



Title	低温高圧下の精密磁化測定について
Author(s)	石塚, 守
Citation	大阪大学低温センターだより. 1994, 88, p. 5-10
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/8397">https://hdl.handle.net/11094/8397</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

# 低温高圧下の精密磁化測定について

基礎工学部 石塚 守(850-6448)

## 1. はじめに

今から3年前、本誌No. 75に「極低温、超高压下の磁気測定装置の開発」という題で、当時研究室が手懸けたヨウ素の圧力誘起超伝導の探索に用いていた装置の紹介をした。これはSQUID磁束計を用いてDAC(ダイヤモンド・アンビル・セル)中で加圧された微少試料の磁化を高感度に検出するシステムであって、A.W.Webbら<sup>1)</sup>やB.Bireckovenら<sup>2)</sup>が超伝導体の転移温度の圧力依存を調べるために用いたものと基本的には同じである。本来ならばこのシステムでヨウ素の超伝導を“見る”ハズであったが、圧力や温度域を様々に変えて実験を行ったにもかかわらず見ることはできなくて、結局は電気抵抗測定で意外にアッサリ見てしまった<sup>3)</sup>。転移温度Tcがわかれば、上のシステムを用いてTc付近を丹念に調べることにより、Tc以下での完全反磁性を確認した。この時、「何故、磁気測定でスンナリTcが見えなかつたのか」と悔しい思いをした。

さて、この超伝導探索と平行して磁気測定システムのSN比を上げるために検討も行っていた。通常の場合に比べてDAC中の磁気測定が難しい理由の一つとして、図1に示すように試料がガスケットとアンビルに囲まれているため、検出コイルを試料の間に巻くことが出来ないことが挙げられる。そこで、少しでも大きな信号を得るには検出コイルを置く位置や直径をどの様にすればよいかと調べているうちに次のことに気が付いた。即ち、アンビル先端付近に巻けるコイルの径では、試料から0.5から1mm程度離れた位置、つまりガスケットの少し上付近で検出磁束の勾配が最も急になることである。そこで、従来の磁束検出の方法ではなく磁束の位置微分を検出する方法を用いればSN比を上げることが出来るのではないかと思い、検討を重ねて具体化したのがここで紹介する「SQUID磁束計を用いた位置微分検出法」である<sup>4)</sup>。特徴を以下に記す。

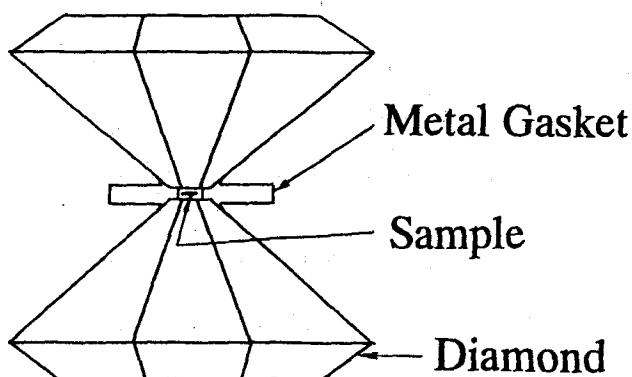


図1 DAC(ダイヤモンド・アンビル・セル)

- 1) 磁束の勾配はガスケットの少し上付近に極大値をとて、しかも適度に急峻なピークを示す。このため、検出コイルを感度最大位置へ設定することが可能になり、遠方からのノイズが距離のマイナス4乗で減衰する（磁束検出による方式ではマイナス3乗）、こととあいまってSN比の向上が期待できる。
- 2) 位置微分信号は検出コイルを機械的に微少振動させてSQUIDの出力を同期検波（位相検波）することにより得る。従って、信号の帯域を狭めることができてSN比が向上する。
- 3) 従来のSQUID磁束計による検出では、信号の原点に任意性があるのに対して、この方法ではVSM(Vibrating Sample Magnetometer)同様、磁化に比例した信号が得られるため、信号からバックグラウンドの寄与を各温度、各磁場で差し引くことが可能になる。この特徴は未知の物質を扱うときには非常に強力である。

超伝導の探索には間に合わなかったが、昨年の暮れ頃から高圧下の磁化が測れる段階まできた。システムとしてはまだ開発途上であるが、新しい検出法の可能性がつかめてきたので、基本的なアイデアや技術的な要素を中心にシステムの概略を紹介する<sup>5)</sup>。

## 2. 検出コイル

SN比を上げるには検出コイルは小型の方が望ましいが、安定して振動させるためには周囲とのクリアランスが必要なため、大きさや形状は関連部分の工作精度や低温にした時の熱収縮の程度に応じて決まる。ここでは、内側のコイルはボビンを使わずに臼状に巻いて、出来るだけ小型かつ薄く仕上げることを試みた。図2に、現在用いている検出コイル（内側20ターン、外側10ターンの一次微分型、線材は0.05 mmのNbTi線）をアンビルにセットした様子と試料からの距離に対する感度を実測した結果を示す。図から、検出コイルは試料から0.65 mm離れた位置に設定すれば最大感度が得られ、しかも±0.1 mmの位置のずれに対しては高々2%の減衰しかないことが分かる。

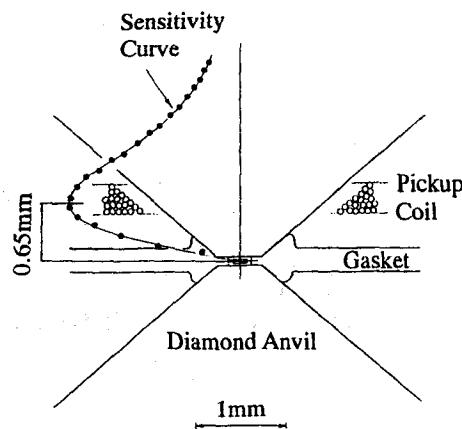


図2 検出コイルの位置及び感度曲線。外側のコイルは省いた。

### 3. アクチュエータの特性

検出コイルを微少振動させるためのアクチュエータには、バイモルフ型ピエゾ・アクチュエータを用いた。図3に、アクチュエータ・ユニットとDACを組み合わせた様子を示す。これは常温で使うことを前提にした製品の流用ではあるが、駆動周波数を共振周波数付近に選ぶことにより4.2 Kでも十分な振幅を得ている。位置微分検出法では振動の振幅を常に一定に保つことが必要である。このため、振幅の大きさを検出してこれに基づいて振幅一定のフィードバック制御を行っている。振幅センサーは3枚のピエゾ・アクチュエータの中央の一枚で、たわむと誘電率が変化することを利用している。上下2枚は振動用である。これらは検出コイルの振動伝達部につながっているが、アクチュエータの力は小さいので接合に際しては、力のロスをできるだけ減少させるために薄くて(0.4  $\mu$ m)細長いツバを介している。ツバの材質は振動伝達部同様スタイキャスト#1266であり、耐久性はアクチュエータも含めて今のところ問題はない。このような構成で、駆動電圧17 Vrms、周波数155 Hzに対して4.2 Kでおよそ90  $\mu$ mの振幅を得ている。

DACを組み合わせる段になって初めて、アクチュエータが室温から4.2 Kへの温度変化で1  $\mu$ m近くも反ることに気が付いた。これはデバイスの両面に貼られている圧電体の材質の違いによる熱膨張率の差が原因と思われる。まさにバイメタルと同じ振舞いをするわけであるが、一時は目の前が真っ暗になった。しかしこの反りは、ヒートサイクルに対して非常に再現性がよくて、毎回の反りによる検出コイルの移動量は0.05  $\mu$ m程度の誤差内で一致する事が分かった。従って、反りについては、少し強引な方法かもしれないが、アクチュエータに移動量に相当するオフセットを予め室温で機械的に与えることで対処した。このように、室温での検出コイルの位置設定はヒートサイクルに対する反りの再現性の良さと、検出コイルの項で述べた大きな位置決めマージンのおかげで想像するほどは難しくはない。

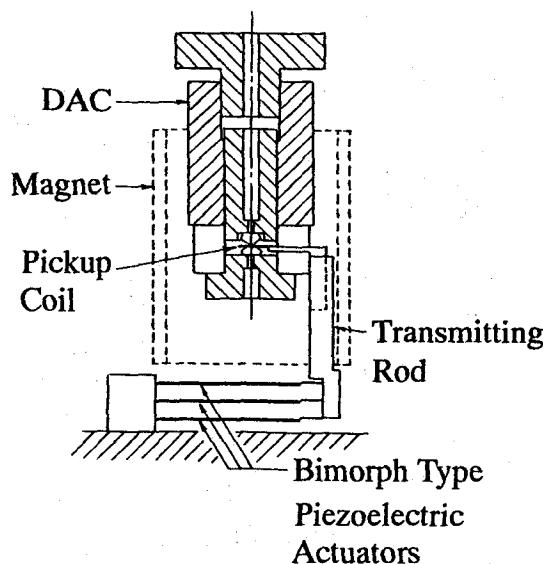


図3 アクチュエータ・ユニットとDAC。DACはクライオスタットの1 Kポートにつながっている。

#### 4. 検出コイルの位置の決定

この方式は一種のVCM(Vibrating Coil Magnetometer)<sup>6)</sup>であってVSMと大きく違う点は、マグネットが作る磁場勾配もバックグラウンドの一部として検出することである。磁場勾配はマグネットに対する検出コイルの位置に依存するため、その大きさを求めるには、勾配の分布と実験時の4.2 Kでの検出コイルの位置が分からねばならない。以下に現在行っている位置決定の方法を記す。

マグネットを軸方向にわずかにずらした同一形状の2つのソレノイドで構成する。ソレノイドの軸方向の磁場分布は中心付近では中心に頂点を持つ2次曲線で良く近似される。各々のソレノイドに流す電流の和は一定にして比を変えることにより、合成磁場分布を表す2次曲線は形は変えずに頂点を軸方向に動かすことが出来る。これは検出コイルに対してソレノイドの位置を変えることに相当する。そこで、電流比を変えながら位置微分信号を測れば、ソレノイド内の磁場（磁束勾配）の様子が検出コイルの位置を中心に、ある範囲で分かることになり、マグネットに対する検出コイルの位置関係も分かる。

しかし、DACを取り付けると試料やその他の磁化による寄与が加わるためこれだけでは位置決定は出来ない。そこで、マグネットの外側にもう一組の同様の補助マグネットを配置する。但し、直径と長さの比は変える。2次曲線の頂点に相当する磁場の大きさを各々のコイルで等しくして、電流比に対する信号の変化を測定すると、図4の様な結果が得られる。2本の直線は新たな磁化が加わると、その大きさに応じて上下方向に同量だけシフトはするが、検出コイルの位置に関する情報はほとんど影響を受けない。従って、2本の直線の現れ方からマグネットに対する検出コイルの位置を知ることが出来る。

尚、内側の主マグネットについては、超伝導磁気シールドの役目も兼ねさせるために、2つのソレノイドは超伝導線で巻いて永久電流モードで磁場発生を行っている。

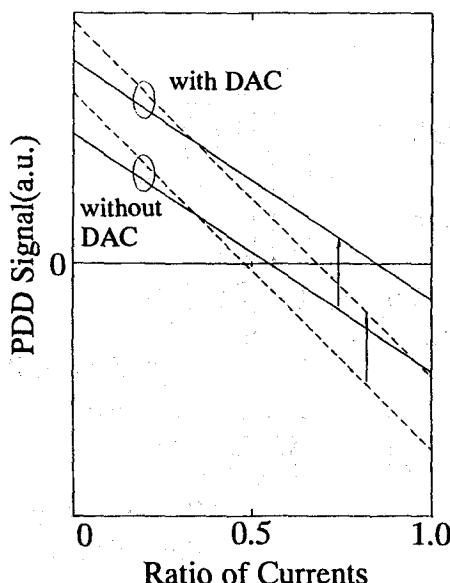


図4 電流比に対する位置微分信号で、マグネット内の磁束勾配分布に対応する。実線は主マグネット、破線は補助マグネットの場合を示す。

## 5. 測定例

測定例を紹介する。試料はEuTeで、常圧では9.6 Kにネール点をもつ3次元ハイゼンベルグ磁性半導体である<sup>7)</sup>。6.2 GPaまでのメスバウワによる実験<sup>8)</sup>では依然として反強磁性であるが、これ以上の圧力では磁性を調べた実験はない。今回は11.7 GPaまでの圧力下、1.4~30 Kの温度範囲で実験し、幸運にも、いくつかのおもしろい結果を得た。図5に、各々の圧力下での磁化の温度変化を示す。圧力の決定は試料と共にいれたPbの転移温度で行った。これらの結果から転移温度の圧力依存性や7.9 GPa以上で自発磁化が発現すること、そして更に加圧することにより転移点以下で帯磁率の形が強磁性のになっていく様子などが分かる。また4 GPa、6.9 GPaでは常圧に比べて転移点付近で帯磁率が大きくなっている様子も分かる。

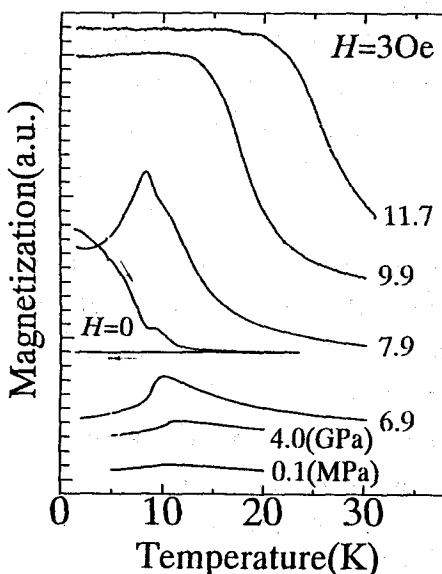


図5 EuTeの磁化の各圧力下での温度変化。測定磁場は3 Oe。7.9 GPaのデータには、フィールド・クーリングした後のゼロフィールド・ヒーティング及びクーリングの結果も併せて示した。この結果は自発磁化の発現を示す。

## 6. まとめ

現在、12 GPaまでの圧力下、1.4~30 Kの温度域で磁化測定が出来る段階にある。温度域を限れば  $10^8 \sim 10^9$  emuの信号をSN比10以上で測定する事もできる。現状での問題点と課題を記す。

- 1) 振幅センサーは温度が変わると特性が変わるためにDACとは熱的に独立させているが、絶縁が不十分である。そのため、DACの温度が20 Kを越えると振幅が変化し始める。振幅が変化している領域では、アクチュエータの駆動電圧の変化を利用してデータの補正を行っているが、信号が小さくなると精度は悪くなる。図5で、低圧での20 K以上のデータが無いのはその理由による。現在、熱的に更に絶縁する検討を行っている。うまく行けば温度の上限は広がり、広い温度域で高いSN比が確保

できるはずである。

- 2) DAC本体によるバックグラウンドの評価がまだ完全でないため、各圧力でのデータのゼロ点はバラつく。ガスケットの材質や形状の検討も含めてバックグラウンドの評価を早く確立したい。

ワクワクしながらもアイデア倒れになるのではないかと進めてきた試みもようやく形が出来てきた。DAC中での精密磁化測定の試みはおそらくこれが最初ではないかと思われる所以なんとかこのシステムを完成させたい。そして、そもそも超高压を始める発端となった  $\epsilon$ -Feの磁性や、ここで少し紹介した電子系の高圧下での磁性などにも取り組みたいと考えている。枚数の都合上、クライオスタットやDAC本体について触ることはできなかった。項目によっては説明が不十分なところもあると思われる。各部の詳細に興味のある方は連絡してください。

実験装置を作るに当たり工作センターの機械工作の方々の協力を得ました。特に森本正治さん（故人）には、一人で旋盤やフライス盤を動かしているときに技術的なご指導を頂き大変お世話になりました。EuTe等の貴重な試料を提供していただいた小林融弘先生と秋本良一君に謝意を表します。

## 7. 参考文献

- 1) A.W. Webb, D.U. Gubser and L.C. Towle; Rev. Sci. Instrum., **47** (1976) 59.
- 2) B. Bireckoven and J. Wittig; J. Phys. E: Sci. Instrum., **21** (1988) 841.
- 3) K. Shimizu, N. Tamitani, N. Takeshita, M. Ishizuka, K. Amaya and S. Endo; J. Phys. Soc. Jpn., **61** (1992) 3853.
- 4) M. Ishizuka and K. Amaya; IEEE Trans. Magn., **30** (1994) 1048.
- 5) M. Ishizuka, K. Amaya and S. Endo; Rev. Sci. Instrum. (投稿中).
- 6) D.O. Smith; Rev. Sci. Instrum., **27** (1956) 261.
- 7) W. Zinn; J. Magn. Magn. Mater., **3** (1976) 23.
- 8) U.F. Klein, J. Moser, G. Wortmann and G.M. Kalvius; Physica, **86-88B** (1977) 118.