

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 26 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656064

研究課題名(和文) マイクロカロリメータへの応用を目指した量子強誘電体温度センサー

研究課題名(英文) Quantumferroelectric thermosensor for application of microcalorimeter

研究代表者

前畑 京介 (Maehata, Keisuke)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：30190317

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

研究成果の概要(和文)：量子常誘電体は、数K以下の極低温において静電容量の値が温度によらず一定の高い値を保持する。量子常誘電体に適当な不純物を添加することで、100mKの低温領域において静電容量の値が温度とともに変化する量子強誘電体へと相転移することがある。本研究では、量子常誘電体であるKTNに適当な不純物を添加し、量子強誘電体に相転移することを確認した。不純物添加KTNは、100mKの低温領域において静電容量の値が温度とともに変化する温度センサーとして、マイクロカロリメータに応用可能である。

研究成果の概要(英文)：A quantumparaelectric material has a large constant value of the electric capacitance in low temperatures below several K. By doping adequate impurities, the quantumparaelectric material experiences the phase transition to the quantumferroelectric material. The electric capacitance of the quantumferroelectric material has large temperature dependence in the temperature region of 100 mK. In this work, an impurity doped KTN sample was found to experience the phase transition from the quantumparaelectric state to the quantumferroelectric state. The impurity doped KTN is expected to be used for the thermosensor of the microcalorimeter because of the temperature dependence of the electric capacitance in the temperature region of 100 mK.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎 応用物理学一般

キーワード：放射線検出器 高エネルギー分解能 マイクロカロリメータ 誘電体温度センサー 量子常誘電体 量子強誘電体

1. 研究開始当初の背景

絶対温度で 100mK 以下の超低温に冷却され熱容量が非常に小さくなった物質に X 線等の粒子線が入射した際の温度上昇を、入射粒子線のエネルギーとして精度良く計測する検出器をマイクロカロリメータと呼ぶ。超伝導相転移端温度計(TES)マイクロカロリメータは 5.9keV のエネルギーを有する X 線を半幅幅 2eV より優れたエネルギー分解能で検出している。TES マイクロカロリメータで粒子線を検出するときは、直流電流バイアスを印加するが、このとき生じる熱雑音が測定限界を決定する。さらに、TES の相転移領域における急峻な電気抵抗変化を微小電流変化で計測するために超伝導量子干渉素子(SQUID)増幅器が不可欠であり、動作には非常に複雑で高度な技術を必要とする。

温度が T 下がるとともに静電容量 C の値が増加し、数 10K 以下の極低温で高い一定値を保持する物質を量子常誘電体と呼ぶ。量子常誘電体に不純物添加などを施すことで、強誘電相が誘起された量子強誘電体へ相転移し、マイクロカロリメータを動作する 100mK の温度領域において、誘電体温度計の性能指標 $d(\ln C)/d(\ln T)$ の値が 1 程度になる。量子強誘電体をマイクロカロリメータの温度計として利用すると、入射粒子のエネルギー吸収による温度上昇を、直流バイアス電圧が印加された誘電体温度計の静電容量変化に誘起される電荷量を標準的な電荷収集型前置増幅器で測定することが可能であり、直流バイアス電圧を印加したときの熱雑音およびジュール発熱は無視でき、磁界中でも動作可能であるので、新しい方式の高性能マイクロカロリメータとして有望である。前畑らは先行研究において、1.0% の SrTa_2O_6 を含んだ SrTiO_3 誘電体試料をマイクロカロリメータとして動作させ、世界で初めて X 線を検出することに成功した。しかしながら、誘電体温度計性能指標の値を制御する方法がなく、その後の研究が発展していない。そこで、量子常誘電体に不純物を添加することで、量子強誘電体へと相転移する機構を解明することが要求されていた。

2. 研究の目的

様々な量子常誘電体試料に不純物を添加することにより、数 K の温度領域において量子強誘電体へ相転移し 100mK の温度領域において、誘電体温度計性能指標 $d(\ln C)/d(\ln T)$ の値が 1 程度になる物質を探索し、相転移に必要な条件を調べることで誘電体温度計の開発に必要な量子強誘電体への相転移制御法へ発展させる。

3. 研究の方法

誘電体マイクロカロリメータ

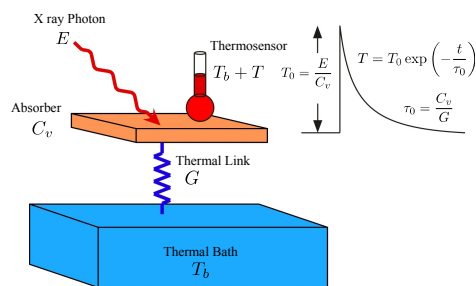


図1 マイクロカロリメータの動作概念

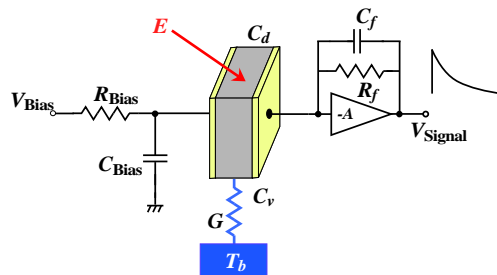


図2 誘電体マイクロカロリメータの X 線検出動作原理

マイクロカロリメータの動作概念を図1に示す。マイクロカロリメータは入射 X 線光子のエネルギーを温度上昇に変換する吸収体と、入射エネルギーに比例した温度上昇を計測する温度計から構成される。マイクロカロリメータの吸収体は熱コンダクタンス G を有する熱リンクを介して、温度 T_b の冷熱浴に接続され冷却される。このとき、入射 X 線のエネルギーを観測可能な温度上昇へと変換するためには、冷熱浴を吸収体の実効的熱容量が十分に小さい値となる 100mK 程度の温度領域に保持すること必要がある。エネルギー E の X 線光子が実効的熱容量 C_v に入射すると、吸収体の温度は T_b から $T_0 = E/C_v$ へ上昇し、時定数 $\tau_0 = C_v/G$ で温度 T_b へと戻る。このようにして X 線光子のエネルギーは、吸収体の温度上昇 T_0 として計測される。このときのエネルギー分解能は、温度 T における実効的熱容量 C_v の吸収体の熱力学的内部エネルギーの揺らぎ $\sqrt{C_v T^2}$ に比例する。マイクロカロリメータでは、吸収体における微小な温度上昇を感度よく優れた精度で測定することが重要である。

100mK の温度領域において、静電容量の値が温度に対してある程度大きな依存性を有する特殊な誘電体を温度計として利用するのが、誘電体マイクロカロリメータである。図2に誘電体マイクロカロリメータの動作原理を示す。熱リンク G を介して温度 T_b に保持された、静電容量が C_d で性能指標 $d(\ln C_d)/d(\ln T)$ の誘電体温度計に直流バイアス電圧 V_0 を印加する。バイアス電圧を安定化するため、 $C_{\text{Bias}} \gg C_d$ とする。入射 X 線光子のエネルギー E が吸収されたことにより、実効的熱容量が C_v のマイクロカロリメータの

温度は $T_0 = E/C$ だけ上昇する。 T_0 の温度上昇に伴い誘電体温度計の静電容量は $\Delta C_d = (C_d/T_b)[d(\ln C_d)/d(\ln T)] T_0$ だけ変化する。このとき、温度計から $\Delta Q = \Delta C_d V_0$ の電荷が検出信号として出力される。検出信号電荷は帰還容量 C_f の電荷収集型前置増幅器により電圧パルスに変換される。優れたエネルギー分解能を実現するためには、100mK の温度領域において、 C_d がある程度の大きさを有し、温度計性能指標 $d(\ln C_d)/d(\ln T)$ の値が 1 程度になる誘電体が必要となる。量子強誘電体はマイクロカロリメータの温度計への応用が期待される。

量子強誘電体

典型的な量子常誘電体である SrTiO_3 は、温度 T が低くなるのに伴い静電容量 C の値が増加し、10K 程度の低温になると C は一定値になる。このような量子常誘電体では、誘電体温度計の性能指標が $d(\ln C)/d(\ln T) = 0$ となり、マイクロカロリメータの温度計としては利用できない。ところが、量子常誘電体である SrTiO_3 系誘電体試料に同位体や不純物を添加すると、双極子相互作用を強化して強誘電相を誘起することが可能である。このようにして低温領域で強誘電相を有する物質を量子強誘電体と呼ぶ。量子強誘電体に相転移すれば、 C の値は臨界温度で極大値を取り低温領域で減少する。このとき、臨界温度付近では強誘電相により $C-T$ 曲線の傾きが大きくなる。量子強誘電体への相転移温度を数 K 領域に制御できれば、100mK の温度領域において、 C_d がある程度の大きさを有し、温度計性能指標 $d(\ln C_d)/d(\ln T)$ の値が 1 程度を有する誘電体温度計が実現する。

量子常誘電体である SrTiO_3 の Ti 原子の一部を Ba 原子に置換することにより混晶系を作り、その組成比を変化させることで、双極子相互作用が強まり量子強誘電性が発現したという結果が確認されている。このような効果を組成効果と呼ぶ。KTN($\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$) も Ta と Nb の組成比を変化させており、組成効果によって量子強誘電性を発現させている。

100mK 領域における KTN 誘電体試料の静電容量温度依存性測定

本研究では、 KTaO_3 の Ta の 0.012% を Nb に置換した KTN ($\text{KTa}_{1-x}\text{Nb}_x\text{O}_3$ [$x=0.012$]) 誘電体試料を 100mK 領域に冷却し静電容量と温度の関係を測定した。測定は LCR メータを用いた 4 端子対法で行った。4 端子対法は回路において電圧検出の回路と電流検出の回路を独立させケーブルにシールド（外部導体）をつける事によって低インピーダンスに対する測定誤差を小さくする方法である。電圧検出の回路と電流検出の回路を独立させ電圧計の入力インピーダンスを高くすることによって電圧計測の回路に電流がほとんど流れないようにし、電圧を接触抵抗やケー

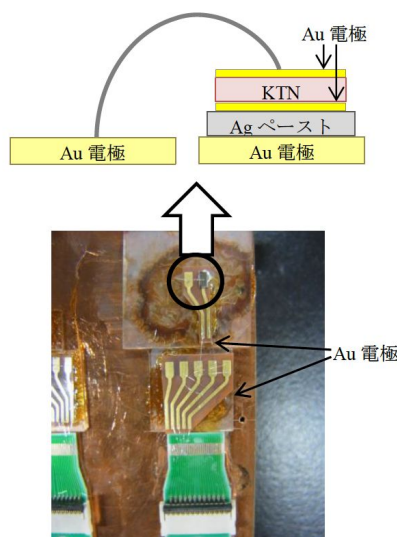


図 3. KTN 誘電体試料のホルダーへの取り付け

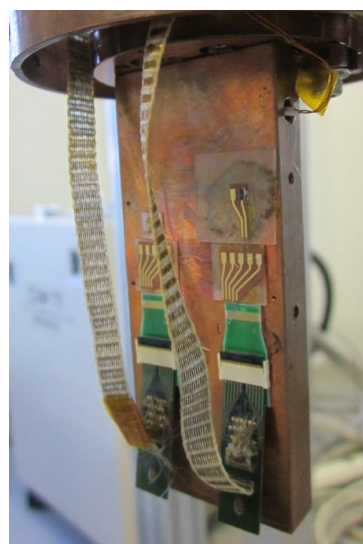


図 4 試料ホルダーの冷凍機への取り付け

ブルのインピーダンスの影響を受けずに測定できる。そして、シールドをつける事によって、浮遊容量を抑え、電流がケーブルの中心を通りシールドを通して戻ってくことでケーブル間の相互誘導を打ち消すことができる。

KTN 誘電体試料は $2\text{mm} \times 1\text{mm} \times 0.1\text{mm}$ の薄い長方形型の形状をしており、両面に金電極が付いていてコンデンサとなっている。図 3 上図に示すように試料両面の金電極をホルダー上の Au 電極に、それぞれ、Ag ペーストによる接着とアルミニウムワイヤーボンディングによって接続した。4 端子対法のために、図 3 下図に示すようにホルダー上の 2 本の Au 電極を 4 本の Au 電極へ、そしてコネクタへアルミニウムワイヤーボンディングで接続した。図 4 は試料ホルダーを無冷媒希釈冷凍機のコールドステージに取り付けた様子である。

実験は 2 回行い、1 回目の実験後、実験に

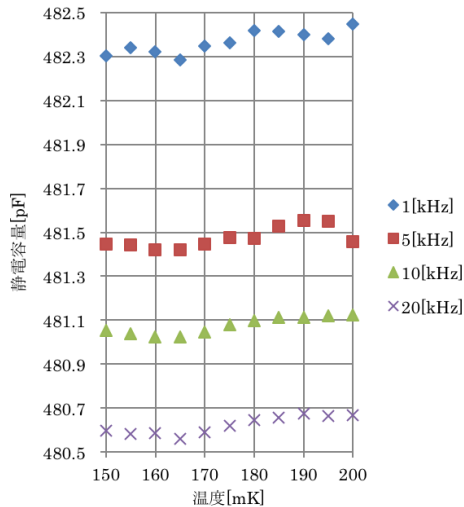


図5 150mK から 200mK の温度領域における KTN 試料の静電容量温度依存性の測定結果(1) 周波数：1kHz から 20kHz

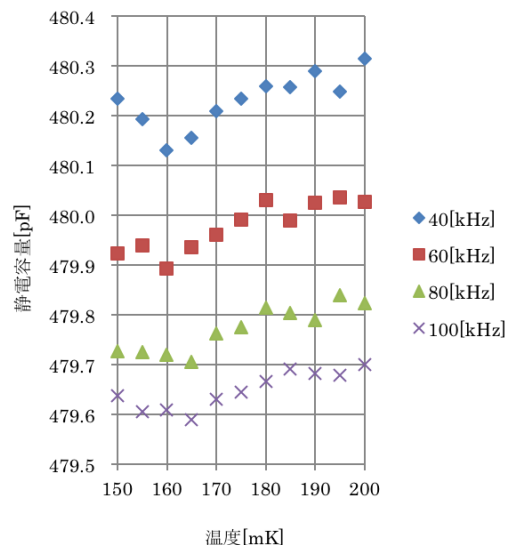


図6 150mK から 200mK の温度領域における KTN 試料の静電容量温度依存性の測定結果(1) 周波数：40kHz から 100kHz

使用した試料を破損してしまったため、2 回目の実験は組成が同一の別の KTN 誘電体試料を使用した。2 回目の実験で 150~160mK から 190~200mK にかけて静電容量の右上がりの変化が 3 回確認できた。測定結果を図 5 と図 6 に示す。測定結果には、冷凍機内配線の 400pF の浮遊容量が完全に除去できていないことがわかった。そこで、配線の浮遊容量の補正をして測定値を解析した結果、温度計性能指標 $\alpha = d(\ln C_d)/d(\ln T)$ の値は最大 0.02 程度であった。本研究で目標とした値より 2 桁小さい値となったが量子強誘電状態への相転移が確認できた。

4．研究成果

KTaO₃ の Ta の 0.012% を Nb に置換した KTN (KTa_{1-x}Nb_xO₃[X=0.012]) 誘電体試料の静電容

量の温度依存性を 100mK の温度領域で 4 端子対法を用いて測定した。150mK から 200mK の温度領域で静電容量が温度とともに変化することを確認した。測定値を解析して得られた温度計性能指標の値は最大で 0.02 程度と小さく、本研究の目標値より 2 桁ほど小さい結果だった。しかし、量子強誘電状態へと相転移することを確認した。

今後は、KTa_{1-x}Nb_xO₃ の Nb の割合 X の値を変化させて作製した試料の静電容量測定を行い、量子強誘電相転移の理解と深め、より温度計感度の高い誘電体温度計開発への指針を模索する。

5．主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 1 件)

高橋祐貴, 中橋達也, 石橋 健二, 前畑 京介, 和田信之, 坂部行雄, 満田和久, 山崎典子, 誘電体マイクロカロリメータによる線検出信号の観測、2012 年秋第 73 回応用物理学会学術講演会

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

なし

6．研究組織

(1)研究代表者

前畑 京介 (MAEHATA, Keisuke)

九州大学・大学院工学研究院・准教授

研究者番号：30190317

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

山崎 典子 (YAMASAKI, Noriko)

独立行政法人宇宙航空研究開発機構・宇宙

科学研究所・准教授

研究者番号：20254146