

令和 6 年 5 月 20 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18681

研究課題名（和文）微小単結晶試料における極低温磁化測定システムの開発

研究課題名（英文）Development of low-temperature magnetization measurement system for small single crystals

研究代表者

芝内 孝禎（Shibauchi, Takasada）

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授

研究者番号：00251356

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）：本研究では、最近の微小電気機械システムデバイス技術を、確立したファラデー力測定法と組み合わせ、微小単結晶試料における新しい極低温磁化精密測定システムを開発に向けての技術開発を行った。メンブレン型表面センサーを用い、磁場勾配を印加した際の磁化による発生するファラデー力を、キャパシタンス測定からメンブレンの変位量に変換して測定するものである。室温での動作確認は期待を超えるものであったが、低温ではコンデンサを形成するために蒸着した金により、低温でメンブレンの硬直化が判明し、今後に向けた改良ポイントが明らかとなった。並行して、希釈冷凍機と2軸回転機構を組み合わせた極低温精密比熱測定の開発には成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、凝縮系物理学分野において、量子相転移やトポロジカル相転移など、絶対零度における物性に関する物理が大きな注目を浴びており、極低温領域における精密物性測定がますます重要となっている。新奇物性を示す可能性のある物質を調べる上で、十分に大きな純良単結晶試料を得ることが困難な場合が往々にしてあり、微小単結晶での精密物性測定の需要は非常に大きい。本研究で開発を目指した極低温領域における磁化や比熱な度の熱力学量の精密測定が微小試料で可能となれば、より広い物質を対象とした極低温熱力学量測定が可能となり、様々な電子相の基底状態の理解が格段に進歩することが期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, recent micro-electromechanical system (MEMS) device technology is combined with the established Faraday force measurement method to develop a new cryogenic magnetization precision measurement system in micro-sized single-crystal samples. Using a membrane-type surface sensor, we measure the Faraday force generated by magnetization when a magnetic field gradient is applied, by converting the capacitance measurement into the amount of displacement of the membrane. The operation check at room temperature exceeded expectations, but at low temperatures, the gold deposited to form the capacitor caused the membrane to become rigid at low temperatures, revealing points for improvement for the future. In parallel, we developed a high-resolution specific heat measurement system for cryogenic temperatures by combining a dilution refrigerator and a two-axis rotating mechanism, which was fully successful.

研究分野：物性物理学

キーワード：磁化測定 希釈冷凍機温度 熱力学量 メンブレン ファラデー力 表面センサー 磁場勾配 微小試料

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、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

- (1) 近年、凝縮系物理学分野において、量子相転移やトポロジカル相転移など、絶対零度における物性に関する物理が大きな注目を浴びており、極低温領域における精密物性測定がますます重要となっている。希釈冷凍機を用いることで、数十から数百ミリケルビンといった極低温領域の物性測定は様々行われているが、新奇物性を示す可能性のある物質を調べる上で、十分に大きな純良単結晶試料を得ることが困難な場合が往々にしてあり、微小単結晶での精密物性測定の需要は非常に大きい。このような、微小単結晶での極低温測定が望まれている物性として、物質の相転移を調べる上で重要な、磁化や比熱などの熱力学量の測定が挙げられる。
- (2) このような熱力学量の測定において、市販の熱力学量測定装置を用いる場合、温度範囲が限定されることや、比較的大きな試料が必要となる場合がある。特に、物質の磁気的性質を調べる上で重要な熱力学量である磁化の測定では、最もよく用いられているのは、超伝導量子干渉 (SQUID) 磁束計であるが、試料を動かしての測定であるため、1ケルビン以下の極低温領域の測定は一般に困難である。
- (3) 希釈冷凍機温度領域の磁化測定では、元東京大学物性研究所の榊原敏郎名誉教授らが開発した、グラジエント型超伝導マグネットを用いたキャパシタンス法によるファラデー力測定 [1] が確立しているが、最低でも数ミリグラム程度の比較的大きな試料を用いる必要がある。一方で、より微小な単結晶試料の磁気測定には、原子間力顕微鏡 (AFM) に用いる微小カンチレバーを用いた磁気トルクを測定する手法 [2] がしばしば用いられるが、磁化の異方性成分のみが測定可能であるため立法晶系の物質などの測定ができないこと、およびピエゾ抵抗測定を行うため極低温での測定が困難であることなどの欠点がある。

2. 研究の目的

- (1) これらの背景から、本研究では、最近の微小電気機械システム (MEMS) デバイス技術の進歩を取り入れ、確立したファラデー力測定法と組み合わせ、微小単結晶試料における新しい極低温磁化精密測定システムを開発に向けての技術開発を行うことを目的とした。このようなシステムが開発できれば、より広い物質を対象とした極低温熱力学量測定が可能となり、様々な電子相の基底状態の理解が格段に進歩することが期待される。
- (2) 研究代表者の主な研究対象である非従来型超伝導体や量子スピン液体候補物質では、大きな単結晶試料を得られないことが少なくなく、また単結晶試料が得られたとしても、純良度の高いものは大きさが微小であることも多い。したがって、本質的な物理を議論するために、微小純良単結晶の精密極低温物性測定を行うことは非常に重要である。申請者のグループは、このような微小単結晶の測定手法の開発に注力しており、超伝導体の研究では、現在までにトンネルダイオードを用いた超安定化共振器を用いた磁場侵入長測定や、超伝導体や誘電体を用いた高 Q 値マイクロ波空洞共振器を用いた表面インピーダンス測定など、一辺の長さが 100 マイクロメートル程度の平板状試料での精密物性測定を行ってきた [3]。また磁性体の研究では、試料台・ヒーター・温度計を一体化した熱容量測定のセルを自作し、長時間緩和法という手法により数十マイクログラム級の試料での比熱の測定をヘリウム 3 温度までで可能にした実績を持っている [4]。

3. 研究の方法

- (1) 本研究で開発する極低温磁化精密測定システムでは、最近市販が開始されたメンブレン型表面センサーを用いる。薄いシート状の試料台と支持メンブレンの裏側に金蒸着し、可動式の対向電極との間でコンデンサを形成する。このセットアップをグラジエント型超伝導マグネット (最大磁束密度 14 テスラ) の中心に置き、10 テスラ/メートル程度の磁場勾配を鉛直方向に印加する。このとき、試料の持つ磁化による発生するファラデー力を、キャパシタンス測定からメンブレンの変位量に変換して測定する。ここで、キャパシタンス測定ではジュール熱がほとんど発生せず、数十ミリケルビンまでの極低温測定が可能であることが大きな特徴である。試料の冷却については、メンブレン型表面センサーの表側には、アルミの配線がされており、磁場中でアルミの超伝導を破壊することで熱伝導により熱アンカーをとることが可能である。
- (2) このようなファラデー力の測定では、試料の傾きによるトルクの寄与を排除することが重要

となる[1]。特に、試料が磁化の異方性を持つ場合には、試料の結晶軸と印加磁場の方向のずれにより、磁気トルクが発生し、キャパシタンスの変化をもたらす。この寄与は磁場勾配をOFFにすることである程度評価可能であるが、本研究で用いるメンブレン型表面応力センサーでは、支持レバーの根本にピエゾ抵抗素子が配置されており、この磁気トルク成分をピエゾ抵抗測定により精密に検出可能である。よって、試料ホルダ全体を2軸のゴニオメーター上に配置し、このピエゾ抵抗を測定しながら角度を調整できるようなシステムを構築することにより、試料の傾きによるトルクを完全に排除したファラデー力測定が可能となると考えられる。

4. 研究成果

- (1) まず、メンブレン型応力センサーの裏側に金蒸着を行い、可動電極との間でコンデンサを構築し、キャパシタンス測定の室温における予備測定を行った。作製したデバイスのキャパシタンス値は計算値に比べより大きなキャパシタンスが得られた。これは、キャパシタンス電極部分の効果の寄与によるものと推定される。次に、重さの異なる試料を配置し、重力によるキャパシタンスの変化を測定したところ、少なくとも室温での変化量からは、 2.3×10^{-6} emuの磁気モーメント分解能での測定が可能と見積もられた。この分解能が低温で得られれば、微小試料での磁化測定も十分に可能となる。一方で、低温での性能テストでは、メンブレンのたわみが予想の1/100程度にとどまることが分かった。この結果は、キャパシタンス構成のために蒸着した金により、低温でメンブレンの硬直化をもたらした可能性を示唆している。磁化の測定分解能は、メンブレンの変位量と磁場勾配により発生する力の大きさFの比で主に決まるが、この比は支持レバーの長さL、ヤング率E、および慣性モーメントIによって決まり、 $L^3/(EI)$ の関係にある。今後のより高性能化には、金蒸着の薄膜化によるメンブレンのヤング率および慣性モーメントの減少が重要となる。以上のように、今後に向けた改良ポイントが明らかとなった。
- (2) 本研究の磁化測定と関連の深い比熱についても、微小試料における極低温精密測定の装置開発を行った。比熱の測定手法については、以前の研究により、温度センサを試料ステージとヒーターを兼ねる自作のカロリメータを用い、大きなヒートパルスを与えた後の緩和過程をすべてデータとして取り込むという長時間緩和法で、0.7ケルビンまでの測定が可能であった[4]。本研究により、この測定系に改良を施し、希釈冷凍機中の2軸回転機構と組み合わせることにより、0.2ケルビンの極低温までにおける磁場中角度分解比熱測定を数十マイクログラム級の試料で可能とした[5]。
- (3) この比熱測定システムを用いて、キタエフスピン液体候補物質 -RuCl_3 の単結晶試料における比熱測定を行った。磁場をRuボンド方向に印加すると、極低温までギャップレスな励起の存在を示す比熱の温度依存性が得られたのに対し、磁場方向をわずかに傾けると、極低温での比熱が減少し、低エネルギー励起にギャップが出現することを示す結果を得た[5]。この結果は、キタエフ模型で厳密解として得られるキタエフスピン液体状態において理論的に期待されるマヨラナ準粒子励起の磁場角度依存性と完全に一致することから、この磁性体の高磁場領域において、スピン液体状態が実現し、マヨラナフェルミオンが存在することの熱力学的な証拠を得たと考えられる。さらに、同様の条件で熱ホール伝導度の測定を合わせて行ったところ、ギャップレス励起となるボンド方向をまたいで、磁場方向の回転とともに、熱ホール伝導度の符号が変化することが明らかとなった。この結果も、マヨラナ励起にギャップが出現することでトポロジカルなエッジ流が現れるという理論予測に合致したものであり、キタエフスピン液体におけるバルク-エッジ対応を実験的に観測したことを意味するものである。

<引用文献>

- [1] T. Sakakibara, H. Mitamura, T. Tayama, and H. Amitsuka, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 5067 (1994).
- [2] E. Ohmichi and T. Osada, *Rev. Sci. Instrum.* **73**, 3022 (2002).
- [3] K. Hashimoto, K. Cho, T. Shibauchi, S. Kasahara, Y. Mizukami, R. Katsumata, Y. Tsuruhara, T. Terashima, H. Ikeda, M. A. Tanatar, H. Kitano, N. Salovich, R. W. Giannetta, P. Walmsley, A. Carrington, R. Prozorov, and Y. Matsuda, *Science* **336**, 1554 (2012).
- [4] O. Tanaka, Y. Mizukami, R. Harasawa, K. Hashimoto, K. Hwang, N. Kurita, H. Tanaka, S. Fujimoto, Y. Matsuda, E.-G. Moon, and T. Shibauchi, *Nat. Phys.* **18**, 429 (2022).
- [5] K. Imamura, S. Suetsugu, Y. Mizukami, Y. Yoshida, K. Hashimoto, K. Ohtsuka, Y. Kasahara, N. Kurita, H. Tanaka, P. Noh, J. Nasu, E.-G. Moon, Y. Matsuda, and T. Shibauchi, *Sci. Adv.* **10**, eadk3539 (2024).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Imamura Kumpei, Suetsugu Shota, Mizukami Yuta, Yoshida Yusei, Hashimoto Kenichiro, Ohtsuka Kenichi, Kasahara Yuichi, Kurita Nobuyuki, Tanaka Hidekazu, Noh Pureum, Nasu Joji, Moon Eun-Gook, Matsuda Yuji, Shibauchi Takasada	4. 巻 10
2. 論文標題 Majorana-fermion origin of the planar thermal Hall effect in the Kitaev magnet -RuCl ₃	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eadk3539
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1126/sciadv.adk3539	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 T. Shibauchi
2. 発表標題 Thermodynamic evidence for Majorana excitations in the Kitaev magnet -RuCl ₃
3. 学会等名 MPI-UBC-UTokyo 2023（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------