

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 25 日現在

機関番号：11301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2014～2015

課題番号：26887004

研究課題名(和文) 時間領域分離型比熱測定による精密電子比熱測定

研究課題名(英文) Accurate Measurements of Electronic Heat Capacity by High-Speed Calorimetry Technique

研究代表者

木原 工 (Kihara, Takumi)

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：80733021

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,700,000円

研究成果の概要(和文)：極低温・強磁場環境下で動作する高速比熱測定装置を開発した。本測定系は、通常の緩和法による比熱測定に加え、準断熱法(断熱条件下で試料にヒートパルスを与えたときの温度変化から比熱を見積もる手法)による測定を行うことで、0.1秒以下という短時間での比熱測定が可能である。これを3He冷凍機及び定常強磁場と組み合わせ、原子核スピン比熱の増大する極低温・強磁場領域において核比熱と電子比熱とを緩和時間の違いによって分離し、テスト試料Cuの精密電子比熱測定を行った。

研究成果の概要(英文)：We developed a rapid caloric measurement system, which can measure a heat capacity within 0.1 second at low temperatures and high magnetic fields. At low temperatures, the paramagnetic nuclear spins contribute to the total heat capacity, which shows the slow thermal relaxation process. Therefore, the estimation of the electronic contribution to the heat capacity is difficult by the relaxation method. The rapid caloric measurements enable us to measure the heat capacity without the delayed contribution of the nuclear spins. We successfully performed the accurate measurements of the electronic heat capacity of copper at the low temperatures down to 0.6 K and the high magnetic fields up to 17.5 T.

研究分野：強磁場物性

キーワード：比熱 極低温 核比熱 強磁場 強相関電子系

1. 研究開始当初の背景

比熱は、系の基底状態付近においてエネルギーやエントロピーを正確に求められる手法であり、強相関電子系、超伝導体、量子スピン系などあらゆる分野において、最も基本的かつ重要な測定手法である。しかし、極低温下では、凍結しない核スピンの寄与(核比熱)の除去が困難であり、電子比熱を精度良く測定することは困難であった。また核比熱の遅い熱緩和によって測定が長時間になるなどの測定上の問題もあった。

2. 研究の目的

本研究は次の2つを目的とした。(1)高速で比熱を測定できる測定装置を開発し、電子比熱と核比熱を緩和時間の違いを利用して時間領域で分離する手法を確立する。そして(2)核比熱の大きな Pr 系カゴ状物質の低温強磁場下における電子比熱を正確に求め、その基底状態を明らかにする。

3. 研究の方法

比熱測定には断熱法や緩和法などがあるが、図1(上)のように試料、温度計(T)、ヒーター(H)を熱浴に弱く熱接触させ、加えた熱による試料温度変化を温度計で測定する点は共通である。測定された比熱には、格子、電子(電子スピン)、核スピンの3つの寄与があるが、基底状態付近の極低温では電子および核スピンの寄与が支配的となる。核スピンは希釈冷凍機で到達可能な 50mK 程度では常磁性のままであり、低温に向けて顕著に増大するため、低温で通常小さくなる電子比熱の正確な見積もりには大きな障害となっていた。特に強磁場下では、核比熱は磁場の2乗に比例して増大するため、電子比熱の見積もりはより困難になる。また核スピンは格子系との相互作用が小さいため、図1(下)のように、試料内部に遅い緩和過程を生じさせる。

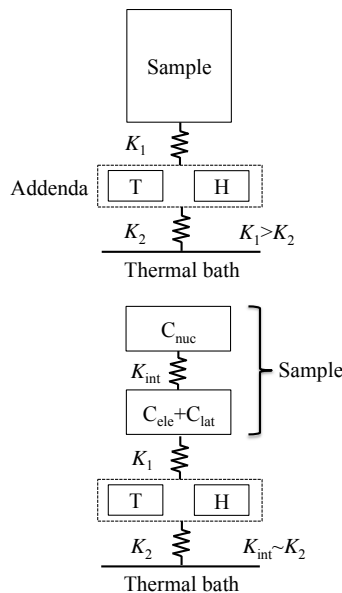


図 1

その結果試料全体の熱緩和(温度の時間変化)は、図2の破線のように単純な指数関数にならず、緩和法による比熱測定の場合、比熱の見積もりが困難かつ測定が長時間になるという問題もあった。先行研究として、複数の指数関数を使って緩和曲線をフィッティングすることで電子比熱と核比熱とを分離する手法が Andraka らによって報告されているが、核スピン-格子間の緩和時間(T_1)や核比熱の温度依存性について理論的仮定が必要になるなど課題があった(引用文献 および)。

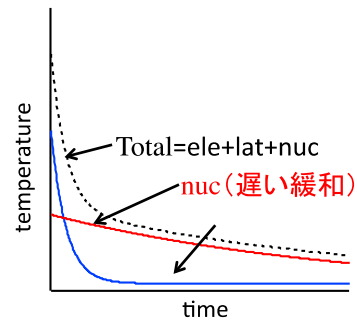


図 2

本研究では、高速で比熱を測定することで遅い緩和過程として現れる核比熱の寄与を分離し、電子比熱の精密測定を行うことを目的として、まず高速比熱測定装置の開発を行った。高速で比熱測定するためには「温度計の応答速度が十分速いこと」が要求される。そのためには Addenda の熱容量を小さく且つ試料-Addenda 間の熱伝導を大きくする必要があるので、図3のように比熱ステージとして熱容量の小さいサファイア基板(厚さ 35~50 μ m)を用い、サファイア基板の背面には、RuO₂の抵抗ペーストを焼き付けることで温度計およびヒーターを作製した。また試料は、熱伝導の高い Ag ペーストでステージ(サファイア)と強く熱接触させ、試料をマウントしたステージは熱伝導の悪いガラス基板を使い熱浴と接触している。こうすることで、ワイヤーで試料ステージを吊るす一般的な比熱のセットアップと比べ試料の振動を抑えることができるので、磁場中比熱測定でノイズを小さくできる。

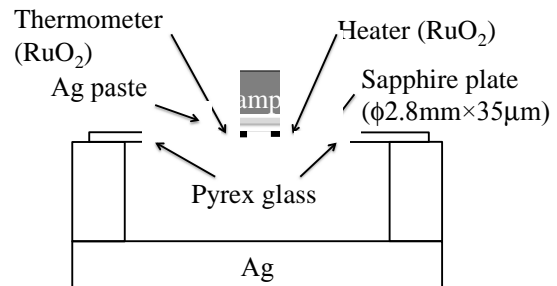


図 3

4. 研究成果

(1) 温度計（ヒーター）の抵抗値の最適化

本研究では、RuO₂の濃度を変えることで図4に示すように抵抗の温度変化を温度計とヒーターそれぞれに対し最適化した。

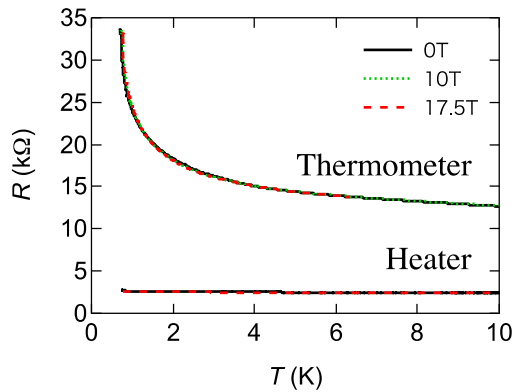


図4

(2) 温度計（ヒーター）の抵抗測定および比熱測定プログラムの作製

本研究では、高速で温度計（ヒーター）の抵抗測定を行う必要があるため、高周波（～10kHz）のAC法による抵抗測定を行った。そして得られた生データ（交流電圧）に対し、位相を合わせたサイン波を掛け低周波成分を取り出すことで数値的にロックイン検波を行った。数値ロックイン検波の手法には生データを確認しながら必要に応じてフィルターやFFTを掛けられるという利点がある。測定には、ファンクションジェネレータとデジタイザが一体となったNational Instruments社製のUSB-6366を用い、測定や解析に必要なプログラム等についてはLabVIEWにより作製した。

高周波AC法の場合、極低温の実験で一般に用いられる抵抗ブリッジ回路は、応答速度が遅いため使用することができない。そのため本研究では、極低温領域で発熱の原因となる電氣的ノイズを抑えるため、ブリッジ回路は使わずにバンドパスフィルタやトランス回路などを自作した。

(3) 比熱測定

東北大学金属材料研究所強磁場超伝導材料研究センターの超伝導磁石と3He冷凍機に搭載可能な比熱プローブを作製し、テスト試料としてCuとSmTa₂Al₂₀の比熱測定を行った。図5は低温で試料(SmTa₂Al₂₀)に50msのヒートパルス（破線）を加えたときの試料温度変化（実線）である。ヒートパルスを与えた前後で試料温度がほぼ変化していないことから、この測定時間スケールでは試料は良い断熱条件下にあると見なせるので、試料に与えた熱量とヒートパルス前後の温度差から比熱を見積もった（準断熱法）。この手法で緩和法による従来の測定とほぼ同程度の測定精度で比熱を測定できることが分かった。ま

た磁場中でのみ巨大な核比熱が存在するCuを用いたテストでは、0.6Kおよび17.5Tまでの温度・磁場領域において、ゼロ磁場と変わらない比熱の結果が得られており、この手法で電子比熱と核比熱とを分離可能であることも実証している。

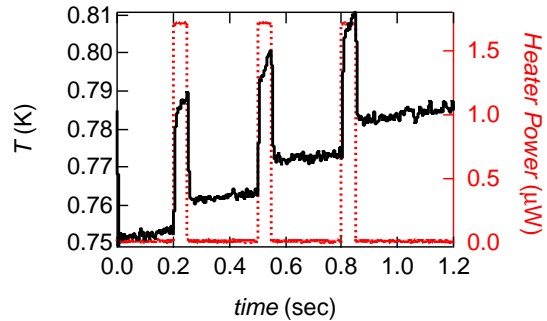


図5

(4) まとめ

以上より本研究では、東北大学金属材料研究所の超伝導磁石に搭載可能な高速比熱測定装置を作製し、テスト試料を用いて低温・強磁場下において電子比熱と核比熱とを実験的に分離できることを実証した。しかしながら、希釈冷凍機を使った比熱測定には至っておらず本研究の目的(2)に挙げたPr系カゴ状物質の比熱測定は未だ行えていない。これらは今後の研究課題として引き続き進めて行きたいと考えている。

<引用文献>

- B. Andraka et al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 67(12), 1996, 4256-4260.
- B. Andraka et al., Rev. Sci. Instrum. Vol. 82, 2011, 016103-1-3.

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 0 件)

〔学会発表〕(計 1 件)

木原 工、小濱 芳充、徳永 将史、時間領域分離型比熱測定を用いた電子系と核スピンの分離、日本物理学会 2015 年秋季大会、2015 年 9 月 17 日、関西大学（大阪府・吹田市）

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称：

発明者：

権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

木原 工 (KIHARA Takumi)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号：80733021

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし