

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2007 ~ 2008

課題番号：19740207

研究課題名 (和文) パルス強磁場中における比熱測定システムの開発

研究課題名 (英文) Development for heat capacity measurement under pulsed high magnetic fields

研究代表者

吉居 俊輔 (YOSHII SHUNSUKE)

東北大学・金属材料研究・産学官連携研究員

研究者番号：70423093

研究成果の概要：

50 テスラを超える超強磁場領域で出現する多様な磁気相を理解する上で、パルス電磁石を用いた比熱測定は重要な知見を与える有意義な測定手段である。本研究では、パルス電磁石に適用できる比熱測定用の簡便な測定システムを開発し、交流法により比熱のシグナルを検出することに成功した。これにより、パルス超強磁場中における比熱測定に先鞭をつけることができた。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,000,000	0	2,000,000
2008年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,600,000	180,000	2,780,000

研究分野：固体磁性

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ

キーワード：パルス超強磁場、磁場誘起相転移、比熱測定

1. 研究開始当初の背景

物質の性質を決定するうえで電子は重要な主役を担うが、磁場はこの電子が持つスピンや電荷の軌道運動に直接作用する精密制御可能な外場である。したがって、磁場に対する応答を精度良く調べることは物性の起源を明らかにするための極めて有効な手段であり、今日の物性研究において磁場というパラメータはあらゆる場面で必要不可欠なものとなっている。一方、近年のパルス電磁石の大幅な性能向上に促されて、研究室レベルで通常使用されている超伝導電磁石の磁

場領域 (10 数テスラ) を遙かに越えた 60 テスラ程度の超強磁場まで抵抗、磁化、磁気光学といった様々な測定が精度良く容易に行えるようになってきており、日本におけるパルス強磁場を用いた物性研究は東京大学物性研究所や大阪大学極限量子科学研究センターを拠点にして世界でも第一線の水準を維持している。これに伴い強磁場を用いた研究、すなわちスピンに関する研究は磁性体を中心としていた従来の枠を越えて飛躍的に拡大し、強相関物質、半導体、生体物質など幅広く行われるようになってきた。

これほどの強い磁場が利用可能となった現在、磁場は物質の状態を探る単なるプローブとしての役割だけにとどまらず、通常では存在しないような強い磁場中に物質を置いてやることで元の状態からは予想も出来ないような新たな相を出現させるという、より創造的な役割を担うようになってきた。例えばマクロな磁化の量子化、磁場誘起磁気秩序、軌道秩序、スピンの空間密度波など強磁場はエキゾチックな相を誘起する。さらに驚くべきことに、ある種の有機導体においては超伝導のような通常では磁場で壊されると考えられる性質でさえ数十テスラの強磁場で出現することが近年日本において発見された。これは磁場による相制御が物質の多様性を引き出す極めて有用な方法であることを顕著に示しており、その発現機構の解明が学術的に重要であるだけでなく応用面においても画期的な貢献をもたらす可能性を大いに秘めていると言える。しかしながら50テスラを越えるような超強磁場領域における磁場誘起相の出現はこれまでもっぱら磁化や電気抵抗のような物理量によってのみ研究されるなど測定手段が限定されており、その本質に迫るにはやはりまだ道のりがあるというのが現状である。

比熱測定は相転移の有無を直接観測する最も有力な手段であるが、現在パルス強磁場下での比熱測定装置は国内には存在せず世界的に見ても報告例は非常に僅かである。その理由は、パルス電磁石を用いた測定では(1)磁場が時間変化する、(2)磁場の発生時間が短い(半波長で数ミリ秒〜数十ミリ秒)などといったパルス磁場の性質に伴う特有の困難が生じるためであった。しかしながら近年の長時間化、特に東大物性研において進められている長時間パルス電磁石(〜1秒)の開発によりこれらの困難は克服されつつある。したがって、強磁場先進国である日本においてパルス強磁場比熱装置をいち早く開発することは物性研究をリードするうえで重要である。

2. 研究の目的

本研究では、数十テスラの超強磁場中で出現する種々の相の発現機構を解明する手がかりを探すために、パルス電磁石を用いた比熱測定システムの開発を目的とする。通常、比熱の測定方法としては大きく分けて(1)直流加熱による断熱法や緩和法、(2)交流加熱法、がある。前者は原理的に絶対値測定が可能であり物理量の議論をするためには理想的な方法であるが、測定時間が長くなる(秒オーダー)ために現在のパルス電磁石を用いた測定には適さない。後者の交流法では熱緩和時間が短い状態で測定するために短い時間間隔での測定が可能であるだけでな

く、交流測定のために感度が高くパルス磁場発生に伴うノイズの影響を受けにくいといった利点もある。したがって本研究期間では、交流測定を基本にして実際の測定における様々なパラメータ(試料の大きさ・形状、熱浴との緩和時間、加熱方法等)の最適化を行い、パルス強磁場中における比熱測定の確立に先鞭をつけることを目指す。

3. 研究の方法

(1) パルス磁場発生

パルス強磁場発生には現在国内で標準的に使用されている非破壊多層型パルス電磁石を用いる。図1(a)に示すようにコンデンサに充電した電荷を一気にコイルに流すことで、短時間ではあるが定常磁場では到達できないような強磁場を生成することができる。図1(b)の実線は現在使用できる標準的なパルス磁場の波形を示したものであり、半波長で約40ミリ秒程度である。

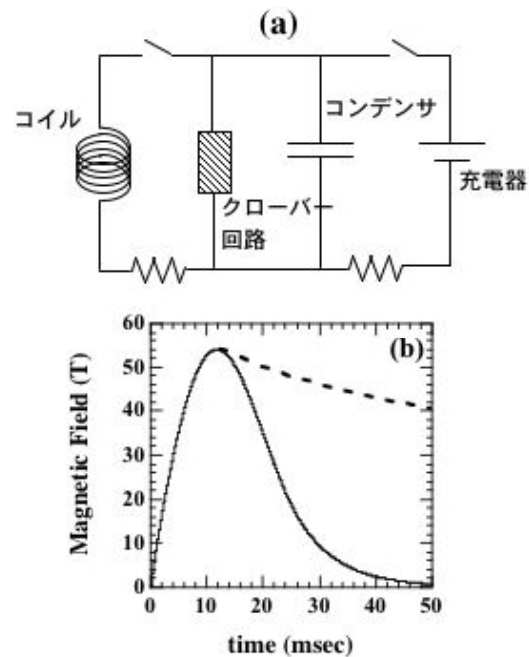


図1 (a)パルス磁場発生回路。(b)パルス磁場波形の例。

こうした装置で実験を行う場合の障害としては、

- (i) 電磁誘導により測定系に発生する巨大な誘導電圧、
- (ii) 高圧大電流の放電に伴う放電雑音、
- (iii) 試料内部に誘導される渦電流による電子温度の上昇、などが挙げられる。交流測定を用いることの最大の利点は、パルス磁場発生に伴う障害(i), (ii)の影響を大幅に減少さ

せ測定感度を上げることが出来るところにある。また(iii)についてであるが、パルス電磁石の性能向上によって磁場のロングパルス化(数十ミリ秒)が進んでいることや測定そのものが非常に薄くて(0.1~0.2 mm)小さな試料(数mg)を用いて行う性質のものであることから、金属的な物質であっても多くの試料ではほとんど問題にならないと考えられる。

(2) 交流比熱測定

交流法による比熱測定では、周波数 ω で変調された交流電力 $P_0 e^{i\omega t}$ を加えることで試料温度はヒーターと同じ周波数で振動し、その振幅 T_{ac} は試料の比熱 C および試料と熱浴間の熱伝導係数 k を用いて $T_{ac} = P_0 / (k + i\omega C)$ で与えられる。この式より、周波数を増加させカットオフ周波数 $\omega_1 = k/C$ を越えると T_{ac} が ω の逆数に比例するようになる。このとき T_{ac} は試料の比熱の逆数に比例し交流法が成立する。一方で、更に周波数を上げていくと試料内部での熱緩和が加熱周波数 ω に追いつかなくなり、見かけの T_{ac} が非常に小さくなって測定感度に影響する。この特性周波数を ω_2 とする。従って、測定周波数に対して $\omega_1 < \omega < \omega_2$ が成り立つように、試料と熱浴との接触方法、加熱方法、温度測定方法等を設計する必要がある。

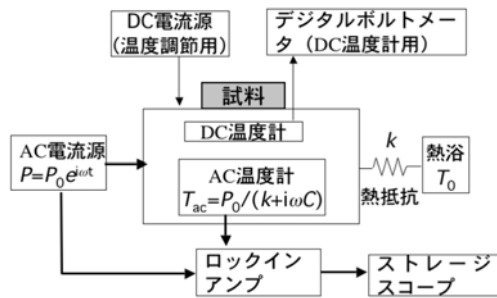


図2 交流比熱測定の概略

まず、パルス磁場中での測定において金属材料は諸々のノイズ源となる。したがって試料セルやクライオスタットの主要な部分はFRPなどの非金属を用いて自作した。また交流法による比熱測定では光による加熱が一般的であるが、パルス電磁石を用いる本測定では超伝導電磁石に比べてコイルの内径が小さく試料空間がかなり制限されるために光の導入機構が複雑で困難となる。そこで本測定装置では抵抗体を試料に直接貼り付けて加熱する方法をとることで、装置全体をコンパクトで簡便なものになるように設計した。

比熱測定の流れとしては、交流電流源で変調された電流によって試料を加熱し、試料温度の振動成分をロックインアンプで増幅してストレージスコープで計測する(図2)。

4. 研究成果

図3に試料ホルダーの主要部分を示す。パルス磁場特有の誘導電流発生によるノイズを極力抑えるため、FRPやPEEK等の非金属材料を用いて設計を行った。特にこれらは強度や加工のしやすさから、本装置において有用であることが分かった。また加熱方法としては、試料を、細いワイヤーで空中につり下げたストレインゲージ(ヒーター)に貼り付けることで、試料とヒーター間の熱伝導を向上させると共に、周囲環境との熱伝導を適度に制御可能とした。

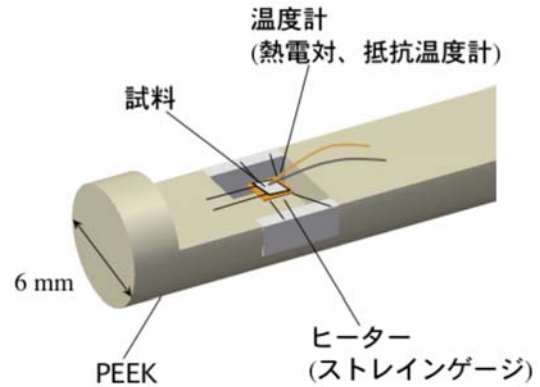


図3 試料ホルダー

これを基にパルス電磁石内の限られた試料空間に挿入可能なインサートを設計し、零磁場において比熱シグナルの検出に成功した(図3)。

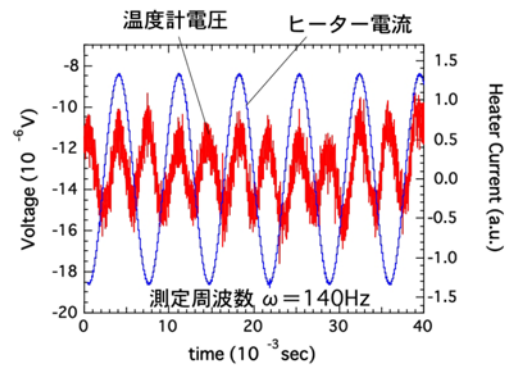


図4 測定シグナルの例

次のステップとして、パルス磁場中での測定を可能にするためには、 ω_2 や全体の出力電圧を上げ、より高周波数領域まで検出可能にする必要がある。そこで、試料と温度計やヒーター間の熱接触、被測定系(試料、ヒーター、温度計などの極小化による)の熱容量を改善して測定システムのさらなる最適化を行った。図5に温度計を変えたときの測定感度の違いを比較してある。Cernox温度計と熱

電対を比べた場合、一般的には前者の方が高感度ではあるが、ヒーターとの熱接触は熱電対を用いた方が良好であった。そこで温度計としては熱電対を試料に直接貼り付ける方法を採用する。

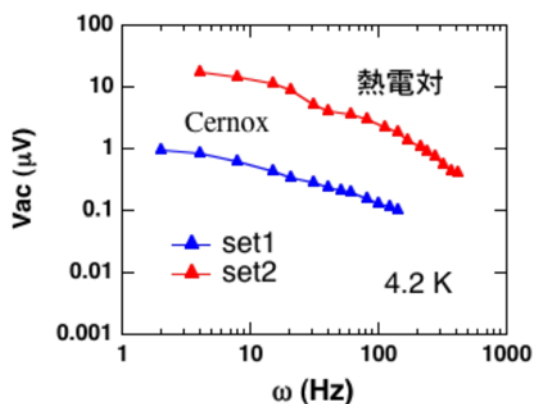


図5 温度計の違いによる測定感度の比較

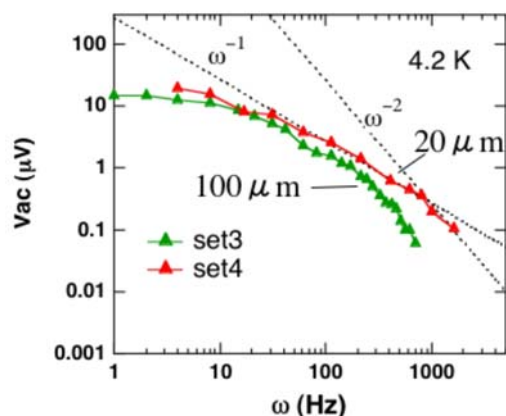


図6 試料の厚さの違いによる測定感度の比較

図6に被測定物の厚さ(t)を変えたときの測定感度を比較する。 $t=100\mu\text{m}$ に比べて $t=20\mu\text{m}$ では高周波数領域での感度が改善されていることが分かる。これは試料を薄くしたことにより被測定系内部の熱緩和が早くなったためと考えられる。これにより、 $\omega \sim 1\text{kHz}$, $V_{ac} > 0.1\mu\text{V}$ の範囲において比熱のシグナルが検出可能となった。

これらの結果、現在標準的に使用されているパルス電磁石(パルス幅、数十ミリ秒)を用いた比熱測定に先鞭をつけることができた。先にも述べたように、パルス超強磁場中における比熱測定は世界的に見ても報告例は非常に少なく、強磁場先進国である日本においてこのような装置をいち早く開発することは物性研究をリードするうえで非常

に有意義である。また、簡便なインサート、直流加熱に比べて短時間測定が可能といった本装置の特徴を生かして、測定時間が限定されるハイブリッド電磁石を用いた比熱測定などへも応用できる。

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1件)

- ① 吉居俊輔、山本知秀、萩原政幸 他5名、Multi-step magnetization plateaus in the Shastry-Sutherland system TbB_4 、Physical Review Letters 101 (2008) 087202, 1-4、査読 有

[学会発表] (計2件)

- ① 吉居俊輔、パルス強磁場中における交流比熱測定システムの開発、日本物理学会、2009年3月29日、東京都豊島区
 ② 吉居俊輔、パルス強磁場中における比熱測定装置の開発、日本物理学会、2008年9月21日、岩手県盛岡市

6. 研究組織

(1) 研究代表者

吉居 俊輔 (YOSHII SHUNSUKE)
 東北大学・金属材料研究所・産学官連携研究員
 研究者番号：70423093

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：