

極低温 (10K以下) における熱伝導率測定法の開発
電子材料学講座 池部研究室 昆野 吉幸

序論

酸化物超伝導体に代表される低温工学、低温物理学の発展に伴い、極低温領域における熱的物性値 (熱伝導率 κ 、熱拡散率 α 、比熱 C) は、実用的見地からも重要な物理量である。したがって、これらの熱物性値を精度よく測定する技術の確立も必要となってきた。

一般に、熱物性を測定する場合、リード線や残留気体への熱伝導や対流、輻射に注意しなければならない。これらを考慮して、装置設計や測定を行う必要がある。

低温における固体の熱伝導率測定は、定常熱流法で行われる。熱伝導率 κ は、断面積 S 、長さ L の試料の両端の温度差 dT 、加えた熱量 Q とすると、

$$\kappa = (Q / dT) (L / S) \dots\dots\dots (1)$$

で与えられる。これまで研究室ではHe冷凍機をもちいて、10~200K の間の熱物性値の測定を行ってきたが、本研究では、5~20K の範囲で測定可能な液体Heを用いたクライオスタットを作製し、ステンレス (SUS316) と酸化物超伝導体 ($Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_4$) の熱伝導率を測定し、今回作製した装置の評価を行った。

クライオスタットの構造と実験方法

クライオスタットの全体図をFig. 1 に示す。2重のガラスデュワーの外側には、液体N₂、内側には液体Heが入り、その中に本体の試料室が入る。本体の支持棒は熱流入を防ぐためステンレス製のパイプを用い、リード線と熱電対はその中を通す。試料室は銅容器で、真空シールは、フランジとの間にインジウム線を圧着させる。

Fig. 2 に試料周辺図を示す。試料は銅製のcold head にインジウム半田で固定し、熱的に接触させる。他端には温度差用ヒーターとなる金属皮膜チップ (1K Ω) をGE7031ワニスで接着する。cold head 側のP₂点の温度T₂は、直径127 μ mのAu+0.07at%Fe-クロメル熱電対を用いて測定し、ヒーター側のP₁点の温度T₁は73 μ mのクロメル-Au+0.07at%Fe-クロメル差動熱電対をもちいて、T₁=T₂+dTにより求める。熱的接触にはGE7031ワニスを用いた。輻射による熱流入、熱損失を少なくするため、銅製の輻射シールドをcold head 熱的に接触させた。測定用のリード線と熱電対の熱侵入を軽減させるためcold head でサーマル・アンカーをとってある。雰囲気気体による対流と熱伝導を防ぐため、試料室を油拡散ポンプで10⁻⁶Torr程度まで真空に引いた後で、測定を行った。cold head の温度は、校正済みのシリコンダイオード温度計 (使用温度範囲1~300K) を用いて測定した。

測定装置は液体Heクライオスタット、デジタルボルトメータ、定電流源、温調器、パソコン等をGPIBケーブルで接続した熱伝導率測定装置を用いて、5K~20Kの温度範囲で測定を行った。測定はヒーターに、P₁、P₂間の温度差dTが0.3~1.0K 程度となるように一定電流を流し、(1)式をもちいて熱伝導率を求めた。このクライオスタットの冷却能力は、6K程度であり、それ以下の温度はキニーポンプで液体Heを減圧し、4.8K程度まで冷却可能であった。

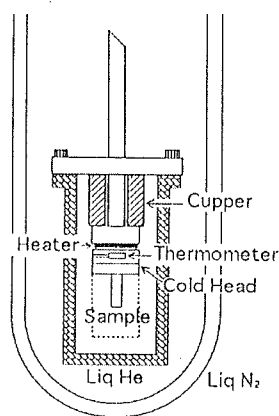


Fig.1 Scheme of the cryostat.

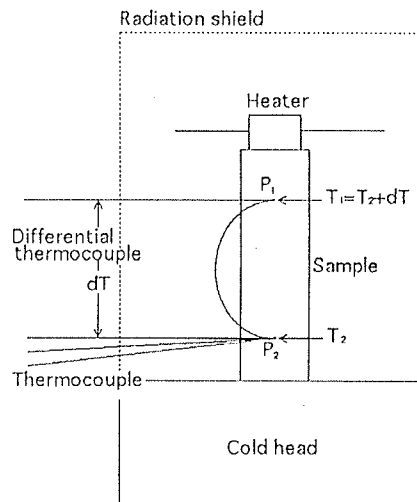


Fig.2 Scheme of the experimental set up on the cold head.

測定結果と装置の評価

I. ステンレス(SUS316)の測定結果

NISTにより較正されているステンレス標準試料(SRM1460)により装置の評価を行ったかったが、サイズに問題がありSUS316(長さ20mm, 直径3mm)を測定した。評価の方法は、SUS316をHe冷凍機で、10K以上の熱伝導率 κ を測定し、クライオスタットのデータと比較した。Fig. 3 にクライオスタットとHe冷凍機で測定した熱伝導率 κ を示す。△印は、クライオスタットで dT を約0.3Kとして測定したものである。これはHe冷凍機のデータ(●印)と比べ最大25%程度の違いがあり、かなりバラついた値をとっている。これは dT が小さすぎ温度勾配が安定しないためと考えられる。また、10K以下では熱電対の安定が悪くなるのも原因のひとつである。

II. 酸化物超伝導体($\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$)の測定結果

研究室で作製した $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ (T_c , end=21K, 長さ20mm, 厚さ2.6mm, 幅3.05mm)を同様に測定した。Fig. 4 に測定結果を示す。これは、 dT を約1Kとして測定したものである。He冷凍機のデータとは約10%の違いで一致した。このことから、 dT は約1Kが適していると考ええる。

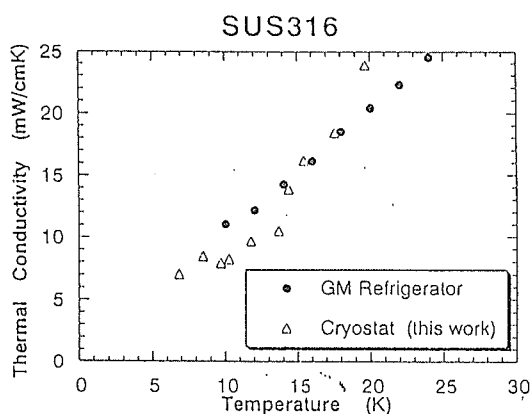


Fig.3 Thermal conductivity of SUS316

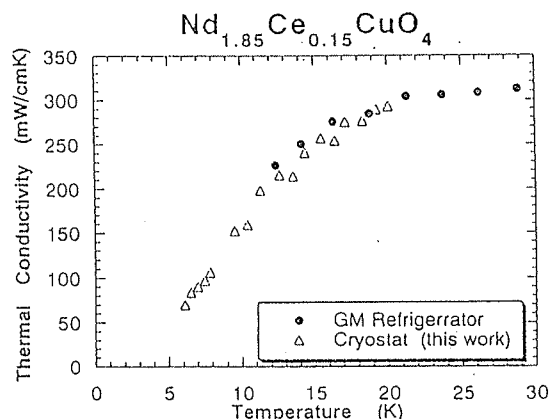


Fig.4 Thermal conductivity of $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$

まとめ

液体Heクライオスタットを用いて、5~20Kの温度範囲で固体の熱伝導率 κ を測定するシステムを開発し、2種の試料において測定を行った。SUS316では最大25% He冷凍機のデータと異なり、 $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$ では10%以内で一致した。

以上より、 dT は小さすぎると熱電対の安定が悪く、測定誤差も大きくなる。しかし、大きすぎると試料の温度が上がり、特に低温ではcold headの温度の安定にも影響してくる。また、熱電対と試料の熱接触や零接点、端子間距離 L の測定誤差も熱伝導率の測定精度に影響を及ぼす。これらに十分注意をすれば、さらに精度のよい熱伝導率 κ の測定が可能になるであろう。

今回作製したクライオスタットの冷却能力は常圧で6Kであったが、より低温を実現するためには、次のことが考えられる。1つは、リード線と熱電対のサーマル・アンカーのとり方である。この装置ではcold headでとっているため、室温からの熱流入がcold head温度に、大きく影響している。これらの線類を液体He中に出し、試料室に戻すというような手を講じれば、より低温が可能となる。しかし、真空漏れや熱電対の強度の問題もあり、容易なことではない。もう1つは、液体Heとcold head間の熱リークを大きくすることである。この装置では9本の銅柱(長さ20mm, 直径5mm)により、フランジとcold head間を接触させている。1本で9K、9本(限界)で6Kとなったので有効な方法ではあるのだが、熱リークが大きすぎると高温側の測定時に液体Heを多量に蒸発させてしまうという問題もある。この2つの点を改良すれば、減圧して4.2K以下での測定が可能になると考える。