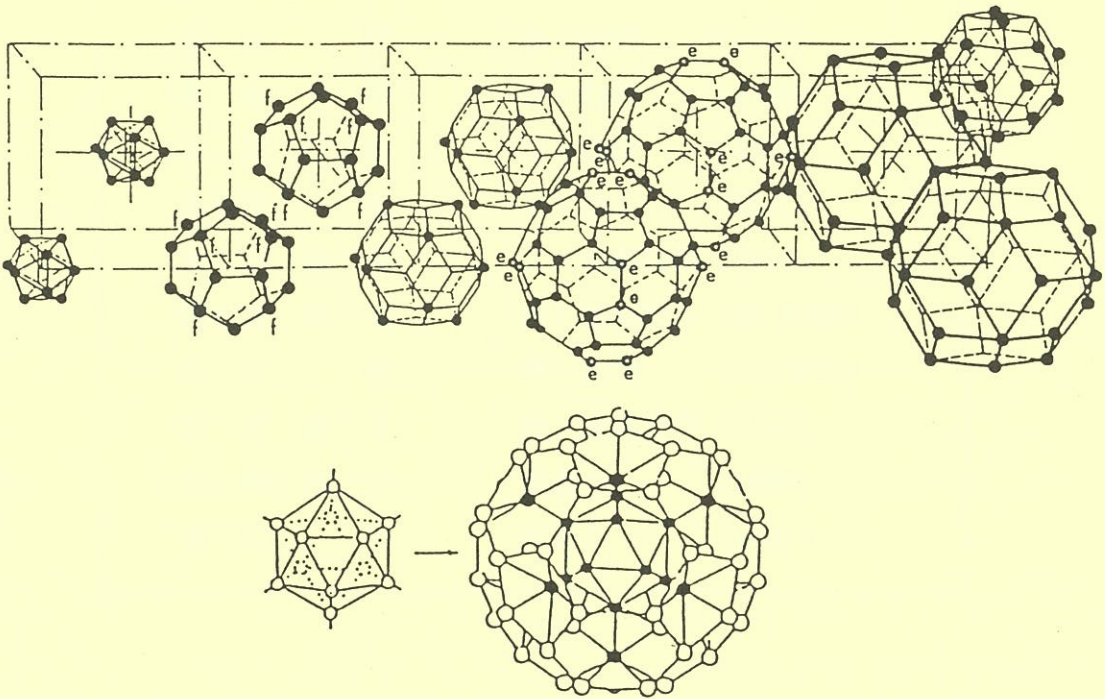


低温センターだより

第 21 号

1996 年 4 月



東 京 大 学
低 温 セ ン タ ー

目 次

	高エネルギー物理学研究所 低温センター	
高エネルギー物理学研究所低温センターの活動	新 富 孝 和	1
	琉球大学低温センター	
琉球大学低温センター	嘉手納用和、宗本久弥	8
	大阪府大 先端科学研究所	
大阪府大先端科学技術センターでの低温研究の 現状と計画	豊 田 直 樹	11
	工学系研究所科 材料学専攻	
正20面体クラスター固体の特異性と新物質探索	木 村 薫	16
	物性研究所	
周期電場および磁気変調下にある2次元電子系の 磁気抵抗振動	遠 藤 彰、家 泰 弘	25
	理学部科学科	
サファイア基板上にエピタキシャル成長した Nb超薄膜の電気伝導特性	齊木幸一朗、小間篤	32

高エネルギー物理学研究所低温センターの活動

高エネルギー物理学研究所 低温センター 新 富 孝 和
(TEL 0298-64-5452)

1. はじめに

高エネルギー物理学研究所では、素粒子物理、放射光を使った物理などの研究を行っている。この分野の研究では、超伝導電磁石や超伝導加速空洞などの液体ヘリウムを使う装置が使われる。特に、素粒子物理を研究する高エネルギー実験では、超伝導電磁石がなければ研究ができないと言っても過言ではない。例えば、アメリカのフェルミ国立加速器研究所 (FNAL) のTEVATRONやドイツのハンブルグにある DESY 研究所の HERA と呼ばれる巨大超伝導加速器が稼働しており、また粒子検出器に超伝導ソレノイドが使われるなどこの分野の研究に大きな威力を発揮している。昨年 TEVATRON による実験でトップクォークが発見され、大きな話題になった。このように超伝導・極低温技術がこの分野を大きく発展させたといつてよい。

素粒子研究は、一面ではエネルギーフロンティアという常に最大のビームエネルギーを発生する加速器を必要とする。現在、ジュネーブ郊外にある欧州合同原子核研究機構 (CERN) では、周長27kmに及ぶ大型ハドロン衝突型加速器 (LHC) の建設が進められている。この加速器には、9テスラ近くの磁場を発生できる電磁石を必要とする。このような高磁場を必要とする巨大加速器を実現するには通常の電磁石では困難で、超伝導・極低温技術が必要不可欠である。低温センターでは液体ヘリウムを供給するだけでなく、超伝導・極低温に関する基礎研究を行うと同時に、超伝導電磁石の開発研究も行っている。

2. 低温センター概要

低温センターは、1972年にほぼ高エ研発足と同時に設置された。大学で言えば2講座分に相当する定員があるが、現在は教授1、助教授1、助手3、技官4のスタッフで運営されている。業務として、高エ研で実験をする共同利用者あるいは所内の開発研究グループへの液体ヘリウム並びに液体窒素供給、超伝導・低温技術を必要とするユーザーあるいはプロジェクトに対するコンサルティングなどを行う傍ら、自らも超伝導・極低温に関する基礎研究、超伝導電磁石・極低温機器などの開発研究を行っている。さらに宇宙から来る重力波の研究なども行っている。

設備としては、毎時約300リットルの液化能力を持つヘリウム液化機、3,000リットルの液体ヘリウム貯槽があり（図1）、また精製器、回収圧縮機が設置されており、年間100,000リットルを越える液体ヘリウムをユーザーに供給している。ユーザーが使用した蒸発ヘリウムガスは、全所的に設置された回収圧縮機と布設された回収配管を通して低温センターに回収され、再液化されるようになっており、貴重な資源を無駄にしないようにしている。

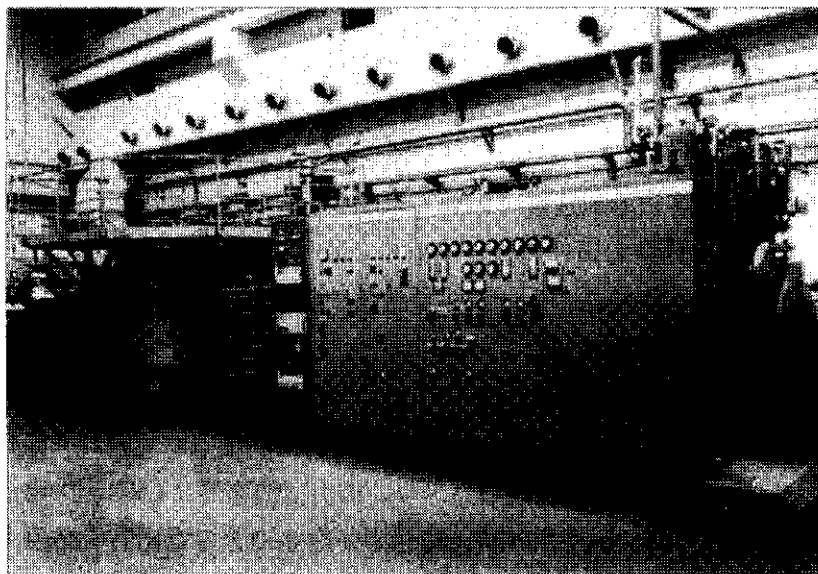


図1 毎時300リットルの液化能力を持つ液化機（右）及び3,000リットルの液体ヘリウム貯槽（左）

1995年3月には、加速器用高精度・高磁場超伝導電磁石の開発研究用に300m²の実験室が新築された（図2）。この実験室は、本所がCERNとの共同事業として行うことになったLHC加速器建設協力の超伝導電磁石開発を、低温センターを中心として加速器研究部、物理研究部などの協力の基に推進するために作られた。この新実験室に、平成7年夏、トリスタンの粒子検出器用に使用されてきた4.2Kで300W（毎時100リットルの液化機に相当）の冷凍能力を持つ液化冷凍機が移設され、CERNとのこの共同事業のための専用機として使用されることになっている。液化機以外にも、モデルマグネット製作の治工具、1.8K超流動ヘリウムが発生可能なクライオスタットを始め、関連する基礎開発研究用実験装置などの設置など、新実験室の整備も着々と進行している。既にこの設備を利用して超流動下での電磁石の励磁試験が行われ、電磁石開発のための貴重な予備データが得られている。

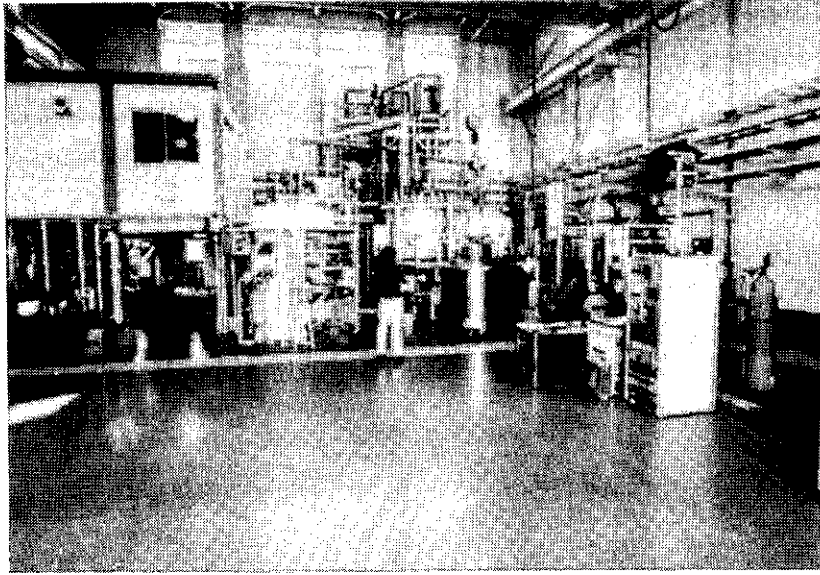


図2 加速器用超伝導電磁石開発のために新設された実験室。中央奥に100リットル/時の能力を持つ液化機、左コンテナが制御室、写真では見えないが右側のピット内にクライオスタットが設置されている。

3. 研究活動

開発研究

低温センターでは、超伝導電磁石の開発研究を行ってきた。特に、TeV領域の高エネルギー加速器では、超伝導電磁石を用いることが大前提になる。既に述べたように、超伝導加速器としてはアメリカのTEVATRON、ドイツのHERAが稼働している。どちらも周長6 km程度のトンネル内に設置された1,000台もの超伝導電磁石で構成される。超伝導電磁石は、クエンチ（なんらかの擾乱で超伝導が破れ、急激にマグネット全部が常伝導になる現象）があるために、如何にして安定な超伝導電磁石を作ることができるかがキーポイントである。1,000台もの超伝導電磁石の中で1台でも性能のでない電磁石があれば加速器として成り立たないので、確実に励磁できる高性能なものが要求される。磁場精度も 10^{-4} 以下で特性の揃ったものが要求される。現在のところ、実用に供されている加速器用超伝導電磁石は6テスラ級である。

ヨーロッパでは、CERNでLHCの建設が開始された。10テスラ級（定格磁場8.4テスラ）の長さ14mの超伝導電磁石を1,000台以上使う加速器であるが、10テスラに近い磁場を出すためには、現在実用に供されている超伝導材料であるNb-Tiを用いるとすると、1.9 Kの超流動ヘリウムで冷却する必要がある。また電磁力も200トン/mと強大な力なものになる。この種の超伝導電磁石は、コイルの電流密度が高く、臨界電流に近い値で励磁されるため、わずかな導体の動きでクエンチが起こる。従って、電磁力に抗して如

何にコイルの動きを抑えるかが重要な技術開発の一つになる。加速器用超伝導電磁石では、非磁性の構造体（カラーと呼ぶ）を用いてコイルを支持する（図3）。このような先進技術の結集である超伝導電磁石の開発には、長さが1m程度のモデル電磁石を製作し、性能試験を行い、技術的問題点を洗い出す。本所でも、下に述べるように、CERNとの共同事業の一環として超伝導電磁石の開発研究を行っている。図4の写真は、10テスラ級の超伝導電磁石の開発のために製作されたモデル電磁石である。

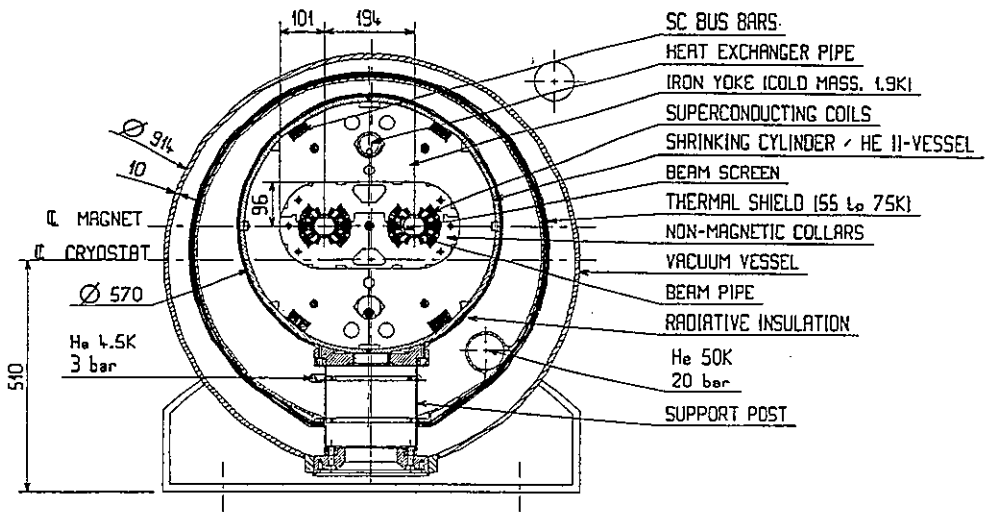


図3 加速器用超伝導電磁石の断面図。図は2個のコイルがヨークに入ったtwo-in-one型のLHC用超伝導双極電磁石を示す。

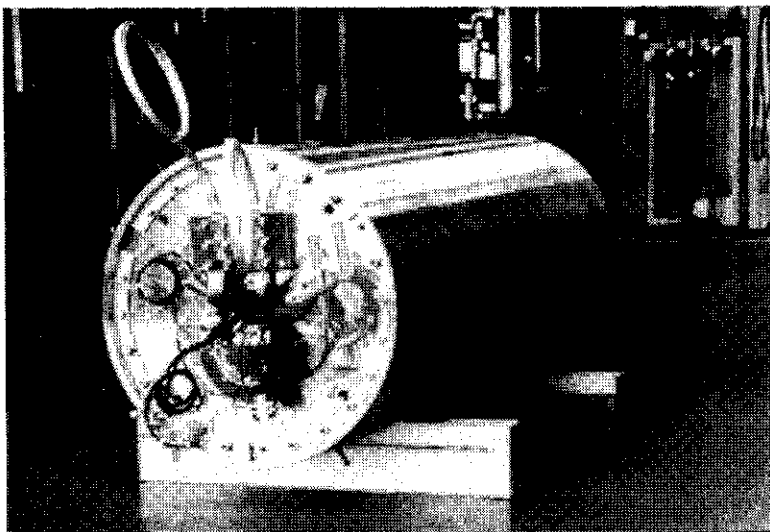


図4 10テスラ級モデル超伝導電磁石。開発研究用で単口径のマグネットであるが、性能は変わらない。

これと同等のモデルマグネットの試験結果を図5に示すが、この種の超伝導電磁石としてほぼ最高クラスの10.3テスラの磁場を出すことに成功した。まだ最高磁場に至るまでのクエンチ回数が多いので、これを少なくすることがこれからの課題である。

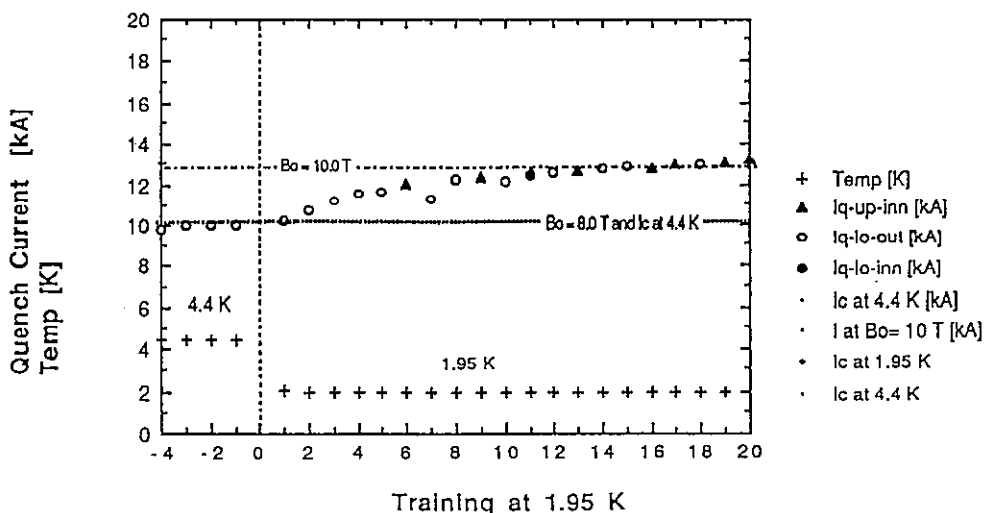


図5 超伝導双極電磁石のクエンチの履歴

協力事業

1995年5月に、我が国がLHC加速器建設協力を行うことを決定し、同年7月に高エ研とCERN間で正式な協定が調印された。

LHCは2004年から物理実験を開始する計画になっている。協力事業の具体的な内容は、高エネルギー実験のためのビーム衝突点に最も近いビーム収束用超伝導四極電磁石の開発・製作である。LHCには実験用に4箇所の衝突点を作られるが、我が国が分担する衝突点は、我が国の物理学者が参加する実験(ATLAS)箇所を含む2箇所の衝突点で、合計16台の四極電磁石を製作する。その電磁石のパラメータを表1に示す。

この電磁石は、加速ビームをできるだけ細く絞るため高磁場勾配であり、また衝突点最近傍に設置されるため必要アパーチャも70mmと大きく、そのため最大磁場も9テスラ近くになる。これに要求される性能は、主双極電磁石(中心磁界で8.4テスラが要求される)と同程度に高性能なものである。また、衝突点で散乱された加速ビームが、超伝導コイルを叩き、それによる発熱でクエンチを引き起す可能性がある。そこで、コイルの動きを抑えてトレーニングを少なくする工夫をするだけでなく、如何に冷却効率を上げて発熱を抑えるかが開発研究の対象となる。また、できるだけ運転電流に余裕を持たせ、クエンチを抑えるためには、高性能導体を用いることも肝要であり、高性能導体開発研究も重要になる。

表1 ビーム収束用超伝導四極電磁石のパラメーター

定格磁場勾配	215	T/m
最大磁場	8.8	T
定格/臨界特性比	~80	%
定格電流	~8,500	A
コイル内径	70	mm
磁石長	5.5	m
磁石外径	520	mm
貯蔵エネルギー	2.8	MJ

基礎研究

上に述べた開発研究には、超伝導導体、超流動冷却などの基礎的な研究も必要となる。低温センターでは、超伝導電磁石開発に必要な基礎研究も合わせて行っている。

その一つとして、超伝導ケーブルの安定性に関する研究がある。超伝導電磁石は僅かな擾乱による発熱でクエンチを起こす。加速器用超伝導ケーブルは、強大な電磁力に耐え、大電流を流すために、1mm程度の素線を撚った平角成型撚線と呼ばれるケーブルが使われるが、このケーブルの安定性に関する基礎研究を行っている。スポットヒーターを用いて局所的な擾乱を模擬し、擾乱が生じた場所からどのように常伝導が広がるかを実験的に調べ、超伝導ケーブルの安定性を調べようとしている。図6には、僅かに特性の違う2種類の超伝導ケーブルを用いて、実験で得られた常伝導伝播の様子が立体的に示

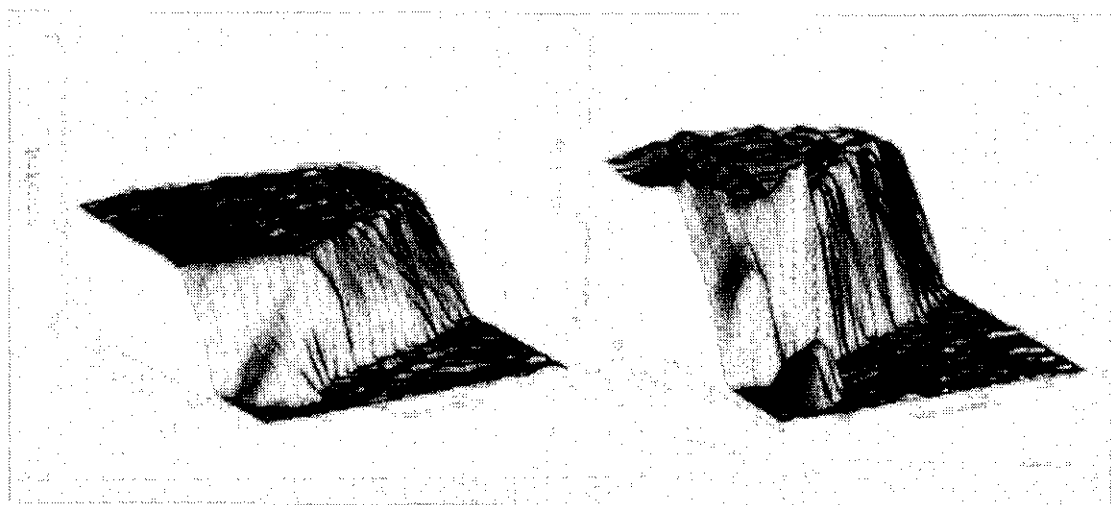


図6 僅かに特性の違う2種類の超伝導ケーブル中に常伝導が広がる様子：(左)常伝導が滑らかに広がっている。(右)常伝導の拡がりが乱れている。

されている。この種のケーブルでこのような現象を実験的に観測した極めてめずらしい例である。この様子を詳細に比較して、安定性に影響する因子を調べている。

超伝導電磁石は、磁場変化によって交流損失が発生し、クエンチの原因になる。加速器用超伝導電磁石では、クエンチ電流の劣化だけではなく、超伝導ケーブル内に発生する渦電流によって磁場精度が乱れ、電磁石の特性が悪化する。従って、交流損失に対する研究も重要になってくる。

平角成型撚線では、素線間の接触抵抗がこの交流損失に影響する要因であるが、これを所定の値に制御することがキーポイントである。そこで、素線の表面処理や撚線間に高抵抗層を備えた各種ケーブルに対する交流損失や接触抵抗の測定を行い、最適条件をみつけるための研究を行っている。

将来の超伝導電磁石については、現在のNbTi合金による技術では限界があり、Nb₃SnやNb₃Alのような化合物超伝導体の使用が考えられる。合金と違って化合物は割れやすく、巻き線技術の上ではかなり異なったアプローチが必要であるが、低温センターではそのための基礎研究も進めている。14Tのスプリットソレノイドでは、加圧含浸による保持によって、かなりの高電流密度でありながら、トレーニングが少ない磁石を実現した。巻き線時の損傷をさけるためには、化合物超伝導体を巻き線後の加熱反応で生成する「Wind & React法」が有望であるが、その場合問題になるのが素線の接合である。素線が互いに接合してしまうと、渦電流が流れて発熱や不安定の原因となり、また磁場の精度を極端に悪化させてしまうからである。この問題への取り組みでは、クロムメッキ導体を用いて、素線の接合を防ぐ手法の開発などの成果が得られている。

4. おわりに

超伝導現象は1911年に発見された。超伝導電磁石が通常の電磁石よりも高い磁場を発生できるようになったのは、それから半世紀たってからである。磁気共鳴画像（MRI）診断装置が民生用として使われるようになったのは、更に四半世紀過ぎてからである。このような技術は、民生用に使われ始めて実用化が進む一方、超伝導・極低温技術の進歩に大きく貢献したのは、高エネルギー物理の分野においてであるといつてよい。21世紀には超伝導技術の重要性がますます高まると思われるが、我々の研究が少しでもこれに役立つことを願って止まない。

琉球大学極低温センター

琉球大学 物理 嘉手納 用 和
極低温センター 宗 本 久 弥

琉球大学極低温センターは、発案から紆余曲折、十数年をへて、1991年に設立された、学内でも、比較的新しい施設です。設立に際しては、学内外の多くの方の知恵とご協力を頂きました。あまりにも多くの方々にお世話になったものですから、ひょっとしたら、この小文を読んで頂いている方にも力を貸して下さった方が居られるのではないかと思います。深く感謝致します。設立後も、センターの運営を軌道に乗せるのに数年を要し、センター便りも、創刊号をやっと1994年3月、発刊したところです。

当センターは、学内の低温関連分野の研究者に低温寒剤を、研究費を圧迫しないように出来るだけ受益者負担金を抑えて、安定供給することと低温関連分野の研究（物理学の領域に限らない）を維持し推進することを目的とする施設で、六施設ある、学内共同利用施設の一つです。

センターは、千原（センバル）campusの北寄りに位置し、千原池を望む格好の場所を占めています。15 l/hrの液化能力をもつヘリウム液化機と25 l/hrの液化能力をもつ窒素液化機を収めた液化室、低温実験室（150 m²程度）、工作室などを備えた、総建面積451 m²程のcompactな施設です。

現在の所、センター内では、矢ヶ崎教授を中心とする磁性研究部門 - 希土類金属、アクチナイド、それらの金属間化合物の磁性、伝導現象、熱電能を主なテーマとしている - と二木助教授を中心とする核磁気共鳴研究部門 - 高温超伝導体を主な研究対象としている - が5～6人の卒業生と3～4人の院生を擁し、活発な教育研究を展開しています。15 Tの超伝導マグネットと、手作りの高性能磁化測定装置等、手作りの高分解能核磁気共鳴測定装置、核四重極共鳴測定装置が自慢です。センター内で消費された液体ヘリウムは、回収用回路を通して殆ど100%再生される仕組みになっています。センター外でも、化学系、生物系、地学系、海洋系、医学系、工学系、農学系等で、当センターから供給された低温寒剤を用いて、多彩な研究が展開されています。

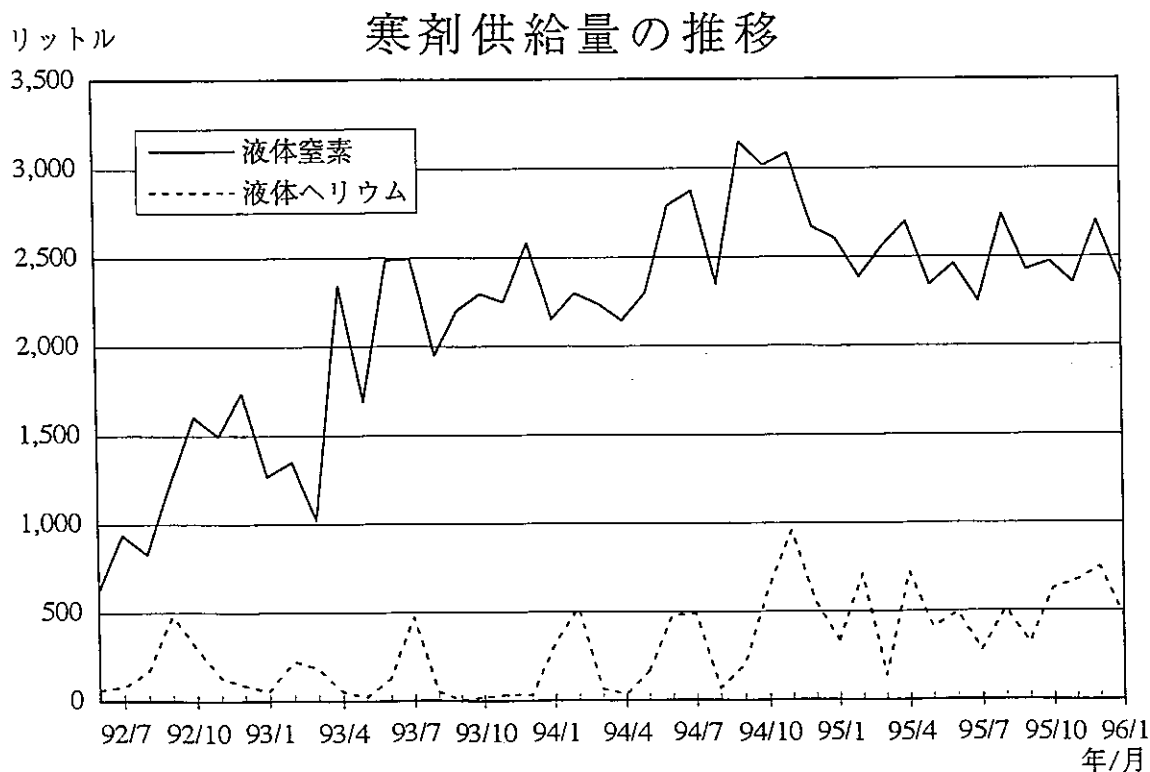
すでに、光物性部門の研究者が参入希望を表明していますので、実験室が手狭になるのは、目に見えています。実験室を中心にセンターの拡張を計画し、実現の方法について模索しているところです。極低温センターの名にふさわしく、安定な極低温（差しあたり m K）の実現も

実験サイドの重要な課題と捉えています。

専任の技官一人が、液化機の運転、寒剤の供給に携わっています。センター内の研究にもっと深く関わって欲しいのですが、今の所そこまでは手が回らないようです。医学部(上原 campusにある)がセンターから2 km 程離れていますので液体窒素を医学部、附属病院へ運ぶのも技官の重要な仕事です。他の教官は全て、併任です。センターにおける研究を更に活性化するために、教官の定員化はこれからの重要な問題点の一つと考えています。

2,500 l の液体窒素と 500 l の液体ヘリウムを月当たり供給しています。今の所、液化機的能力は、需要に対して十分なのですが、統計の示すように、年々、低温寒剤の需要は、伸びていますので、近々、capacity のより大きい液化機へ更新する必要に迫られると予想しています。尚、低温寒剤の供給実務の簡素化、省力化も早急に対処すべき課題の一つと考えています。

センター内外で行われている低温領域での研究の紹介は次の機会に譲り、今回はセンター自身の現状と問題点をざっくりと紹介致しました。



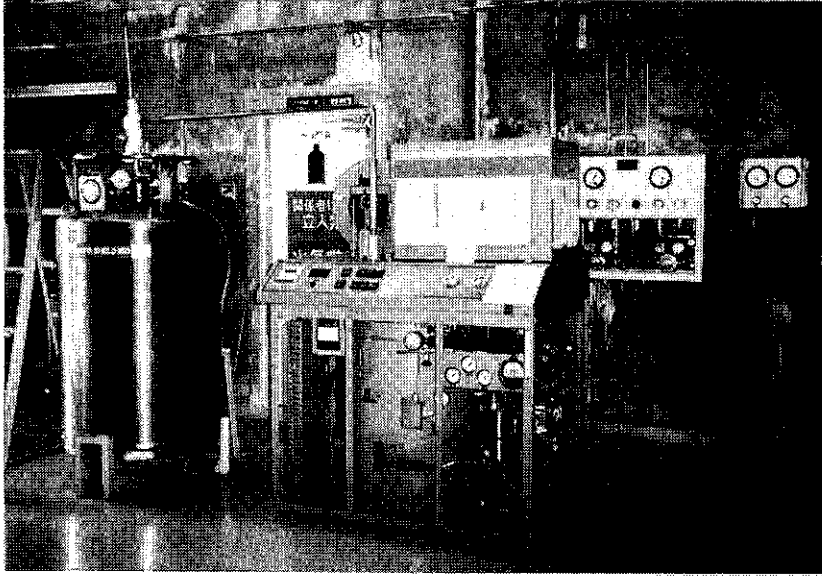


写真1：KOCH社（米国）製1410型ヘリウム液化機
と液体ヘリウム容器（250ℓ）

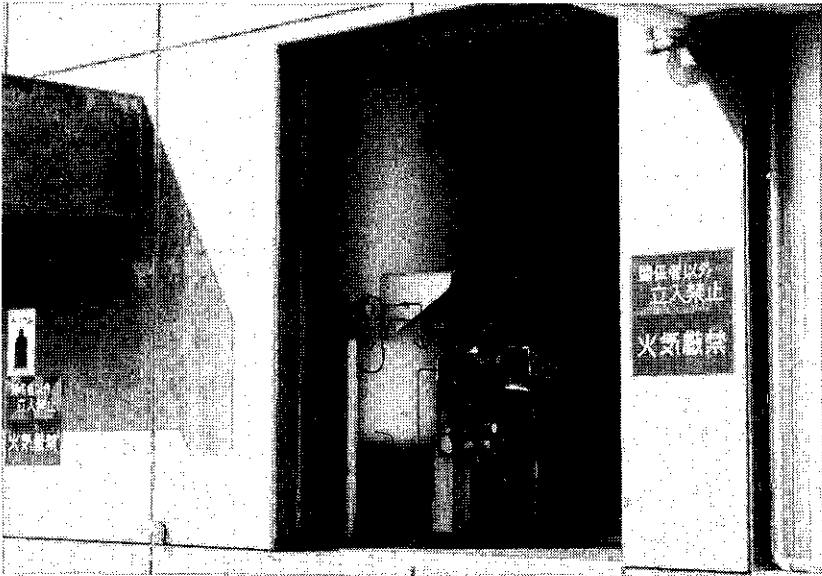


写真2：液体窒素貯蔵タンク 内容積1400ℓ

沖縄では塩害がひどいことを考慮して、あらかじめ室内に設置した。

大阪府立大学先端科学研究所での低温研究の現状と計画

大阪府立大学先端科学研究所 豊田直樹

1. はじめに

昨年4月、大阪府立大学に先端科学研究所がオープンしました。その沿革を辿りますと、放射線利用分野における西日本唯一の公立試験研究機関として昭和34年設立された府立放射線中央研究所が、府立大学の附属研究所として移管された平成2年に遡ります。昨年3月までの約5年間の設立準備期間を経て、基礎科学、先端材料科学、応用生体科学の3研究部門、計18研究分野（基幹研究分野12、協力研究分野6）および放射線科学研究センター（3研究分野）、アイソトープ総合研究センター（3研究分野）、生物資源開発センターの3研究センターからなる研究所（以下、先端研と略称）として発足したわけです。

上のような題目を編集委員長からいただきまして、まだホヤホヤの段階に過ぎませんが、低温研究施設等の現状と計画等に関して紹介させていただきます。

2. 新研究棟とヘリウム液化機

上に述べました3研究部門の拠点となる建て屋が、23カ月間の工事期間を経て昨年2月完成しました。総延べ床面積10,658.32 m²、鉄骨鉄筋コンクリート造り、地上8階、塔屋2階です。特殊設備としましては、クリーンルーム設備（クラス10, 100, 1000）、超純水製造設備（600リットル/h）、特殊ガス設備（シランガス等特殊ガスおよびO₂, H₂, N₂, CO₂, Ar, Heガスの実験室への集中配管）、そして本題の液化ヘリウム設備があります。総経費として約100億円、いち公立大学としては他に例を見ない立派な設備群を備えています。

2-1. 回収配管

私は先端研発足の1年前に着任を命じられ、1年間建て家の工事の進行をみる機会がありました。金研に在職していたとき新棟建築設計の仕様に係わる経験がありましたが、このときヘリウムの回収配管は天井板などで覆わずにむき出しの状態にすることを低温グループとして要求しまして、大型の実験室が集中している1階では、実際その様に施工されました。これは将来、ガス漏れなどの疑いとか修理が必要になったとき迅速に対処できるよう勘案したものでした。私の知っています欧米の低温施設では皆そのようになっていたと記憶しています。

今回いろいろと交渉しましたが、これは結果的に実現しませんでした。その理由は、全館集中空調設備のための大きなダクトが建て屋中に張り巡らされており、それらは常時覆っておかなければならないという消防法の規定に抵触するからです。どなたかこれから研究棟を新築される場合、この問題を旨くクリアーできるよう設計施工業者と充分協議されるとよいかもしれません。

先端研の本館全体で約27の実験室にヘリウム回収配管がなされています。まだヘリウムを使用していない部屋も多いのですが、ガスバックへ回収される流量との収支を把握しておくために、稼働している部屋にはすべて流量計を設置することを義務づけています。

2-2. ヘリウム液化機

液化機はリンデ社のTCF20で、2基の動圧型ガスベアリング式タービンを備え、時間あたり40-45リットルの液化能力を有する中規模のマシンです。(写真1.) 専任の技官は現在居なくて、運転はすべて私の研究室と工学部の奥田研究室で担当しています。まだ大量のヘリウムを必要とする実験が稼働していないこともありまして、府大全体への供給量も多くありません。近い将来ヘリウムの供給量が大幅に増大する可能性があります、専任のポストの問題は近い将来の課題として残っています。

液化室は3室で構成され、液化機本体、ヘリウム容器(500リットル)、汲みだし用リフト、液体窒素汲みだし口等の部屋(写真1.)、液化機用圧縮機(カエザー社DSB140, $9.5\text{kg/cm}^2\text{G}$, $600\text{Nm}^3/\text{h}$), 中圧ガスドライヤー、ガスバック、水冷用チラー、回収用高圧圧縮機等の部屋(写真2.)、そしてガス供

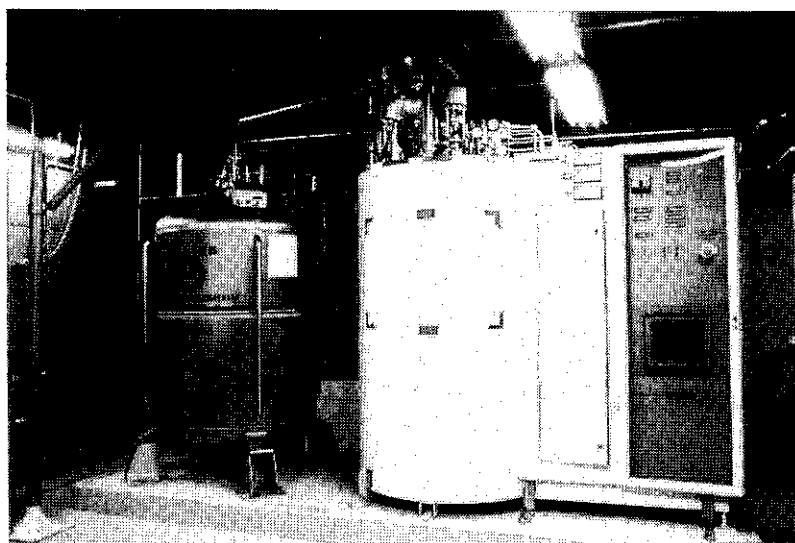


写真1.ヘリウム液化機とヘリウム容器

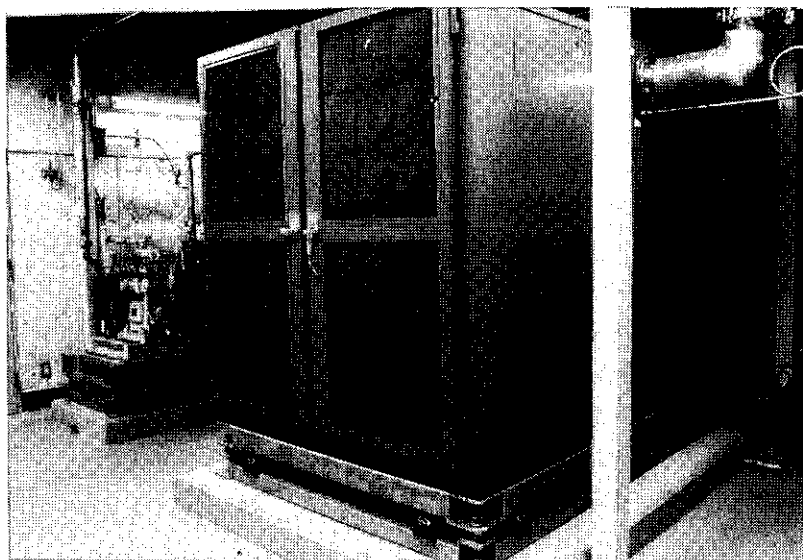


写真2. 圧縮機(奥のほうが高圧回収用圧縮機) この部屋の上部に20リューベのガスバックがあります。

給マニホールド、中圧タンクの部屋からなっています。これらの液化室の外側に、液体窒素のコールドエバポレータ（2000リットル）と長尺容器カードル（75Nm³x6本組み）が設置されています。取り立てて紹介することもない標準的なレイアウトといえます。クレーン、ガスバック等天井高6mをフルに活用しています。また圧縮機の部屋は防音壁が施され、圧縮機本体は分厚いコンクリート上の防振台に設置されているため、液化機室では騒音や振動があまり気になりません。

2-3. ヘリウムの供給体制

研究所本館へのヘリウムの供給は、配送、回収ともに問題点はありません。しかし府大の他の部局に関しては、現在回収設備をもっているのは工学部奥田研究室だけでして、ユーザーが約800mの距離を軽トラックを運転し、60リットル程度のヘリウム容器と回収ポンベの配送と返送をしなくてはなりません。他に、生物資源センター（超伝導NMR）や総合科学部等へもヘリウム容器を運んでいますが、これらの場合ヘリウムは全部逃がしています。

本学としては、先端研を核にして大型の研究設備を一括管理、運営して行くための中央解析センター構想とか、理科系学部を効率的に集中配置しようとするキャンパスプランが議論され始めています。将来これらの計画が実現する見込みがでてきた段階で、ヘリウム液化とその供給体制を考える必要が生じてくるでしょう。

先端研には共同利用施設協議会があり、7つの専門委員会で構成されています。私が委員長を務めています極低温施設共同利用専門委員会もそのひとつですが、この委員会でヘリウム、窒素の利用料金を決定しました。多くの他大学と同じくヘリウム、窒素ともに受益者負担を原則にしています。昨年4月から回収率、自然蒸発量、等々約半年間の統計をとりまして、回収する場合392円（1リットルあたり、以下同じ）、回収しない場合1008円に設定しました。また窒素は昨年5月の入札で38円で購入することになりましたが、利用料金はその倍額を少し上回っています。何時でも自由に汲めるようにしていることと、毎回きわめて少量しか汲まない生物、化学関係の利用者が多いこと等が多少割高になっている原因です。もうしばらく様子を見ますが、利用料金、供給システム等この委員会で毎年見直す取り決めをしています。

昨年8月末、宇宙少年団サイエンスセミナー「宇宙から考える不思議教室」が本学を会場にして開催され、関西地区の1000人を超える親子連れがこれに参加しました。毛利衛さんや松本零士さんの話のあと、「超伝導の世界を見てみよう：超伝導実験」「温度の世界を見てみよう：温度の科学」という2つの分科会で大勢の子供、母親にじかに低温に触れてもらう機会がありました。本学の極低温設備は府の貴重な財産です。今後これらの設備を府民の理科教育に、また産業技術総合研究所をはじめとする多くの研究機関にも自由に使っていただけるよう、私共からも積極的に働きかけたいと考えております。

3. 先端研での低温研究

まだ皆さんにご紹介できるような研究成果はありません。ここでは、私の研究室を中心に立ち上げの現状と計画を簡単に紹介させていただきます。

3-1. 現状

現有設備

1. 超伝導磁石（Oxford Inst. 10/12T, 70mmφ⁷）、電源ほか一式（写真3.）

2. He4, He3ガス操作系 (自作済み) (写真3.)
3. He3クライスタット (循環式、自作中)、温度可変He4クライスタット(Oxford Inst.) と各種インサート(自作中)
4. 超高精度キャパシタンスブリッジ、ロッキングアンプ、高周波発信器、抵抗ブリッジ、等各種電子計測器類
5. 化学実験室

これに共同利用設備として

6. 希釈冷凍機(Oxford Inst. Kelvinox400) および超伝導磁石 (15/17T)一式
7. 直流から110GHzまでをカバーする電子機器類

が設置されています。この3月中にはすべての性能テストを終了する予定です。

これらは、極低温、強磁場下での電磁気学的あるいは熱力学的物性研究のための基本装置です。きわだって特殊なものはなにもありません。3.は少しばかりスケールの大きいもので、液体He3が溜まるスペースは約48mm直径、これに挿入する各種断熱型インサートでも40mm直径の実験空間を確保できます。He3ガス80リッターを2.のガス操作系に組み込み、これが常時循環するように設計しました。また、6.に関しては球形の混合液槽で磁場中心に置かれた試料をジャブ漬けできるようにしてあります。

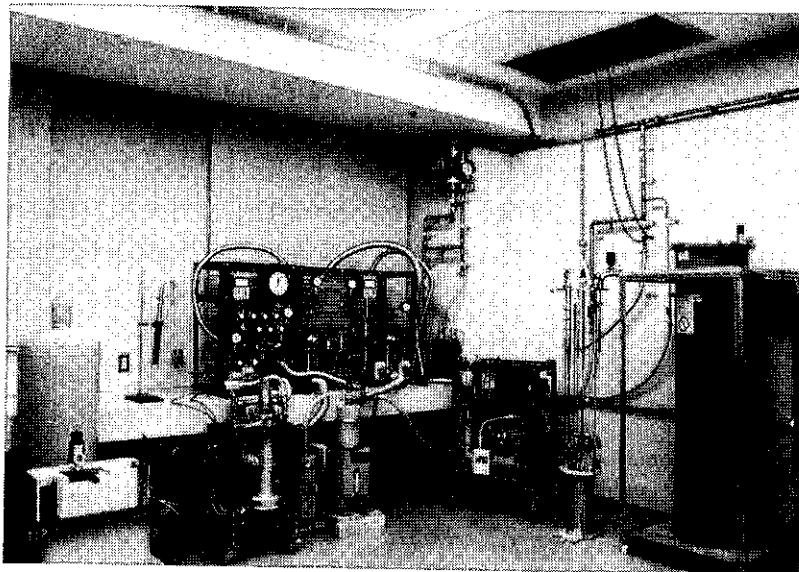


写真3 3階低温実験室の装置類：窓側ストーンテーブルの下にポンプ類、上にHe3-He4ガス操作系

3-2. 計画

平成8年度にも幾つか関連設備が入ると思います。すべての各種サンプルホルダーと電気まわりの設計、製作、性能テスト等々さらにもう1年位要するでしょうが、低温関連の実験の一部は、平成8年度早々始めたいと思っています。テーマは次の4つに分けられます。

1. BEDT-TTF, BEDT-TSF, TMTSF等の有機錯塩での超伝導、磁性、金属非金属転移

2. 有機強磁性体の磁性と電子状態
3. 第2種半導体超格子の2次元電子系
4. 重い電子系の伝導と磁性

測定手段は、電気伝導、熱膨張、磁歪、超音波音速と吸収、マイクロ波（サイクロトロン共鳴と表面インピーダンス）で、現在それらのサンプルホルダー類、電気まわりを製作中です。1は筆者の仙台時代からの研究の延長上にあるものですが、先端研の材料分子科学研究分野（杉本教授、植田助手）との共同研究でもありまして、私共のようなものでもBEDT-TSFドナーの合成に何とか成功し、その錯塩単結晶も得られるようになったところです。2は同研究分野の杉本教授とその共同研究者によって最近発見されたもので、室温で強磁性特有の磁化状態を示す純有機物です。電子状態の観点からこの画期的なお仕事の手伝いをはじめています。3は未来材料研究分野（井上教授、河村助教授）で行われている新原理光機能デバイスの開発（NEDOの提案公募型開発事業）に関するものです。磁氣的量子振動効果、量子ホール効果、サイクロトロン共鳴の実験を通して、これらの新物質デバイスの界面での電子状態の解明に向けて準備を進めています。4に関しては、特に松井助手を中心にして計画しているもので、熱膨張、磁歪、および超音波測定を主に、また近い将来希釈冷凍機温度域でのマイクロ波測定ができるよう技術開発研究を計画しています。

4. おわりに

2年前にこちらに転出し、低温、磁場環境の立ち上げをはじめてちょうど1年になりました。金研時代には、低温、磁場ともに永い伝統と人的、設備的に整った研究環境のもと研究のことだけを考えていればよかった私にとって、こちらにきて予算をはじめ多くのことが未経験で戸惑いも多かったです。この先端研での低温環境作りも、また私共の研究室の立ち上げも、多くの方々のご援助のお陰で何とか軌道に乗り始めましたようです。

まず研究室では、松井広志助手、および外尾崎寛(M1)、飯島靖博(M1)、犬塚知明 (B4)、前野宏志 (B4)、谷上純喜(B4)ら学生諸君は、昨年5月の回収配管の銀蟻付けに始まり、各テーマに沿った装置の設計、制作、試験等々活躍してくれました。工学部の奥田喜一教授、歴代所長を始め事務部の方々には、ヘリウム液化機の設置計画、初度設備導入等々便宜計っていただき、また東北大低温センターの大友貞雄技官には液化機および寒剤供給に関してご教示頂きました。また、大阪市立大学の畑徹助教授、大阪大学の北岡良雄助教授には、各大学の現状とか希釈冷凍機などに関して貴重なご助言を頂戴しました。今後の研究に関しては、本研究所の杉本豊成教授、植田一正助手、森本浩君（近畿大学B4）、井上直久教授、河村祐一助教授の皆さんと共同研究をスタートすることができました。またBEDT-TSFの合成に関して、小林速男教授（分子研）、内藤俊雄講師（北海道大学）には、貴重なご教示を賜りました。この場をお借りして、以上の方々に厚く御礼申し上げます。

ここで紹介いたしました設備類、装置類等々の購入につきまして、設置者の大阪府はもとより、文部省（科学研究費、重点領域研究）、新エネルギー産業技術総合開発機構から多大なるご援助を頂きました。心より感謝申し上げる次第です。

正20面体クラスター固体の特異性と新物質探索

大学院 工学系研究科 材料学専攻 木村 薫

(内線7140)

1. はじめに

我々の材料物性研究室は、井野博満（教授）がメスバウアー効果と磁性を、私（助教）が電気物性と光物性を担当している。様々な物質系を対象にしており、試料作成から、組成、構造や組織の評価、物性測定まで行っている。物性測定としては、高度な測定技術の開発は行っていないが、現在、共同研究も併せると、16種類程度の物性を測定している。当然、低温測定も数多く行っている。ところが、材料学専攻のある工学部4号館には、Heの回収配管が無いため、液体Heを使用する実験は大変である。最も大変なのは、メスバウアー効果用の5 Tの超伝導マグネット付きクライオスタットで、初期冷却を含めて、数日間で100リットル以上の液体Heを使用する。これを回収するためには1 m³の風船で70個分以上である。風船は1個づつ、工学部4号館の3階から、6号館のサブセンター（地下）まで運んで、ポンプで回収する。この作業は昼夜を問わないので、学生による人海戦術でこなしている。4号館に回収配管を整備するには、約1千万円かかる。そこで、現時点では数K程度以上だが、He冷凍機付きの装置を揃えつつある。電気物性測定用のクライオスタット2台に加えて、2年前に、冷凍機付きの5 Tの超伝導マグネットを購入した。これは、電源を入れるだけで磁場が発生し、コンピューター制御できる。室温ボア径が60 mmあるので、クライオスタットや加熱炉を挿入して、低温から高温まで測定できる。光学用クライオスタットは、まだ冷凍機が付いてないので、ほとんど液体Heは使わず、液体N₂で我慢している。SQUIDは、理学部物理学科の装置をお借りしていたが、低温センターに共同利用のものが入り、大変期待している。15 Tのマグネットもあるとのことなので、今後は、低温センターの共同利用も活用させていただくつもりである。

本稿では、材料物性研究室で研究している様々な物質系の中で、私が主に研究している、ボロン系とアルミ系の正20面体クラスター固体について紹介する。我々にとって、低温は手段の一つに過ぎないので、必ずしも低温実験に関する話題でないことをお許し願いたい。

Ⅲ族のボロンやアルミの正20面体クラスターは、金属結合的なものと共有結合的なものが存在し、また、結晶の周期性と共存できない対称性を持っており、ユニークなクラスターである。正20面体クラスター固体は、ボロンやアルミを主体とした化合物であるが、金属から半導体まで、また、結晶から準結晶まで、連続的に様々な相が存在し、

多様性に富んだ物質群であり、新物質や新材料が期待される。

2. 正20面体クラスター¹⁻³⁾

中心原子の周囲に12原子を配置した、Ⅲ族の13原子の正20面体クラスター (B_{13} と Al_{13}) は、充填率が最密充填クラスターに近く、典型的な金属クラスターの1つである。このクラスターの外に、他の原子 (H、Li、BやAlの同種元素) を付けたときの安定位置は、三角形面の中心の上で、剛体球の充填として考えられる (表1、図1)。一方、中心の原子を除いた12原子の正20面体クラスター (B_{12} と Al_{12}) は、充填率が非常に小さくなり、クラスター外の安定位置も、頂点原子の上や辺の上となり、結合に方向性のある共有結合クラスターとなる。このクラスターは、5回軸方向 (中心から各頂点原子に向かう方向) に、12本の結合の手を出している。Ⅲ族の元素は、sとp軌道を使って、通常の2中心 (2つの原子の間に電子を共有する) の共有結合を作るには、電子不足である。ところが、12原子の正20面体クラスターを構成することによって、3中心の共有結合を作ることができる。このように電子を節約して結合を作っても、まだ電子不足で、クラスター内軌道に2個電子が足りな

表1. 分子軌道法によって計算された、アルミとボロンの正20面体クラスター外側の原子の安定位置

clusters	elements (X)		
	H	Li	Al or B
$Al_{12}+X$ $B_{12}+X$	v	v	ec
$Al_{13}+X$ $B_{13}+X$	f	f	f

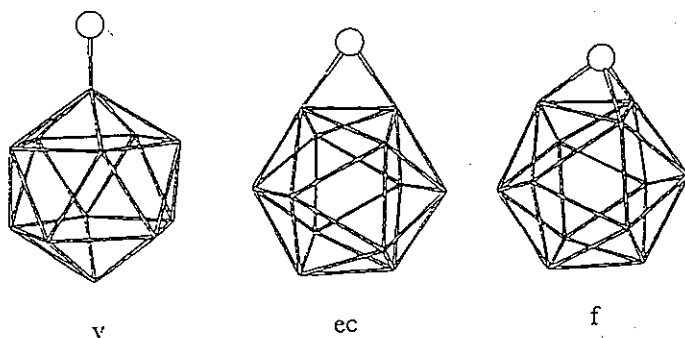


図1. 正20面体クラスター外側の原子に対する、3つの安定位置

い。最高エネルギーのクラスター内軌道は4重に縮退しているため、ヤーン・テラー効果によって中性のクラスターは歪む。

3. ボロン系とアルミ系の関係¹⁾

正20面体クラスターは、周期性と共存できない対称性を持っているので、単位胞の大きな結晶や準結晶となる。ボロン系には、12原子の正20面体クラスターを構造単位とした、様々な結晶構造が存在し、すべて半導体である(図2)。アルミ系には、周期の異なる近似結晶(局所構造が準結晶と同じ結晶)から準結晶まで存在する。一般に、結晶の周期が長くなるほど(準結晶は周期が無限大と考えられる)電気抵抗率は大きくなるが、抵抗率の値は合金系の違いに、より敏感である(図2)。13原子の正20面体クラスターを持つ合金系の場合は、抵抗率も低く、温度依存性も金属的である。12原子のクラスターを持つ合金系の場合は、抵抗率も高く、温度依存性も非金属的である。しかし、基本的には金属(フェルミ準位での状態密度が有限)である。同じ12原子のクラスターを持つボロン系との違いは、正20面体より大きなクラスターの多重殻構造まで調べると明らかになる(図3)。第1殻の正20面体と第3殻のサッカーボール・クラスターが同じ場合でも、第2殻の原子数が、アルミ系ではボロン系より多い。つまり、ボロン系では空隙になっているサイト(正12面体サイト)が、アルミ系では完全に占有されている。このため、ボロン系の配位数は6で非金属的(典型的な共有結合よりは大きい)だが、アルミ系の配位数は、ほぼ12となり、基本的には金属となる。

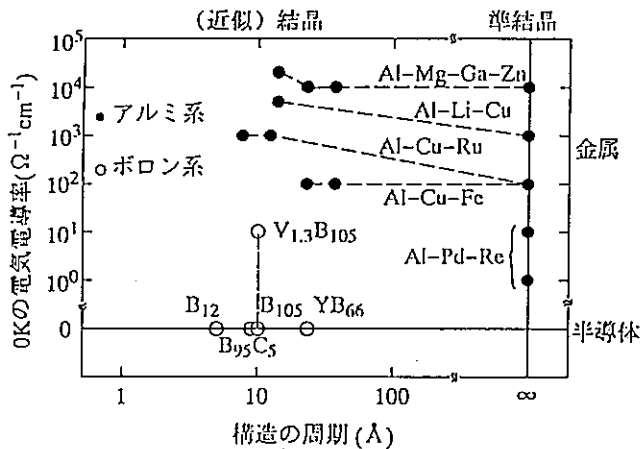


図2. ボロン系とアルミ系の正20面体クラスター固体における、構造の周期の長さ、0 Kでの電気伝導率

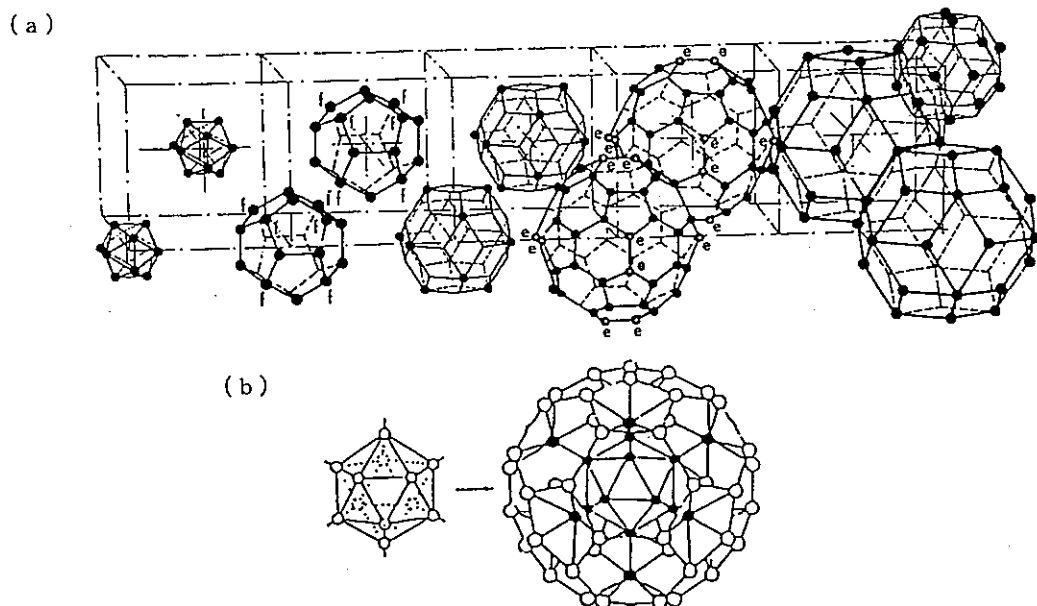


図3. (a) アルミ系立方晶と、(b) ボロン系菱面体晶の、近似結晶の多重殻構造

4. 半導体準結晶の探索⁴⁻⁸⁾

これまでに発見された準結晶の多くは、アルミを主体とした、正20面体対称性を持つものであり、基本的には金属である。半導体準結晶が、実現し得るのかどうかは、大変興味深い問題である。この問題には、アルミ系とボロン系の2つの方向からアプローチしている。12原子の正20面体クラスターを持つ、アルミ系準結晶の電気抵抗率は、金属としては異常に高い(1~1000 mΩcm)。さらに、温度の上昇と共に、キャリア密度が増大し、移動度は減少するが、電気伝導率は前者に支配されて増大する(図4)。この状況は、定性的には半導体と同じである。準結晶の特異な電気伝導は、擬ギャップと電子局在効果の相乗効果として解釈されつつある。抵抗率の高いアルミ系準結晶は、金属と半導体の中間的存在であり、さらに半導体に近い合金系を探索している。

ボロン系の結晶は、近似結晶と考えられる。 α 菱面体晶ボロンの単位胞は、正20面体準結晶の2つの単位胞の1つとほぼ同じであり、もう1つが存在できれば準結晶が実現する。クラスターに分子軌道法を適用して求めた準結晶構造の凝集エネルギーは、 α 菱面体晶と β 菱面体晶の中間の値を持ち、準安定相としては存在できる。結晶中の正20面体は、先に述べたヤーン・テラー効果等により歪んでいるが、クラスターが自発的に歪んでしまつては、準結晶構造が成長する理由は無い。 α 菱面体晶では、単位胞の体対角線上に他の原子を挿入することにより、クラスターの歪みを制御できる。結晶中の歪みを調べた結果、B-C系のC10原子%付近で、最も歪みが小さくなることが分

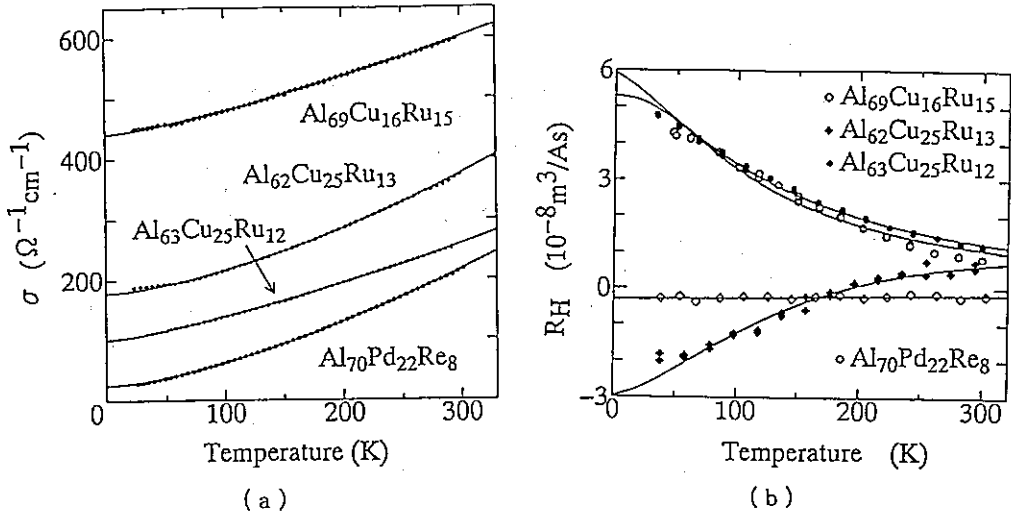


図4. アルミ系準結晶の、(a) 電気伝導率と、(b) ホール係数の、温度依存性

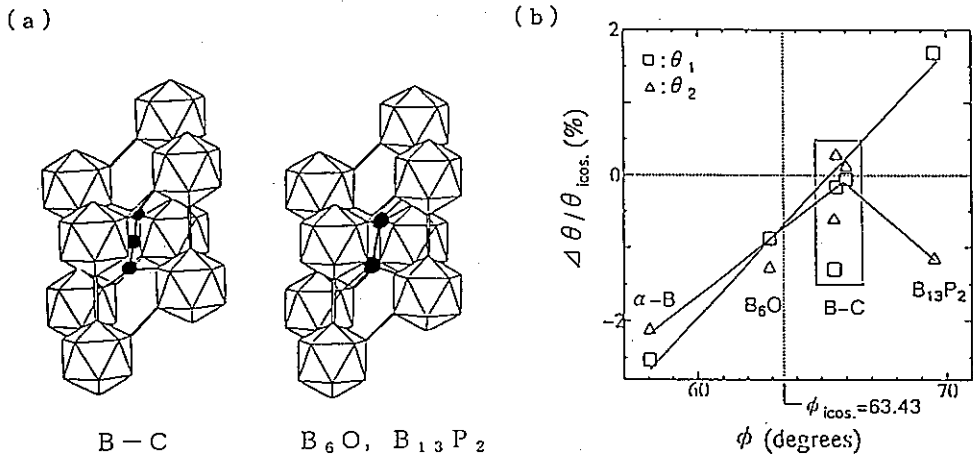


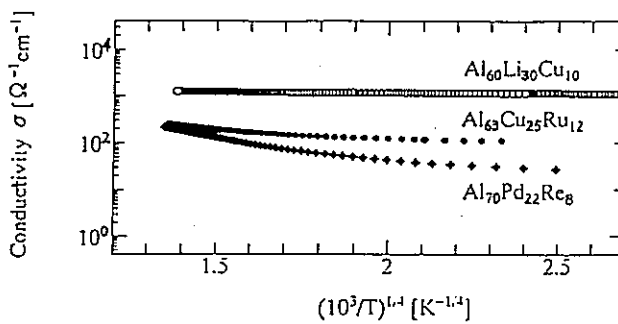
図5. α 菱面体晶に他の原子を挿入した場合の、(a) 単位胞と体対角線上のサイト、
(b) 単位胞の軸角と正20面体クラスターの歪

かった(図5)。B-C系のアモルファス相をアニールして、準安定相を探索した結果、C数原子%で、近似度の1つ高い、新しい近似結晶を発見した。準結晶はまだ見つかっていないが、第三元素を加えることによって探索中である。

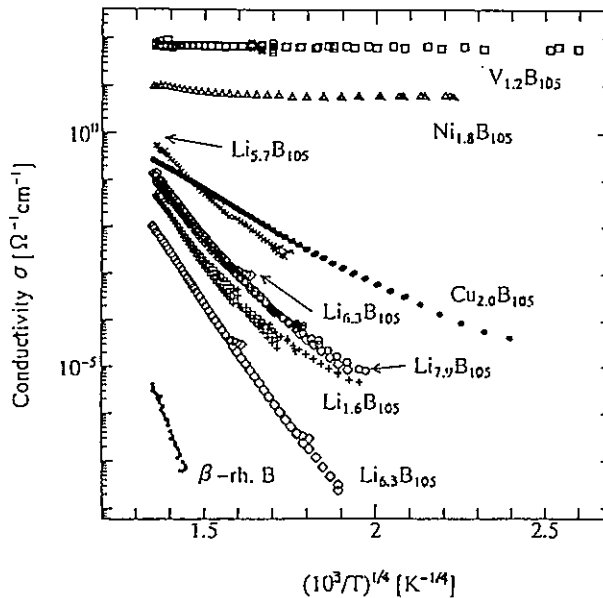
5. 新超伝導物質の探索^{6,9-11)}

元素半導体のクラスター固体としては、フラーレン(C_{60})とシリコン・クラス

レート化合物 (Si_2O) において、アルカリ金属ドーピングにより、超伝導が発見されている。 α 菱面体晶ボロンでも、 Li のドーピングにより超伝導が発現する可能性が、バンド計算から指摘されている。また、 β 菱面体晶ボロンは、幾何学的には C_{60} の面心立方結晶と類似しており、同程度の大きさの空隙も存在する。 β 菱面体晶ボロンに、 Li や Cu 等の遷移金属をドーピングすると、伝導率は上昇するが、数原子%で極大を示し、金属へ転移する前に再び減少してしまう。これは、ドーピングされた電子が、内因性アクセプター・バンドを埋めて行き、バンドが半分以上埋まると、ドーピングによりキャリア密度が逆に減少するためと考えられる。内因性アクセプター・バンドの起源は、正 20 面体



(a)



(b)

図 6. (a) アルミ系準結晶と、(b) 金属をドーピングした β 菱面体晶ボロンに対する、電気伝導率の温度依存性

表2. 金属をドーブしたβ菱面体晶ボロンにおける、ドーピング・サイトの占有率

composition	doping sites occupancy (%)		
	A ₁ -hole 2 sites/unit cell	E-hole 2 sites/unit cell	D-hole 6 sites/unit cell
Li _{7.9} B ₁₀₅	0.0	100.0	100.0
Cu _{1.2} B ₁₀₅	7.9	33.4	59.9
Ni _{2.16} B ₁₀₅	44.7	0.0	21.6
V _{1.62} B ₁₀₅	64.0	0.0	5.3

クラスターの最高エネルギーの空のクラスター内軌道が、ヤーン・テラー効果によって価電子帯から遊離したものである。また、このバンド内の状態は局在状態であり、伝導はホッピングによって起こる。したがって、超伝導どころか金属状態すら実現していない。ただし、金属原子のドーピング・サイトは何種類もあり、そのうちのアルミ系では占有されているサイト（Aサイト）に原子が入った場合は、金属の不純物準位と内因性アクセプター準位が混成して、状態密度が大きくなる。Aサイトの占有率が高い金属（表2）ほど伝導率の極大が大きくなり、Vの場合は、金属転移が起きている可能性もある（図6）。シリコン・クラスレートの場合も、混成が起らない場合は超伝導は観測されず、混成によって超伝導が発現している。Aサイトの占有率を高め、金属転移や超伝導を探索している。

6. 低渦電流損失材料^{1,2)}と高温熱電変換材料の可能性^{1,3)}

共有結合クラスターであるA₁Fe₂を持つアルミ系固体は、2.2.で述べたように、基本的には金属だが（ボロン系では空隙である第2殻の正12面体サイトが占有されているため）、金属としては異常に抵抗率が高い。キャンド型ポンプのキャン材料のように、渦電流損失を低く抑えるために、抵抗率ができるだけ高い材料が要求される用途がある。このような場合、抵抗率の高さと共に、強度、加工性、低コスト等が、併せて要求される。抵抗率が高いただけなら絶縁体材料が最も良いことになるが、実際には、他の機能とのバランスで決まる。Al-Cu-Fe系準結晶は、室温で数mΩcmの抵抗率を持ち、キャン材料等には十分である。また、構成元素と作製法（溶解して、熱処理するだけで、大量生産も可能）から、低コストである。問題は、強度と加工性だが、金属材料としての機能も残していることから、十分可能性はある。

熱電発電は、廃熱や太陽熱等を利用できるインテリジェントな発電方法の一つである。この発電効率を上げるためには、様々な温度で性能指数が大きい材料が必要だが、現状では、室温付近に比べて、数百℃以上での性能指数が小さい。性能指数を大きくするた

めには、熱電能と電気伝導率を大きくし、熱伝導率を小さくする必要がある。ボロン系固体では、正20面体クラスター間のホッピング伝導という特殊な伝導機構のため、キャリア密度を 10^{21} cm^{-3} 以上にして伝導率を大きくしても、高温での熱電能が大きい。また、クラスター固体の特徴として、熱伝導率は非常に小さい（ダイヤモンドの1%以下である）。ボロン系固体において、現時点で、p型の材料は十分な性能指数を持つものが得られるので、n型の材料で同程度のものを開発することが課題である。

7. おわりに

以上述べたように、ボロン系とアルミ系の正20面体クラスター固体は、基本的には、前者は半導体で、後者は金属であるため、共通の場で議論されることはほとんど無かった。我々のグループは、それぞれについて10年程度の研究の蓄積があり、現在、Ⅲ族の正20面体クラスター固体として、統一的描像を構築しつつある。

そのためには、様々な角度からの研究が必要であり、低温実験については、今後、益々、低温センターにお世話になると思います。宜しくお願い申し上げます。

参考文献

- 1) K.Kimura et al. : Interrelation between Icosahedral Aluminum-based Quasicrystal and Boron-Rich Solids ---Structure, Electronic States and Electronic Transport ---
Intr.J.Modern Phys. (1995) in press.
- 2) A.Hori, K.Kimura et al. : Molecular Orbital Calculations for Icosahedral Boron-Rich Solids
Trans.Mat.Res.Soc.Jpn. **16A**, 243-246 (1994).
- 3) A.Hori, K.Kimura et al.: Electronic Structure and Optical Properties of Quasicrystalline Approximant Boron-rich Solids
J.Non-Cryst.Solids **153/154**, 308-311 (1993).
- 4) R.Tamura, K.Kimura, H.Ino et al. : Semiconductor-like Transport in Highly-Ordered Al-Cu-Ru Quasicrystal
Phys.Rev. B **50**, 9640-9643 (1994).
- 5) M.Takeda, K.Kimura et al. : Approximant Phase of an Icosa-hedral Quasicrystal in a Boron-Carbon Semiconducting System
Phys.Rev.B **48**, 13159-13161 (1993).
- 6) 木村薫：正20面体とサッカーボール・クラスターを持つアモルファス的ボロン系固体の構造と物性
固体物理 **27**, 900-907 (1992).
- 7) K.Kimura and S.Takeuchi : Experimental Studies of Electronic Transport in Quasicrystal
Quasicrystals:The State of the Art (book) 313-342 (1991).
- 8) 木村薫：良質準結晶合金の異常な高電気抵抗率 -擬ギャップと電子局在効果-
固体物理 **26**, 501-508 (1991).
- 9) H.Matsuda, K.Kimura et al. : Structural- and Electronic-Property Investigations

on Metal-Doped β -rhombohedral Boron

J.Phys.Chem.Solids (1995) in press.

- 10) H.Matsuda, K.Kimura et al. : Structural and Electronic Properties of Li and Cu-doped β -rhombohedral Boron Constructed from Icosahedral and Truncated Icosahedral Clusters
Phys.Rev. B 52, 6102-6110 (1995).
- 11) K.Kimura : Structure and Properties of Boron-rich Solids Constructed of Icosahedral and Soccer-ball Clusters
Mater.Sci.Eng. B 19, 67-71 (1993).
- 12) 木村薫 : 準結晶の不思議な性質
パリティ 8-10, 21-30 (1993).
- 13) H.Werheit : Boron-rich Solids: a Chance for High-Efficiency High-Temperature Thermoelectric Energy Conversion
Mater.Sci.Eng. B 29, 228-232 (1995).

周期的磁場および磁場変調下にある 2次元電子系の磁気抵抗振動

物性研究所 遠藤 彰
家 泰 弘

(内線96-5602)

1 はじめに

分子線エビタクシー (MBE) 法等、結晶成長技術の進歩により、半導体ヘテロ接合界面に移動度の非常に大きい2次元電子系を作成することが可能となってきた。最も一般的に用いられる GaAs/Al_xGa_{1-x}As (x は 0.3 程度) 単一ヘテロ接合界面では、4.2 K 程度以下の低温での移動度は数 $10 \sim 1000 \text{ m}^2/\text{Vs}$ になり、電子の平均自由行程は数~数 $10 \mu\text{m}$ にもなる。電子ビームリソグラフィ等、現代の微細加工技術を用いると、電子の平均自由行程よりも十分小さい長さスケールの変調を2次元電子系に加えることが可能である。こうした試料はメソスコピック系の種々の興味深い物理現象の実験的研究の舞台となってきた。本稿では我々の研究室で取り組んできている、1次元周期的電場 (静電ポテンシャル) および磁場 (ベクトルポテンシャル) 変調を加えた2次元電子系の、磁気抵抗振動の研究について紹介する。

2 背景

2次元電子系の2次元面に垂直な方向に磁場 B を加えると電子は円運動 (サイクロトロン運動) を行う。その半径 (サイクロトロン半径) $R_c = \hbar k_F / eB$ は $0.1 \sim 1 \text{ T}$ の磁場で数 $10 \sim$ 数 100 nm 程度の大きさになる。ここで k_F は電子のフェルミ波数である。平均自由行程が R_c より十分大きくないとサイクロトロン運動をしている効果が見えてこないが、前述のように GaAs/Al_xGa_{1-x}As 単一ヘテロ接合界面では平均自由行程は十分に大きいことがわかる。さらに2次元電子系に周期的変調が加わると、その周期 a とサイクロトロン直径 $2R_c$ との整合性が問題となってくる。

静電ポテンシャルの小さい1次元周期的変調を加えた2次元電子系の、周期方向 (x 軸) の抵抗率 ρ_{xx} の外部から印加する磁場 B への依存性 (磁気抵抗) は $1/B$ に対して周期的な振動を示し、 ρ_{xx} は

$$\frac{2R_c}{a} = \frac{2\hbar k_F}{aeB} = n - \frac{1}{4} \quad (n = 1, 2, 3, \dots) \quad (1)$$

与えられる磁場で極小をとることが実験的 [1-3] にも理論的 [1-6] にも確立している。この磁気抵抗振動は第一発見者の名にちなんでワイス振動とも呼ばれている。実験に用いられた試料で周期的静電ポテンシャルは、GaAs/Al_xGa_{1-x}As ヘテロ接合のウエハー表面に、レーザーの干渉縞を照射するか [1, 2]、または、電子ビームリソグラフィを用いて作成した短冊状の金属ゲートを並べたものをのせることにより [3] 導入されたものであった。理論的には、式 (1) は静電ポテンシャル変調を摂動として扱った計算で、ランダウサブバンドの分散が消失する条件として導出されるが [1-3, 5, 6]、より直観に訴える、電子の軌道を半古典的に取り扱った説明も与えられている [4]。ここでは図 1(a) を用いて後者の簡単な解説を試みる。互いに直交する電場 E と磁場 B 下におかれた電子は速度 $\mathbf{v}_d = E \times B / B^2$ でドリフト運動をする。変調電場のも

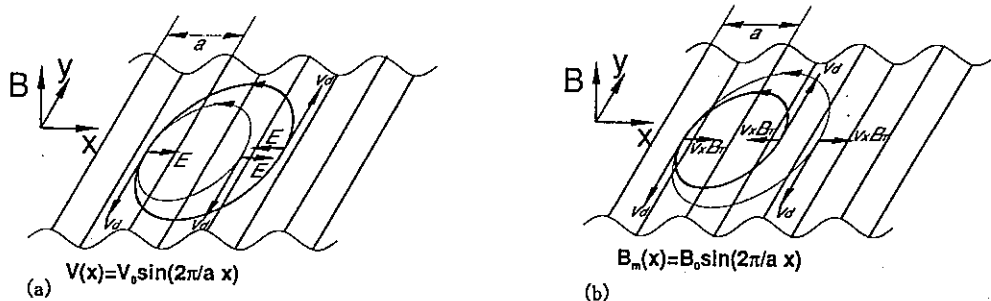


図 1: (a) 静電ポテンシャル変調下の電子のサイクロトロン運動。ドリフト速度のサイクロトロン運動一周にわたる平均 \bar{v}_d が相殺する場合（太線）と、強めあう場合（細線）を示してある。(b) 磁場変調の場合。太線と細線が入れ替わっていることに注意。

とでは、 E したがって v_d は電子の位置 x に依存する。サイクロトロン運動一周にわたる平均 \bar{v}_d をとると、図 1(a) の太線に示すようなあるサイクロトロン半径 R_c の時には相殺し $\bar{v}_d = 0$ となり、図 1(a) の細線に示すような R_c の場合には強めあい $|\bar{v}_d|$ が大きくなる。 v_d は面内で変調に垂直な方向 (y 軸) を向いており、この方向の伝導率 σ_{yy} を増加させる。抵抗率テンソルは伝導率テンソルの逆テンソルであり、移動度、磁場が十分に大きいときにはほぼ $\rho_{xx} \propto \sigma_{yy}$ であることに注意すると、 $\bar{v}_d = 0$ が磁気抵抗極小を与える条件であることがわかる。簡単な正弦波変調を仮定すると \bar{v}_d は解析的に計算でき、 $\bar{v}_d = 0$ となる条件は非常に良い近似で式 (1) に一致する。

一方、2次元面に垂直な方向 (z 軸) の小さい 1 次元周期的な磁場変調を加えた場合、理論計算からは同様の磁気抵抗振動が振動の山と谷を反転させておこる、すなわち ρ_{xx} が

$$\frac{2R_c}{a} = \frac{2\hbar k_F}{aeB} = n + \frac{1}{4} \quad (n = 1, 2, 3, \dots) \quad (2)$$

にて極小値をとるような振動をすることが指摘されてきた [7-9]。これを先の静電ポテンシャル変調の場合のワイス振動（電氣的ワイス振動）と区別して磁氣的ワイス振動と呼ぶことにする。電氣的ワイス振動の場合と同様に摂動計算によるランダウサブバンドが平らになる条件から式 (2) が導出されているが [7-9]、ここでもまた、半古典的描像による解釈も可能である [8]。変調磁場 B_m がある場合には、先の電場変調の場合の議論の E を $\mathbf{v} \times \mathbf{B}_m$ で置き換えればよい。すなわち $v_d = (\mathbf{v} \times \mathbf{B}_m) \times \mathbf{B} / B^2$ となる。 $\mathbf{v} \times \mathbf{B}_m$ は電子の運動の方向によって向きを変えるため、電場変調の場合と比較し、図 1(b) に示すように、 v_d が相殺しあう条件（太線）と、強めあう条件（細線）が入れ替わる。これが磁気抵抗振動で山と谷が入れ替わる物理的起源と考えて良い。ここでも、正弦波変調の場合には、 \bar{v}_d は解析的に計算できて、 $\bar{v}_d = 0$ となる条件は同様に式 (2) を与える。

実験的には周期的磁場変調は、微細加工で短冊状の金属ゲートの列を強磁性体金属を用いて作成すれば導入できると考えられる。しかし、八木と家 [8] による磁氣的ワイス振動の観測を目指した最初の試みでは、予想に反し、式 (1) の位置に極小が見える磁気抵抗振動が観測された。これは、金属ゲートを作りつけたこと自体により意図せぬ静電ポテンシャル変調が加わってしまい、本来の磁場変調の効果を覆い隠してしまったためと考えられている。測定は 1.3 K で行われているが、温度がここまで下がる際の、GaAs/Al_xGa_{1-x}As と表面にのせた金属、あ

るいはレジスト（この実験ではリソグラフィーのマスクに用いたレジストが試料上に残されたままであった）の収縮率の違いに起因する周期的歪みが、変形ポテンシャルを通じて、2次元電子系に周期的静電ポテンシャル変調をもたらしているもの [10] と考えている。磁氣的ワイス振動を観測するためには、この「作りつけ」の静電ポテンシャルに対して、磁場変調の効果を相対的に大きくするなんらかの工夫が必要となる。我々を含む3つのグループがほぼ同時に独立に、それぞれ独自のアプローチでこの問題を解決し、磁氣的ワイス振動の観測に成功している。Carmona ら [11] は、超伝導体で短冊状ゲート列を作成し磁場を掃引する向きの違いによる、超伝導体部分への磁束の入り込み方の違いを利用し、上向き掃引と下向き掃引の場合の ρ_{xx} の差をとることにより、磁場変調による効果のみを抽出した。Ye ら [12] は強磁性体金属として磁化率の非常に大きい Dy を用いることにより、意図せぬ静電ポテンシャル変調を上回る磁場変調を加えることに成功した。我々のアプローチ、結果 [13] について以下で詳しく述べる。

3 磁氣的ワイス振動の観測

図2に我々が測定に用いた試料の概略を示す。MBEにより成長した、 $T = 4.2$ K での移動度

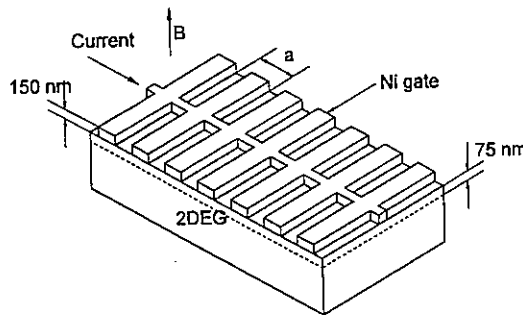


図 2: 試料の概略図。

が $60 \text{ m}^2/\text{Vs}$ の GaAs/Al_{0.265}Ga_{0.735}As 単一ヘテロ接合の2次元電子系 (2DEG) を使用している。実際に2DEGができていヘテロ接合界面はウエハー表面から75 nmの深さにある。ホールバーの形状に加工したウエハー表面に強磁性体金属 Ni で厚さ150 nm、幅250 nmの短冊状のゲートを250 nmの間隔をおいて並べてある。したがって、変調の周期は $a = 500 \text{ nm}$ ということになる。我々の試料の特徴は、すべての短冊状のゲートどうしが図にあるように背骨のような一本の線で互いに電氣的に接続されており、等しいバイアスを印加することができるようになっていることである。これにより2次元電子系に新たに周期的静電ポテンシャル変調を加えることができる。変調の振幅はバイアス値により制御することができる。この人工的につけ加える周期的ポテンシャル変調を先に述べた「作りつけ」のものを打ち消すように重ね合わせ、意図せぬ静電ポテンシャル変調の効果をなるべく小さくしようというのが我々のアイデアである。また我々の試料では、短冊状のゲート列を規定するのに用いたマスクのレジストを取り除いてある。このことは試料を冷却したときの収縮率の違いによる歪みを小さくするのに貢献しているものと思われる。

図3(a)はゲートに $V_g = +500 \text{ mV}$ をかけたときの磁気抵抗である。本稿で紹介する測定はすべて4.2 Kで行っている。図中の矢印で示すように、磁場上向き掃引と下向き掃引の両方の

場合を示してある。図に挿入してある破線、実線はそれぞれ式 (1)、式 (2) より計算した、電

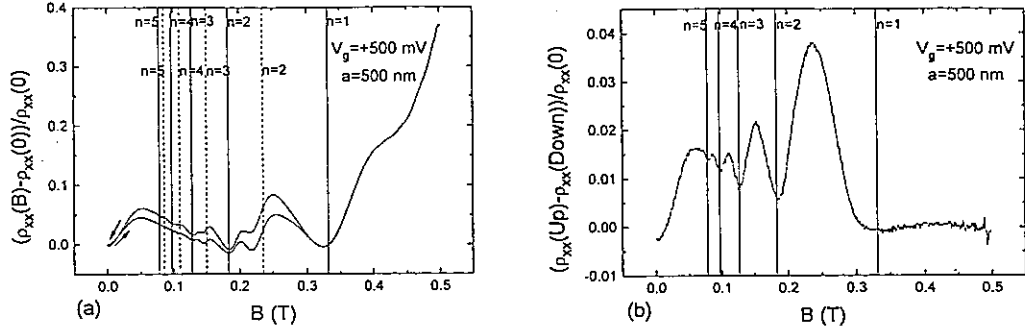


図 3: (a) $V_g = +500$ mV の場合の磁気抵抗。破線は電気的ワイズ振動 (式 (1))、実線は磁氣的ワイズ振動 (式 (2)) に対応する磁気抵抗極小位置。(b) (a) の下向き掃引の磁気抵抗から上向き掃引のものを差し引いたもの。実線は磁氣的ワイズ振動 (式 (2)) に対応する磁気抵抗極小位置。

氣的ワイズ振動および磁氣的ワイズ振動に対する磁気抵抗極小の位置を示す。図より、磁気抵抗極小は上向き掃引、下向き掃引ともに磁氣的ワイズ振動に対応する位置に現れていることがわかる。 $V_g = +500$ mV というバイアスにより、「作りつけ」の静電ポテンシャル変調がほぼ打ち消され、磁場変調の効果がみえてきていることがわかる。Ni は GaAs よりも収縮率が大きく、したがって冷却したときに Ni ゲート直下の部分のほうが何もっていない部分よりも大きく収縮し、ポテンシャルが高くなる。このことと、ゲートに正のバイアスをかけると「作りつけ」のポテンシャル変調が打ち消されることとはつじつまがあっている。上向き掃引と下向き掃引の磁気抵抗は、0.3 T 以上の磁場では一致している。これは、上向き掃引で磁場を増加させていくにしたがって、Ni の磁化がそろい、0.3 T で飽和しているためと考えられる。上向き掃引と下向き掃引の 0.3 T 以下での磁気抵抗の違いは Ni の磁化の大きさのみに起因することに注意して、両者の差をとったのが図 3(b) である。極小は実線で示す磁氣的ワイズ振動に対応する位置にきており、この極小の起源が磁場変調にあることがより明瞭となる。

4 電場変調と磁場変調が共存する場合のワイズ振動

前節では、 $V_g = +500$ mV を加えることにより、静電ポテンシャル変調をほぼ打ち消した場合の磁気抵抗振動について記した。これがゲートにバイアスをかける元来の目的であったのだが、ゲートバイアスは少し違った用途にも使用できることがわかった。 V_g を +500 mV より小さい値に設定すると、打ち消しが不完全となり、静電ポテンシャルと磁場の変調が共存する興味深い状況を作り出すことができる。さらに、両種の変調の大きさの比は V_g により制御できる。このことを利用し、2 種の変調が共存する場合の磁気抵抗振動の両者の強度比への依存性を調べた。Peeters と Vasilopoulos の計算によると [9]、空間的に位相をそろえた正弦波の静電ポテンシャルと x 軸方向の磁場変調、 $V(x) = V_0 \cos(\frac{2\pi}{a}x)$ と $B_m(x) = B_0 \cos(\frac{2\pi}{a}x)$ 、がある場合、 ρ_{xx} は

$$\frac{2R_c}{a} = \frac{2\hbar k_F}{aeB} = n + 1/4 - \phi/\pi \quad (n = 1, 2, 3, \dots) \quad (3)$$

にて極小をとる。ただし ϕ は、

$$\tan \phi = \frac{2\pi m^* V_0}{ak_F \hbar e B_0} \equiv \delta \quad (4)$$

のように静電ポテンシャルと磁場の変調の強度比で決まる位相因子である。ここで m^* は電子の有効質量である。式(3)は磁気抵抗振動の位相、すなわち極小の位置等が両変調の強度比に対して連続的に変化していくことを意味している。また、すぐにわかるように式(3)は $\delta \gg 1$ (静電ポテンシャル変調が磁場変調よりはるかに大きい) の場合には式(1)に、逆に $\delta \ll 1$ の場合には式(2)に漸近する。同時に、磁気抵抗振動の振幅は

$$\frac{2}{\pi^2} \cdot \frac{1}{2R_c/a} \cdot (B_0 \mu)^2 \cdot (1 + \delta^2) \cdot A \left(\frac{T}{T_a} \right) \quad (5)$$

のように両変調の大きさ等に依存することが示されている。ここで μ は電子の移動度、 $A(T/T_a)$ は測定を行う $T = 4.2$ K付近ではほぼ1程度の数である。先に述べたような半古典的描像でも $\mathbf{v}_d = (\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}_m) \times \mathbf{B} / B^2$ とすることにより、式(3)、(5)は温度依存性を加味する因子 $A(T/T_a)$ を除いて導出できる。

実際に V_g を+500から-250 mVの種々の値に固定し、磁気抵抗をの測定を行ったものが図4(a)である。ここでは、より大きな磁場変調がかかっていると考えられる下向き掃引のものだけを示してある。見通しをよくするために、横軸を $2R_c/a$ になおしてプロットし直したものが図4(b)である。磁気抵抗極小は $V_g = +500$ mVで式(2)で与えられる磁氣的ワイスの位置

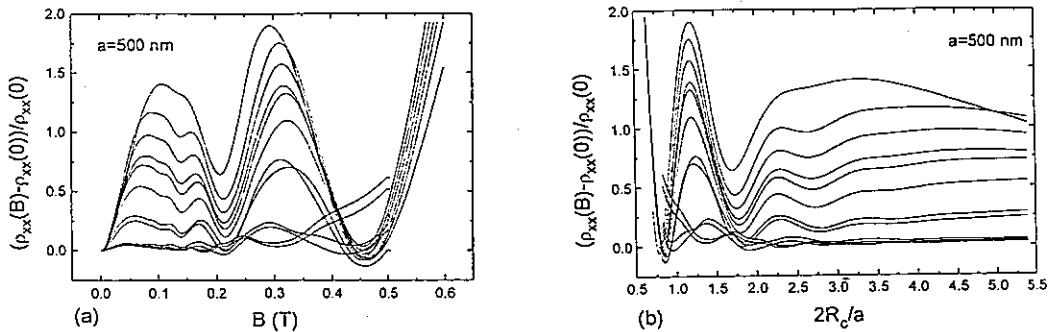


図4: (a) 種々の V_g に対する磁気抵抗。上から $V_g = -250, -200, -175, -150, -125, -110, -100, -50, 0, +50, +250, +500$ mV。(b) (a)を横軸を $2R_c/a$ になおしてプロットし直したもの。

にあったものが、 V_g を小さくして、静電ポテンシャル変調の強度を大きくしていくのにしたが、連続的に $2R_c/a$ の小さい方へシフトし、 $V_g = -250$ mVでほぼ式(1)で与えられる電氣的ワイス振動の位置に来ていることがわかる。同時に、振動の振幅も連続的に増加している。 $V_g = +500$ mVの場合を $\delta = 0$ とみなすと、そのときの振幅から式(5)にしたがって B_0 を求めることができる。 $n = 1$ に対応する位置の振幅からこれを求めると、 $B_0 = 13$ mTとなる。さらに他の各 V_g の値に対して、この B_0 の値と $n = 1$ に対応する位置の振幅から式(5)を用いて δ を求めることができる。これを、図4(b)から直読した ϕ に対してプロットしたのが図5(a)である。このプロットは式(4)をよくみたとおり、我々の測定結果がPeetersとVasilopoulosの理論でよく説明でき、したがって、我々の試料は、正弦波の静電ポテンシャル変調と磁場変調が、空間的な位相をそろえて共存しているとしてよく記述できることがわかる。変調を加える

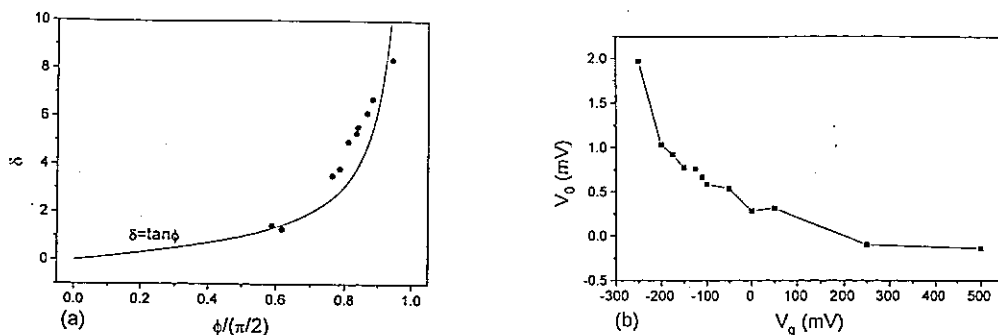


図 5: (a) δ 対 ϕ のプロット。曲線は $\delta = \tan \phi$ 。(b) V_0 対 V_g のプロット。

もとであるウェハー表面の金属ゲート列と、2次元電子系は 75 nm とかなり離れているため、変調の高調波成分は減衰してしまっており、変調は正弦波とみなせるというのは、妥当なことである。また、 B_0 と δ あるいは $\tan \phi$ よりただちに式 (4) を用いて、静電ポテンシャル変調の大きさ V_0 を推定することができる。 V_g に対して、図 4(b) から読みとった ϕ から求めた V_0 をプロットしたものが図 5(b) である。実際に 2次元電子系が感じているポテンシャル変調の大きさは 0~2 mV 程度、 $V_g = 0$ mV の時の V_0 を歪み等による「作りつけ」のものともみなせば、その大きさは 0.3 mV 程度であることがわかる。

5 おわりに

2次元電子系に強磁性体金属の短冊状金属ゲート列をのせることにより、1次元周期的変調電場および磁場を導入し、この系について行った磁気抵抗振動の研究を紹介してきた。ゲートに等電位をかけるというテクニックにより、測定 of 妨げになることもある意図せぬ「作りつけ」の静電ポテンシャル変調を抑制し、磁氣的ワイス振動を観測できることを示した。同時にこのテクニックは、 $V_g = +500$ mV における静電ポテンシャル変調がほぼ打ち消された条件から、 $V_g = -250$ mV における、静電ポテンシャル変調に対し磁場変調を無視できる条件まで、2種の変調の強度比を制御するのにも用いることができる。磁気抵抗振動の位相と振幅の、両変調の大きさの比への依存性から、この2つの変調がともにほぼ正弦波で、互いに位相をそろえたものであることがわかった。このように、磁気抵抗の測定は2次元電子系の感じるポテンシャルの形や大きさに関する情報をもたらす。現在 Gd や Co 等、より磁化率の大きい強磁性体金属を用いた試料や、ウェハー表面から2次元電子系までの距離を 25 nm まで小さくした GaAs/Al_xGa_{1-x}As 単一接合を用い、より大きな、また、正弦波からはずれた高調波までを含むような変調をかけた試料を作成し、研究をすすめている。変調を2次元的にすることも視野に入れている。さらに低温、強磁場の量子ホール効果が観測されるような領域で、電場および磁場の変調がどのような効果をもたらすか、というのも興味深い問題であり、この方面の研究にも着手している。

本稿で紹介した我々の研究室の研究成果は、伊澤修一氏（現・明電舎）が中心となつてすすめてきたものである。また、多くの有意義な議論、提言をしていただいた勝本信吾助教授、大学院生の加藤真由美氏、および、本研究の端緒を築いた八木隆多博士（東大理）に感謝致します。

References

- [1] D. Weiss, K.v. Klitzing, K. Ploog and G. Weimann: *Europhys. Lett.* **8** (1989) 179.
- [2] R.R. Gerhardts, D. Weiss and K.v. Klitzing: *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989) 1173.
- [3] R.W. Winkler, J.P. Kotthaus and K. Ploog: *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989) 1177.
- [4] C.W. Beenakker: *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989) 2020.
- [5] C. Zhang and R.R. Gerhardts: *Phys. Rev.* **B41** (1990) 12850.
- [6] F.M. Peeters and P. Vasilopoulos: *Phys. Rev.* **B46** (1992) 4667.
- [7] D.P. Xue and G. Xiao: *Phys. Rev.* **B45** (1992) 5986.
- [8] R. Yagi and Y. Iye: *J. Phys. Soc. Jpn.* **62** (1993) 1279.
- [9] F.M. Peeters and P. Vasilopoulos: *Phys. Rev.* **B47** (1993) 1466.
- [10] J.H. Davies and I.A. Larkin: *Phys. Rev.* **B49** (1994) 4800.
- [11] H.A. Carmona, A.K. Geim, A. Nogaret, P.C. Main, T.J. Foster and M. Henini: *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995) 3009.
- [12] P.D. Ye, D. Weiss, R.R. Gerhardts, M. Seeger, K. von Klitzing, K. Eberl and H. Nickel: *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995) 3013.
- [13] S. Izawa, S. Katsumoto, A. Endo and Y. Iye: *J. Phys. Soc. Jpn.* **64** (1995) 706.
- [14] P. Streda and A.H. MacDonald: *Phys. Rev.* **B41** (1990) 11892.
- [15] P.H. Beton, E.S. Alves, P.C. Main, L. Eaves, M.W. Dellow, M. Henini, O.H. Hughes: S.P. Beaumont and C.D.W. Wilkinson: *Phys. Rev.* **B42** (1990) 9229.

サファイア (Al_2O_3) 基板上にエピタキシャル成長した Nb 超薄膜の電気伝導特性

大学院理学系研究科科学専攻 齊 木 幸 朗
(内線7595)
小 間 篤
(内線4353)

1. はじめに

ニオブ (Nb) は、単体の中で最高の超伝導転移温度を持つ ($T_c=9.2\text{K}$) 物質であり、サファイア (Al_2O_3) 基板の上にエピタキシャル成長することが知られている。薄膜成長において単体であるが故にストイキオメトリーの問題が少ないことや、両者の熱膨張係数が近いため繰返しの熱サイクル下でも安定なことから、Nb/ Al_2O_3 系は、ジョセフソン素子の作製といった実用的見地から盛んに研究されてきた。従来の報告によれば、エピタキシャル単結晶薄膜では膜厚が2.5 nmまで¹⁾、また繊維構造をとる多結晶薄膜では1 nmまで²⁾、 T_c は低下するものの超伝導を示すことが知られている。

一方、膜厚の減少にともなう T_c の低下は、古くから超伝導のトピックスの一つで、種々の物質系の薄膜に関して研究がなされ、近接効果 (proximity effect) や二次元系での電子局在の T_c に対する影響が議論されてきた。電子局在の議論においては、主としてアモルファスや多結晶の薄膜を対象としており、結晶性の良い薄膜において T_c の低下がどのような振舞いをみせるかは従来あまり研究例がない。

われわれは分子線エピタキシー (MBE) 法を用いて種々の物質の薄膜成長をおこなひ、その物性の探究をおこなっているが、今回サファイア単結晶基板上へ成長したニオブ・エピタキシャル薄膜について、研究例の少ない10 nm以下の超薄膜を中心にその電気伝導特性、超伝導特性を明らかにすることを目的に研究をおこなった。

2. 実験手法

ニオブ薄膜の成長は到達真空度 1×10^{-8} Pa の分子線エピタキシー装置を用い、電子衝撃型蒸着源からニオブを蒸発させておこなった。一般に分子線エピタキシー法による成長の場合、基板温度が同じ場合には成長速度が遅いほうが基板上での反応や拡散が促進されるため、成長膜の結晶性が向上することが知られている。一方、成長速度が遅いと残留ガスからの不純物の混入は多くなるが、今回の実験では成長中の真空度が 2×10^{-7} Pa に抑えられたため、蒸着速度を0.15 nm/minと極めて小さくすることが可能となった。

従来、電子衝撃型蒸着源は遷移金属など高融点金属の蒸発源として使われてきたが、その安定性は傍熱型ヒーターによる蒸発源に比して劣っていた。今回の実験では制御電源の安定化をはかり、蒸着源と基板との距離を長くすることにより、5時間以上にわたって蒸発源からの蒸発量が一定にすることに成功した。超薄膜状態での膜厚の評価は、より厚い膜を用いての触診計による測定値からの較正でおこなうので、成長速度の抑制とその安定化はnm領域での膜厚の測定精度の向上に役立った。

基板として用いたサファイア ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$) の結晶構造とその三つの面方位を図1、2に示す。基板は大気中で化学エッチングをした後、超高真空中800℃で約一時間加熱して表面を清浄化した。加熱後の表面のオージェ電子スペクトルには成分元素以外は観測されなかった。薄膜成長中の表面の結晶方位や形状は、反射高速電子回折 RHEED (Reflection High Energy Electron Diffraction) を用いて観察した。薄膜成長後、いくつかの超薄膜試料については電気伝導測定の際の試料の酸化を防ぐために、基板温度室温でセレン (Se) を約3nm蒸着した。電気伝導測定は超高真空から取り出した後、通常の四端子法によりおこなった。

3. 結果および考察

3-A. ニオブ薄膜のエピタキシャル成長

一般にエピタキシャル成長の場合、基板の面方位が異なればその上に成長する物質の方位は同じ物質でも異なる。図3にサファイアA面 (Al_2O_3 (11 $\bar{2}$ 0)) 上に約3nm成長させたニオブの RHEED 像を示す。[001], [111] 両方向から観測した像から、A面上にニオブの (110) 面が図4のような配置で成長していることがわかる。また、回折像はストリーク (縦線) であり、成長表面は RHEED の可干渉領域内で平坦であることを示している。RHEED 像のストリークの鋭さ (ストリークの幅は回折像を与えるドメインの大きさに反比例する) から判断されるエピタキシーの最適基板温度は700℃である。これは後で述べるC面、R面の場合も同様であった。A面上の成長膜のX線回折の結果も RHEED 回折と同じくニオブの成長面は (110) 面であることを示した。Nb (110) の回折角から求めた成長膜の格子定数は0.3317nmであり、バルクの値0.3307nmに比べて0.3%大きくなっている。

次にサファイアC面上の成長の場合、成長膜の RHE

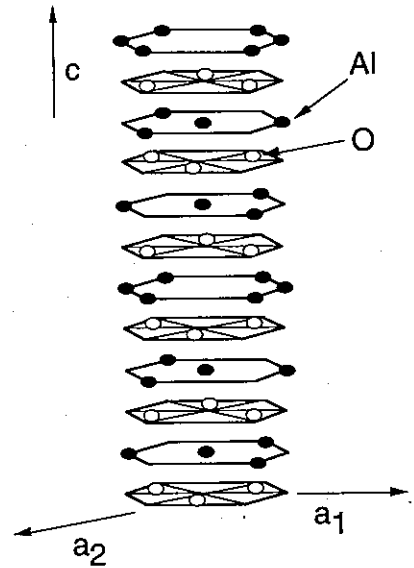


図1. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ の結晶構造
Al の面との O の面が12面
重なって単位格子をつくる

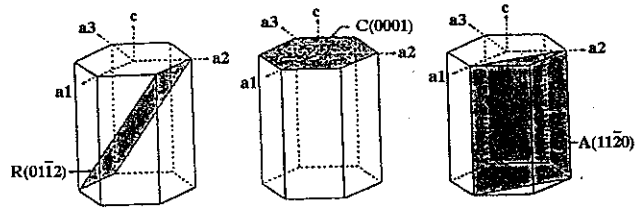


図2. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ の3種類の面

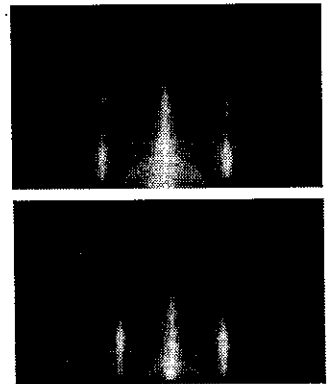


図3. Nb/ $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (11 $\bar{2}$ 0) の RHEED 回折像、(上) [001]、(下) [$\bar{1}$ 11] 方向入射

ED回折像は弱いストリークあるいは透過像を表すスポットと弱いストリークが混ざったものとなった。また結晶方位は(111)面と(110)面が混在している。透過像の存在は成長膜の表面に凹凸があることを示しており、したがって本研究が対象とする厚さ数nmの超薄膜では様な膜厚の試料を得ることが難しい。X線回折の結果も(110)配向と(111)配向が共存することを示している。成長膜の格子定数は0.3303nmで、バルクの格子定数に比べて0.12%小さくなっている。

R面上にニオブを成長した時のRHEED回折像もA面上の成長膜の場合と同様にストリーク像であり、膜表面は平坦である。回折像の解析からニオブの(100)面が図5のような方位でR面上に成長していることがわかる。X線回折の結果からも成長膜は(100)面が基板と平行になっていることが確認された。格子定数は0.3304nmでバルクよりも0.07%小さくなっている。

エピタキシャル膜の方位の関係を表1にまとめる。この結果は以前の報告と一致している。

表1. 成長膜/基板の方位関係

ニオブ面、方位 // サファイア面、方位	文献
(110), $[\bar{1}11]$ // A (11 $\bar{2}$ 0), [0001]	1,3,4,6-10
(110), $[\bar{1}10]$ // C (0001), $[2\bar{1}10]$ (111), $[\bar{1}10]$ // C (0001), $[2\bar{1}10]$	4,11 1,3,4,6-8
(100), [011] // R (11 $\bar{2}$ 0), $[\bar{1}1\bar{2}0]$	1,8,11

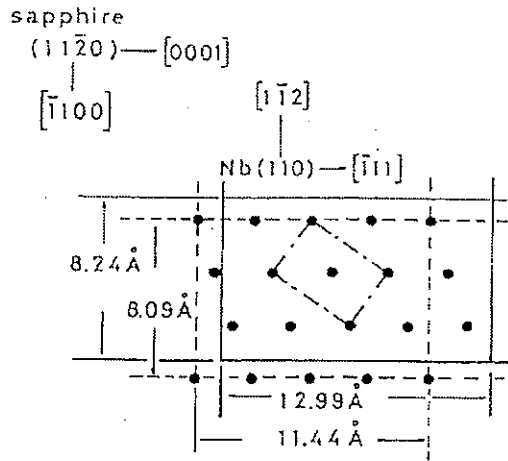


図4. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (11 $\bar{2}$ 0)面とNb [110]面の方位関係 (文献4)

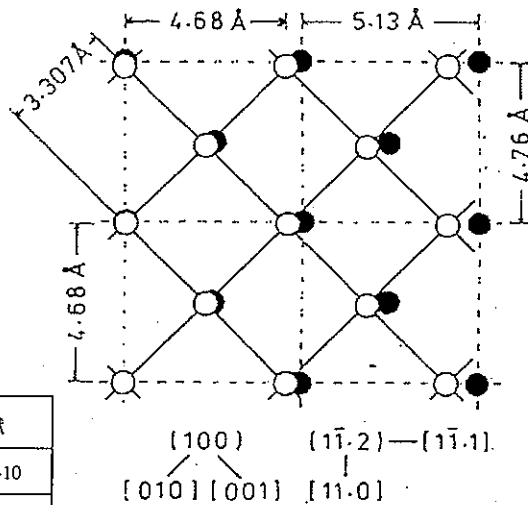


図5. $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1 $\bar{1}$ 02)面とNb [100]面の方位関係 (文献11)

3-B. 常伝導状態での特性

サファイアA、C、R面上に成長したニオブ薄膜のパラメータを稿末の表2に示す。ここではまず、常伝導領域での特性を議論する。図6は10Kでのシート抵抗 R_{\square} と膜厚dの関係を表したものである。膜厚2nmの領域で R_{\square} はdの2乗に反比例している。Fuchs¹²⁾と

Sondheimer¹³⁾によるサイズ効果の理論によれば、試料の膜厚 (d) が膜厚無限大の極限での平均自由行程 (l_{∞}) よりもはるかに小さい条件下では、表面散乱によって R_{\square} は d^{-2} に比例する。ニオブの場合、10 Kでのバルクの値^{14,15)} は $l_{\infty} \sim 8000$ nm である。 l_{∞} はこの値よりはるかに小さくなると思われるが、今対象としている膜厚 d は数 nm の程度であるから、上の条件 ($d \ll l_{\infty}$) は充分満たされていると考えられる。

図6から2 nm以上の領域では R_{\square} は d^{-2} 依存性を示しており、この領域での抵抗は主として表面散乱に支配されている。膜厚に依存した不純物や欠陥の影響がないことは、成長膜が数 nm という領域でも良い結晶性を保っていることを示唆して

いる。膜厚が2 nm以下の試料では R_{\square} が d^{-2} 依存性の直線からずれて大きくなっている。表2によればこれらの試料のいくつかは R_{RR} の値が1より小さく、これらの膜では膜厚の均一性が低く、膜が島状になっていることが考えられる。

表2および図6には省かれているが、膜厚2.5 nm以下の成長膜でセレン保護層のない膜の抵抗は温度の低下とともに増大した。これらの試料は酸化が進んだためと考えられる。したがって数 nm という超薄膜試料に関してセレン保護層は有用だといえる。

3-C. 超伝導特性

超伝導特性の種々のパラメータは表2にまとめられている。図7に超伝導転移温度 T_c を膜厚の逆数にたいしてプロットしたものを示す。今回作製した試料では膜厚が1.2 nmのものまで超伝導を示した。Wolfらによるエピタキシャル膜の結果を比較のため図中に示す。1.5-9.0 nmの全膜厚領域にわたって今回の試料は従来報告されたものより高い T_c を示した。このことは本研究で作製した試料の均一性や結晶性が高いことを意味すると考えられる。基板サファイアの面方位による違いは今回の試料では見られなかった。

図7から、超伝導転移温度 T_c と膜厚の間に $\log T_c \propto -1/d$ という関係があることがわかる。これは、超伝導体が常伝導金属と接している場合に「近接効果 (proximity effect)」を考慮して導かれた式と同じ依存性であり、膜厚の減少に伴う T_c の低下は、近接効果によるものであると考えられる。McMillanによれば¹⁶⁾ Cooper limitにおいて T_c は式(1)のように表される。

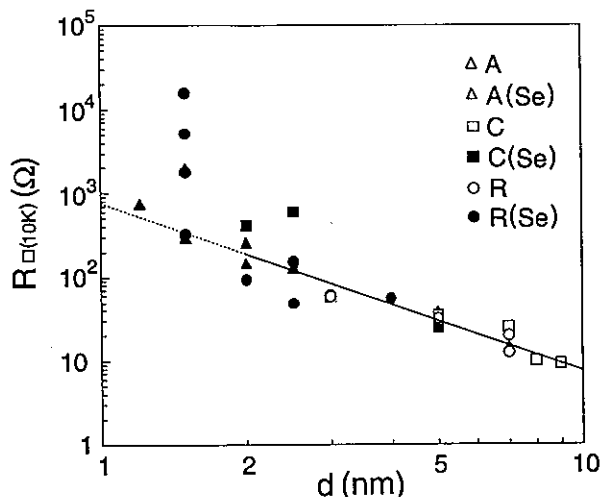


図6. 10 Kでのシート抵抗と膜厚の関係、記号A, C, Rはサファイアの面方位を、黒はセレン保護層があるもの、白はないものを表す。実線は傾き2の直線。

$$T_c = T_{c0} \left(\frac{2\gamma\omega_c}{T_{c0}\pi} \right)^{-\frac{N_s(0)a}{N_N(0)d}} \quad (\text{eq. 1})$$

ここで、 T_{c0} はバルクの転移温度、 $N_s(0)$ 、 $N_N(0)$ はそれぞれ超伝導、常伝導状態でのフェルミ面での状態密度、 ω_c はデバイ周波数、 $\gamma = 1.781$ 、 a は超伝導状態から常伝導状態へ遷移している領域の厚さである。それぞれにニオブのパラメータを代入し、図7の直線をフィットすると $\alpha = N_s(0) / N_N(0)$ を用いて $a = 0.3\alpha \text{ nm}$ となる。 α を1程度の値と仮定すれば a は 0.3 nm とほぼ格子定数程度の値となり、妥当な値と考えられる。遷移領域は本系の場合、薄膜-基板界面に形成された非常に薄いNb-AI合金であると推測される。

次に、10Kにおけるシート抵抗 (R_{\square}) が 200Ω 以下の試料について、シート抵抗に対して T_c をプロットした結果を図8に示す。二次元系における電子局在による T_c の低下は前川・福山によって詳細に研究されている。その場合に対象となる物質はアモルファス薄膜など、試料の結晶性が悪い場合であるが、今回の試料に対してその理論の適用を試みた。前川・福山 (M-F) 理論によれば電子局在系においては T_c の低下は R_{\square} によりスケールされ、式 (2) のような関係が成り立つ。¹⁷⁾

$$\ln \left[\frac{T_c}{T_{c0}} \right] = -\frac{1}{2} \frac{g_1 N(0) e^2}{2\pi^2 \hbar} R_{\square} \left[\ln \left[5.5 \frac{\xi_0 T_{c0}}{l T_c} \right] \right]^2 - \frac{1}{3} \frac{g_1 N(0) e^2}{2\pi^2 \hbar} R_{\square} \left[\ln \left[5.5 \frac{\xi_0 T_{c0}}{l T_c} \right] \right]^3 \quad (\text{eq. 2})$$

ここで、 g_1 は電子間相互作用、 ξ_0 はコヒーレント長、 l は平均自由行程である。膜厚 $5.0 \sim 9.0 \text{ nm}$ の試料にたいして上部臨界磁場 H_{c2} の温度依存性を測定し、平均値として得られた $\xi_0 = 16.8 \text{ nm}$ を用い、一方 l については $\rho \cdot l = 3.27 \times 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}^2$ を仮定して得られた

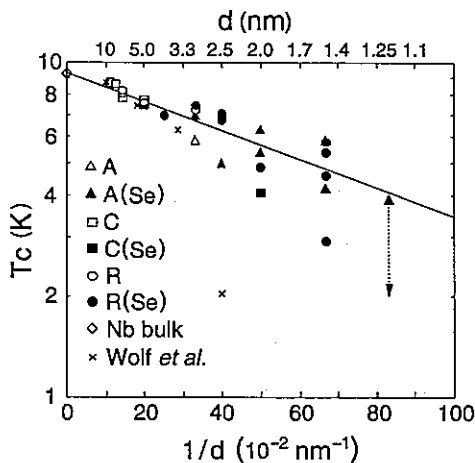


図7. 超伝導転移温度と膜厚の関係、直線は式 (1) に対応、 \times は Wolf らの結果、記号が図6に同じである。

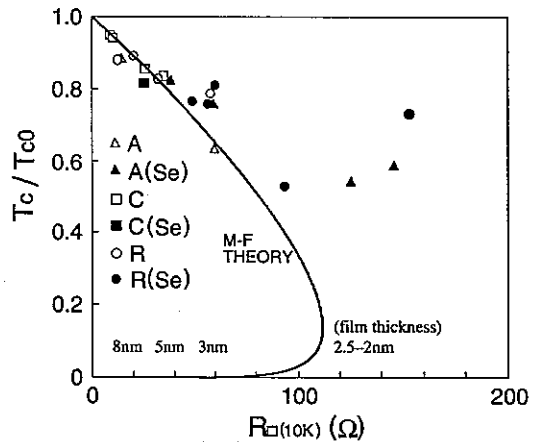


図8. 超伝導転移温度とシート抵抗の関係、実線は式 (2) に対応、記号が図6,7に同じである。

代表値として $l=2.8$ nm を代入すると、実験値を内挿する図8の実線は $g_1 N(0) = 20$ となる。これは通常の1程度の値と比べて非現実的で、この系にはM-F理論は適用できないことを意味している。すなわち、今回の試料は膜厚が数 nm の領域でも結晶性が良く、電子局在の影響がほとんどないと言える。

4. まとめ

α -サファイアの異なる三つの単結晶面上にニオブのエピタキシャル成長を試み、その方位関係を明らかにした。従来研究の少なかった厚さ数 nm の領域の薄膜試料について電気伝導特性を調べた。常伝導領域については、薄膜のシート抵抗はこの超薄膜領域でもサイズ効果により良く記述され、超伝導転移はエピタキシャル膜として最薄の 1.2 nm で観測され、また同じ膜厚で比較すると過去のいずれの結果よりも転移温度は高い。これらの結果は本研究で作製したニオブ薄膜の結晶性が良好であることを意味している。

本稿のうち電気伝導特性の多くは次の論文に報告されている。

K.Yoshii, H.Yamamoto, K.Saiki and A.Koma, Phys.Rev.B52 (1995) 13570

文献

- [1] S. A. Wolf, S. B. Qadri, J. H. Claassen, T. L. Francavilla, and B. J. Dalrymple, J. Vac. Sci. Technol. A 4, 524 (1986).
- [2] S. I. Park, and T. H. Geballe, Phys. Rev. Lett. 57, 901 (1986).
- [3] S. M. Durbin, J. E. Cunningham, and C. P. Flynn, J. Phys. F 12, L75 (1982).
- [4] Y. Igarashi, and M. Kanayama, J. Appl. Phys. 57, 849 (1985).
- [5] J. R. Gavaler, A. I. Braginski, M. A. Janocko, and J. Talvacchio, Physica B 135, 148 (1985).
- [6] J. Kwo, M. Hong, and S. Nakahara, Appl. Phys. Lett. 49, 319 (1986).
- [7] Y. Nishihata, M. Nakayama, H. Kato, N. Sano, and H. Terauchi, J. Appl. Phys. 60, 3523 (1986).
- [8] J. H. Claassen, S. A. Wolf, S. B. Qadri, and L. D. Jones, J. Cryst. Growth 81, 557 (1987).
- [9] L. Antognazza, M. G. Karkut, J. -M. Triscone, and ϕ . Fischer, Physica C 167, 221 (1990).
- [10] C. Sürgers, and H. v. Löhneysen, Appl. Phys. A 54, 350 (1992).
- [11] G. Oya, M. Koishi, and Y. Sawada, J. Appl. Phys. 60, 1440 (1986).
- [12] K. Fuchs, Proc. Cambridge Phil. Soc. 34, 100 (1938).
- [13] E. H. Sondheimer, Phys. Rev. 80, 401 (1950); Adv. Phys. 1, 1 (1952).
- [14] A. F. Mayadas, R. B. Laibowitz, and J. J. Cuomo, J. Appl. Phys. 43, 1287 (1972).
- [15] G. W. Webb, Phys. Rev. 181, 1127 (1969).
- [16] W. L. McMillan, Phys. Rev. 175, 537 (1968).
- [17] S. Maekawa, and H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn. 51, 1380 (1981).

表2. (a) サファイア-A, (b) -C, (c) -R 面上に成長したニオブ薄膜の電気伝導パラメータ. d : 膜厚, ρ : 抵抗率, R : シート抵抗, RRR: 残留抵抗値= $\rho_{(295\text{K})}/\rho_{(10\text{K})}$, T_c : 超伝導転移温度, ΔT_c : 転移幅.
(a)の試料番号3-8 (b)の5, 6 (c)の5-13 はセレン保護層が付いている

(a)

Sample No.	d (nm)	$\rho_{(295\text{K})}$ ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$)	$\rho_{(10\text{K})}$ ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$)	$R_{\square(295\text{K})}$ (Ω)	$R_{\square(10\text{K})}$ (Ω)	RRR ($\rho_{(295\text{K})}/\rho_{(10\text{K})}$)	T_c (K)	ΔT_c (mK)
1	7.0	31.5	10.2	45.0	14.6	3.08	8.13	146
2	3.0	25.1	17.9	83.5	59.8	1.40	5.84	621
3	3.0	32.1	17.9	107	59.6	1.79	6.99	331
4	2.5	40.5	31.5	162	126	1.29	5.00	286
5	2.0	69.0	52.0	345	260	1.33	6.30	718
6	2.0	34.6	29.1	173	146	1.18	5.40	573
7	1.5	322	301	2150	2004	1.07	5.83	3364
8	1.2	84.8	91.1	707	760	0.93	3.90*	>2150

*This value is that of onset

(b)

Sample No.	d (nm)	$\rho_{(295\text{K})}$ ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$)	$\rho_{(10\text{K})}$ ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$)	$R_{\square(295\text{K})}$ (Ω)	$R_{\square(10\text{K})}$ (Ω)	RRR ($\rho_{(295\text{K})}/\rho_{(10\text{K})}$)	T_c (K)	ΔT_c (mK)
1	9.0	33.4	8.29	37.1	9.21	4.03	8.73	78
2	8.0	27.7	8.24	34.6	10.3	3.35	8.66	60
3	7.0	40.5	17.9	57.9	25.6	2.26	7.88	151
4	5.0	39.5	17.5	78.9	34.9	2.26	7.69	286
5	5.0	29.7	12.7	59.4	25.3	2.35	7.51	401
6	2.0	96.8	80.6	484	403	1.20	4.06	907

(c)

Sample No.	d (nm)	$\rho_{(295\text{K})}$ ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$)	$\rho_{(10\text{K})}$ ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$)	$R_{\square(295\text{K})}$ (Ω)	$R_{\square(10\text{K})}$ (Ω)	RRR ($\rho_{(295\text{K})}/\rho_{(10\text{K})}$)	T_c (K)	ΔT_c (mK)
1	7.0	24.1	8.75	34.4	12.5	2.75	8.10	321
2	7.0	41.9	14.0	59.8	20.0	2.99	8.21	82
3	5.0	38.1	16.1	76.1	32.2	2.36	7.61	455
4	3.0	31.8	17.5	106	58.2	1.82	7.24	368
5	4.0	46.0	22.5	115	56.3	2.05	6.97	453
6	3.0	37.8	18.0	126	60.0	2.10	7.47	262
7	2.5	24.3	12.3	97.0	49.3	1.97	7.05	335
8	2.5	50.0	38.3	200	153	1.31	6.72	290
9	2.0	27.6	18.8	138	93.9	1.47	4.88	483
10	1.5	61.5	48.5	410	323	1.27	2.91	981
11	1.5	279	275	1861	1831	1.02	5.40	670
12	1.5	634	767	4227	5110	0.83	4.60	1835
13	1.5	1439	2377	9596	15844	0.61	5.79	>4000

低温センターだより編集委員会

(1996.4現在)

編集委員長

鹿児島誠一センター長 養・基礎科 I (93-6737)

編集委員

蓑 輪	眞	理・物理	(4133)
藤 森	淳	理・物理	(4126)
古 川	行 夫	理・化学	(4328)
為ヶ井	強	工・物工	(6846)
柴 田	浩 司	工・金属材料	(7147)
阿波賀	邦 夫	養・基礎科 I	(93-6750)
永 田	敬	養・化学	(93-6602)
西 沢	直 子	農・農芸化学	(5107)
大 塚	洋 一	低温セ	(2860)
島 田	宏	低温セ	(2861)