

論文の内容の要旨

パルス強磁場下における磁気熱量効果測定手法の 開発とメタ磁性形状記憶合金への応用

(Development of a measurement system of magneto-
caloric effects in pulsed high magnetic fields and its
application

to the metamagnetic shape memory alloys)

木原 工

物性研究において、磁場は欠かすことのできない重要な外場の1つである。瞬間的にはあるが50Tを超える強磁場を発生できるパルス磁場は、これまで数多くの磁性体、超伝導体、半導体などの研究に重要な役割を果たしてきた。近年、パルス磁場下における計測技術が大きく進歩し、様々な物理量の測定が可能になっているが、熱力学量の測定に関してはほぼ磁化測定に限定されている。本研究ではパルス強磁場下における精密熱量測定を目標とし、その第一歩として磁気熱量効果の測定装置を開発した。パルス磁場中で瞬間的に変化する試料温度を磁場の関数として正確に測定するために、熱容量が小さく試料との熱伝導性の良い薄膜の抵抗温度計を試料表面に直接作製した。この温度計を用いて、標準試料であるGd及び $Gd_3Ga_5O_{12}$ に対し磁気熱量効果の測定を行った。7.2 Tまでの磁場で測定したGdの室温付近における磁気熱量効果は、定常磁場下における比熱の温度/磁場依存性から見積もられた値と定量的に良い一致を示した。様々な温度における磁気熱量効果の測定結果と、ゼロ磁場での比熱の温度依存性を使うと磁場中比熱を見積もることができる。Gdに対しこのような解析を行い、この方法で見積もられた比熱から、相転移温度の磁場変化を調べられることを示した。低温領域(6 K - 30 K)における $Gd_3Ga_5O_{12}$ の磁気熱量効果の結果も過去の報告と良い一致を示しており、本研究で開発した測定系が広い温度領域において有効であることが実証された。 $Gd_3Ga_5O_{12}$ は、1K以下の極低温でエントロピーの放出があることが知られている。今回の解析は、高温域での磁気熱量効果の測定によって測定温度以下の残留エントロピーについて知見が得られることを示した。

本研究で開発した装置を用いて、NiCoMnIn系メタ磁性形状記憶合金における負の磁気熱量効果の研究を行った。この物質はホイスラー型の結晶構造を持ち、室温付近で高温の強磁性オーステナイト相から低温の常磁性マルテンサイト相へ変態する。常磁性マルテンサイト相から強磁性オーステナイト相へ磁場誘起相転移をする際、負の磁気熱量効果という現象を示す。この現象は、スピンの整列する寄与を超える巨大なエントロピー変化が電子系、格子系或は磁気系からもたらされることを意味するが、その起源は未だ解明されていない。本研究では、 $Ni_{45}Co_5Mn_{50-x}In_x$ ($x = 13.3, 13.5$) に対して、パルス強磁場下の磁化測定によって相図を明らかにした後、パルス強磁場下における顕微鏡観察によって相変態時の構造変化を評価した。また定常磁場下の測定を通して、オーステナイト相とマルテンサイト相それぞれの低温比熱を調べた。その結果を両相で比較することで、相変態時のエントロピー変化に占める電子比熱の寄与はほとんど無いこと及びデバイ

温度に顕著な差があることを明らかにした。更に、本研究で開発した手法を用いてパルス強磁場下における $\text{Ni}_{45}\text{Co}_5\text{Mn}_{36.7}\text{In}_{13.3}$ の磁気熱量効果を直接測定した。磁場誘起逆変態に伴って現れる急激な温度降下は、磁化からマクスウェルの関係式を使って間接的に見積もられた値と良く一致している。本研究の結果は、このような相変態による効果とは別に各相内での磁気熱量効果についても定量的情報を与えている。実際に観測されたオーステナイト相の磁気熱量効果は、分子場模型で計算されたスピン系の寄与として良く説明できた。以上の結果に基づいた実験的考察から、この系の負の磁気熱量効果には格子系が大きな役割を果たしていることが明らかになった。また磁気モーメントの伸びによるエントロピー変化も潜在的に同程度の寄与を出し得ることが分かった。