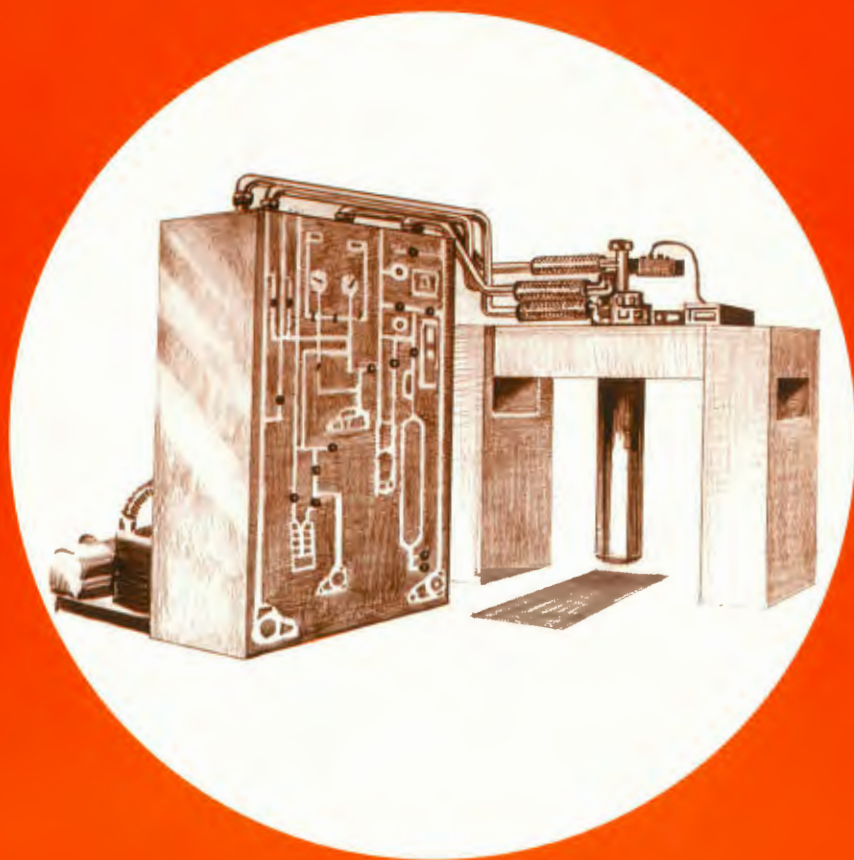


東北大学低温センター

TOHOKU UNIVERSITY CRYOGENICS CENTER

低温センター実験室の現況



1980

センター長就任あいさつ

東北大学低温センター長

田中英八郎

「金研所長は自動的に低温センター長になるしきりがある。」と武藤先生からいわれた時には正直、之は困った事になったと思った。というのは、竹内元センター長、渡辺前センター長は低温が御専門ではないにしても、物理の御出身であり低温についても造詣が深くあられたが、私は工科系の出身であり低温についても物理についても全く無知であり、とてもセンター長の任にたえられるとは思えなかったからである。

武藤先生にもその旨を申し上げたが御許しいただけず既に10ヶ月その任についている次第である。

共同利用審議会にでても又運営委員会にでても討議の対象となっている研究テーマも装置もチンプンカンプンで我ながら、良くもずうずうしく議長をつとめさせていただいていると冷汗を流している。幸い有能な委員に恵まれているので恥をかきながらおつき合いさせていただき度いと思っている。

いづれも舌足らずな見当違いな事ばかりしていると思いますが御見捨てなく、御叱聲を賜る様御願い申し上げます。

神田・竹内・渡辺の3教授の後をうけて、金研所長**田中英八郎教授**が、昭和54年4月より、第4代東北大学センター長に就任された。先生は、非常に謙虚な就任のごあいさつを述べられたが、センター発足以前の昭和44年頃、**通研の小野寺教授**とともに**圧延法による超電導化合物・複合材料の研究**をなされて注目を浴びるなど、わが国の超電導応用面草分けの低温材料研究者でもあられる。

本センターは、昭和54年には全学への液体ヘリウム供給量は**50,000ℓ強**に達した。大学での供給量としては国内最大のものであろう。これは同時に現施設での供給回収能力の限度に近づいたことを意味する。センター長の御活躍・御指導を待望する次第である。(武藤記)

〔I〕低温センター実験室の現況

低温センター 坂 爪 新 一
大 友 貞 雄

§ 1. はじめに

低温センターが発足して10年を迎えようとしている。低温センター実験室は、初代センター長神田英蔵先生の発案により、センター発足と同時に設置された。センターというものの性格上、大量の液体ヘリウムを使用する大型の実験設備を主として設置し、学内の研究者の共同利用に供するというものであった。この趣旨に沿って計画された諸設備のうちの幾つかは、時間的な遅れはあるもののその後順次設置され、現在は100kG超電導マグネット、60kG高均一度超電導マグネット及び ^3He - ^4He 稀釈冷凍機の3台の装置が稼動運転されている。このうち、100kG超電導マグネットと ^3He - ^4He 稀釈冷凍機の稼動率は極めて高く、装置自体の故障や液体ヘリウムの供給停止という事態が発生しない限り、年間を通して殆ど休むことなく使用されている。末尾に、主要装置について稼動状況を示す表を付した。

以下にこれらの装置の性能、現況等の概略を示す。

§ 2. 100kG超電導マグネット

超電導マグネットシステムを構成する幾つかの機器のうち、主要な3装置についてその規格・性能を表1に、またマグネット・クライオスタットを図1に示す。

このマグネットシステムは次のような幾つの特徴を有する。

- (1)、線材として Nb-Ti fm線を使用した結果、フラックスジャンプの頻度・大きさが共に小さい良質の高磁場を極めて短時間に発生出来、また残留磁場も非常に小さく、50 G以下である。
- (2)、磁場の時間的安定度が良好である。
- (3)、システムがコンパクトで操作が容易である。

幾つか不便な点もあるが、こういった特徴の故にシステム全体としては大きさも手頃で大変使いやすいものになっている。これが、高い稼動率を生む原因になっているのであろう。磁場測定は、通常の実験では1mΩ-100A の分流器を用いて行っている。Lawson-Lush 社の回転磁束計を用いて検定した結果、初期励磁の時を除いては両者

の結果は0.1%の範囲で一致する。尚、図2に示した磁場均一度の測定は、ホール素子を用いて行なった。

表1. 100kG超電導マグネットシステム

マグネット	真空冶金KK製 線材 Nb-Ti fm線 定格磁場 90kG (4.2 K) 100kG (2.2 K以下) 磁場定数 1.068kG/A 磁場均一度 $1 \times 10^{-4}/16\text{mmDSV}$ 励磁速度 10kG/min 有効内径 27mm
電源	真空冶金KK-シグマ電子KK製 定格電流 100A-5V 安定度 $1 \times 10^{-4}/\text{hour}$
クライオスタット	真壁鉄工所KK製 液体ヘリウム 10ℓ 液体窒素 7ℓ ヘリウム消費量 0.4ℓ/hour (最大磁場において)

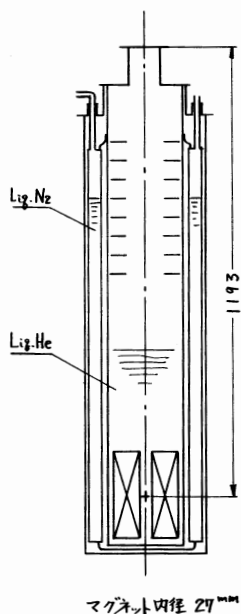


図1. 100kG超電導マグネット

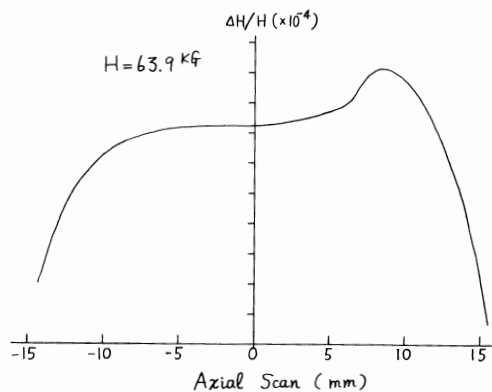


図2. 100kGマグネットの磁場均一度

§ 3. ^3He - ^4He 稀釈冷凍機

前述の 100kG超電導マグネットとうって変り、大型且つ非常に複雑なシステムで、この運転にはいささかの経験を必要とする。とは言っても良く出来たシステムでマニュアルのみをたよりにして運転可能である。大型なるが故に0.8ℓ/hrとヘリウム消費量も多い。センター発足以前、1ℓのヘリウムを奪いあったことを思えば夢のような話しである。

表2に主要な装置の規格・性能、図3に実験空間、図4に冷却能力の実測値を示す。

表2. ^3He - ^4He 稀釈冷凍機

冷凍機及び 主要附属装置	SHE社製—仁木工芸KK 最低到達温度 7.5 mK 冷却能力 $1\mu\text{w}$ (11.4 mK) SQUIDシステム MFP型 コンダクタンス・ブリッジ PCB型 (電気抵抗) 測定用 温度コントローラー ATC型
超電導マグネット システム マグネット 電源	AMI社製—仁木工芸KK 定格磁場 90kG (4.2 K) 105kG (2.2 K以下) 磁場定数 1.136kG/A 磁場均一度 $1\times 10^{-4}/20\times 10\text{mm}$ 定格電流 100A—10V 安定度 $4\times 10^{-7}/8\text{hours}$ 注、永久電流動作が可能
クライオスタット	CA社製—仁木工芸KK スーパーインシュレーション型 液体ヘリウム 34ℓ ヘリウム消費量 0.8ℓ/hour
核整列温度計	NAIG社製 1024GH MCA 2"×2"NaI デテクター

このシステムの主な特徴は広い試料空間、及び附属した超電導マグネットによる超低温強磁場の結合であろう。

温度の測定は、CMNの帯磁率をSQUIDを用いて測定し4.2 Kから0.3 Kの範囲で校正されたGe温度計により校正し、以下低温はCMNの帯磁率を外挿することによって行なわれている。他の温度測定素子として一次温度計である核整列温度計を用いることが試みられつつあるが、まだ完成に至っていない。

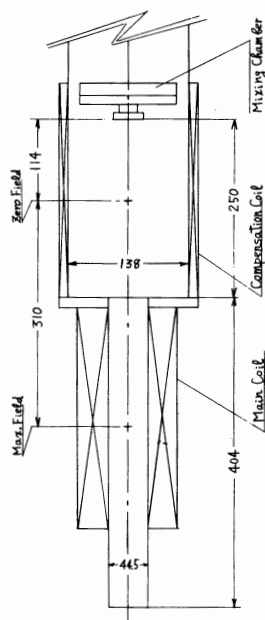


図 3 . $^3\text{He}-^4\text{He}$ 稀釈冷凍機

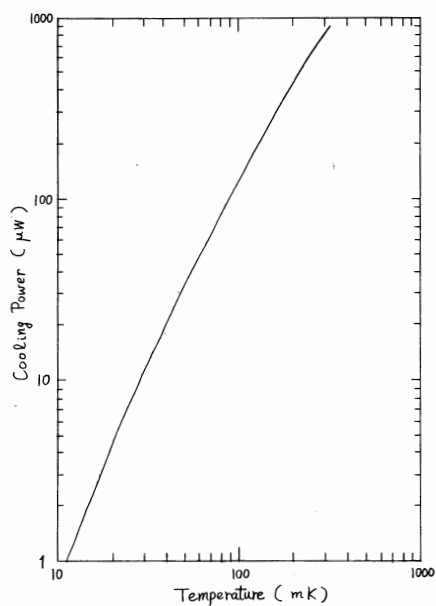


図 4 . $^3\text{He}-^4\text{He}$ 稀釈冷凍機の冷却能力

§ 4. 60kG高均一度超電導マグネット

このマグネットシステムは磁気共鳴実験を目的として作られたものである。システムの特徴は、高い磁場均一度は勿論であるが、クライオスタット下部から磁場中心へ室温空間を実現出来ることである。

表3にシステムの規格・性能、図5にマグネット・クライオスタット図を示す。図6に示した磁場均一度はホール素子を用いて測定したものである。

マグネット中心部の室温空間は着脱可能なので、液体ヘリウム温度での物性実験もまた可能である。

表3. 60kG高均一度超電導マグネットシステム

マグネット	真空冶金KK—日本電子KK製
線材	Nb-Ti single線
定格磁場	60kG
磁場定数	2.220kG/A
磁場均一度	$5 \times 10^{-6}/5\text{mmDSV}$
励磁速度	1kG/min
有効内径	40mm
電源	日本電子KK製
定格電流	30A—0.5V
安定度	$3 \times 10^{-5}/30\text{min}$
クライオスタット	真空機工KK製
液体ヘリウム	25ℓ
液化窒素	50ℓ
ヘリウム消費量	0.3ℓ/hour (最大磁場において)
注、永久電流動作が可能である。	

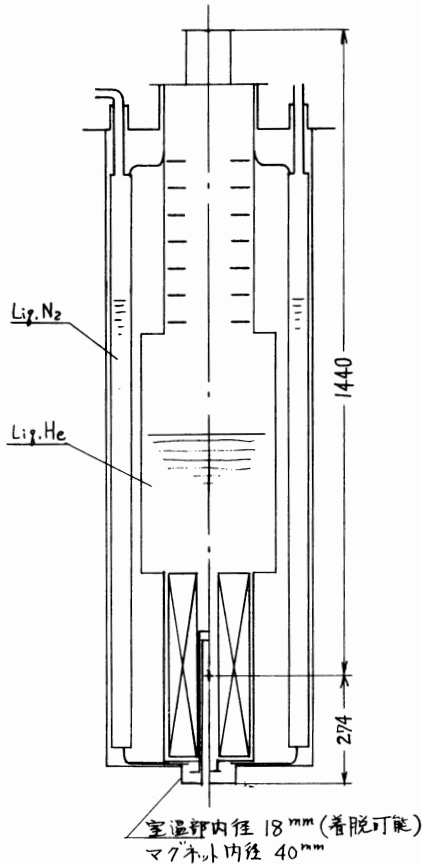


図5. 60kG高均一度超電導マグネット

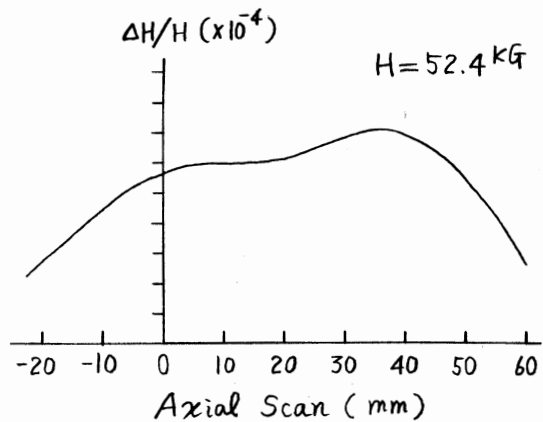


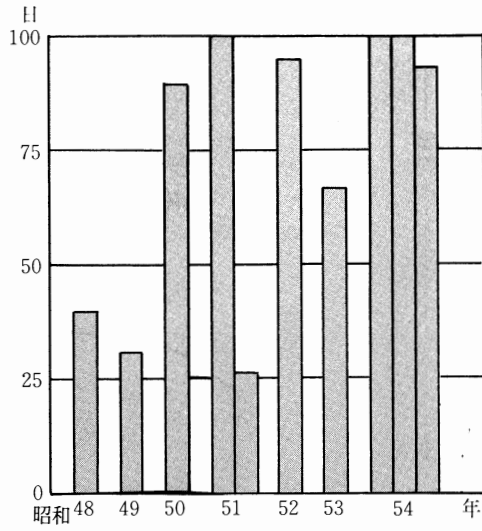
図6. 60 kG高均一度マグネットの磁場均一度

§ 5. ヘリウム・リーク・デテクター

ヘリウム・リーク・デテクター (H・L・D) は設置以来もっとも利用頻度の高い共同利用機器で、メタル・クライオスタットや真空容器の製作に大いに貢献してきた。最近の利用状況を見ると、本当にH・L・Dを必要とする被試験体かどうか大変疑わしい状況のもとにH・L・Dが利用されている場合が見受けられる。また、それにともなってH・L・Dの操作ミスなど初歩的な操作ミスも多い。利用頻度の増加にともない装置自体の老朽化もはなはだしく、既に耐用限界に近いという印象すらうけるので、そろそろ新しい装置との交代時期と思われる。

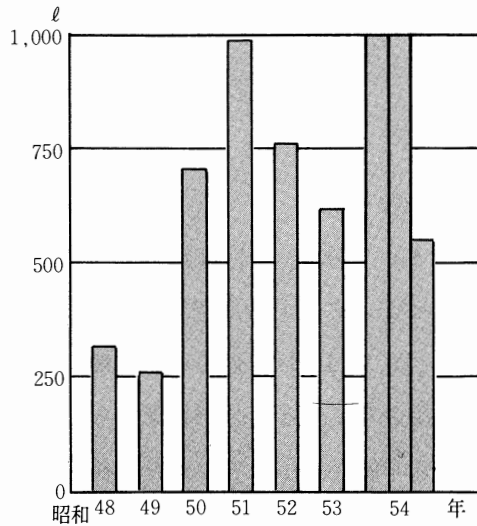
§ 6. 稼動状況

100kG 超電導 MG 利用日数



グラフ 1

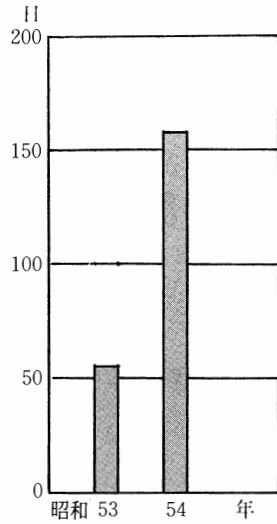
100kG 超電導 MG 液体ヘリウム使用量



グラフ 2

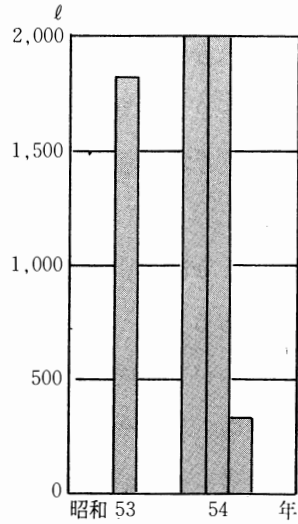
^3He - ^4He 稀釈冷凍機

D.R 利用日数



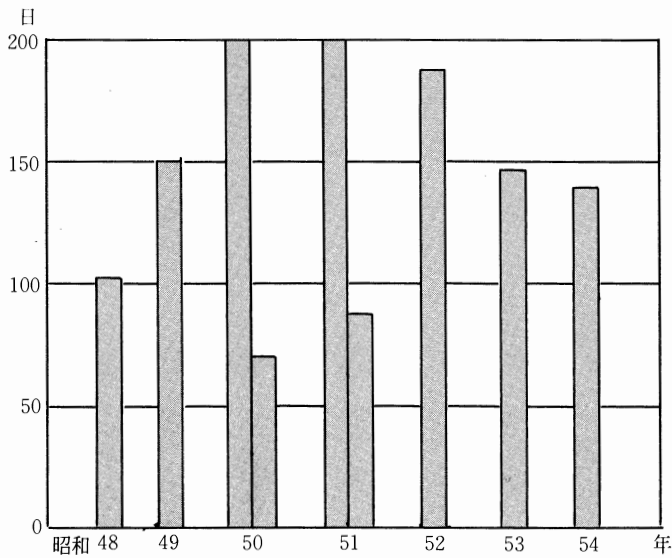
グラフ 3

D.R 液体ヘリウム使用量



グラフ 4

ヘリウムリーク・デテクター利用日数



グラフ 5

§ 7. おわりに

晝夜をわかついで働いているこれらの装置（グラフ1～5）を見るにつけ、ここ十数年来の低温技術の進歩に目を見張らせられる思いがする。実験室発足の最も初期に計画された100kG超電導マグネットは、当時脚光を浴びて登場したNb-Ti fm線がその発端であった。それが今日の安定したマグネットの姿をとるまでに、数年の月日が必要であった。マグネットの実験の初期の頃に幾度か経験したクエンチを迎えようとする時の胃の痛むような緊迫感と、10ℓあまりの液体ヘリウムが数十秒のうちに消滅する光景は忘れ難い。しかるに、一昨年購入した稀釈冷凍機にはその附属品として類似した性能のマグネットが何ということもなく取付けられており、しかも何等の故障もなく働いているのである。

稀釈冷凍機についても同様なことが言える。手造りの稀釈冷凍機にまつわるあの幾つかの苦勞話しは、もはや昔話なのであろうか。我々は、一冊のマニュアルで10mKの世界をいとも容易に手中に出来るのである。

しかし、讃歌のみが歌われるべきではないであろう。ありあまる液体ヘリウムや、お仕着せの実験装置は、低温実験装置そのものへの関心をついおろそかにさせることがある。低温技術に対する極めて初歩的な基礎知識の欠如が、無意味なトラブルを引き起す場合がしばしば生じて来る。自戒すべきことではあるまいか。

最後に、100kG超電導マグネットの開発製作に対する**真空冶金KK**超電導グループの数年にわたる努力と、³He-⁴He稀釈冷凍機の設置運転における**仁木工芸KK**、**日酸商事KK**の熱心な協力を感謝の意を表したい。

〔Ⅱ〕 大型稀釈冷凍機による研究

§ 1. 1 K以下における Bi の超音波巨大量子減衰

^A 深瀬哲郎、^B 森田清三、^C 梶村皓二

^A 中名生充、^B 御子柴宣夫

A 金研 B 通研 C 電総研

〔1〕 序 論

低温強磁場において、高純度金属中を伝播する音波は、フェルミ速度の音波の伝播方向成分が音速に等しい、いわゆる波乗り電子によって大きな減衰が引き起される。したがって超音波の減衰係数 α を磁場 H に対してプロットすると、上記の波乗り電子のエネルギーがフェルミ準位と一致する磁場 H_p において鋭く大きな極大が表われる。この現象は超音波の巨大量子減衰 (GQA) と呼ばれ、フェルミ面の断面積、 g 因子、有効質量、緩和時間、電子・フォノン相互作用のマトリックス要素などを知る有力な手段として、半金属を中心に多くの研究がなされてきた。電子間の多体効果を見捨てる音波による電子状態の遷移マトリックス要素が磁場によらないと仮定し、電子散乱の効果を見捨てるならば、減衰ピークの大きさ α_p は $f \cdot H \cdot T^{-1}$ (f は音波の周波数、 T は温度) に比例し、半値幅 ΔH は $H \cdot T$ に比例して変化する¹⁾。散乱の効果を見捨てるならば温度依存性はさらに小さくなり、プロット電子モデルでは一般に $\alpha_p(T) \propto T^\lambda$, $\lambda < 1$ となる²⁾。ところが低温 ($1 \text{ K} < T < 4 \text{ K}$) 強磁場 ($H \sim 100 \text{ kOe}$) 中の Bi の電子による GQA ピークと正孔によるピークを与える磁場 H_p がほとんど一致する場合には減衰ピークの大きさが、プロット電子モデルから期待される温度依存性よりきつい $\lambda > 1$ となることが Mase³⁾ によって見いだされ、励起子相への相転移とそのゆらぎの効果として理解する試みがなされた。これに関し、実験理論の両面で多くの研究⁴⁻⁷⁾ がなされたが、Yoshioka⁸⁾ の計算では、転移温度 T_{ex} は 0.2 K 以下と見積られ、そのゆらぎの効果が 1 K 以上の減衰に有効とは考えられないと結論し、新たに電子間の交換相互作用の効果を取り入れた結果、電子および正孔数の不連続な変化を起す一次相転移 (気体液体型相転移、 $T_{GL} = 0.1 \text{ K} \sim 0.27 \text{ K}$) が起りうることを示し、 α_p の異常な温度依存性は相転移にともなうゆらぎの効果で説明できることを示した。一方これまでの実験はすべて 1 K 以上の温度でなされており、上記の相転移の有無、異常な温度依存性の原因を探るためには、より低温における実験が久しく待ち望まれていた。幸い昭和53年

度、低温センターに大型の多目的稀釈冷凍機が設備されたので早速我々はこれを用いて 8 mKまでの温度 100kOeまでの磁場におけるBiのGQAの実験を開始した。

〔2〕実 験

実験に用いたBi単結晶は使用前の残留抵抗比 $R(300\text{K})/R(4.2\text{K})$ が 548のきわめて良質のものである、室温から 4.2Kまでの冷却あるいは逆の昇温に際して、試料の機械的歪をさけるために、試料の冷却・昇温速度は15 K/hr以内におさえた。超音波測定は伝播方向がBi単結晶の z 軸方向の縦波超音波を用いたパルス透過法で行った。超音波による試料内発熱を極力おさえるためにパルス幅は約 $0.2\mu\text{sec}$ 、パルスの繰り返し周期は 2 Hzとした。1パルスあたりの電気的なエネルギーは $1\sim 2\text{ erg}$ で、このうちの $1/10$ 以下のエネルギーが音波に変換されて試料内に入ると考えられるが、我々の実験条件では入射パルスの強度および繰り返し周期依存性はみとめられなかった。また磁場掃引による発熱を極力小さくするために掃引速度は 1 Oe/sec とした。温度計測は稀釈冷凍機の混合室にあるCMN温度計とサンプルホルダー上にあるカーボン温度計で行った。50mK \sim 1 Kの温度では両者は10mK以内の誤差で一致した。磁場方向は結晶の zy 面内で z 軸より -4° をねらった。この方向は a ポケットの電子のランダウ量子数 $n = 0$ 、スピン量子数 $s = +1$ による減衰ピークと、正孔の $n = 1$ 、 $s = -1$ のピークがほぼ一致し、Yoshioka⁸⁾によれば $T_{GL}\sim 0.1\text{ K}$ で気体液体型相転移が起ると考えられている。

図1は60MHzの超音波減衰の磁場変化を示したものである。およそ90kOeのピークが今注目している $n = 0$ 、 $s = +1$ の電子と $n = 1$ 、 $s = -1$ の正孔によるGQAのピークである。このピークの高さ (α_p) および半値幅 (ΔH) の温度依存性を図2および図3の白丸で示した。温度が1 K以上では α_p はほぼ $T^{-1.0}$ に、 ΔH は $T^{1.0}$ に比例し、これはKajimuraら⁴⁾の結果と一致する。ピーク的位置 (H_p) は温度が低下するに従って低磁場側へ移動する ($T = 2\text{ K}$ で $H_p = 90.70\text{ kOe}$ 、 $T = 300\text{ mK}$ で $H_p = 90.15\text{ kOe}$) が、 $T < 300\text{ mK}$ では一定となる。ピークの形はかなり対称的で気体液体型相転移特有の高磁場側にトビを有する強い非対称はみとめられない。図2、3の黒丸は再現性を見るために行った次回の実験の結果である。ピーク的位置 (H_p) は 100mKにおいて90.12 kOeで前回との差はわずか30Oeと小さい。 α_p および ΔH の値は $T \geq 1\text{ K}$ では誤差の範囲内で前回の結果(白丸)と一致しており、両者の間の磁場方向の誤差は 0.05° 以内と考え

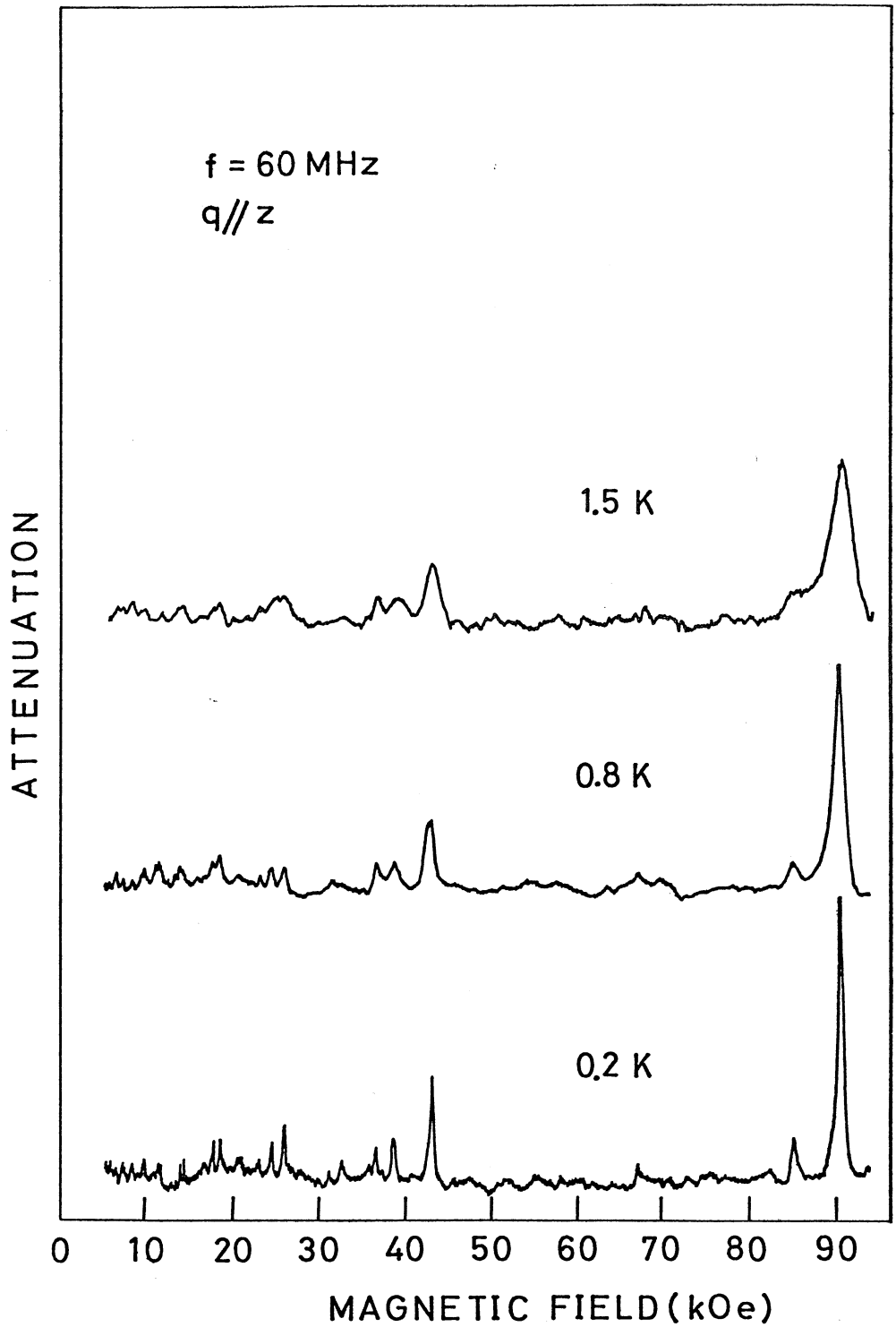


図1. 60MHz 縦波超音波の減衰曲線、Hはzy面内でz軸より -4°

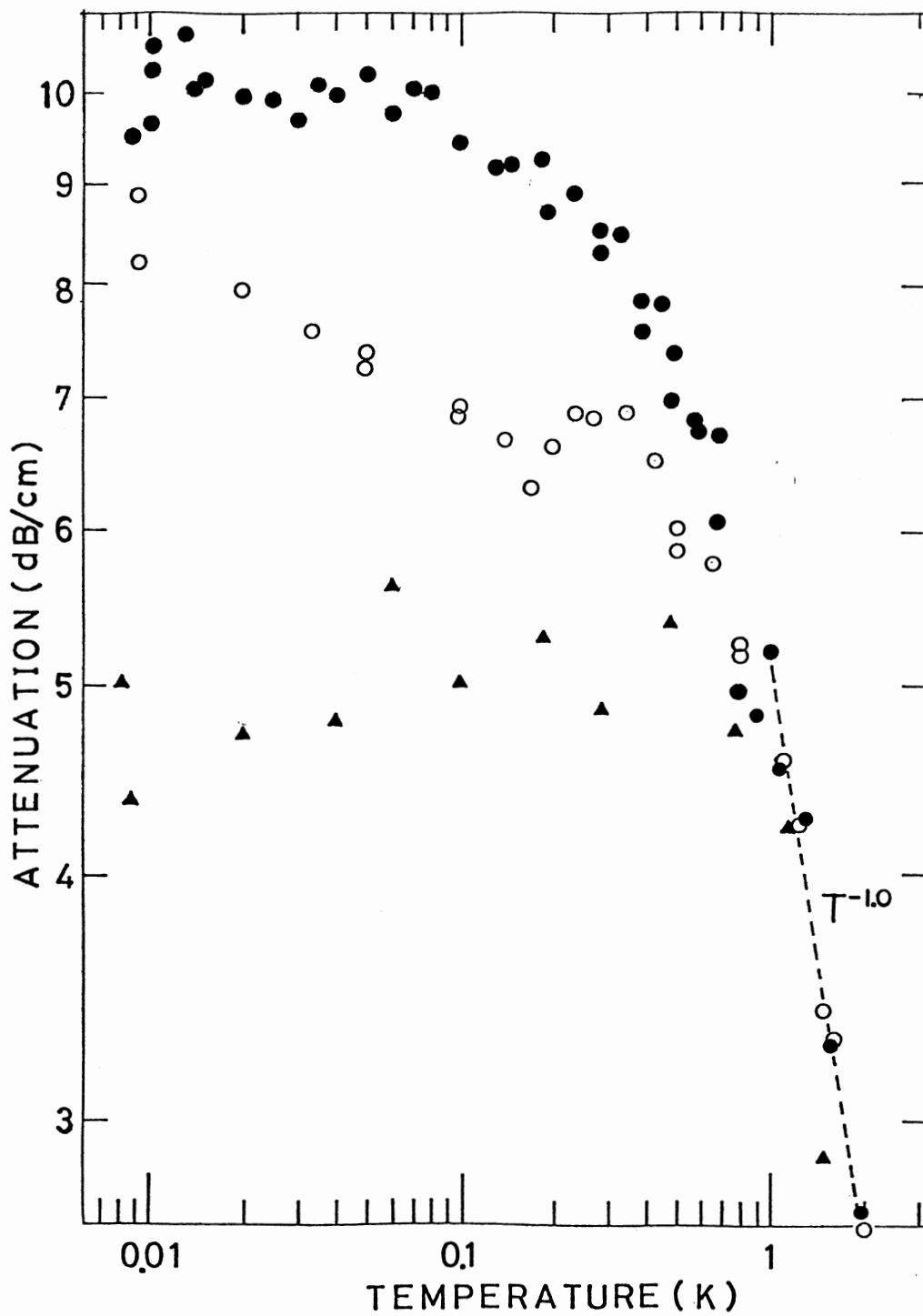


図2. 減衰ピーク α_p の温度依存性、○●は $\alpha_p(60\text{MHz})$ 、▲は $\alpha_p(20\text{MHz}) \times 3$

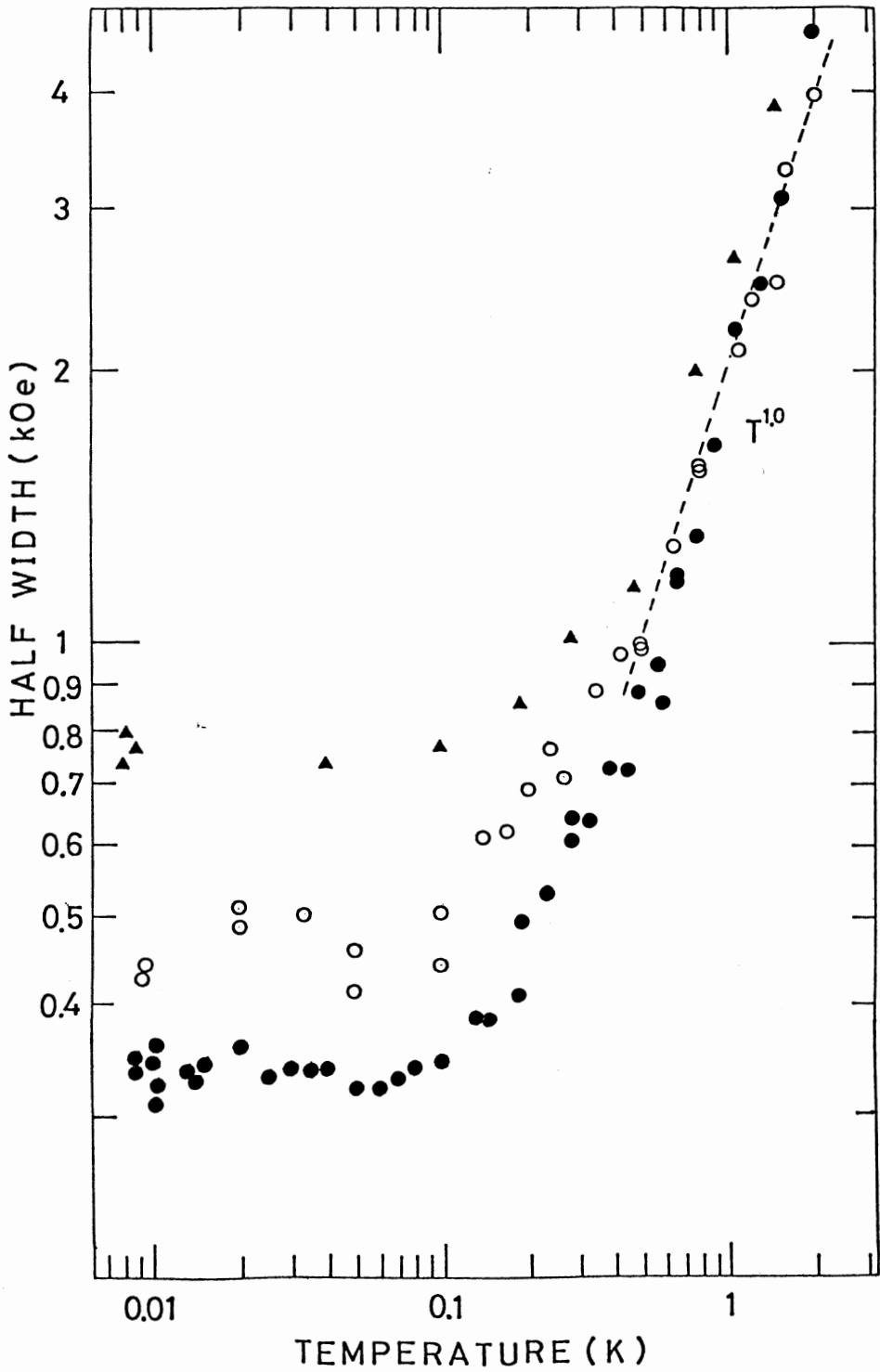


図 3. 半値幅 ΔH の温度依存性、○●は60MHz、▲は20MHz

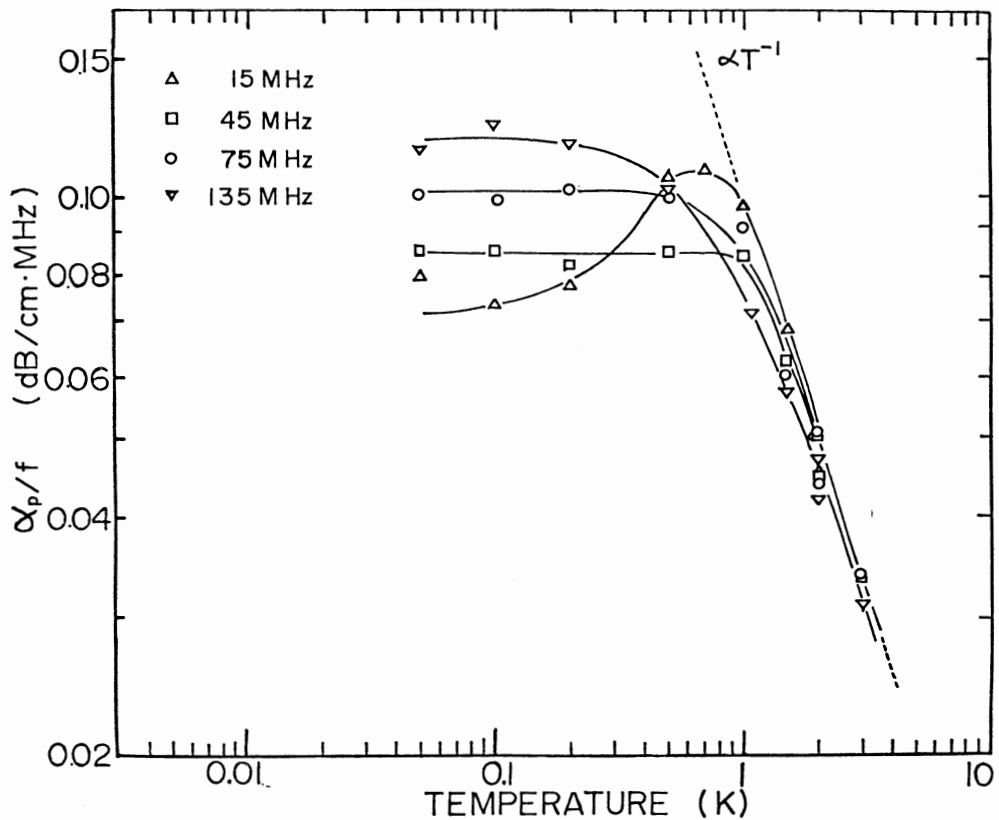


図4. 減衰ピークの温度依存性

られる。しかし $T < 1$ K における両者のちがいはかなり顕著である。

図2、3の三角印は20MHzの超音波を用いた場合の結果である。図2の三角印は20 MHzの α_p を3倍したものが示されている。従って高温側で両者（黒丸と三角）が一致するということは $\alpha_p \propto f^\nu$ と書いた時、 $\nu = 1$ である事を示す。一方低温側では両者の差は増大し $T = 50$ mKで $\nu \sim 2$ となっている。 $T < 1$ Kにおけるこの異常な周波数依存性をもっとくわしく測定した結果を図4に示す。この実験における H_p (100 mK) は89.12 kOeであり、図2、3の場合より約1 kOe低いことから磁場方向に 0.2° 程度のずれがあると考えられる。また図3と比較して ΔH (100 mK)は約2.5倍大きく α_p (100 mK)は約1/1.7に減小していることは、この間、試料に多少劣化が起ったと考えられる。しかし、図2でみられたような異常な周波数依存性は、定性的には明確に再現されている。図5は α_p の f 依存性を示したものである。2 Kにおける $\alpha_p \propto f^{1.0}$ はKajimuraら⁴⁾の

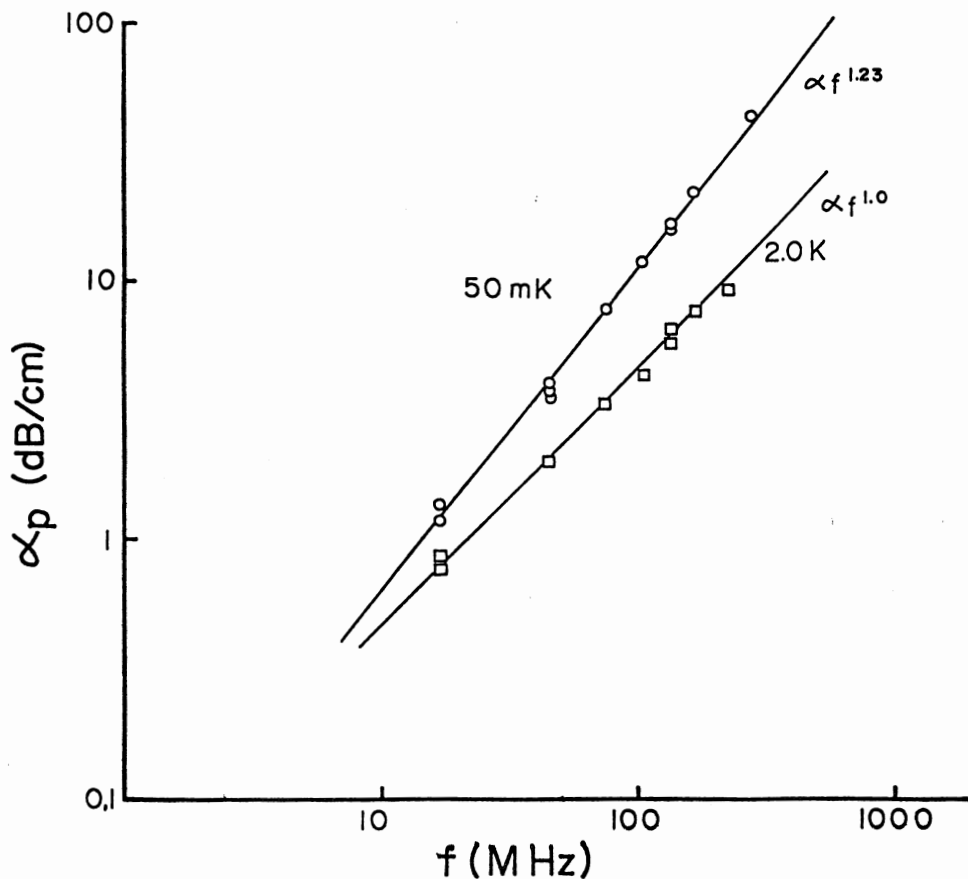


図5. 減衰ピークの周波数依存性

結果と一致し正常な振舞を示しているのに対し、50mKでは $\alpha_p \propto f^{1.23}$ となっている。さらにこの中間の温度ではきわめて複雑な f 依存性を示し、1 K 付近では $\nu < 1$ となっている。

[3] 考 察

温度が2 K 付近あるいはそれ以上における振舞はKajimuraら⁴⁾の1 K以上での実験結果ときわめて良い一致を示している。一方これより低温における α_p の温度依存性は超音波の周波数、磁場方向、試料の良さなどによって変化がみとめられるが、低温になるに従って温度依存性が小さくなり一定値に漸近してゆく傾向は定性的にはYoshioka⁸⁾によって示された気体・液体型相転移を考慮した α_p の温度依存性と矛盾しない。しかし気体液体型相転移に不可欠な高磁場側にトビのある強い非対称性を有する減衰ピー

クが観測されていないことは、我々が転移温度 T_{GL} 以下に達している可能性はない。気体・液体型相転移を考えた場合、相転移点 T_{GL} に近い程、周波数が高い程ゆらぎの効果が強くでる。Yoshioka⁹⁾によれば $T_{GL} \sim 0.2\text{K}$ とした場合およそ 1.5K を境にして低温側で $\nu > 1$ 、高温側で $\nu < 1$ となる。相転移点より充分高い温度では正常な周波数依存性 $\nu = 1$ を示すはずであるから、我々の実験条件において $T_{GL} \ll 0.2\text{K}$ と考え理論計算の温度目盛を低温側にずらせば、図4に示す我々の実験結果は気体液体型相転移のゆらぎによる減衰の周波数および温度依存性をかなり良く再現しているように思われる。

極低温領域における振舞は磁場方向にきわめて敏感であり、最適な方向に精度よく試料を固定する事はきわめて重要である。現在極低温強磁場中で試料を回転し最適な磁場方向に固定できるよう装置を改造中であり、これを用いて、**異常の原因が何か、相転移は実在するのか**をさらに解明していく予定である。

文 献

- 1) V. L. Gurevich, V. G. Skovob, and Yu. A. Firsov; Sov. Phys-JETP **13** (1961) 552.
- 2) S. H. Liu and A. M. Toxen; Phys. Rev, **138** (1965) A 487.
- 3) S. Mase, Y. Matsumoto, T. Sakai, and Y. Suido, Proc. LT 12, Kyoto (1971) 575. T. Sakai, N. Goto and S. Mase; J. Phys. Soc. Jpn. **35** (1973) 1064.
- 4) K. Kajimura, H. Tokumoto, R. Inaba, and N. Mikoshiba : Phys. Rev. **B12** (1975) 5488.
- 5) H. Fukuyama and T. Nagai; Phys. Rev **B 3** (1971) 4413, and J. Phys. Soc. Jpn. **31** (1971) 812.
- 6) K. Nakanishi and K. Maki ; J. Low Temp. Phys. **14** (1974) 87.
- 7) Y. Kuramoto; Z Phys. **B35** (1979) 233.
- 8) D. Yoshioka; J. Phys. Soc. Jpn. **45** (1978) 1165, D. Yoshioka and, S. Nakajima ; ibid. **41** (1976) 368, D. Yoshioka ; ibid **44** (1978) 356.
- 9) D. Yoshioka 私信.

§ 2. 100mK以下の温度での n 型 InSb の抵抗測定

^A 森田清三、^B 深瀬哲郎、^C 石田修一、^A 御子柴宣夫

A 通研、 B 金研、 C 大阪大理

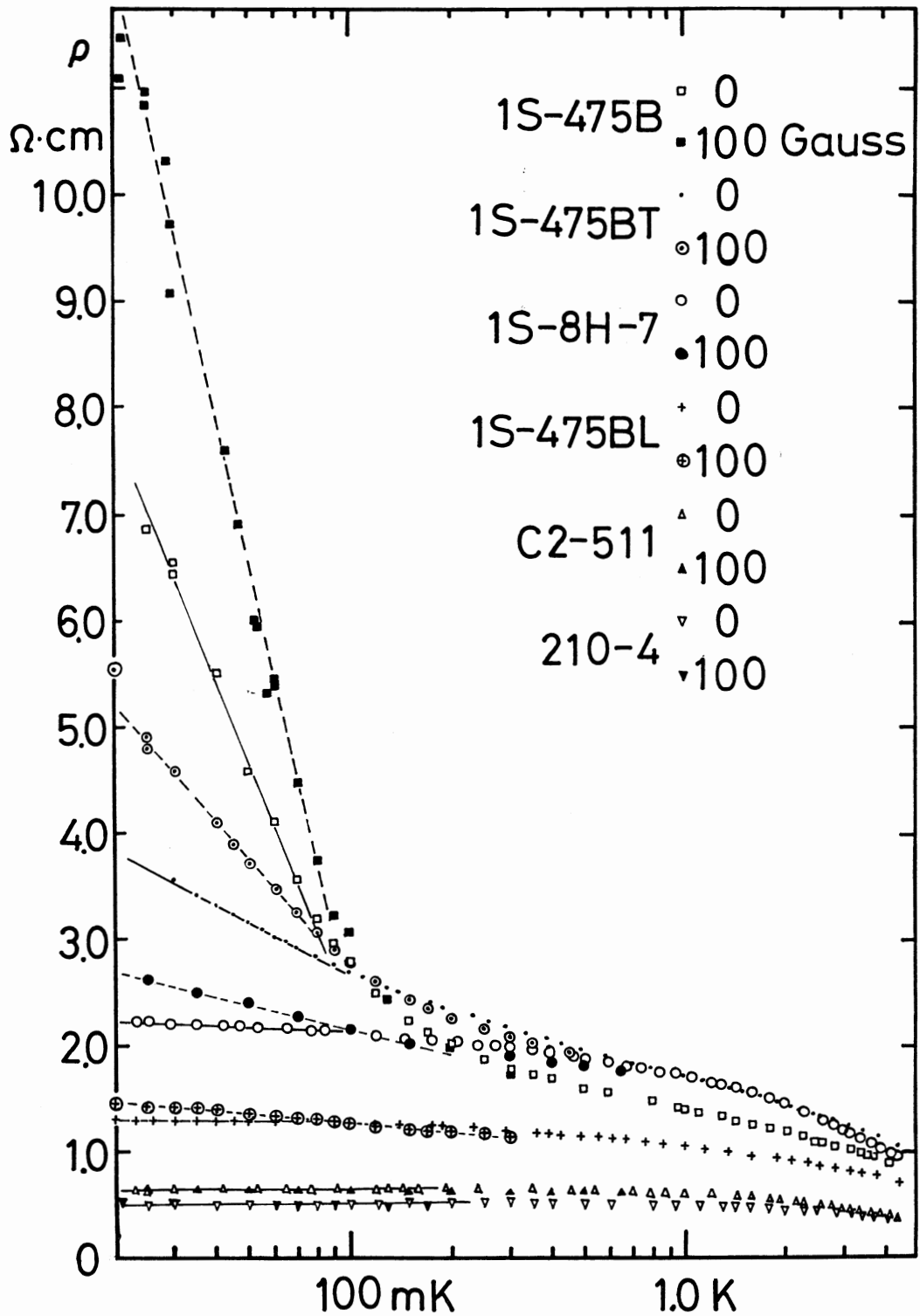
〔1〕序 論

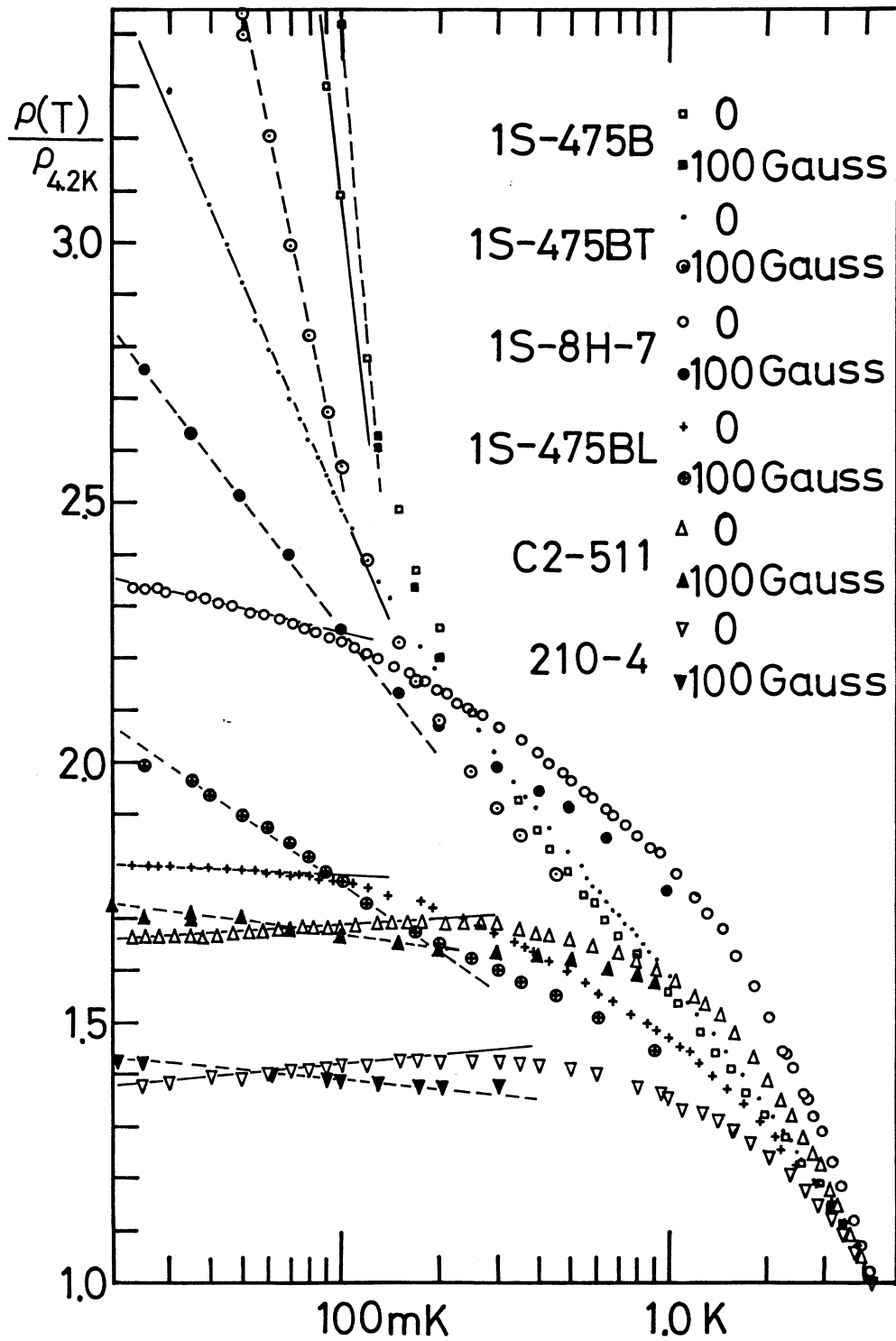
金属型不純物伝導領域での不純物半導体、特にGeやSiの物性に関しては広汎な研究がなされており、希薄合金の場合の抵抗の対数的温度依存性（近藤効果）や負の磁気抵抗等との類似が指適されている。しかし最近 s-d モデルだけでは説明できない種々の異常が佐々木等により極低温で発見されはじめている。¹⁾

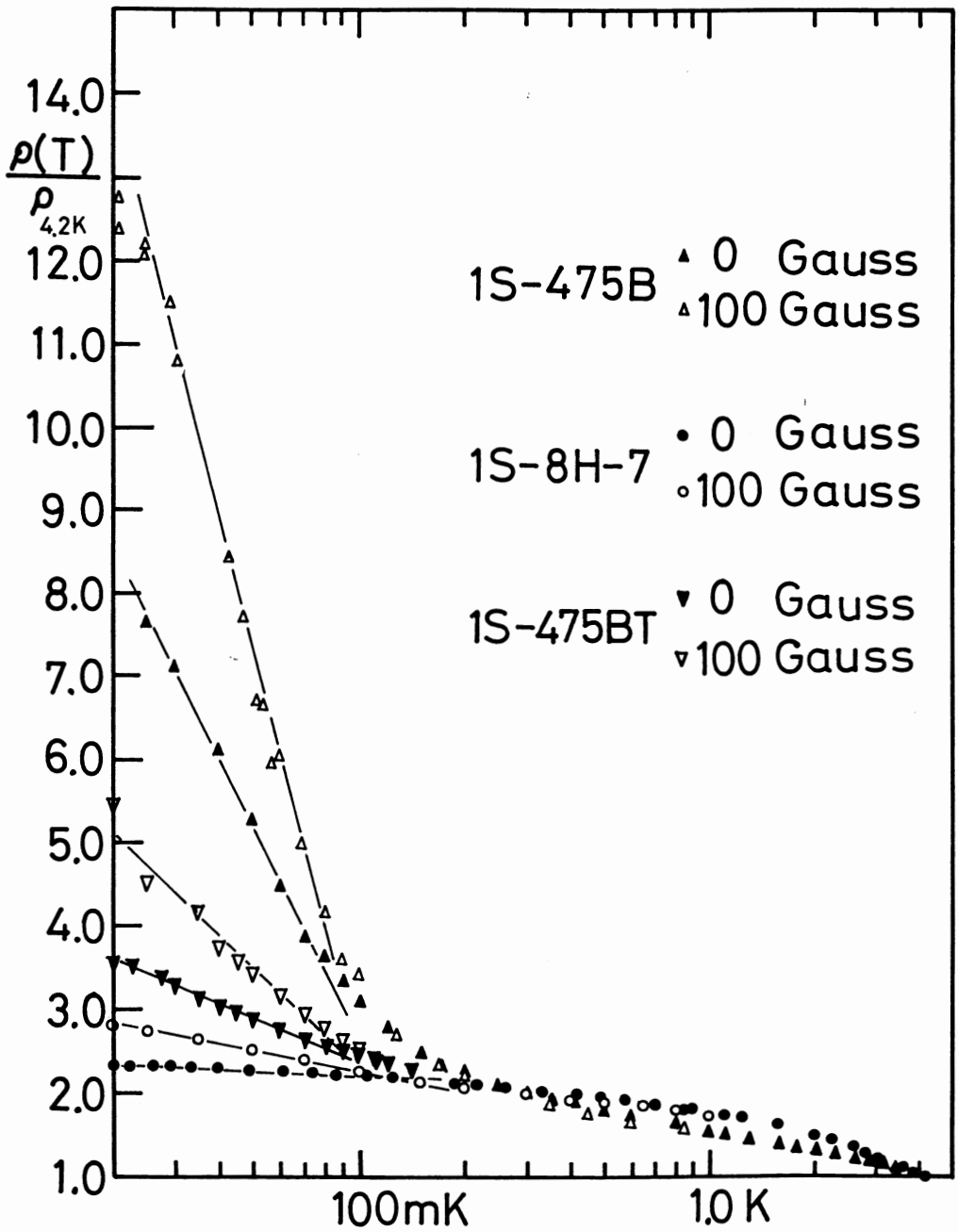
我々は、GeやSi以外の不純物半導体にもなんらかの異常が見出されるはずだとの期待のもとに、有効質量 ($m^* = 0.014m_0$) が小さく有効 g フアクタ ($g^* = -51.3$) が大きくて、しかも半導体では一番早く抵抗の対数的温度依存性（近藤効果）が発見された n 型 InSb の 100mK 以下の極低温での実験を開始した。n 型 InSb の極低温での（磁気）抵抗の測定は、1966年に片山、田中氏²⁾により 100mK 以上の温度で行なわれたのが主なもので、彼らはこの実験で、抵抗の対数的温度依存性（近藤効果）や負の磁気抵抗を発見しており、この結果は、s-d モデルの枠内で説明可能であるとしている。しかし最近の我々の実験では、数 100 mK 以下の極低温で、従来の s-d モデルでは説明できない非常に興味ある現象が見出されており、GeやSiとも違う結果が得られている。

〔2〕実験結果

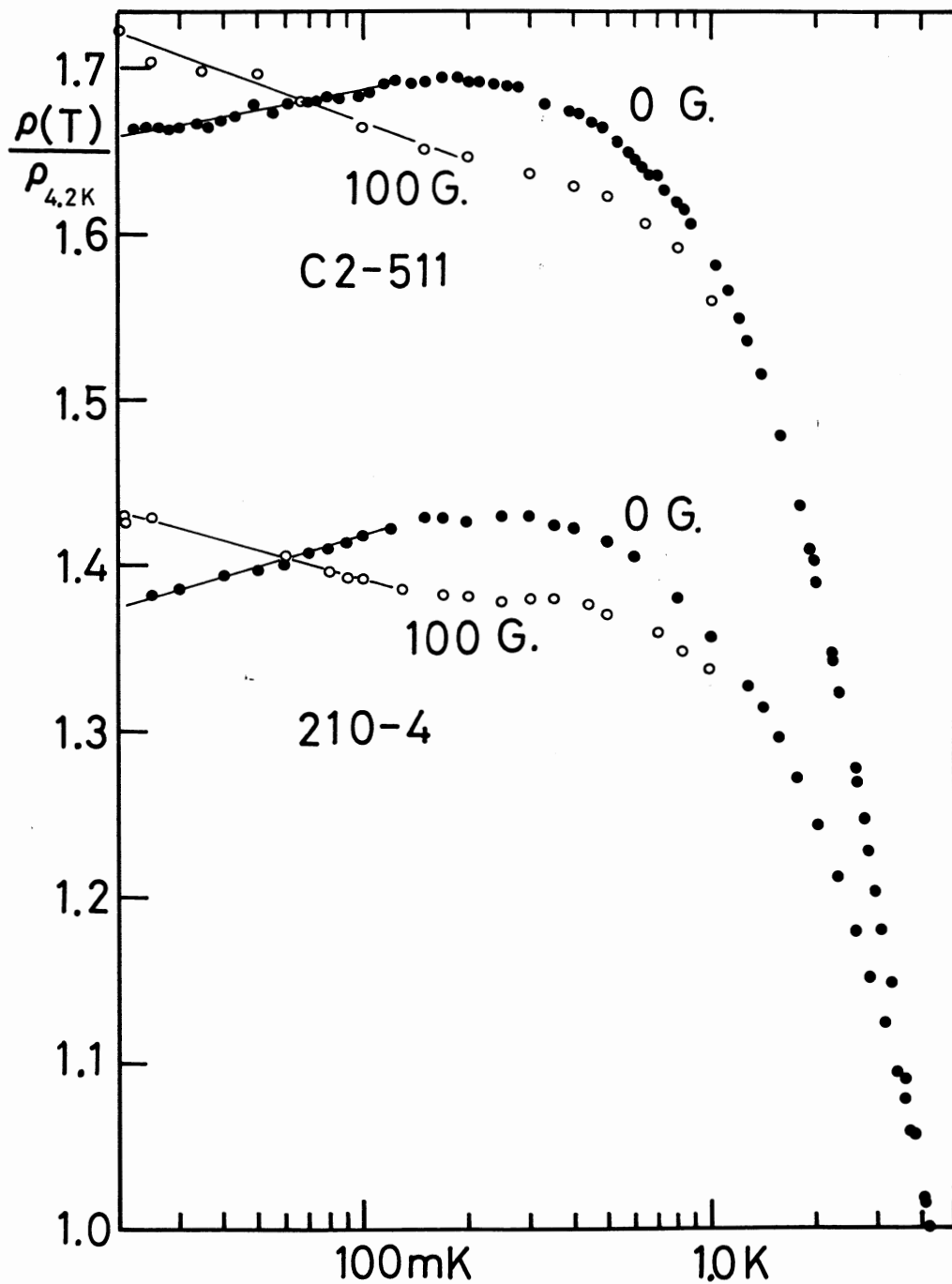
金属型不純物伝導領域 ($6.0 \times 10^{13} \text{cm}^{-3} \leq N_D - N_A \leq 4.0 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$) の 6 コの n 型 InSb の試料 ($1.0 \times 10^{14} \text{cm}^{-3} \leq N_D - N_A \leq 3.0 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$) の抵抗を 20mK 迄の温度と 100 ガウス迄の磁場で測定した (図 1)。測定した試料は、1 K 以上の温度では片山、田中氏等²⁾が発見したのと同様の抵抗の対数的温度依存性と負の磁気抵抗を示した (図 2)。100 mK 以下では、①低濃度 ($N_D - N_A < 2.0 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$) の試料は、試料に強く依存する新たな対数的温度依存性を示し (図 3)、かつ② 100 ガウス以内の磁場で、対数的温度依存性の傾きの増加を示し (図 3)、他方③高濃度 ($N_D - N_A > 2.0 \times 10^{14} \text{cm}^{-3}$) の試料は 100 ~ 300mK で抵抗が極大値をとり、それより低温側では温度係数が逆転した (図 4)。④また、すべての試料は、数 100 mK 以下で負の磁気抵抗の減少と試料に強く依存する正の磁気抵抗の増加を示した (図 5)。

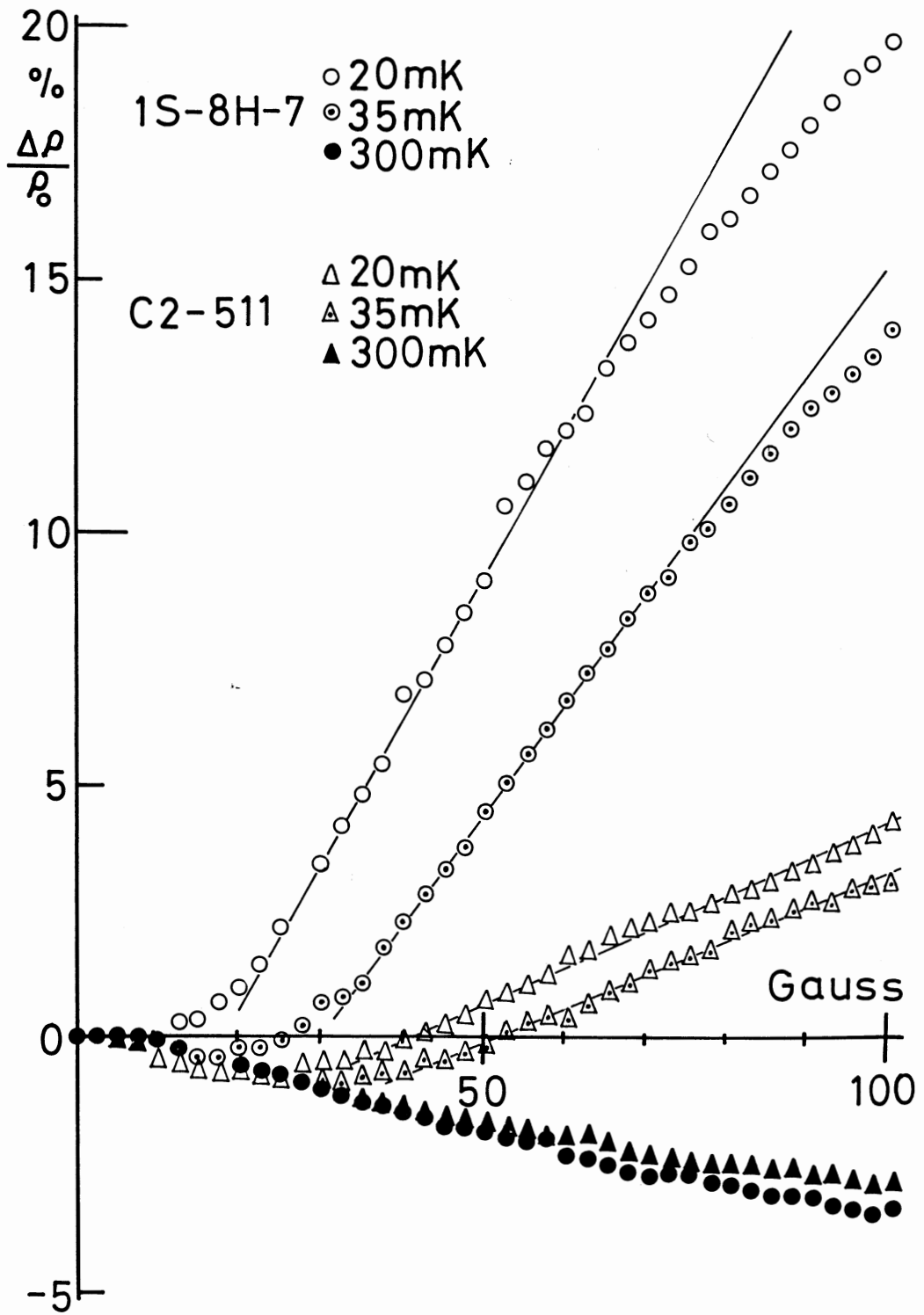






☒ 3





☒ 5

〔3〕 実験結果の検討と今後の方針

従来の s-d モデルでは、抵抗の対数的温度依存性（近藤効果）が観測される場合は、必ず負の磁気抵抗が見出されるはずにもかかわらず、正の磁気抵抗を示す事。又、n 型 InSb では、100 ガウスの磁場で $g\mu_B H \gg k_B T$ （ T は 100 mK 以下）であり、この場合対数的温度依存性は観測されなくなるはずにもかかわらず、かえって強い対数的温度依存性が観測されている。

〔2〕 で述べた他の実験結果も含めて、従来の s-d モデルで簡単に説明できない非常に興味深い結果である。Ge や Si とは本質的に異なっているように見える。これらの様々な異常な実験結果を説明するため、現在、いろいろなモデルの検討を行ないつつある。今後、縦磁気抵抗と横磁気抵抗の違いや、1 K 以上の温度で 1 K ガウス以上の高磁場でおこる正の磁気抵抗と 100 mK 以下の温度で 100 ガウス以下の磁場でおこる正の磁気抵抗の関連を実験的に明らかにしていく予定である。

参考文献

- 1) 大塚洋一：日本物理学会 1979 年秋の分科会講演予稿集 分冊 2 P. 126
(半導体シンポジウム)
- 2) Y. KATAYAMA and S. TANAKA, Phys. Rev. **153** (1967) 873。

§ 3. 層状化合物 $1T-Ta_{1-x}Ti_xS_2$ の電気伝導の異常

金研

小林典男、佐々木尚子

物質はその次元数が変化するとき、単に運動の自由度が変化するだけでなく、物理的性質の質的変化が起る。最近、この様な、次元と物性の関係についての興味から、低次元物質の研究がさかに行なわれている。ここで報告する遷移金属ダイカルコゲナイドもその一つである。この研究は、主に低温センターに設置された大型稀積冷凍機及び超電導マグネットを利用して行なわれた。

遷移金属 (M) 1 個とカルコゲン原子 (X) 2 個が結合した、 MX_2 の形で記述される遷移金属カルコゲナイドの多くは、層状の結晶構造を持っている。この化合物は各層が三角プリズムまたは八面体構造の基本単位から構成されており、積層の形から、 $1T$ 、 $2H$ 、 $4H$ 、……等数多くのポリタイプに分類される。また、この結晶構造を反映し

て、その物性は準二次元的な性質を示している。たとえば、1974年にWilsonによって発見され、注目をあびた電荷密度波 (CDW)の形成は、このような性質から導びかれるものである。

V族の遷移金属ダイカルコゲナイドは、一般に金属的性質を示し、かつ低温で超伝導状態となるものが多いが、1T-TaS₂は60 K以上で温度の減少とともに抵抗は発散し半導体的である。1T-TaS₂のヘリウム温度以上の性質についてはCDWの発見以来、数多くの研究がなされ、かなりの部分が明らかになっている。この物質はまず約600 Kで高温のnormal状態からCDWの周期が結晶周期と直接関係しないincommensurateなCDW状態に移り、360 Kから200 Kで現われる中間的なnearly commensurateな状態を経て、200 K以下で結晶周期の整数倍の周期を持ったcommensurateな状態となる。このCDWの形成に伴ってフェルミ面の一部が破壊され、エネルギーギャップが生じる。

1T-TaS₂ではこのギャップの形成のために、半導体的な性質を示すものと考えられている。このようなCDW相において、磁気抵抗の異常、伝導がオームの法則に従わないといった電気伝導の異常が報告されている。

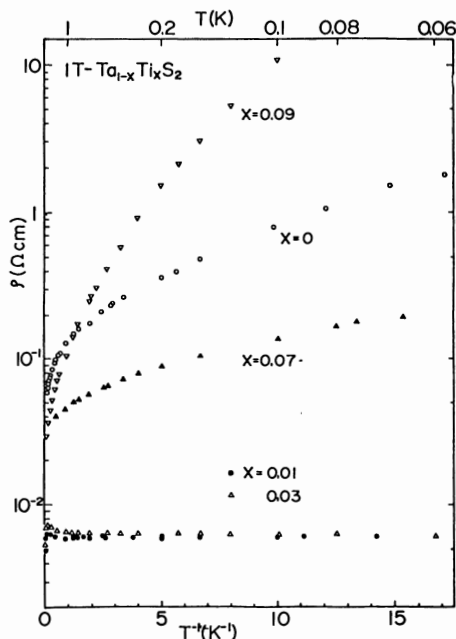
我々は、この1T-TaS₂における伝導の機構を明らかにするため、大型稀釈冷凍機及び強磁場超伝導マグネットを利用して、1T-TaS₂とそのTi混晶系1T-Ta_{1-x}Ti_xS₂の電気抵抗の温度依存性及び磁場依存性を20mKまでの広い温度範囲で測定した。Tiの添加によって伝導に関与する電子数は減少し、フェルミレベルはさがることが期待される。またcommensurate相への転移は完全に消え、低温ではnearly commensurate相のまま残る。

第1図は、約50 Kから60mKまでの比抵抗 ρ を1/Tで表わしたものである。 $x=0.01$ 、0.03の試料では、温度の減少に従って、 ρ はまず増加し20 K程度で最大となった後、約1 Kまで減少する。1 K以下では ρ はほぼ一定値6 m Ω cmをとる。絶対零度でも有限な電気伝導度を持つというこの結果は、試料が金属的であることを示している。図には示さないが $x=0.14$ の場合もほとんど同じである。

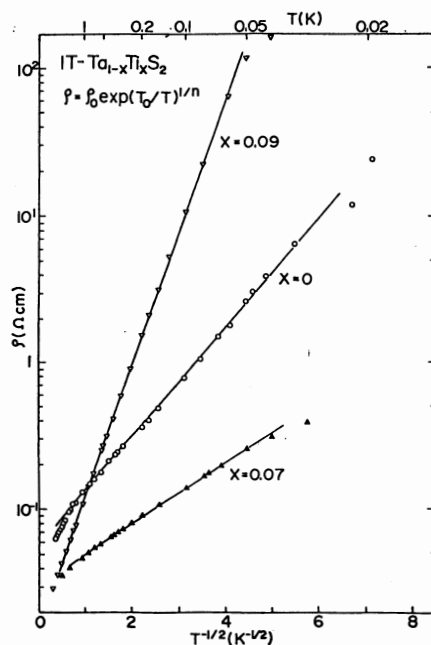
一方、 $x=0$ 、0.07、0.09の試料の場合は、温度の減少とともに、 ρ は単調に増加する。絶対零度では伝導度は0になることが期待され、非金属的な状態にあると考えられる。従ってこの物質系ではTi濃度の増加とともに、非金属—金属—非金属—金属転移が起る。非金属状態の試料の温度の減少による抵抗の増加の様子を明らかにするた

めに、 ρ を $T^{-1/2}$ で表わしたものが第2図である。1 Kから50mKまで非常に良く直線にのる。従って、 ρ は次式で記述される。

$$\rho = \rho_0 \exp(T_0/T)^{1/n} \quad n = 2 \quad (1)$$



第 1 図



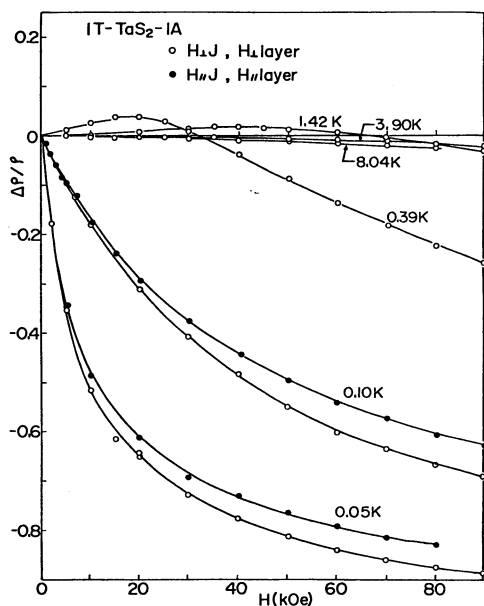
第 2 図

この温度依存性は、アンダーソン局在状態下における広領域ホッピングによる伝導に特徴的なものである。アンダーソン局在と呼ばれる現象は、結晶中に不純物等に起因して不規則なポテンシャルが存在するとき、易動度端 E_c で定義される値よりも低いエネルギーを持ったキャリアは、ポテンシャルによって空間的に局在してしまう状態を言う。もしフェルミエネルギーがこの様な低い値である場合、伝導はフェルミレベルから E_c への励起によって起る。極低温では、励起によらず、広がりを持った領域へのホッピングによって伝導は支配される。この場合抵抗は(1)式によって記述される。(1)式の T_0 の値はエネルギー差 $E_c - E_F$ に比例する。ここで使用した試料ではこのエネルギー差は数度程度に推測される。

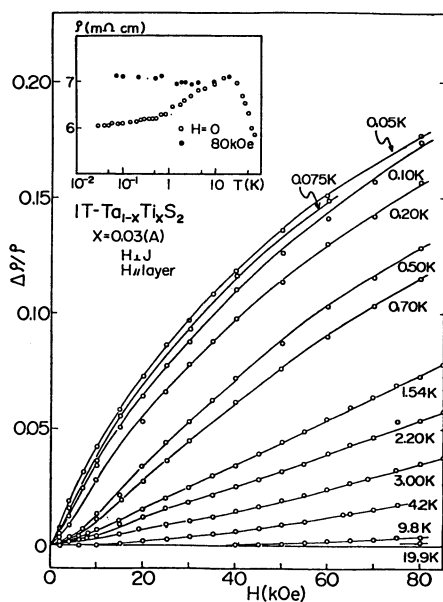
この局在状態を規定する E_c の値は不純物の増加によって増大する。一方 E_F の値は、Ti濃度の増加によって減少する。上述のアンダーソン局在状態の立場から、実験結果を次の様に考えることができる。Tiを含んだ試料では、低温で安定なCDWはnearly commensurate相であって、エネルギーギャップはフェルミ面の一部だけを破壊し、

ギャップ中に両端が局在した小さなバンドが残る。このバンドが 1,3%の試料の金属的な伝導に参与しているものと考えられる。14%の場合にはTiS₂の性質も考慮に入れる必要があるだろう。一方高濃度の試料では、Ti濃度の増加によって前述した様に、E_cは増加し、E_Fは減少する。このためE_FはE_cよりも低くなり、局在した状態に転移する。x = 0 の試料では、低温でcommensurateなCDWが形成され、フェルミ面の破壊はすすみ、わずかの不純物や結晶欠陥によって局在したものと考えられる。

次に磁場依存性の結果について示す。第3図はTiを含まない試料の磁気抵抗である。3 K以上で、磁気抵抗は負であって、温度が減少すると、一時低磁場で正値をとるが 0.1 K以下では再び全磁場で負となる。0.05 Kでは、90kOeで90%にもなる抵抗の減少が観測された。この非常に大きな負の磁気抵抗は、低磁場では磁場に比例し、高磁場で飽和する傾向にある。またこの結果は磁場の方向にあまり依存しない。



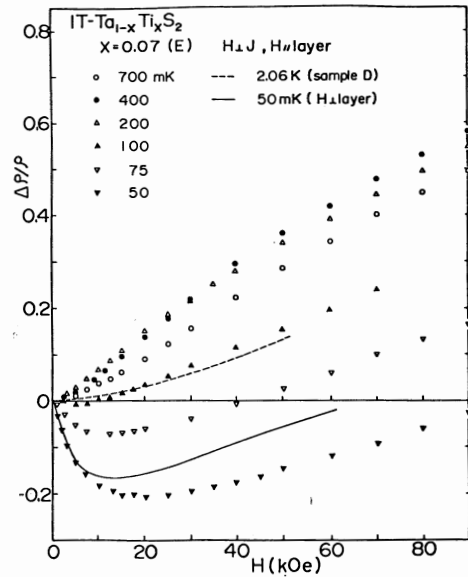
第 3 図



第 4 図

第4図は、金属状態にある3%の試料の横磁気抵抗である。1%、14%の試料も定性的に同じ結果を示している。20 K程度では、比較的小さい正の磁気抵抗を示し、H²に近い依存性を持っている。Δρ/ρの値は温度の減少とともに単調に増加し、0.1 K以下では変化は飽和する傾向にある。図は磁場を試料の層に平行にかけた場合であるが直角にかけた場合も測定され、結晶構造から期待されるほど大きな異方性は示さない。

第5図に7%Tiの試料の1K以下の結果を示す。9%の試料も定性的に同じである。図には示されていないが、15K以上で $|\Delta\rho/\rho| < 0.01$ である様な小さな負の磁気抵抗が観測された。温度が減少するとき、 $\Delta\rho/\rho$ は約10Kで符号が正に変わり、増加する。2.06Kの結果が点線で示されている。0.4Kで最大値をとり、それ以下の温度では、再び減少しはじめる。0.1Kでは低磁場で負になり、0.05Kでは測定された全磁場で負である。この温度による変化の様子は、大きさの差を別にするれば、 $x=0$ の場合と定性的に似ている。



第 5 図

すなわち、極低温での負の磁気抵抗は、局在状態において現われる現象であると言える。最低温度0.05Kでの磁気抵抗の磁場依存性は $x=0$ の場合とやや異なり、 $\Delta\rho/\rho$ は約20kOeで最小値をとり、さらに磁場が大きくなるとき、増加する。また、磁場を層に直角にかけた場合の結果が実線で示されているが、低磁場ではほとんど異方性が観測されず、高磁場で約10%程度の差があらわれる。この差は $\Delta\rho/\rho$ の値が最も大きな0.4K程度でもかわらず、この値はやはり結晶構造から期待されるよりも小さい様に思われる。

この様に、金属状態と非金属状態とでは磁気抵抗の定性的傾向が全く異なる。まとめると、金属状態においては、温度が減少するとき、磁気抵抗は次第に増大し、0.1K以下では飽和する傾向にある。しかし非金属状態では、磁気抵抗は約0.5K程度まで急激に増加し($x=0$ の場合、この増加はあまり大きくない)0.2—0.4K付近で最大となった後減少し、最低温度では負になる。

この異常な磁気抵抗のふるまいを半定量的に理解するモデルが、最近芳田—福山によって提唱された。

非金属状態において、(1)式に現われる T_0 の値は $E_c - E_F$ に比例し、そのエネルギー差は小さい。また金属状態では、 $E_F > E_c$ であるがやはりその差は数度の程度である。

この様にエネルギー差が小さい場合、磁場による E_F 、 E_c の変化が考慮される必要があ

る。磁場中で E_F の値、すなわち電子によって定められた最も高いエネルギー値はゼーマン効果のために、スピンの方向に依存して $\pm \frac{1}{2}g\mu_B H$ だけシフトする。この時、局在状態において、磁場と同じ方向のスピンの電子のエネルギーと E_C とのエネルギー差は $E_C - E_F - \frac{1}{2}g\mu_B H$ で与えられ、磁場が増加するに従ってそのエネルギー差は減少する。このためにホッピングの確率は増加し、(1)式から導びかれる様に抵抗は減少する。逆に、金属状態では、磁場と逆方向のスピンの電子と E_C とのエネルギー差($E_F - \frac{1}{2}g\mu_B H - E_C$)が磁場によって減少し、伝導に関与している電子の一部が局在状態に落ちこんでいく結果、伝導度は減少する(正の磁気抵抗)。基本的な考え方は以上の通りであるが、芳田一福山はさらに E_C の磁場依存性を考慮して定式化した。適当な仮定のもとに数値計算した結果は、半定量的にはあるが我々の実験結果を良く説明する。

1 T-Ta_{1-x}Ti_xS₂系は、金属-非金属状態の問題に対して、新しい結果を提供している。我々は、今後二つの方向から研究を進めるつもりでいる。一つは転移濃度近傍の詳細な実験を行なうこと、もう一方は、比熱、帯磁率などの測定を行なって、別の面から問題を見なおすことである。

この他に、大型稀釈冷凍機を使用して、希土類Euを含んだシェブレル化合物Eu_xSn_yMo₆S₈や、層状化合物Ta_{1-x}Nb_xSe₂の超伝導的性質の研究も行なっている。上記の化合物の数種類の試料について、上部臨界磁場 H_{c2} の温度依存性を超伝導転移温度から50mKまで広い温度範囲にわたって測定することができた。これらの実験は著者の一人(小林)が、シェブレル化合物については武藤室石野氏と、層状化合物については片桐氏と共同で行なった。

1 T-Ta_{1-x}Ti_xS₂の研究結果は下記の論文として発表された。

- i) N. Kobayashi and Y. Muto : Solid State Commun. **30** (1979) 337.
- ii) N. Kobayashi, T. Sasaki and Y. Muto Submitted to J. Phys. Soc. Japan.

§ 4. Enhanced Nuclear Cooling and Nuclear Magnetism in TmVO₄ and TmPO₄

理学部 鈴木 治彦、井上 竜夫、東野 靖

[1] 序 核の磁気モーメントは電子の磁気モーメントに比べて $\sim 10^{-3}$ 程度小さい。従ってその磁気秩序の出現温度は電子の場合に比べて $\sim 10^{-6}$ 程度小さいと云える。この為に核の磁気秩序は超低温温度領域の技術開発が進んで初めて実現し得るものである。核の磁気秩序実現への道は大略して3つ有ると思われる。

1. ヘルシンキ・グループのように Brute force 的に $\sim 10^{-8}$ 程度まで冷却する方法。
2. Abragam 達のように回転系において少量の paramagnetic な不純物を利用して電磁波で核スピンを整列させてから消磁する方法。
3. Andres 達が精力的に行ってきた、一重項の電子状態を利用し、超微細相互作用により電子の助けを借りて断熱消磁冷却をする方法。

以上の3つである。我々が低温センターの³He-⁴He 稀釈冷凍器を用いて現在行っていること、即ちこれからその一部を御報告しようとしているのは上の分類の3に入るものである。しかし乍ら Andres 達は主に Pr の金属間化合物を用いているのに対して、我々は誘電体である RXO₄ で表わされる希土類酸化物を用いている。両者の相異点として次のことが挙げられる。前者 (Pr の金属間化合物) は一般に単結晶を作るのが難しく良い結晶が得難い。それに対して後者 (RXO₄: HoVO₄, TmVO₄, TmPO₄, PrVO₄……) は大きな単結晶が作られている。前者の電子状態に対する情報は、比熱、帯磁率等の測定から推定するに止まっているが、後者はその結晶が光を通すことから光学的測定が行われており電子状態に対して十分な知見が得られている。

しかし乍ら他の系との熱接触と云う点に関しては前者の方が数段容易であり核断熱消磁冷凍に Pr の金属間化合物が広く使われている。一方核スピン間の相互作用は前者では伝導電子の働きが大きく効くのにに対して、後者では主に双極子-双極子相互作用である。どちらがより興味が有るかとなると人それぞれの考え方に依ると思われ、一概に何方とは云えないと思う。唯、より純粋に核スピンだけの系の磁気秩序の研究という立場から云えば後者の RXO₄ 系の方がより近いと思われる。

現在までのところ核スピン系の磁気秩序を実現しそのスピン構造についての実験結果も得ているのは、先に述べた Abragam 達の回転系における LiH、LiF 等と筆者ら

が行った HoVO_4 についてだけであると思う。

我々は現在低温センターの ^3He - ^4He 稀釈冷凍器 (D.R. と略す) を用いて TmVO_4 と TmPO_4 についての断熱消磁実験を行っており核スピン温度として約 100μ にまで到達しその温度以上の帯磁率測定を行った。その実験について御報告したいと思えます。 TmVO_4 については *Phys. Lett. A* に投稿中であり、この報告の多くはそれと重複するものであることをお断り致します。

[2] Enhanced Nuclear System.

以下の話を理解して頂く為に簡単に Enhanced Nuclear 系について述べておきます。先ず核スピン及び電子について、次のハミルトニアンが書けます。

$$H = H_x + g_J \mu_B (B \cdot J) + A_J (J \cdot I) - g_I \mu_B (B \cdot I) + H_Q \quad \dots\dots\dots(1)$$

ここで H_x は電子の結晶場との相互作用、 H_Q は核の電気四重極相互作用の項、第3項は電子と核との超微細相互作用の項です。今、結晶場の項 H_x により電子状態は一重項の基底状態 $|G\rangle$ とその上に励起状態 $|E\rangle$ を生じるとします。そのレベル間隔を Δ とします。又外部磁場を Z 方向にかけるとします。簡単の為 H_Q の項がないものとします (Tm の場合は $I = \frac{1}{2}$ なので実際に H_Q の項は有りません)。その時核スピンのエネルギーレベルの分裂は次式で表わされます。

$$W_N = -g_I \mu_B I_z B_z (1 + K_z) \quad \dots\dots\dots(2)$$

又核磁気モーメントは

$$M_z = g_I \mu_B I_z (1 + K_z) \quad \dots\dots\dots(3)$$

ここで $(1 + K_z)$ は一般に enhancement factor と呼ばれているもので次式で与えられます。

$$K_z = \frac{g_J}{g_I} \cdot A_J \cdot \frac{2 \langle E | J_z | G \rangle}{\Delta Z} \quad \dots\dots\dots(4)$$

即ち外部磁場によって誘導されて生じた電子の磁気モーメントとの超微細相互作用によって核が感じる強められた磁場の強められる度合を表わすものである。従って断熱消磁冷却を考えた時、外場 B_z が核にかかる時は実質的には $(1 + K_z) B_z$ として働く。例えば好く使われる物質 PrNi_5 では $1 + K_z \approx 14$ なので5万ガウスの磁場も70万ガウスとして核スピンに働く。我々が実験を行っている TmVO_4 の場合は $1 + K_z = 774$ ですので千ガウスの磁場でも77万ガウスとして核スピンに働らくことになる。しかし乍ら磁気秩序の出現も(3)式からも分るように $(1 + K_z)^2$ 、だけ高い温度になるので純粹の

核スピン系に比べるとかなり高い温度で起り、到達出来る温度も高くなってしまふ。

[3] $TmVO_4$ 及び $TmPO_4$ についての実験

$TmVO_4$ 及び $TmPO_4$ はいずれも室温では正方晶ジルコン構造をとるが、 $TmVO_4$ は低温では斜方晶型に変形する。いずれも低温では電子状態の基底状態は一重項であり励起状態とのエネルギー差 Δ はそれぞれ 3 cm^{-1} 及び 30 cm^{-1} である。また Tm の核スピンは $1/2$ であり従って電気四重極相互作用は考える必要がない。それぞれの enhancement factor ($1+K_z$) は NMR 等の実験によって求まっており 774 と 77 である。用いた試料はいずれも単結晶であるが $TmVO_4$ については二種類の試料を用いた。即ち flux 法で作った比較的小さな単結晶 (約 $2 \times 2 \times 5\text{ mm}$) と image arc 炉で作った大きな単結晶 ($5 \times 5 \times 25\text{ mm}^3$)。 $TmPO_4$ は flux 法で作ったものだけである。先ず低温センターの D.R. の最低温度を作る部分、即ち混合室に無酸素銅で作った試料取り付け棒を強く接触させた。その棒に超伝導の熱スイッチを間に入れ、200本の銅線を銀ろう付けし、その銅線で試料を被い GE のニスで固めて試料を混合室と熱接触した。この方法で D.R. の混合室が 10 mK の時試料が約 11 mK まで冷えた。測定は試料の enhancement factor の大きい方向 ($TmVO_4$ は c 軸、 $TmPO_4$ は a 軸) に SQUID を用いた AC 帯磁率を測定した。測定に用いた周波数は 16、32、80、160 Hz であり、通常は 16Hz 又は 80Hz で測定した。図 1 に $TmVO_4$ についての帯磁率の温度変化の結果

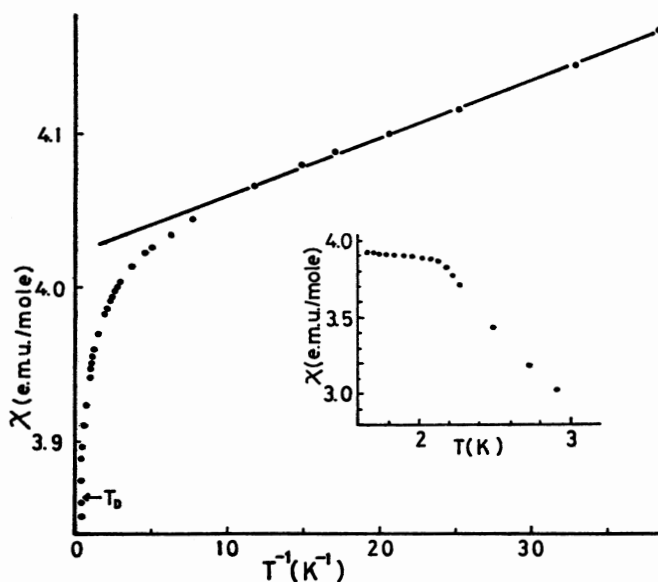


図 1

を示す。横軸は混合室についている CMN 温度計で測定した温度である。帯磁率は良くキュリー則に乗り、キュリー定数 $C=3.50 \times 10^{-3}$ e.m.u.K/mole が求まる。これは先に示した enhancement factor 774 を用いて計算から求めた $C=3.53 \times 10^{-3}$ e.m.u.K/mole と非常に良い一致を示している。次にこうして冷却された試料の最低温度約 11mK から種々の値の磁場をあけて約半日置いてから消磁する。最初に小さい磁場 100 Oe と 200 Oe の磁場から消磁する。その時消磁後の温度は未だ比較的高いのでキュリー則が成り立つ範囲なので測定した帯磁率の値から温度を求めます。そして良く知られた断熱消磁における初期温度 T_i と最終温度 T_f との関係式

$$T_f = (H_f^2 + b^2)^{1/2} / (H_i^2 + b^2)^{1/2} \times T_i \quad \dots\dots\dots(5)$$

を用いて b^2 即ち二乗平均の局所磁場を求める。TmVO₄ について $b=16$ と求まった。一方先に述べた enhancement factor 774 を用いて純粋に双極子相互作用だけを取り入れて計算すると $b=16$ 、NMR から得られた妥当な反強磁性相互作用も取り入れると $b=18$ と求まり実験値は非常に良く計算値と合う。TmPO₄ の場合は計算では $b=5$ であるが、我々の実験値では 30 で一致が良くない。

この実験から求めた b の値を用いて(5)式を使い、より大きな磁場からの断熱消磁後の温度を推定する。断熱消磁直後の測定した帯磁率をこの推定温度でプロットしたのが図 2 である。白丸と黒丸は各々小さな試料と大きな試料についての結果である。図か

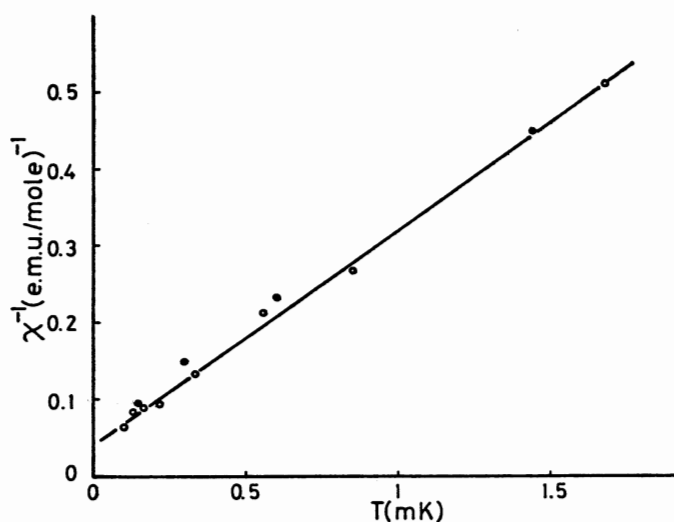


図 2

ら分るように結果は良くキュリー・ワイス則に乗りワイス温度 $\theta=139\mu\text{K}$ であり、キュリー定数 $C=3.55\times 10^{-3}\text{ e.m.u.}\cdot\text{K/mole}$ と求まり、先に求めた高温における実験結果と良く一致する。 TmVO_4 の核の磁気秩序出現の温度は Bleaney 達の計算によると純粋の双極子相互作用だけでは $250\mu\text{K}$ で強磁性的に転移し NMR の実験から得られた大きさの反強磁性交換相互作用を取り入れると $280\mu\text{K}$ で反強磁性に転移する。しかし我々の実験結果は $200\mu\text{K}$ まで何の磁気秩序も観測されていない。次に TmVO_4 について、スピン-格子緩和時間 τ_1 を AC 帯磁率に対する磁場の影響を測定することにより求めた。良く知られているように帯磁率に対する磁場の効果は次のような Casimir と du Pre の式で表わされる。

$$\chi(\text{O. T})-\chi(\text{B. T})=\frac{C}{T}\left(1-\frac{b^2}{B^2+b^2}\right)\left(\frac{\tau_1^2\omega^2}{1+\tau_1^2\omega^2}\right) \dots\dots\dots(6)$$

ここで ω は測定に用いている周波数であり、 b は前述のものである。一定磁場、一定温度で $\{\chi(\text{O. T})-\chi(\text{B. T})\}^{-1}$ を $1/\omega^2$ でプロットすると、その勾配を切片で割ることにより $1/\tau_1^2$ が求まる。 τ_1 の温度変化を示したのが図 3 である。ここで白丸は小さな試料に対して、黒丸は大きな試料に対する測定結果である。両者は 250mK 以上では大

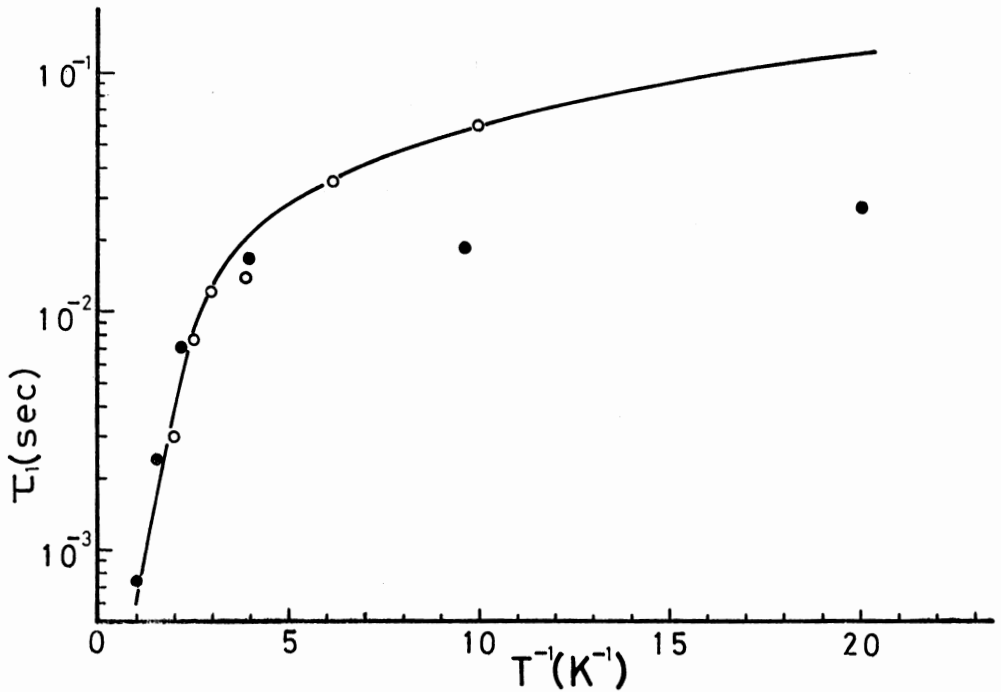


図 3

変良く一変している。それより低温で結果に相異が出て来るのは格子系の比熱が小さくなる為に格子系が良い熱浴でなくなり、結晶と外部熱浴（我々の場合は銅線を通して混合室）との熱のやり取りの違いが現われたものであろう。小さな試料の方が単位体積当りの熱のやり取りが大きくより本質的な τ_1 に近い値を測定していると思われる。この τ_1 の温度変化は、 $\tau_1^{-1} = 1.4 \times 10^4 \exp(-\Delta/2kT) + 5.2 \times 10^{-2} \coth(h\nu/2k_B T)$ の式から得た曲線に良く合う（図3の曲線）。 Δ は電子の最低項の一重項とその上のレベルとのエネルギー間隔であり TmVO_4 では $\Delta = 4.32\text{K}$ 、 $h\nu$ は外場によるゼーマンエネルギーであり TmVO_4 では $h\nu/2 = 3.30 \times 10^{-4}\text{K}$ ($B = 50\text{Oe}$ の時) である。第一項はOrbach process による緩和の式と類似のものであり第二項は direct process による緩和の式である。

超微細相互作用の有る時の核のスピン-格子緩和時間については Abragam 達の簡単な議論が有るが、我々が得た結果について係数等までを含めた詳細な議論は今後の問題であろう。以上の我々の実験結果から核の磁性以外に応用面からも TmVO_4 は興味がある。一つは**磁気温度計としての有用性**である。即ち τ_1 が短くレスポンスが良く、帯磁率が大変良くキュリー・ワイス則に乗り $100\ \mu\text{K}$ 近くまで直線性が良く、enhancement factor が大きいので磁気モーメントが大きく測定が容易である。

〔4〕 今後の課題

TmVO_4 において未だ核の磁気オーダーを観測していない。それで現在二段核断熱消磁、即ち初段に PrNi_5 又は PrCu_6 を用いてそれらの断熱消磁により試料を約 $1 \sim 2\ \text{mK}$ まで冷却し、次に試料自体の断熱消磁を行い Tm の核スピン温度を $10\ \mu\text{K}$ 以下まで冷却して核スピンの磁気秩序を実現したいと考え現在実験中である。その秩序状態での物性測定が今後の課題の中心の一つである。 TmPO_4 については断熱消磁の実験自体も未だ理論と大巾に合わず今後実験を重ねる必要がある。実験技術としてはその他に、断熱消磁後の帯磁率測定に SQUID は必ずしも適してはいないので Robinson の開発した低レベルの AC 帯磁率測定回路を東野君の協力で作製、テストの結果も良いので今後使用していきたいと思っている。又 $1\ \text{K}$ 以上で TmVO_4 等の SQUID-NMR の信号も取れているので今後 D.R. 温度での実験及び秩序状態での測定を進めていきたい。 Tm 系以外に PrVO_4 、 PrPO_4 等まだまだ試料も有り、それらも含めて当初の目的通り核の磁気秩序状態での物性測定を完結するためには未だ未だ時間がかかることでしょう。

現在以上に皆様の御協力を得て低温センターの D.R. の machine time を1日でも多く使わせて頂けたらと願っています。

しかし、それでも各物質についての結果を学会で何度か報告していると「馬鹿の一つ覚えで!!」と云うような声も聞こえることでしょう。液体又は固体の ^3He の研究をしないとたとえ温度領域が μK でも超低温グループからは出されてしまうかも知れませんが……。

§5. 有機物磁性体における極低温磁性 — TANOL —

非水研

熊野 勝文、池上 雄作

[1] はじめに 化合物磁性体のなかでも、無機化合物や錯塩結晶はスピン間相互作用の型や大きさに多様性があり、多くの研究例が報告されているが、その多くはスピンの局在化している。一方、不対電子が非局在化した分子集合体がどのような磁性を示すかは興味のあるところであるが、系統的な研究は非常に少ない。有機物磁性体では DPPH のようにスピンの分子内で非局在化した化合物が多く存在するので、このような研究には適している。われわれは、比較的簡単な分子内スピン分布をもつ系として

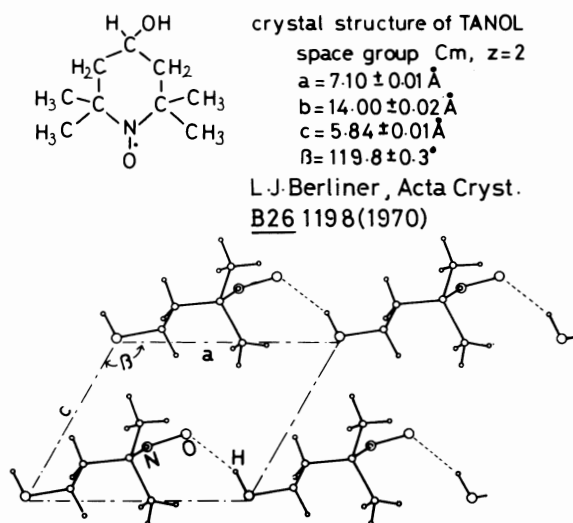


図 1

図1に示す TANOL (4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethyl piperidinoxy) 単結晶をとりあげ、磁気測定をすすめてきた。図1で、不対電子はNとOの2p軌道に約3対7の割合で分離して局在している。比熱¹⁾、磁化率²⁾、NMRの T_1 測定結果³⁾は $|J|/k_B \sim 4K$ のハイゼンベルク型一次元的相互作用の存在を示している。一次元鎖の方向はC軸である^{3,4)}。また、 $|J|/180$ 程度の鎖間相互作用により0.49Kで長距離秩序が現われ、反強磁性を示す⁵⁾。(a·c)面内に磁場を印加したときのプロトンNMR測定により、 $H_0 // (10 T)$ のとき、0.2K以下で約2.2kOeにスピン反転が観測され、1分子あたりの磁気モーメントが約 $0.37 \mu_B$ と見積られた⁶⁾。磁性の詳細を知るために、今回縦磁場中磁化率の測定を行った。研究は現在継続中であるが、以下に大型稀釈冷凍器(D.R.と略す)を利用した結果を報告する。

〔2〕実験方法 TANOLは熱伝導度が低いうえ非常にもろいので、冷却するときに吸熱源へ熱接触のためにグリース等を用いることはほとんど不可能である。現実的な解決策は、液体⁴Heを熱媒体として利用することである。D.R.の場合、³He/⁴He混合室(M.C.と略す)をガラス等の絶縁物で作製し、M.C.内の超流動相に試料を直漬する方法がしばしば用いられる。しかし、この簡便な方法にはM.C.内の温度の均一性について問題がある⁷⁾ので、温度計を試料から離して取り付けねばならないときには採用すべき方法ではない。今回用いた方法を図2に示す。試料用の石英セル(G)の中に約30mlの液体⁴Heを導入し、試料(I)とヒートリンク用の銅線束(C)との熱接触を実現した。セルはInシール(E)により銅製の中継部(A)に接続される。輻射シールド(D)はセルとコイル(H)全体を包むようにセットする。⁴Heは毛細管(B)を通じて導入する。⁴He導入時の背圧はD.R.が1Kプレート方式を採用しているときには、1気圧以上にすよう留意する。

磁化率測定には実数部を自動平衡化した相互インダクタンスブリッジ⁸⁾を用いた。磁場掃引により磁化率を記録するとき、単相ロックインアンプを使用して不平衡電位の虚数部のみを記録することも考えられるが、補償しきれずに残った、検出コイルの双極子と磁場との結合により生ずるブリッジの不平衡電位は、増巾器を飽和させるのに十分な振巾をもつ場合があり、また、検出系と誘超モーメントとの位相関係を調整することも簡単でない。また、レシオトランス等の巻線抵抗は虚数部操作の独立性を損う。この典型例を図3・aに示す。ここで試料として半田合金を用いた。試料導入時のブリッジは状態点Aにある。これを原点に戻すのに複数回の平衡操作A~Gが必要で

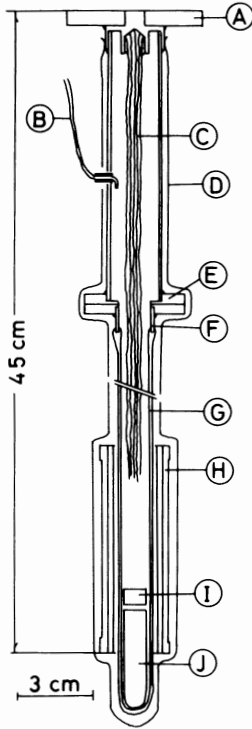


図 2

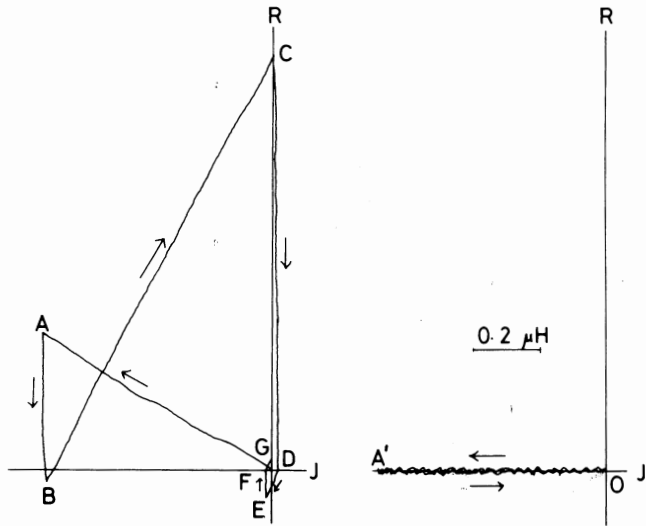


図 3

ある。いま、もし実数部が自動平衡するようにブリッジを構成すると、状態点の運動は図3・bに示すように虚数軸上に束縛され、検出系の位相のわずかの不一致も自動的に補償される。このとき不平衡電位は相互インダクタンスの変化量にのみ比例する。このような目的にかなったブリッジの例を図4に示す。T₄はレシオトランスである。

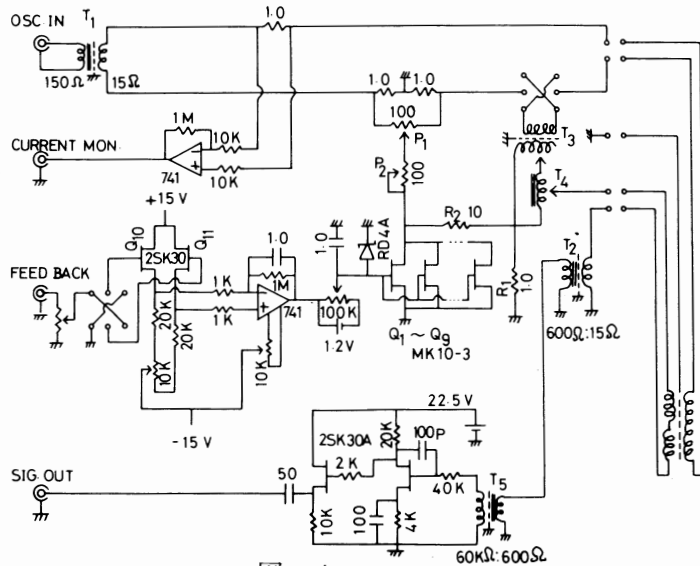


図 4

検出器は2位相のロックインアンプならなんでもよいが、最適接地条件を選べるよう、入出力部が変成器結合となっているものが望ましい。今回の場合、自作のものを用いた。参考のために図5に回路を示す。使用した検出コイルは、二次巻線(14φi.d.、

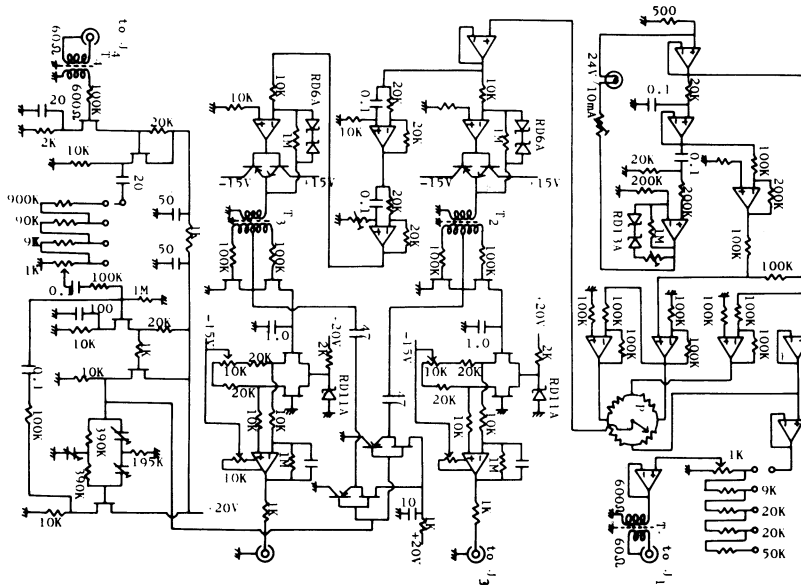


図 5

2434回×2)、一次巻線(17φi.d.、1000回)、補償用一次巻線(23.8φi.d.、500回)であり、駆動周波数80Hz、1mAにおける感度は4Kで3.4nHであった。

[3]結果 以上のような測定法でTANOLの磁化率を $80\text{mK} \leq T \leq 800\text{mK}$ 、 $0 < H_0 < 10\text{T}$ の条件下で測定した。低磁場の測定結果を図6に示す。2kOeにあらわれたピークはスピン反転によるものである。このことは容易軸が(a·c)面内に含まれていないことを意味している。磁場を(a·c)面内に印加したときのNMRに観測されるスピン軸回転の様子を合せ考えると、予想される第一容易軸は(1.1.1)方向である。b軸、a軸の磁化率は $T \rightarrow 0$ とともに単調に減少するので、粉末磁化率から分子場定数のおおよその値が求められ、異方性エネルギーが $K \geq 230\text{erg/cm}^3$ と評価された。この磁気異方性における、双極子・双極子相互作用と異方的交換相互作用の寄与は、両者ともに同程度の大きさである。

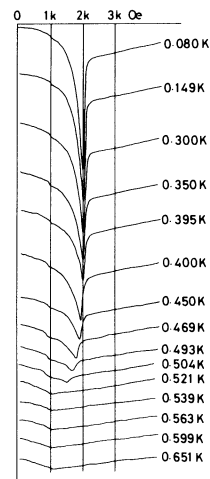


図 6

反強磁性相から、スピン反転相への境界は、転移点に近づくとともに低磁場にシフトしている。de Jonge らによる研究⁹⁾では、 $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{NC}_6\text{H}_5$ が $S=1/2$ スピン系としてとりあげられているが、この場合スピン反転相は見いだされていない。TANOL の場合、容易軸方向に磁場を印加したときに bicritical point あるいは tricritical point が H-T 相図上でどのように位置するのかを今後明らかにしてゆきたい。

さらに TANOL における特異な現象として (a·c) 面内でスピン反転磁場より強磁場を $H_0 \perp (1,0,\bar{1})$ 方向にかけたとき、水素結合プロトンの NMR にあらわれる異常に大きなシフト (H_0 に比例する。) と吸収線形があげられる⁹⁾。詳細はここでは紹介しないが、相の問題と合わせて研究中である。

最後に今回 D.R. を利用するにあたり、東北大学低温センターの方々には大変お世話になりました。ここに深く感謝致します。

文 献

- 1) H. Lemaire, P. Rey, A. Rassat, A. deCombarieu and J. C. Michel, Mol. Phys., **14** 201 (1968).
- 2) Yu. S. Karimov, Soviet Phys. JETP, **30** 1062 (1970), J. Yamauchi, T. Fujito, E. Ando, H. Nishiguchi, and Y. Deguchi, J. Phys. Soc. Japan, **25** 1558 (1968).
- 3) J. P. Boucher, F. Ferrieu, and M. Nechtschein, Phys. Rev. **B9** 3871 (1974).
- 4) M. Kumano and Y. Ikegami, Chem. Phys. Letters, **54** 109 (1978).
- 5) J. P. Boucher, N. Nechtschein, and M. Saint Paul, Phys. Letters, **42A** 397 (1973), M. Kumano, Y. Ikegami, T. Sato, and S. Saito, Chem. Phys. Letters, **41** 354 (1976), *ibid.*, **52** 497 (1977).
- 6) M. Kumano, Thesis, Tohoku University, 1976.
- 7) M. Kumano, Y. Ikegami, T. Sato, and S. Saito, Rev. Sci. Instrum., **50** 921 (1979).
- 8) M. Kumano and Y. Ikegami, Rev. Sci. Instrum., **50** 24 (1979).
- 9) W. J. M. de Jonge, J. P. A. M. Hijmans, F. Boersaman, J. C. Schouten, and K. Kopinga, Phys. Rev., **B17** 2922 (1978).

〔Ⅲ〕 100kOe超電導マグネットによる研究

§ 1. 遷移金属カルコゲナイド超伝導化合物の研究

金研 能登宏七

〔A〕 層状超伝導体 pure 2H-NbSe₂と2H-Fe_xNbSe₂の上部臨界磁場H_{c2}の温度依存性及び角度依存性について研究し、温度依存性には通常のBCS超伝導体では見られない正の曲率がある事を、角度依存性には試料の2次元性を現象論的に最も簡単にとり入れた有効質量モデルでは完全には説明できず、系統的なズレが生じる事を見出した。これらの特異な性質は、層内では電子間に通常のBCS引力が働き、層間はジョセフソン結合しているとするKlemmらの理論によって説明するよりはむしろ異方的BCS-第2種超伝導理論に基づいて考える方が妥当であることがわかった。（研究メンバー：武藤芳雄、能登宏七、豊田直樹、中辻等）（昭和46年～51年）

〔B〕 層状超伝導体 2H-NbSe₂と 2H-Fe_xNbSe₂の電気抵抗の温度依存性及び磁場依存性（磁気抵抗）について研究し、pure 2H-NbSe₂では31-33K近傍に電気抵抗の異常（hump）が現われる事を見出した。これは電子密度波（CDW）の形成に付する、正常相からincommensurate CDW相への相転移によるものと思われる。この転移温度T₀より下の温度では電気抵抗がT³に比例して変化し、電子のバンド間散乱が優勢であるらしい事、磁気抵抗が急激に大きくなる事等がわかった。また一定磁場中の電気抵抗の温度依存性の研究からT₀は磁場の印加によって減少する事、及び磁性不純物であるFeの添加によってもT₀が減少する事を見出した。（研究メンバー：武藤芳雄、能登宏七、中辻等、有川康之、諸橋信一）（昭和51～54年）

§ 2. 層状混晶超伝導体化合物Nb_{1-x}Ta_xSe₂の上部臨界磁場

金研 池部 学、片桐圭司

遷移金属ダイカルコゲナイドは異方性の強い超伝導体として知られている。そのNbSe₂とTaSe₂の混晶単結晶を作製し超伝導性質、特に上部臨界磁場H_{c2}を測定した。得られた結果を下記に要約する。

結晶構造について

1) 2H相は $x < 0.2$ 及び $x > 0.8$ の組成域に於て安定である。2) $0.3 < x < 0.7$ では 4H(a)相が安定である。又 $x = 0.2$ では 2H と 4H(a) の試料が混在し、 $x = 0.8$ では 4H(b) の結晶が得られた。

H_{c2}の測定結果

1) 2H相で Ta の濃度を増すと $dH_{c2\perp}/dT$ は殆んど変化しないが $dH_{c2\parallel}/dT$ は次第に増大する。この事はピュアな NbSe₂ その物が面内では clean な超伝導体であるが、面に垂直な方向では比較的 dirty な 3 次元的超伝導体であると考えた事により理解される。2) $x = 0.2$ の 2H と 4H(a) の試料を比較すると、 $dH_{c2\perp}/dT$ は殆んど変わらないが $dH_{c2\parallel}/dT$ は 4H(a) の方が約 2 倍程大きい。4H(a) の結晶では c 軸方向のブリュアンゾーンが半分になっており新しいゾーン—boundary 近くのフェルミ面で c 軸方向の有効質量 m_{\perp} が大きくなっている事を考慮すれば定性的には理解される。しかし 2 倍の H_{c2} という事は m_{\perp} が 4 倍にも enhance されている事を意味し、band mass の enhance として定量的に理解するには大きすぎる。4H(a) 相に於ける G-L effective mass の enhance は層間の結合がもはや通常の 3 次元的ではなく、トンネリング的な面をも持っていると考えた方が理解しやすい。3) 4H(a) 結晶の $dH_{c2\parallel}/dT$ の値は 2H 相の場合と異なり Ta の濃度によらず殆んど一定である。この点 1) のような解釈が 4H(a) 相では成立しない。この事実も 4H(a)-Nb_{1-x}Ta_xSe₂ が、全体としては 3 次元的な超伝導体であるけれども層間の結合は 2 次元的な面も強いと考えらば理解出来る。

§ 3. 層状超伝導体 Ta_{1-x}Nb_xS₂ に於けるインターカレーション効果

金研 池部学、片桐圭司

層状構造を持つ遷移金属ダイカルコゲナイドの多くは異方性の強い超伝導体である。これに有機分子を層間吸着させたインターカレーション化合物を作ると、層間の超伝導カップリングを極端に弱くした 2 次元超伝導体を実現できると期待されている。層間の電子伝導はトンネル効果によると仮定した Klemm 等の理論的な計算 (KBL 理論) によれば、層間の電子のトンネリングを特徴づける層間カップリング定数 γ が定着され、 $T^* = T_c (1 - \pi\gamma/8)$ の温度で超伝導性質が 3 次元から 2 次元へ転移する。 T^* 以下の温度で 2 次元となった超伝導体の層に平行な方向に磁場を加えたときの上部臨界磁場 H_{c2}∥ は、通常の軌導効果のみを考えた場合無限大に発散してしまう。しかし、

実際はパウリ常磁性効果により $H_{c2\parallel}$ は有限な値を取り、従って $H_{c2\parallel}$ は面内でのスピ
ン軌導散乱に対して敏感であると考えられる。

我々は $Ta_{1-x}Nb_xS_2$ にピリジンをインターカレートする事により、なるべくカップリ
ング定数 γ が小さい、従って理想に近い2次元超伝導体を得、また混晶にする事によ
りパウリ常磁性効果をもコントロールしようと試みた。インターカレートした試料の
 H_{c2} を測定した結果、層に平行および垂直に磁場を加えた場合の H_{c2} の比(異方性)
 $H_{c2\parallel}/H_{c2\perp}$ は50~70と極端に大きくなり、又 γ は0.5~0.8と非常に小さな値と推定
され2次元超伝導体実現の希望は大きいといえる。しかし層間の結合を弱くした事によ
り $dH_{c2\parallel}/dT$ は120~150kOe/Kとなり、9万ガウスの超電導マグネットでは超伝
導転移点 T_c の下0.5Kの温度範囲しか測定できない。従って実験を完結するには20万
ガウス以上の磁場が必要となるだろう。実験はまだやや予備的な段階であり、より均
一なそしてより2次元的な試料を準備すべく現在努力している。

§ 4. シュブレル型超伝導化合物の研究

金 研 能 登 宏 七

Chevrel相超伝導体 $Cu_{1.8}Mo_6S_8$ 単結晶の上部臨界磁場 H_{c2} 及び比熱に関する研究を現
在進めている。これ迄のところ、残留抵抗比(RRR)が約10でかなり良い単結晶であ
る事を確認し、転移温度 T_c が約11Kである事、 T_c 直上から40K近傍まで電気抵抗が T^2
に比例し、40K以上では T に直線的で、温度の上昇と共に徐々に飽和する傾向にある
事、及び T_c 近傍での H_{c2} の勾配 $(dH_{c2}/dT)T_c$ が180~200kG/Kで $PbMo_6S_8$ や $SnMo_6S_8$ 程
ではないがかなり大きい事を見出した。現在は H_{c2} の異方性及び $H=0$ と $H=90kG$ 中での
比熱の測定を鋭意進めている。これによってこの物質の超伝導及び常伝導状態での
熱力学的諸性質が明らかになるものと思われる。更に $PbMo_6S_8$ 及び $SnMo_6S_8$ の単結晶
の作成にも成功したので同様の研究を進めていく予定である。

(研究メンバー：武藤芳雄、能登宏七、石野正弘、諸橋信一) (昭和54~55年)

§ 5. A15型化合物及び Eu-Sn-Mo-S 系シュブレル相化合物の研究

金研 石野正弘

低温センターの超電導マグネットを用いて、三年前まで高磁場超伝導体の V_3Si の磁化を測定した。測定はコイル移動による変位法を用いたが、このソレノイドは磁場の均一度が $5 \times 10^{-4}/20\text{mm}$ とかなり良いので、この測定法には適している。ただ V_3Si の磁化は H_{c2} が高いので約 13K 以上でしか測定できなかったが、得られた磁化曲線から種々の熱力学的パラメータとピン止めについてのデータが得られた。ピーク効果を磁化で測定した例はあまりないので、その意味では珍しいデータである。

現在は磁性超伝導体の一つである Eu-Sn-Mo-S 系シュブレル相の磁場中での抵抗測定に利用している。この物質は Sn rich 側では、 H_{c2} での転移が試料の不均質のため広いという点をのぞけばふつうの高磁場超伝導体と考えられる。ただし Eu と超伝導電子との交換相互作用のため H_{c2} は増加する。我々が主に興味を持っている Eu rich 側では、 T_c は急に小さくなり超伝導体でなくなる。現在測定はほぼ一段落したところであるが、磁場中の抵抗は T_c の減少に伴い、興味ある変化をする。たとえば $Eu_{0.85}Sn_{0.15}Mo_6S_7$ では、磁場を増加すると抵抗は 0 から有限の値になったのち再び減少する。この物質を低温センターの $^3\text{He}-^4\text{He}$ 稀釈冷却器で温度を下げると、50mK では 90kOe でほとんど 0 に近くまで減少し、再び超伝導になったように見える。このような著しい濃度変化が何によるものか今のところわからないが、この系は H_{c2} の非常に高い磁性超伝導体でそのため通常の磁性超伝導体ではみられない現象が現れたのだろう。電流-電圧特性にも異常があるようで現在検討中である。

低温センターの超電導マグネットは非常に使いやすく整備されているので、ここで関係者の努力に感謝します。

§ 6. A15型超伝導体の研究

金研 豊田直樹、佐藤保彦、深瀬哲郎

A15型結晶構造をもつ化合物は高い臨界温度 (T_c) と上部臨界磁場 (H_{c2}) を示し、現在知られている数多くの第 2 種超伝導物質群の中で基礎、応用の両面において非常に重要な位置を占めている。

V_3Si ($T_c \sim 17\text{K}$, $H_{c2} = 250\text{kOe}$) は化学定量比からずれない比較的良質の単結晶を

得る事ができ、基礎物性の研究対象としては最も適格な化合物である。われわれは、超音波吸収、音速、比熱、磁化、熱膨張、等の諸測定を通して、 V_3Si の超伝導混合状態の異常の解明および熱力学的、電磁氣的性質の研究を進めてきた。(武藤芳雄、文部省科学研究費一般研究(B)研究成果報告、53年)尚、これらの実験の多くの部分は本超伝導磁石を用いて遂行された。

本稿では、 $(V_{1-x}Nb_x)_3Si$ ($0 \leq x \leq 1$) に関する最近の研究成果を述べる。目的は、組成の変化によって、残留抵抗値を大幅に制御し、これと超伝導状態の相関を探る事にある。試料は、アーク溶解、電子束浮遊帯溶融、高周波浮遊帯溶融、真空焼鈍、等の方法を試み、これらは全て金研共通室の装置を用いた。結果は、 $0 \leq x < 0.3$ の組成域で安定な単一A15相が存在している事をX線ディフракトメータで確認した。これらの試料に対して、電気抵抗法で T_c および H_{c2} の温度依存性を4 K~20 K、 $0 \sim 90$ kOeの温度、磁場環境の下で測定した。 T_c は x の増加と共に単調に減少し、 H_{c2} の T_c での勾配 $(-dH_{c2}/dT) T_c$ は、 T_c 直上での抵抗値 ρ_{T_c} の増加に伴って単調に増加する事がわかった。これらの実験値を用いて、GLAG-BCSのdirty極限の理論の枠内で解析した結果、得られたパラメータは、GLパラメータ、超伝導コヒーレンスの長さ、磁場侵入距離フェルミ面近傍の状態密度の平均値、電子自由行程距離、フェルミ速度等である。これら諸パラメータと ρ_{T_c} の間に一連の関係が存在する事を見出したが、その中で最も重要な結果は ρ_{T_c} の増加に伴って状態密度が急激に減少し、逆にフェルミ速度は増加する事実である。この結果は、最近MattheissとTestardiによる電子帯構造の計算から導出された結果と少なくとも定性的に良く一致しており、彼らのモデル—— ρ_{T_c} の増加、即ち電子散乱の増大に伴って、帯幅の狭い大きなピークを有するd帯の構造がぼかされる(smearing)事により、有効的な状態密度が減少する——を支持している。定量的比較検討のためには、電子フォノン相互作用の繰り込みが必要であるが、これは今後の課題として残っている。

尚、蛇足ではあるが、微分帯磁率測定用の回転装置を作製し、本超伝導磁石で種々のテスト実験を試み、現在、種々の技術的問題に見通しがついている。この手段を用いてA15型超伝導体のフェルミ面および H_{c1} 、 H_{c2} 等の磁場中相転移の研究を遂行する予定である。

§ 7. 厚膜アモルファス Mo-Si 合金の超伝導

金研 池部 学、池田 晋、鈴木謙爾、藤森啓安

直流高速スパッター法によって準備されたバルクなアモルファス Mo-Si 試料 (厚さ $\sim 0.2\text{mm}$) の上部臨界磁場 H_{c2} を測定した。この方法で得られた試料はシャープな超伝導遷移 ($\Delta T_c < 0.1\text{K}$) を示し、超伝導体としての均一度は大変よい事がわかった。

7 K の T_c を持つ $\text{Mo}_{68}\text{Si}_{32}$ の上部臨界磁場の温度勾配 dH_{c2}/dT は 22kOe/K の値を持ち、 H_{c2} の温度依存性は通常の物質に比べ非常に低温まで温度にリニアであり、アモルファス特有の性質であると考えられる。 22kOe/K という dH_{c2}/dT の値は最もよく使われている超伝導線材 Nb-Ti をしのぎ、 Nb_3Sn の最大値と同程度であり、アモルファス Mo-Si は典型的な硬超伝導体である。何らかの方法でピンニング中心を試料中に導入すれば超伝導材料としての可能性も十分有り、中性子照射をした試料での臨界電流 J_c の測定を計画している。

§ 8. IN SITU Cu-Nb₃Sn 超電導複合材料の研究

金研 和泉 修、永田明彦

泉山秋男、劉 茂林

IN SITU 超電導材料は超電導特性の良い Nb_3Sn を利用する利点のほか、製造方法の単純さ、機械的性質の強靭さ、さらに応力や歪に対して J_c 特性の劣化が従来のものより少ない材料として最近注目されている。我々は種々濃度の Cu-Nb 2 元合金をアーク溶解後冷間加工のみで線引し最後形状 (大部分の試料は 0.24ϕ) に作成後 Sn メッキし、熱処理して Cu マトリックス中に不連続極微細線として存在している Nb 繊維を Nb_3Sn にかえた。もっとも良い J_c 特性を得るための熱処理条件を決めるため、超電導マグネット中で 9 T まで磁場を付加して J_c 測定をおこなっている。これまで得られた結果では、Cu 中の Nb 濃度が増すほど J_c 特性は良く、Sn メッキ量に関しては、ある量まで J_c は上昇するがそれ以上の Sn 量ではほとんど J_c の上昇はなくなる。熱処理温度に関しては、 550°C と 600°C が最適であり、それは連続繊維の従来の材料にくらべると $50^\circ\sim 100^\circ\text{C}$ 低い。得られた J_c の 1 例をあげると、Cu-27.6wto/0Nb に化学量論組成の Nb_3Sn が形成するよう Sn メッキした試料では、 600°C で 96h の熱処理で、9 T で overall J_c は $7 \times 10^4 \text{A/cm}^2$ の値を示す。これは Nb 量が増すとさらに改善される。

§ 9. Nb-50Ti 合金の組織と超電導

金研 和泉 修、永田明彦

花田修治、田 昭治

Nb-Ti 合金超電導線材は現在 9 T までの超電導マグネット用線材としては安定して使用されているが、10 T まで使用可能になればさらに有用となる。本研究は加工と熱処理により高磁場での J_c 特性の改善をはかるため、組織を TEM で観察すると同時に J_c 特性を 9 T まで測定した。加工および熱処理の条件は (i) 最終形状まで加工後熱処理、(ii) 加工および熱処理の繰返し (この場合、最後が加工で終る場合と熱処理で終る場合がある) 等でおこなった。その結果、高磁場、すなわち 8 T および 9 T でもっとも良い J_c 特性はそれぞれ $7 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ および $4 \times 10^4 \text{ A/cm}^2$ であり、これは単芯線としては比較的良い特性である。これらの特性は加工および 350°C での熱処理を繰返し、加工で終った材料であり、組織的には、加工による転位組織が高磁場での flux pinning center としてはより有効であることを示している。

§ 10. $\text{Gd}_{3-x}\square_x\text{S}_4$ ($x \sim \frac{1}{3}$) の磁性と伝導

理学部 上條 敦

$\text{Gd}_{3-x}\square_x\text{S}_4$ (\square は Gd site の空孔) は、 $0 \leq x \leq \frac{1}{3}$ の間で Th_3P_4 型の結晶構造をとる。Gd をふやすことによって、antiferro. insulator ($x = \frac{1}{3}$) から ferro. metal ($x = 0$) に連続的に変化させることができる。結晶中にランダムに存在する Gd の空孔は空間的に揺動する斥力ポテンシャルをつくり出し、その結果 conduction band は裾をひき、その中で電子状態は局在化した。いわゆる band tail が生ずる。キャリア数が空孔の数に比して十分少なければ (すなわち $x \sim \frac{1}{3}$) rigid band model が適用できる。これは、状態密度が dopant の濃度に強く依存する通常の半導体と著しく異なっている。さらに Gd^{3+} はモーメントを持っているために、磁場によっても伝導の性格を変えることができる。このように一つの試料で band の形を一定にしたまま、パラメータを変えることによってフェルミレベルを変化させることができるということは、この系の大きな特徴であり、磁性と伝導の相関を知る上で好都合な系である。

$\text{Gd}_{3-x}\square_x\text{S}_4$ ($x \sim \frac{1}{3}$) は IBM グループによってキャリア数が異なる 4 つの試料について研究がなされ、彼らは bound magnetic polaron model の立場でこの物質系の磁性

と伝導を説明している。我々はこのmodelの妥当性を検討するためIBMの試料#4に類似した試料について高磁場、低温にわたる詳細な実験を行なった。電気抵抗は低温で磁場によって大きく減少し、いわゆる non-metal metal transition が観測され、伝導とmagnetic orderとの間には強い相関のあることを示唆している。Arrot plot から $T_c=20\text{K}$ が得られ、さらに、比熱には $T=3.5\text{K}$ にややbroadではあるがピークがある。これらの実験事実はIBMのmodelでは理解できない。この物質は、本来antiferroの母体 (stoichiometric Gd_2S_3 , ($x=\frac{1}{3}$)) に少数の伝導電子が加わった系で、d-f交換相互作用が本質的な役割を演じていると考えられる。UmeharaとKasuyaは、これを擾動として取り入れたhomogeneous canting modelを提唱しているが、このmodelでは、para→ferroの転移点 T_c とferro→cantの転移点 T_f が存在し、我々の実験結果と一致している。そこでこのmodelを用いて実験 (M-T 曲線) のfittingを行なった。その結果、定性的には、homogeneous canting model で説明できるように思われるが、定量的には、ランダムネスを考慮した理論の構築が必要であることを示している。

今後、キャリア数の異なった試料について同様な実験と解析が必要である。とともに、中性子回折によって磁気構造をつきとめることに興味もたれる。

§ 11. CeB_6 の電気伝導現象

理学部 高瀬章雄

稀薄合金でみられるKondo effectと非常に似た現象が完全な結晶磁性体でもみられる例が、最近Ce化合物を中心に種々報告され、多大の関心を集めている。その中において、 CeB_6 は最も典型的な例であって、Göttingen, 無機材研、及び我々のグループに於て多面的な研究が行われている。 CeB_6 のKondo的振舞が最も顕著に現われるのが、電気抵抗の温度依存性であって、5 K以上で典型的な $\log T$ 依存性がみられる。しかしながら、5 K以下で抵抗は 3.3Kでピークを示した後 2.2K以下で急激に減少し、このことは低温でKondo stateが急激にこわれることを示していると考えられる。更に低温で磁場をかけた場合、磁性は H-T 空間でmagnetic long range orderとshort range orderと考えられる相が存在することが、種々の手段により調べられている。今回の研究目的は CeB_6 のKondo stateに関する知見を磁気抵抗の測定から得ることであり、その為には高磁場を必要とする。共同利用超電導マグネットを用いて磁気抵抗

を測定した結果、(i) 低温の磁性を示す領域ではshort range orderの発達と共に著しく大きな負の磁気抵抗が観測され、Kondo stateが急速にこわれると考えられる。(ii) 高温の常磁性領域でも負の磁気抵抗が観測されるが、その変化量を典型的なdilute Kondo systemの(La,Ce)B₆と比較し、零磁場の抵抗の温度変化の解析結果と合わせて考えれば、Kondo温度T_K≒10K、unitarity limit抵抗ρ_u≒110μΩcm/Ce atomと結論される。T_K≒1Kである(La,Ce)B₆に比べT_Kが上昇し、ρ_uが約 $\frac{1}{3}$ に減少していることに注目される。

§ 12. C-doped EuTeの磁性と伝導

理学部 世良正文

EuTeはT_Nが9.6Kの反強磁性半導体であり、従来多くの研究がなされている。特に、MITグループにより、T_eの空孔を含むn型EuTeについて詳細な研究がなされており、低温での抵抗の増大、大きな負の磁気抵抗を、彼らは磁性ポーラロンモデルで説明している。我々の作製したEuTe単結晶のうち、カーボンのるつぼで作製したものは、MITのものとは非常に異なったふるまいを示す。この試料は化学分析で、数パーセントのCを含んでいることが判っている。電気抵抗は、室温で230Kの活性化エネルギーΔEを持ち、それ以下でΔEは徐々に減少し、15K以下では、ほとんどゼロになる。ホール係数は77K付近にピークを持つ。低温での磁気抵抗は弱い磁場依存性しか示さない。1.4Kでは増加し続けるが、H_c(cant相からferro相への転移磁場で4.2Kで70kOe)付近までは増加するが、H_c以上で減少し始める。これらは磁性ポーラロンモデルでは説明できないので、3バンド、つまり伝導体の下にCに起因するshallow doner impurityにより形成されたバンドを考え、その下にTeの空孔よりなる不純物帯を考える。抵抗とホール係数のふるまいがこのモデルで矛盾なく説明される。磁気抵抗も以下のように説明される。浅いimpurity stateは大きく広がっているため、磁性ポーロン効果が小さいため、弱い磁場依存性しか示さない。磁場が増加すると4fスピンの偏極の増加は浅いimpurity stateの内と外で同じであるが、H_c付近になると外側の偏極のみが増加し、H_cで局在状態は広がり、抵抗の減少が起こることになる。以上のように、C-doped EuTeの伝導は3バンドモデルで説明される。

編集を終えて

本広報は、昭和53年度末にセンターに設置された大型稀釈冷凍機の研究状況を中心に、センター実験室の現状を述べたものである。設置以来1年有余でかくも成果を得て、しかも全学的共同利用の実を挙げた稀釈冷凍機は、世界的にもその例は少ないであろう。歴代センター長を初め、設置に積極的な役割を果たして頂いた方々に厚く謝意を表する。

なお、東北大学低温センターは、昭和56年3月で創立満10年になる。次号広報は、この10年間のヘリウムの供給回収の実態を白書としてとりまとめ、昭和56年初夏には皆様にお眼にかけるよう準備中である。

職 員 名

センター長 (併任)	田 中 英八郎
主 任 (ク)	武 藤 芳 雄
供給主任 (ク)	佐 藤 常 夫
開発主任 (ク)	坂 爪 新 一
助 手	佐 藤 卓
技 官 (併任)	佐 藤 健 治
ク (ク)	丹 野 武
ク (ク)	庄 子 喜 三
ク (ク)	河 野 三尾留
ク (ク)	渡 辺 邦 男
ク (ク)	大 友 貞 雄
ク (ク)	三 浦 弘 行
運 転 手	菅 野 長 吉

●併任は金研職員

追 記

本広報校正中に突然**通研 小野寺大教授**(低温センター共同利用審議会委員・運営委員会委員)の訃報がとびこんだ。先生が超電導エレクトロニックスの第一人者であることは、御存知の方も多いと思う。先生は、低温センター設立計画の当初より、現在まで、絶えず重責をになわれて、建設から運営に至るまで行き届いたお世話をしてくださった。また通研サブセンターは先生の御指導のもとに活用されている。先生の活発で貴重な御発言は、調和のとれた穏やかな考え方に裏付けされており、センター維持発展になくってはならぬ方であった。今御逝去の報に接し、茫然として、言葉も出ない状態である。ただただひたすら先生の御冥福を祈る。(武藤芳雄)

『東北大学低温センター』 (広報)

低温センター実験室の現況

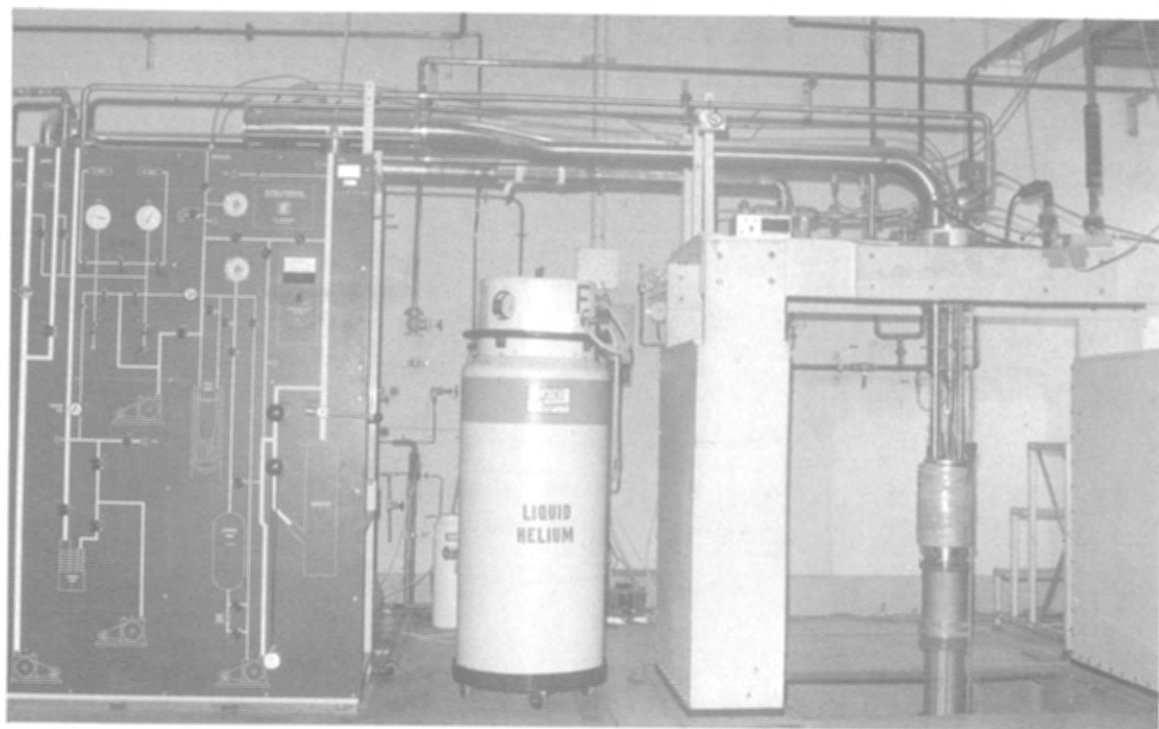
昭和55年3月発行

編集責任者 武 藤 芳 雄

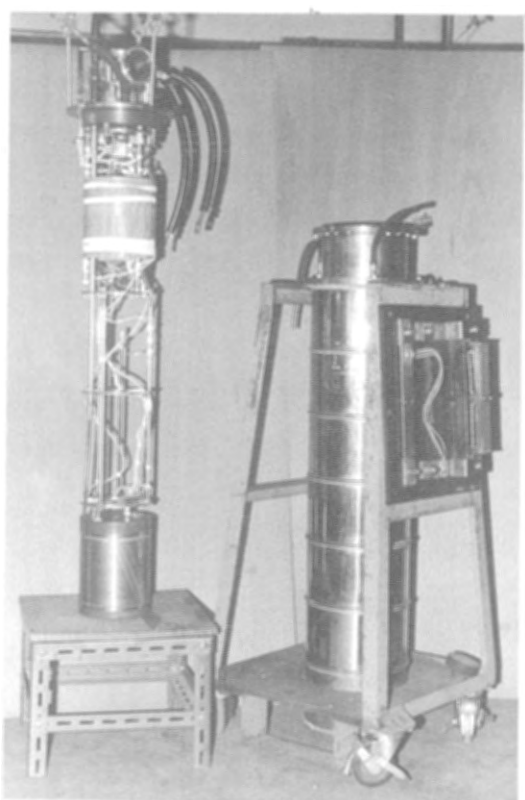
発 行 者 東北大学低温センター

(〒)980 仙台市片平2丁目1番1号
TEL (0222) 27-6200
内線 2348・2676・2730
(0222) 23-9460

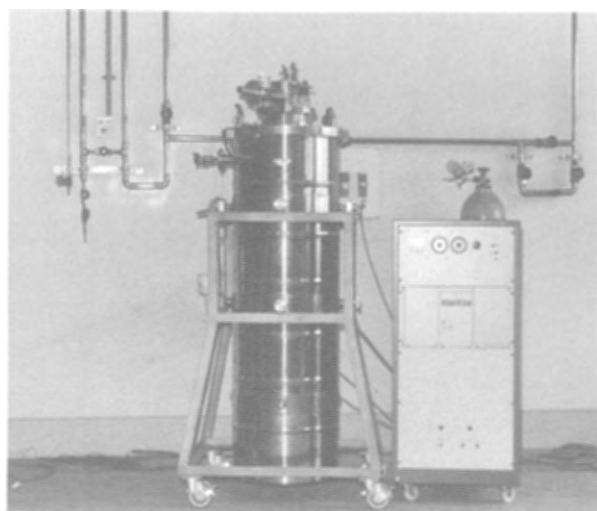
写真は低温センター渡辺邦男氏にお願いしました。



大型稀釈冷凍装置



100kG 超電算MG



60kG 高均一度超電算MG

