

1 原理

1.1 電気抵抗の測定法

電気抵抗の測定方法には二端子法と四端子法がある。図 1, 図 2 に二端子法, 四端子法の回路図を示す。 R_L は試料の抵抗, R_S はリード線など測定器の抵抗, R_V は電圧計の内部抵抗である。

二端子法では試料の両端にリード線を取り付け, 既知の電流を流したときに両端で生じる電位差を測定することで試料の抵抗値を測定する。ただし二端子法ではリード線などの抵抗値を含めた抵抗値しか測定できず, 試料の抵抗値が小さいときは測定が困難になる。

一方で四端子法では既知電流を流すリード線と電圧計のリード線を別に試料に取り付ける。すなわち試料に 4 つの端子を取り付けることから四端子法と呼ばれる。ここで電圧計の入力インピーダンスが非常に大きくほとんど電流が流れ込まないとすると R_{S2} で生じる電圧降下は非常に少なく, R_L が小さくてもその両端の電圧を正確に測定できる。したがって R_L が小さい試料においては四端子法での測定が適している。

測定により得られた抵抗値は試料の形状に依存する量なので, より本質的な物理量として電気抵抗率 ρ を用いる。電気抵抗率は試料が断面形状が一定の柱状であるとする, その断面積 S , 長さ L , 抵抗値 R を用いて

$$\rho = R \frac{S}{L} = \frac{\Delta V S}{I L} \quad (1)$$

と表される。ここで ΔV は試料の両端の電位差, I は流れる電流である。

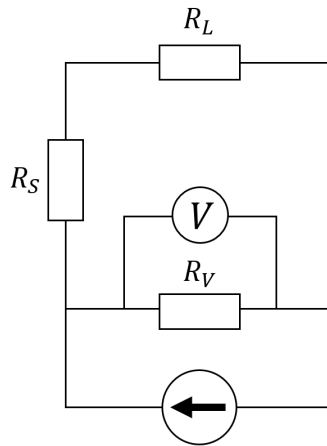


図 1 二端子法の回路図

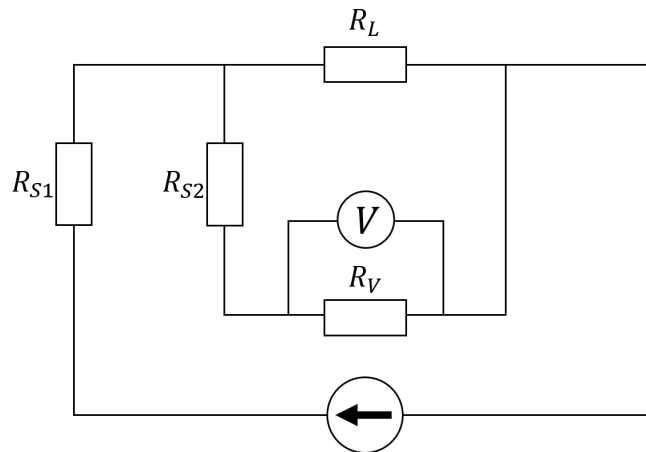


図 2 四端子法の回路図

1.2 金属の電気伝導

古典, あるいは量子モデルを用いて Ohm の法則の説明を試みる.

1.2.1 Drude モデル

Drude モデルでは電気抵抗が自由電子と結晶格子の衝突によって生じると考える. 自由電子を流体と見立て, 格子との衝突により生じる抵抗力が電子の速度に比例すると考える. また電子は電場 E により加速されると考えると, 運動方程式は

$$m\dot{\mathbf{v}} + \frac{m}{\tau}\mathbf{v} = -e\mathbf{E} \quad (2)$$

ここで τ は緩和時間であり, 電子が格子に衝突せずに直進できる平均時間である. この定常状態における速度は

$$\mathbf{v} = -\frac{e\tau}{m}\mathbf{E} \quad (3)$$

したがって電子数密度 n を用いると電流密度 j は

$$j = -env = \frac{e^2 \tau n}{m} E = \sigma E \quad (4)$$

となる。ここで σ は電気伝導率であり電気抵抗率 ρ の逆数である。したがって (4) はオームの法則の形をとっている。

1.2.2 バンド理論

上で議論した Drude モデルは節で後述するように問題がある。これを解決するのがバンド理論による説明である。

結晶は一定の周期で同一の構造が繰り返すことから周期的境界条件下で考える。また簡単のため 1 次元で考える、すなわち全原子数が N のとき n 番目の原子の位置 r_n と原子軌道 ϕ_n は

$$\begin{aligned} r_n &= r_{n+N} \\ \phi_n &= \phi_{n+N} \end{aligned} \quad (5)$$

を満たす。また格子定数を a とすると

$$\phi_{n+1} - \phi_n = a \quad (6)$$

である。したがって n 番目の原子周りの原子軌道は以下のように表される。

$$\phi_n = \phi(x - r_n) = \phi(x - na) \quad (7)$$

ここで格子定数が原子軌道の広がりと同程度であり、波動関数の間に重なりが生じると電子が隣り合う原子軌道間を飛び移ることができる。この飛び移りはトランスファー積分 b を用いて以下のように表される。

$$H\phi_n(x) = -b(\phi_{n+1}(x) + \phi_{n-1}(x)) \quad (8)$$

ここで波動関数 $\psi(x, t)$ が初期状態 $t = 0$ において $\phi_n(x)$ だとすると Δt 後の波動関数の変化は

$$\begin{aligned} \psi(x, \Delta t) &= \psi(x, 0) + \Delta t \frac{\partial \psi(x, 0)}{\partial t} \\ &= \phi_n(x) + \frac{i\Delta t}{\hbar} b(\phi_{n+1}(x) + \phi_{n-1}(x)) \end{aligned} \quad (9)$$

となり、時間変化に伴いたしかに ϕ_n に ϕ_{n+1} , ϕ_{n-1} の成分が波動関数に混ざってくることがわかる。

ここで (8) から固有値方程式を考える。(8) の両辺に e^{ikr_n} を乗じ、 n について和を取ると

$$\begin{aligned} \sum_{n=1}^N e^{ikr_n} (H\phi_n) &= -b \sum_{n=1}^N e^{ikr_n} (\phi_{n+1} + \phi_{n-1}) \\ H \sum_{n=1}^N e^{ikr_n} \phi_n &= -b \sum_{n=1}^N (e^{ikr_{n-1}} + e^{ikr_{n+1}}) \phi_n \\ &= -2b \cos(ka) \sum_{n=1}^N e^{ikr_n} \phi_n \end{aligned} \quad (10)$$

となる。1 行目から 2 行目の右辺の変形には (5) の条件を用いた。したがって固有状態を $\psi_k = \sum_{n=1}^N e^{ikr_n} \phi_n$ と置けば固有値は $-2b \cos(ka)$ となることがわかる。この固有状態は Bloch 状態、固有値はエネルギーバンドと呼ばれ、これは波数 k によって指定される。このことから結晶格子中での自由電子は波動的に振る舞うため Drude モデルで仮定したような古典的な抵抗力は発生していないと考えられる。

ここで $k \rightarrow k + 2\pi/a$ というシフトに対して明らかに固有値、固有状態は不変なので k の範囲として

$$-\frac{\pi}{a} < k \leq \frac{\pi}{a} \quad (11)$$

のみを考えれば十分である。この k の領域を第一ブリリアンゾーンと呼ぶ。実際には k は離散化しており、第一ブリリアンゾーンにおいて存在する状態の数を数えることができる。波数 k の離散化条件を考える。(10) も各 ϕ_n と同様に周期的境界条件を満たすことから

$$\begin{aligned} \psi_k(x + Na) &= \sum_{n=1}^N e^{ikr_n} \phi_n(x + Na) \\ &= \sum_{n=1}^N e^{ikr_n} \phi(x - (n - N)a) \\ &= e^{ikNa} \sum_{n=1}^N e^{ikr_{n-N}} \phi_{n-N}(x) \\ &= e^{ikNa} \psi_k(x) \end{aligned} \quad (12)$$

$$\therefore kNa = 2\pi m \quad (m \in \mathbb{Z}) \quad (13)$$

したがって第一ブリリアンゾーンにおいては $-N/2 < m \leq N/2$ の間の N 個の状態が存在することになる。これは第一ブリリアンゾーンに N 個の原子が存在することに整合する。

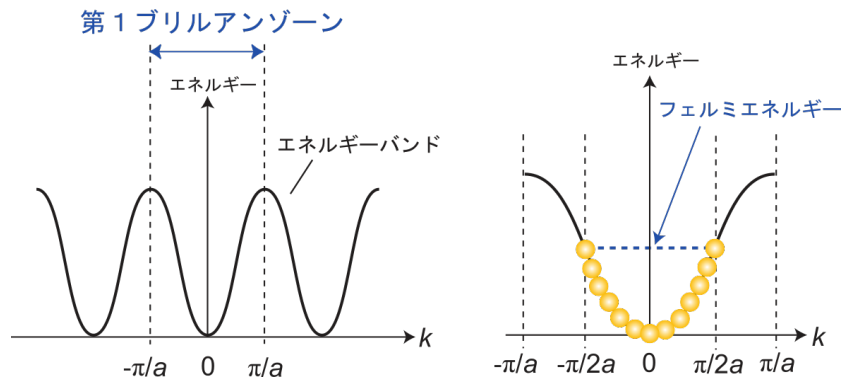


図3 第一ブリリアンゾーンの概形

ここで電場 E によって電子の分布が図のように $x \rightarrow x + \Delta x$, 波数が $k \rightarrow k + \Delta k$ と変化したときの電流を考える。全電流 I はスピン自由度が 2 あることを考慮し、存在する電子について和を取

ることで以下のように与えられる.

$$I = -2n_e S e v(k) = -\frac{2e}{Na} \sum_{k:occupied} v(k) \quad (14)$$

ここで電子の総数 N_e を用いて電子数密度は $n_e = N_e/V$ となることから $n_e S = N_e/L = N_e/Na$ となることを用いた. また (13) 式から k 空間で電子ひとつが専有する長さは $2\pi/Na$ であるので k に関する和を積分に置き換えると

$$I = -2e \int_{k:occupied} v(k) \frac{dk}{2\pi} \quad (15)$$

ここで外部からの電場により図 4 のように電子の分布が変化した場合を考えると

$$I = -\frac{e}{\pi} \int_{-\pi/2a+\Delta k}^{\pi/2a+\Delta k} v(k) dk \quad (16)$$

となる. ここで $\Delta x = v(k)\Delta t$ である. また電子の速度は ϵ の傾斜に比例することを仮定する. すなわち

$$v(k) = \frac{1}{\hbar} \frac{d\epsilon(k)}{dk} \quad (17)$$

が成り立つとする. すると

$$\begin{aligned} I &= -\frac{e}{\hbar\pi} \int_{-\pi/2a+\Delta k}^{\pi/2a+\Delta k} \frac{d\epsilon(k)}{dk} dk \\ &= -\frac{e}{\hbar\pi} \left(\epsilon\left(\frac{\pi}{2a} + \Delta k\right) - \epsilon\left(-\frac{\pi}{2a} + \Delta k\right) \right) \end{aligned} \quad (18)$$

$\Delta k \rightarrow dk$ とすれば

$$\begin{aligned} I &= -\frac{2e}{\hbar\pi} \left[\frac{d\epsilon}{dk} \right]_{\pi/2a} dk \\ &= -\frac{2e}{\pi} v\left(\frac{\pi}{2a}\right) dk \end{aligned} \quad (19)$$

また, 電子が電場から受け取ったエネルギーについて以下が成り立つ.

$$-eE\Delta x = \epsilon(k + \Delta k) - \epsilon(k) = \frac{d\epsilon(k)}{dk} \Delta k \quad (20)$$

ここで $\Delta x = v(k)\Delta t$ なので

$$-eEv(k)\Delta t = \hbar v(k)\Delta k \quad (21)$$

$\Delta k \rightarrow dk$ とすれば

$$\frac{dk}{dt} = -\frac{eE}{\hbar} \quad (22)$$

これを (19) に代入すれば

$$I = \frac{2e^2 v(\pi/2a) dt}{\hbar \pi} E \quad (23)$$

となる。この表式によると電流が時間経過とともに増大していくことになり、これは電気抵抗が 0 であることを意味する。以上の議論から均一な結晶構造においては電気抵抗は 0 となることがわかった、しかし実際の結晶は不純物や欠陥、熱振動により均一ではなくなっている。この不均一さが電気抵抗の起源である。

電子が散乱される機構に立ち入らず、その現象を記述しようとする Drude モデルと同様に緩和時間 τ を導入し、 $dt = \tau$ で電子が終端速度に達すると考えることができる。すなわち

$$I = \frac{2e^2 v(\pi/2a) \tau}{\hbar \pi} E \quad (24)$$

であり電気伝導率 σ は以下で与えられる。

$$\sigma = \frac{2e^2 v(\pi/2a) \tau}{\hbar \pi} \quad (25)$$

ここで電気伝導率は $v(\pi/2a)$ すなわちフェルミ準位にある電子の速度のみにより定まり、低い準位にいる電子は寄与しないことがわかる。

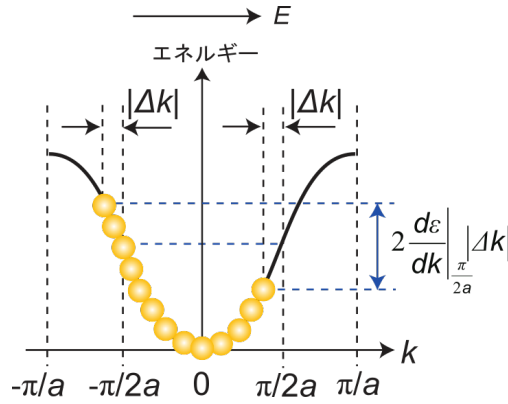


図 4 電場による電子分布の変化

2 測定について

2.1 試料について

今回の実験では以下の線状試料を用いた。

鉛試料は最も転移温度の高い第一種超伝導体であり 7.2 K で超伝導に転移する。毒性があるため取り扱う際にはゴム手袋を用いた。金鉄合金 (Au+0.07 at.%Fe) は低温測定用熱電対などに用いられる合金であり、近藤効果を示す。金試料は高い伝導性を示すことから電子機器などで用いられる。一方で 0.1 mK まで超電導性を示さないため、今回の実験装置では超伝導転移は観測できない。

表 1 測定した試料

試料 No.	名称	断面積 / mm^2	電圧端子間距離 / mm
1	鉛試料 1	$(1.015 \pm 0.191) \times 10^{-2}$	10.47
2	金鉄合金	$(2.987 \pm 0.000) \times 10^{-2}$	57.83
3	鉛試料 2	$(9.218 \pm 0.252) \times 10^{-3}$	12.20
4	金試料	$(1.662 \pm 0.321) \times 10^{-3}$	58.33

2.2 実験準備

2.2.1 試料の準備

各試料を以下の手順にしたがい図 5 のように試料台に取り付けた。以下の作業はゴム手袋をした状態で行った。まず鉛試料は 25 mm, その他の試料は 100 mm 程度にハサミで切った。金鉄合金については表面の被覆を有機溶剤で除去した。また、各試料の直径を 5 箇所程度マイクロメーターを用いて測定した。この試料片を試料台にマスキングテープで仮留めした。試料台は伝導性が高く安価な銅製であり、D 型の断面形状をしており、表面はエポキシで絶縁されている。ここで鉛試料に関しては紙やすりを用いて両端の酸化皮膜を削り取っている。次に 0.3φ のスズメッキ線を試料上に配置し、端子台の電流電圧端子に接続した。次に銀ペースト (DOTITE) をトルエンで希釈したものを各導通部に塗布した。銀ペーストが乾燥した後、各端子の導通をデジタルマルチメータで確認する。その際各端子間の抵抗値が数 Ω 以内であれば正常に導通が取れている。その後余計なスズメッキ線を切除した。最後に試料線、スズメッキ線などをワニスで補強した。

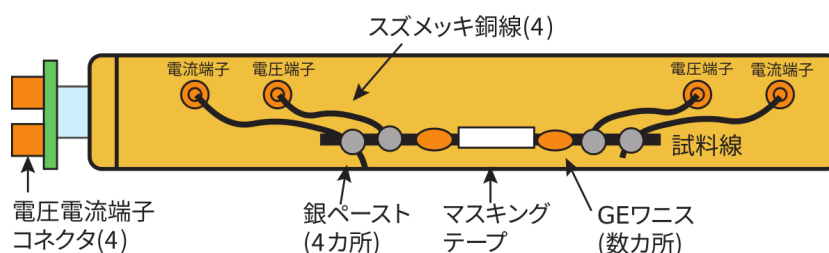


図 5 試料台

2.2.2 実験装置の準備

図 6 に本実験で用いるクライオスタットの概略図を示す。このクライオスタットは 2 層の輻射シールドと GM 冷凍機を用いて構成される。GM 冷凍機は住友重機械工業 SRDK-101D-A11 を用いている。また各ステージ間是对流による熱の伝達を減らすためターボ分子ポンプとロータリーポンプにより高真空に保たれる。このクライオスタットは理想的には 3 K 以下までの冷却が可能であるが実際には構造物や配線などを介して熱が流入するため実験環境で達成される低温は 3.5K 程度である。可能な限り熱流入を抑えるため、これらの構造物や配線は熱伝導率が比較的低いステンレスやキュプロニッケル、マンガンなどの合金が用いられている。一方で試料台との接続部など均一な温度分布を実現したい箇所については純銅を用いて熱伝導を高めている。

このクライオスタットに以下の手順で試料台を取り付けた。まずクライオスタットの第 2 ステージにある同軸端子に試料台を取り付け、ロックインアンプとの接続を確認した。そして試料台の上部に炭素抵抗温度計とマンガニン線ヒーターが取り付けられた円盤を載せ、M3 のネジで固定した。次に超電導磁石を上から被せネジで固定し、電磁石のコネクタを接続した。更にステージと試料台の熱接触を高めるため、試料台上部の円盤とステージを銅線で接続した。この状態で各配線が適切に接続されていることをロックインアンプの数値から確認した。そして第 1, 第 2 ステージの輻射シールド及び断熱真空チャンバーを取り付けた。この際、ガスケットには真空用のグリスを塗布した。

次にチャンバーの真空引き、冷却を行う。まずクライオスタットのパルプを開放し真空ポンプを稼働した。真空度が 10^{-2} torr 程度になったところでコンピューターで温度を監視しながら冷却を開始した。このまま 3.5 K 程度に温度が下がるまで、冷却を続けた。

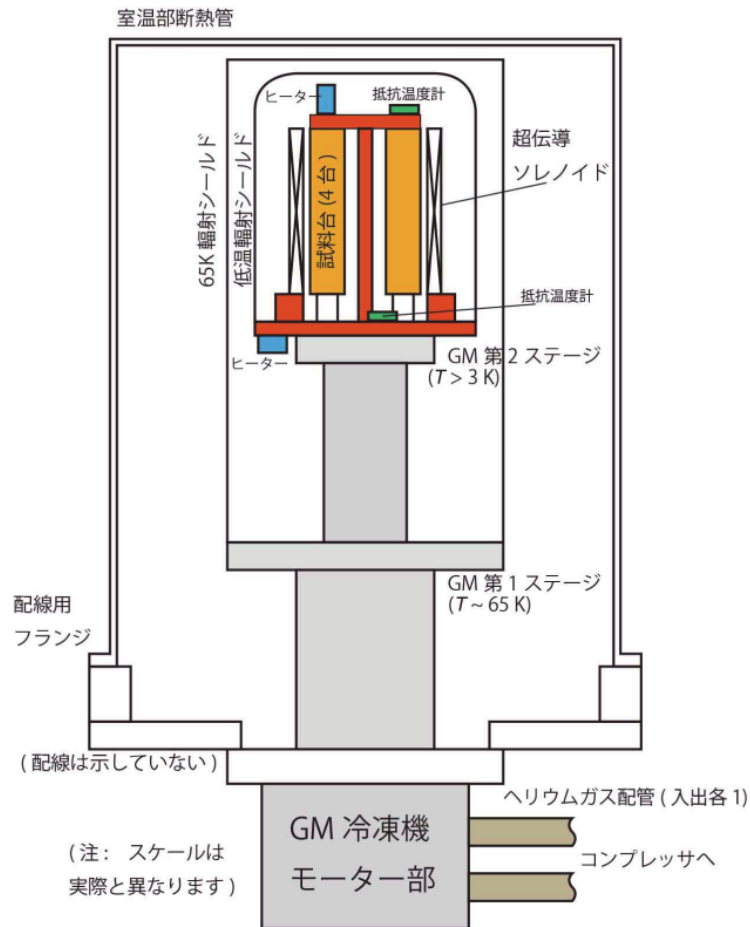


図 6 クライオスタットの概略図

2.3 測定手順

2.3.1 測定 1: 電気抵抗の測定 (3.6-20 K)

Cryocon 温度コントローラーを用いて試料温度を調整しながら試料の電気抵抗を測定した。温度コントローラーはカーボン抵抗温度計の値を入力とした PID による閉ループ制御を行うことで試料温度を目標温度に近づける。また必要であれば Autotune 機能を用いて PID ゲインを自動的に設定することができる。

以上の機能を用いて 3.6 K から 20 K まで温度を 0.5 K 間隔で変化させながら、ロックインアンプの電圧値を記録した。この際実験室のコンピュータを用いて抵抗の変化を可視化しながら実験を行った。ただし鉛の超電導転移点付近では急激に出力が変化するため、温度刻みを 0.01 K 程度に細かくして記録した。以上で記録した電圧値は (1) を用いて抵抗率に変換する。

2.3.2 測定 2:電気抵抗の測定 (20-300 K)

上記の測定終了後, 冷凍機を停止すると試料温度が室温まで上昇するので, この過程で 20 から 300 K でのロックインアンプの電圧値を同様に記録した. これと上記の測定を合わせることで 3.6 から 300 K での抵抗率の温度依存性を得られる.

2.3.3 測定 3:臨界磁場の測定

クライオスタット内の超伝導磁石は電流測定用の 0.1Ω 抵抗と直列に接続されており, DMT を用いてその両端の電圧を測定することで実際に流れている電流を測定した. この電流値 I から実際に発生する磁場は以下の計算式で与えられる.

$$H \text{ Oe} = 0.73721 \text{ Oe mA}^{-1} \times I \text{ mA} \quad (26)$$

温度コントローラを用いて試料温度を 7 K に設定した. この状態で超伝導磁石に流す電流を徐々に増やし, 試料の超伝導が破壊される磁場 (臨界磁場) を探した. 臨界磁場が見つかったらその付近で電流を細かく刻みながらロックインアンプの出力を記録した. 6.5-4.0 K まで 0.5 K 刻みで温度を変えつつ同様の測定を行った. 以上で記録した電圧値は (1) を用いて抵抗率に変換する.

3 結果

3.1 測定 1:電気抵抗の測定 (3.6-20 K)

図 7 から図 9 に鉛試料, 金試料, 金鉄合金の 3.6 から 20 K における抵抗率の温度依存性を示す. 温度計は試料台と第 2 ステージに取り付けられているが, より試料に近い温度を示す試料台の温度計の値を用いた.

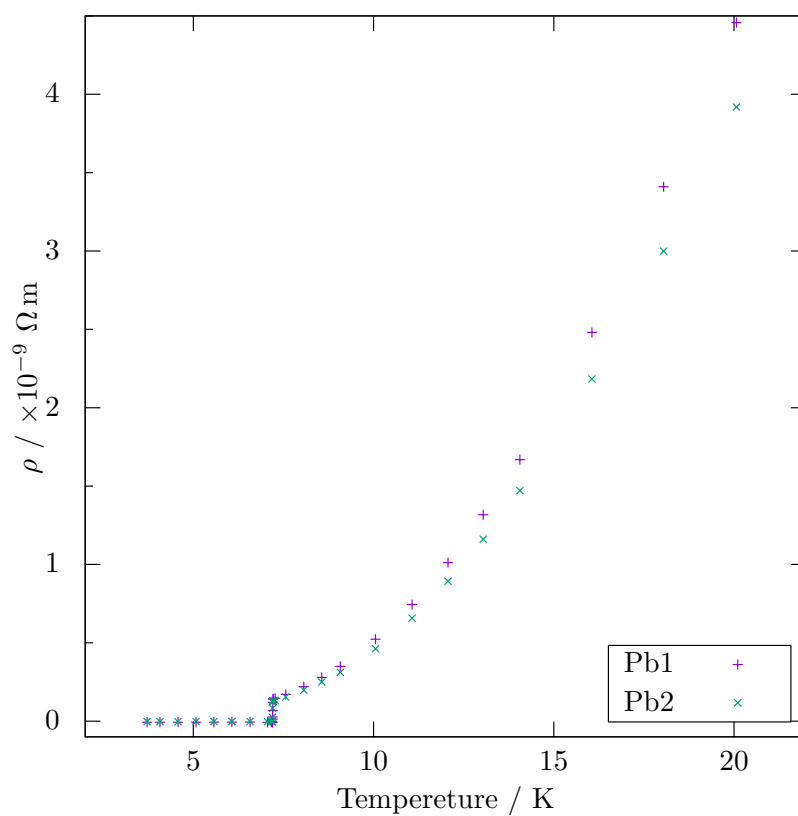


図 7 鉛試料 1,2 の温度-抵抗率特性 (3.6-20 K)

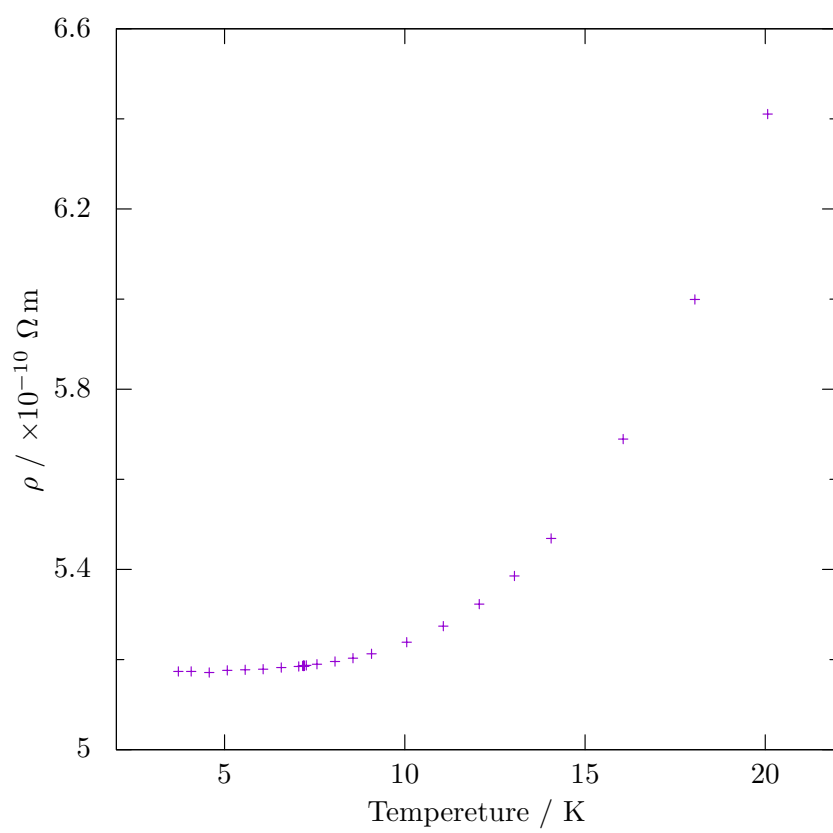


図 8 金試料の温度-抵抗率特性 (3.6-20 K)

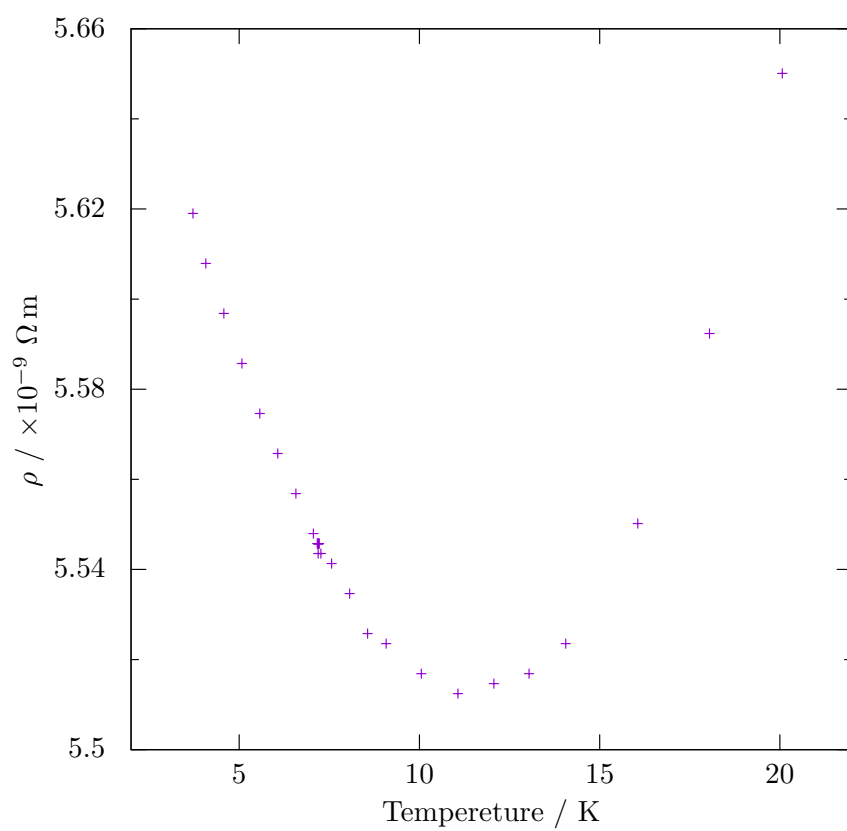


図 9 金鉄合金の温度-抵抗率特性 (3.6-20 K)

3.2 測定 2:電気抵抗の測定 (20-300 K)

図 10 から図 12 に各試料の 3.6 から 300 K における抵抗率の温度依存性を示す.

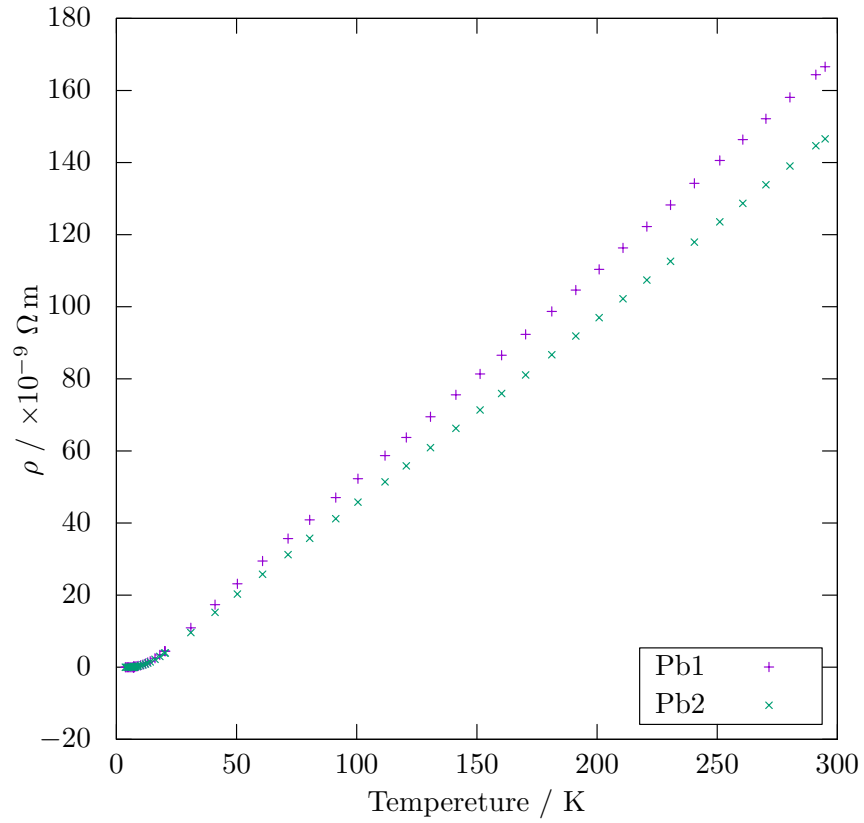


図 10 鉛試料 1,2 の温度-抵抗率特性 (3.6-300 K)

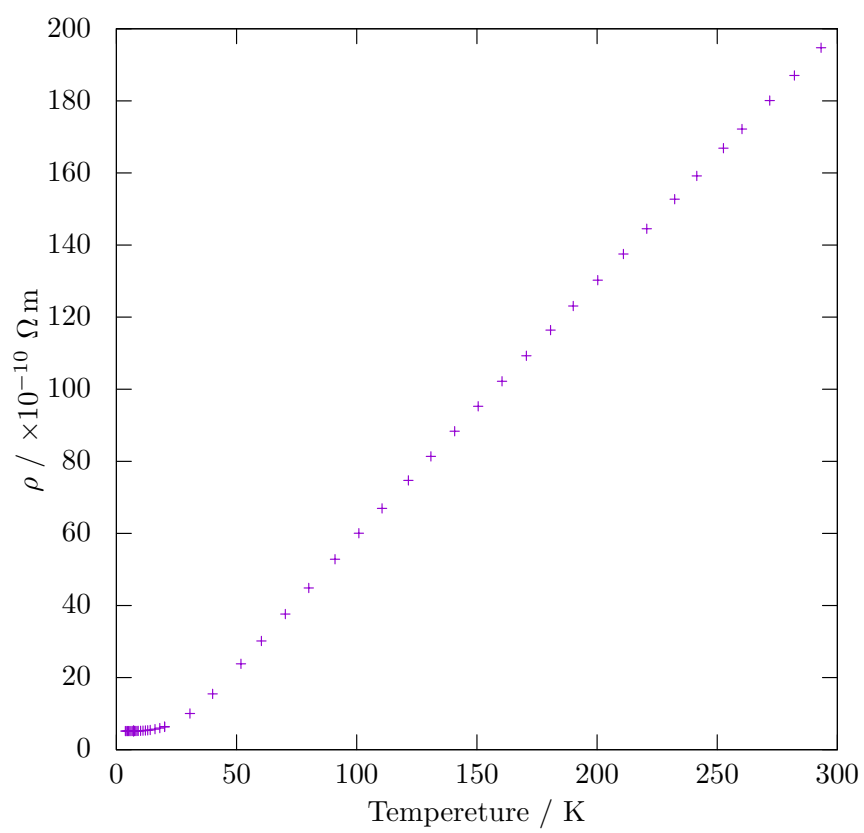


図 11 金試料の温度-抵抗率特性 (3.6-300 K)

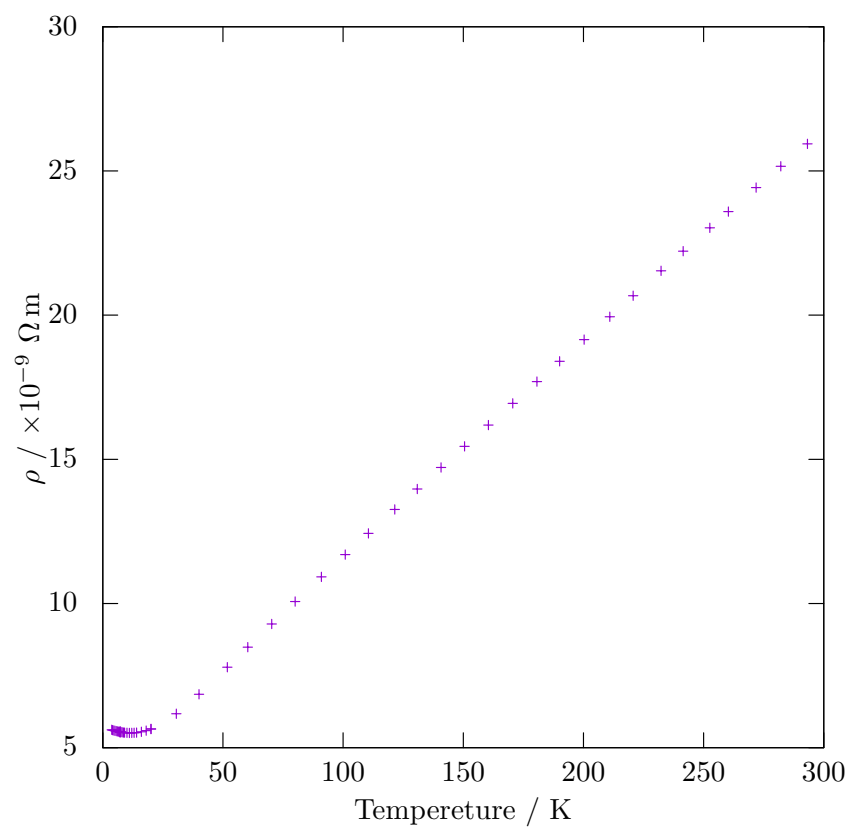


図 12 金鉄合金の温度-抵抗率特性 (3.6-300 K)

3.3 測定 3:臨界磁場の測定

図 13 から図??に各温度における鉛試料 1 の抵抗率の磁場依存性及び, 最小二乗 fitting による回帰曲線を示す. 回帰曲線はすべて 1 次関数であり, これらの交点が臨界磁場である. 表に最小二乗 fitting で得た各温度における臨界磁場を示す.

表 2 各温度における臨界磁場

試料台の温度 T_2 / K	臨界磁場 / Oe
7.065	30.119
6.565	138.68
6.070	237.74
5.574	328.02
5.073	410.62
4.574	484.22
4.073	566.794

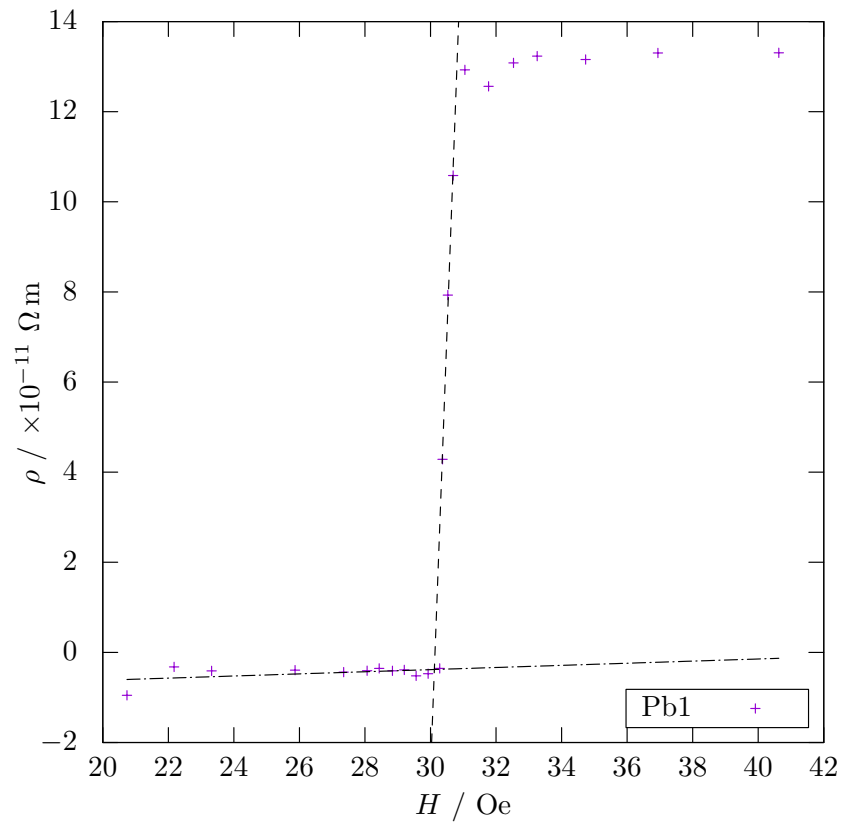


図 13 7 K での臨界磁場

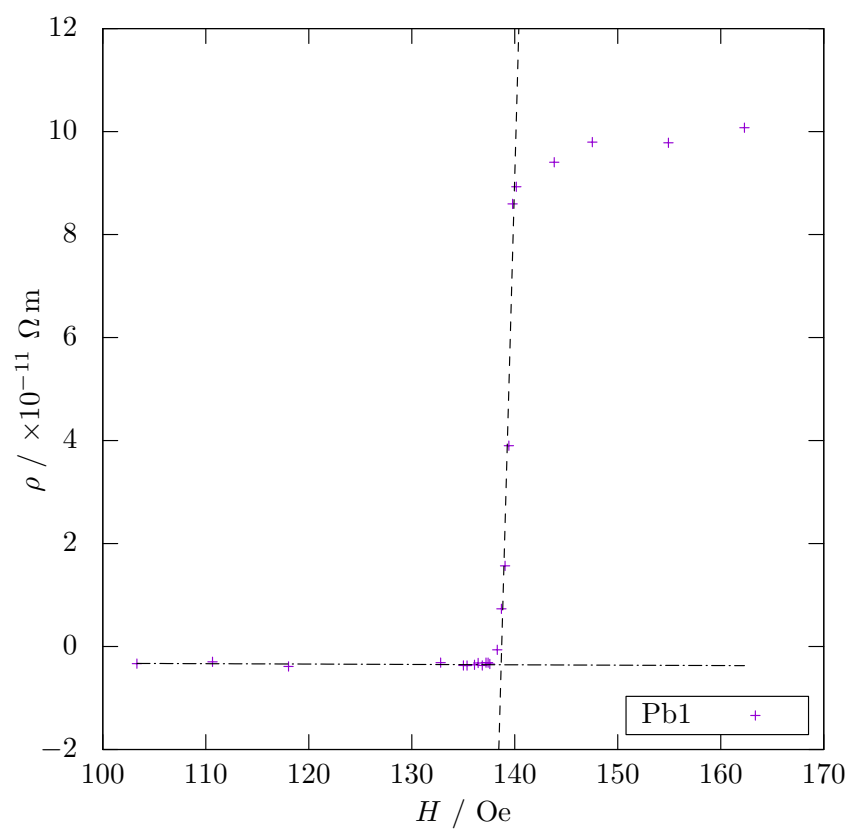


図 14 6.5 K での臨界磁場

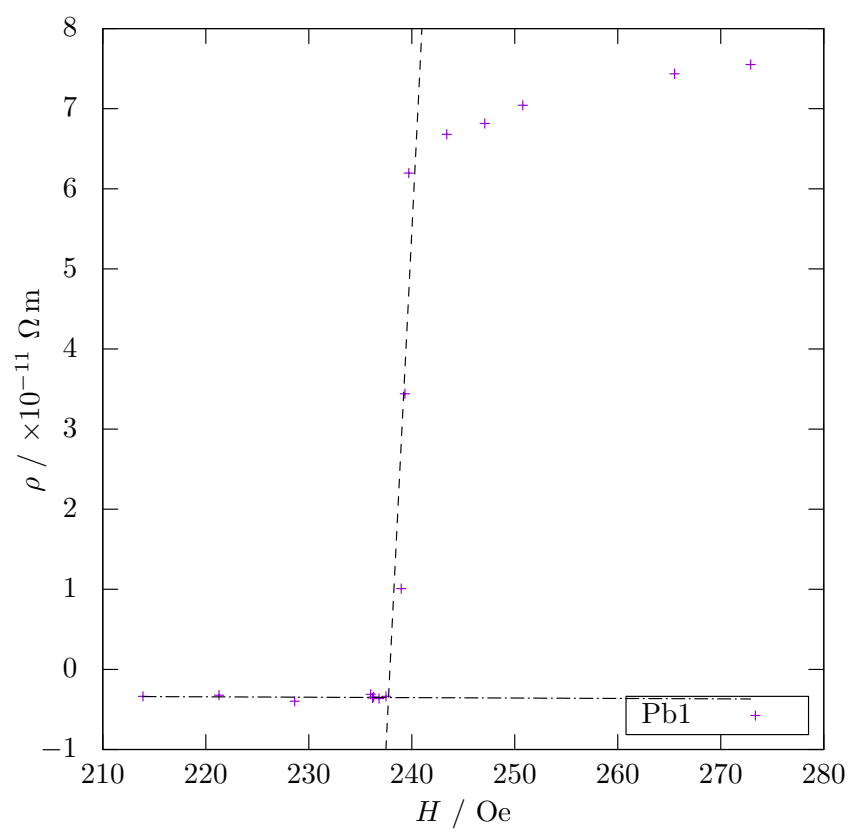


図 15 6 K での臨界磁場

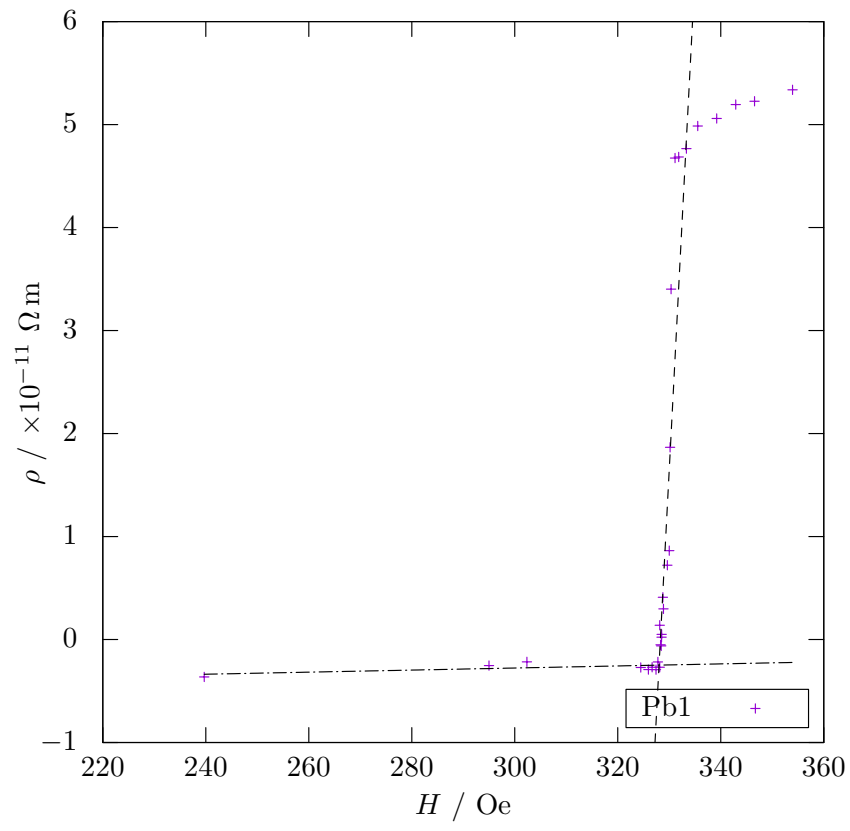


図 16 5.5 K での臨界磁場

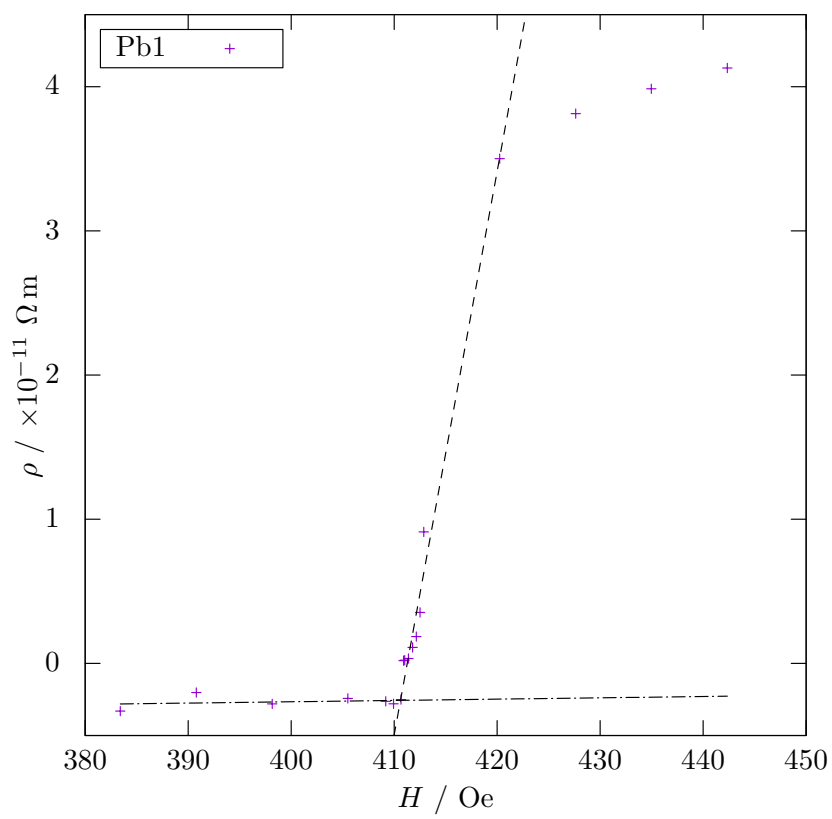


図 17 5 K での臨界磁場

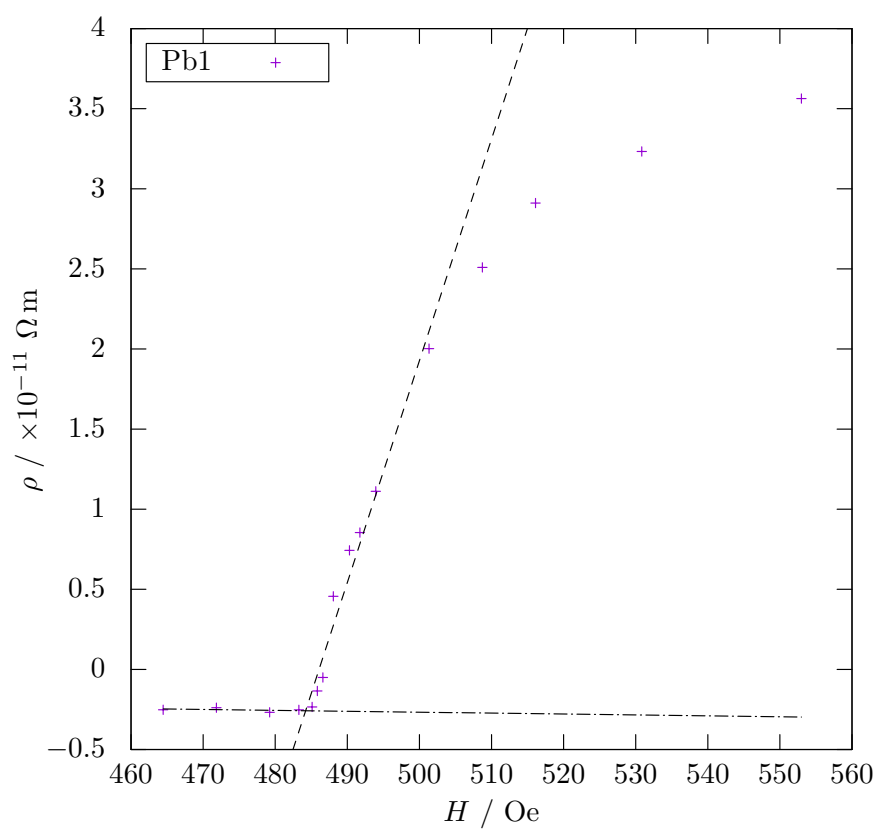


図 18 4.5 K での臨界磁場

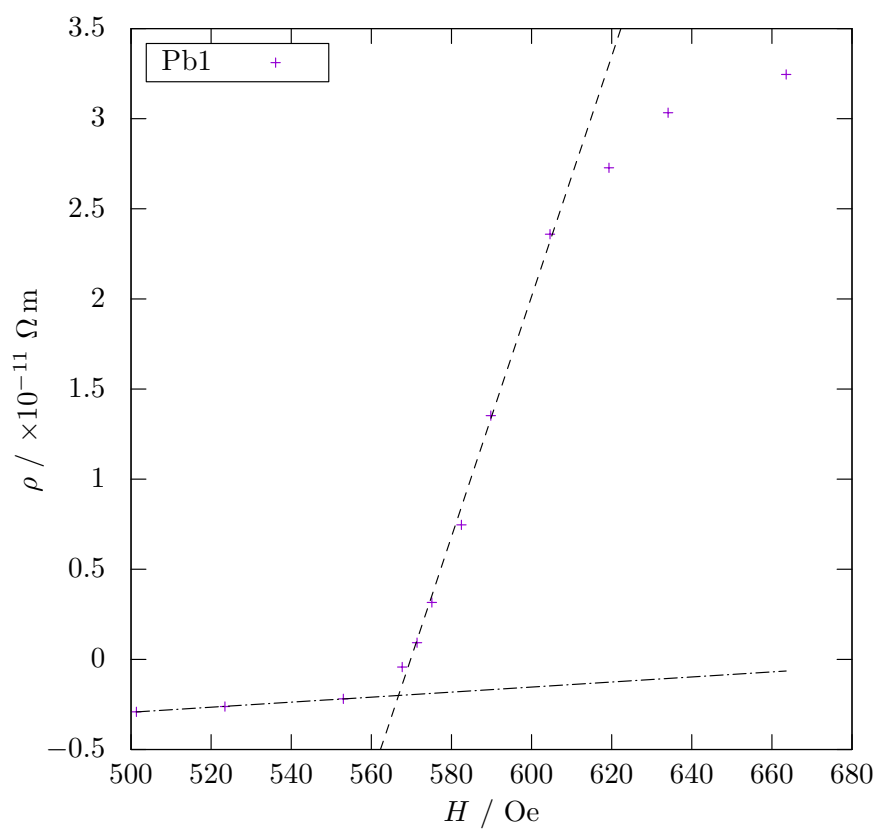


図 19 4 K での臨界磁場

4 考察

4.1 磁場-温度相図について

臨界磁場 H_C の温度依存性は経験的に以下の式で与えられる．ここでは以下の関係で測定値を fitting することで鉛試料 1 の磁場-温度相図を作成する．

$$H_C(T) = H_0 \left(1 - \left(\frac{T}{T_C} \right)^2 \right) \quad (27)$$

ここで H_0 は絶対零度における臨界磁場, T_C はゼロ磁場での転移温度である．まず T_C を外挿により求める．図 20 に図 7 の 6-9 K を拡大した図を示す．ここで抵抗率が急激に変化し始める温度と変化し終わる温度はそれぞれ 7.196 K, 7.213 K である．したがってその平均を転移温度とすれば

$$T_C = 7.205 \text{ K} \quad (28)$$

と求まる．以上から (27) で fitting を行くと図 21 を得る．したがって H_0 は以下のように求まった．

$$H_0 = 820.5 \pm 3.5 \text{ Oe} \quad (29)$$

一方で文献 [1] によると $H_0 = 803 \text{ Oe}$, 相対誤差は 2.2% でありよく一致している．

また図 21 をみると低温でのデータが不足していることがわかる．したがってより低温でのデータを測定することができれば, より正確な値を得られると考えられる．

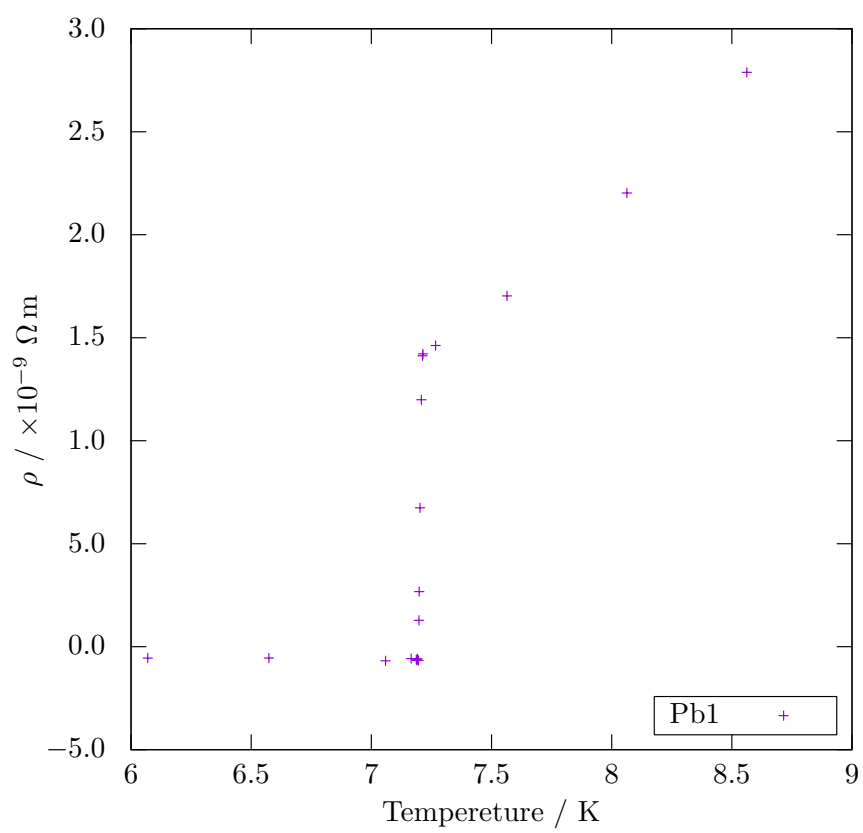


図 20 鉛試料 1 の温度-抵抗率特性 (6-9 K)

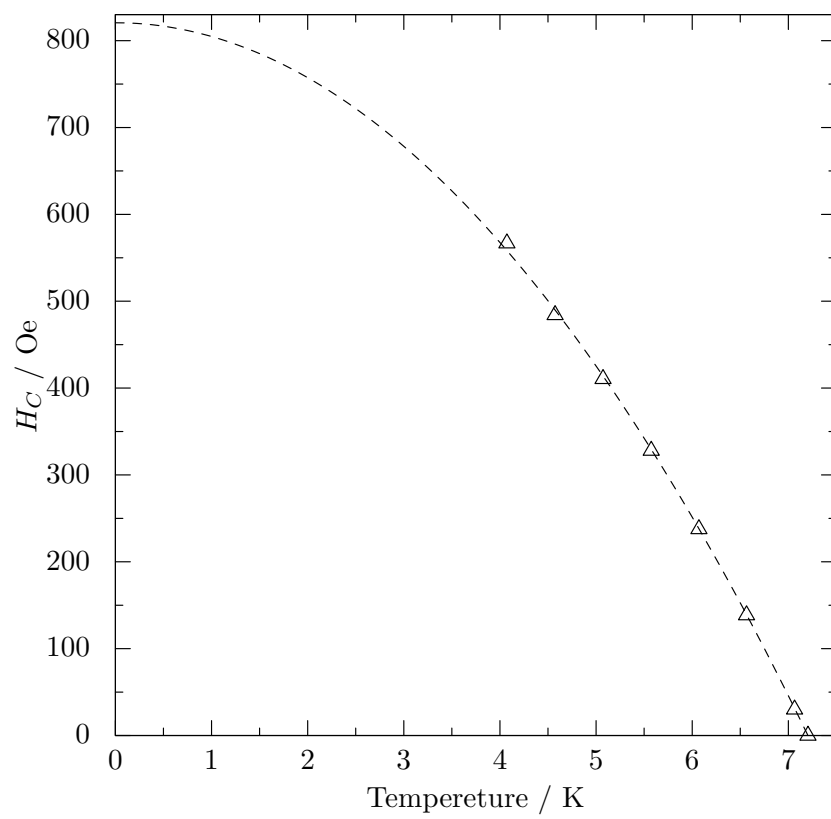


図 21 超伝導体の磁場-温度相図

4.2 電気抵抗の温度依存性の解析

超伝導状態にない金属の電気抵抗率の温度依存性は以下の表式でよく fit できる.

$$\rho(T) = \rho_0 + a_n T^n \quad (30)$$

ここで ρ_0 は残留抵抗であり, 不純物などに起因する. また n は整数である. ここでは鉛試料 1 及び金試料の常伝導状態における抵抗率を上を表式で fitting し, 尤もらしい n を推定する. 図 22, 図 23 に各試料を $n = 2, 3, 4, 5$ で fit した曲線を示す. また表 3 に fitting により得られた a_n の標準偏差を示す. 表から鉛試料 1 では $n = 3$, 金試料では $n = 4$ が最尤であると考えられる. 実際に図 22, 図 23 を見ると $n = 3, n = 4$ で最も測定値と良く一致している.

表 3 a_n の標準偏差 (%)

n	2	3	4	5
鉛試料 1	2.2	1.9	5.1	8.0
金試料	6.8	3.0	0.54	3.2

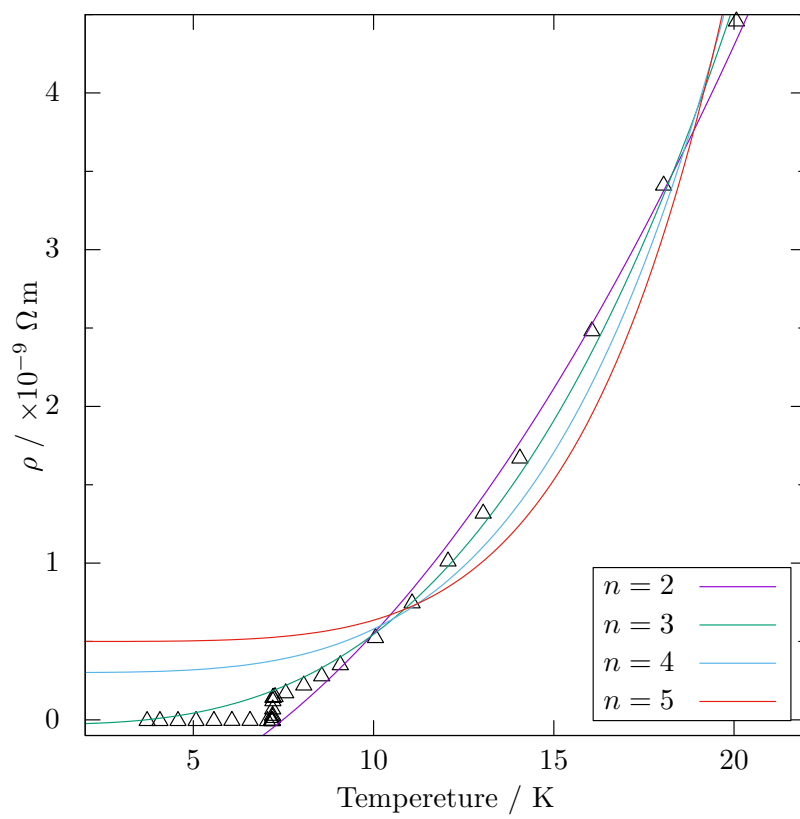


図 22 鉛試料 1 の温度-抵抗率特性

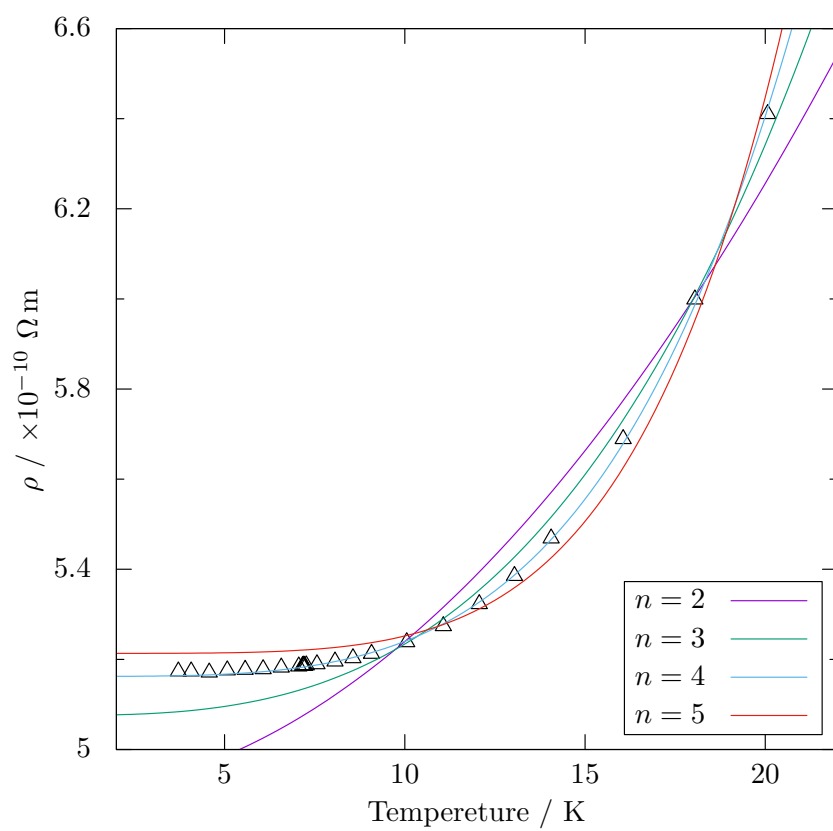


図 23 金試料の温度-抵抗率特性

参考文献

- [1] Charles Kittel 宇野良清 新関駒二郎 山下次郎 津屋昇森田章. 固体物理学入門, p. 279. 第 8 版, 2005.