} を一定値だけずらしたときの V_G の値で校正するこ

とができる。



(6) デジタル位相検波法の基礎と実践

パルス磁場発生に伴い試料付近の配線のループから発生する大きな誘導起電力が信号のバックグラウンドを押し上げ、ダイナミックレンジの低下につながる。一般的にパルス磁場中での直流電気抵抗測定法では磁場補償用のピックアップの起電力の分圧を回路上で差し引くことにより配線のループから発生する誘導起電力を大部分打ち消している。さらには電流の正負を反転して2回測定してその出力波形の差をとることにより磁場発生に伴う誘導起電力のような再現性のバックグラウンドから外部電流による本質的效果を分離することが出来る。しかしながら、このとき非再現性のバックグラウンド(ノイズ)が重畳しているとこれがうまく差し引けないので信号に残ってしまうが、残念ながらそれを識別する手段は数多く測定する以外ない。とりわけ測定対象が低抵抗の場合は本質的な信号が小さくなるのでより困難を伴う。一方で、交流法では掛けた変調周波数と同じ周波数成分の非再現性のバックグラウンドが重畳しない限りこれを識別することが可能である。したがって直流法にくらべ「非再現性のバックグラウンドによる効果」かあるいば「外部電流による本質的效果」かを識別するのが容易になる。一般にバックグラウンドの周波数帯域が変調周波数と大きく離れている場合はフィルタによってかなりの部分を除去出来る。従って本課題ではこれらの点で有利である交流法を用いた。

得られた交流信号を直流に復調するには、包絡線(ダイオード)検波と位相検波があるがここでは位相検波を用いた。包絡線(ダイオード)検波ではDCのオフセット成分

の除去が難しいからである。位相検波では、得られた交流信号に変調周波数と同じ周波数の正弦波および余弦波をそれぞれ掛け合わせる。三角関数の積の公式により、同じ周波数同士で同位相の正弦波同士（あるいは余弦波同士）の積の場合のみDC信号成分が得られる。これを式で表すと、

$$\sin \omega_1 t \sin \omega_2 t = \begin{cases} \frac{1}{2}(1 - \cos 2\omega_1 t) & \text{for } \omega_1 = \omega_2 \\ \frac{1}{2} \cos(\omega_1 - \omega_2)t - \frac{1}{2} \cos(\omega_1 + \omega_2)t & \text{for } \omega_1 \neq \omega_2 \end{cases}$$

$$\sin \omega_1 t \cos \omega_2 t = \begin{cases} \frac{1}{2} \sin 2\omega_1 t & \text{for } \omega_1 = \omega_2 \\ \frac{1}{2} \sin(\omega_1 + \omega_2)t - \frac{1}{2} \sin(\omega_1 - \omega_2)t & \text{for } \omega_1 \neq \omega_2 \end{cases}$$

となる。この方法では2入力のアナログ信号の積をとる仕組みが必要で、通常はダブルバランスドミキサや四象限アナログマルチプライヤが用いられる。最近の（デジタル）ロックインアンプではデジタルシグナルプロセッサ（DSP）というAD/Dコンバータ内蔵のマイクロコンピュータチップを用い、アナログ信号を一旦数値に変換して数値的に処理している。このような方法を通常は「デジタル位相検波」とよんでいる。

上の第1式から第2項の交流成分を落として第1項のDC信号成分を抽出するには2つの方法があることが解る。ひとつは変調周期に対し充分長い時間をかけながらローパスフィルタを使って除去する方法で、もう一つは変調周期のきっかり整数倍の時間で積分をして消す方法である。標準的なアナログ位相検波の場合は技術的な制約で前者に限られるが、デジタル位相検波の場合は後者も可能になる。パルス磁場中での測定のように短時間分の情報からDC信号成分を抽出する場合は、アナログ位相検波の場合1ユニットの測定時間（20 μ sec）に数十～数百回の変調振動が必要となる。必然的に変調周波数は上がって数MHz程度以上になるので、終端反射を防ぐ為にインピーダンスマッチングが必要になり色々な制約が発生する。一方でデジタル位相検波の場合は1ユニットの測定時間に対したった1回の変調振動（50 kHz）でもデータ点が20点以上（1MS/sec）あれば検波ができる。この周波数ではインピーダンスマッチングを必要としないので、種々のブリッジにも適用することが出来る。一般に周波数が低い方が配線の浮遊インダクタンスの効果が抑えられて扱いやすい。

では、パルス磁場中での測定でデジタル位相検波のメリットを享受するには既製のデジタルロックインアンプを使えば事足りるかと言うとそうではない。まず第1に既製のロックインアンプでは変調周波数と時

定数の同期がとれないので真に変調1周期分の情報だけでは位相情報まで含めた検波は出来ない。また、中身がブラックボックスであるので入力信号と出力信号の対応が明確でないことと、DSPの数値処理に要する時間のタイムラグの評価が難しいことが挙げられる。ロックインアンプのアナログ出力をトランジエントレコーダで記録するとすれば、また一度デジタルにしたものをもう一度アナログに戻したデジタルに戻すという操作が入り、データの不要な劣化は避けられない。

本課題では、交流波形を直接トランジエントレコーダ（デジタルオシロスコープ）に読みこみ、パーソナルコンピュータで数値処理を施してDC信号に変換した。この方法は何よりも、元の波形を目視して「非再現性のバックグラウンドによる効果」かあるいは「外部電流による本質的効果」かを直接識別できる利点がある。また、トランジエントレコーダのチャンネルの数が許す範囲で同時に幾つもの信号源に対し同期をとりながら位相検波をすることが出来る。たとえば通常の4端子抵抗測定法では測定対象の未知抵抗に電流を流しこの両端の電位差を測定するが、流れている電流値を把握するために図?の様にこれと直列に参照抵抗をいれてこの両端の電位差を測定することが多い。このとき両者の電位差を同時に記録してデジタル位相検波を施すと電流と電圧の両方を同期を取りながら位相差を含めて時系列で追跡することが出来る。これは回路の途中に発生するリアクタンス（虚数）成分を取り除いたり、後述の疑似同期測定の際の位相補正に大いに役立つ。その他、この方法は既製のロックインアンプに比べサンプリングレートなどの設定の自由度が遥かに高い。

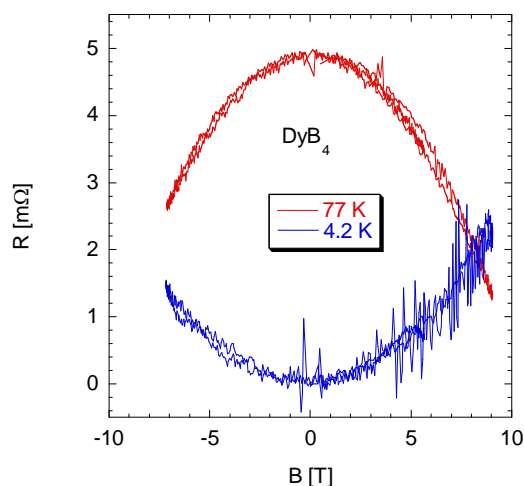
4. 研究成果

今回の研究では、 DyB_4 という希土類金属間化合物の低温での磁気抵抗を測った。この物質の横磁気抵抗は極低温で希土類金属間化合物としては異例の大きさの正の磁気抵抗を持つことが横浜国立大学の綿貫竜太博士によって発見されている。本研究では、この物質の縦磁気抵抗が77Kで負の磁気抵抗を示すにも関わらず、やはり4.2Kで大きな正の磁気抵抗を示すことを確認した。この機構については今後解明が進むことを期待している。

(1) デジタル位相検波法による通常（交流）4端子法での測定結果

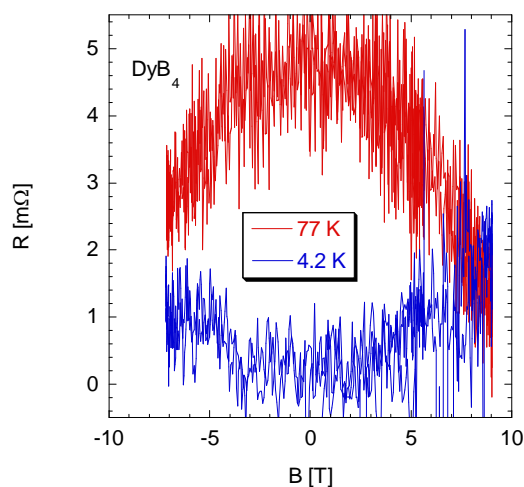
これを見ると抵抗の分解能が0.2 m

ほどある。これは従来の直流4端子法では数10m程度しか無かったことを考えれば、非常に高い分解能であることが判る。これは、デジタル位相検波法がいかに優れているかを示す一例である。これくらいの分解能があればおよそその金属磁性体に磁気抵抗測定で実用可能であると期待出来る。(下図参照)



(2) デジタル位相検波法によるケルビンダブルブリッジ法での測定結果

残念ながら、デジタル位相検波法による通常(交流)4端子法での測定の分解能には及ばないが、それでも従来の直流4端子法に比べれば優れている。抵抗の絶対値がもう少し大きくて1程度の際に磁場で1%程度変化する場合に、オシロスコープのADコンバータの分解能では落ちてしまう信号を差動でとる場合に非常に有効ではないかと考えられる。(下図参照)



5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計8件)

1) Sign Reversal of the Dielectric Polarization of $MnWO_4$ in Very High Magnetic Fields (査読あり)

H. Mitamura, H. Nakamura, T. Kimura, T. Sakakibara and K. Kindo
Journal of Physics: Conference Series 150, 2009, 042126.

2) Magnetization and specific heat measurement of the Shastry-Sutherland lattice compounds: Ln_2BaPdO_5 ($Ln = La, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho$) (査読あり)

T. C. Ozawa, T. Taniguchi, Y. Kawaji, S. Mizusaki, Y. Nagata, Y. Noro, H. Samata, H. Mitamura, S. Takayanagi
JOURNAL OF ALLOYS AND COMPOUNDS 448 Issue: 1-2: 96-103 JAN 2008.

3) Dielectric Polarization Measurements on the Antiferromagnetic Triangular Lattice System $CuFeO_2$ in Pulsed High Magnetic Fields (査読あり)

H. MITAMURA, S. MITSUDA, S. KANETSUKI, H. A. KATORI, T. SAKAKIBARA, and K. KINDO
Journal of the Physical Society of Japan, Vol. 76, No. 9, Sept., 2007, 094709.

4) Phase Transitions of a Geometrically Frustrated Spin System $CdCr_2O_4$ in Very High Magnetic Fields (査読あり)

Hiroyuki MITAMURA, Hiroaki UEDA, Hiroko Aruga KATORI, Shojiro TAKEYAMA, Toshiro SAKAKIBARA, Yutaka UEDA, and Hidenori TAKAGI

Journal of the Physical Society of Japan, Vol. 76, No. 8, Aug., 2007, 085001.

5) Pyroelectric measurements on a geometrically frustrated spin system $CuFeO_2$ in pulsed high magnetic fields (査読あり)

H. Mitamura, S. Mitsuda, S. Kanetsuki, H. A. Katori, T. Sakakibara, K. Kindo
Journal of Physics: Conference Series 51, 2006, 557-560.

6) Double Antiferromagnetism in Heusler-Type Alloys $Fe_{2+x}V_{1-x}Si$ (査読あり)

H. Matsuda, K. Endo, M. Tokiyama, H. Shinmen, Y. Takano, S. Masubuchi, K. Ooiwa,

H. Mitamura, J. Arai, T. Goto
JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN
75 (9): 094714 Sept., 2006.

7) Physical properties and phase diagram
of geometrically quadrupolar frustrated
system DyB_4 (査読あり)

R. Watanuki, H. Mitamura, T. Sakakibara,
G. Sato, K. Suzuki
PHYSICA B-CONDENSED MATTER 378-80:
594-595 May, 2006.

8) Singlet ground state and magnetic
interactions in new spin dimer system
 $Ba_3Cr_2O_8$ (査読あり)

T. Nakajima, H. Mitamura, Y. Ueda
JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN
75 (5): Art. No. 054706 May, 2006.

[学会発表](計9件)

1) $MnWO_4$ のパルス強磁場中誘電分極測定
三田村裕幸, 中村浩之, 木村剛, 榊原俊郎,
金道浩一

第5回強磁場スピン科学シンポジウム, 2
008年12月12~13日, 岡山大学(岡
山県岡山市)

2) $MnWO_4$ のパルス強磁場中誘電分極測定
三田村裕幸, 中村浩之, 木村剛, 榊原俊郎,
金道浩一

6 特定領域合同研究会, 2008年11月
29日~12月1日, 東京大学本郷キャン
パス(東京都文京区)

3) $MnWO_4$ のパルス磁場中誘電分極測定
三田村裕幸, 中村浩之, 木村剛, 榊原俊郎,
金道浩一

日本物理学会2008年秋季大会, 200
8年9月20~23日, 岩手大学(岩手県
盛岡市)

4) $Ce_3Pd_{20}Si_6$ の極低温磁化

三田村裕幸, 桜庭孝明, 田山孝, 榊原俊郎,
都竹星志, 阿野元貴, 石井勲, 赤津光洋,
根本祐一, 後藤輝孝, 北澤英明

日本物理学会2008年秋季大会, 200
8年9月20~23日, 岩手大学(岩手県
盛岡市)

5) Sign Reversal of the Dielectric
Polarization of $MnWO_4$ in Very High
Magnetic Fields

H. Mitamura, H. Nakamura, T. Kimura, T.
Sakakibara, K. Kindo

25th International Conference on Low
Temperature Physics (LT25), at Amsterdam

(Netherland), 6th-13th Aug. 2008.

6) $MnWO_4$ のパルス強磁場中分極測定
三田村裕幸

特定領域(473)「フラストレーション
が創る新しい物性」第2回トピカルミーテ
ィング「フラストレーションとマルチフェ
ロイクス」, 2008年6月5~6日, 京
都大学宇治キャンパス(京都府宇治市)

7) $MnWO_4$ のパルス磁場中誘電分極測定

三田村裕幸, 中村浩之, 木村剛, 榊原俊郎,
金道浩一

日本物理学会第63回年会, 2008年3
月22~26日, 近畿大学(大阪府東大阪
市)

8) 三角格子反強磁性体 $CuFeO_2$ のパルス強
磁場中誘電分極測定

三田村裕幸, 満田節生, 金築俊介, 香取浩
子, 榊原俊郎, 金道浩一

第3回強磁場スピン科学シンポジウム, 2
006年12月8~9日, 東京大学物性研
究所(千葉県柏市)

9) Pyroelectric measurements on a
geometrically frustrated spin system
 $CuFeO_2$ in pulsed high magnetic fields
H. Mitamura, S. Mitsuda, S. Kanetsuki, H.
A. Katori, T. Sakakibara, K. Kindo

International Conference on Research in
High Magnetic Fields 2006 (RHMf2006), at
Sendai (Japan), 16th-19th Aug. 2006.

6. 研究組織

(1) 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

(2) 研究分担者

(なし)

(3) 連携研究者

(なし)