修士論文 (1994年度)

SQUIDを用いた高圧下におけるdHvA効果の測定系の開発

東北大学大学院理学研究科物理学第二専攻

木村純子

目次

第1草	序論
§1-1	重い電子系
§1-2	Ceモノプニクタイド
§1-3	dHvA効果
§1-4	本研究の目的
第2章	測定系
§2-1	測定原理
2-1-1	rf SQUIDの原理
2-1-2	rf SQUIDを用いたdHvA効果測定法の原理
§2-2	測定装置
2 - 2 - 1	加圧装置
2-2-2	冷却装置
2-2-3	⁴He温度での測定系
2-2-4	³ He温度での測定系
§2-3	圧力較正
2-3-1	室温での圧力較正
2-3-2	低温での圧力較正
第3章	実験結果と考察
§3-1	ピックアップコイルの出力テスト
3-1-1	巻数
3-1-2	コイル間隔
3-1-3	ピックアップコイルとサンプル、超伝導マグネットの位置関係
§ 3-2	圧力下でのdHvA効果の測定
§3-3	抵抗値による出力の変化
·§3-4	CeSbのdHvA効果の測定(常圧)
第4章	まとめと今後の課題
参考文献	
謝辞	

木村 純子

第1章 序論

§1-1 重い電子系

「重い電子系」の研究は、1975年CeAl₃の低温でのC/Tが1600mJ/molK²の大きな値に増加する¹⁾ことが発見されたころから始まる。格子振動が無視できる低温では、非磁性の金属の比熱Cは伝導電子からの寄与だけで与えられ、

$$C = \gamma T$$

$$\gamma = \frac{1}{3} \pi^2 k_B^2 D(\varepsilon_F) \qquad (1 - 1 - 1)$$

となる。ここで、 γ は電子比熱係数、Tは絶対温度、 k_{B} はボルツマン定数、 D(ϵ_{F})はフェルミ面における単位体積あたりの状態密度であり、フェルミ面を 球と仮定すると、

$$D(\varepsilon_{\rm F}) = \frac{k_{\rm F} m^* V}{\pi^2 \hbar^2}$$
(1-1-2)

で与えられる。ここで、 k_{F} はフェルミ波数、m*は有効質量、 $h=h/2\pi$ (hはプランク定数)である。Cu、Agなどの通常の金属では、電子比熱係数は1mJ/molK²程度であり、CeAl₃の大きなC/Tが電子比熱係数であると仮定すると、その値はCu、Agなどの1000倍以上の値をとることになる。電子比熱係数が大きいことは式(1-1-1)、式(1-1-2)から有効質量が大きいことに相当する。

CeAl₃の発見以来、さまざまなCe化合物やU化合物において巨大なC/Tが観測 され、これらの物質群は「重い電子系」と呼ばれるようになった。「重い電子 系」の発現にはf電子が大きな影響を及ぼしていると考えられている。f電子は 固体中でも自由原子状態を良く保持しているが、周囲の原子の波動関数との混 成(金属的物質であれば、伝導電子の波動関数との混成)もわずかながら存在 する。(4f電子よりも5f電子の方がこの混成は大きい。)これが原因となって m*が大きくなり、動きにくくなっていると考えられている。

§1-2 Ceモノプニクタイド

CeモノプニクタイドとはCeX(X; プニクトゲン=N、P、As、Sb、Bi)で表され、全てNaCl型の簡単な結晶構造をとる物質群である。Ce原子は1s² 2s² 2p⁶ 3s² 3p⁶4s²3d¹⁰ 4p⁶5s²4d¹⁰ 5p⁶6s²5d 4f¹の電子配置をとるが、4f電子がないこと以外、

Ceと同じ電子配置をもつLaとの化合物と比べることにより、結晶中でのCeの4f電子のふるまいを抽出して研究することができる。Ceモノプニクタイドは圧力を加えて格子定数を減少させると、興味深い物性を示す。その一例としてCePとCeSbに関して述べる。

図1-1に1976年A.Jayaramanらが報告したCePの体積の圧力変化を示す²。V₀ は大気圧下での体積を表す。この図に示されるように、CePは10GPa(1GPa=10 kbar)近傍で体積が急激に減少する。LaPは10GPa以上の圧力をかけても体積の 急激な減少は見られず、CePの体積の激減は4f電子にかかわる電子相関が原因 であると考えられる。結晶構造は測定された圧力範囲ではNaCl型から変化しな いので、大気圧下で半金属だったCePが10GPa近傍の圧力で金属に変わり、金 属結合によって体積が急激に縮小したと解釈されている。



図1-1 CePの体積の圧力変化²⁾

また図1-2にN. Mônらによって報告されたCePの電気抵抗の圧力依存性を示 す³⁾。大気圧下では、電気抵抗は10K付近に鋭いピークをもつ。図1-3に示した CePの磁気相図⁴⁾から、このピークは常磁性から反強磁性への転移点(ネール 点)に相当する。圧力をかけるとこのピークの形は大きく変化し、6GPa以上の 圧力下では温度の上昇とともにゆるやかに抵抗が増大する単純な金属的ふるま いに移行する。これは図1-1に示した体積の急激な減少が起こる圧力と関連し、 CePは10GPaの近傍の圧力で、磁性から非磁性へ、半金属から金属へと転移し ていると考えられる。



図1・2 CePの電気抵抗の圧力依存性³⁾ (b)高圧側 8GPaまで



図1-3 CeP(左)及びCeAs(右)の磁気相図"

図1・4に示した磁気相図⁵からわかるように、CeSbは温度、磁場によって多数の相が現れる複雑な磁気構造をもつ。圧力効果は、Y.Okayamaらによって電気抵抗とホール効果が測定された。図1・5にCeSbの電気抵抗の圧力依存性を示す⁶⁾。圧力の増加にともなって、電気抵抗には25Kから30Kの間に常圧で観測されなかったピークが現れ、変化していく。このふるまいを解明するために、更に低温、高磁場を組み合わせて、圧力下での物性測定を行うことは興味深い。



図1.4 CeSbの磁気相図ジ

- 319 -

木村 純子



図1-5 CeSbの圧力下での電気抵抗⁶⁾ (a) 2.0GPa以下 (b)高圧側 8GPaまで

§1-3 dHvA効果⁷⁾

フェルミ面に関する情報を引き出す最も有効な実験的手段はdHvA効果であ る。dHvA効果は磁束密度の逆数に対して一定の周期で磁化が振動する現象で、 測定方法としては変調磁場法が一般的である。振動数を測定することによりフェ ルミ面の磁場に垂直な極値断面積が求められ、磁場方向を変えることによりフェ ルミ面のトポロジーを求めることができる。更に温度変化の測定によって準粒 子のサイクロトロン有効質量が求められ、磁場変化の測定から、準粒子の寿命 についての情報が得られる。以下にdHvA効果について簡単に述べる。

電子は磁束密度B中ではローレンツ力をうけ、サイクロトロン運動をする。 それによって電子はk空間ではランダウチューブと呼ばれる円筒面上にのみ状 態をもち、Onsagerの関係式

$$S = (r + \gamma) \frac{2\pi eB}{\hbar c}$$
(1-3-1)

を満たす。ここでSは磁場に垂直な平面で切ったランダウチューブの断面積、 \mathbf{r} は整数である。 γ は位相定数で自由電子の場合 $\frac{1}{2}$ である。絶対零度では、フェルミ面内にある状態だけが電子によって占められ、磁場中でのランダウチューブ

は図1-6のような状態にある。



図1-6 ランダウチューブ"

あるrの値をとるランダウチューブに注目する。式(1-3-1)で与えられるように、磁場が増大するとランダウチューブの断面積は大きくなる。最も大きな断面積をもつランダウチューブがフェルミ面と接するところまでふくらむと、フェルミ面の外には電子は存在できないため、チューブにあった電子はフェルミ面内の他のチューブに移動しなければならない。その電子の移動により熱力学的ポテンシャルが振動し、熱力学的ポテンシャルの一次微分である磁化も振動する。振動の周期は、rのランダウチューブがフェルミ面を通過してから、r-1のランダウチューブがフェルミ面を通過するまでに変化した磁場で与えられる。式(1-3-1)より、周期は

$$F = \frac{1}{\Delta\left(\frac{1}{B}\right)} = \frac{c\hbar}{2\pi e}S$$
 (1-3-2)

となる。FをdHvA振動数という。熱力学的ポテンシャルの振動項はLifshitz -Kosevichによって

$$\widetilde{\Omega} = \left(\frac{e}{2\pi c\hbar}\right)^{3/2} \frac{2k_{B}B^{3/2}V}{S''} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\exp\left(-2\pi^{2}pk_{B}x / \beta B\right) \cdot \cos\left(\frac{p\pi g}{2}\frac{m}{m_{0}}\right)}{p^{3/2}\sinh\left(2\pi^{2}pk_{B}T / \beta B\right)} \times \cos\left(2\pi p\left(\frac{F}{B} - \frac{1}{2}\right) \pm \frac{\pi}{4}\right)$$
(1-3-3)

木村 純子

で与えらる。ここで

$$S'' = \left| \frac{\partial^2 S}{\partial k_z^2} \right|_{k_z=0}, \beta = \frac{e\hbar}{m^* C}, x = \frac{\hbar}{2\pi k_B \tau} : \tilde{\tau} + \tilde{\tau} + \tilde{\tau}$$

$$\tau : 準粒子の寿命$$

である。磁場に平行な方向の磁化の振動成分は熱力学的ポテンシャルのB による一次微分で与えられるから、

$$\begin{split} \widetilde{\mathbf{M}} &= -\left(\frac{e}{2\pi\hbar}\right)^{3/2} \frac{2Fk_{B}TV}{\left(2\piBS''\right)^{1/2}} \sum_{p=1}^{\infty} \frac{\exp\left(-2\pi^{2}pk_{B}x / \beta B\right) \cdot \cos\left(\frac{p\pi g}{2}\frac{m}{m_{0}}\right)}{\sqrt{p}\sinh\left(2\pi^{2}pk_{B}T / \beta B\right)} \\ &\times \sin\left(2\pi p\left(\frac{F}{B} - \frac{1}{2}\right) \pm \frac{\pi}{4}\right) \end{split} \tag{1.3-4}$$

となる。

§1-4 本研究の目的

重い電子状態は、f電子と伝導電子との混成効果に起因して生ずると考えら れている。混成の程度は圧力を加え、格子定数を変化させることにより制御で き、CePのように圧力下で非常に興味深い物性を秘めている物質は数多い。そ の混成効果は、伝導電子の有効質量及びフェルミ面の大きさや形状に反映され る。フェルミ面を調べる最も有効な実験的方法は、dHvA効果の測定である。 以上のことから、本研究では高圧下におけるdHvA効果の測定に着目した。

高圧下におけるdHvA効果の測定で問題となるのは、圧力の生成に必要なマ イクロボンベの材質がCuBeであるため、従来の変調磁場を用いたdHvA効果測 定法では渦電流により極低温で発熱してしまうことである。本研究では、この 問題を解決するため、変調磁場を必要としないSQUIDによるdHvA効果の測定 法を用いた。このSQUIDによるdHvA効果の新しい測定法は、青野らによって 開発が始められた^{8,9}。青野の結論は、

- 1) SQUIDへの磁束の入力回路には抵抗が必要である。
- 2) dHvA 効果のシグナルの出力は、ピックアップコイルの巻数に関係して大き く変化する。

の2点である。1)に関しては§2-1-2で詳しく述べる。2)に関しては図1-7⁸⁾ に巻数40ターンと20ターンのピックアップコイルのシグナルの出力を示す。こ の図から巻数は20ターンが適当であると考えられた。また、青野は変調磁場法 とSQUIDを用いた方法で観測されたdHvA効果のFFTスペクトルを比較すること により、SQUIDを用いた方法では、巻数が数十ターンの少なさで、何千ターン も巻数が必要な変調磁場法のピックアップコイルと同程度の感度が得られるこ とも示した。即ち、SQUIDによるdHvA効果の測定法は、変調磁場を用いない ため極低温での実験に適しているばかりでなく、変調磁場法に比べコンパクト に構成でき、セル内の体積が制限される圧力発生装置にも有利であることがわ かる。

しかし、回路に挿入する抵抗値やピックアップコイルの巻数などの入力回路 の最適条件は明らかにはされておらず、測定温度領域も4.2Kのみにとどまって いた。本研究では、入力回路の最適条件を探り、4.2K以下での測定を可能にし て、圧力下での実験的手法を得て、極低温、高圧下におけるdHvA効果の測定 系を開発することを目的とする。



磁場掃引速度 =7.29 mT/s

図1-7 ピックアップコイルの巻数と出力電圧⁸⁾

木村 純子

第2章 測定系

§2-1 測定原理

2-1-1 rf SQUIDの原理¹⁰⁾

一般に弱接合をもつ超伝導リングをSQUID(The Superconducting QUantum Interference Device)と呼ぶ。弱接合とは超伝導的に弱く結合している部分で、 超伝導体ではないがトンネル効果により位相差に応じた超伝導電流が流れる接 合のことである。弱接合には、一つの超伝導体の上に酸化膜を作りその上に更 に超伝導体を蒸着するSIS型や、SIS型において酸化膜の代わりに常伝導金属で 膜を作るSNS型、平らな超伝導体の表面に先を細くした超伝導線を軽く押し付 けるポイントコンタクト型などさまざまな種類がある。SQUIDは弱接合の数に よって分けられる。接合が一つのSQUIDをrf SQUIDと呼び、測定に高周波電流 を用いる。2つ以上の弱接合をもつSQUIDをdc SQUIDと呼び、測定に直流を用 いる。本研究の測定装置に用いられるのはrf SQUIDである。このセクションで はrf SQUIDの原理について述べる。



図2-1-1 rf SQUIDの概念図

rf SQUIDの概念図を図2-1-1に示す。電子は超伝導体中ではクーパー対を 作っており、これらの対は一価の波動関数で記述できる1つの量子状態にある。 クーパー対の波動関数を、

$$\psi = \sqrt{\rho_s} e^{i\varphi(r)} = \sqrt{\rho_s} e^{\frac{\rho_s}{r}}$$
(2-1-1)
 ρ_s : クーパー対の密度 $\varphi(r)$: 波動関数の位相
 \mathbf{p} : 一般化運動量 \mathbf{r} : クーパー対の重心の位置

とおくと式 (2-1-1)が一価関数であるためには、図2-1-1で超伝導リングの周り の位相の変化 $\Delta \varphi(\mathbf{r})$ が2 π の整数倍にならなければならない。磁場 (**B**, rot**A** =**B**) 中でのクーパー対の一般化運動量は、超伝導電流密度を $\mathbf{j}_s = -2|\mathbf{e}|\rho_s \mathbf{v}_s(\mathbf{v}_s; \partial - n) - \partial \mathbf{v}_s$ 対の重心の速度)とすると、

$$\mathbf{p} = 2\mathbf{m}\mathbf{v}_{s} - 2|\mathbf{e}|\mathbf{A} = -\frac{\mathbf{m}}{|\mathbf{e}|\rho_{s}}\mathbf{j}_{s} - 2|\mathbf{e}|\mathbf{A}$$

と与えられるから、位相の変化は、

$$\Delta \varphi(\mathbf{r}) = \oint \frac{\mathbf{P}}{\hbar} \cdot d\mathbf{l} \qquad (\mathbf{d} : 積分径路に沿った線要素)$$
$$= -\frac{\mathbf{m}}{|\mathbf{e}|\rho_{s}\hbar} \oint \mathbf{j}_{s} \cdot \mathbf{d} - \frac{2|\mathbf{e}|}{\hbar} \oint \mathbf{A} \cdot \mathbf{d} \mathbf{l} = 2\pi \mathbf{n} \qquad (2 \cdot 1 \cdot 2)$$

となる (nは整数)。ここでストークスの定理

$$\oint \mathbf{A} \cdot d\mathbf{I} = \iint \operatorname{rot} \mathbf{A} \cdot d\mathbf{S} = \iint \mathbf{B} \cdot d\mathbf{S} = \phi$$

s:超伝導リングの囲む面積 ϕ :超伝導リングを貫く磁束

を用いると式 (2-1-2)は

$$\phi' = \phi + \frac{m}{2\rho_s e^2} \oint \mathbf{j}_s \cdot d\mathbf{l} = n\phi_0 \qquad (2 \cdot 1 \cdot 3)$$

となり、フラクソイド**¢'**の量子化を表す。ここで、

$$\phi_{0} = \frac{h}{2|e|} (=2.068 \times 10^{5} \text{Wb}) : 磁束量子,$$

$$\phi' = -\frac{h}{2|e|} \Delta \phi : フラクソイド,$$

である。積分を弱接合のある超伝導リングに実行する。式 (2-1-3)で j_sを含む 線積分のうちゼロでないのは、弱接合の部分の寄与だけである。弱接合部を図 2-1-2のように考え、接合部は一定の電流j_sが流れていると仮定すると、式 (2-1-2)は

$$\Delta \varphi(\mathbf{r}) = -\frac{2|\mathbf{e}|}{\hbar} \phi - \frac{\mathbf{m}}{\rho_{s}|\mathbf{e}|\hbar} \oint_{-\mathbf{a}}^{\mathbf{a}} \mathbf{j}_{s} \cdot d\mathbf{l} = -\frac{2\pi\phi}{\phi_{0}} - \frac{2\mathrm{ma} \mathbf{j}_{s}}{\rho_{s}|\mathbf{e}|\hbar} = 2\pi\mathbf{n} \qquad (2 \cdot 1 \cdot 4)$$

となる。第一項はリングを貫く磁束による位相差、第二項は超伝導電流による 弱接合の両端の位相差である。第二項を、

$$\theta = -\frac{2\mathrm{ma}\,\mathbf{j}_{\mathrm{s}}}{\rho_{\mathrm{s}}|\mathbf{e}|\mathbf{h}} = \theta_{2} - \theta_{1} \tag{2-1-5}$$

とおくと、式(2-1-4)は

$$\frac{2\pi\phi}{\phi_0} -\theta = 2\pi n \qquad (2 \cdot 1 \cdot 6)$$

となる。また、弱接合の左右での波動関数を、それぞれ $\psi_L = \sqrt{\rho_s} e^{i\theta_L}$ 、 $\psi_R = \sqrt{\rho_s} e^{i\theta_2}$ とし、弱接合部では波動関数は指数関数的に減衰すると考えると、 弱接合部の波動関数は

$$\psi = \psi_{L} e^{-\frac{\chi+2}{\lambda}} + \psi_{R} e^{\frac{\chi-2}{\lambda}}$$

で与えられる(λ は弱接合に関する定数)。弱接合部を流れる超伝導電流は、 J_s= σ j_s (σ は弱接合の断面積)、 j_s= $-2|e|\frac{\hbar}{2(2m)i}(\psi * \nabla \psi - \psi \nabla \psi *)$ で与えられるから、

$$J_{s} = -J_{c} \sin \theta = -J_{c} \sin \left(\frac{2\pi\phi}{\phi_{0}}\right) , \quad J_{c} = \frac{2|e|\hbar\sigma\rho_{s}}{m\lambda}e^{-\frac{2\pi}{\lambda}} \qquad (2-1-7)$$

となる。J。は臨界電流と呼ばれ、弱接合の性質のみに依存する。





-326 -

次に外部から磁場を加えたときの超伝導リングの応答について述べる。外部 から加えた磁束を ϕ_{ext} 、rf SQUIDの自己インダクタンスをLとすると、超伝導リ ングを貫く磁束は、

$$\phi = \phi_{\text{ext}} + L J_{\text{s}}$$

式(2-1-7)を用いると

$$\phi + LJ_c \sin\left(\frac{2\pi\phi}{\phi}\right) = \phi_{ext} \qquad (2 \cdot 1 \cdot 8)$$

となる。式(2-1-8)を微分すると

$$\frac{\mathrm{d}\phi}{\mathrm{d}\phi_{\mathrm{xt}}} = \frac{1}{1 + \frac{2\pi \mathrm{L}\,\mathrm{J}_{\mathrm{c}}}{\phi_{\mathrm{0}}} \mathrm{cos}\left(\frac{2\pi\phi}{\phi_{\mathrm{b}}}\right)} \tag{2-1-9}$$

即ち^{2πLJ}。が特徴的なパラメータとなって、超伝導リングを貫く磁束の、外部 磁束に対する応答が決まる。以下、 $\frac{2\pi LJ}{\Phi} = \beta$ とおく。図2-1-3に、横軸を外部 から加えた磁束、縦軸を超伝導リングを貫く磁束として代表的な例を示した。 (a)は β≪1の場合で、超伝導が弱いことに相当し、超伝導リングを貫く磁束は ほぼ外部磁束に等しい。臨界電流が小さく、遮蔽電流がほとんど流れないうち に超伝導が壊れるため、外部磁束は比較的自由に超伝導リングの中に入る。(b) は逆にβ≫1の場合で超伝導が強いことに相当する。このときは、臨界電流が 大きいため、外部磁束が大きくなっても遮蔽電流が多く流れて、磁束はなかな か超伝導リングの中に入れない。(c)がrf SQUIDとして用いられている状態で、 点OからPまでは(a)(b)と同じく、外部磁束の増加とともにリングの表面に遮蔽 壊れる不安定な領域である。式(2-1-8)、式(2-1-9)より点Pから点Oは外部磁 束が増加してもリングを貫く磁束が減少する(傾きが負になる)が、エネルギー は極大となり実現しない¹⁰⁾。実際はフラクソイドの量子化から、点Pに達する と常伝導電流が流れてリングの中にのだけ磁束が入りこんだ後、再び超伝導に 戻る。これがフラックスジャンプで図の点PからOに相当し、rf SOUIDに利用さ れる。外部磁束が減少するときも同様で、例えばS'からR'でフラックスジャン プが起こる。

木村 純子



図2-1-3 超伝導リングを貫く磁束φの外部磁束φ_{ext}に対する応答

rf SQUIDは、感度を上げ、操作を容易にするため、高周波電流をタンク回路 (LC回路)に流して用いる。タンク回路を図2-1-4に示す。タンク回路は、相互 インダクタンスMでrf SQUIDとつながっているコイル(自己インダクタンス L_r)とコンデンサ(容量 C_r)とから成る。



図2-1-4 タンク回路

rf SQUIDに外部から加えられる磁束 ϕ_{ext} は、タンク回路からくる磁束 ϕ_{fr} と測りたい磁束(即ちサンプルに起因する磁束) ϕ_{s} の和 $\phi_{ext} = \phi_{fr} + \phi_{s}$ で与えられる。 タンク回路に流す電流を $J_a = J_{fr} \sin (\omega t)$ 、タンク回路のQ値をQ、rf SQUIDとタン ク回路の相互インダクタンスをMとすると ϕ_{ext} は、

$$\phi_{\text{ext}} = QMJ_{\text{d}} + \phi_{\text{s}} = QMJ_{\text{f}} \sin(\omega t) + \phi_{\text{s}} \qquad (2 \cdot 1 \cdot 10)$$

となる。まず、 ϕ_s が一定のとき、タンク回路に流す高周波電流の振幅J_aとタン ク回路にかかる電圧U_aの関係を調べる。式(2-1-10)で ϕ_s を ϕ_b に固定すると、 図2-1-3(c)では、 ϕ_{ext} は点Xを基準として振幅QMJ_aで時間的に振動する。そこ からをJ_aを大きくしていくと、超伝導リングの臨界電流に到達するまでは振動 の振幅は増加し、図2-1-3(c)から超伝導リングを貫く磁束 ϕ の振幅も増える。 またタンク回路にかかる電圧U_aは、

$$U_{\rm ff} = QL_{\rm ff} \frac{dJ_{\rm d}}{dt} = QL_{\rm ff} \omega J_{\rm ff} \cos\left(\omega t\right)$$

であるから、 J_{rr} に比例する。 J_{rr} が増えることにより ϕ_{ext} が増え、超伝導リングに 流れる超伝導電流が臨界電流に達したとき、 U_{rr} は極大値をとる。そのとき ϕ_{ext} はXR、XQに達し、フラックスジャンプが起こりヒステリシスによりrf SQUID はエネルギーを失う。損失分のエネルギーはタンク回路から供給されるが、損 失分のエネルギーを補うまではJ₄が増えても、U₄は一定値をとる。次に Q₆を $(1+\alpha)\phi_{0}$ ($\alpha < \frac{1}{2}$) に固定する。図2-1-3(c)では点Yを基準にとることに相当 する。このときはフラックスジャンプが起こるのはφ_{en}がYRに達したときであ り、 $\phi_s \epsilon \phi_n$ に固定したときよりも J_r は小さい。また $\phi_s \epsilon_{\neg 2}^3 \phi_n$ に固定すると、LZが基準となり、 ϕ_{ax} がZRに達したときフラックスジャンプが起こる。 ϕ_s をさら に大きくして $(1+\alpha')\phi_{\alpha}$ $(\frac{1}{2} < \alpha' < 1)$ に固定すると、点Wが基準となる。ところ が \$\phi_m が WR に 達し フラックスジャンプが 起こっても WRSW'の ループまではよい が、そのJ₄ではSまで到達することができず、ヒステリシスループが完結しな い。従って、この場合は点Wと同じのの点W'を基準にとる。するとフラック スジャンプが起こるのは \$

\$< りもJ。は小さい。またエネルギーの観点から見ると、点Xを基準にとったとき には最初のフラックスジャンプで(XR、XO')ヒステリシスループ2つ分のエネ ルギーを失うのに対して点YやW'などを基準にとったときには一度に2つのヒ ステリシスループをたどることはない。点Zを基準にとった場合は最初のフラッ クスジャンプはヒステリシスループ1つ分だが次のフラックスジャンプはヒス テリシスループ3つ分である。これを、横軸J,、縦軸U,で示したのが図2-1-5の ステップパターンとなる。



図2-1-5 ステップパターン

ステップパターンをもとにして今度はJ.を一定にしたときのU.の極大値U. (max)を \$

\$

の関数として求める。まず J, を図2-1-5の2から3の間(例えば直線) DEF)に固定する。考える領域は図2-1-5のA,B,C,C,B,A,である。A,A,、B,B,、 C_1C_2 の水平部分の ϕ_s は図2-1-3(c)に戻るとそれぞれ $\phi_s = \phi_s$ (基準 点X)、 $\phi_s = (1 + \alpha)\phi_0 \quad \alpha < \frac{1}{2}$ (基準 点Y)、 $\phi_s = \frac{3}{2}\phi_0$ (基準 点Z)であるから $\phi_s \dot{m}\phi_c \dot{m}$ ら $\frac{3}{2}\phi_0$ まで増えるにつれてU_r(max)はA₁A₂からC₁C₂へ(4から2へ)と減っていく。 更に ϕ_s を増やし $\phi_s = (1+\alpha')\phi_0$ ($\frac{1}{2} < \alpha' < 1$)となると点Yを基準にしたときと同じ ようなふるまいになるから再び $U_r(max)$ は増えていく。 $\phi_s = 2\phi_s \sigma U_r(max)$ は最大 となり、 **q**_s = **q**_bのときの値と等しくなる。それ以上**q**_sを増やしても同じパター ンが繰り返される。それが図2-1-6の一番下の波形(実線)である。またJ.を5 から6の間(例えば直線D'E'F')に固定すると、 A_2A_3 、 B'_2B_3 、 C'_2C_3 の ϕ_s はそれぞ A,A,のU,(max)とA,A,のU,(max)の値は同じだから、この場合図2-1-6の下から 二番目の波形(一点鎖線)となる。三角波の波高を高くすることがrf SOUIDを 高感度で用いることにつながるのでJ.を固定する位置には注意を要する。J.= 1,4,…では三角波が発生せず、1<J₄<2などでは三角波の波高が低くなる。こ こでJ_rを2から3の間、あるいは5から6の間としたのはそのためである。



図2-1-6 三角波パターン

- 331 -

三角波がff SQUIDの測定原理の基本となるが、シグナルを線形化しわかりや すく取り出すために、常に φ_sが三角波の谷にくるように外部のエレクトロニク スを用いてフィードバックをかけることが多い。その回路図を図2-1-7に示す。 タンク回路への入力信号は高周波と低周波の変調信号を重ねたものを用いる。 タンク回路から出てきた高周波の信号は増幅され検波されてから低周波の信号 と同期検波して直流にされ、タンク回路にフィードバックをかけるのに用いら れる。フィードバック電流を参照抵抗に入れ、電圧として読みとったものが出 力電圧である。 φ_sが変化すると、三角波の谷に戻すためのフィードバック電流 も変化することから φ_sが測定できる。



図2-1-7 フィードバック回路を含むrf SQUIDの測定回路

2-1-2 **rf SQUID**を用いたdHvA効果測定法の原理

前節まではrf SQUIDの動作原理を述べてきた。ここでは、 ϕ_s としてdHvA効果のシグナルを考え、rf SQUIDを用いた測定法を説明する。

図2-1-4でφ_sは、ピックアップコイルを通じてrf SQUIDに伝達される。しか し一般に磁化の非振動成分の磁場変化の方が磁化の振動成分(即ちdHvAシグ ナル)の磁場変化よりも大きいため(図2-1-8)、超伝導磁束伝達トランスで は、dHvAシグナルを検出できる程感度を上げられない。そこで青野は超伝導 磁束伝達トランスに微小な抵抗Rを入れることを考案した。抵抗を入れること によって、バックグラウンドの磁化の寄与を落とすことができる。超伝導磁束 伝達トランスに微小な抵抗Rを入れたトランスを図2-1-9に示す。



図2-1-8 dHvA効果が観測されるサンプルの磁化の例¹¹⁾



図2-1-9 超伝導磁束伝達トランスにRを入れたトランス

図2-1-9で二つのコイルのうち左側のコイルがピックアップコイルで、中に サンプルが入っている。ピックアップコイルとrf SQUIDの入力コイルとの接続 部の途中に微小な抵抗Rを入れる。サンプルに磁場を掃引していくとサンプル の磁化が変動し、ピックアップコイルを貫く磁束が変化する。回路ではピック アップコイルを貫く磁束 opの変化を妨げるように電流Iが流れ、rf SQUIDの入 力コイルとrf SQUIDとの相互インダクタンスM_sを通じて op_s = M_s I という磁束 がrf SQUIDに伝達される。このときの回路の方程式は、近似的に

$$(L_{p} + L_{s})\frac{dI}{dt} + RI = -N_{p}\frac{d\phi_{p}}{dt}$$
(2-1-11)

で与えられる。L_pはピックアップコイルのインダクタンスで、bをコイルの長 さ、μ_oを真空の透磁率、N_pをコイルの巻数、Sをコイルの断面積とすると

- 333 -

$$L_{p} = \frac{\mu_{0} N_{p}^{2} S}{b}$$
 (2-1-12)

である。rf SQUIDが既成品のため、相互インダクタンスM_sは変化しない。回路 に流れる電流Iを最大にすることが感度良く測定できる条件である。ここで磁 束伝達率を

$$\mathbf{K} = \frac{\mathbf{\Phi}_{s}}{\mathbf{\Phi}_{s}} \tag{2-1-13}$$

と定義すると、シグナルの振幅はκに比例するから、このκを最大にする条件 を求める。

まずR=0の場合を考える。抵抗がない場合は、通常の超伝導閉ループと同じ 扱いができ、磁束伝達率は

$$\kappa = \frac{M_{s}N_{p}}{L_{p}+L_{s}} = \frac{M_{s}N_{p}}{\frac{\mu_{0}N_{p}^{2}S}{b} + L_{s}}$$
(2-1-14)

となる。他の条件を一定にするとピックアップコイルの長さが長いほど、また 断面積が小さければ小さいほど、rf SQUIDの感度は良くなる。巻数に関しては

$$N_{p} = \sqrt{\frac{bL_{s}}{\mu_{0}S}}$$

でκは最大となる。典型的な値としてb=3mm、ピックアップコイルの直径2mm、 Ls=1μHを代入すると最適な巻数は約28ターンとなる。

次にR≠0の場合を考える。式(2·1·11)で ϕ_p にdHvA効果のシグナルを代入 する。 ϕ_p =BS=(μ_0 H+M)Sにおいて、磁化Mを非振動成分 \overline{M} と、振動成分 \widetilde{M} と に分けると(M= \overline{M} + \widetilde{M})、式(2·1·11)の右辺は、

$$-N_{p}\frac{d\phi_{p}}{dt} = -N_{p}(\mu_{0}\frac{dH}{dt} + \frac{d\overline{M}}{dt} + \frac{d\overline{M}}{dt}) S$$

となる。第一項は磁場掃引速度が一定なので定数、第二項、第三項が磁化の時間変化である。磁化の非振動成分の時間変化はほとんど一定であると考えると、 第三項の磁化の振動成分の時間変化(dHvA効果のシグナル)がφ_pの時間変化

- 334 -

に最も寄与することになる。つまり微小な抵抗を挿入することにより磁化の振 動成分を取り出すことができ、シグナルの振幅を大きくとれるのである。

Ñに式 (1-3-4) を代入して、式 (2-1-11) を解析的に解くことはできない。 そこで簡単のためにシグナルの周期を一周期という短い間に限り、1/Bの周期 ではなくBの周期で振動していると仮定して最適条件を計算する。ピックアッ プコイルに生じる磁束を $\phi_{\mu} = C_i e^{i\omega t}$ 、回路に流れる電流を $I = C_2 e^{i\omega t}$ とおく (C_1 は 実定数、 C_2 は複素定数)。ここでdHvA周波数Fがわかっているとき、ある磁場 B_1 を決めて一周期後の磁場 B_2 を求め、磁場が B_1 から B_2 まで変化するのにかかっ た時間の逆数をωとする。例えば本研究で用いられたパラメータから求めた最 大のωは、 $B_1=3T$ 、F=1200T、磁場掃引速度8mT/sのときの1Hz、最小のωは $B_1=$ 7T、F=100T、磁場掃引速度0.8mT/sのときの1.5×10³Hzである。 ϕ_p 、Iを 式 (2-1-11) に代入して C_2 の絶対値を求めると

$$|C_{2}| = \frac{N_{p}\omega|C_{1}|}{\sqrt{(L_{p} + \dot{L}_{s})^{2}\omega^{2} + R^{2}}}$$

となる。式(2-1-13)より磁束伝達率は

$$\kappa = \frac{M_{s}|C_{2}|}{|C_{1}|} = \frac{N_{p}\omega M_{s}}{\sqrt{(L_{p} + L_{s})^{2}\omega^{2} + R^{2}}} = \frac{N_{p}\omega M_{s}}{\sqrt{(\frac{\mu_{0}N_{p}^{2}S}{b} + L_{s})^{2}\omega^{2} + R^{2}}}$$
(2-1-15)

となる。式(2-1-15)において、R=0のとき

$$\kappa = \frac{N_{p}\omega M_{s}}{\sqrt{\left(\frac{\mu_{0}N_{p}^{2}S}{b} + L_{s}\right)^{2}\omega^{2}}} = \frac{M_{s}N_{p}}{\frac{\mu_{0}N_{p}^{2}S}{b} + L_{s}}$$

となり、式(2-1-14)と一致する。他の条件を一定にしたとき磁束伝達率が最 大となるのは、ピックアップコイルの長さが長く、断面積が小さく、抵抗も小 さいときである。巻数に関しては

$$N_{p} = \sqrt{\frac{b}{\mu_{o}S\omega}} \left(\left(L_{s}\omega \right)^{2} + R^{2} \right)^{\frac{1}{4}}$$
(2-1-16)

のときに最大となる。青野の結果ではR≪1µΩであるので、Ls=1µH、ω=1Hz程

度では最適な巻数に対するRの寄与は無視できると考えられる。しかし、R \gg 1 $\mu\Omega$ となるとRの寄与は無視できなくなり、例えばb=3mm、ピックアップコイルの直径2mm、Ls=1 μ H、 ω =1Hz、R=30 μ Ωを式(2-1-16)へ代入するとN_pは約150ターンでKを最大とする。しかしこれまでの議論には近似も多く、パラメータも多いため、最適な測定条件を一義的に求めることはできない。そこでrf SQUIDの感度を最大にするピックアップコイルの条件は実験から求める必要がある。

§2-2 測定装置

2-2-1 加圧装置

加圧には、ピストンシリンダー型のマイクロボンベが用いられた¹²⁾。ボンベ は非磁性で高圧にも耐えられるCuBeで作製され、外径は φ 15、内径は φ 6、全 体の高さは60mm程度であり、1GPaの耐圧がある。その構造を図2-2-1に示す。



図2-2-1 マイクロボンベ

以下にコイルの巻き方、ボンベの組み立て方を述べながら加圧の手順を詳しく 説明する。 (コイルの巻き方)

dHvA効果の測定装置に欠かせないピックアップコイルは、感度を良くする ためにサンプルにできるだけ接近するように巻く必要がある。コイルの内径 はサンプルのサイズに合わせて決め、ドリルの刃を用いてコイルの内径を細 かく変える。まずドリルの刃に長方形に切ったカプトンを巻きワニスで固定 する。その上から熱収縮チューブをかぶせ、ドライヤーで熱してカプトンに 密着させる。熱収縮チューブをコイルホルダーとし、超伝導線(NbTi、外径 ¢0.1、Cu被覆、単芯)でピックアップコイルを巻き、逆向きにキャンセレー ションコイルを巻く。コイルは一層巻き終えるたびにワニスで固定する。巻 き終えたらドリルの刃を抜き、コイルの巻き始めと巻き終わりの線をより線 にしてリード線として取り出す。外部から交流磁場をかけてピックアップコ イルとキャンセレーションコイルとの出力電圧をチェックし、カプトンを熱 収縮チューブから抜く。

(加圧の手順)

1. コイルと圧力検出用のPb用のリード線(φ0.1のCu線のより線2組)をはさん で、プラグとコーンを接着する。

プラグの穴にコイルとPb用のリード線を通した状態で、スタイキャストが流 れないように脱脂綿を少量つめ、スタイキャスト2850FTを硬化剤と混ぜプラ グに塗る。リード線をはさむ形でコーンをかぶせてプラグに押しつけ、上か ら更にスタイキャストを盛り、12時間程保つ。

2. 圧力媒体を注入しボンベを組み立てる。

圧力媒体にはフロリナートFC 70とFC 77を1:1に混ぜて用いる。プラグにア ロンアルファでシーリングリングを固定する。テフロンセルにコイルなどを 入れ、気泡が入らないよう注射器を用いて圧力媒体を注入し、プラグでふた をする。その状態でテフロンセルをシリンダーに入れ、プラグ側のグランド ナットにリード線を通しグランドナットを締める。シリンダーの反対側にシー リングリングを入れ、ピストンやバックアップを入れた後、グランドナット で締める。

3. タングステンカーバイド製のピストンを用いて加圧する。 グランドナットの穴にタングステンカーバイド製のピストンを入れ、油圧ポ ンプで加圧する。加圧のときの配置を図2-2-2に示す。油圧シリンダーのス トローク長に合わせ、鋼鉄のスペーサーでかさ上げして高さを合わせる。ピ ストンを保護するため、ピストンと油圧シリンダーの間には鋼鉄製のスペー サーを入れ、プレス台に垂直に圧力がかかるよう注意する。圧力はデジプレッ シャーでモニターし、ピストンの沈みにあわせてグランドナットを締める。 マイクロボンベの破裂を避けるために、外径の変化は1%未満になるよう随 時マイクロメーターでチェックしながら加圧する。



図2-2-2 加圧装置

2-2-2 冷却装置

本実験には、冷却装置としてトップローディング式³Heクライオスタットが 励磁には8Tの超伝導マグネットが用いられた。その概略を図2-2-3に示す。測 定装置はサンプルスペースにセットし冷却する。本実験では4.2K、0.5Kの温 度領域が用いられた。

1) 4.2K

サンプルスペースに測定装置をセットし、2時間程度待って装置を冷やす。 サンプルスペースと1Kポットには常に⁴Heガスが大気圧で入っている状態で 実験を行う。

2) 0.5K

デュワーに液体⁴Heをトランスファーし、サンプルスペースが液体⁴He温度に 到達した後、サンプルスペースに入っている⁴Heガスを完全に引き切る。⁴He ガスを引き切ったころ、1Kポットに液体⁴Heをトランスファーする。次にサ ンプルスペースに、N,トラップを通して不純物を取り除いた³Heガスを入れ、 1Kポットを減圧する。³Heガスは温度が下がって液化しサンプルスペースの 底にたまる。更に液化した³Heを減圧して、0.5K程度まで冷やすことができ る。

(ホルダーの取り替え方)

本実験で用いた³Heクライオスタットはトップローディング方式である。デュ ワーと超伝導マグネットを4.2Kに保ったまま、測定に応じたホルダーをセッ トできる。ホルダーを取り替えるときは、サンプルスペースから⁴He ガスを 吹き出させた状態で、入れ換える。

本研究ではSQUID端子からのリード線の同軸コネクタ(3軸の特殊なもの) が真空封入されていないため、はじめはサンプルスペースを減圧する必要のな い4.2Kで実験を行った。更に温度を下げるには、SQUIDをサンプルスペースと 切り離して密閉し、SQUIDの中を⁴Heガスで大気圧で満たして用いた。SQUID の入っている空間をSQUID canと名付ける(図2-2-8)。ホルダーをセットする 直前にはSQUID canの中を⁴Heガスでフラッシュし、クライオスタットにセット したら、サンプルスペースとSQUID canを⁴He 回収ラインにつなぐ。ホルダーを 抜く前には必ずSQUID canを真空引きし、室温に戻ったときSQUID canの中が 大気圧以上にならないよう注意する必要がある。

2-2-3 ⁴He温度での測定系

⁴He温度での測定装置を図2-2-4に示す。rf SQUIDシステムとしては、 QUANTUM DESIGN社製のModel 2000 VHF SQUID Amplifier, Model 2010 SQUID Control, Model RP46A SQUID Probe を用いた。また、この測定装置は、青野の 作成したホルダーを改良して用いている。

SQUIDは振動に弱いのでしっかり固定する必要がある。青野の作成したホル ダーはステンレスパイプ3本を支持棒とし、ドーナツ状の真鍮板に支持棒をハ ンダづけして全体を支えている。本実験では、更にSQUIDを頑丈に固定するた め、真鍮板の上にCu製のスペーサー(図2-2-5)を重ねてデンタルフロスで固 定した。このスペーサーはSQUIDの入るスリットの部分をずらすことにより、 上からの熱輻射を防ぐ役割も果たす。SQUID素子は、真鍮でSQUID固定金具を 作りフランジに固定した(図2-2-6)。固定金具にはリード線を通すため ¢2の 穴を開けておく。SQUIDからコイルまでのリード線は全てより線にし、支持棒 に沿わせてワニスで固定した。ビックアップコイルは、サンプルが磁場の中心 に位置するように取り付けられているFRPコイルホルダーの中に、アビエゾン グリースと一緒に入れ、低温で動かないようにした。

測定に用いた外部機器を図2-2-7に示す。SQUID controlの出力は横河電機製のデジタルマルチメーター7551に入力し、GP-IBでパソコンに取り込む。磁場の値は、超伝導マグネットに流す電流値を横河電機製のデジタルマルチメーター 2501Aに入力し、GP-IBでパソコンに取り込み、電流値を換算して求めた。



図2-2-4 ⁴He温度での測定装置



図2-2-7 ⁴He温度での測定機器

2-2-4 ³He温度領域での測定系

³He温度領域でのマイクロボンベを用いた測定装置を図2-2-8に示す。この装置の特徴はSQUIDをSQUID canの中に封じこめ、サンプルスペースを減圧できるようにしたことである。

¹He温度での測定系と同じように、SQUIDを固定するために、図2-2-9に示す ようなスペーサーを作った。スペーサーの材質は真鍮で、なべのふたを2つに 割ったような形である。ひと組のスペーサーでSQUIDリード線を両側からはさ み、ねじ止めしスペーサーを棒に固定する。スペーサーの円形の外側をSQUID canの内側にあててSQUIDを固定する。このスペーサーをSQUID素子から室温 部までのSQUIDリード線の部分に3個均等に配置した。ピックアップコイルか らのリード線をSQUIDに配線する前にスペーサーをつけ、SQUIDをSQUID can-に入れる。



図2-2-8 ³He温度での測定装置

SQUID端子を取り出すには真空シールにも注意が必要である。SQUID端子の 取り出し用の金具には2種類あり、その図面を図2-2-10に示す。SQUID canに つけた状態を図2-2-11に示す。

- 341 -





図2-2-11 SQUID固定金具周辺

(a)は端子の取り出しとSQUIDの固定を兼ねている。以下に(a)の配線手順を記す。

- (1) SQUID素子の下の部分のねじを活用してSQUIDを固定する金具を作る。 図2-2-10の \u03c6 2の穴はキュプロニッケル管の外径に合わせて調節する。
- (2) 金具に求める長さに切ったキュプロニッケル管を差し込み、銀ロウづけ する。
- (3) より線を作り、(2) のキュプロニッケル管に通し、スタイキャスト2850 FTで固める。
- (4) リード線をSQUIDに通した状態で金具をSQUIDにねじこむ。SQUID素子 にひと組のより線を配線する。被覆がまだらにはげていたり、ショート しないように細心の注意を払う。

(5) SOUID can下部をSQUIDにはめこみインジウムで締める。

(6) 低温ハンダで固定する。

 (a)ではSQUID canを開ける際にハンダとインジウムを同時に外すので、 かなり苦労する。その点(b)の場合はリード線に余裕をもたせ、ハンダを外 さなくともSQUID canを開けることができる点で(a)よりも配線は容易であ る。ただしSQUIDの固定は別に考える必要があり、SQUID素子とSQUID can とのすき間に紙テープを巻く。

(b)の配線の手順を記す。

(1) 金具を作る。

- (2) キュプロニッケル管を(1) で作った金具に銀口ウづけする。
- (3) より線を作り、(2) のキュプロニッケル管に入れ、スタイキャスト2850 FTで固める。
- (4) SQUID can下部に(3)を低温ハンダでハンダづけする。
- (5) SQUID素子に配線する。
- (6) SQUID canをインジウムで締める。

SQUID素子は、温度が下がったとき同軸コネクタから空気を吸い込むのを防 ぐため、1Kポットの上にくるよう設計した。SQUID canの下の支持棒が動か ないようスペーサーを入れ、支持棒とハンダづけした。支持棒にはボンベ固定 用のフランジ付近にM4のボルトをつけ、フランジに支持棒を通して上下から ナットで固定する。配線はより線にし、支持棒に沿わせる。ヒーターと温度計 をマイクロボンベの側面に2つ並べ、デンタルフロスで固定する。

温度計にはRuO₂抵抗温度計を用い、較正済みのGe抵抗温度計で1.5Kから8.5 Kまで較正した。較正曲線を図2-2-12に示す。3本の曲線は温度範囲によって 使い分ける。抵抗値を温度に換算するプログラムを図2-1-12の下に示す。ヒー ターとしてはストレーンゲージを用いた。

測定に用いる外部機器を図2-2-13に示す。基本的には⁴He温度領域で用いた 測定機器と共通しているが、低温での圧力較正に用いるPbと温度計の抵抗値を 同時に測るためにレジスタンスブリッジを2つ用意する。ヒーターはPbの電気 抵抗の測定や、³Heガスの回収のための加熱に用いる。dHvA効果を測定すると きには、ノイズをカットするため、温度計やヒーターなどの配線を外した。



図2-1-12 RuO2抵抗温度計の温度較正曲線

```
110 PRINT"注意:1.5Kから8.5Kでフィッティングしています。"
120 INPUT"抵抗値を入力して下さい。 (kΩ)",R
130 A=LOG(R)
140 IF R<8.86285 THEN 180 ELSE 150
         IF R<11.0624 THEN 170 ELSE 160
150
160
         B=-.122969+.376944*A:GOTO 190
170
       B=-.318767+.458402*A:GOTO 190
180 B=-.534463+.55726*A:GOTO 190
190 T = 1/B^{4}
                                         digital multimeter
Yokogawa 7551
200 PRINT "温度は(K)";T
210 GO TO 120
220 END
```



図2-2-13 ³He温度での測定機器

- §2-3 圧力較正
- 2-3-1 室温での圧力較正

圧力は単位面積に作用する力で定義され、単位系の間の関係は

 $1bar=10^{5}N/m^{2}=10^{5}Pa \rightarrow 1GPa=10kbar$

で与えられる。図2・2・2で、セル内に発生する圧力は、原理的には加えた荷重 をピストンの断面積で割れば求められる。しかし実際にはマイクロボンベの内 壁と圧力セルの構成部品との摩擦などによって圧力が減少するため、較正を行 う必要がある。本研究では、室温での圧力較正にはNH₄Fの構造相転移圧力(I →II;0.360GPa)が用いられた^{ID)}。図2・2・1のテフロンセルに砕いたNH₄Fを8分 目まで入れ、圧力媒体を注入し、マイクロボンベを組み立て加圧を行う。ピス トンの沈みをモニターしながら加圧を行うと、構造相転移が起こる圧力で結晶 構造が変化することにより、急激にピストンの沈みが大きくなる。横軸を油圧、 縦軸をピストンの沈みとして、図2・3・1にそのグラフを示す。構造相転移圧力 (0.360GPa)はとび始めの188kgf/cm²ととび終わりの196kgf/cm²の平均値192 kgf/cm²とした。従って0.1GPaは油圧の53.3kgf/cm²と換算する。



木村 純子

2-3-2 低温での圧力較正

低温では圧力セルの構成部品や圧力媒体などの熱収縮率が異なるため、サン プルにかかる圧力は室温での値から変化する。本研究では、低温での圧力較正 には、Pbの超伝導転移点の圧力効果を用いた。Pbの超伝導転移点の圧力変化は、

$$\frac{\mathrm{dT_c}}{\mathrm{dP}} = -0.384 \left[\frac{\mathrm{K}}{\mathrm{GPa}}\right]$$

で与えられる¹²⁾。超伝導転移点は図2-2-1に示すように、テフロンセル中でサンプルの周りにPb線(∮0.25、99.99+%)を5cm程入れ、ボンベの外にはりつけたヒーターで温度を上げながら、RuO₂抵抗温度計の示す温度とPbの電気抵抗を測定して、とびの始めと終わりの点の中間をとることにより求めた。

マイクロボンベ内外の温度差は銅 コンスタンタン熱伝対を用い、片方の接 点をボンベの中に、もう片方の接点をボンベの外において測定した。結果を図 2-3-2に示す。ヒーターに流す電流値が40mA以内であれば、熱伝対の精度内 (~2mK)温度差が生じないことがわかる。



第3章 実験結果と考察

§2-1-2で述べたように、dHvA効果のシグナルの出力はピックアップコイルの巻数、断面積、長さ、入力回路に挿入する抵抗値などによって左右される。 ピックアップコイルに関する定数は互いに相関をもっており、一つの定数だけを変化させることは難しいが、断面積はピックアップコイルの感度を良くするためサンプルの大きさで決められ、長さはマイクロボンベ内のテフロンセルによって制限される。また、青野の結果からは、入力回路に挿入する抵抗値は無視できる程小さいと予想され、SQUIDの感度を左右する要因は巻数であると考えられる。そこで、まず常圧下でピックアップコイルの巻数を変化させて最適条件を調べる実験を行った。測定温度は4.2Kである。

§3-1 ピックアップコイルの出力テスト

このセクションでは青野の方法に従い、回路に入れる微小な抵抗は、超伝導 線の銅被覆をはがさず、ピックアップコイルから出たリード線をSQUIDの入力 コイルに直接ねじ止めすることによって作る。サンプルとしてはLaAsとLaSb を用いた。LaAsはK. Moritaらによって音響的dHvA効果が調べられており(図 3-1-1)¹³、有効質量が0.1m₀程度で軽く、4.2Kでの実験が容易な物質である。 LaSbは常圧下のフェルミ面については以前から良く研究されており、圧力効果 についてもY. Okayamaらによって既に調べられている³³。図3-1-2に音響的 dHvA効果により得られたLaSbのdHvA振動数の磁場方位依存性を示す¹⁴⁾。図3-1-3にLaSbのフェルミ面の極値断面積の圧力依存性を示す³³。

3-1-1 卷数

回路に挿入する抵抗値が無視できる程小さいとき、§2-1-2から、シグナルの出力が最も大きくなるのは28ターン付近であると考えられる。青野の結果でも、40ターンより20ターンの方が出力は大きくなっており(図1-7)この値は妥当であると判断される。そこでまず28ターン前後でいくつかコイルを巻き、出力を比較した。サンプルはLaAsを用い、コイルの巻数は15ターン(内径 ¢2.2)、20ターン(内径 ¢2.1)、25ターン(内径 ¢2.2)、40ターン(内径 ¢2.1)、25ターン(内径 ¢2.2)、40ターン(内径 ¢2.1)、25ターン(内径 ¢2.2)、40ターン(内径 ¢2.1)、2層巻き)の4種類である。磁場掃引速度を8.1mT/sとしたときのシグナルを図3-1-4に、FFTスペクトルを図3-1-5に示す。また式(2-1-16)において、抵抗値RとLswが同程度の大きさをもつ場合、出力を最大にする巻数は28ターン以上であることが考えられる。そこでサンプルにLaSbを用い、更に巻数を増

やした場合のシグナルを図3-1-6に、FFTスペクトルを図3-1-7に示す。巻数は、

- ・40ターン (2層、第一層20ターン、第二層20ターン)
- ・60ターン (3層、第一層22ターン、第二層20ターン、第三層18ターン)
- ・82ターン(4層、第一層25ターン、第二層22ターン、第三層19ターン、第四 層16ターン)
- ・85ターン(4層、第一層25ターン、第二層23ターン、第三層20ターン、第四 層17ターン)
- ・120ターン(6層、第一層25ターン、第二層23ターン、第三層21ターン、第四 層19ターン、第五層17ターン、第六層15ターン)

の5種類、磁場掃引速度は3.24mT/sである。

図3-1-4、図3-1-5から15ターンと20ターンでは出力の大きさは変わらないが、 25ターンは極端に出力が大きいことがわかる。40ターンの出力は小さくなる。 図3-1-6、図3-1-7では60ターンの出力が最も大きい。しかし、式(2-1-16)か ら巻数だけで出力が大きく変化しているとは考えにくい。この実験では巻数だ けでなく、ピックアップコイルとキャンセレーションコイルの間隔、磁場に対 するコイルの位置、コイルに対するサンプルの位置も変化する可能性がある。 実際、図3-1-4で出力の大きかった25ターンではコイルの間隔が4mmあり、そ の他のコイルの間隔(15ターン:2.5mm、20ターン:3mm、40ターン:1mm) と比べると一番広い。図3-1-6でも出力が大きかった60ターンは3mmである。 また巻数はほとんど同じでも、間隔が1.5mm(82ターン)ではシグナルが観測 されなかったが、間隔が3mm(85ターン)ではシグナルが観測された例もある。

しかし、同じコイル間隔(3mm)の60ターン、85ターン、120ターンでは60 ターンの出力が最も大きく、図3-1-7のFFTスペクトルのS/Nも良いことから、 コイル間隔の差だけでは説明できず、ピックアップコイルの巻数は60ターンが 適当であると考えられる。

3-1-2 コイル間隔

このセクションでは、ピックアップコイルとキャンセレーションコイルの間 隔とシグナルの出力との関係を調べる。磁場に対するコイルの位置やコイルに 対するサンプルの位置が変化しないように注意し、回路に入れる抵抗値も変え ないように注意して実験を行った。実験に用いたコイルは内径 ø 2.1で、

・120ターン(6層、第一層25ターン、第二層23ターン、第三層21ターン、第四

層19ターン、第五層17ターン、第六層15ターン、 コイル間の間隔1.5mm) ・120ターン(6層、巻き方は上と同じ。コイル間の間隔3mm)

の2つである。シグナルを図3-1-8に示す。6Tでのシグナルの振幅を比較すると 約2倍の違いがある。シグナルの出力を大きくするためにはピックアップコイ ルとキャンセレーションコイルの間隔を離したほうが良いことがわかる。これ は2つのコイルの間隔が狭いと、外部からの一様磁場だけでなくシグナルまで 相殺してしまうためと解釈される。以上より、本研究においては圧力セルの長 さと考え合わせ、コイル間隔を3mmとした。

3-1-3 ピックアップコイルとサンプル、超伝導マグネットの位置 関係

このセクションでは、回路の抵抗値を変えないように配線を固定しコイルの 位置やサンプルの位置だけを変えて実験を行った結果を述べる。サンプルは LaSb、測定温度は4.2Kである。

磁場中心に対するピックアップコイルの位置を変えたときのシグナルを図3-1-9に示す。図の下にコイルの位置を模式的に示した。コイルの外側はFRPの コイルホルダーの下部である。FRPコイルホルダー下部の磁場中心に対する位 置は変わらないから、コイルの位置はFRPコイルホルダーの下部を基準に考え て良い。下には3mm、上には4mmずらした。7Tのシグナルの振幅を比較すると上 下差はほとんどないが、標準より3mm程ずらすと標準出力の0.6倍となった。

次にコイルの位置を図3-1-9の標準の位置に戻し、ピックアップコイルに対 するサンプルの位置だけを変えて実験を行った。その結果を図3-1-10に示す。 サンプルの標準位置をピックアップコイルの中心とし、そこからキャンセレー ションコイルと逆の方向に2mmずらし出力を比較した。7Tでのシグナルの振幅 は標準位置に比べて0.4倍となった。以上より、コイルの位置、サンプルの位 置にも注意する必要があることがわかる。

§3-2 圧力下でのdHvA効果の測定

前節まで、ピックアップコイルの巻数、ピックアップコイルとキャンセレー ションコイルとの間隔、磁場中心に対するピックアップコイルの位置、ビック アップコイルに対するサンプルの位置などを変えて出力テストを行った。これ まで巻いたコイルの中では、60ターンのコイルが最も出力が大きく、磁場中心 に対してピックアップコイルの位置が3mmずれると出力が4割減少し、ビック アップコイルに対するサンプルの位置が中心から2mmずれると出力は6割減少 することなどが明らかになった。以上の条件を考慮した上で、LaSbの圧力下でのdHvA効果の測定を行った。

用いたコイルは60ターン、コイル間隔3mm、内径 ϕ 1.7である。圧力較正の ためのPb線をテフロンセルに入れた状態で、まず常圧でのdHvA効果を測定し、 その後室温に戻し0.938GPaかけdHvA効果を測定した。低温での圧力は § 2-3の 方法で求めた。横軸に温度(K)、縦軸にPbの電気抵抗(mΩ)をとったグラ フを図3-2-1に示す。常圧での超伝導転移点は7.268K、圧力下での超伝導転移 点は7.011Kであったことよりヘリウム温度での圧力は0.67GPaと決定された。 常圧の磁場掃引速度を -3.24mT/s、0.67GPaでの掃引速度を -4.86mT/sとしたと きのシグナルを図3-2-2に、そのFFTスペクトルを図3-2-3に示す。図3-2-3で圧 力下でのFFTスペクトルはピークの幅が広く、dHvA 周波数を求めにくいように 見えるが、圧力下でのFFTスペクトルのスケールを変えるとピークはシャープ となっており問題ない(図3-2-5)。また、圧力下で磁場掃引速度を変えて測 定を行ったところ、dHvA振動数は α_1 で0.05%、 β で0.1%のずれの範囲内で一 致している。

この結果をSdH効果を用いてLaSbの圧力効果を求めた岡山らのデータ³⁾と比較する。図3-2-5にH//<100>方向のフェルミ面の極値断面積の圧力変化を示す。 本実験で求めた $\alpha_1 \epsilon \blacksquare$ 、 $\beta \epsilon \blacktriangle で$ 、岡山らが求めた $\alpha_1 \epsilon \Box$ 、 $\beta \epsilon \bigtriangleup で示す。$ 本研究で求めた値は彼らのデータから大きくずれている。本研究における横軸のずれは低温での圧力較正において、超伝導転移点を求めるときの誤差から求められる。超伝導転移点の誤差±0.02Kを圧力に換算すると圧力の誤差は±0.05GPaとなり、ここからは、岡山らとのデータの不一致を説明することはで $きない。また、縦軸に関しては、<math>\beta$ に対応するフェルミ面は球であるので(図 3-2-6)¹⁵⁾もしサンプルが傾いたとしてもdHvA振動数は変化しないためやはり 説明できない。常圧でのdHvA振動数は、本研究における値が α_1 201T、 β 410T、岡山らの値が α_2 02T、 β 413Tで、差は α_1 で0.2%、 β で0.7%であり、 両者の差は大きくない。このことより、サンプル依存性というよりは、圧力較 正のやり方の違いに原因があるように思われる。

図3-2-2において、シグナルの出力は圧力下で小さくなっている。その原因 が測定系にあるとすると、加圧の際に配線をやり直していることからこれまで 無視してきた回路に挿入する抵抗値Rの変化が原因と考えられる。もしそれが 正しければ、同じピックアップコイルを用いても配線をやり直すことによって シグナルの出力が変化するはずである。

§3-3 抵抗値による出力の変化

§3-2では同じコイルでも常圧と圧力下でのシグナルの出力が変化していた。 その原因を調べるために、同じコイルで配線をやり直して測定を行った結果を 図3-3-1に示す。7Tでのシグナルの振幅を比較すると、上は下のデータの3倍以 上大きい。同じコイルを用い、サンプル、コイルの位置も1mm未満の変化しか 考えられないため、式(2-1-15)からこの出力の差は抵抗値の変化によるもの と考えざるをえない。即ち、超伝導線の銅被覆のねじ止めにより入力回路に挿 入されていた抵抗値は予想よりはるかに大きいことがわかる。

そこで抵抗値をコントロールできるようにするため、銅被覆のねじ止め以外 の抵抗挿入法を用いて、両者のシグナルの出力を比較した。銅被覆のねじ止め 以外には、図3-3-2の右側に示しているようにねじ部は超伝導で接続し、コイ ルからのリード線の途中に銅線(do.09)をハンダ付けする方法を用いた。図 3-3-2にRとして銅線10cmを用いた場合と銅被覆のねじ止めを用いた場合のシグ ナルの出力の比較を示す。6.4Tでのシグナルの振幅を比較すると銅線10cmの ほうが銅被覆に比べ50倍大きい。 $R = \rho_S^4$ において ρ は共通であるから $\begin{cases} & & \\ \\ & & \\ \\ & & \\ \end{cases}$ を見積 もると、 ϕ 0.09、10cmの銅線の場合 $= 1.6 \times 10^7 \text{m}^{-1}$ である。それに対し銅被覆 は上下でワッシャーに接触すると考え、接触面積一個所につき0.04×10³m× 5×10⁻³m、被覆の厚みを0.02×10⁻³mとするとねじ2つ分で =25m⁻¹となる。両 者を比べると銅線を入れた抵抗が105倍以上大きく、出力も小さくなることが 予想される。しかし、結果は逆であることから、銅被覆のねじ止めは接触抵抗 が非常に大きくなっていると考えられる。 40.09の銅線の抵抗の実測値は、長 さ20cmで200 μ Ω(4.2K)であり、10cmでは100 μ Ωの抵抗値をもつ。この値 から逆に銅被覆のねじ止めによる抵抗値を見積もると約5mΩとなる。以上より、 回路に入れる抵抗値は銅線を用いたほうが小さくなり、シグナルの出力を大き くできることがわかる。

そこで次に銅線の長さを変えることによって抵抗値を変化させて実験を行った。長さは10cm(100 μ Ω)、5cm(50 μ Ω)、3cm(30 μ Ω)の3種類でテストした。シグナルを図3-2-3に示す。6.8Tでのシグナルの振幅を比較すると、銅線の長さ10cmを基準として、5cmで1.7倍、3cmでは2.4倍になった。シグナルの振幅は磁束伝達率κに比例し、式(2-1-15)においてLsω項からの寄与が無視できるとするとκの逆数は入力回路に挿入する抵抗値に比例する。図3-2-4に、横軸をR、縦軸をシグナルの振幅の逆数として3つのデータをプロットした。これらの点は1つの直線にのっており、シグナルの振幅にはRの寄与が大きいことがわかる。ここで更にRを小さくすると、シグナルの振幅をより大きくする

ことができると考えられる。そこで次に銅線をはさまずに、ハンダ付けのみを 行って抵抗とした場合の測定結果を図3-3-5に示す。この図から、抵抗値が小 さすぎる場合はSQUIDが高感度であることが災いして、シグナルがノイズに埋 もれて全く見えなくなっていることがわかる。以上のことから、抵抗には、銅 線をハンダ付けする方法を用いるのが良く、その値は30μΩ程度が適当である ということがわかった。

§3-4 CeSbのdHvA効果の測定(常圧)

前節までで得られた条件を用いて、CeモノプニクタイドのdHvA効果を測定 した。サンプルにはCeSbを用い、図2-2-8の装置で、回路に入れる抵抗は3cmの 銅線を用いた。CeSbは、4.2Kではシグナルは観測されなかったが、温度を 0.56Kまで下げることによって美しいシグナルを観測することができた。(1.3 Kでもシグナルは観測された。)図3-4-1にCeSbの強磁性相でのシグナルを示 す。磁場掃引速度は0.81mT/sとし、青野らが行っていた7.29mT/sより一桁遅く することができた。これは³He-⁴He希釈冷凍機温度領域での変調磁場法による定 常磁場の掃引速度(変調磁場の掃引速度ではない)と同程度である。シグナル のFFTスペクトルを図3-4-2に示す。観測されたピークは

 α :181. 9T β_1 :297. 2T β_2 :436. 3T γ :1197T

である。この結果は北澤ら¹⁰、青木ら¹⁷⁾¹⁸による通常の変調磁場法や、摂待ら¹⁹ による音響的dHvA効果から求めたdHvA振動数と、彼らの実験誤差の範囲内 (4%程度)で一致している。これによりCeモノプニクタイドに関しても、本 研究のSQUIDを用いた方法が有効であることが明らかとなった。しかし、残念 ながら、圧力下での実験にはいたらなかった。



図3-1-1 LaAsのdHvA周波数の磁場方位依存性¹³⁾



図3-1-2 LaSbのdHvA振動数の磁場方位依存性¹⁴⁾





木村 純子



- 354 -





- 356 -

SQUID を用いた高圧下における dHvA 効果の測定系の開発





- 358 -

γ





SQUID を用いた高圧下における dHvA 効果の測定系の開発





木村 純子



4

第4章 まとめと今後の課題

本研究の成果をまとめる。

・SQUIDを用いて、極低温、高圧下でdHvA効果を測定することができる装置 を開発した。

本研究において、SQUIDを用いたdHvA効果測定装置が³He温度まで冷却可能となり、基本的には³He-⁴He希釈冷凍機温度領域まで使用可能となった。 圧力は、低温で0.7GPa程度まで発生可能となった。

- ・検出感度を最高にするための測定回路の条件を求めた。
 - 1. シグナルの出力はピックアップコイルの巻数よりも回路に入れる抵抗の大 きさに左右される。
 - 2. 回路に入れる抵抗は、ねじ止め部分の接触抵抗を利用するより銅線を挿入 した方がシグナルの出力を大きくできる。この場合、抵抗値は30μΩ程度 が良い。
 - 4. ピックアップコイルの巻数は60ターンが適当であり、ピックアップコイル とキャンセレーションコイルは、3mm程度離すと良い。
- ・圧力下では標準サンプルにLaSbを用い、SQUIDによりdHvA効果を観測した。 測定条件は、
 - ・温度 4.2K
 - ・圧力 0.669GPa

である。LaSbで得られた圧力効果は、H//<100>方向のフェルミ面の極値 断面積に対し、

· α で2.9%の増加

・βで5.0%の増加

が見られた。

・Ceモノプニクタイドに関しては、温度を0.56Kまで下げることによって、 CeSbの強磁性相でdHvA効果を観測し、この方法の有効性を明らかにした。

今後の課題は、圧力下においてCeモノプニクタイドのdHvA効果を測定し、 Ceモノプニクタイドの電子状態を明らかにすることである。

参考文献

- 1) K. Andres, J. E. Graehber and H. R. Ott : Phys. Rev. Lett. 35 (1975) 1779.
- A. Jayaraman, W. Lowe, L. D. Longinotti and E. Bucher : Phys. Rev. Lett. 36(1976) 366.
- N. Môri, Y. Okayama, H. Takahashi, Y. Haga and T. Suzuki : Physical Properties of Actinide and Rare Earth Compounds JJAP Series 8 (1993) 182.
- 4) H.Yoshizawa, Y.Okayama, Y. Oohara, H. Takahashi, N. Môri, S. Mitsuda, T. Osakabe, M. Kohgi, Y.Haga and T.Suzuki : Technical Report of ISSP Ser. A No.2866 (1994).
- 5) H. Bartholin, P. Burlet, O. Quesel, J. Rossat-Mignod and O. Vogt : J. de Phys. 40 (1979) C5-130.
- 6) 岡山泰 博士論文(東京大学)平成5年
- 7) D. Shoenberg: Magnetic Oscillations in metals, Cambridge University. Press (1984).
- 8) 青野英樹 修士論文(東北大学)平成4年
- N. Sato, H. Aono, Y. Inada, A. Sawada and T.Komatsubara : Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 32 (1993) pp. L207-L210.
- O. V. Lounasma: Experimental Principles and Methods Below 1K, Academic Press, London, 1974, Chap.7.
- 11) K.Kindou, T. Shibata, T. Inoue, Y. Haga, T. Suzuki, Y. Chiba and M.Date :J. Phys. Soc. Jpn. vol. 62, (1993) pp. 4190-4193.
- 12) 毛利信男 応用物理 第62巻第2号(1993)170.
- K. Morita, T. Goto, H. Matsui, S. Nakamura, Y. Haga, T. Suzuki and M. Kataoka : Physica B. ;in press.
- 14) R. Settai, T. Goto, S. Sakatsume, Y. S. Kwon, T. Suzuki and T. kasuya: Physica B (1993) 176.
- 15) A. Hasegawa : J. Phys. Soc. Jpn. vol. 54, (1984) pp.677-684.
- 16) H. Kitazawa, Y. S. Kwon, A. Oyamada, N. Takeda, H. Suzuki, S. Sakatsume,T.Satoh, T. suzuki and T. Kasuya : J. Magn. Magn. Mater. 76, 77 (1988) 40.
- 17) H.Aoki and G. W. Crabtree : J. Appl. Phys.57 (1985a) 3033.
- 18) H.Aoki, G. W. Crabtree, W.Joss and F. Hullinger:J. Magn. Magn. Mater. 52 (1985b).
- 19) R. Settai, T. Goto, S. Sakatsume, Y. S. Kwon, T. Suzuki, Y. Kaneta and O. Sakai : J. Phys. Soc. Jpn. vol. 63, (1994) pp. 3026-3035.

謝辞

本研究をまとめるにあたって、多くの方々にお世話になりました。ここに感 謝の意を表したいと思います。

佐藤憲昭先生には、実験の進め方から物理の本質まで非常に多くのことを教 えていただきました。小松原武美先生には論文の書き方や発表の仕方を丁寧に 指導していただきました。佐藤武郎先生、澤田安樹先生にも多くの助言をいた だきました。

東大物性研の毛利先生、高橋先生には、マイクロボンベを設計、製作してい ただき、圧力下での物性測定のノウハウを伝授していただきました。

金工場のみなさんには、装置を作るための技術を教えていただき、また多く の部品を作っていただきました。技官の鈴木さんには、すばらしいアイディア と技術で、しばしば助けていただきました。

磁気物理の鈴木孝先生と芳賀芳範さんには、貴重なサンプルを提供していた だきました。

みなさん本当にどうもありがとうございました。

最後に、6年間の長い学生生活を支えてくれた両親に感謝いたします。