

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 29 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540392

研究課題名(和文)クーロンブロッケード温度計を用いた強磁場中における高精度断熱法比熱測定の開発

研究課題名(英文)Development of quasi-adiabatic specific heat measurement under high magnetic field using CBT sensor

研究代表者

稲垣 祐次(Inagaki, Yuji)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：10335458

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円、(間接経費) 1,170,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題は原理的に磁場依存性の無いクーロンブロッケード温度計(CBT)を用いた強磁場下における高精度断熱法比熱測定システムの構築である。CBTセンサーはトンネル接合におけるIV特性から一意的に温度を決定することができる1次温度計であるが、ゼロバイアスにおける振幅をロックインアンプを用いて測定することで、1秒1点程度の比熱測定時における温度計測に利用できる。既存の超伝導マグネット+希釈冷凍機にCBTセンサーを組み込み、動作テストと改良を繰り返し、最終的に物性研究に投入可能なレベルまで開発を進めることができた。

研究成果の概要(英文)：Aim of the present study is to develop the system of the quasi-adiabatic specific heat measurement under high magnetic field using Coulomb Blockade thermometer (CBT) sensor, which is a primary thermometer based on the change of electric conductance of tunnel junction arrays, because the full width of the differential conductance depends only on the temperature of the sensor. The sensor can be also used as a secondary sensor by recording the amplitude at zero bias using Lock-in amplifier. This allow us to measure the temperature quick enough to perform the specific heat measurement. Installing the CBT sensor to the system, we repeated the test and improvement. Finally we could achieve the demanded level for the ordinary adiabatic method.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：CBTセンサー 強磁場 極低温 断熱法比熱

1. 研究開始当初の背景

強磁場中における比熱測定は、様々な理由から緩和法が採用される。市販装置もこれを採用している場合が多く、昨今では、ほぼ全自動で測定され、得られた結果を鵜呑みにしている傾向がある。緩和法は近似に基づいており、その近似が必ずしも成り立つわけではない。また、潜熱を伴う一次相転移を正確に評価することは原理的に不可能である。理想的には断熱法で比熱を評価すべきである。その際、問題となるのが温度計の磁場依存性であった。

2. 研究の目的

本研究では、原理的に磁場依存性を示さないクーロンブロック温度計 (CBT) を採用し、強磁場、極低温下における高精度な断熱法比熱測定システムの開発を目指した。

3. 研究の方法

上述の CBT とはトンネルジャンクションにおける I-V 特性がクーロンブロック効果の為に温度依存性を示すことを利用した 1 次温度計 (校正を必要としない) である。具体的には微分コンダクタンスの半値幅が温度にのみ依存し、磁場やその他の外部パラメータに依存しないことを利用する。(図 1)

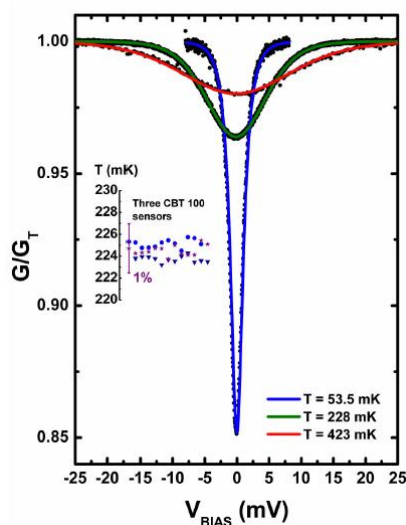


図 1 微分コンダクタンスの温度依存性

ただし、実際の断熱法比熱測定では、1 秒 1 サンプル程度の温度測定が要求される為、このままでは使用できない。そこで、本研究ではゼロバイアスにおける振幅の温度依存性に注目した。

この場合、個々のデバイスに依存した浮遊容量などが問題となる為、1 次温度計としては使えないが、2 次温度計としては十分利用可能である。原理的に測定時間も大幅に短縮でき、また、ロックインアンプを用いて平均化を行うことで精度を上げることが可能である。

4. 研究成果

初年度では、まず、CBT センサーの動作確認の為に、既存の 8 T 超伝導マグネットと希釈冷凍機を用いてテストを行った。磁場センサーに CBT センサーをマウントして最低温度 100 mK で微分コンダクタンスカーブを測定し、磁場依存性が無いことを確認した。

ただし、予想通り、一点測定で数分を要し、この手法では比熱測定は不可能であった為、ゼロバイアスにおけるコンダクタンス値の温度依存性を測定することで、2 次温度計としての利用を目指した。

測定精度の向上とサンプリングレートの高速化を図る為に、様々な工夫を施し、十分な開発期間を設けて、次年度中にほぼ満足できるレベルまで達成することができた。

最終年度では、最終目標である 13 T マグネットの既存希釈冷凍機への導入を目指した。装置、機器の移設が必要であったため、若干の計画の遅れがあったが、なんとか研究期間内で移設を完了し、CBT センサーと開発プローブの組み込みまで達成することができた。

上記の開発と並行して、通常温度計として用いられる半導体の磁場中温度校正作業も行った。断熱法比熱測定では、比熱の絶対値自体に温度計の誤差が影響する為、本研究を遂行したわけであるが、他の物性測定、例えば、磁化や電気抵抗測定などでは、測定温度が正確にわかれば十分である。しかしながら、温度計の磁場依存性まで考慮した物性測定は通常はあまり行われていないのが現状である。低温であればあるほど温度計の磁場依存性は著しいので、本来であれば、それを考慮すべきである。

そこで我々は市販のセルノックス r 温度計、ルテニウムオキシド温度計等を CBT センサーを使って極低温領域での磁場中校正を行った。

校正後の温度計は現在、様々な物性測定に利用している。

以上、本研究の「強磁場中における高精度断熱法比熱測定の開発」はほぼ想定した通り開発が進み、極めて有効な手法として利用することがわかった。今後は本研究で開発したシステムを、これまで曖昧であった強磁場中における一次相転移の研究、極低温領域の核比熱の寄与が無視できない領域における正確な比熱測定等に積極的に活用していく予定である。

また、本研究成果を積極的にアピールし、20 T を超える国内外の強磁場施設での利用も計画している。今後の益々の発展、成果が期待される。

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19件)

① Unusual Magnetic Ordering Observed in Nanosized $S = 1/2$ Quantum Spin System $(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2\text{CuCl}_3$

Yuji Inagaki, Yasutaka Sakamoto, Hiroki Morodomi, Tatsuya Kawae, Yasuo Yoshida, Takayuki Asano, Kohei Hosoi, Hirokazu Kobayashi, Hiroshi Kitagawa, Yoshitami Ajiro, and Yuji Furukawa

J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 054716 (2014)、査読有、<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.054716>

② SQUID磁束計用 ^3He インサートの開発

佐藤由昌, 蓮尾斎彦, 稲垣祐次, 河江達也
固体物理 Vol**574**-12, (2014)、査読有、In press

③ Magnetic Properties of 1:2 Mixed Cobalt(II) Salicylaldehyde Schiff-Base Complexes with Pyridine Ligands Carrying High-Spin Carbenes ($S = 2/2, 4/2, 6/2,$ and $8/2$) in Dilute Frozen Solutions: Role of Organic Spin in Heterospin Single-Molecule Magnets

Satoru Karasawa, Kimihiro Nakano, Daisuke Yoshihara, Noriko Yamamoto, Jun-ichi Tanokashira, Takahito Yoshizaki, Yuji Inagaki, and Noboru Koga

Inorg. Chem. (2014)、査読有、In press

④ Development of a Low-Temperature Insert for Precise Magnetization Measurement below $T = 2\text{K}$ with a Superconducting Quantum Interference Device Magnetometer

Yoshiaki Sato, Shun Makiyama, Yasutaka Sakamoto, Tadahiko Hasuo, Yuji Inagaki, Tatsuya Fujiwara, Hiroyuki S. Suzuki, Kazuyuki Matsubayashi, Yoshiya Uwatoko, and Tatsuya Kawae

Jpn. J. Appl. Phys. **52** (2013) 106702. 査読有、<http://dx.doi.org/10.7567/JJAP.52.106702>

⑤ Nonlinear Susceptibility Measurement for Quadrupolar Response in a Dilute Γ_3 Non-Kramers Doublet System $\text{Pr}_{0.05}\text{La}_{0.95}\text{Pb}_3$

Tatsuya KAWAE, Mikito KOGA, Yoshiaki SATO, Shun MAKIYAMA, Yuji INAGAKI, Naoyuki TATEIWA, Tatsuya FUJIWARA, Hiroyuki S.

SUZUKI, and Tetsuo KITAI

J. Phys. Soc. Jpn. **82** (2013) 73701.

査読有、[http://dx.doi.org/10.7566](http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.073701)

/JPSJ.82.073701

⑥ Metal-insulator transition sustained by Cr-doping in V2O3 nanocrystals

Y. Ishiwata, T. Shiraishi, T. Shiraishi, N. Ito, S. Suehiro, T. Kida, H. Ishii, Y. Tezuka, Y. Inagaki, T. Kawae, H. Oosato, E. Watanabe, D. Tsuya, M. Nantoh, K. Ishibashi, Applied Physics Letters, **100**, 043103 (2012)

査読有、doi:10.1063/1.3679396

⑦ Spontaneous uniaxial strain and disappearance of the metal-insulator transition in monodisperse V_2O_3 nanocrystals

Y. Ishiwata, S. Suehiro, T. Kida, H. Ishii, Y. Tezuka, H. Oosato, E. Watanabe, D. Tsuya, Y. Inagaki, T. Kawae, M. Nantoh and K. Ishibashi

Physical Review B **86**, 035449 1-4 (2012).

査読有、DOI: 10.1103/PhysRevB.86.035449

⑧ Zero-bias anomaly in ferromagnetic Ni nanoconstrictions

K. Ienaga, N. Nakashima, Y. Inagaki, H. Tsujii, S. Honda, T. Kimura and T. Kawae

Physical Review B **86**, 064404 (2012)

査読有、DOI: 10.1103/PhysRevB.86.064404

⑨ Study of ferromagnetic transition in Pd nanometer-scale constrictions using a mechanically controllable break junction technique

K. Ienaga, N. Nakashima, Y. Inagaki, H. Tsujii, T. Kimura and T. Kawae

Applied Physics Letters **101**, 123114 (2012)

査読有、[http://dx.doi.org/10.1063](http://dx.doi.org/10.1063/1.4754565)

/1.4754565

⑩ Preparations, Crystal Structures, and Magnetic Properties of N,N -Dipyridylaminaxyl as a New Magnetic Coupler and Its One-Dimensional Cobalt(II) Chains

Kensuke Murashima, Takeaki Watanabe, Shinji Kanegawa, Daisuke Yoshihara, Yuji Inagaki, Satoru Karasawa and Noboru Koga

Inorg. Chem. **51** (2012) 4982-4993

査読有、dx.doi.org/10.1021/ic202397m

⑪ Low-Temperature Magnetization Study of Spin Gap System $(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2\text{CuCl}_3$ with Nonometer Particle Size

Yasutaka Sakamoto, Hiroki Morodomi, Yuji Inagaki, Tatsuya Kawae, Takayuki Asano and

Yoshitami Ajiro
Journal of Physics: Conference Series 400
(2012) 32077-32080.

査読有

⑫ Magnetic Ordering and Tunable Structural Phase Transition in the Chromic Compound CuMoO_4

Takayuki Asano, Taizo Nishimura, Shuta Ichimura, Yuji Inagaki, Tatsuya Kawae, Toshiya Fukui, Yasuo Narumi, Koichi Kindo, Toshimitsu Ito, Sara Haravifard, Bruce D. Gaulin

Journal of the Physical Society of Japan, **80**, No. 9, 093708 1-4 (2011). 査読有、DOI: 10.1143/JPSJ.80.093708

⑬ Coexistence of singlet and ordered $S=1/2$ moments in the ground state of the triclinic quantum magnet CuMoO_4

S. Haravifard, K. Fritsch, T. Asano, J. P. Clancy, Z. Yamani, G. Ehlers, T. Nishimura, Y. Inagaki, T. Kawae, I. Swainson, and B. D. Gaulin

Physical Review B **84**, 094436 1-7 (2011). 査読有、DOI: 10.1103/PhysRevB.84.094436

[学会発表] (計5件)

① The 19th International Conference on Magnetism (ICM) with Strongly Correlated Electron System (SCES) July 2012, Busan, Korea

Ac Calorimetry under Pulsed High Magnetic Field

Yuji Inagaki

② 26th International Conference on Low Temperature Physics, Aug 10-17, 2011 Beijing, China

Low-Temperature Magnetization Study of Spin Gap System $(\text{CH}_3)_2\text{NH}_2\text{CuCl}_3$ with Nanometer Particle Size

Yuji Inagaki

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○所得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

<http://www.qpn.kyushu-u.ac.jp/lab10/index3.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

稲垣 祐次 (INAGAKI Yuji)

九州大学・工学研究院・助教

研究者番号: 10335458

(2) 研究分担者

河江 達也 (KAWAE Tatsuya)

九州大学・工学研究院・准教授

研究者番号: 30253503