

物性研短期研究会／強磁場科学研究会  
強磁場コラボラトリーによる強磁場科学の新展開  
～光科学との融合も視野に～  
(第15回強磁場フォーラム総会)



日程：2019年12月3日(火)～5日(木)  
場所：大阪大学理学研究科J棟2階・南部陽一郎ホール

### 開催趣旨

現在、オールジャパンの強磁場研究拠点の形成を目指して強磁場コラボラトリー計画(次世代強磁場施設)の実現に向けた様々な取り組みがなされている。その中であって、大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センターでは、東京大学物性研究所附属国際超強磁場科学研究施設と連携してパルス強磁場コラボラトリー運営委員会を設置し、平成28年度から物性研究所の共同利用申請の枠組みで全国共同利用実験を実施している。今後は、上記の両施設と東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センター・定常強磁場施設を含めた強磁場コラボラトリーの形成により、世界水準の研究環境を整備し強磁場科学をリードしていこうとしている。また、近年トポロジカル物性研究で重要になっている遠赤外から赤外領域や、構造物性研究に不可欠のX線領域まで、広い意味での光科学と強磁場科学との融合が期待されている。本研究会では、日本の強磁場科学分野および光科学分野における先端的研究の現状を報告し、当該分野の相補的・効果的な融合研究の可能性、各研究施設の将来構想などを包括的に議論する。

### プログラム

#### ■ 12月3日(火)

13:00-13:10 開会の挨拶：萩原政幸(阪大先端強磁場)  
東大物性研・所長挨拶

#### Session 1 (座長：鳴海康雄(阪大先端強磁場))

- 13:10-13:30 [O1-1] 木原 工(東北大金研)「メタ磁性形状記憶合金  $\text{Ni}_{50-x}\text{Co}_x\text{Mn}_{31.5}\text{Ga}_{18.5}$  ( $x=9$  and  $9.7$ ) における磁場誘起バリエーション再配列」
- 13:30-13:50 [O1-2] 左近拓男(龍谷大)「 $\text{Ni}_2\text{MnGa}$  系強磁性合金の強制磁歪効果」
- 13:50-14:10 [O1-3] 猪崎優喜(電通大)「強スピン軌道結合系における異常なゼーマン効果の理論」
- 14:10-14:30 [O1-4] 小田竜樹(金沢大)「外部磁場下の密度汎関数計算法の開発」

14:30-15:30 ポスターセッション① (odd number)

#### Session 2 (座長：三田村裕幸(東大物性研))

- 15:40-16:00 [O1-5] 今城周作(東大物性研)「一次元不安定性によって誘起される誘電性と磁性の交差相関」
- 16:00-16:20 [O1-6] 大月保直(東北大金研)「空間反転対称性を持たない常磁性遷移金属錯体における二次の電気磁気効果」

- 16:20-16:40 [O1-7] 赤木 暢 (阪大先端強磁場) 「 $\text{Sr}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$  におけるパルス強磁場 ESR の方向二色性」
- 16:40-17:00 [O1-8] 三宅厚志 (東大物性研) 「重い電子系超伝導  $\text{UTe}_2$  のメタ磁性転移」
- 17:00-17:20 [O1-9] 栗原綾佑 (東大物性研) 「 $\text{CeRhIn}_5$  の磁場誘起電子ネマティック相と四極子効果」
- 17:30-18:30 施設見学会 (先端強磁場科学研究センター) ※希望者のみ

## ■ 12月4日(水)

### Session 3 (座長: 大久保晋 (神戸大))

- 09:00-09:30 [O2-1] 佐々木孝彦 (東北大金研) 「SPring-8 赤外ビームラインでの磁場中顕微赤外分光」
- 09:30-10:00 [O2-2] 岡村英一 (徳島大) 「SPring-8 赤外放射光を用いた黒リンの磁気光学実験」
- 10:00-10:30 [O2-3] 上田健太郎 (東大物工) 「パイロクロア型イリジウム酸化物における磁場誘起相転移」
- 10:30-11:00 休憩 (30 分) ※休憩前に集合写真

### Session 4 (座長: 松田康弘 (東大物性研))

- 11:00-11:30 [O2-4] 藤岡 淳 (筑波大) 「強相関ディラック半金属  $\text{CaIrO}_3$  のモット臨界性と異常電磁気応答」
- 11:30-12:00 [O2-5] 木村真一 (阪大生命機能) 「ワイル半金属 TaAs の THz 磁気光学スペクトル」
- 12:00-12:30 [O2-6] 関山 明 (阪大基礎工) 「内殻光電子線二色性による強相関希土類 4f 軌道対称性の決定」
- 12:30-14:00 休憩 (90 分)

## 第 15 回強磁場フォーラム総会

- 14:00-16:00 強磁場フォーラム総会
- 16:00-16:10 休憩 (10 分)
- 16:10-17:00 第 1 回強磁場フォーラムフロンティア奨励賞授賞式  
受賞講演
- 17:30-19:30 懇親会 (らふおれ)



■ 12月5日(木)

**Session 5** (座長：田中秀数(東工大))

- 09:00-09:20 [O3-1] 秋元 昂(東大物性研)「Shastry-Sutherland 反強磁性体  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の磁場温度相図および有限勾配磁化プラトー」
- 09:20-09:40 [O3-2] 巖 正輝(東大物性研)「磁化および磁歪測定によるブリージングパイロクロア磁性体の強磁場磁気相探索」
- 09:40-10:00 [O3-3] 池田暁彦(東大物性研)「超強磁場 500 T に至る低次元量子スピン系の磁歪の研究」
- 10:00-10:20 [O3-4] 山口博則(大阪府立大)「新規スピン交替鎖における Lieb-Mattis プラトートの観測」
- 10:20-10:40 休憩(20分)

**Session 6** (座長：木村尚次郎(東北大金研))

- 10:40-11:00 [O3-5] 井原慶彦(北海道大)「パルス強磁場中核磁気共鳴実験手法開発の現状と今後」
- 11:00-11:20 [O3-6] 櫻井敬博(神戸大)「高圧下強磁場 THz ESR の現状と今後の展望」
- 11:20-11:40 [O3-7] 石川裕也(福井大)「超低温・高周波領域における meanderline コイルを用いた Si:P の  $^{31}\text{P}$ -DNP-NMR 測定」
- 11:40-12:40 ポスターセッション②(even number)
- 12:40-14:00 休憩(70分)

**Session 7** (座長：徳永将史(東大物性研))

- 14:00-14:20 [O3-8] 駒田盛是(阪大院理)「ワイル点を1つまたは2つ囲む系のランダウ準位の研究」
- 14:20-14:40 [O3-9] 石渡晋太郎(阪大基礎工)「極性磁性半導体におけるバンド変調由来の巨大正磁気抵抗効果」
- 14:40-15:00 [O3-10] 中村大輔(東大物性研)「近藤半導体  $\text{SmB}_6$ ,  $\text{FeSi}$  における磁場誘起半導体-金属転移」
- 15:00-15:20 [O3-11] 宍戸寛明(大阪府立大)「 $\text{SmB}_6/\text{SrB}_6$  人工超格子の強磁場下磁気抵抗測定」
- 15:20-15:30 若手優秀発表賞・ポスター賞発表：萩原政幸(阪大先端強磁場)  
閉会の挨拶：野尻浩之(東北大金研)

# Poster session

(odd number) 12/3 (Tue.) 14:30~15:30、(even number) 12/5 (Thu.) 11:40~12:40

|      |        |           |                                                                                      |
|------|--------|-----------|--------------------------------------------------------------------------------------|
| P-1  | 田中 順也  | 大阪大学      | マルテンサイト変態における時間依存性のパルス磁場による検出                                                        |
| P-2  | 竹端 寛治  | 物質・材料研究機構 | イオンゲルゲートを用い電荷制御された二層グラフェンのサイクロトロン共鳴                                                  |
| P-3  | 今中 康貴  | 物質・材料研究機構 | 半導体二次元電子系におけるテラヘルツサイクロトロン共鳴                                                          |
| P-4  | 森内 直輝  | 大阪大学      | NiFe/IrO <sub>2</sub> 界面における電流-スピン流変換効率                                              |
| P-5  | 福島 健太  | 大阪大学      | Y <sub>3</sub> Fe <sub>5</sub> O <sub>12</sub> /IrO <sub>2</sub> 界面におけるスピン流物性        |
| P-6  | 木村 尚次郎 | 東北大学      | 結合ダイマー系の磁気強誘電に対する圧力・磁場効果                                                             |
| P-7  | 船越 風太  | 神戸大学      | スピンドイマー系化合物 CoSeO <sub>3</sub> ・2H <sub>2</sub> O の強磁場 ESR 測定                        |
| P-8  | -----  | -----     | -----                                                                                |
| P-9  | 中村 大輔  | 東京大学      | 破壊型超強磁場における磁気光学測定を通じたフラストレート磁性体の研究                                                   |
| P-10 | 白崎 巧   | 上智大学      | CaBaM <sub>4</sub> O <sub>7</sub> (M=(Co,Fe))単結晶の磁場(電場)誘起電気分極(磁化)の極性依存性              |
| P-11 | 水戸 陵人  | 大阪大学      | 正四角台塔系 Pb(TiO)Cu <sub>4</sub> (PO <sub>4</sub> ) <sub>4</sub> の強磁場中スピン励起の偏光特性        |
| P-12 | 奥藤 涼介  | 神戸大学      | CsCuCl <sub>3</sub> が圧力下強磁場中で示す新奇磁気相の起源の研究                                           |
| P-13 | 鈴木 哲平  | 神戸大学      | 圧力誘起磁気相 CsFeCl <sub>3</sub> の強磁場 ESR による研究                                           |
| P-14 | 堂野 壱暉  | 福井大学      | 希釈 BDPA ラジカルを用いた 154 GHz ジャイロトロン光源による FT-ESR                                         |
| P-15 | 浅野 貴行  | 福井大学      | CuMoO <sub>4</sub> の強磁場磁化過程                                                          |
| P-16 | 大久保 晋  | 神戸大学      | Fe 四面体クラスター反強磁性体の強磁場 ESR 測定                                                          |
| P-17 | 荒島 洸樹  | 北海道大学     | <sup>7</sup> Li NMR 分光法による Li <sub>2</sub> Cr <sub>3</sub> SbO <sub>8</sub> の磁気構造の研究 |
| P-18 | 池田 暁彦  | 東京大学      | 多結晶 LaCoO <sub>3</sub> の超強磁場中磁歪計測によるスピン状態秩序相の解明                                      |
| P-19 | 澤田 祐也  | 大阪大学      | キラル磁性体 CrNb <sub>3</sub> S <sub>6</sub> の磁化および ESR                                   |
| P-20 | 石川 孟   | 東京大学      | スピン軌道相互作用の強い <i>d</i> <sup>1</sup> 電子系の磁性                                            |

|      |               |        |                                                                                                                                                   |
|------|---------------|--------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| P-21 | 恒石 一義         | 神戸大学   | 交替 D ベクトルを持つ $S=1/2$ 反強磁性鎖物質 $\text{KCuMoO}_4(\text{OH})$ の微小単結晶を用いた強磁場 ESR による磁気異方性の観測                                                           |
| P-22 | 大島 健太郎        | 神戸大学   | ペロブスカイト化合物 $\text{PbMO}_3(M=\text{Mn,Cr,V})$ の強磁場測定                                                                                               |
| P-23 | 鳴海 康雄         | 大阪大学   | 三角格子反強磁性体 $\text{NiGa}_2\text{S}_4$ の磁場-温度相図                                                                                                      |
| P-24 | 神田 朋希         | 東京大学   | 200 テスラ級超強磁場下におけるルビーの分光学的研究                                                                                                                       |
| P-25 | 山田 宗孝         | 東京大学   | 超強磁場中 FBG 磁歪計測による固体酸素の磁場誘起構造相転移の観測                                                                                                                |
| P-26 | 岩崎 義己         | 大阪府立大学 | フェルダジル系塩が可能にするスピンモデルの内部磁場変調                                                                                                                       |
| P-27 | 竹内 徹也         | 大阪大学   | $\text{EuRh}_2\text{Si}_2$ の異方的磁気相図                                                                                                               |
| P-28 | 沖田 大輝         | 大阪府立大学 | フェルダジル系塩で形成されるスピン交替鎖の強磁場物性                                                                                                                        |
| P-29 | 巖 正輝          | 東京大学   | フラストレート磁性体 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$ のプラトー相における磁気熱量効果                                                                                             |
| P-30 | 花咲 徳亮         | 大阪大学   | フタロシアニン分子系 1 次元伝導体の強磁場物性                                                                                                                          |
| P-31 | 中村 健志         | 東京大学   | 超強磁場における有機伝導体の絶縁体金属転移の探索                                                                                                                          |
| P-32 | 栗島 裕大         | 電気通信大学 | 単一フェルミ面における磁気抵抗の理論                                                                                                                                |
| P-33 | 徳永 将史         | 東京大学   | テルルの金属的表面状態における量子伝導                                                                                                                               |
| P-34 | 近藤 雅起         | 大阪大学   | 多層ディラック電子系物質 $\text{BaMnBi}_2$ の量子極限近傍における特異なランダウ準位構造                                                                                             |
| P-35 | 中川 賢人         | 大阪大学   | キャリア濃度制御した多層ディラック電子系 $\text{Eu}_{1-x}\text{Gd}_x\text{MnBi}_2$ におけるランダウ準位の観測                                                                      |
| P-36 | 中岡 優大         | 大阪大学   | 強磁性ワイル半金属 $\text{PrAlGe}$ の電気伝導特性の研究                                                                                                              |
| P-37 | 須藤 健太         | 東北大学   | カイラル半導体における量子極限状態での非相反磁気抵抗                                                                                                                        |
| P-38 | 藤田 琢也         | 東京大学   | 強磁場印加による $\text{BiSb}$ の半金属半導体転移について                                                                                                              |
| P-39 | Yongqiang Pan | 東京大学   | Evidence of BCS-BEC Crossover Obtained from Upper Critical Field $H_{c2}$ in annealed $\text{Fe}_{1-y}\text{Se}_x\text{Te}_{1-x}$ single crystals |
| P-40 | 太田 仁          | 神戸大学   | 神戸大学における強磁場を用いた多重極限 THz ESR                                                                                                                       |

|      |                  |                        |                                                                                                                     |
|------|------------------|------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| P-41 | 松田 康弘            | 東京大学                   | 1000 T 磁場による強相関絶縁体の磁場誘起金属相の研究                                                                                       |
| P-42 | 鈴木 悠太            | 東京大学                   | 超強磁場におけるバナジウム強相関電子系の磁化過程                                                                                            |
| P-43 | Dmytro Kamenskyi | University of Augsburg | Combination of Free Electron Laser and High Magnetic Field facilities at Radboud University (Nijmegen, Netherlands) |
| P-44 | 小濱 芳允            | 東京大学                   | 電気二重層コンデンサによるロングパルス磁場の発生                                                                                            |
| P-45 | 安谷 佳将            | 神戸大学                   | 圧力下強磁場 ESR 装置における圧力校正手法の確立                                                                                          |
| P-46 | 西井 健剛            | 大阪大学                   | 強磁場精密偏光 ESR 測定に向けた回転プローブの開発                                                                                         |
| P-47 | 港 啓介             | 神戸大学                   | 連続波長可変テラヘルツ光源を用いた高周波 ESR 測定法の開発                                                                                     |
| P-48 | 海老原 孝雄           | 静岡大学                   | 重い電子系の強磁場物性研究                                                                                                       |
| P-49 | 藤岡 廉             | 神戸大学                   | メンブレン検出電子スピン共鳴測定の感度増強に向けたテラヘルツ帯 bull's eye                                                                          |
| P-50 | 木下 雄斗            | 東京大学                   | テラヘルツ量子カスケードレーザーを用いた磁気共鳴分光装置の開発                                                                                     |
| P-51 | 野村 肇宏            | 東京大学                   | 破壊型超強磁場中における超音波測定技術の開発                                                                                              |
| P-52 | 松尾 晶             | 東京大学                   | 高引張強度かつ高電気伝導度特性を持つ銅銀合金線の物性研究                                                                                        |
| P-53 | 木田 孝則            | 大阪大学                   | インナー閉コイルを用いたパルス磁場発生時の渦電流の抑制                                                                                         |
| P-54 | 下起 敬史            | 東京大学                   | シールドコイルによる渦電流抑制と磁場増幅効果                                                                                              |
| P-55 | 二本木 克旭           | 大阪大学                   | パルス強磁場中金属製圧力セルの渦電流による磁場遮蔽効果                                                                                         |
| P-56 | 土田 稜             | 大阪府立大学                 | パルス強磁場磁化測定の断熱消磁法を用いた 1 K 以下への展開                                                                                     |
| P-57 | 松崎 大亮            | 大阪大学                   | パルス強磁場下における 1K 以下極低温装置開発                                                                                            |

## ● インフォメーション

## [インターネットの利用]

**eduroam** の利用が可能です。**eduroam** の I Dをお持ちでなく、大阪大学キャンパス内無線 LAN の利用を希望する方は、受付にてビジター I Dの発行を行います。ビジター I Dでは、Web(http、https)の閲覧・メールの送受信(smtps, pops, imaps, submission)・VPN 接続・ssh 接続のサービスが利用可能です。SSID は「**ODINS-VISITOR-1X**」もしくは「**ODINS-VISITOR-WLAN**」をご選択ください。

[昼食・売店]

大阪大学豊中キャンパスには、下図に示す場所に食堂・売店がございます。



メタ磁性形状記憶合金  $\text{Ni}_{50-x}\text{Co}_x\text{Mn}_{31.5}\text{Ga}_{18.5}$  ( $x = 9$  and  $9.7$ )

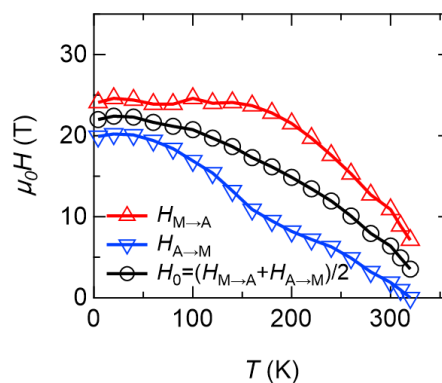
## における磁場誘起バリエーション再配列

木原工<sup>A</sup>, 許晶<sup>B</sup>, 三宅厚志<sup>C</sup>, 木下雄斗<sup>C</sup>, 徳永将史<sup>C</sup>, 安達義也<sup>D</sup>, 鹿又武<sup>E</sup><sup>A</sup> 東北大学金属材料研究所, <sup>B</sup> 東北大学工学研究科, <sup>C</sup> 東京大学物性研究所, <sup>D</sup> 山形大学,<sup>E</sup> 東北学院大学

Ni-Mn 基メタ磁性形状記憶合金 Ni-Mn-Z (Z = Ga, In, Sn, and Sb)は、室温付近で高温の強磁性オーステナイト相(cubic)から低温の常磁性マルテンサイト相(tetragonal, orthorhombic, or monoclinic)へマルテンサイト変態する。磁性変化を伴った構造相転移であるため、常磁性マルテンサイト相に外部磁場を印加することで磁場誘起マルテンサイト変態を示す。この時、磁性形状記憶効果や巨大磁気熱量効果などが観測されている[1-3]。このことから、これらの物質群は、磁場で制御できるアクチュエーターや磁気冷凍材料などへの応用が期待され、多くの研究が行われている。しかしながら、一次相転移に伴う大きなヒステリシスが実用材料開発においてしばしば障害となる。また、これらの物質群ではマルテンサイト変態に伴うヒステリシスの大きさは、組成に強く依存しており、そのメカニズムの詳細は未解明な部分が多い。

本研究では、パルス強磁場下の磁化測定によりメタ磁性形状記憶合金  $\text{Ni}_{50-x}\text{Co}_x\text{Mn}_{31.5}\text{Ga}_{18.5}$  ( $x = 9$  and  $9.7$ )の磁気相図を決定した。 $\text{Ni}_{41}\text{Co}_9\text{Mn}_{31.5}\text{Ga}_{18.5}$ における磁気相図を下図に示す。 $H_{M \rightarrow A}$  と  $H_{A \rightarrow M}$  はそれぞれ磁場の増加過程(マルテンサイト→オーステナイト)と減少過程(オーステナイト→マルテンサイト)における転移磁場を示す。従ってヒステリシスは  $H_{M \rightarrow A} - H_{A \rightarrow M}$  となる。図から明らかなように、180 K 以下でヒステリシスが温度降下と共に減少している。これは、他のメタ磁性形状合金には見られない特徴であり、一次相転移のエネルギーバリアを熱励起と磁場のアシストによって乗り越えるという従来のモデル[4]では説明することが出来ない。この特異な磁気相図の起源を解明するために、パルス強磁場中のイメージング観察、無磁場下の X 線回折、定常磁場中の磁化測定を行った。当日はこれらの実験結果をもとに、この系の特異なヒステリシスの温度依存性の起源について議論する。

- [1] R. Kainuma *et al.*, *Nature*, **429** 957 (2006).
- [2] Y. Suto *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **85** 4358 (2004).
- [3] T. Krenke *et al.*, *Nat. Mater.*, **4** 450 (2005).
- [4] R. Umetsu *et al.*, *Mater. Trans.*, **54** 291 (2013).



## Ni<sub>2</sub>MnGa 系強磁性合金の強制磁歪効果

左近拓男<sup>A</sup>, 山崎優志<sup>A</sup>, 児玉浩人<sup>A</sup>, 李徳新<sup>B</sup>, 本多 史憲<sup>B</sup>, 巨海玄道<sup>C</sup>,  
鹿又武<sup>D</sup>, 鳴海康雄<sup>E</sup>, 萩原政幸<sup>E</sup>, 野尻浩之<sup>B</sup>,  
江藤徹二郎<sup>C</sup>, 安達義也<sup>F</sup>

<sup>A</sup> 龍谷大学理工学部機械システム工学科, <sup>B</sup> 東北大学金属材料研究所,

<sup>C</sup> 久留米工業大学工学部, <sup>D</sup> 東北学院大学工学総合研究所,

<sup>E</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター,

<sup>F</sup> 山形大学大学院工学研究科

近年, 高橋らにより, 強磁性体の磁化などの磁性・物性量を遍歴磁性スピンゆらぎ理論を用いて解析がなされている[1]。キュリー温度  $T_c$  近傍では磁化の 5 乗が磁場に比例することを理論的に提唱した。西原らの磁化測定から, Ni<sub>2</sub>MnGa でも, 高橋理論に適応することが報告されている[2]。高橋理論ではさらに,  $T_c$  近傍での強制磁歪の磁化依存性について理論的考察がなされている[1]。それによると, 磁歪  $\lambda$  と磁化  $M$  の関係は  $\lambda \propto M^4$  である。本実験では, Ni<sub>2</sub>MnGa のキュリー温度近傍の磁化ならびに磁歪を測定し, 両者の相関について解析ならびに考察を行なった[3, 4]。

試料は, Ni<sub>2</sub>MnGa ( $e/a=7.500$ ) を中心に, 価電子濃度  $e/a$  の異なる合金での実験を行なった。山形大学工学部で育成された Ni<sub>2</sub>Mn<sub>1-x</sub>Cr<sub>x</sub>Ga ( $e/a < 7.500$ ) [5]ならびに東北大学金研で育成された Ni<sub>2+x</sub>MnGa<sub>1-x</sub> ( $e/a > 7.500$ ) [4] 多結晶試料を用いた。磁歪測定は Ni<sub>2</sub>Mn<sub>1-x</sub>Cr<sub>x</sub>Ga が東北大学金研強磁場超伝導材料研究センター、Ni<sub>2+x</sub>MnGa<sub>1-x</sub> は大阪大学理学研究科附属強磁場科学研究センターのそれぞれのヘリウムフリー磁石で, 歪みゲージを用いて行なった。

磁化  $M$  の磁場依存性については,  $T_c$  近傍での  $M^0$  vs.  $H$  の関係が  $\delta=4.7\sim 5.0$  のときに原点を切る直線となった。この  $\delta$  の値は西原らの結果と一致した[2]。測定した 0~5T の範囲で原点を通る直線にほぼ一致し, 高橋理論と一致する結果となった[3]。また, 磁歪と磁化の関係は  $\lambda \propto M^4$  となった。Ni<sub>2</sub>MnGa においては強制体積磁歪  $\Delta V/V$  も  $\Delta V/V \propto M^4$  となった。5 T での磁歪の値は  $e/a$  に比例し, また磁歪の磁場依存性から, 磁歪は電子状態と密接に関係していることが明らかとなった。

### 参考文献

- [1] Y. Takahashi, *Spin Fluctuation Theory of Itinerant Electron Magnetism* (Springer, 2013) .
- [2] H. Nishihara, K. Komiyama, I. Oguro, T. Kanomata, and V. Chernenko, *J. Alloys Compds.* **442**, 191 (2007).
- [3] T. Sakon, Y. Hayashi, N. Fujimoto, T. Kanomata, H. Nojiri, and Y. Adachi, *J. Appl. Phys.* **123**, 213902 (2018).
- [4] T. Sakon, Y. Hayashi, D. Li, F. Honda, G. Oomi, Y. Narumi, M. Hagiwara, T. Kanomata, and T. Eto, *Materials* **11**, 2115 (2018).
- [5] T. Sakon, N. Fujimoto, T. Kanomata, and Y. Adachi, *Metals* **7**, 410 (2017).

## 強スピン軌道結合系における異常なゼーマン効果の理論

猪崎優喜 伏屋雄紀

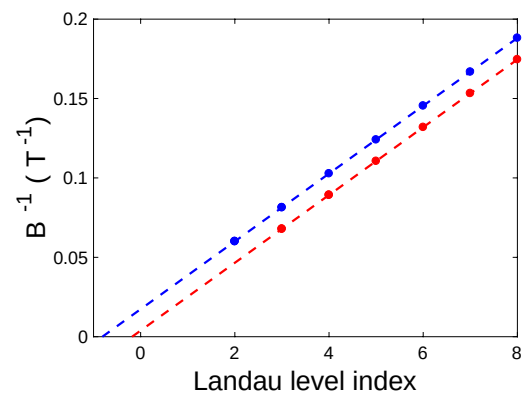
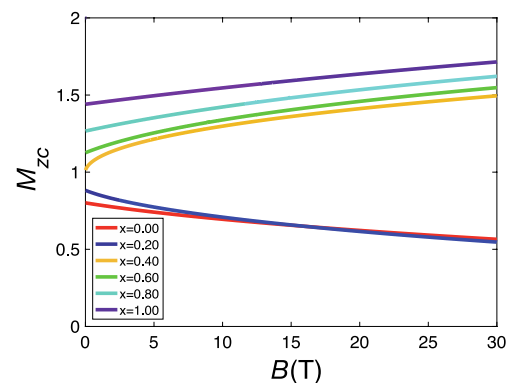
電気通信大学 基盤理工学専攻

ゼーマンエネルギーの大きさを特徴付ける  $g$  因子は、自由電子の場合2であることが知られている。しかし結晶中では、スピン軌道結合の効果によりゼーマンエネルギーの大きさが変化し、 $g$  因子は2から大きく異なる値を示す場合がある。ゼーマンエネルギーを計算することで、結晶中のスピン軌道結合を直接的に評価することができる。結晶中のスピン軌道結合を評価するためには磁場中エネルギーを精緻に計算することが求められる。

Luttinger と Kohn の理論により、磁場中効果を導入した  $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$  ハミルトニアンを解くことで磁場中エネルギーを計算することが可能である。しかし、非可換な演算子  $\boldsymbol{\pi}(\equiv \mathbf{p} - e\mathbf{A}/c)$  の存在により単純な数値対角化が許されず、行列サイズが大きい多バンドのハミルトニアンを解くことは困難であった。先行研究では一種の摂動論である Löwdin partitioning を用いることで多バンドの効果を含んだ磁場中エネルギーを解析的に導出していた[1]。この手法を用いて計算された、ゼーマンエネルギーとサイクロトロンエネルギーの比で定義されたスピン分裂変数(ゼーマン-サイクロトロン比)は、Bi では実験と理論で良い一致を示していたが、PbTe では実験と理論の結果に大きな違いが存在した[1-3]。

本研究では、非可換な演算子  $\boldsymbol{\pi}$  の扱いに注目し、行列力学の手法を用いることで、多バンドの効果を含んだ磁場中エネルギーを厳密に計算することが可能な手法を開発した( $\pi$ -matrix)。この手法を用いることで、以下の3つの結果を得た。

- (1) 今まで磁場に依存しないとされていたゼーマン-サイクロトロン比が磁場に大きく依存することが分かり PbTe における実験と理論の差を埋めることが出来た。
- (2)  $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$  の計算を行い、ゼーマン-サイクロトロン比の値が1の時を境に磁場依存性が変化することが分かった。
- (3) 今まで同一であると考えられていたゼーマン-サイクロトロン比により計算されたスピン分裂変数の値と、fan-plot により計算されたスピン分裂変数の値が異なることが分かった。



- [1] Y. Fuseya, et al., Phys. Rev. Lett., **115**, 216401(2015)  
 [2] H. Hayasaka and Y. Fuseya, J. Phys. : Condens.Matter **28**, 31LT01 (2016)  
 [3] K. Akiba et al, Phys. Rev. B, **98**, 115144 (2018)



## 外部磁場下の密度汎関数計算法の開発

アフリオニ ロマ リオ<sup>A</sup>, インドラ パルデデ<sup>B</sup>, アクマド マウラナ ガニ<sup>A</sup>, メガ ク  
リスティバナ<sup>A</sup>, 小幡正雄<sup>A,B</sup>, 小田竜樹<sup>A,B</sup>

<sup>A</sup>金沢大学自然科学研究科, <sup>B</sup>金沢大学理工研究域

### Development of density functional approach under external magnetic field

A. R. Rio<sup>A</sup>, I. Pardede<sup>B</sup>, A. M. Gani<sup>A</sup>, M. Christivana<sup>A</sup>, M. Obata<sup>A,B</sup>, T. Oda<sup>A,B</sup>

<sup>A</sup>Grad. Sch. of Nat. Sci. and Tech., Kanazawa Univ., <sup>B</sup>Instit. of Sci. and Eng., Kanazawa Univ.

Spin density functional theory (SDFT) is a useful tool to investigate magnetic properties of realistic material, such as magnetization, magnetic anisotropy, etc. The approach of SDFT does not require a model that employs a lot of empirical parameters except for the atomic positions in material. It has an ability of prediction in itself. Unfortunately, no established method under magnetic field has been developed. We have implemented a new approach which enables to calculate electronic structures of realistic materials under a uniform external magnetic field within a framework of SDFT [1]. In the implementation, rotation of magnetic moment on atom/molecule was described in a scheme of noncollinear magnetic configuration. It may be worth to discuss its efficiency under strong magnetic field.

Our new approach includes a conventional energy of SDFT including the exchange interaction and spin-orbit interaction, an energy of spin dipole-dipole interaction [2, 3], and a Zeeman energy given by the uniform external magnetic field. In the calculations, the wave function is self-consistently determined with the potential of inherent and external components. Note that this is a classical approach on magnetic field and does not cover any quantum effect, such as Landau level.

Our implementation has been tested in the couple of applications: metal slab with perpendicular magnetic anisotropy and antiferromagnetic molecular crystal of oxygen. In the former, the magnetization reorientation occurred as shown in the right figure. The behavior can be explained by a simple spin Hamiltonian of anisotropy and Zeeman terms. In the latter, we observed the induced magnetization under external magnetic field. The rotation angle of molecular magnetic moment is almost explained from the exchange interaction parameter between neighboring molecules given by another method of SDFT calculation in the same system.

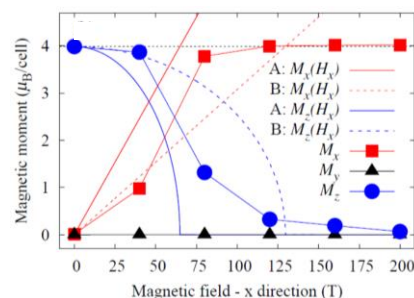


Figure: Magnetization reorientation of Pt/Fe/Pt slab with a perpendicular magnetic anisotropy.

The benefit of SDFT allows us to investigate structural deformation in crystals as well as electronic structure. As a result, one can raise a possible magnetization-induced material and discuss the magnetic state and other material properties under a high magnetic field more realistically and accurately than before.

[1] A. R. Rio, I. Pardede M. A. Gani, M. Christivana, M. Obata, and T. Oda, submitted.

[2] T. Oda and M. Obata, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 064803 (2018).

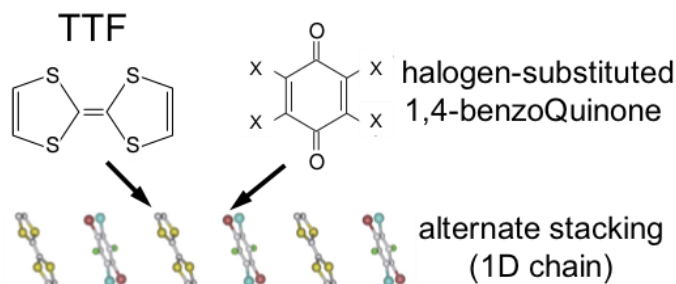
[3] M. Obata, M. Christivana, and T. Oda, AIP Advances **8**, 101419 (2018).

## 一次元不安定性によって誘起される誘電性と磁性の交差相関

今城周作<sup>A</sup>, 三宅厚志<sup>A</sup>, 栗原綾佑<sup>A</sup>, 徳永将史<sup>A</sup>,金道浩一<sup>A</sup>, 堀内佐智雄<sup>B</sup>, 賀川史敬<sup>C,D</sup><sup>A</sup> 東京大学物性研究所, <sup>B</sup> 産業技術総合研究所,<sup>C</sup> 東京大学大学院工学系研究科, <sup>D</sup> 理研 CEMS

古典電磁気学では静的な電場と磁場の間に相関は生じないとされている。一方で、古くから理論的な示唆によって時間・空間反転対称性が破れた系において「磁場による分極の誘起」や「電場による磁化の誘起」といった電気磁気効果が発現すると予想され、実際の物質系で発見されてきた。近年は実験・理論的研究の進展により、大きな電気磁気効果を示すものも発見され、マルチフェロイクスという分野として研究が進んでいる。これまでに発見された電気磁気効果を示す多くの物質は 3d 磁性イオンを含んだ酸化物であるが、本研究では有機化合物で生じる電気磁気効果に注目した。電気磁気効果の発現機構は多岐に渡り、分子性化合物では一次元不安定性が誘起する独特の機構[1]が提案されているが、その特徴は未だほとんど知られていない。そこで、我々は図に示した TTF(tetrathiafulvalene)とハロゲン置換された QX<sub>4</sub> (1,4-benzoquinone)によって構成される分子性化合物の強磁場中誘電・磁気・格子特性に注目することで、一次元不安定性に起因した電気磁気効果による磁場誘起強誘電-常誘電量子相転移や誘電性の量子臨界性を議論した。

本研究では QX<sub>4</sub> のハロゲン原子が Br<sub>3</sub>I の TTF-QBr<sub>3</sub>I を対象にした。誘電率測定からこの塩が約 5 K で量子常誘電状態からリラクス的な強誘電転移し、同時に一次元不安定性に起因したスピンパイエルス(SP)転移を示すことが磁化率測定から分かった。TTF カチオンと QBr<sub>3</sub>I アニオンの二量化が分極の起源となっていると考えられる。磁場中では SP が抑制されるために、それに伴って強誘電も抑制され、40 T 付近に強誘電-量子常誘電転移の量子臨界挙動と考えられる誘電率の極大が観測された。量子常誘電を記述する Barrett の式を用いた解析からも量子揺らぎの強さが 40 T 付近で発散する振舞いが観測され、強誘電状態が磁場によって抑制されていることが確認された。講演ではこの系の誘電・磁気・格子の特性について詳しく議論する。



[1] F. Kagawa, et al., *Nat. Phys.* **6**, 169 (2010).

TTF(tetrafulthiafulvalene)とハロゲン置換された QX<sub>4</sub> (1,4-benzoquinone)、およびその一次元交互積層構造

## 空間反転対称性を持たない常磁性遷移金属錯体における 二次の電気磁気効果

大月保直<sup>A</sup>, 木村尚次郎<sup>A</sup>, 淡路智<sup>A</sup>, 中野元裕<sup>B</sup>

<sup>A</sup> 東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センター

<sup>B</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属熱・エントロピー科学研究センター

【緒言】一般に電気磁気(ME)効果は磁気秩序と強誘電が共存したマルチフェロイクスなど、時間反転対称性と空間反転対称性が自発的に破れた物質で発現することが知られる<sup>[1]</sup>。一方で、常磁性体であっても中心対称を持たない物質であれば、磁場によって時間反転対称性を破ることでME効果を発現させることができる<sup>[2]</sup>。今回我々は $3d^4$ 遷移金属錯体 $[\text{Mn}^{\text{III}}(\text{taa})]$  ( $\text{H}_3\text{taa}$ : tris(1-(2-azoly)-2-azabuten-4-yl))における二次のME効果の発現可能性に着目してその観測を試みた。 $[\text{Mn}^{\text{III}}(\text{taa})]$ はスピנקロスオーバー転移温度  $T_{\text{SCO}} \sim 47 \text{ K}$ <sup>[3]</sup>以上のhigh-spin(HS)状態において $d_{xy}$ 軌道に二重縮退が残り、この軌道を一つの電子が占有しているため分子がJahn-Teller(JT)不安定な状態に陥る。この不安定性を解消するため分子は自発的な歪みを生じ、歪み軸と垂直方向に電気双極子を発生する。この歪みに等価な3方向が存在することから、歪みが無秩序に配向した動的JT効果とCurie-Weiss的な常誘電性が生じる<sup>[4]</sup>。 $[\text{Mn}^{\text{III}}(\text{taa})]$ 結晶は反転心を持たない点群 $\bar{4}3m$ に属しているため、3階の極性テンソル成分を持つことが許される。このような物質においては、磁場の印加によって二次のME効果に由来する電気分極が発生する<sup>[2]</sup>。点群 $\bar{4}3m$ の $[\text{Mn}^{\text{III}}(\text{taa})]$ では、二次のME効果は以下の(1)式で考えられる。

$$P_z = \beta_{zxy} B_x B_y = \beta_{zxy} B^2 \sin(2\theta) \quad (1)$$

ここで、 $P_z$ は電気分極、 $B_x$ と $B_y$ は印加磁場であり、 $\beta_{zxy}$ は二次の電気磁気感受率である。 $x$ ,  $y$ および $z$ は立方晶系の主軸ベクトルであり、 $z$ を $[001]$ とすると $\theta$ は $(001)$ 面内で磁場と $[100]$ 軸が成す角である。 $[\text{Mn}^{\text{III}}(\text{taa})]$ における二次のME効果を観測するため、磁場中で単結晶試料を回転させながら焦電流測定を行った。

【実験結果】図1に示した、50Kにおける電気分極の磁場角度依存性から $180^\circ$ 周期の振る舞いが観測された。分極の大きさは印加磁場の2乗に比例している。これらの振る舞いは(1)式から期待される振る舞いに一致している。このME効果はJT歪みの磁場配向によって、歪みに付随する電気双極子が配向したために発生したと考えられる。当日の発表ではこの結果と併せて電気分極の温度依存性や二次の電気磁気感受率 $\beta_{zxy}$ についても議論する。

### 【参考文献】

- [1] N. A. Spaldin, *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter*, **20**, 434203 (2008).
- [2] S. L. Hou and N. Bloembergen, *Phys. Rev.* **138**, A 1218 (1965).
- [3] P. G. Sim and E. Sinn, *J. Am. Chem. Soc.* **103**, 241 (1981). 磁場角度依存性.
- [4] M. Nakano, *et al.*, *Adv. Quantum Chem.* **44**, 617 (2003).

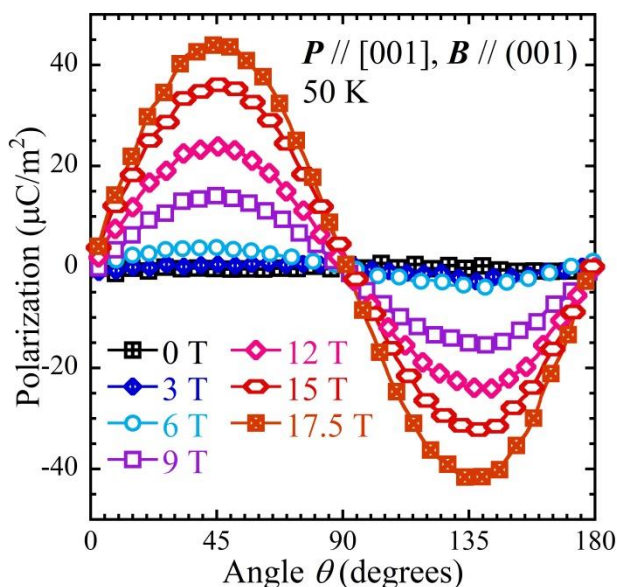


図1.  $[\text{Mn}^{\text{III}}(\text{taa})]$ における電気分極の

## Sr<sub>2</sub>CoSi<sub>2</sub>O<sub>7</sub> におけるパルス強磁場 ESR の方向二色性

赤木暢, 鳴海康雄, 萩原政幸

大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター,

電気磁気マルチフェロイック物質では、スピンと電気分極が強く相関しているために、電子スピン共鳴 (ESR) やテラヘルツ分光実験において特異な磁気励起が観測されることがある。実際、オケルマナイト構造を持つマルチフェロイック物質 Sr<sub>2</sub>CoGe<sub>2</sub>O<sub>7</sub> では、振動電場誘起の磁気励起 (エレクトロマグノン) が磁化飽和後に観測され、振動磁場では励起できないスピン四極子励起として理解できることがわかっている[1]。また、Ba<sub>2</sub>CoGe<sub>2</sub>O<sub>7</sub> では方向二色性も観測されており[2]、オケルマナイト物質の磁気励起に興味が持たれている。本研究では、オケルマナイト物質 Sr<sub>2</sub>CoSi<sub>2</sub>O<sub>7</sub> におけるパルス強磁場 ESR 測定から特異な磁気励起や方向二色性を微視的に観察することを目的とした。

図 1 に Sr<sub>2</sub>CoSi<sub>2</sub>O<sub>7</sub> において外部磁場反転したときの強磁場 ESR スペクトルを示す。飽和磁場 17T 以上の強制強磁性状態においていくつかの共鳴吸収が観測された。これらの吸収は、周波数変化した実験から D<sub>0</sub> は 1 マグノンの磁気双極子遷移、Q および C は 2 マグノン励起、O は 3 マグノン励起であることがわかった。今回注目したのは、C の励起である。共鳴吸収の形から共鳴エネルギーに幅を持つ励起モードであると考えられる。また、特徴的な振る舞いとして C モードでは、外部磁場の反転によって吸収の有無が変化するという、非常に大きな方向二色性を示すことがわかった。発表では、C モードの振る舞いに注目し行った実験結果について詳細に報告する。

- [1] M. Akaki *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 214406 (2017).  
 [2] I. Kézsmárki *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106**, 057403 (2011).

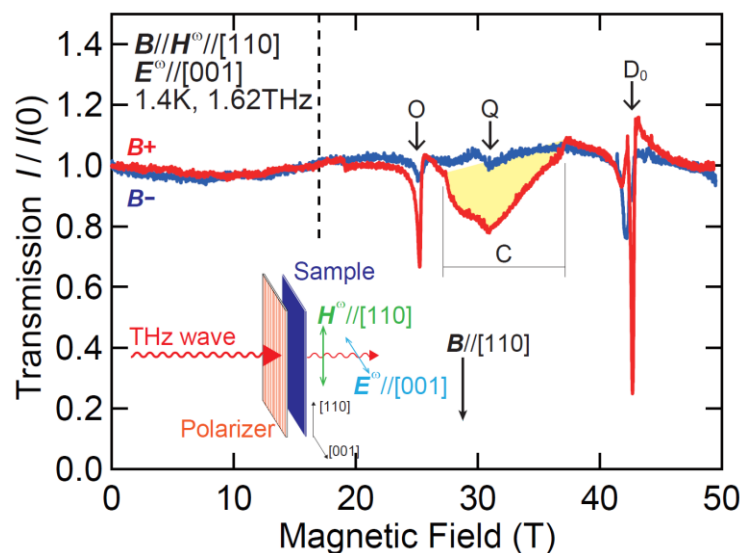


図 1: Sr<sub>2</sub>CoSi<sub>2</sub>O<sub>7</sub> の強磁場 ESR スペクトル (Voigt 配置,  $B//H^o//[110]$ ,  $E^o//[001]$ ,  $k//[1-10]$ , 1.4K, 1.62THz)。D<sub>0</sub>, Q, O はそれぞれ 1, 2, 3 マグノン励起による共鳴吸収を示す。挿入図は測定配置を示す。



## 重い電子系超伝導 $\text{UTe}_2$ のメタ磁性転移

三宅厚志<sup>A</sup>, 清水悠晴<sup>B</sup>, 佐藤芳樹<sup>B</sup>, 李徳新<sup>B</sup>, 仲村愛<sup>B</sup>, 本間佳哉<sup>B</sup>,

本多史憲<sup>B</sup>, Jacques Flouquet<sup>C</sup>, 徳永将史<sup>A</sup>, 青木大<sup>B, C</sup>

<sup>A</sup> 東大物性研, <sup>B</sup> 東北大金研, <sup>C</sup> CEA-Grenoble

昨年, 常磁性体  $\text{UTe}_2$  において転移温度  $T_{\text{sc}} = 1.6 \text{ K}$  で新奇な超伝導が発見された. その上部臨界磁場がパウリ・リミットを大きく超えることからスピン三重項超伝導であると考えられており, 大変注目されている[1, 2]. 特に, 磁化困難軸である直方晶  $b$  軸に磁場を印加した時に,  $T_{\text{sc}}$ が増大するリエントラントな超伝導相図[3]を持ち, 強磁性超伝導体  $\text{URhGe}$ ,  $\text{UCoGe}$ [4]との類似性があり, 強磁場物性に興味を持たれている.

我々は, パルス強磁場下で磁化測定を行い, 図 1(b)のように  $H_{\text{m}} \sim 35 \text{ T}$  でメタ磁性転移(MMT)を発見した[5]. 図 1(a)の磁場温度相図に示すように MMT は磁場履歴を伴う一次転移であり, 臨界終点(CEP)より高温ではクロスオーバー的になり, 磁化率の温度依存性に現れるブロードなピークの温度に繋がることが分かった. 磁化の温度依存性から, Maxwell の関係式を用いて電子比熱係数 $\gamma$ を求めると, 図 1(c)のように MMT に向かって $\gamma$ が増大することが分かった. この増大はパルス磁場中での比熱測定からも確認された[6]. 図 1(a)に示すように, 電子の有効質量の増大によって, リエントラント超伝導[3]が誘起されていると考えている. 磁場の影響が無視できるキャパシタンス温度計を用いたメタ磁性転移に伴う磁気熱量効果の測定結果も紹介する. さらに, 磁場角度を  $b$  軸から傾けると, 磁場誘起超伝導相が消失することが報告されている[3, 7].  $b$  軸から  $a$  軸に磁場を傾けた時の  $H_{\text{m}}$  の磁場角度依存性,  $\gamma$  の磁場依存性を紹介する.

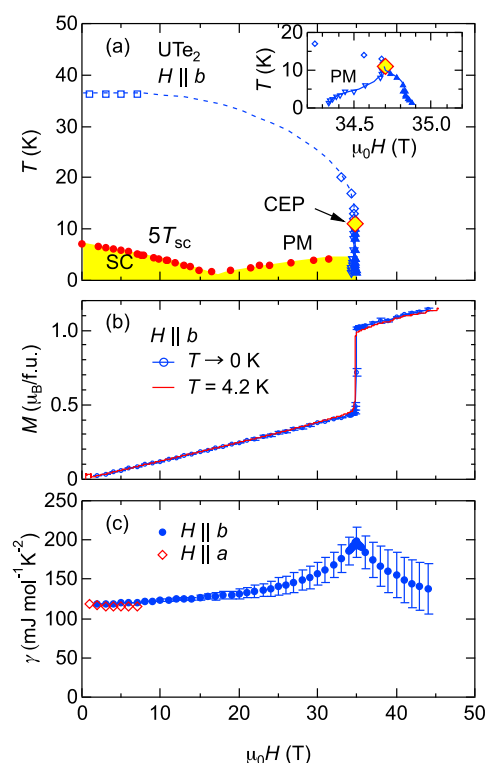


Fig. 1 (a)  $\text{UTe}_2$  の  $H \parallel b$  における (a) 磁場温度相図. 超伝導相(SC)図は[3]. (b) 磁化, (c) Maxwell 関係式から求めた電子比熱係数 $\gamma$ の磁場依存性

- [1] S. Ran *et al.*, Science 365, 684 (2019). [2] D. Aoki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 043702 (2019). [3] G. Knebel *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 063707 (2019). [4] D. Aoki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 022001 (2019). [5] A. Miyake *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 063706 (2019). [6] S. Imajo *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 083705 (2019). [7] S. Ran *et al.*, Nat. Phys. (2019).

## CeRhIn<sub>5</sub>の磁場誘起電子ネマティック相と四極子効果

栗原綾佐<sup>A</sup>, 三宅厚志<sup>A</sup>, 徳永将史<sup>A</sup>, 広瀬雄介<sup>B</sup>, 摂待力生<sup>B</sup>

<sup>A</sup> 東京大学物性研究所, <sup>B</sup> 新潟大学理学部

CeRhIn<sub>5</sub>は空間群  $P4/mmm$  ( $D_{4h}^1$ )の正方晶である<sup>[1]</sup>. これまでの研究では, 局在した  $Ce^{3+}$  の  $4f$  電子に由来する反強磁性や, 静水圧力の印加による反強磁性の抑制, フェルミ面の変形と  $4f$  電子の遍歴化, および超伝導の発現が注目され, 重い電子系超伝導体として議論された. 最近, 反強磁性相内の  $B^* \sim 30$  T の強磁場中で電気抵抗の面内異方性が確認され<sup>[2]</sup>, 格子系よりも電子系の対称性が顕著に低対称化する電子ネマティック相が提案された. そこでは, フェルミ面の形状変化<sup>[3]</sup>や電子比熱係数の増大がみられ<sup>[4]</sup>, 磁場誘起の  $4f$  電子の遍歴化と電子ネマティック相の発現機構の関係が議論されている.

しかし, 電子ネマティック相での対称性の破れと秩序変数はいまだ未解明となっている.

本研究では, 約 30 T の高磁場中で発現する電子ネマティック相の秩序変数と量子状態を調べるため, 東京大学物性研究所のミッドパルスマグネットと, 群論に基づき結晶対称性の破れを観測できる超音波を用いて, CeRhIn<sub>5</sub>の弾性定数の磁場依存性を調べた.

図 1 に,  $D_{4h}$  の既約表現  $B_{1g}$  に属し対称性の低下を特徴づける横波弾性定数  $C_T = (C_{11}-C_{12})/2$  の磁場依存性を示す. 1.4 K と 2.1 K において,  $B^* = 28.5$  T での弾性異常を観測した. この磁場は, 先行研究で報告された電子ネマティック相と対応する. 2.5 K 以上では  $B^*$ での異常は現れず, 電子ネマティック相は消失したと考えられる.  $C_T$  に  $B^*$ での異常が現れた一方で, 縦波弾性定数  $C_{33}$  と  $C_{11}$ , および横波弾性定数  $C_{44}$  と  $C_{66}$  は異常を示さなかった. 以上の結果は, 電子ネマティック相で  $B_{1g}$  対称性が破れ, その秩序変数が  $B_{1g}$  表現に属する電子四極子  $O_x^2, y^2$  として記述できることを示している. さらに, 電子-格子相互作用に由来し  $B_{1g}$  の歪み  $\epsilon_{xx}-\epsilon_{yy}$  と電気四極子  $O_x^2, y^2$  が結合するため,  $B^*$ では電子系のみならず結晶対称性の破れも生じることを示唆する結果である<sup>[5]</sup>.

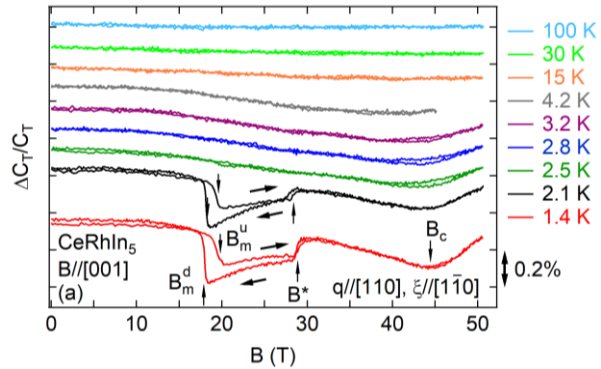


図1 CeRhIn<sub>5</sub>の弾性定数  $C_T = (C_{11}-C_{12})/2$  の磁場依存性. 磁場方向は  $B//[001]$ , 超音波の進行方向は  $q//[110]$ , 変位方向は  $\xi//[1\bar{1}0]$ .  $B_m$ はメタ磁性転移磁場,  $B_c$ は弾性定数の極小を示す.

- [1] H. Hegger, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 4986 (2000). [2] F. Ronning, *et al.*, Nature **548**, 313 (2017). [3] L. Jiao, *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. **112**, 673 (2015). [4] L. Jiao, *et al.*, Phys. Rev. B **122**, 016402 (2019). [5] Submitted to Phys. Rev. B in 2019.

## SPring-8 赤外物性ビームライン磁気光学ステーションの現状と 強相関電子系分子性物質研究への応用

佐々木孝彦<sup>A</sup>, 井口敏<sup>A</sup>, 池本夕佳<sup>B</sup>

<sup>A</sup> 東北大学金属材料研究所, <sup>B</sup> SPring-8/JASRI

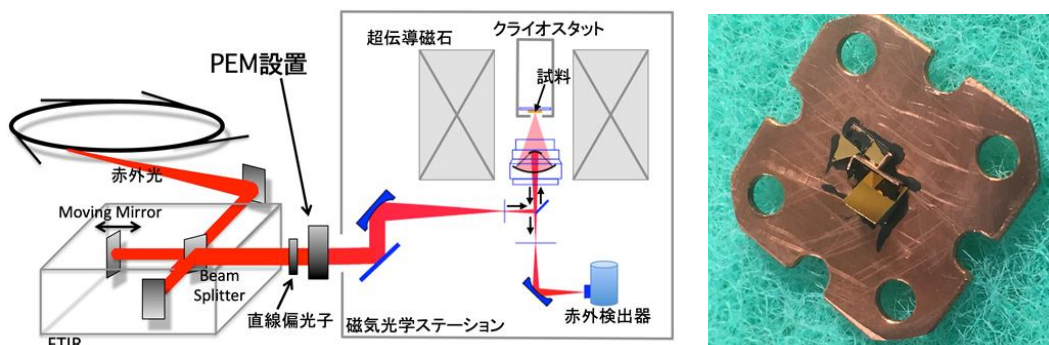
SPring-8 赤外ビームライン BL43IR には, 1) 高空間分解能顕微鏡ステーション, 2) 長作動距離顕微鏡ステーション, 3) 磁気光学顕微鏡ステーションが整備され, 赤外放射光の高輝度性を活用した微小領域, 微小試料の赤外顕微分光実験が行われている. このうち磁気光学ステーションは, 14 テスラ無冷媒超伝導マグネットが設置され, 高磁場・低温環境下での顕微赤外分光が可能である[1]. 発表者らは, ここ数年間をかけて SPring-8 パートナーユーザー制度を利用して磁気光学ステーションの再整備を行った[2]. この再整備により, 分光範囲の遠赤外領域への拡張, 光学調整の容易化, クライスタットの低液体ヘリウム消費化, 試料セッティングの容易化などのユーザーフレンドリーなシステムへの改善を行いほぼ完了した. また, マグネット, 顕微鏡配置の関係から光の進行方向と磁場方向が平行となるファラデー配置の反射測定実験しか実施できなかったが, 試料ホルダー上に小型ミラーを配置することで光進行方向と磁場方向が直交するフォークト配置による反射分光実験が可能となった. 本講演では, 再整備後の装置スペック・利用状況とこれを利用した強相関電子系分子性物質の磁場中赤外分光実験について紹介する.

現在の磁気光学ステーションのスペックは, 以下の通りである.

- ・ 分光範囲:  $120 - 10000 \text{ cm}^{-1}$  (0.015 - 1.2 eV) の反射測定 偏光測定可
- ・ 磁場:  $\pm 14 \text{ T}$  (GM 冷凍機冷却無冷媒超伝導マグネット)
- ・ 試料温度 4 - 350 K  
(液体ヘリウム消費量: 3L/h @5K, 1-2L/h@10-30K, <0.5L/h@150-350K)
- ・ 顕微領域サイズ:  $50 \times 50 \mu\text{m}^2$

[1] S. Kimura *et. al.*, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A, **467-468**, 893, (2001).

[2] 井口敏, 池本夕佳, 森脇太郎, 佐々木孝彦, SPring-8/SACLA 利用研究成果集 (2020)



左図: SPring-8BL43IR に設置の磁気光学ステーションの概念図. 円二色性測定のための光弾性変調器 (PEM)の設置を準備している. 右図: フォークト配置測定用小型ミラーを取り付けた試料ホルダー

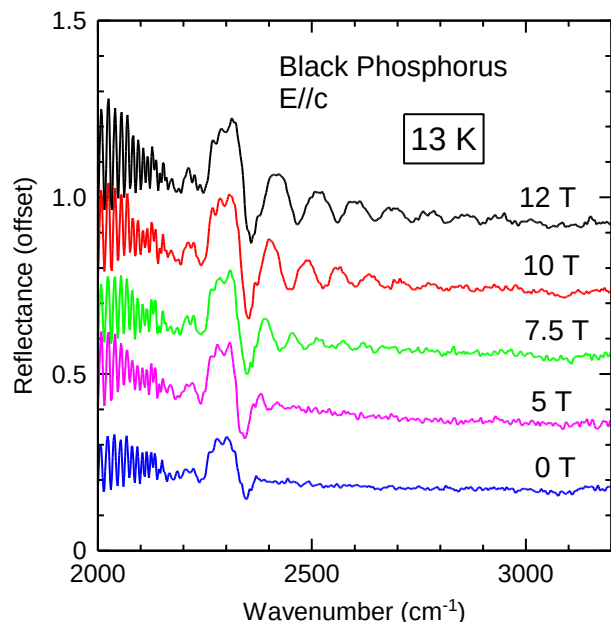
## SPring-8 赤外放射光を用いた黒リンの磁気光学実験

岡村英一<sup>A</sup>, 井口敏<sup>B</sup>, 佐々木孝彦<sup>B</sup>, 赤浜裕一<sup>C</sup>, 池本夕佳<sup>D</sup>, 森脇太郎<sup>D</sup>

<sup>A</sup>徳島大学大学院社会産業理工学研究部, <sup>B</sup>東北大学金属材料研究所, <sup>C</sup>兵庫県立大学大学院物質理工学研究科, <sup>D</sup>高輝度光科学研究センター

黒リン (Black phosphorus) は常温常圧で安定なリンの同素体の 1 つであり、1980 年代に高压合成によって良質単結晶が育成され、その物性研究が急速に進展した[1]。黒リンは層状の結晶構造を持ち、常温常圧で約 0.3 eV のバンドギャップを持つ半導体である。その物性は非常に大きな圧力依存性を示し、約 2 GPa でギャップが閉じて金属化し、より高压で  $T_c$  が 10 K 前後の超伝導を示す[2]。一方、強磁場物性では、バルク黒リンのサイクロトロン共鳴[3]や量子輸送現象[4]、また数層の非常に薄い試料で量子ホール効果も観測されている[5]。最近我々は SPring-8 の赤外ビームライン BL43IR の磁気光学ステーションを用いて、強磁場下で黒リンの磁気光学実験を行った。この装置では、無冷媒超伝導磁石による最高 14 T の定常磁場下で、遠赤外から近赤外 (波数 200 – 12000  $\text{cm}^{-1}$  程度、光子エネルギー 0.02 – 1.5 eV 程度) の広いスペクトル領域で赤外スペクトルを測定できる。今回は黒リンの単結晶試料を用いて、中赤外領域の反射スペクトルを測定した。図に結果の一部を示す。2300  $\text{cm}^{-1}$  付近に観測されるピークは励起子吸収による構造で、より低波数の周期的振動は試料内部での干渉による構造である。2400  $\text{cm}^{-1}$  より高波数で、磁場の増加と共にスペクトルに周期的構造が現れており、その間隔が磁場増加と共に広がっている。この構造は伝導帯と価電子帯のランダウ準位間の光吸収に起因すると考えられ、その解析から求めた電子と正孔の換算有効質量は 0.11  $m_0$  であり、サイクロトロン共鳴で求められた有効質量[3]と矛盾しない。発表では、他の半導体や半金属に対する実験の可能性についても議論したい。

[1] Y. Akahama et al., J. Phys. Soc. Jpn. **52**, 2148 (1983). [2] H. Kawamura et al., Solid State Commun. **49**, 879 (1984). [3] S. Narita et al., J. Phys. Soc. Jpn. **52**, 3544 (1983). [4] K. Akiba et al., J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 073708 (2015). [5] J. Yang et al., Nano Lett. **18**, 229 (2018).



図：黒リン単結晶の強磁場下赤外反射率スペクトル。測定は結晶の 2 次元面に垂直に磁場を印加する Faraday 配置で行った。



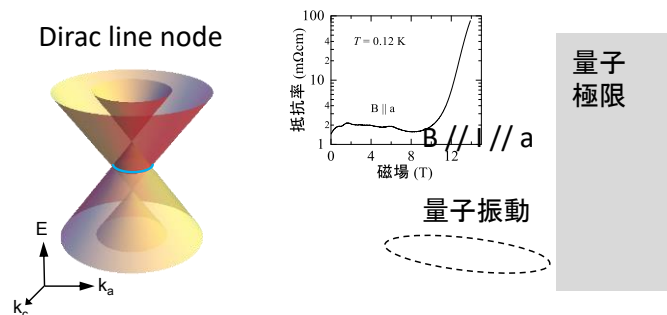
## パイロ強相関ディラック半金属 $\text{CaIrO}_3$ における磁気輸送特性

藤岡 淳<sup>A</sup>, 山田 林介<sup>B</sup>, 川村 稔<sup>C</sup>, 酒井 志朗<sup>C</sup>, 平山 元昭<sup>C</sup>, 有田 亮太郎<sup>A,C</sup>,  
橋爪 大輔<sup>C</sup>, 星野 学<sup>C</sup>, 栗原 綾佑<sup>D</sup>, 徳永 将史<sup>D</sup>, 十倉好紀<sup>B,C</sup>

<sup>A</sup>筑波大, <sup>B</sup>東大工, <sup>C</sup>理研 CEMS, <sup>D</sup>東大物性研

トポロジカル半金属の特長はバルク中に生じるディラック電子(ワイル電子)による多彩な量子相や量子輸送現象が見られる点である。ディラック電子は有効質量が小さく磁場下で容易にランダウ量子化するため、量子振動や量子ホール効果などの量子伝導現象を比較的容易に示す。また、波動関数の幾何学的位相であるベリー位相によって大きな異常ホール効果やカイラル異常による磁気抵抗効果が見られる事も知られている。ディラック半金属の研究はこの数年間で大きく進展しており、電子間の相互作用が無視できる(一電子近似が成り立つ)物質では既に優れた報告が数多く出されてきている。一方で、最近では電子間のクーロン相互作用の効果(電子相関)が強い場合のトポロジカル量子相や量子現象も強い関心が持たれている。しかしながら強い電子相関とディラック電子の量子輸送を同時に実現できる物質があまり知られていないため、相互作用が無視できる系と比べて研究があまり進んでいないのが現状である。

このような中で、最近我々はモット転移近傍の強い電子相関を持ったディラック半金属の  $\text{CaIrO}_3$  において電子移動度が  $60,000\text{cm}^2/\text{Vs}$  に達するディラック電子が生じていることを見出した [1]。この系では約 9 T 程度の磁場で量子極限に達し、そこで正の巨大磁気抵抗効果が生じる事が明らかになった。本講演では、本系で見られるモット転移の臨界性と強く結びついたディラック電子の磁気輸送特性の現状と[1-3]、パルス強磁場での輸送特性および磁場下赤外分光による電荷ダイナミクスについての今後の可能性について議論する。



- [1] J. Fujioka *et al.*, Nature Commun. 10, 362(2019).
- [2] M. Masuko *et al.*, APL Mater. 7, 081115 (2019).
- [3] R. Yamada *et al.*, Phys. Rev. Lett. in press.

## クロア型イリジウム酸化物における磁場誘起相転移

上田健太郎<sup>A</sup>, 金子竜馬<sup>A</sup>, 山田林介<sup>A</sup>, 藤岡淳<sup>B</sup>, 井口敏<sup>C</sup>, 池本夕佳<sup>D</sup>, 十倉好紀<sup>A,E</sup>

<sup>A</sup> 東京大学工学部, <sup>B</sup> 筑波大学数理物質, <sup>C</sup> 東北大学金属材料研究所, <sup>D</sup> 高輝度光科学研究センター, <sup>E</sup> 理化学研究所創発物性科学研究センター,

固体における相対論的電子（ディラック・ワイル電子）が強い関心を集めている。グラフェンやトポロジカル絶縁体の研究を契機として、量子化異常ホール効果やワイル半金属などの新しい量子状態が続々と見だされてきている。特に最近では、ディラック電子間のクーロン相互作用（電子相関）による多体量子現象に興味が集まってきており、モット転移や磁気秩序と絡んだ相対論的粒子の研究が盛んに行われるようになっている。

5d 遷移金属酸化物は、この現象の研究対象として注目を集めている。中でもモット転移物質として知られていたパイロクロア型結晶構造を持つイリジウム酸化物  $R_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  ( $R$ =希土類元素)では、反強磁性ワイル半金属相が生じる可能性が理論で予測されている。

我々は、金属絶縁体近傍の  $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  に着目して、分光測定や電荷輸送測定を用いた多角的な研究を行ってきた。本発表では、これまで明らかになってきた  $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  の物性について紹介し、現在 Spring8 の BL43IR で行なっている磁場中赤外分光の結果について議論する。

$\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  多結晶においては、転移温度 32 K 以下で磁気転移が生じ抵抗率が急激に増加する。反射率分光測定により、転移温度以下で 1 eV にわたるエネルギースケールで光学伝導度スペクトルが変化することがわかった。これは、クーロン相互作用が相転移に大きく寄与していることを示唆している。また、転移温度以下で電荷ギャップが徐々に開いていき、最低温の 5 K では 50 meV となった。 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  単結晶における、転移温度以下での磁気輸送特性を調べたところ、[001]結晶軸方向の磁場によって、抵抗率が 3 桁程度減少する振る舞いが観測された。この現象について我々は、外部磁場によって磁気構造が変化し、磁気対称性を反映したトポロジカル半金属の発現に起因する可能性があることを、理論計算と合わせて議論した。反強磁性絶縁体相から強磁性的トポロジカル電子相への相転移における電荷ダイナミクスを調べることは、スピンや電荷など多自由度が絡んだトポロジカル電子状態について知見を得るのに欠かせない。この目的のため、現在我々は、BL43IR の磁気光学ステーションで反射率分光測定を行なっている。当日は、最近の結果と展望について議論したい。

## ワイル半金属 TaAs の THz 磁気光学スペクトル

木村 真一<sup>A,B,\*</sup>, 横山 裕子<sup>B</sup>, 中島 裕喜<sup>B</sup>, 渡邊 浩<sup>A,B</sup>,

Jörg Sichelschmidt<sup>C</sup>, Vicky Süß<sup>C</sup>, Marcus Schmidt<sup>C</sup>, Claudia Felser<sup>C</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学大学院生命機能研究科, <sup>B</sup> 大阪大学大学院理学研究科物理学専攻,

<sup>C</sup> Max Planck Institute for Chemical Physics of Solids

ディラック半金属の1つであるワイル半金属は、巨大磁気抵抗やカイラル異常、表面のフェルミアーク等の特徴があり、興味をもたれている物質である[1]。それらの性質は、空間や時間反転対称性が破れ縮退が解けたことによる生じる2つのディラック点（ワイル点のペア）がフェルミ準位上に現れた電子構造（図1）によるものと考えられている。このような特徴的な電子構造、特にワイル点やワイル点間の鞍点のエネルギー、さらにフェルミ速度に関する情報を得るために、我々は典型的なワイル半金属である TaPn ( $Pn = P, As$ ) の光学伝導度スペクトル  $\sigma(\omega)$  の温度依存性の測定を行ってきた。その結果として、TaP のワイル点はフェルミ準位から 50meV 程度離れているのに対し、TaAs では 10meV 程度であり、ほぼフェルミ準位近くに位置する理想的な状態であることがわかった[2]。

ここでは、この理想的なワイル半金属 TaAs に磁場を印可した場合の振る舞いについて報告する。結果として、巨大磁気抵抗[3]に対応するドルーデピーク強度の減少と、ディラックバンド内のランダウ準位間の光学遷移が観測された。その振る舞いは、Carbotte らによって、理論的に予測されている結果[4]とほぼ一致した結果が得られた[5]。

\* kimura@fbs.osaka-u.ac.jp

[1] B. A. Bernevig, Nat. Phys. **11**, 698 (2015).

[2] S. Kimura *et al.*, Phys. Rev. B **96**, 075119 (2017).

[3] J. H. Du *et al.*, Sci. China-Phys. Mech. Astron. **59**, 657406 (2016).

[4] P. E. C. Ashby and J. P. Carbotte, Phys. Rev. B **87**, 245131 (2013).

[5] S. Kimura *et al.*, SCES 2019 Proc. (JPS Conf. Ser., in press).

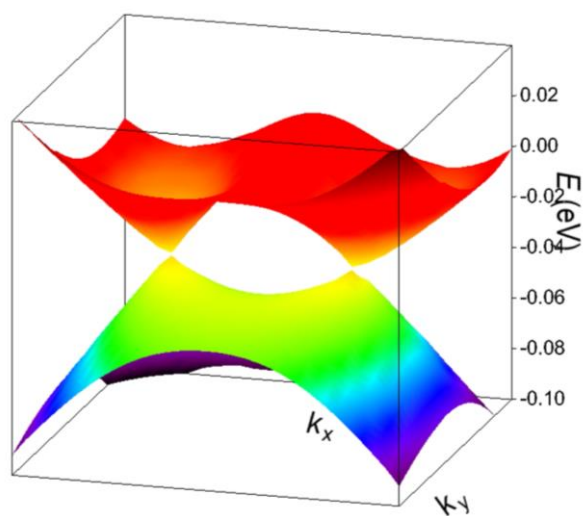


図1 LDA 計算で得られた、TaAs の2組あるワイル点の1つ ( $W_1$ ) の電子構造。

## 内殻光電子線二色性による強相関希土類 4f 軌道対称性の決定

関山明<sup>A,B</sup>, 藤原秀紀<sup>A,B</sup>, 濱本諭<sup>A,B</sup>, 中田惟奈<sup>B,C</sup>, 今田真<sup>B,C</sup>, 山神光平<sup>A,B\*</sup>, 田中新<sup>D</sup>,  
玉作賢治<sup>B</sup>, 矢橋牧名<sup>B</sup>, 石川哲也<sup>B</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学大学院基礎工学研究科, <sup>B</sup> 理化学研究所放射光科学研究センター,

<sup>C</sup> 立命館大学理工学部, <sup>D</sup> 広島大学大学院先端物質科学研究科,

<sup>\*</sup>(現所属)東京大学物性研究所

固体中に局在性の強い強相関  $d \cdot f$  軌道がフェルミ準位近傍にあると、実空間属性といえる原子軌道の性質が巨視的物性に強い影響を与えることがある。一例としては銅酸化物高温超伝導体における伝導の強い2次元性の原因となるキャリアの  $d_{x^2-y^2}$  対称性が挙げられる。この軌道対称性は局所的な結晶場分裂に起因するが、それを微視的かつ直接的に観測する手法は未だに極めて限定されている。この中で、我々は"角度分解"内殻光電子スペクトルの線二色性(LD)から強相関局在軌道対称性の直接的な決定が可能なることを発見[1]し、希土類 4f 電子系への適用に成功した [2-5]。この現象は、内殻光電子過程において特定の原子に局在する内殻電子を選択的に励起し生成される局在軌道と強相関軌道電子との電子ホール間相互作用の異方性に起因して実空間の強相関軌道対称性を反映した結果である[6]。

例として強相関立方晶 Pr 化合物の Pr 3d 内殻光電子分光の結果を図 1 に示す。単結晶[100]方向における s 偏光と p 偏光での光電子相対強度の差で定義する LD が、互いに異なる結晶場基底状態を反映していることが理論計算でも裏付けられており[3,5]、逆にこの実験から 4f 軌道対称性を決定できることが分かる。この現象は Pr のみならず Ce [4], Yb [1,2]イオンなど希土類イオンを含む化合物で広く見られ、軌道対称性決定に有効である。

[1] T. Mori *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 123702 (2014).

[2] Y. Kanai *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 073705 (2015).

[3] S. Hamamoto *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 123703 (2017).

[4] H. Aratani *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 121113(R) (2018).

[5] S. Hamamoto *et al.*, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 印刷中.

[6] A. Sekiyama *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 013706 (2019).

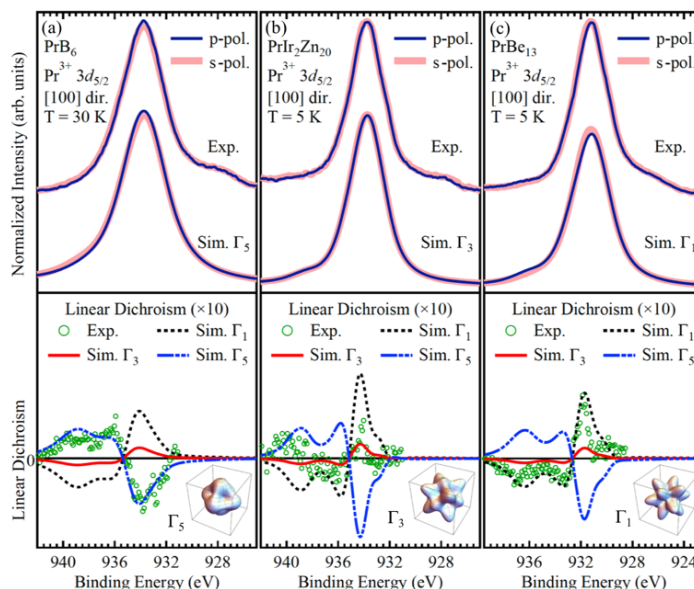


図1: (上部)強相関立方晶 Pr 化合物( $\text{PrB}_6$ ,  $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ ,  $\text{PrBe}_{13}$ )の[100]方向の Pr 3d 内殻光電子スペクトル. (下部)線二色性(LD)と対応する  $\text{Pr}^{3+}$  4f 電荷分布(左から  $\Gamma_5$ ,  $\Gamma_3$ ,  $\Gamma_1$  対称性)[3,5].

# Shastry-Sutherland 反強磁性体 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の磁場温度相図および有限勾配磁化プラトー

東大物性研, 京大院工<sup>A</sup>

秋元 昂, 小濱 芳允, 松田 康弘, Dong Chao, 陰山 洋<sup>A</sup>

Field-temperature phase diagram and finitely sloped magnetization plateaux of Shastry-Sutherland antiferromagnet  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$

ISSP the Univ. of Tokyo, Graduate School of Engineering, Kyoto Univ.<sup>A</sup>

S. Akimoto, Y. Kohama, Y. H. Matsuda, D. Chao, and H. Kageyama<sup>A</sup>

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  は Shastry-Sutherland 格子系と呼ばれる物質であり、 $\text{Cu}^{2+}(S = 1/2)$  ダイマーが  $\text{CuBO}_3$  面で互いに直交するため、2次元直交ダイマー系とも呼ばれる。このような特異な幾何学的配置により生じる量子フラストレーションの効果により、多彩な磁場誘起量子相が発現する[1]。

本研究において、我々は 52 T に至る強磁場下で  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の磁気熱量効果を測定した。試料空間は高真空中に保たれており、測定環境と試料との熱接触は小さい。さらに、パルス磁場の発生時間( $\sim 30$  ms)は測定環境と試料との温度交換の時間スケールと比較して十分短いので、我々の測定は準断熱過程と見なすことができる。断熱条件下では、試料のエントロピーは変化しないため、測定される試料の温度の磁場変化は等エントロピー曲線となる。

Fig. 1 は、磁気熱量効果測定による等エントロピー曲線。24 サイトまでの数値計算の結果 (Fig. 2) は磁気熱量効果の測定結果を概ね再現することがわかる。

また、磁化過程において  $1/2$  プラトー相が有限の傾きを持つことが知られている[1]が、その原因が Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によるものか、有限温度効果によるものかは解明されていない。本発表では磁化プラトー相の有限勾配の原因についても議論を行う。

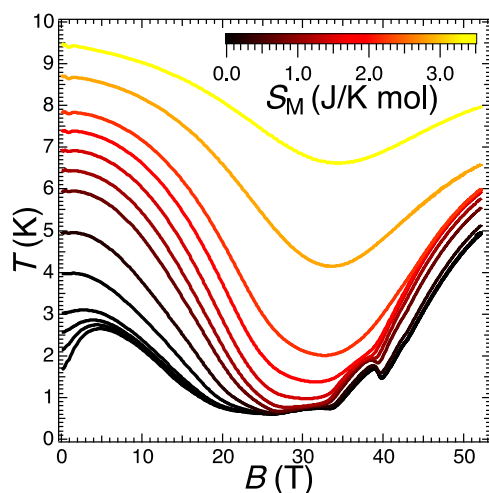


Fig.1 磁気熱量効果測定から求めた  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の磁気エントロピーのカラープロット。

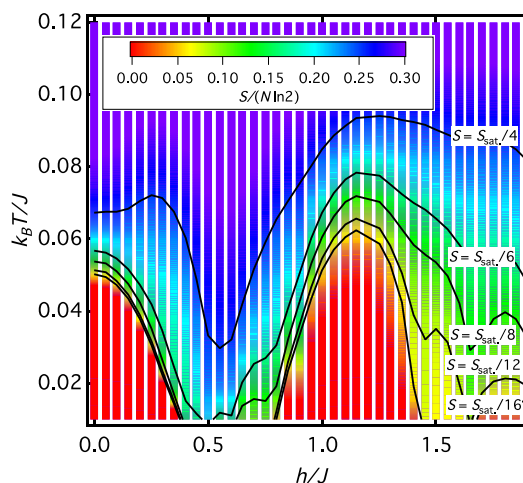


Fig.2 熱的純粋量子状態を用いた数値計算結果。実線は等エントロピー曲線。

[1] Y. H. Matsuda, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **111**, 137204 (2013).



## 磁化および磁歪測定による ブリージングパイロクロア磁性体の強磁場磁気相探索

巖 正輝<sup>A</sup>, 池田暁彦<sup>A</sup>, 岡本佳比古<sup>B</sup>, 森 政貴<sup>B</sup>, 竹中康司<sup>B</sup>, 青山和司<sup>C</sup>,

川村 光<sup>C</sup>, 中村大輔<sup>A</sup>, 松田康弘<sup>A</sup>, 嶽山正二郎<sup>A</sup>, 小濱芳允<sup>A</sup>

<sup>A</sup>東大物性研, <sup>B</sup>名大院理, <sup>C</sup>阪大院理

$\text{Cr}^{3+}$ イオン ( $S=3/2$ ) がパイロクロア格子を組んだクロムスピネル系は、強い磁氣的フラストレーションとスピン-格子結合を起源とした多彩な磁気現象を示す。特に、その磁化過程は強磁場下でロバストな  $1/2$  プラトー相を発現するのが特徴的であり、理論的観点からも関心が高い。最近では、大きさの異なる 2 種類の四面体  $\text{Cr}_4$  が交互に配列したブリージングパイロクロア系にも注目が集まっており、その中で様々な強さの磁氣的相互作用を有する物質が近年合成されている[1]。例えば、 $\text{LiInCr}_4\text{O}_8$  は大小の四面体内の相互作用  $J, J'$  がいずれも反強磁性の系 ( $J'/J \sim 0.1$ ) であり、 $\text{CuInCr}_4\text{S}_8$  は大きい四面体内の相互作用のみが強磁性の系 ( $J > 0, J' < 0$ ) である。

本研究では、 $\text{LiInCr}_4\text{O}_8$  と  $\text{CuInCr}_4\text{S}_8$  に対して一巻きコイル装置を用いて磁化及び磁歪測定を行なった。図 1 にその結果を示す。磁化データ(a)(c)から、両物質ともロバストな  $1/2$  プラトー相が観測され、低磁場側にも新奇相の存在を示唆する磁化異常が観測された[2]。磁歪データ(b)(d)も磁化とよく対応しており、 $1/2$  プラトー相への転移は急激な磁歪の増加を伴うことが確かめられた。本講演では、site phonon model に対する理論計算から得られる磁化過程や磁気相図とも比較しながら、両物質の磁場誘起相転移について議論する。

[1] Y. Okamoto, *et al.*, PRL **110**, 097203 (2013)., Y. Okamoto, *et al.*, JPSJ **87**, 034709 (2018).

[2] M. Gen, *et al.*, JMMM **473**, 387 (2019)., M. Gen, *et al.*, arXiv:1910.01315

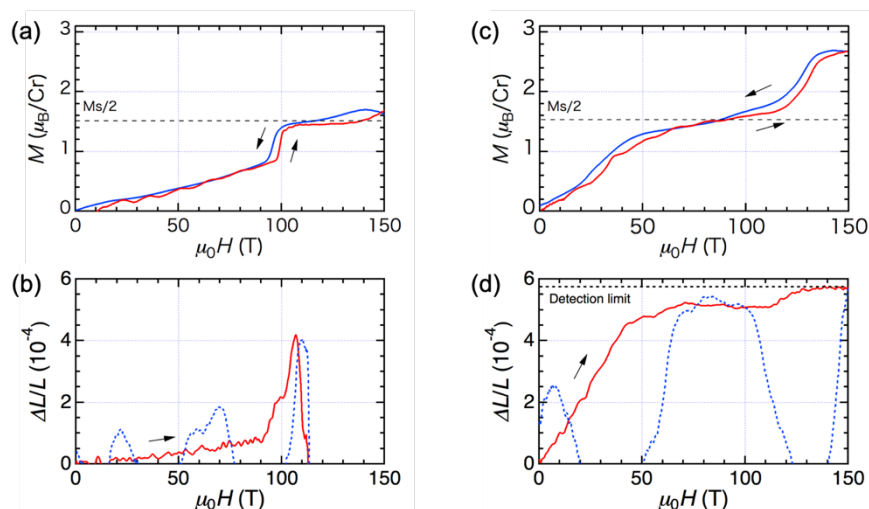


図 1 一巻きコイル装置を用いて測定した  $\text{LiInCr}_4\text{O}_8$  の磁化(a)と磁歪(b)、及び  $\text{CuInCr}_4\text{S}_8$  の磁化(c)と磁歪(d)の結果。測定温度はいずれも約 5 K で、試料は多結晶粉末である。



## 超強磁場 500 T に至る低次元量子スピン系の磁歪の研究

池田暁彦<sup>1</sup>, 古川俊輔<sup>2</sup>, Oleg Janson<sup>3</sup>, 石川孟<sup>1</sup>, 磯部正彦<sup>4</sup>, 中村大輔<sup>1</sup>, 松田康弘<sup>1</sup>  
 東京大学物性研究所<sup>1</sup>、慶応大理工<sup>2</sup>、IFW Dresden<sup>3</sup>、Max Planck Inst. Quantum Mat.<sup>4</sup>

量子スピン系の磁歪はスピン相関  $\langle S_i^z S_{i+1}^z \rangle + \langle S_i^x S_{i+1}^x \rangle + \langle S_i^y S_{i+1}^y \rangle$  と結合し、スピンの横相関を検出する興味深い物理量であり、スピンモーメントの期待値  $\langle S_i^z \rangle$  である磁化と比較研究する意義は大きい。実際にマグノンボーズ凝縮の秩序変数を検出した報告がある[1]。一方で、多量体スピン系では磁化に比例する磁歪が報告されている[2]。対象の系に応じて正しく解釈すれば、磁歪を有効活用できる。

歪んだカゴメ格子量子スピン系をなすボルボサイトは磁場誘起スピンネマティック相が発現するとされ着目されている。これは歪みで誘起された強磁性ボンドのために結合した2マグノンのボーズ凝縮状態であり、歪みに異常が現れる可能性がある。われわれはファイバブラッググレーティング (FBG) による磁歪計測装置[3]を用い、歪んだカゴメ格子量子スピン系ボルボサイトの縦磁歪を 50 T まで 2.2 K の低温で計測した[4]。格子は  $b$  軸方向に収縮し、 $\Delta L \sim M^{1/3}$  の非自明な依存性を示した。まず  $b$  軸方向への収縮の起源として、強磁性的超交換相互作用を担う Cu-O-Cu 鎖の結合角  $\theta$  が  $90^\circ$  に近づこうとするパンタグラフ的格子変形のためと解釈し、第一原理計算でも支持する結果を得た。 $\Delta L \sim M^{1/3}$  は、厳密対角化計算でも再現され、その起源としてこの系で見られるスピン密度波の干渉や上記の横スピン相関の影響を考えている。スピンネマティック相の観測にはより低温での磁歪計測が必要である。

$\text{CaV}_4\text{O}_9$  は 1/5 サイト欠損正方格子をなす二次元量子スピン系であり、4 量体を基本としたプラケットシングレット状態を基底状態に持つ。スピンギャップが 100 K 程度と大きく 20 年ほど研究が休止していた。われわれは開発したメガガウス用 FBG 磁歪計[5]を用いて、一巻きコイルで 200 T までの磁歪過程を 5 K で計測した。すると 80~90 T 程度でスピンギャップの閉じが観測され、さらに 180~210 T 程度にプラトーを観測した。さらに、電磁濃縮法で 500 T までの磁歪過程を観察すると、一巻きコイルの結果を再現し、さらに高磁場領域に複数のプラトーがあるという予備的結果を得た。発表では各相の量子状態を考察する。

### References

- [1] V.S. Zapf, et al., Phys. Rev. B, **77** (2008) 020404.
- [2] M. Jaime, et al., PNAS, **109** (2012) 12404
- [3] A. Ikeda, et al., Rev. Sci. Instrum, **89** (2018) 096103.
- [4] A. Ikeda, et al., Phys. Rev. B, **99** (2019) 140412(R).
- [5] A. Ikeda, et al., Rev. Sci. Instrum, **88** (2017) 083906.

## 新規スピン交替鎖における Lieb-Mattis プラトーの観測

山口博則<sup>A</sup>, 沖田大輝<sup>A</sup>, 岩崎義己<sup>A</sup>, 河野洋平<sup>A</sup>, 細越裕子<sup>A</sup>, 木田孝則<sup>B</sup>,

川上貴資<sup>C</sup>, 松尾晶<sup>D</sup>, 萩原政幸<sup>B</sup>

<sup>A</sup>大阪府立大学大学院理学系研究科, <sup>B</sup>大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター, <sup>C</sup>大阪大学大学院理学研究科, <sup>D</sup>東京大学物性研究所

有機ラジカル系における分子配列の多様性は、多種多様な量子スピンモデルの形成を可能にすると期待されている。我々は、非平面分子構造において非局在化した  $\pi$  電子スピン密度を持つフェルダジルラジカルに着目し、高品質のフェルダジルラジカル結晶の合成技術を確立してきた。最近では、フェルダジルラジカルをカチオン化して、アニオンと組み合わせることにより、フェルダジル系塩の合成にも試みてきた。カチオン化のパターンとアニオンの種類をスピンモデル設計に効果的に取り込むことで、これまでに報告例のなかった正方格子フラストレート系の実現を可能にしている[1,2]。さらに、磁性アニオンと組み合わせること、有機ラジカルと磁性アニオンとの間の磁気相関を新たなスピンモデル設計のパラメータとして導入することにも成功した[3,4]。

最近合成に成功した新規電荷移動塩 (4-Br-o-MePyV)FeCl<sub>4</sub> では、スピン-(1/2,5/2)交替鎖の形成が予想された。スピン交替鎖においては、Lieb-Mattis の定理と Oshikawa-Yamanaka-Affeck によるトポロジカルな議論から、磁化プラトーの出現が予想されている。ただし、モデル物質の不足と実験系のエネルギースケールの問題から、Lieb-Mattis プラトー（エネルギーギャップ）を実際に観測することはできていなかった。本系では、明瞭な 2/3 磁化プラトーを初めて観測することに成功した。さらに、基底状態に関する定量的な考察を進めたので、それらの結果を報告数する。

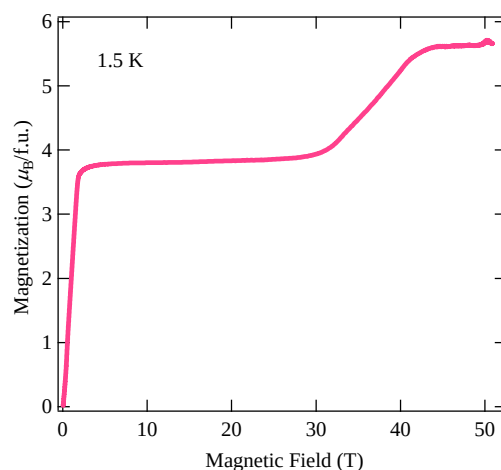


図1 : (4-Br-o-MePyV)FeCl<sub>4</sub>の磁化曲線 at 1.5 K.

- [1] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 201109(R) (2018).
- [2] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 094402 (2018).
- [3] Y. Iwasaki *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 085113 (2018)
- [4] Y. Iwasaki *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 224411 (2018)

## パルス強磁場中核磁気共鳴実験手法開発の現状と今後

井原慶彦<sup>A</sup>, 荒島洗樹<sup>A</sup>, 松井一樹<sup>B</sup>, 金道浩一<sup>B</sup>, 小濱芳允<sup>B</sup><sup>A</sup>北海道大学大学院理学研究院, <sup>B</sup>東京大学物性研究所

核磁気共鳴 (Nuclear magnetic resonance: NMR) 測定は、本来強磁場と相性の良い測定手法であり、印可磁場を強くすることで信号強度の増大、スペクトル分解能の向上、などの恩恵を受けてきた。ところが、非常に強い磁場を発生できるものの、磁場発生時間が短く、また常に磁場強度が時間変化するパルス磁場中での測定となると難易度が急激に上がるため、パルス磁場中ではつい最近まで NMR 測定の強みを活かしたミクロな物性測定は行われていなかった。一方で、量子磁性体や重い電子系物質などに対する多彩な電子状態の観測・解明に NMR 測定が果たしてきた役割は大きく、強磁場中に現れる興味深い物性についてもその起源を調べるためには、やはり NMR 測定による研究が重要である。そこで、我々は東大物性研で開発された準定常パルス磁場 (磁場の高速フィードバック制御により数ミリ秒の間磁場の時間変動を 100 ppm 程度まで抑制したパルス磁場) を用いたパルス磁場中 NMR 測定装置を開発してきた。準定常パルス磁場を用いることで、磁場の時間変動という大きな問題が解決され、短時間ではあるが定常磁場とそん色ない NMR 測定環境が実現する。これに加え、磁場の精密制御が可能になったことで、非常に高精度かつ再現性の高い NMR 測定装置を構築した。また、準定常パルス磁場中では一定磁場環境下における緩和現象を観測することが可能であるため、これまでパルス磁場中ではほぼ不可能とされていた核スピン格子緩和率( $1/T_1$ )測定にも成功した (図 1)。講演では、実際にブリージングカゴメ反強磁性帯について行った NMR 測定結果を紹介する。今後は、短い磁場発生時間中での測定データ密度を向上させるための NMR

パルス系列開発、およびロングパルスマグネットを用いることで測定可能時間を百ミリ秒オーダーまで拡張することを計画しているのでこれらの展望についても概説する。

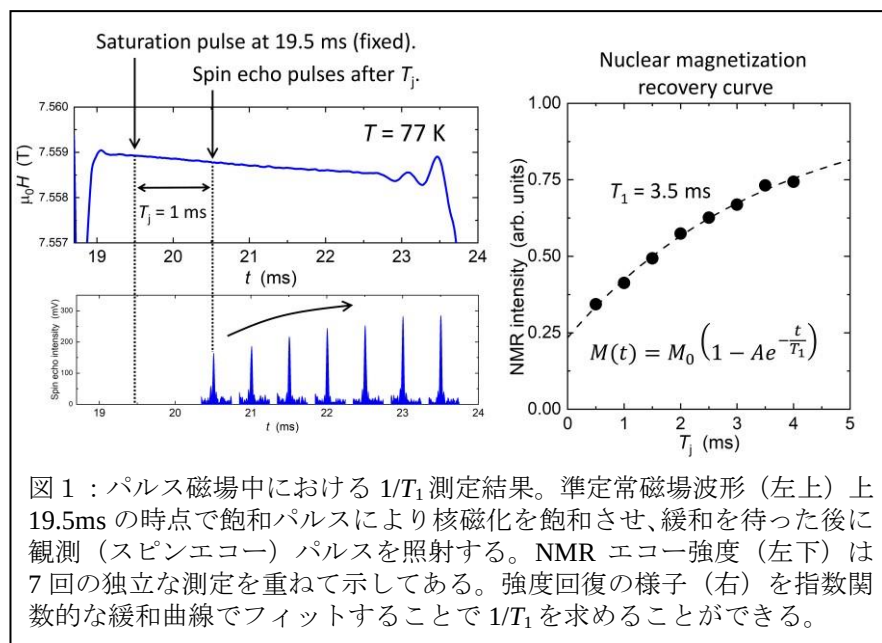


図 1 : パルス磁場中における  $1/T_1$  測定結果。準定常磁場波形 (左上) 上 19.5ms の時点で飽和パルスにより核磁化を飽和させ、緩和を待った後に観測 (スピンエコー) パルスを照射する。NMR エコー強度 (左下) は 7 回の独立な測定を重ねて示してある。強度回復の様子 (右) を指数関数的な緩和曲線でフィットすることで  $1/T_1$  を求めることができる。

## 高圧下強磁場 THz ESR の現状と今後の展望

櫻井敬博<sup>A</sup>, 奥藤涼介<sup>B</sup>, 安谷佳将<sup>B</sup>, 大久保晋<sup>C</sup>, 太田仁<sup>C</sup>

<sup>A</sup>神戸大学研究基盤センター, <sup>B</sup>神戸大学大学院理学研究科, <sup>C</sup>神戸大学分子フォトサイエンス研究センター

我々はこれまで、高圧下強磁場 THz ESR 装置の開発を行ってきた。最大の特徴は電磁波透過型のピストンシリンダー型圧力セルを用いているという点である。同セルは全ての内部部品が  $\text{ZrO}_2$  等のセラミクスで作製されており、これにより、電磁波に対する透過性と圧力に対する耐荷重性の両立を実現している。周波数範囲は 0.05 ~ 0.8 THz である。シリンダー内径は 5φ、外径は 28φのものと 23.5φのものを開発しており、最大発生圧力は前者は 2.5 GPa、後者は少なくとも 2 GPa の圧力発生は確認している。原理的に組み合わせる磁石に制限はなく、実際これまでに 10 T[1]、15 T[2]、25 T[3]の無冷媒型を含む超伝導磁石と組み合わせた高圧下強磁場 ESR 装置を開発してきた。現在、パルス強磁場との組み合わせによる装置の開発も進行中である。

現在取り組んでいる開発の一つに圧力領域の拡張がある。これまで、試料空間、即ち S/N 比の確保という観点から内径を 5φとしてきたが、試料によっては十分な余裕があるため内径を 4φとし、ひとまず発生圧力の確認を行っている。図は室温における荷重と低温での Sn の超伝導転移温度より見積もった圧力の関係を示したものである。超伝導転移温度は、図に示した様に

セットした Sn の交流磁化率を圧力セル外に設置したコイルにより測定した。内径 4φ、5φの発生圧力を同荷重で比べると断面積比 (1.56 倍) 程度の増大が確認できた。これは 5φでの最大荷重 (7 ton 程度) において、4φの圧力セルでは 3 GPa 程度の圧力は容易に達成可能であることを示唆する。本稿では、これから最新の開発状況と今後の展望について報告する。

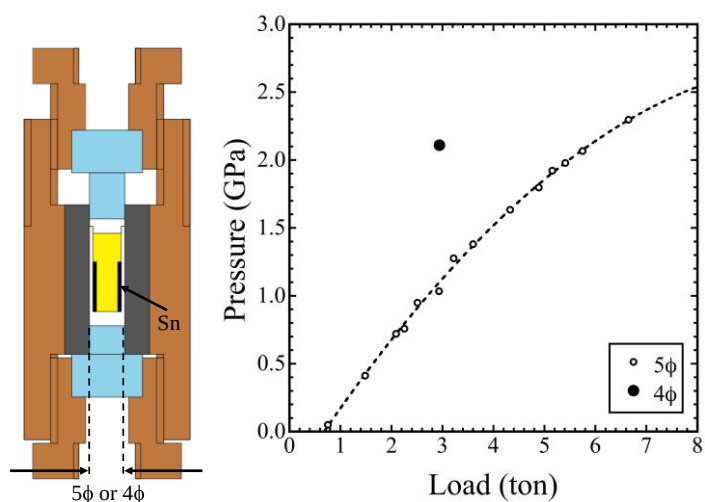


図. 高圧下 ESR 用圧力セル (左) と室温における荷重と低温における発生圧力との関係 (右).

- [1] T. Sakurai *et al.*, J. Magn. Reson. **259** (2015) 108.
- [2] R. Okuto *et al.*, Appl. Magn. Reson. **50** (2019) 1059.
- [3] T. Sakurai *et al.*, J. Magn. Reson. **296** (2018) 1-4.

## 超低温・高周波領域における meanderline コイルを用いた

Si:P の  $^{31}\text{P}$ -DNP-NMR 測定石川裕也<sup>A</sup>, 藤井裕<sup>A</sup>, 小泉優太<sup>A</sup>, 大見謝恒宙<sup>A</sup>, 笈田智輝<sup>A</sup>,福田昭<sup>B</sup>, 小林英一<sup>C</sup>, 光藤誠太郎<sup>A</sup>, 菊池彦光<sup>C</sup><sup>A</sup> 福井大学遠赤外領域開発研究センター, <sup>B</sup> 兵庫医科大学物理, <sup>C</sup> 福井大学工学部

量子コンピュータモデルの候補デバイスである希薄リンドーブシリコン (Si:P) について、量子ビットとなる  $^{31}\text{P}$  核スピンダイナミクスを解明することがデバイス実現に向けた重要な課題である[1]。我々は超低温・高磁場領域における電子・核二重共鳴 (ENDOR) 法や動的核偏極 (DNP) - NMR 法を用いて、核スピンが希薄な系における核スピンの振る舞いを検出することを目指し、ミリ波帯 ESR/NMR 二重磁気共鳴 (DoMR) 装置の開発を行っている。球面ミラーと平面ミラー対で構成される Fabry-Pérot 型共振器を用い、平面側上部に  $5\text{ }\mu\text{m}$  の膜厚のカプトンフィルム上に膜厚  $160\text{ nm}$  の金薄膜を施したミラーを製作し、skin depth の違いを用いた共振器を開発した。膜厚  $0.16\text{ }\mu\text{m}$  の金薄膜において、skin depth の違いによりミリ波は反射し、且つラジオ波はほとんど透過する。金薄膜の直下に、NMR 励起・検出のために meanderline と呼ばれる蛇型の矩形コイルを開発し設置した。この meanderline により共振器内のミリ波共振モードを乱すことなく、RF コイルを試料に近づけることが可能となった。このとき RF 磁場強度は不均一であるが、平板状の薄い試料に対して高感度に NMR 信号を検出する事が可能である[2]。

今回、我々は DNP により 90%以上核偏極した状態に対し、ENDOR を行い  $139.02\text{ MHz}$  の  $^{31}\text{P}$ -NMR 周波数を得た。図に  $220\text{ mK}$  における ENDOR の測定結果を示す。ここで得られた  $^{31}\text{P}$  核の NMR 周波数に対し NMR を行った結果等の詳細をあわせて報告する。

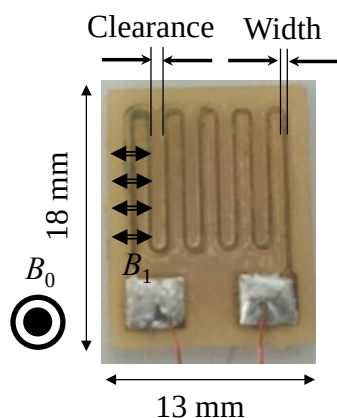
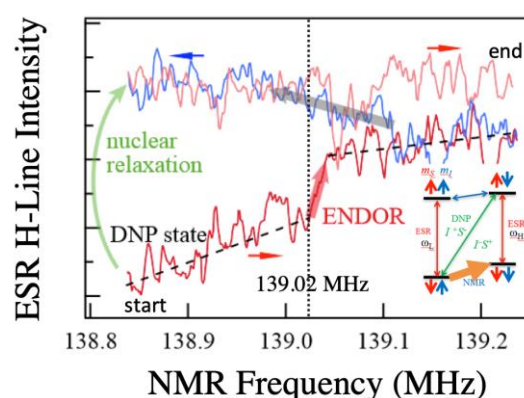


図 1. 開発した Meanderline コイル。

図 2.  $220\text{ mK}$  における Si:P 中の  $^{31}\text{P}$  核の ENDOR 測定結果。内挿図はエネルギーダイアグラム。[1] B.E. Kane, Nature **393**, 133 (1998).

[2] 石川ら: 2019 年秋季大会 10aPS-69 (2019).



## ワイル点を 1 つまたは 2 つ囲む系のランダウ準位の研究

駒田盛是<sup>A</sup>, 村川寛<sup>A</sup>, M. S. Bahramy<sup>B,C</sup>, 木田孝則<sup>D</sup>, 横井滉平<sup>A</sup>,

鳴海康雄<sup>D</sup>, 萩原政幸<sup>D</sup>, 酒井英明<sup>A,E</sup>, 花咲徳亮<sup>A</sup>

<sup>A</sup>大阪大学大学院理学研究科物理学専攻, <sup>B</sup>東京大学大学院工学系研究科,

<sup>C</sup>理化学研究所創発物性科学研究センター,

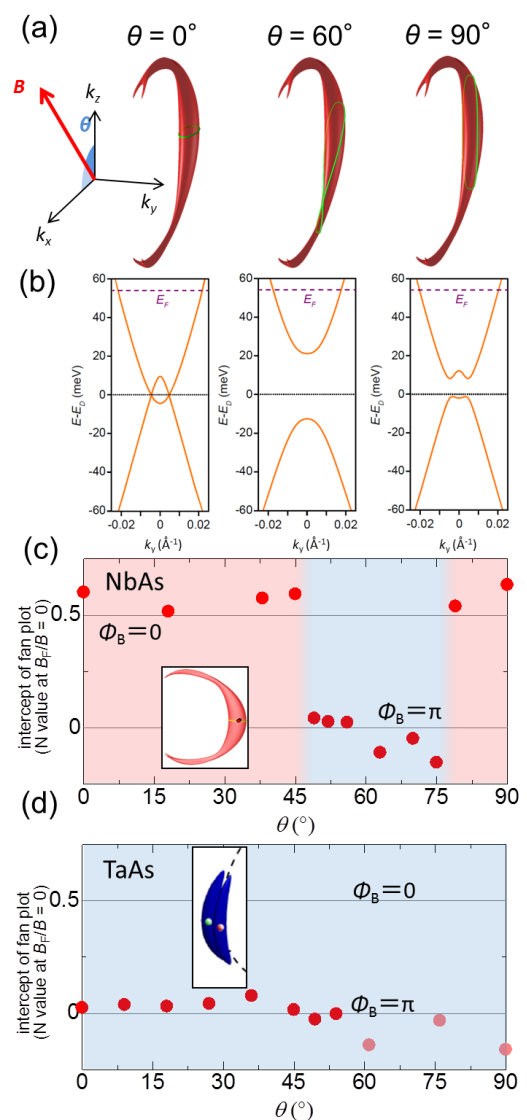
<sup>D</sup>大阪大学大学院理学研究科付属先端強磁場科学研究センター,

<sup>E</sup>科学技術振興機構さきがけ

ワイル半金属 NbAs は、カイラリティの対をなす 2 つのワイル点が異方的なフェルミ面内に共に存在する[1]。そのため、磁場方位に依存して極値断面積を与えるサイクロトロン軌道と 2 つのワイル点の位置関係が複雑に変化する。これに伴うランダウ準位の変化を調べるため、我々は NbAs における量子振動の位相の磁場方位依存性を詳しく調べ、その結果  $49^\circ \sim 75^\circ$  の領域においてファンプロットの切片が非自明な値 (位相項  $\pi$ ) へと不連続に変化することを発見した。また、理論計算により、位相が  $\pi$  となる  $60^\circ$  の場合においてワイル点ペアを区別するバンドのダブルミニマム構造が消失する結果を得た。

一方、同様の結晶構造を持つ TaAs はワイル点を 1 つだけ囲む異方的なフェルミ面を有している[1]。このことから、TaAs においては磁場方位によらず常にシングルミニマム構造を保持すると考えられ、良い比較対象となると考えられる。我々は TaAs においても同様に実験を行いファンプロットの切片を調べた結果、NbAs の時とは異なり、広い磁場方位において切片が変化しない (位相項が常に  $\pi$  である) 結果を得た。これらの結果はワイル点ペアを区別するダブルミニマム構造の消失に伴って非自明なランダウ準位が形成されていることを示唆するものである。

[1]C. C. Lee *et al.*, PRB **92**, 235104 (2015).



(a)NbAs のフェルミ面と極値軌道、(b)軌道面上のバンド構造。(c)NbAs、(d)TaAs の量子振動の位相の磁場方位依存性。



## 極性磁性半導体におけるバンド変調由来の巨大正磁気抵抗効果

石渡晋太郎<sup>A,B</sup>, 秋葉智起<sup>B</sup>, 高橋英史<sup>A,B</sup>, 三宅厚志<sup>C</sup>, 秋葉和人<sup>C</sup>, 徳永将史<sup>C</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学大学院基礎工学研究科, <sup>B</sup> 東京大学大学院工学系研究科,

<sup>C</sup> 東京大学物性研究所

Non-centrosymmetric materials have been the subject of recent extensive studies for its interesting electronic transport properties such as a bulk rectification effect [1] and exotic superconductivity. The key mechanism of these properties is dominated by a spin orbit interaction (SOI). In 2-dimensional (2D) polar systems, SOI leads to Rashba-type spin splitting, which is potentially useful for spintronics. On the other hand, in the case of magnetic semiconductors, the coupling between localized spins and conduction electrons yields fruitful magneto-transport properties.

To search for novel magneto-transport properties induced by Rashba-type SOI and s-d interaction, we have focused on a polar magnetic semiconductor AgCrSe<sub>2</sub>. AgCrSe<sub>2</sub> has polar space group (*R3m*) and localized spins ( $S = 3/2$ ) at Cr<sup>3+</sup> ions. AgCrSe<sub>2</sub> crystalizes in layered structure, presumably forming 2D electronic structure.

In this study, resistivity and magnetization of a single-crystalline sample of AgCrSe<sub>2</sub> were measured under pulsed high-magnetic fields for longitudinal and transverse field configurations.

As shown in Fig.1, a giant positive MR is observed, which is apparently coupled with the increase of magnetization. The point to be noted here is that the large positive MR is observed even for the longitudinal field configuration which is free from the orbital motion. We discuss the origin of the giant positive MR in terms of the strong s-d interaction affecting on the band dispersion with Rashba-type spin splitting.

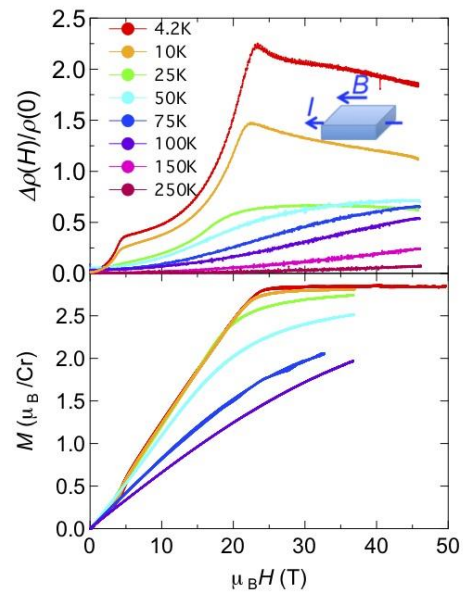


Figure 1: Magnetic field dependence of (a) magnetoresistance with an external field parallel to the electric current and (b) magnetization.

\*This work was supported by PRESTO, JST (Grants No. JPMJPR1412), Grant-in-Aid for Scientific Research A (Grant No. 17H01195), and the Asahi Glass Foundation.

[1] T.Ideue. et al. Nat. Phys. **13** 578 (2017).

近藤半導体  $\text{SmB}_6$ ,  $\text{FeSi}$  における磁場誘起半導体-金属転移

中村大輔<sup>A</sup>, 三宅厚志<sup>A</sup>, 松浦航<sup>B</sup>, 中山裕之<sup>B</sup>, 山田貴大<sup>B</sup>, 徳永将史<sup>A</sup>, 池田暁彦<sup>A</sup>, 松田康弘<sup>A</sup>, 伊賀文俊<sup>B</sup>, 嶽山正二郎<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 東京大学物性研究所, <sup>B</sup> 茨城大院理工

近藤半導体は伝導電子と局在スピンの相互作用によって、低温で電子軌道の混成が生じてエネルギー幅の狭いバンドギャップが生じる物質群として知られている。具体的には  $\text{SmB}_6$  や  $\text{FeSi}$  といった物質群が知られており、高温での常磁性金属的な性質が低温で非磁性半導体に変化する。電気伝導特性が移り変わる温度は、 $\text{FeSi}$  では 300K 付近、 $\text{SmB}_6$  では、50 K 付近である。一般にナローギャップ半導体では、強磁場を印加するとスピンゼーマン効果によって電子スピンのゼーマン分裂エネルギーがバンドギャップエネルギーと同程度になり、磁化の急激な変化(メタマグ転移)とともに磁場誘起の絶縁体-金属転移が生じることが期待される。

$\text{FeSi}$  では数百テスラの超強磁場が必要であることが理論的に提唱され[1]、爆縮法による破壊型マグネットを使った実験によって 400 テスラ付近における電気抵抗の異常が観測されている[2]。理論的には 700T 程度の磁場において 2 段階目のメタマグ転移が生じることが予言されているため[1]、物性研究所の所有する破壊型超強磁場がこの物質の強磁場特性を調べるのに必須である。

$\text{SmB}_6$  では電子軌道の混成とともに f 電子の価数揺動[3]や、トポロジカルな表面状態[4]が関連していることが示唆され、注目が集まっている。爆縮法によって発生された 140 T までの超強磁場を用いた電気抵抗測定では、90 T 付近で電気抵抗が極小値を取った後に再び増大するようなふるまいが報告されている[5]。しかし、絶縁体-金属転移後に再び抵抗が増大するのは、単純なバンド描像からでは説明できない。

これらの近藤半導体の強磁場特性について詳細に調べるために、一巻きコイル法および電磁濃縮法といった破壊型マグネットにより発生した超強磁場で、数百 MHz の高周波信号を用いた非接触電気伝導測定[6]を行った。それぞれの物質において磁場誘起の半導体-金属転移を示唆する電気抵抗の異常が観測され、それらの結果を報告する。

[1] H. Yamada *et al.*, J. Phys. Condens. Matter 11, L309 (1999).

[2] Y. B. Kudasov *et al.*, J. Exp. Theor. Phys. 89, 960 (1999).

[3] Y. Utsumi *et al.*, Phys. Rev. B 96, 155130 (2017).

[4] D. J. Kim *et al.*, Sci. Rep. 3, 3150 (2013).

[5] J. C. Cooley *et al.*, J. Supercond. 12, 171 (1999).

[6] D. Nakamura *et al.*, Rev. Sci. Instr. 89, 095106 (2018).

## SmB<sub>6</sub>/SrB<sub>6</sub> 人工超格子の強磁場下磁気抵抗測定

宋戸寛明<sup>A,B</sup>, 幸塚祐哉<sup>A</sup>, 田原大夢<sup>C</sup>, 鳴海康雄<sup>C</sup>, 木田孝則<sup>C</sup>,

萩原政幸<sup>C</sup>, 戸川欣彦<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 大阪府立大学大学院工学研究科, <sup>B</sup> 大阪府立大学 NanoSquare 拠点研究所, <sup>C</sup> 大阪大学  
大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター

MB<sub>6</sub> は硼素からなる正八面体を中心に位置した単純立方晶の結晶構造を持つ化合物群であり, 金属元素  $M$  にはアルカリ土類金属, 希土類やアクチノイドなど多様な原子が入ることが知られている. この化合物群に属する SmB<sub>6</sub> は近藤絶縁体として古くから知られており, その電気抵抗率は降温と共に半導体的に増大する[1]. しかしながら, 3 K 以下の低温ではその値が一定値を示すことが知られており, その起源をめぐって様々な議論が行われてきた. 近年, 理論的に3次元トポロジカル絶縁体になっている可能性が指摘され[2], 様々な実験的検証も試みられている. 我々は新たなアプローチとして, 原子層レベルで膜厚のコントロールが可能な薄膜試料の作製を行った. SmB<sub>6</sub> 層が十分に薄くなれば, 表面状態間の相互作用でディラックコーンにギャップが開き, 電気抵抗率は絶縁体的になることが期待される[3]. 我々は SmB<sub>6</sub> の膜厚に依存する電気抵抗率の変化を調べるため, SmB<sub>6</sub> が  $m$  層, SrB<sub>6</sub> が 7 層積層した SmB<sub>6</sub>( $m$ )/SrB<sub>6</sub>(7)人工超格子を, 分子線エピタキシー(MBE)法を用いて Si(100)基板上に製膜した. SmB<sub>6</sub> と同じ結晶構造を持つ SrB<sub>6</sub> はバンド絶縁体であることが知られており[4], 超格子に用いることで SmB<sub>6</sub>/SrB<sub>6</sub> 界面に SmB<sub>6</sub> の表面状態を実現することが可能となる.

作製した超格子の基板垂直方向の X 線回折では SmB<sub>6</sub>/SrB<sub>6</sub> の  $c$  軸配向性が確認できた. しかし(110)反射もわずかに見られた. また超格子構造由来のサテライトピークも確認できた. 基板面内での X 線回折からは, SmB<sub>6</sub>/SrB<sub>6</sub>[100]と Si[110]が揃ったエピタキシャル成長をしている領域が主として存在していることが確認できた. しかしながら SmB<sub>6</sub>/SrB<sub>6</sub>[110]と Si[110]が揃った成分もわずかに混入している. 電気抵抗率測定から, SmB<sub>6</sub>(5)/SrB<sub>6</sub>(7)および SmB<sub>6</sub>(4)/SrB<sub>6</sub>(7)では, バルク単結晶と定性的に同様な, 降温に伴う絶縁体的な上昇と極低温での飽和傾向が観測された. これに対し SmB<sub>6</sub>(3)/SrB<sub>6</sub>(7)では, 極低温で飽和せず, 絶縁体的な抵抗の上昇がみられた. これはディラックコーンにギャップが開いた場合の振る舞いと一致する. また, SmB<sub>6</sub>(3)/SrB<sub>6</sub>(7)の横磁気抵抗は超格子の積層方向と積層に垂直な方向で異方性を示し, 積層方向がより大きな負の磁気抵抗を示した.

[1] A. Menth, *et al.*, PRL **22**, 295 (1969).

[2] T. Takimoto, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 123710 (2011).

[3] A. A. Taskin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 066803 (2012).

[4] Y. Kato *et al.*, J. Crystal Growth **312**, 378 (2010).

## マルテンサイト変態における時間依存性のパルス磁場による検出

## Time-dependent detection of pulsed magnetic field in martensitic transformation

田中順也<sup>1</sup>, 田中雅也<sup>1</sup>, 福田隆<sup>2</sup>, 掛下知行<sup>3</sup>, 鳴海康雄<sup>4</sup>, 萩原政幸<sup>4</sup><sup>1</sup>阪大・工(院), <sup>2</sup>阪大・工, <sup>3</sup>福井工大, <sup>4</sup>阪大・先端強磁場

【緒言】マルテンサイト変態はカインेटイクスの観点から時間に依存しない非等温変態と時間に依存する等温変態に分類されてきたが、近年、非等温変態を示すと考えられてきた多くの合金において、等温変態の挙動が確認されている。変態の時間依存性の中でも、特に潜伏時間は核生成と関連しており興味深い。マルテンサイト変態に必要な潜伏時間についてのこれまでの研究は、潜伏時間が1秒以上についてのものがほとんどであり、1秒以下の潜伏時間に関する知見は、ほとんど知られていない。そこで、本研究では磁場掃引速度が大きなパルス磁場を用いることで、定常磁場では測定することができない短い潜伏時間の検出を行うことを目指した。

【実験方法】本研究で用いた試料は Fe-24.7Ni-3.7Mn(at%)合金である。マルテンサイト相の磁化は母相の磁化より大きいため、磁場によりマルテンサイト変態を誘起させることができる。誘導溶解と熱間圧延により厚さ 0.75 mm の圧延版を作製した。この圧延版より、5.0 mm×1.5 mm×0.30 mm の試験片を切り出した。この試料は 2 K/min の冷却速度で 5K まで冷却しても明瞭なマルテンサイト変態点を持たない。しかし、9 T の磁場下において等温保持すると、140K 付近をノーズ温度とする等温変態を示す。試料を液体窒素に直接入れることにより 77K まで急冷したのち、パルス磁場を印加して磁化を測定した。

【結果】Fe-24.7Ni-3.7Mn(at%)合金に、最大磁場が 25.8T、パルス幅約 15 ms のパルス磁場を試料に印加すると、16.53T でマルテンサイト変態にともなう磁化の急激な上昇が見られた(図1)。同様の測定を計4回行くと、その臨界磁場は試料ごとに多少ばらつきがあり 15 T から 17 T の範囲であった。つぎに、最大磁場を 10 T 付近から約 0.5T ずつ上げたパルス磁場をマルテンサイト変態が発生するまで試料に印加するという実験を行った。最大磁場が 13.47 T 以下の場合にはマルテンサイト変態が発生しなかったが、最大磁場が 14.24 T の時にマルテンサイト変態による磁化の急激な上昇が発生した。しかし、変態が起きたのは磁場が最大値をとってから、50  $\mu$ s 後であった(図2, 図3)。このことより、この変態には少なくとも 50  $\mu$ s の潜伏時間が必要であると考えることができる。この時間はマルテンサイトが成長するには十分すぎる時間であると考えられる。(マルテンサイトが音速で成長するならば、50  $\mu$ s の間には 15 cm 程度成長できる。) この時間は核が生成するのに必要な時間と考えられる。

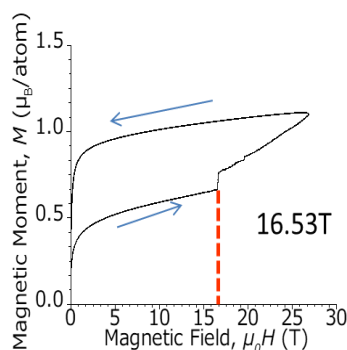


図1 最大磁場 25.8T の  
 $M$ - $H$  曲線

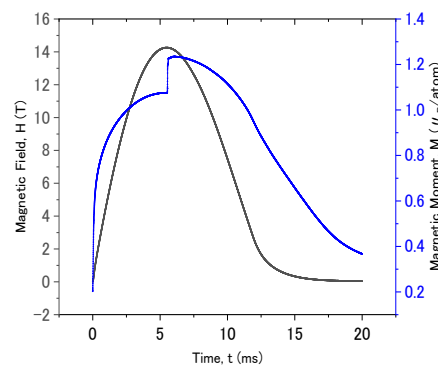


図2 最大磁場 14.24T 印加時の  
磁場と磁化の時間変化

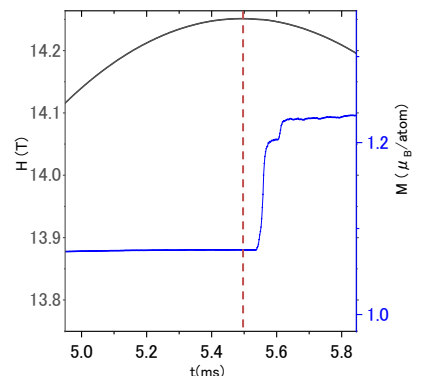


図3 図2の拡大図

## イオンゲルゲートを用い電荷制御された

### 二層グラフェンのサイクロトロン共鳴

竹端寛治<sup>A</sup>, 今中康貴<sup>A</sup>, 金子智昭<sup>A</sup>, 関根佳明<sup>B</sup>, 高村真琴<sup>B</sup>, 日比野浩樹<sup>C</sup>

<sup>A</sup>物質・材料研究機構, <sup>B</sup>NTT 物性基礎研, <sup>C</sup>関西学院大学

サイクロトロン共鳴(CR)測定はフェルミ準位近傍における近接ランダウ準備間の光学遷移を観測することから、フェルミ準位を幅広く変化させながら CR 測定を行うことで有効質量や移動度などの電子状態に関する知見を得ることが出来る。イオンゲルゲートは試料表面に対し高濃度電荷制御が可能であり、またスピノコートで均質に薄く塗布しても機能することから光学測定にも適している。ゲル状であるためイオン液体に比べ扱い易い。我々はイオンゲルゲートを用いフェルミ準位を幅広い範囲で制御しながら CR 測定を行う技術を開発し、SiC 上成長二層グラフェンに関して図 1 のようにフェルミ準位を変化させながら CR 測定を行った。その結果、負のゲート電圧を印加することにより価電子帯の CR 吸収に加え、電荷中性点より約 0.4 eV 離れた上部バンドの CR 吸収が高エネルギー側に新たに観測された。解析の結果、その CR 吸収は上部バンドの最低次ランダウ準位間遷移に依るものと同定され、CR エネルギーの磁場依存性は理論計算[1]と定量的にもよく合った。また、二層グラフェンのランダウ準位は磁場およびランダウ指数に線形ではないが高濃度電荷状態でフェルミ準位一定の条件下ではサイクロトロン共鳴条件は

近似的に古典的な共鳴条件  $\hbar\omega_c \approx eB/m^*$  に近づく [2] ことから有効質量が得られる(図 2 参照)。見積もられた有効質量はフェルミ準位に対し系統的に変化し、理論計算 [3] と良く合致した。

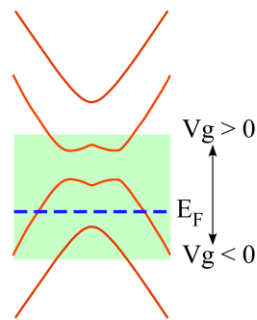


図 1 二層グラフェンのバンド構造

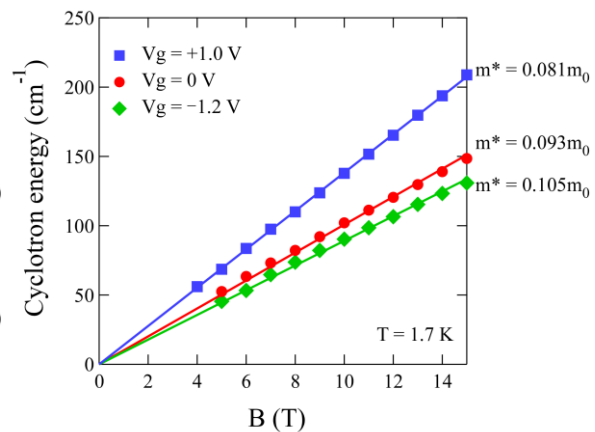


図 2 サイクロトロンエネルギーの磁場依存性

#### References

- [1] M. Koshino and T. Ando, Phys. Rev. B **81**, 195431 (2010).
- [2] E. McCann *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 086805 (2006).
- [3] T. Ando and M. Koshino, JPSJ **78**, 034709 (2009).

## 半導体二次元電子系におけるテラヘルツサイクロトロン共鳴

今中康貴<sup>A,B</sup>, D. Kindole<sup>A,B</sup>, 竹端寛治<sup>A</sup>

<sup>A</sup>物質・材料研究機構, <sup>B</sup>北海道大学大学院

テラヘルツ波、ミリ波やサブミリ波領域の分光研究がこれまで強磁場物性研究に果たしてきた役割は大きく、特に光学（電磁波）的で非接触な手法であることから強磁場下での厳しい実験環境との相性も良く、半導体二次元電子系をはじめとする様々な物質系でサイクロトロン共鳴（CR）の計測が行われてきた。近年ではグラフェンやトポロジカル物質の研究にも適用されるようになり、今後ますます重要になるものと思われる。

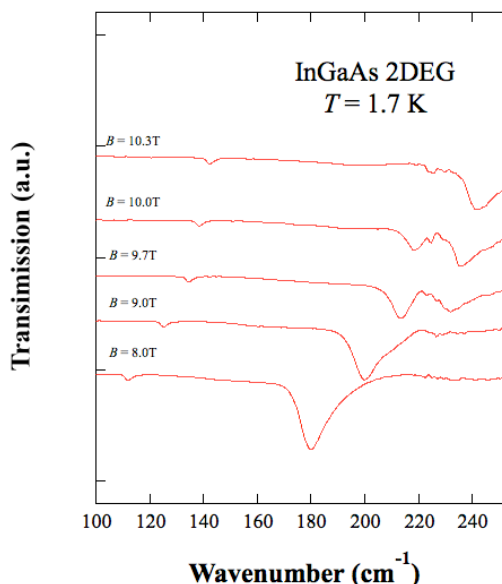
我々はこれまで様々な高移動度半導体二次元電子系（量子ホール系）の強磁場分光研究を展開してきたが、今回の研究会においては、Rashba 効果が顕著な III-V 族半導体 InGaAs の二次元電子系で最近得られたサイクロトロン共鳴の結果を中心に議論を行う。

InGaAs は III-V 族半導体の中でも Rashba 効果が非常に大きく、現在その相互作用定数や有効質量の定量的な評価が必要となっている。我々はこれまで CR 測定において有効質量を精密に決定しただけでなく、Rashba 効果によるゼロ磁場スピン分離に付随した非常に複雑な CR 吸収を観測するなど、他の半導体二次元電子系と比べても興味深いサイクロトロン共鳴の結果を得てきた[1,2]。ただしこうした複雑なスペクトルは 1 T 程度の磁場で観測されたため、これまでは主に弱磁場領域で測定を行ってきた。

今回さらに高いエネルギー領域（強磁場領域）で CR 測定を行ったところ、図に示すように 10T 近傍で CR が分裂していく様子を明瞭に観測することに成功した。

通常こうした分裂は縦光学フォノンエネルギー前後での共鳴ポーラロン効果によると理解されているが、実験データを詳細に解析すると異なるエネルギー位置で分裂が起きているため、InGaAs 系における CR 分裂の解釈について再検討が必要となっている。

当日は他の量子ホール系でのデータと比較を行い、異常サイクロトロン共鳴の起源について議論を行う。



[1] Y. Imanaka, T. Takamasu, S. Nitta and S. Yamada, J. Phys. 334, 012061-1-4 (2012).

[2] 今中康貴、高増正、新田峻介、山田省二、日本物理学会第 65 回年次大会 23aHW-5



## NiFe/IrO<sub>2</sub> 界面における電流-スピン流変換効率

森内直輝<sup>A</sup>, 福島健太<sup>A</sup>, 木田孝則<sup>B</sup>, 萩原政幸<sup>B</sup>, 上田浩平<sup>A</sup>, 松野丈夫<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学大学院理学研究科, <sup>B</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター

電子のスピン角運動量の流れであるスピン流を用いた磁化制御は、電子機器の省電力化をもたらすことからスピントロニクス重要な課題となっている。スピン流は強いスピン-軌道相互作用を有する非磁性金属に電流を流すことで誘起され（スピンホール効果）、このスピン流を隣接する磁性層に吸収させることで磁化制御が可能になる。これまで非磁性金属として Pt、Ta などの 5*d* 遷移金属が広く使われてきたが、磁化制御の効率はまだ十分ではなく、大きなスピン流生成が見込まれる新規材料の探索が求められている。本講演では、5*d* 遷移金属酸化物である Ir 酸化物 IrO<sub>2</sub> におけるスピン流物性について報告する。

本研究では Ir 酸化物の特異な電子構造に着目した。Ir 酸化物ではスピン-軌道相互作用が強い 5*d* 電子のみが伝導に寄与し、5*d* 電子に加えスピン-軌道相互作用を持たない 6*s* 電子も伝導に寄与する 5*d* 遷移金属とは、定性的に異なるスピン流物性が期待される。そこでスパッタ法を用いて強磁性体 Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> 合金/非磁性金属 IrO<sub>2</sub> ならびに参照試料 Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/Pt を作製し、ホール抵抗測定用にフォトリソグラフィーでデバイス加工を行った [Fig. 1]。スピン流が誘起する磁化の変化を評価するためにホール抵抗の二倍波 ( $R_H^{2\omega}$ ) の角度依存性を測定した。Fig. 2 は NiFe/IrO<sub>2</sub> の  $R_H^{2\omega}$  の角度依存性を示す。外部磁場  $H_{ex}$  が大きくなるにつれて  $R_H^{2\omega}$  が小さくなることから、これは  $H_{ex}$  がスピン流による磁化の変化を抑制していることを示唆している。当日は参照試料 NiFe/Pt の結果と併せて電流-スピン流変換効率やスピン流から生じる有効磁場に関して報告する。

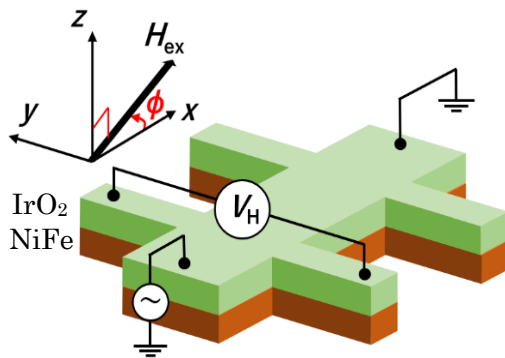


Fig. 1. Schematic illustration of the measurements setup for second harmonic Hall resistance measurement.

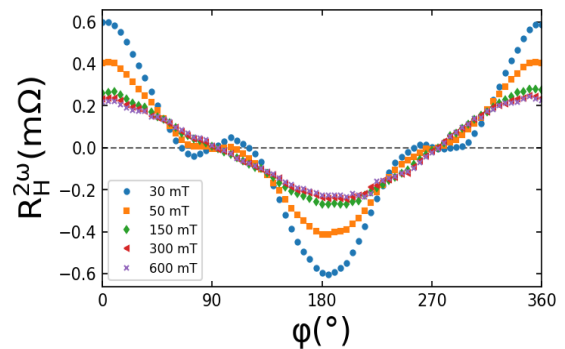


Fig.2. Second harmonic Hall resistance as a function of  $\phi$  with various external fields for Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>/IrO<sub>2</sub>.

## Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>/IrO<sub>2</sub> 界面におけるスピン流物性

福島 健太<sup>A</sup>, 森内 直輝<sup>A</sup>, 木田 孝則<sup>B</sup>, 萩原 政幸<sup>B</sup>, 上田 浩平<sup>A</sup>, 松野 丈夫<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学大学院理学研究科,

<sup>B</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター

近年、電子のスピン角運動量の流れであるスピン流を用いた磁化制御が注目されており、電流-スピン流変換効率が重要な課題となっている。その舞台となるのは強磁性絶縁体層とスピン-軌道相互作用の強い非磁性金属層とで構成される二層膜であり、前者に Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> (YIG)、後者に Pt を用いた組み合わせが広く研究されている。最近では 5d 遷移金属酸化物である IrO<sub>2</sub> を用いることで Pt と同程度以上のスピン流検出効率が得られることが報告されている [1]。しかしながら、スピン流誘起熱電変換では YIG/IrO<sub>2</sub> の熱起電力が YIG/Pt に比べ 68 倍小さいという報告がなされており [2]、さらなる界面の特性評価が必要である。本講演では YIG/IrO<sub>2</sub> 二層膜のスピンホール磁気抵抗効果 (SMR) を報告する。

SMR ではスピン-軌道相互作用の強い非磁性体に電流を流すことでスピン流を誘起するスピンホール効果とその逆現象である逆スピンホール効果を利用する。非磁性層 IrO<sub>2</sub> に電流を流すと、スピンホール効果により面直方向にスピン流が生じる。このスピン流は Fig. 1(a) のように磁性層の磁化と平行な場合には、界面での吸収が小さく非磁性層へ反射し、逆スピンホール効果によって再び電流へと変換される。一方、Fig. 1(b) のように磁性層の磁化とスピン流が直交する場合には、界面での吸収が大きくなり、電流の減少を通して IrO<sub>2</sub> の抵抗が増大する。そのため強磁性体の磁化を回転させると高抵抗状態と低抵抗状態が交互に現れ SMR のシグナルは  $\cos^2 \phi$  の関数となる。参照試料 YIG/Pt の角度依存磁気抵抗を Fig. 2 に示した。Si 基板上の多結晶 YIG/Pt であるにも関わらず、Gd<sub>3</sub>Ga<sub>5</sub>O<sub>12</sub> 基板上のエピタキシャルな YIG/Pt [3] と同程度の SMR が観測された。当日は、この YIG/Pt と同条件で製膜した YIG 膜を用いた YIG/IrO<sub>2</sub> の SMR について報告し、界面特性を議論する。

### 参考文献

- [1] K. Fujiwara *et al.*, Nat Commun. **4**, 2893 (2013).
- [2] Z. Qiu *et al.*, Appl. Phys. Express. **8**, 083001 (2015).
- [3] C. O. Avci *et al.*, Appl. Phys. Lett. **107**, 192405 (2015).

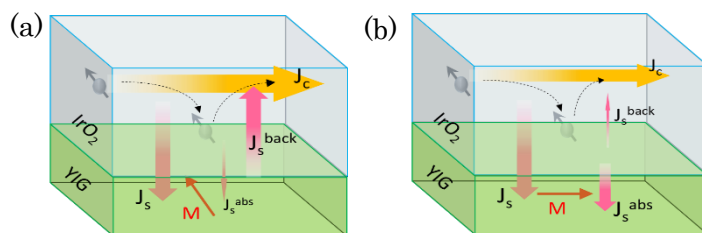


Fig. 1 Schematic illustrations of SMR. (a) Spin backflow when magnetization  $M$  is parallel to injected spin current and (b) spin absorption when  $M$  is orthogonal to injected spin current.

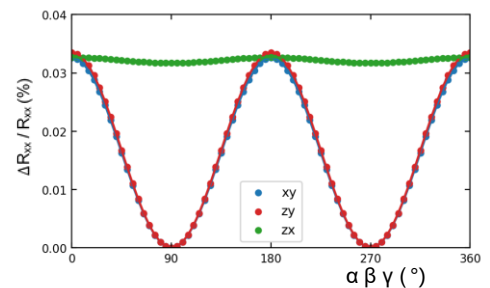


Fig. 2 Angular dependence of the magnetoresistance of YIG/Pt bilayers in the xy, zy, and zx planes.

## 結合ダイマー系の磁気強誘電に対する圧力・磁場効果

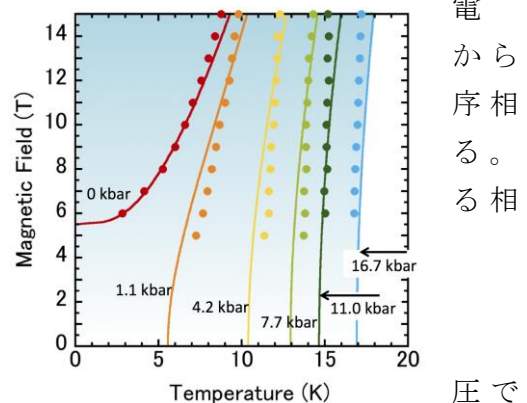
木村尚次郎<sup>A</sup>, 櫻井響介<sup>A</sup>, 淡路智<sup>A</sup>, 松本正茂<sup>B</sup>, 田中秀数<sup>C</sup>,

<sup>A</sup> 東北大学金属材料研究所, <sup>B</sup> 静岡大学理学部, <sup>C</sup> 東京工業大学理学院

2 つの  $\text{Cu}^{2+}$  のスピン  $S = 1/2$  がなす反強磁性スピンダイマーが結合して結晶格子を組む  $\text{TlCuCl}_3$  は、磁場誘起マグノンボース凝縮によって反強磁性磁気秩序するとともに強誘電を発現する[1]。この強誘電は、磁気秩序に伴ってダイマー上に発達するベクトルスピンカイラリティーの期待値  $\langle \mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j \rangle$  に起因している。 $\text{TlCuCl}_3$  の磁気秩序は、圧力の印加によって増強されより広い温度・磁場領域で現れることが知られている[2]。本研究では、 $\text{TlCuCl}_3$  の磁場中強誘電に対する圧力効果を  $\sim 21$  kbar の静水圧下での誘率・電気分極測定により調べた。図は、誘電率測定得られた温度磁場相図である。加圧に伴って磁気秩序相が広がる。図中の実線は、Landau 理論[3]から得られた次式による境界である。

$$F = Am^2 + Bm^4, (A = a_0(1 + (T/T_0)^\phi - (H/H_0) - (P/P_0)))$$

$A = 0$  の条件から相境界が得られるが、ここで、大気圧の臨界磁場と零磁場での臨界圧力の実験値  $H_0 = 5.5$  T、 $P_0 = 0.42$  kbar とあわせて  $T_0 = 5.0$  K、 $\phi = 3.0$  とすると図の様に実験結果をほぼ説明できる。この結果は、加圧による交換相互作用の変化によって、ダイマー性に由来した強い量子揺らぎを持つ大気圧下の状態から、揺らぎが抑制された古典的な三次元反強磁性体へとクロスオーバーしていくことを反映している。この加圧による量子揺らぎの抑制の効果は、磁場温度相図だけでなく分極の値や  $PE$  履歴にも現れる。加圧によって磁気秩序が増強されるにも関わらず、分極値は高压領域でむしろ減少する。これは、期待値  $\langle \mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j \rangle$  の値を増強するスピンの量子揺らぎの寄与が、圧力によって抑制されるためと考えられる。また、 $\text{TlCuCl}_3$  の電気分極の反転に要する電場は大気圧下では 30V/mm と極めて低い、この値は加圧とともに増大する。電気分極の反転には、反強磁性磁気ドメインを磁場の周りで  $180^\circ$  回転させる必要があるが、このときスピンが異方性エネルギーの高い方向を経由しなければならない。これに由来するポテンシャル障壁が反転電場を決めている。大気圧下での量子揺らぎによるスピン秩序モーメントの短縮によって低下していたポテンシャル障壁が、加圧によって増大することが反転電場の増大の原因となっていると考えられる。



- [1] S. Kimura *et al.*, Nat. Commun. **7** (2016) 12822. [2] K. Goto *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 3254.  
[3] M. Matsumoto and M. Sigrist, J. Phys. Soc. Jpn. **74** (2005) 2310.

## スピンドイマー系化合物 $\text{CoSeO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の強磁場 ESR 測定

船越風太<sup>A</sup>, 齋藤佑<sup>B</sup>, 原茂生<sup>B</sup>, 櫻井敬博<sup>B</sup>, 大久保晋<sup>C</sup>,  
太田仁<sup>C</sup>, 菊池彦光<sup>D</sup>, 藤井裕<sup>E</sup>

<sup>A</sup>神戸大学大学院理学研究科, <sup>B</sup>神戸大学研究基盤センター, <sup>C</sup>神戸大分子フォトセンター,

<sup>D</sup>福井大学大学院工学研究科, <sup>E</sup>福井大学遠赤外領域開発研究センター

$\text{CoSeO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  は  $\text{Co}^{2+}$  イオンが反強磁性スピンドイマーを形成し、各ダイマーが 3 次的に結合したクラスター反強磁性体である。各ダイマーは  $ab$  面内で平行に配列し、それが  $c$  軸方向に積層する結晶構造を取っている(図 1)[1]。スピンドイマー系に磁場を印加すると、磁化プラトーやマグノンのボーズ=アインシュタイン凝縮などの量子現象が期待される。この物質は比熱の測定により  $T_N=6.5\text{ K}$  で反強磁性転移する。しかし、強磁場磁化過程では磁場ヒステリシスを伴う多段の磁化ステップを示すことや、転移温度以下の低温領域の磁化率の振る舞いから、転移温度以下で複雑な磁気相が存在することが報告されている[2][3]。これらは古典、あるいは量子的な孤立ダイマーや単純な交換相互作用でダイマーがつながったモデルでは説明できていない。本研究ではミクロな観点からこの系の振る舞いについて調べるために、粉末試料のパルス強磁場 ESR 測定を行った。1.9 K~75 K の温度領域において、15 T までの磁場領域で Gunn 発振器と BWO を用いて 50 GHz~378 GHz の周波数領域で測定を行った。1.9 K における ESR 測定の周波数-磁場依存性を図 2 に示す。 $H_{C1}=6.5\text{ T}$  に磁気相転移に対応する周波数に依存しない臨界磁場共鳴が、また、飽和磁場に対応する  $H_S=9.6\text{ T}$  の臨界磁場共鳴が観測された他、複雑な磁気相に対応する複数の ESR モードが観測された。さらに、磁化測定には異常が見られなかった  $H_{C2}=1\text{ T}$  付近にも臨界磁場共鳴と思われる共鳴が観測された。講演では、これらのモードを提案されている磁場-温度相図と比較検討する。

[1] A. Larranaga *et al*, *Materials Research Bulletin* **40**, 781-793 (2005)

[2] Y Fujii *et al.*, *J. Phys.: Conf. Serie* **200**, 022009 (2010)

[3] 菊池彦光他、2019 年日本物理学会年会 14pS-PS-66

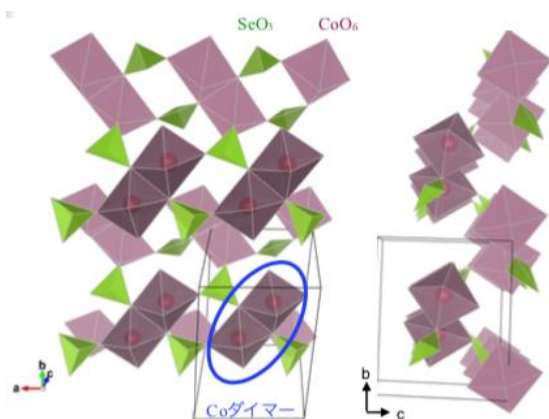


図 1  $\text{CoSeO}_3$  の結晶構造

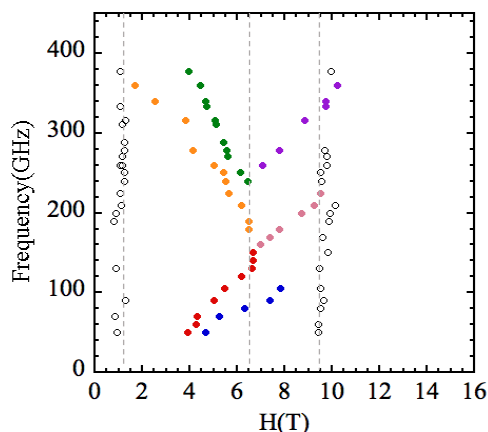


図 2 1.9 K における ESR 測定の周波数-磁場依存性

## フラストレート磁性体 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$ のプラトー相における磁気熱量効果

巖 正輝<sup>A</sup>, Dong Chao<sup>A</sup>, 諏訪秀磨<sup>B</sup>, 橘 信<sup>C</sup>, 野村肇宏<sup>A</sup>, 小濱芳允<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 東大物性研, <sup>B</sup> 東大理, <sup>C</sup> 物質・材料研究機構

$S=3/2$  の磁性を持つ  $\text{Cd}^{3+}$  イオンがパイロクロア格子を形成した磁性体  $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  は、強い磁氣的フラストレーションを有する代表的な 3 次元系物質である。本物質は、88 T で飽和磁化に到達し、28 ~ 58 T において非常にロバストな 1/2 プラトー相を発現することが知られている[1]。このプラトー相は、非破壊型パルスマグネットのみならず定常磁場でもアクセス可能なことから、 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  は強磁場科学の観点からも注目された物質であり、盛んに研究されてきた。

$\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の磁化過程は、スピン-格子結合を取り入れた理論でよく再現できる。理論では cubic 対称性の collinear な 3 up-1down の磁気構造が 1/2 プラトー相で実現することが示唆されており[2]、のちに行われた中性子散乱実験の結果とも整合する[3]。さらに、ESR[4]や超音波測定[5]によって、 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の磁場下における局所的な格子歪みや 1/2 プラトー相における構造安定性が確かめられた。また、最近注目された研究としては、1/2 プラトー相において負の熱膨張を示すことが挙げられる[6]。

本研究では、 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の 1/2 プラトー相における負の熱膨張の起源を明らかにするために、磁気熱量効果測定を 60 T までの強磁場領域で行なった。その結果、1/2 プラトー相への転移において、ヒステリシスを伴う温度上昇 (図 1) が観測された。本発表では、 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の磁場下におけるエントロピー変化等についての詳細な議論を行う。

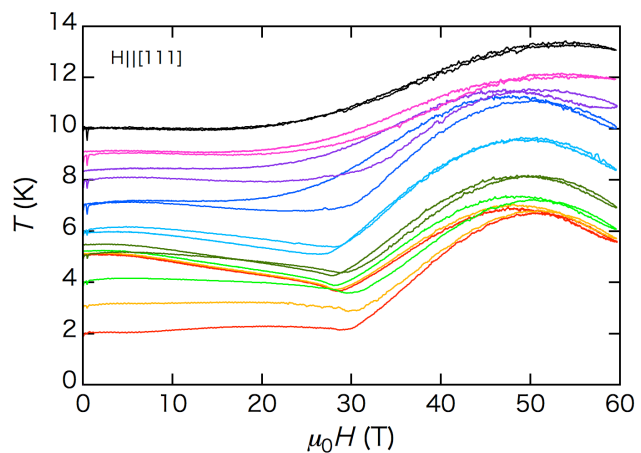


図 1  $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の磁気熱量効果

- [1] A. Miyata, *et al.*, PRB **87**, 214424 (2013).
- [2] K. Penc, *et al.*, PRL **93**, 197203 (2004)., D. Bergman, *et al.*, PRB **74**, 134409 (2006).
- [3] M. Matsuda, *et al.*, PRL **104**, 037201 (2010).
- [4] S. Kimura, *et al.*, PRB **92**, 144410 (2015).
- [5] S. Zherlitsyn *et al.*, PRB **91**, 060406(R) (2015).
- [6] L. Rossi, *et al.*, PRL **123**, 027205 (2019).



## 破壊型超強磁場における磁気光学測定を通じた

### フラストレート磁性体の研究

中村大輔<sup>A</sup>, 大熊隆太郎<sup>B</sup>, 山下知大<sup>A</sup>, 石川孟<sup>A</sup>, 廣井善二<sup>A</sup>, 嶽山正二郎<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 東京大学物性研究所, <sup>B</sup> 沖縄科学技術大学院大学

100 テスラ以上の破壊型マグネット(一卷きコイル法、電磁濃縮法など)を用いた物性測定には電気信号ケーブルへの電磁ノイズの重畳、マグネットの破壊に伴う衝撃波、直径数 mm という限られた磁場空間などという実験的制約があり、実現可能な実験手法は限られている。その中で、光学測定は電磁ノイズの影響を受けないために破壊型マグネットを使った物性研究との相性が良い。特に、磁性体においては適切な光学遷移に着目することで磁氣的性質の変化を調べることが可能である。その代表例であるファラデー回転測定は、磁場中試料を透過する直線偏光の回転角が磁場とともに変化する現象である。ファラデー回転角は物質の誘電率テンソルの非対角成分によって表されるため、近似的に磁化に比例する。この現象を利用して、光学的手法により間接的に磁性体の磁化過程を高感度に調べることが可能になる。特に、誘導法による電氣的磁化測定の信号強度が小さくなってしまふ、スピン量子数の小さい磁性イオンを有する物質において威力を発揮する。

$S=1/2$  の電子スピンのカゴメ格子を形成する時、量子スピン状態が基底状態として現れることが提唱され、磁化過程にはスピン結晶の対称性から飽和磁化の  $1/3$  に相当する  $1/3$  磁化プラトーが現れることが予測される。そのような物質の例として、ボルボサイトや Cd-カペラサイト、ハーバートスミサイトなどがある。これらは全て Cu イオン ( $S=1/2$ ) がカゴメ格子を形成している。我々は一巻きコイルを用いた超強磁場下におけるファラデー回転測定によって、ボルボサイトでは  $1/3$  磁化プラトーが非常に安定であること[1]、Cd-カペラサイトでは  $1/3$  磁化プラトーは明瞭でなくなるが、より高磁場でマグノンの結晶化を示唆する多段の磁化ステップ構造を取ることを発見した[2]。本講演では、最近一卷きコイル法や電磁濃縮法を用いて行われた、これらのフラストレート磁性体における磁気光学測定について紹介する。

[1] D. Nakamura *et al.*, Phys. Rev. B 98, 020404(R) (2018).

[2] R. Okuma, D. Nakamura *et al.*, Nat. Commun. 10, 1229 (2019).



## CaBaM<sub>4</sub>O<sub>7</sub> ( $M=(\text{Co}, \text{Fe})$ ) 単結晶の 磁場(電場)誘起電気分極(磁化)の極性依存性

白崎巧<sup>A</sup>, 遠藤颯<sup>A</sup>, 野田正亮<sup>A</sup>, 赤木暢<sup>B</sup>, 黒江晴彦<sup>A</sup>, 桑原英樹<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 上智大学理工学部機能創造理工学科

<sup>B</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター

対象物質系の CaBaM<sub>4</sub>O<sub>7</sub> の両エンド物質  $M=\text{Co}, \text{Fe}$  は、共に極性結晶の空間群(点群)である  $Pbn2_1(mm2)$  に分類され、MO<sub>4</sub>四面体が  $ab$  面内に整列し、 $c$  軸方向に積層しているため、室温で  $c$  軸方向に自発電気分極  $P_c$  を有している。また、フェリ磁性転移温度 (64 K (Co), 275 K (Fe)) で、その自発電気分極が大きく変化することが明らかになっている[1]。本研究では、両エンド物質と同じ極性結晶であり、結晶対称性が異なる空間群(点群)  $P6_3mc(6mm)$  を有する CaBaM<sub>4</sub>O<sub>7</sub> 定比固溶体  $M=(\text{Co}_{1-x}\text{Fe}_x)$   $x=1/4, 1/2, 3/4$  に着目した。今回、まず最初に CaBa(Co<sub>1/2</sub>Fe<sub>1/2</sub>)<sub>4</sub>O<sub>7</sub> 結晶の作製及び電気磁気測定を行い、両エンド物質との比較・検討を行った。

CaBa(Co<sub>1/2</sub>Fe<sub>1/2</sub>)<sub>4</sub>O<sub>7</sub> 単結晶は FZ 法により作製した。図 1 に 150 K における  $H \perp c$  及び  $H \parallel c$  の磁化の磁場依存性及び  $c$  軸方向の電気分極変化  $\Delta P_c$  の  $H \perp c$  及び  $H \parallel c$  の磁場依存性を示す。磁化はいずれの方向の磁場印加に対しても線形であり、また、 $\Delta P_c$  はほぼ変化を示さなかった。図 2 に  $H \perp c$  の各磁場における磁化の温度依存性を示す。160 K 付近の反強磁性相転移に起因するピークは磁場印加により系統的なシフトは見られず、磁場誘起電気分極変化が観測されなかった結果と矛盾しない。

[1] V. Caignaert et al., Phys. Rev. **B 88**, 174403 (2013) ; V. Kocsis et al., Phys. Rev. **B 93**, 014444 (2016).

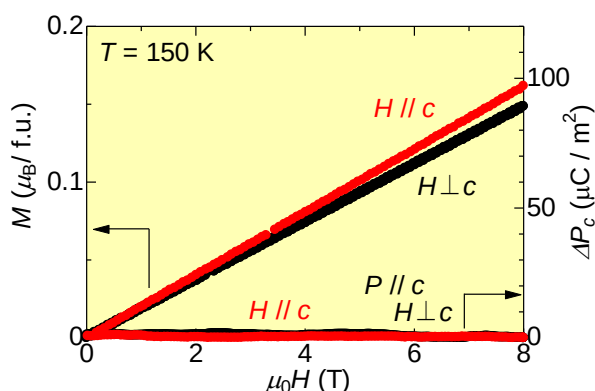


図 1. CaBa(Co<sub>1/2</sub>Fe<sub>1/2</sub>)<sub>4</sub>O<sub>7</sub> の 150 K における  
磁化及び  $\Delta P_c$  の磁場依存性

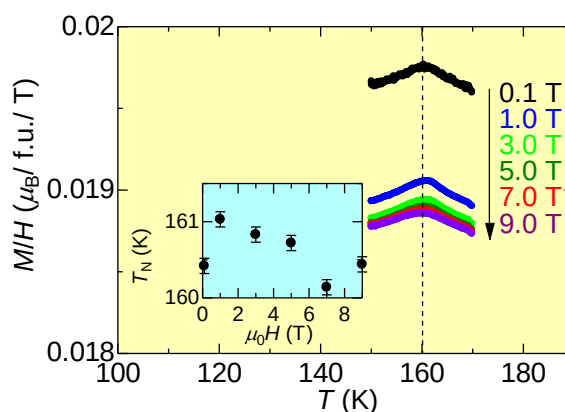


図 2. CaBa(Co<sub>1/2</sub>Fe<sub>1/2</sub>)<sub>4</sub>O<sub>7</sub> の各磁場における  
 $H \perp c$  に対する転移温度付近の磁化率の  
温度依存性

## 正四角台塔系 $\text{Pb}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$ の強磁場中磁気励起の偏光特性

水戸陵人<sup>A</sup>, 赤木暢<sup>A</sup>, 澤田祐也<sup>A</sup>, 木村健太<sup>B</sup>, 鳴海康雄<sup>A</sup>, 木村剛<sup>B</sup>, 萩原政幸<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター,

<sup>B</sup> 東京大学大学院新領域創成科学研究科

正四角台塔系  $\text{Pb}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$  は、磁性イオンが  $\text{Cu}^{2+}$  イオンの磁気四極子型の電子スピン配列をもった擬二次元磁性体で、磁気誘起強誘電性を示すマルチフェロイック物質である[1-3]。マルチフェロイック物質における電気磁気効果において、磁場と垂直に電気分極が現れる場合、光の伝搬方向によって屈折率が変わる方向複屈折や、共鳴点付近で電気分極の位相の遅れによりエネルギー吸収が変化し、吸収係数が変わる方向二色性といった光学特性が現れる。この物質はこのような電気磁気効果を起源とする特異な光吸収の発現が期待でき、磁場中の共鳴吸収（磁気励起）を観測するために超伝導マグネットとパルスマグネットを用いた電子スピン共鳴（ESR）測定を行なっている。現在は、無偏光での ESR 測定により得られた共鳴モードでどのような励起（磁気双極子遷移や電氣的励起など）が起こっているかを調べるために、ワイヤーグリッド偏光子を用いて ESR の偏光依存性を測定している。定常磁場印加（0 ~ 14 T）による無偏光 ESR 測定では、225 GHz にゼロ磁場ギャップが観測され、磁気励起は高周波側に上がっていくモードと低周波側に下がっていき、磁気転移の磁場でソフト化するモードに分岐している。これまでのところ、定常磁場  $B// [100]$  で高周波側（270 GHz）の測定において偏光方向（ $E^\omega // [100]$ ,  $H^\omega // [010]$  と  $E^\omega // [010]$ ,  $H^\omega // [100]$ ）によって吸収強度の変化を観測した。

今回新たに偏光方向による吸収強度の変化を比較するために  $B// [110]$  と  $B// [001]$  の偏光 ESR 測定を行なう予定であり、当日はその結果を報告する。 $B// [100]$  と  $B// [110]$  では電気分極の発現方向が  $P// [100]$  と  $P// [1-10]$  のように異なっていて、 $B// [001]$  では電気分極は観測されないという違いがある。この電気分極は四極子型に配列したスピン間の相互作用による微視的な電気分極が起源であると考えられていて、偏光 ESR 測定により観測された共鳴モードにおいてもその影響が現れると考えられる。

[1] K. Kimura *et al.*, Nat. Commun. **7**, 13039 (2016).

[2] K. Kimura *et al.*, Phys. Rev. Materials **2**, 104415 (2018).

[3] K. Kimura *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 093707 (2019).

## CsCuCl<sub>3</sub> が圧力下強磁場中で示す新奇磁気相の起源の研究

奥藤涼介<sup>A</sup>, 櫻井敬博<sup>B</sup>, 大久保晋<sup>C</sup>, 太田仁<sup>C</sup>, 上床美也<sup>D</sup>, 田中秀数<sup>E</sup>,

世良文香<sup>F,G</sup>, 高橋勇輔<sup>F,G</sup>, 秋光純<sup>F,G</sup>, 世良正文<sup>H</sup>, 井上克也<sup>F,G,I</sup>

<sup>A</sup>神戸大学大学院理学研究科, <sup>B</sup>神戸大学研究基盤センター, <sup>C</sup>神戸大学分子フォトリサーチセンター, <sup>D</sup>東京大学物性研究所, <sup>E</sup>東京工業大学大学院理工学研究科,

<sup>F</sup>広島大学大学院理学研究科, <sup>G</sup>広島大学キラル物性研究拠点,

<sup>H</sup>広島大学大学院先端物質科学研究科, <sup>I</sup>広島大学先進機能物質研究センター,

三角格子反強磁性体 CsCuCl<sub>3</sub> (磁性イオン Cu<sup>2+</sup>, S=1/2) は、近年圧力下において 1/3 磁化プラトーを伴う新奇相が発見され注目を集めている[1]。本研究では、この新しい磁気相に対応する ESR モードの観測を目的に、CsCuCl<sub>3</sub> に対して圧力下、強磁場 ESR 測定を行った。測定条件は磁場が最大 15 T、圧力が常圧から 0.90 GPa まで、温度が 4.2 K と 1.7 K で行った。

図に今回得られた 4.2 K での周波数対磁場プロットを示す。図(a)はプラトーが見出される臨界圧力  $P_c \sim 0.70$  GPa 未満における測定結果である。 $P_c$  未満の圧力では、以前から知られていたように臨界磁場  $H_c$  において低磁場側の基底状態である umbrella 構造から、高磁場側の 2-1 coplanar 相への転移に起因する共鳴周波数の大きな変化[2]が確認できた。図(b)は  $P_c$  以上における測定結果である。この圧力領域では、上記の相転移によるモードの不連続の他に、高磁場側でさらにもう 1 つ共鳴周波数の変化 (図中矢印) が見てとれる。さらに、 $H_c$  からこの不連続点までの磁場領域の圧力、温度変化は 1/3 プラトーが現れる磁場領域のそれと定性的に一致しており、プラトー相の ESR モードであると期待される。発表ではプラトー相のモード計算の結果と合わせて上記の結果を詳細に報告する。

[1] A. Sera *et al.*, Phys. Rev. B **96** (2017) 014419.

[2] H. Ohta, S. Imagawa, M. Motokawa, H. Tanaka, J. Phys. Soc. Jpn. **62**, 3011 (1993)

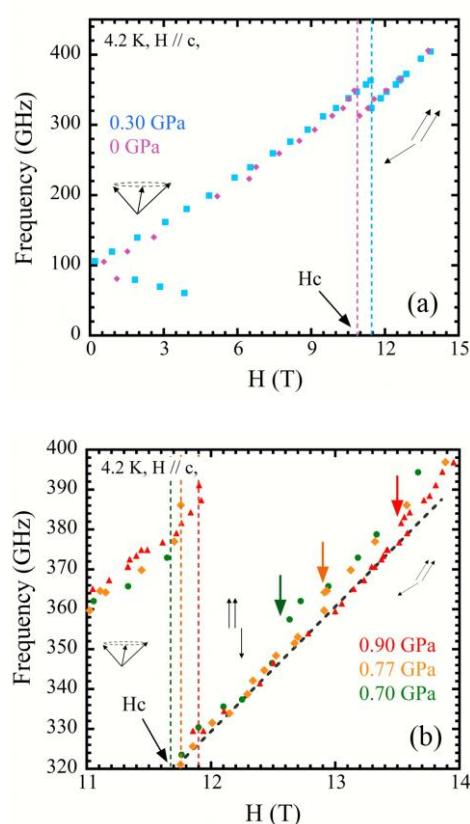


図. CsCuCl<sub>3</sub> の周波数対磁場プロット

## 圧力誘起磁気相CsFeCl<sub>3</sub>の強磁場ESRによる研究

鈴木哲平<sup>A</sup>, 齋藤佑<sup>B</sup>, 原茂生<sup>B</sup>, 櫻井敬博<sup>B</sup>, 大久保晋<sup>C</sup>, 太田仁<sup>C</sup>,

栗田伸之<sup>D</sup>, 田中秀数<sup>D</sup>, 松本正茂<sup>E</sup>

<sup>A</sup>神戸大学大学院理学研究科, <sup>B</sup>神戸大学研究基盤センター, <sup>C</sup>神戸大学分子フォトサイエンスセンター, <sup>D</sup>東京工業大学大学院理学院, <sup>E</sup>静岡大学理学部

2次元三角格子反強磁性体 CsFeCl<sub>3</sub> は六方晶 ABX<sub>3</sub> 型化合物の中でも、励起状態における磁気的な振る舞いに興味が寄せられている。系の磁性イオン Fe<sup>2+</sup> (3d<sup>6</sup>) は、擬スピン  $S=1$  をもち、 $c$  軸に沿って 1 次元的に強磁性鎖、 $c$  面内に 2 次元的に三角格子を組んでいる。その基底状態は、励起状態との間にギャップがあり [1]、圧力下の中性子回折から秩序相の磁気構造が 120° 構造であることが示された [2]。励起状態ギャップは圧力をかけることで減少し、磁化率測定によると  $P_c \sim 0.9 \text{ GPa}$  でゼロになり、 $P > P_c$  では新たな量子相の発現が期待されている [3]。我々は、臨界圧力付近でのスピンの挙動を調べるために、CsFeCl<sub>3</sub> の圧力下 ESR 測定を行った [4]。測定は、超伝導マグネット ( $\sim 15 \text{ T}$ ) を用いて、6 つの圧力領域 ( $0 \sim 1.81 \text{ GPa}$ )、発振器 (Gunn  $80 \sim 260 \text{ GHz}$ 、BWO  $287 \sim 515 \text{ GHz}$ )、温度  $1.8 \text{ K}$  で行った。図 1 は、 $1.02 \text{ GPa}$ 、 $H//c$  での ESR スペクトルの周波数依存性を示す。臨界圧力以上では、ギャップの大きい吸収 (赤丸) とギャップの小さい吸収 (青丸) の 2 つのモードが得られた。講演では、これまで ESR の報告の少なかった CsFeCl<sub>3</sub> の常圧下の ESR モード、ならびに圧力下でのギャップの変化と ESR のモードの変化について報告する。

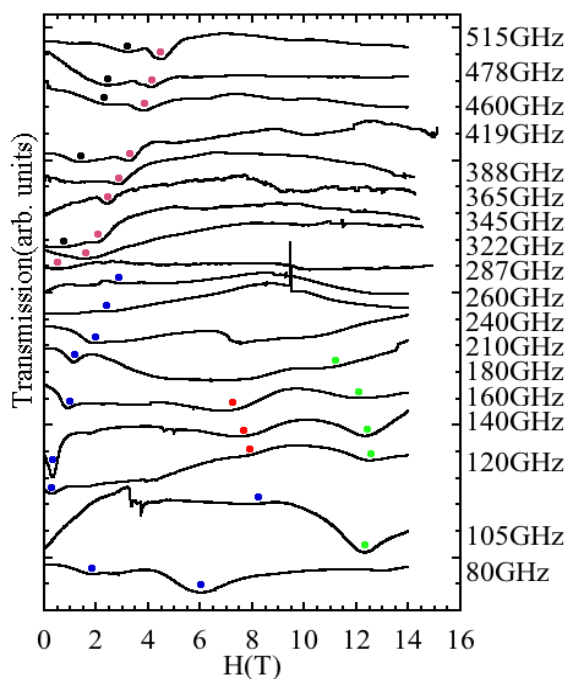


図1 CsFeCl<sub>3</sub>  $H//c$   $1.02 \text{ GPa}$   $1.8 \text{ K}$  における ESR スペクトルの周波数依存性

- [1] H. Yoshizawa *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **49**, 144(1980).
- [2] S. Hayashida *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 140405(R) (2018).
- [3] N. Kurita and H. Tanaka, Phys. Rev. B **94**, 104409 (2016).
- [4] R. Okuto *et al.*, Appl. Magn. Reson. **50**, 1059 (2019).

## 希釈 BDPA ラジカルを用いた

### 154 GHz ジャイロトロン光源による FT-ESR

堂野 竜輝, 林 哉汰, 石川 裕也, 佐藤 丈賀, 藤井 裕, 古屋 岳, 光藤 誠太郎

福井大学遠赤外領域開発研究センター

パルス電子スピン共鳴(Pulsed Electron Spin Resonance: Pulsed-ESR)は、数十 ns 程度の時間間隔においてミリ波をパルスの試料に照射し、電子スピンの緩和過程を観測する測定手法である。この応答をフーリエ変換(Fourier transform: FT)することで、連続波(Continuous wave: CW)-ESR よりも高い分解能を有する FT-ESR スペクトルが得られる。しかし、100 GHz 以上の周波数で強度の高いパルス系列を生成することは困難であり、この事実が高磁場・高周波パルス ESR の開発におけるボトルネックとなっている。光源として用いているジャイロトロンはミリ波からサブミリ波領域にわたる広範囲で発振が可能であり、その出力は基本波動作で数キロワットである[1]。遠赤外領域開発研究センターで開発された高出力ミリ波光源 Gyrotron FU CW VII B (154.43 GHz、出力約 150 W)を用いることで、我々は研究室レベルで利用可能な Pulsed-ESR 装置 (図 1) の開発を行っている。

今回我々はポリスチレン中に 100 mM の濃度で希釈した BDPA ラジカルの自由誘導減衰(Free Induction Decay: FID)信号を観測し、得られた時間軸波形をフーリエ変換することで FT-ESR スペクトル (図 2) を得ることに成功した。得られたスペクトルは左右非対称で両端が切り立った形となっている。これは粉末試料による  $g$  値の異方性がある場合のパウダーパターン[2]に似通っており、CW-ESR に比べより高い分解能を有したスペクトルの観測に成功したことが示唆できる。



図 1: ジャイロトロンを用いた Pulsed-ESR 装置

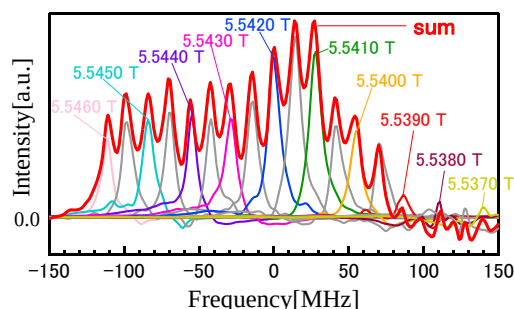


図 2: BDPA の FT-ESR スペクトル  
周波数 154.43 GHz、パルス幅 80 ns、  
温度 10 K の条件下で測定を行った。

[1] S. Mitsudo *et al.*, International Journal of Infrared and Millimeter Waves **21**, 661 (2000).

[2] 山内淳: “磁気共鳴-ESR—電子スピンの分光学—”, サイエンス社、pp.100-101 (2006).



## CuMoO<sub>4</sub> の強磁場磁化過程

浅野貴行<sup>A</sup>, 須井健太<sup>A</sup>, 稲垣達也<sup>A</sup>, 菊池彦光<sup>A</sup>, 西村泰三<sup>B</sup>, 久保克隆<sup>B</sup>, 牧瀬圭正<sup>C</sup>,  
伊藤利充<sup>C</sup>, 鳴海康雄<sup>D</sup>, 萩原政幸<sup>D</sup>, 松尾晶<sup>E</sup>, 金道浩一<sup>E</sup>  
<sup>A</sup> 福井大工, <sup>B</sup> 九大院理, <sup>C</sup> 産総研, <sup>D</sup> 阪大先端強磁場, <sup>E</sup> 東大物性研

モリブデン酸銅 (CuMoO<sub>4</sub>) は、外部からの刺激により色が変化するクロミズムの性質を有する銅酸化物磁性体である。CuMoO<sub>4</sub> の粉末及び単結晶試料における磁気的性質の研究を実施した結果、クロミズムの起源である構造変化に由来する巨大な温度履歴現象を観測した[1][2]。極端条件下における CuMoO<sub>4</sub> の磁化過程の測定では、粉末試料において観測された反強磁性二量体 ( $J/k_B = 26$  K) の磁気構造に起因する磁化の立ち上がりが単結晶試料では約 50 T まで出現しない等、粉末と単結晶試料では非常に異なることが判明した (図 1)。この原因は、約 200 K の構造変化の際に体積が約 13 % 収縮することによる粒径の変化と相関があると考えられる。また、CuMoO<sub>4</sub> の Mo を W に元素置換した CuMo<sub>1-x</sub>W<sub>x</sub>O<sub>4</sub> の粉末試料における磁化過程では、置換量の増加に伴い母物質 ( $x = 0$ ) で観測された磁化の立ち上がりが減少し、 $x = 0.1$  では単結晶試料と同様の磁化過程が観測されるなど興味深い結果が得られている (図 2)。

本講演では、パルス磁場を用いた強磁場磁化過程の測定結果に注目し、元素置換や粒径によって多彩に変化する CuMoO<sub>4</sub> の磁気的性質について議論する。さらに、遊星ボールミルを用いて作製した粒径の異なる粉末試料の測定結果も紹介する予定である。

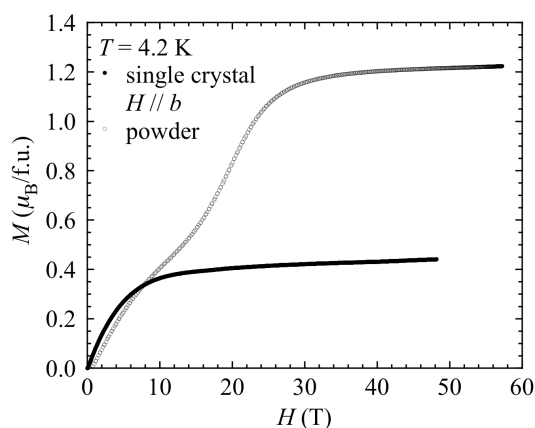


図 1 CuMoO<sub>4</sub> (粉末及び単結晶  $H // b$ ) の磁化過程 ( $T = 4.2$  K)

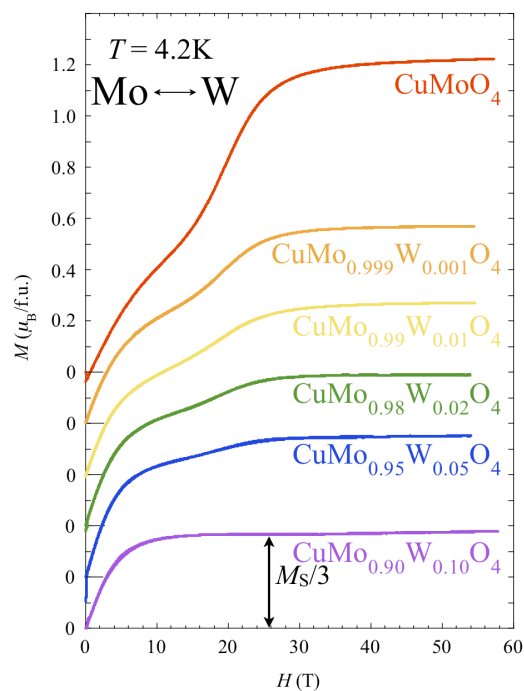


図 2 CuMo<sub>1-x</sub>W<sub>x</sub>O<sub>4</sub> の磁化過程 ( $T = 4.2$  K)

[1] T. Asano *et al.*, JPSJ **80** (2011) 093703.

[2] T. Ito *et al.*, Chem. Mater. **21** (2009) 3376.



## Fe 四面体クラスター反強磁性体の強磁場 ESR 測定

大久保晋<sup>A</sup>, 下城世那<sup>B</sup>, 齋藤佑<sup>C</sup>, 原茂生<sup>C</sup>, 櫻井敬博<sup>C</sup>, 岡本翔<sup>B</sup>, 高橋英幸<sup>A,D</sup>,

大道英二<sup>B</sup>, 太田仁<sup>A</sup>, 大熊隆太郎<sup>E</sup>, 廣井善二<sup>E</sup>

<sup>A</sup>神戸大学分子フォトサイエンス研究センター, <sup>B</sup>神戸大学大学院理学研究科,

<sup>C</sup>神戸大学研究基盤センター, <sup>D</sup>JST さきがけ, <sup>E</sup>東京大学物性研究所

最も基本的な幾何学的フラストレーションでは、スピン間相互作用が三角形を形成し競合していることが重要である。しかしながら、現実の物質では基本構造である三角形に歪みがあるものが多く、フラストレーションの基本的な性質を調べることは容易ではない。もちろん3次元のスピンフラストレーションにおいても同様である。そこで、スピンの正三角形が四面を形成する正四面体を持つ  $\text{Fe}^{3+}(S=5/3)$  のクラスター反強磁性体に着目し、その基底状態へのダイナミクスを調べた。 $\text{KFe}_4(\text{AsO}_4)_3(\text{OH})_4 \cdot 6-7\text{H}_2\text{O}$  は正方晶の水酸砒酸塩で、酸素の八面体で囲まれた  $\text{Fe}^{3+}$  が四面体を形成しており、その Fe 四面体クラスターが正方格子を形成している[1]。磁化率の温度依存性ではブロードなピークが 16K にあり、8K 以下で急激に増大する。またメスバウワー効果では反強磁性転移温度以下でも大きなスピン揺らぎの存在が報告されている[2]。大熊らは中性子回折実験から、揺らぎの起源を縮退した容易面型スピン構造であると提案している[3]。そこで、スピンドダイナミクスを調べる目的で強磁場 ESR の温度依存性、ならびに反強磁性状態における磁気異方性を明らかにする目的で低温の強磁場 ESR の周波数依存性の測定を行った。試料は水熱合成法による粉末試料と天然鉱物の単結晶試料を用いた。粉末はパルス強磁場 ESR で 265K から 1.8K の温度領域、50GHz から 400GHz の周波数で測定を行った。単結晶試料は高感度測定が可能なメンブレン ESR[4]で 1.5K において 80GHz から 370GHz の周波数領域で測定を行なった。図 1 に 160GHz における粉末試料を用いた ESR スペクトルの温度依存性を示す。30K より高温領域では  $\text{Fe}^{3+}(3d^5)$  による  $g \sim 2.0$  の吸収が観測された。磁化率にブロードピークに対応して 20K 以下で共鳴磁場シフトが観測され、6K 以下では反強磁性転移に伴う反強磁性共鳴によるスペクトルの肩が観測された。1.8K の粉末試料による周波数依存性ならびに単結晶試料による角度依存性測定から、反強磁性共鳴は容易面型異方性を持つことが明らかになった。

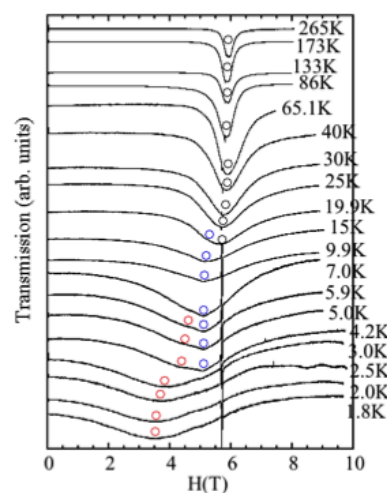


図 1 160GHz における ESR スペクトルの温度依存性

[1] M. J. Buerger *et al.*, Z. Krist. **215** 92-108 (1967)

[2] M. Takano *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **31** 298 (1971)

[3] R. Okuma *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **87** 093702-5 (2018)

[4] H. Takahashi *et al.*, Rev. Sci. Instr. **89** 083905-8 (2018)

## $^7\text{Li}$ NMR 分光法による $\text{Li}_2\text{Cr}_3\text{SbO}_8$ の磁気構造の研究

荒島洸樹<sup>A</sup>, 井原慶彦<sup>A</sup>, 松井一樹<sup>B</sup>, 金道浩一<sup>B</sup>, 小濱芳允<sup>B</sup>, 平田倫啓<sup>C</sup>,

佐々木孝彦<sup>C</sup>, 石井裕人<sup>A</sup>, 吉田紘行<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 北大院理, <sup>B</sup> 東大物性研, <sup>C</sup> 東北大金研

$S = 1/2$  カゴメ反強磁性体では、量子揺らぎの効果によりスピン液体などの特異な磁気状態が実現されることが理論的に予測されている。また、高磁場領域においては磁化プラトーが実現される。実際これまでに  $1/3$  磁化プラトーは様々な量子磁性体において観測されている。また、理論的研究により  $1/9$  磁化プラトーの実現も予測されているが、実験的には  $1/9$  磁化プラトーの観測例はなく、今後の課題となっている。

本研究で  $S = 3/2$  ブリージングカゴメ反強磁性体  $\text{Li}_2\text{Cr}_3\text{SbO}_8$  は  $T^* = 4.5$  K で磁気秩序を示す物質である。また、低温において  $1/9$  磁化プラトーが 25 T から 52 T の広い範囲において観測されており、70 T 以上の領域において  $1/3$  磁化プラトー的ふるまいが観測されている。そこで、我々は微視的な実験手法を用いて  $1/9$  磁化プラトードでの磁気状態を調べている。

$\text{Li}_2\text{Cr}_3\text{SbO}_8$  の粉末試料について 5.5 T から 24 T の磁場領域は 25T-CSM (IMR)を用いて定常磁場で測定し、35 T についてはパルス磁場(ISSP)を用いた  $^7\text{Li}$  NMR 測定を行った。

図 1 に  $T = 1$  K における定常磁場中での NMR スペクトルの磁場依存性を示す。17 T 以下の低磁場領域では台形型のスペクトルが観測されており、反強磁性体の粉末パターンで説明できる。17 T 以上の磁場領域においてスペクトルの形が変化しておりプラトー領域直前の磁場において磁気構造に変化が起こることが明らかになった。磁化プラトー領域ではスペクトルがシャープになっており、一様な内部磁場が観測された。この振舞は volborthite の  $1/3$  磁化プラトード直前の振舞[4]と酷似しており、17 T から 25 T の間の磁場領域において、新たな磁気相の存在が考えられる。

[1] T. Ono, *et al.*, Physical Review B **67**, 104431 (2003)

[2] S. Nishimoto, *et al.*, Nature Communications **4**, 2287 (2013)

[3] Y. Ishii, *et al.*, JPS meeting 2019 (14aF303-2)

[4] M. Yoshida, *et al.*, Physical Review B **96**, 180413 (2017)

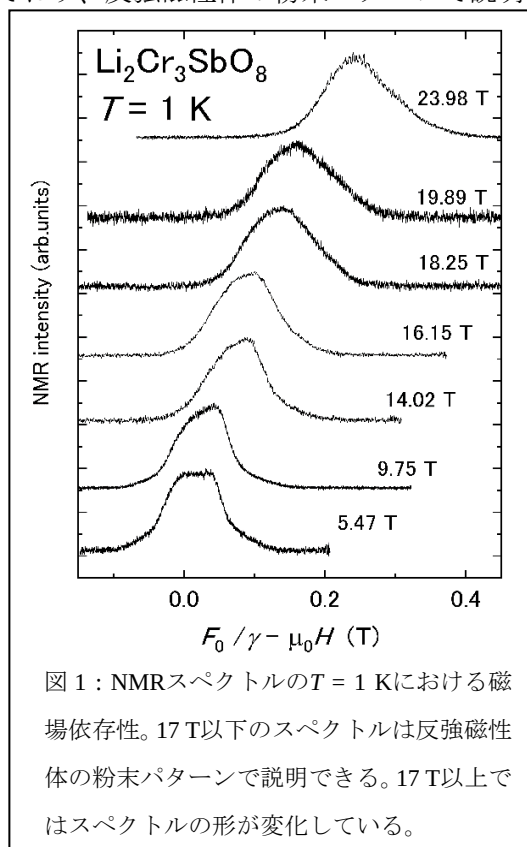


図 1 : NMR スペクトルの  $T = 1$  K における磁場依存性。17 T 以下のスペクトルは反強磁性体の粉末パターンで説明できる。17 T 以上ではスペクトルの形が変化している。

多結晶  $\text{LaCoO}_3$  の超強磁場中磁歪計測によるスピン状態秩序相の解明池田暁彦<sup>1</sup>, 松田康弘<sup>1</sup>, 佐藤桂輔<sup>2</sup><sup>1</sup> 東京大学物性研究所, <sup>2</sup> 茨城高専

コバルト酸化物  $\text{LaCoO}_3$  は強相関多軌道多電子系であり、フント結合と結晶場のバランスによりスピン状態自由度をもつことが特徴である。非磁性絶縁体の基底状態から温度上昇に伴い常磁性絶縁体、常磁性金属への逐次クロスオーバーを起こすが、微視的な理解は半世紀以上の研究にも関わらず得られていない。近年多軌道多電子モットハバードモデルの解析により、スピン状態結晶相（励起子の固体）や励起子凝縮相（励起子の超流動）などの非自明な秩序が予想され着目されている[1-3]。強いスピン軌道相互作用を考慮すると強相関トポロジカル絶縁体が発現することも予見された[4]。しかし、対応する実験は多くない。

われわれはこれまでに  $\text{LaCoO}_3$  に強磁場を印可し低温で高スピン状態（HS）と低スピン状態（LS）のエネルギーを近接されることで、2種の秩序相（スピン状態秩序 $\alpha$ 相[低温相]、スピン状態秩序 $\beta$ 相[高温相]）が発現することを明らかにした[5]。さらに2種の秩序相の起源を解明することを目指して、スピン状態に敏感なプローブである磁歪測定を100テスラ超強磁場で実現した[6]。これまで単結晶サンプルで実験を行ってきたが、強磁場中でサンプルが自壊する問題があり、コンシステントなデータを得ることが困難であった。今回、多結晶サンプルを用いることで問題が解決され、系統的に温度依存性を得ることができることを見いだしたので、その結果を発表する。

9-300 K の広い温度領域で  $\text{LaCoO}_3$  の磁歪曲線を190 Tまで観測することに成功した。これまで磁化で得られた相境界が磁歪でも再現することを確認した。これまでの磁化計測では明らかで無かったが、今回の磁歪計測により、スピン状態秩序 $\alpha$ 相とスピン状態秩序 $\beta$ 相ではどちらも強磁場中でプラトー的な磁歪を示す相であることと、後者の方が1.5倍程度磁歪が大きいことがわかった。この結果は率直には、スピン状態秩序 $\alpha$ 相とスピン状態秩序 $\beta$ 相のどちらの起源もスピン状態結晶相（励起子の固体）であり、スピン状態秩序 $\beta$ 相はスピン状態秩序 $\alpha$ 相とは異なる、高スピンの数が多い秩序相であることを示していると思われる。発表でこの可能性を熱力学的に考察する。

## References

- [1] T. Kaneko, K. Seki, Y. Ohta, Phys. Rev. B **85** (2012) 165135.
- [2] J. Kuneš, JPCM **27** (2015) 333201. (topical review)
- [3] J. Nasu et al., Phys. Rev. B **93** (2016) 205136.
- [4] A. Amaricci, et al., Phys. Rev. Lett. **114** (2015) 185701.
- [5] A. Ikeda, et al., Phys. Rev. B **93** (2016) 220401(R).
- [6] A. Ikeda, et al., Rev. Sci. Instrum, **88** (2017) 083906.

## キラル磁性体 $\text{CrNb}_3\text{S}_6$ の磁化および ESR

澤田祐也<sup>A</sup>, 島本雄介<sup>B</sup>, 高阪勇輔<sup>B,C</sup>, 戸川欣彦<sup>B,C</sup>, 中野岳仁<sup>D</sup>, 吉澤大智<sup>E</sup>,  
大江純一郎<sup>F</sup>, 岸根順一郎<sup>C,G</sup>, 井上克也<sup>C,H</sup>, 野末泰夫<sup>I</sup>, 萩原政幸<sup>A,C</sup>

<sup>A</sup> 阪大先端強磁場, <sup>B</sup> 阪府大院工, <sup>C</sup> 広大キラル物性拠, <sup>D</sup> 茨城大院理工, <sup>E</sup> 分子研,

<sup>F</sup> 東邦大理, <sup>G</sup> 放送大, <sup>H</sup> 広島大院理, <sup>I</sup> 阪大院理

キラル磁性体では、一般的に強磁性相互作用と Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の競合によってスピンがらせん状に配列した磁気秩序を形成することが知られている。これらの中で、キラル磁性体  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  は磁性を担う  $\text{Cr}^{3+}$  イオン ( $S = 3/2$ ) が  $\text{NbS}_2$  層にインターカレートした結晶構造を有する物質である[1]。ab 面内のスピンには強い強磁性相互作用が働いており、ab 面内に揃った局在スピンの c 軸方向に沿ってらせん状に配列している。この物質では、らせん軸である c 軸に垂直に磁場を印加することで、らせんの捻りが周期的にほどけたカイラルソリトン格子 (CSL) を形成し、また、c 軸に平行に磁場を印加することで、カイラルコニカル秩序を形成することが知られている[2]。これまで我々は、この物質の磁場中におけるスピンドYNAMICS を明らかにするために、磁化および電子スピン共鳴 (ESR) 測定を行ってきた[3]。今回、これまで得られた結果のまとめと、これらの結果から得られた磁気相図についての考察を報告する。磁化の磁場印加角度依存性を調べたところ、磁場印加方向が c 軸に垂直な方向から平行な方向に変化するにしたがって、磁化のヒステリシス領域を拡大しながら、飽和磁化に至るまで磁化が緩やかに増加するような振る舞いが観測された。一方で、ESR 測定では、CSL 相において ESR シグナルにスパイク状のシグナルが重畳する振る舞いが観測された。ESR シグナルの磁場角度依存性を調べたところ、磁場印加方向が c 軸に垂直な方向から平行な方向に変化するにしたがって、スパイク状シグナルが現れる領域が高磁場側に移りながら広がり、c 軸に完全に平行に磁場を印加した場合には観測磁場領域からなくなる振る舞いが観測された。講演では、磁化のヒステリシス領域および ESR シグナルのスパイク状シグナル領域の角度依存性から得られた磁気相図に関する考察と、これまで磁気抵抗および磁気トルクの磁場印加角度依存性から得られている結果との比較について紹介する予定である。本研究は、科研費基盤 S (No. 25220803) および日本学術振興会研究拠点形成事業 (A. 先端拠点形成型) の助成を得て行われたものである。

### 参考文献

- [1] T. Moriya and T. Miyadai, *Solid State Commun.* **42**, 209 (1982).
- [2] e.g. Y. Togawa *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 107202 (2012).
- [3] D. Yoshizawa, YS, *et al.*, *Phys. Rev. B* **100**, 104413 (2019).

スピン軌道相互作用の強い  $d^1$  電子系の磁性

石川孟, 松尾晶, 金道浩一

東京大学物性研究所,

量子磁性体の研究は  $V^{4+}$  ( $3d^1$ ) や  $Cu^{2+}$  ( $3d^9$ ) イオンが  $S = 1/2$  を担う磁性体を主な対象として行われてきたが、近年、 $d$  電子系のスピン軌道相互作用への関心が高まり、スピン軌道相互作用が強い  $4d$  や  $5d$  遷移金属を含む磁性体が注目を集めている。

八面体結晶場中の  $d^1$  イオンは  $S = 1/2$  と  $t_{2g}$  軌道の有効軌道角運動量  $L_{\text{eff}} = 1$  を有し、スピン軌道相互作用が強い極限では  $S$  と  $L_{\text{eff}}$  の結合により  $J_{\text{eff}} = 3/2$  状態を形成する。物質中では  $J_{\text{eff}} = 3/2$  電子間の相互作用により、単純な磁気双極子秩序ではなく高次の多極子秩序やダイマーシングレット相を示すことが期待されている [1,2]。

発表では Nb の  $4d$  電子や Ta の  $5d$  電子をもつ磁性体の合成と磁性、および、パルス強磁場中での磁化測定による磁場誘起相の探索について発表する。

[1] G. Chen, R. Pereira, and L. Balents, *Exotic phases induced by strong spin-orbit coupling in ordered double perovskites*, Phys. Rev. B **82**, 174440 (2010).

[2] J. Romhányi, L. Balents, and G. Jackeli, *Spin-Orbit Dimers and Noncollinear Phases in  $d^1$  Cubic Double Perovskites*, Phys. Rev. Lett. **118**, 217202 (2017).

## 交替 $D$ ベクトルを持つ $S=1/2$ 反強磁性鎖物質 $\text{KCuMoO}_4(\text{OH})$ の 微小単結晶を用いた強磁場 ESR による磁気異方性の観測

恒石一義<sup>A</sup>, 高橋英幸<sup>B,C</sup>, 齋藤佑<sup>D</sup>, 原茂生<sup>D</sup>, 櫻井敬博<sup>D</sup>, 大道英二<sup>A</sup>, 高橋一志<sup>A</sup>,

大久保晋<sup>B</sup>, 太田仁<sup>B</sup>, 那波和宏<sup>E</sup>, 矢島健<sup>F</sup>, 岡本佳比古<sup>G</sup>, 廣井善二<sup>F</sup>

<sup>A</sup> 神戸大学大学院理学研究科, <sup>B</sup> 神戸大分子フォトサイエンス研究センター,

<sup>C</sup> JST さきがけ, <sup>D</sup> 神戸大研究基盤センター,

<sup>E</sup> 東北大多元研, <sup>F</sup> 東大物性研, <sup>G</sup> 名大院工

$\text{KCuMoO}_4(\text{OH})$  は  $\text{CuO}_6$  八面体が頂点共有して  $b$  軸方向に連なる  $S=1/2$  ハイゼンベルグ反強磁性鎖のモデル物質である[1]。結晶構造の対称性から、鎖内にジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用があり、交替した  $D$  テンソルが存在する(図 1)。那波らの磁化率の温度依存性の測定により、Weiss 温度  $\theta \sim -205\text{K}$ 、相互作用の大きさ  $J \sim 238\text{K}$  と見積もられている[1]。この様な系では、磁場中でソリトン、アンチソリトン、ブリーザー励起が期待される。磁場中比熱にはソリトン励起に特有な磁場依存性が観測されている[2]。

我々はこれまで  $\text{KCuMoO}_4(\text{OH})$  の粉末試料による高周波 ESR 測定[3]、磁気異方性を明らかにするために、磁場中配向試料の高周波 ESR 測定を行っている[4]。今回は磁気異方性を明らかにするため、単一単結晶( $0.5 \times 0.3 \times 0.3\text{mm}$ )の ESR 測定を行った。その結果、多数の吸収が明瞭に観測された。それらは吸収磁場が高周波数になるにつれ高磁場にシフトし、 $300\text{GHz}$  以上で複数の吸収の存在が明らかになった(図 2)。光源として Gunn 発振器、BWO を使用し、周波数帯は  $90\text{--}700\text{GHz}$ 、測定温度領域は  $1.8\text{K}$ 、磁場は最大  $15\text{T}$ 、検出には力検出型メンブレンを使用した[5]。異方性について議論する。

[1] K. Nawa *et al.*, Inorg. Chem. **54** (2015) 5566

[2] K. Nawa *et al.*, Phys. Rev. B **96** (2017) 104429

[3] 久保田創他 日本物理学会 第 72 回年次大会 2017 年概要集 17aC31-1

[4] 大久保晋他 日本物理学会 第 73 回年次大会 2018 年概要集 22pPSA-4

[5] H. Takahashi *et al.* Rev. Sci. Instr. **89** (2018) 083905

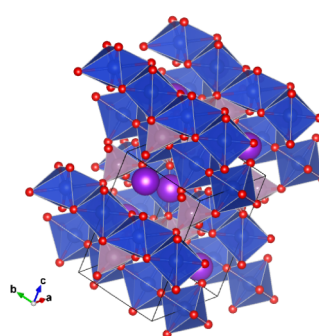


図 1:  $\text{KCuMoO}_4(\text{OH})$  の結晶構造

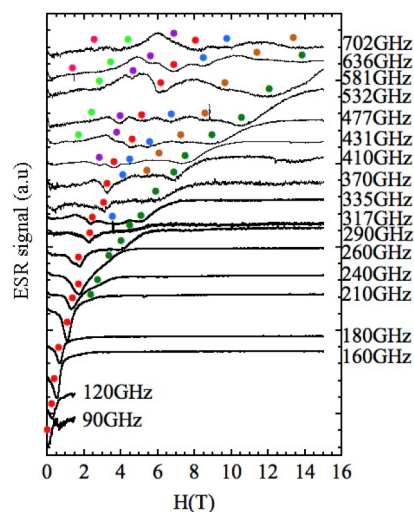


図 2:  $1.8\text{K}$  における  $H//b$  の ESR スペクトルの周波数依存性



# ペロブスカイト化合物 $\text{PbMO}_3$ ( $M = \text{Mn}, \text{Cr}, \text{V}$ ) の強磁場測定

大島健太郎<sup>A</sup>, 櫻井敬博<sup>B</sup>, 原茂生<sup>B</sup>, 齋藤佑<sup>B</sup>, 大久保晋<sup>A,C</sup>, 太田仁<sup>A,C</sup>,  
山本樹<sup>D</sup>, 東正樹<sup>E</sup>

<sup>A</sup> 神戸大学大学院理学研究科, <sup>B</sup> 神戸大学研究基盤センター,

<sup>C</sup> 神戸大学分子フォトサイエンス研究センター,

<sup>D</sup> 東京工業大学大学院総合理工学研究科, <sup>E</sup> 東京工業大学フロンティア研究所

ペロブスカイト酸化物である  $\text{PbMnO}_3$  は、 $3d$  遷移金属元素である Mn 由来の磁性の発現に加え、A サイトに位置した Pb による強誘電性の可能性を持つ。 $\text{PbMnO}_3$  は 8GPa の高压合成で  $6\text{H-PbMnO}_3$  構造をとるが、山本らは 15GPa での高压処理により  $6\text{H-PbMnO}_3$  から  $\text{MnO}_6$  八面体が頂点共有で結合する  $3\text{C-PbMnO}_3$  を得ることに成功している。 $3\text{C-PbMnO}_3$  の結晶構造は、同じく高压合成により得られる  $\text{PbVO}_3$  や  $\text{PbTiO}_3$  の極性構造(空間群:  $P4mm$ )とは異なる、中心対称性の結晶構造(空間群:  $P4/mmm$ )であると報告されている。また、Pb が 2 価と 4 価の自由度を持つことと酸素欠損が存在することが明らかにされている[1]。これにより、Mn イオンが  $d^3$  と  $d^4$  の電子配置である  $\text{Mn}^{4+}$  と  $\text{Mn}^{3+}$  を取りうる可能性がある。本研究では、高压合成により得られた新物質である  $\text{PbMnO}_3$  の粉末試料を 1.8K~265K の温度領域において強磁場 ESR 測定を行った。60GHz~500GHz の周波数領域で、パルス強磁場を用いて、20T の領域まで測定した。160GHz における ESR スペクトルの温度依存性を図 1 に示す。転移温度である 20K より高い温度領域である 100K~200K において ESR スペクトルはシフトしていることが観測された。

また、 $\text{PbCrO}_3$  と  $\text{PbVO}_3$  の中間体である  $\text{PbCr}_x\text{V}_{1-x}\text{O}_3$  は負熱膨張の実現が期待されており、ESR という側面から低温下での磁性の測定を行った。

講演では、 $3\text{C-PbMnO}_3$  の Mn スピンのダイナミクスに加え、 $\text{PbCr}_x\text{V}_{1-x}\text{O}_3$  の研究段階について報告する。

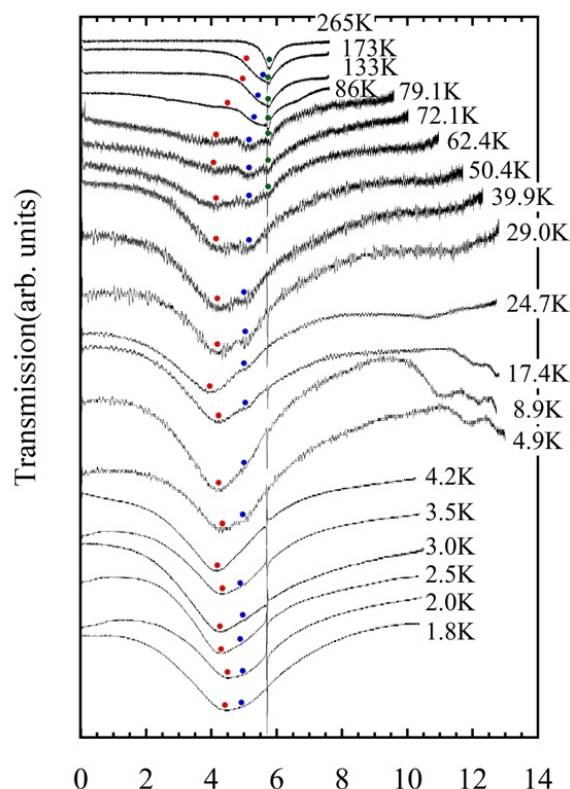


図1 160GHz における ESR スペクトルの温度依存性

## 参考文献

[1] Kengo Oka *et al.*, *Inorg. Chem.* **48**, 2285-2288 (2009)

三角格子反強磁性体  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  の磁場-温度相図

鳴海康雄<sup>A</sup>, 佐藤和樹<sup>A</sup>, 赤木暢<sup>A</sup>, 竹内徹也<sup>B</sup>, 松尾晶<sup>C</sup>, 金道浩一<sup>C</sup>,  
南部雄亮<sup>D</sup>, 萩原政幸<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター,

<sup>B</sup> 大阪大学低温センター, <sup>C</sup> 東京大学物性研究所, <sup>D</sup> 東北大学金属材料研究所

幾何学的フラストレーションを内包する磁性体の代表例である三角格子反強磁性体は、多彩な物性発現の舞台として古くから研究が行われているが、いまだ未解明な現象が残されている。近年、盛んに研究が行われているスカーミオンもその一例である。これまでにスカーミオンの実験による観測は、隣り合うスピン間に働くジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用が存在する、反転対称性が破れた結晶において報告されてきた。この場合、スカーミオンが持つカイラリティは結晶の対称性に従いどちらか一方に限定される。一方で、三角格子反強磁性体においてもスカーミオンの発現が可能であることが理論的に指摘されている[1]。注目すべきは、その発現機構が交換相互作用の幾何学的フラストレーションにある点である。幾何学的フラストレーションによって左右のカイラリティに関してエネルギー的な差異が生じることは無い。そのため、カイラリティの異なるスカーミオン・反スカーミオンが等しく発現することが可能となり、スカーミオンのドメイン状態や、外場によるスカーミオンの転換などより多彩なスカーミオン物性が期待される。しかしこれまでに、実際の物質で対称的スカーミオンの観測の報告例は無い。本研究では対称的スカーミオンの発現が期待される物質として三角格子反強磁性体  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  に注目している。 $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  は、約 80 K という高いワイス温度にもかかわらず、極低温まで磁気長距離秩序を示さない理想的な 2 次元フラストレーション磁性体である。ただし、磁化率がピークをとる 8.5 K より低温で、約 2.5 nm という短距離の非整合磁気相関が発達していることが中性子散乱実験によって確認されている[2]。一方で、スカーミオンは磁場印加によって誘起されるスピンの長距離秩序状態であることから、 $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  が描く磁場温度相図はスカーミオン探索を行う上で極めて重要な情報となる。最近我々は、 $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  の多周波-強磁場 ESR の実験から、共鳴磁場の温度変化に特徴的な磁場依存性が存在することを見出した。このことは、磁気相関の発達に対して印加される磁場が重要な役割を果たしていることを意味している。本講演では、ESR 測定に加えて磁化測定と比熱測定から得られた磁場-温度相図をもとにして  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  の強磁場物性に関して議論する。

[1] T. Okubo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 017206 (2012).

[2] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **115**, 127202 (2015).

## 200 テスラ級超強磁場下におけるルビーの分光学的研究

神田朋希, 巖正輝, 小濱芳允, 野村肇宏

東京大学物性研究所

身近な宝石の一つであるルビーは、アルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 中の  $\text{Al}^{3+}$  の一部が  $\text{Cr}^{3+}$  に置換した組成をもち、 $\text{CrO}_6$  正八面体が[111]方向にわずかに歪んだ結晶構造をとっている。特に分光学の観点からルビーの吸収スペクトルは盛んに研究されている。これらの吸収は  $\text{Cr}^{3+}$  イオンの  $d$  電子系の多電子状態間の遷移に基づくもので、配位子場理論によって説明される。

ルビーの吸収スペクトルの中でも 694 nm にみられる R 線は、磁場や圧力の印加によりスペクトルの分裂を明瞭に観測できる。この R 線は、対応する電子遷移がスピン禁制であり励起状態の寿命が長くなる結果、スペクトル幅の狭い吸収線として観測される。R 線を対象にしたゼーマン分裂の強磁場下での研究もおこなわれており、60 テスラまでのゼーマン分裂や[1]、高圧・強磁場下における研究が既になされている[2]。しかし、更なる強磁場下でのルビーの分光学的研究はこれまで報告例がない。

我々はより強い磁場下における R 線の振る舞いを明らかにするため、一巻きコイル法を用いた分光測定を行った。150 テスラまでのゼーマン分裂の様子を右図に示す。スペクトルの磁場依存性を解析したところ、従来のゼーマン分裂では説明できないピーク位置の変化があることが分かった。本講演では実験的に得られたゼーマン分裂を従来の実験結果や理論計算と比較し、スペクトルの振る舞いについて定量的議論を行う。

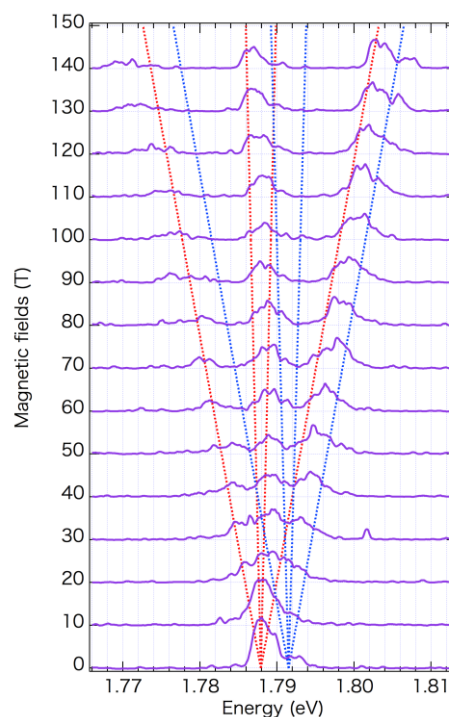


図:9 K におけるルビー R 線のスペクトル分裂の磁場依存性。

赤点線、青点線は先行研究の結果[2]をもとにピーク位置を計算したもの。

[1] H. Hori *et al.*, *Journal of physical society of Japan* **46**, 908 (1979).

[2] M. Millot *et al.*, *Physical Review B* **78**, 155125 (2008).

## 超強磁場中 FBG 磁歪計測による 固体酸素の磁場誘起構造相転移の観測

山田宗孝, 池田暁彦, 松田康弘  
東京大学物性研究所

固体酸素の結晶構造は等方的なファンデルワールス力と異方的な磁氣的相互作用のバランスによって決定されるため、しばしば“spin controlled crystal”と呼ばれる。温度や圧力を制御することによってファンデルワールス力と磁氣的相互作用の均衡は崩れ、固体酸素は新たな構造へと変化する。現在までに温度－圧力相図の詳細な研究が行われ、7つの相が確認されている[1]。一方で、酸素の磁場－温度相図に関する研究は最近までほとんど行われていなかった。これは固体酸素の内部磁場が非常に大きく、磁場誘起相転移を調べるためには 100 T 級の超強磁場が必要となる為である。

当研究室では先行研究において、120 T の超強磁場領域で固体酸素の磁場誘起相転移が報告されている[2][3]。ここで出現した相は前出の 7 つの相のどれとも特徴が一致せず、新規な強磁場相と考えられた。この相を 8 番目の固体酸素相として  $\theta$  相と呼ぶことにし、それ以来研究が続けられている。しかし、この  $\theta$  相の出現には 100 T 以上の超強磁場を必要とすることから、詳細な物性に関しては未解明である。このような極限的な環境においては測定の手法が限られており、実験から得られる情報にも限界がある。一方で、近年 FBG (Fiber Bragg Grating) と呼ばれる手法を用いて超強磁場領域での磁歪測定が可能となった[4]。FBG とは複数の回折格子が刻まれた光ファイバを用いた技術であり、帯域を持った光が FBG を通過する際、特定の波長成分だけが反射し、その他の波長成分は透過する。ファイバの伸縮に伴って回折格子の間隔は変化するため反射する波長成分も変化し、歪みを測定することができる。本研究では FBG によって固体酸素の磁場誘起構造相転移における格子変形を直接観測することに成功した。発表では測定に向けた技術開発の詳細と実験結果について報告する予定である。

- [1] Yu. A. Freiman and H. J. Jodl, *Physics Reports* **401**, 1-228 (2004)
- [2] T. Nomura, Y. H. Matsuda, S. Takeyama, A. Matsuo, K. Kindo, J. L. Her, and T. C. Kobayashi, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 247201 (2014)
- [3] T. Nomura, Y. H. Matsuda, S. Takeyama, A. Matsuo, K. Kindo, and T. C. Kobayashi, *Phys. Rev. B* **92**, 064109 (2015)
- [4] A. Ikeda, T. Nomura, Y. H. Matsuda, S. Tani, Y. Kobayashi, H. Watanabe, K. Sato, *Rev. Sci. Instrum.* **88**, 083906 (2017)

## フェルダジル系塩が可能にするスピンモデルの内部磁場変調

岩崎義己<sup>A</sup>, 河野洋平<sup>A</sup>, 細越裕子<sup>A</sup>, 川上貴資<sup>B</sup>, 橘高俊一郎<sup>C</sup>,

榊原俊郎<sup>C</sup>, 木田孝則<sup>D</sup>, 萩原政幸<sup>D</sup>, 山口博則<sup>A</sup>

<sup>A</sup>大阪府立大学大学院理学系研究科, <sup>B</sup>大阪大学大学院理科学研究科,

<sup>C</sup>東京大学物性研究所, <sup>D</sup>大阪大学大学院理科学研究科附属先端強磁場科学研究センター

我々はこれまでに、フェルダジルラジカルへの原子置換を利用した緻密な分子設計により、分子軌道の形状とその重なりを制御し、多彩な新規磁性体の実現に成功してきた。それらにおいては、無機磁性体の対称性と安定性のものとは形成が困難であるものを多数実現し、量子スピン系研究における未踏領域の開拓へと進展している[1,2]。またカチオン化したフェルダジルラジカルをアニオンと組み合わせることでラジカル塩を合成し、高度な電子状態の制御も可能にしている[3]。最近、無機磁性アニオンを含んだ塩(o-MePy-V)FeCl<sub>4</sub>[o-MePy-V=3-(2-methylpyridyl)-1,5-diphenylverdazyl]において、FeCl<sub>4</sub><sup>-</sup> (S=5/2)とラジカル(S=1/2)が相関したハニカム格子をベースとした特異な二次元スピンモデル形成を明らかにしてきた。鉄とラジカルとの磁気相関により低磁場域で実効的な S=2 一次元鎖の形成、高磁場域で量子性を反映した磁化の非線形増加が観測された[4]。

本研究では o-MePy-V の一部を臭素置換して FeCl<sub>4</sub><sup>-</sup> との新規塩[o-MePy-V-(p-Br)<sub>2</sub>]FeCl<sub>4</sub> の合成に成功した。X 線構造解析の結果を基に第一原理計算を行った結果、FeCl<sub>4</sub><sup>-</sup> とラジカルからなるハニカム格子をベースとしたスピンモデル形成が示唆された。磁化率と比熱、多周波 ESR 測定から低温低磁場域で S=5/2 擬二次元反強磁性秩序の形成が明らかになった。低温 1.5 K での磁化曲線ではゼロ磁場からの線形増加と、その後の 5/6 磁化プラトー、それに続く飽和への下に凸の緩やかな増加が観測された(図 1)。この振る舞いは、低磁場域では実効的な S=5/2 ハニカム格子の形成と、高磁場域ではラジカル S=1/2 の量子性と鉄スピン由来の内部磁場の影響を反映していると考えられた[5]。本発表ではそれらの起源について議論する。

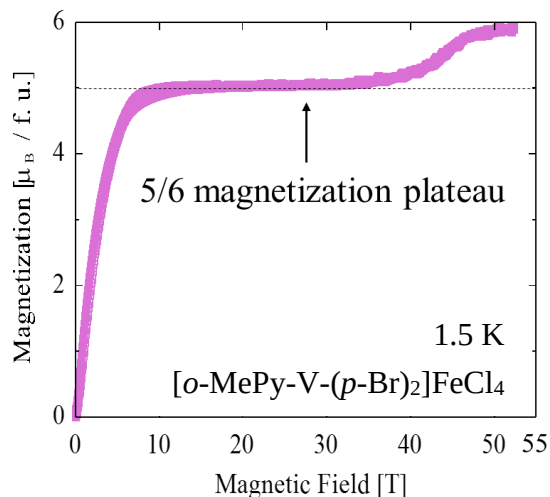


図1：磁化曲線 at 1.5 K.

- [1] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 157205 (2013)
- [2] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. B **95**, 235135 (2017)
- [3] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 094402 (2018)
- [4] Y. Iwasaki *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 085113 (2018)
- [5] Y. Iwasaki *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 224411 (2018)

## EuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> における異常な磁気異方性

竹内徹也<sup>A</sup>, 伊覇 航<sup>B</sup>, 垣花将司<sup>B</sup>, 安次富洋介<sup>B</sup>, 木田孝則<sup>C</sup>, 田原大夢<sup>C</sup>,

萩原政幸<sup>C</sup>, 芳賀芳範<sup>D</sup>, 辺土正人<sup>E</sup>, 仲間隆男<sup>E</sup>, 大貫惇睦<sup>E</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学低温センター, <sup>B</sup> 琉球大学大学院理工学研究科, <sup>C</sup> 大阪大学大学院理学研究科  
附属先端強磁場科学研究センター, <sup>D</sup> 日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター,

<sup>E</sup> 琉球大学理学部

EuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> は ThCr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 型正方晶の結晶構造を持つ. Eu イオンは 2 価の状態では軌道角運動量  $L = 0$ ,  $S = 7/2$  の状態を取る. 多結晶試料による研究から,  $T_N = 23.5$  K で反強磁性秩序を示すことが分かっている[1]. 圧力を印加すると  $T_N$  はわずかに上昇し,  $P \sim 1$  GPa で反強磁性秩序が一次転移的に消失し一次の価数転移が現れる[2]. 最近本多らはブリッジマン法により EuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の単結晶育成に成功し, 詳細な圧力下の電気抵抗測定から価数転移の臨界点を報告している[3]. 一方, 単結晶試料における基礎物性測定はほとんど行われていない[4]. そこで本研究では EuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の単結晶試料における基礎物性を詳細に調べた. 電気抵抗, 比熱, 熱膨張測定では先行研究と同様に  $T_N = 23.5$  K で反強磁性転移が観測された. 図 1 に [100] と [001] 方向に磁場を印加したときの交流比熱の温度依存性を示す. 比熱のピークの磁

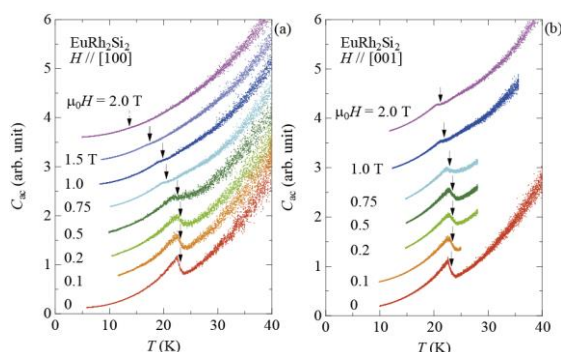


図 1 磁場中交流比熱の温度依存性.

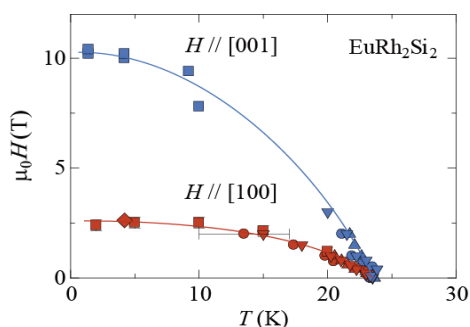


図 2 EuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の異方的磁気相図.

場依存性に観られるように, 低温の磁性はかなり異方的である事がわかる. 上記のように Eu<sup>2+</sup> は  $S$  状態であり単イオンの磁気異方性は期待できず, 常磁性状態での磁気異方性はない. また磁気秩序状態での磁気異方性も通常小さい. しかし EuRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 単結晶の磁化率の温度依存性は  $T_N$  よりかなり高温の常磁性状態から異方的であり,  $T = 1.8$  K での異方性は  $\chi_{[100]}/\chi_{[001]} \sim 2.5$  にもなる. さらに秩序状態での磁化も非常に異方的で, 異方性は磁化の飽和磁場  $H_c^{[100]} \sim 2.5$  T,  $H_c^{[001]} \sim 10$  T にも反映される. 得られた結果をまとめると図 2 の様な磁気相図が得られる.

[1] Z. Hossain et. al, J. Alloys Compd. 323–324, 396 (2001). [2] A. Mitsuda et. al, J. Phys. Soc. Jpn. 81, 023709 (2012). [3] F. Honda et. al, J. Phys. Soc. Jpn. 85, 063701 (2016). [4] S. Seiro and C. Geibel, J. Phys.: Condens. Matter 26, 046002 (2014).



## フェルダジル系塩で形成されるスピン交替鎖の強磁場物性

沖田大輝<sup>A</sup>, 山口博則<sup>A</sup>, 岩崎義己<sup>A</sup>, 河野洋平<sup>A</sup>, 細越裕子<sup>A</sup>, 木田孝則<sup>B</sup>,  
川上貴資<sup>C</sup>, 松尾晶<sup>D</sup>, 萩原政幸<sup>B</sup>

<sup>A</sup>大阪府立大学大学院理学系研究科, <sup>B</sup>大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター, <sup>C</sup>大阪大学大学院理学研究科, <sup>D</sup>東京大学物性研究所

有機ラジカル系における分子配列の多様性は、多種多様な量子スピンモデルの形成を可能にすると期待されている。我々は、フェルダジルラジカルへの原子置換を利用した緻密な分子設計により、多彩な量子スピンモデルの実現を実証してきた[1,2]。最近では、フェルダジルラジカルをカチオン化して、アニオンと組み合わせることにより、フェルダジル系塩の合成にも試みてきた。カチオン化のパターンとアニオンの種類をスピンモデル設計に効果的に取り込むことで、これまでに報告例のなかった正方格子フラストレート系の実現を可能にしている[3,4]。さらに、磁性アニオンと組み合わせること、有機ラジカルと磁性アニオンとの間の磁気相関を新たなスピンモデル設計のパラメータとして導入することにも成功した[5,6]。

最近合成に成功した新規電荷移動塩 (4-Br-o-MePyV)FeCl<sub>4</sub> では、スピン-(1/2,5/2)交替鎖の形成が示唆された。パルス強磁場を用いた低温での磁化測定によって、Lieb-Mattis の定理と Oshikawa-Yamanaka-Affeck によるトポロジカルな議論から予想されていた磁化プラトーを観測することができている。本研究では、Br を Cl に置き換えた新規電荷移動塩 (4-Cl-o-MePyV)FeCl<sub>4</sub> の合成に成功した。パルス強磁場磁化測定では、同様なスピン交替鎖の形成によって、明瞭な磁化プラトーが観測された。原子置換によって磁気相関に僅かな違いが生じているため、磁化曲線の振る舞いはいくらかの違いが生じている。これらに関する考察と基底状態に関する議論の結果を報告する。

- [1] H. Yamaguchi *et al.*, Sci. Rep **5**, 15327 (2015).
- [2] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. B **95**, 235135 (2017).
- [3] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 201109(R) (2018).
- [4] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 094402 (2018).
- [5] Y. Iwasaki *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 085113 (2018)
- [6] Y. Iwasaki *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 224411 (2018)

## フタロシアニン分子系 1 次元伝導体の強磁場物性

花咲徳亮<sup>A</sup>, 村川寛<sup>A</sup>, 酒井英明<sup>A</sup>, 木田孝則<sup>B</sup>, 萩原政幸<sup>B</sup>, 徳永将史<sup>C</sup>, 松田真生<sup>D</sup>  
<sup>A</sup> 大阪大学大学院理学研究科, <sup>B</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター, <sup>C</sup> 東京大学物性研究所, <sup>D</sup> 熊本大学先端科学研究部

伝導性と磁性の相関効果は興味深いものであり、近藤効果、巨大磁気抵抗効果など、長年に渡り研究されてきた。無機物質を中心に研究されてきたが、分子性物質で行う場合、伝導電子と局在スピンの相互作用をいかに確保するのが鍵となる。

フタロシアニン分子は、環状分子部にある  $\pi$  電子が電気伝導を担う。また分子中心の遷移金属原子に局在スピンあり、分子内で伝導電子と局在スピンの相互作用を確保できる。この分子から構成される伝導体において、巨大磁気抵抗効果を以前に報告した。伝導電子系は低温で電荷秩序状態になるが、局在スピンの反強磁性秩序が伝導電子系の電荷秩序を安定化させている。磁場で反強磁性ゆらぎを抑える事で電荷秩序の安定性が下がる。その結果、電気抵抗が下がったと考えられる。

この機構はマンガン酸化物における超巨大磁気抵抗効果と類似した機構であった。マンガン酸化物ではキャリア数依存性の研究が精力的に行われたが、局在スピンに対する依存性の研究はほとんどなかった。一方、フタロシアニン分子は分子中心の遷移金属原子を置換する事で、局在スピンのモーメントの大きさを調節したり、分子を非磁性にする事もできる。非磁性の分子と局在スピンを持つ分子の混晶を作り、局在スピン濃度に対する依存性を調べた。その結果、局在スピン濃度を希釈すると磁気抵抗効果が増幅され、局在スピン濃度が 30% 付近となる領域で磁気抵抗比は最大となった。

最近、局在スピンの準位を上昇させるため、3d 系の遷移金属原子を 4d 系の遷移金属原子に置換した所、伝導電子と局在スピンの相互作用が反強磁性的になった。現在、4d 系の遷移金属原子を用いて 1 次元近藤系を作れるのか研究を進めている。超強磁場を活用して、フタロシアニン分子系 1 次元伝導体の研究を進展させる事ができた。本発表ではこれまでの研究について紹介したい。

- [1] N.Hanasaki, M.Matsuda, H.Tajima, E.Ohmichi, T.Osada, T.Naito, and T.Inabe, J.Phys.Soc.Jpn., **75**, 033703 (2006).
- [2] N.Hanasaki, T.Tateishi, H.Tajima, M.Kimata, M.Tokunaga, M.Matsuda, A.Kanda, H.Murakawa, T.Naito, and T.Inabe, J.Phys.Soc.Jpn., **82**, 094713 (2013).
- [3] M.Ikeda, A.Kanda, H.Murakawa, M.Matsuda, T.Inabe, H.Tajima, and N.Hanasaki, J.Phys.Soc. Jpn., **85**, 024713 (2016).
- [4] M.Ikeda, T.Kida, T.Tahara, H.Murakawa, M.Nishi, M.Matsuda, M.Hagiwara, T.Inabe, and N.Hanasaki, J.Phys.Soc.Jpn., **85**, 064713 (2016).

## 超強磁場における有機伝導体の絶縁体金属転移の探索

中村健志<sup>A</sup>, 松田康弘<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 東京大学物性研究所

物質に強い磁場を加えると、物質の状態や性質は大きく変化し、ときには磁場によって様々な相転移が引き起こされる。絶縁体金属転移はその一例である。本研究ではモット絶縁体である、BEDT-TTF 系有機伝導体の絶縁体金属転移の探索を目的としている。

また、磁場誘起絶縁体金属転移に限らず幾つかの磁場誘起相転移は電気抵抗測定によって検出することができる。価数転移はその一つである。価数転移は磁化などで捉えられることが多いが、強磁場の印加によって電子の局在スピンの復活して磁気散乱が大きくなり高抵抗になるため、電気抵抗の変化としても検出することができる。電気抵抗測定はこのようにして幾つかの磁場誘起相転移を検出することができるため、磁場下で電気抵抗を測定することには大きな意義がある。

物質内部の相関相互作用が強いほど、強い磁場での研究が必要となるが、強磁場発生の難しさや、極限環境における測定の困難により研究は制限されている。中でも、100 T を超える破壊型パルス磁場下での電気抵抗測定は、誘導電流による試料の発熱や、誘導電圧によるノイズなどの困難を伴うため、電気抵抗測定手法はまだ十分に確立されていない。そこで本研究では、現在、一巻きコイル法を用いた 100 T 以上の超強磁場におけるストリップラインによる電気抵抗測定技術の開発を行っている。100 MHz 帯の高周波変調測定により、磁場発生時の大きな電磁ノイズを除去できると考えている。当日は、技術開発の現状と予備測定の結果について発表する、

## 単一フェルミ面における磁気抵抗の理論

栗島裕大, 伏屋雄紀  
電気通信大学基盤理工

磁気抵抗に関する理論では長年に渡り様々な取り組みが行われている. 例えば半金属やマルチバレー系のように, ブリルアンゾーン内に複数のフェルミ面がある場合には磁気抵抗が現れることが確認されている[1, 2]. しかしフェルミ面が一つだけの単一キャリアの計算では, 有効質量近似(放物型分散)を用いる限り, 異方性を考慮しても磁気抵抗が一切現れない. しかし実験的には, 有効質量近似が良いとされている物質でも磁気抵抗は観測されている. ここに理論と実験で大きな食い違いがある.

我々は単一キャリアにおける磁気抵抗を理論的に解明するために, フェルミ面の微細な構造に着目した. 本研究では, 任意のエネルギー分散から磁気抵抗を計算できるようにボルツマン理論を再構成し, 一般的な磁気抵抗の公式を得た. この公式をフェルミ面が球状からわずかに変形した一般模型(立方調和関数でエネルギー分散を展開)に適用し, フェルミ面の球状からの僅かなずれによって, 単一キャリアであっても磁気抵抗が生まれることを明らかにした. さらにSrTiO<sub>3</sub>の有効模型(k,p 理論により展開)に適用して磁気抵抗を計算し, 実験とよく一致する結果を得た[3].

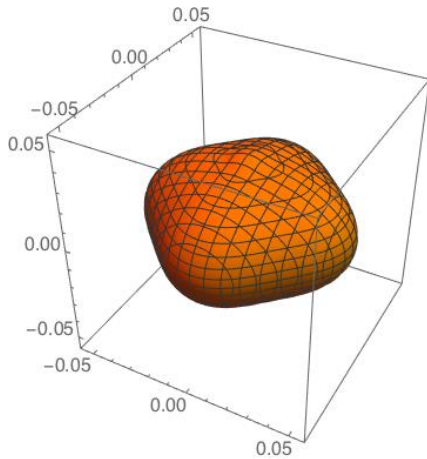


図1. STOのフェルミ面(n型)

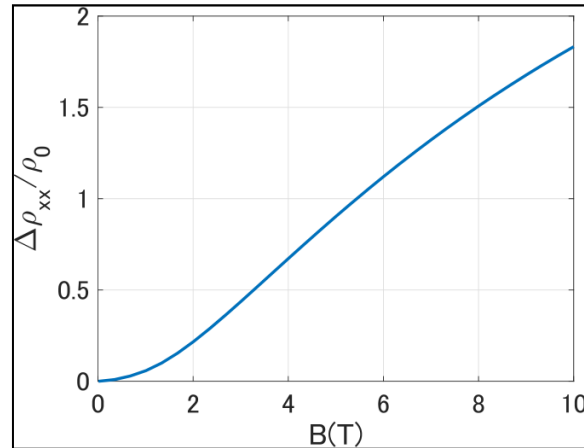


図2. STOの横磁気抵抗

- [1] G. Grosso, and G.Parravicini, *Solid State Physics* (Academic press,2014 )
- [2] Z. Zhu, B. Fauque, K. Behnia, Y. Fuseya, J.Phys.: Condensed. Matter., **30**, 31 (2018)
- [3] Y. Awashima, Y. Fuseya, J Phys.:Condensed Matter., **31**, 29LT01(2019)

## テルルの金属的表面状態における量子伝導

秋葉和人<sup>A</sup>, 小林夏野<sup>A</sup>, 小林達生<sup>A</sup>, 肥塚遼<sup>B</sup>, 三宅厚志<sup>B</sup>, 徳永将史<sup>B</sup>

<sup>A</sup>岡山大学大学院自然科学研究科, <sup>B</sup>東京大学物性研究所

テルルは空間反転対称性の破れたナローギャップの半導体である。キャリアドープを行っていないテルルの単結晶に対して行った磁気抵抗測定において von Klitzing らは Shubnikov-de Haas (SdH)振動を観測し、その起源は金属的な表面状態によるものであるとして説明した[1]。当時の研究では試料表面を酸で処理した試料を用いなければ量子振動が見られておらず、テルルの金属的な表面状態が特殊な化学処理の結果として生じたものかどうかは明らかでなかった。一方で近年テルルにおける電流磁気効果などが観測されるなど[2]、この物質の輸送現象が再び注目されるようになっている。こうした輸送現象を正しく理解するには、金属的な表面状態の正しい評価が不可欠である。

そこで我々は単結晶テルルの劈開面に対して、化学処理を行わない状態での磁気輸送特性の測定を行った[3]。最高 55T までの磁場下で測定した磁気抵抗の結果は、SdH 振動の存在を明瞭に示している (図 1)。磁場印加角度を変えた実験結果を解析すると、SdH 振動の周期は劈開面に垂直な磁場成分で決められていることから、劈開面に平行な二次元的表面状態による寄与であることがわかる (図 2)。本会ではこの表面状態の詳細について考察する予定である。

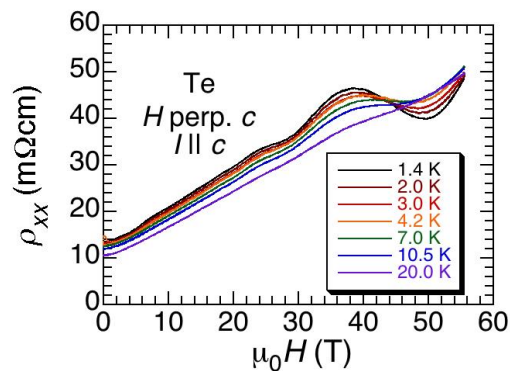


図 1 様々な温度で測定したテルル単結晶における横磁気抵抗。電流は結晶の  $c$  軸方向に印加している。

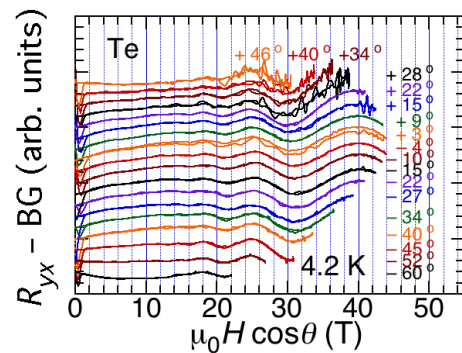


図 2 テルル単結晶のホール効果の磁場方位依存性。角度  $\theta$  は劈開面に垂直な方向から測った磁場の角度を表す。

### 参考文献

- [1] K. von Klitzing and G. Landwehr, Solid State Commun. **9**, 2201 (1971).
- [2] T. Furukawa *et al.*, Nature Commun. **8**, 954 (2017).
- [3] K. Akiba *et al.*, submitted.

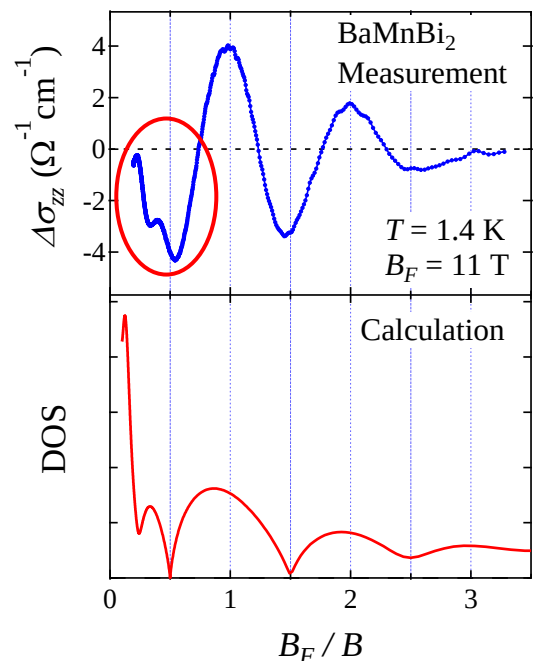
# 多層ディラック電子系物質 BaMnBi<sub>2</sub> の量子極限近傍における

## 特異なランダウ準位構造

近藤雅起<sup>A</sup>, 酒井英明<sup>A,B</sup>, 藤村飛雄吾<sup>A</sup>, 中川賢人<sup>A</sup>, 栗原綾佑<sup>C</sup>, 三宅厚志<sup>C</sup>,  
徳永将史<sup>C</sup>, 木田孝則<sup>D</sup>, 萩原政幸<sup>D</sup>, 村川寛<sup>A</sup>, 花咲徳亮<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 阪大院理, <sup>B</sup> JST さきがけ, <sup>C</sup> 東大物性研, <sup>D</sup> 阪大先端強磁場

グラフェンに代表される、線形なバンド分散が交差する特異な電子構造を持ったディラック電子系は、非自明なベリー位相に由来する新奇物性が発現することにより近年大きな注目を集めている。磁場中では通常電子系と同じくランダウ準位を形成するが、ディラック点に固定された最低準位であるランダウゼロモードが存在する等、両者でその詳細は大きく異なる。理想的なディラック電子系ではディラック点においてゼロギャップ状態となるが、摂動としてスピン軌道相互作用を考慮することによりディラック点にギャップが生じることが示唆されている[1]。これにより量子極限付近のランダウ準位構造は大きく変化すると予想される。しかし、これまで実験的な検証が可能な系は見出されておらず、本研究ではその理想的な系として層状物質 AMnBi<sub>2</sub> (A: アルカリ土類) に注目した。本系ではグラフェンと類似したディラック電子状態を有する Bi の二次元層が積層した結晶構造をしており、グラフェンに比べスピン軌道相互作用が強く寄与したディラック電子状態が期待できる。特に BaMnBi<sub>2</sub> は他の系に比べ低キャリア濃度であるため、強磁場により量子極限状態への到達が可能である。我々はこの物質における量子極限近傍の電子状態解明のため、最大 56 T のパルス強磁場下での電気抵抗率測定を行った。量子極限近傍となる 30 T 以上において、量子振動の周期とは一致しないピーク構造を発見した (図中の囲み部)。数値計算により求めたランダウ準位の磁場依存性との比較から、この構造がゼロモード由来であることが示唆された。



図：強磁場下で観測された BaMnBi<sub>2</sub> の層間伝導率  $\sigma_{zz}$  の振動成分  $\Delta \sigma_{zz}$  (上段) と数値計算により求めた状態密度の磁場依存性 (下段)。

[1] C. L. Kane and E. J. Mele, Phys. Rev. Lett. **95**, 226801 (2005)



# キャリア濃度を制御した多層ディラック電子系 $\text{Eu}_{1-x}\text{Gd}_x\text{MnBi}_2$

## におけるランダウ準位分裂の観測

中川賢人<sup>A</sup>, 酒井英明<sup>A,B</sup>, 鶴田圭吾<sup>A</sup>, 塩貝純一<sup>C</sup>, 木村尚次郎<sup>C</sup>,  
淡路智<sup>C</sup>, 塚崎敦<sup>C</sup>, 村川寛<sup>A</sup>, 花咲徳亮<sup>A</sup>  
阪大院理<sup>A</sup>, JST さきがけ<sup>B</sup>, 東北大金研<sup>C</sup>

ディラック電子系を有する層状反強磁性体  $\text{EuMnBi}_2$  は、Bi 正方格子からなるディラック電子の伝導層と、Eu サイトと Mn サイトからなるブロック層が交互に積層した構造を持つ。このため、Eu 副格子の反強磁性秩序がディラック電子状態と強く結合し、それに由来したスピン分裂が生じることが知られている[1]。また、ブロック層の元素置換を用いてキャリア密度を減少させた  $\text{Eu}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{MnBi}_2$  では、 $N=1$  のランダウ準位の全貌を観測することができ、スピン分裂のみでは説明できない分裂構造が観測されており、スピン縮退に加えバレー縮退も解けることが示唆されていたが、詳細は不明であった[2]。

そこで本研究では、ディラック点近傍のランダウ準位構造の解明を目的とし、元素置換でキャリア密度を減少させた  $\text{Eu}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{MnBi}_2$  において、傾斜磁場下における面内抵抗率  $\sigma_{xx}$  を磁場の逆数で二階微分した結果を示す。 $\theta=0^\circ$  における  $B_F/B=0.5, 1.5$  のディップは母物質との類推からサイクロトロンギャップと考えられ、 $N=1$  のランダウ準位では、4つの分裂構造が観測されている。さらに、この分裂構造が角度に対し複雑に変化する結果を得た。発表では、この複雑な変化を計算から得られたモデルと比較し、ディラック点近傍でのランダウ準位構造について議論する予定である。

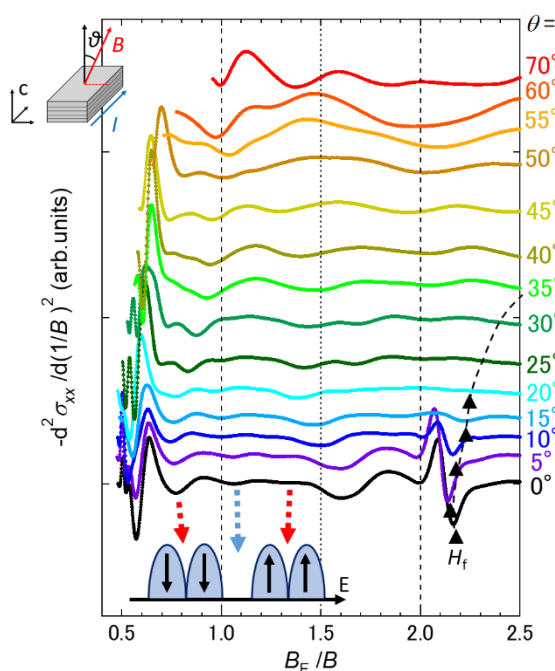


Fig.1  $\text{Eu}_{0.99}\text{Gd}_{0.01}\text{MnBi}_2$  の傾斜磁場下における  $\sigma_{xx}$  を磁場の逆数で二階微分した結果。横軸は磁場の逆数を SdH 振動の振動数  $B_F$  で規格化している。挿入図はスピン分裂が支配的な場合の模式図を示す。

[1] H. Masuda, *et al.* Phys. Rev. B **98**, 161108 (2018)

[2] 鶴田圭吾 他, 日本物理学会 2017 年秋季大会 24aB31-8

## 強磁性ワイル半金属候補物質 PrAlGe の電気伝導特性の研究

中岡優大<sup>A</sup>, 村川寛<sup>A</sup>, 横井滉平<sup>A</sup>, 駒田盛是<sup>A</sup>, 木田孝則<sup>B</sup>, 中川賢人<sup>A</sup>,

藤村飛雄吾<sup>A</sup>, 鳴海康雄<sup>B</sup>, 萩原政幸<sup>B</sup>, 酒井英明<sup>A,C</sup>, 花咲徳亮<sup>A</sup>

<sup>A</sup>大阪大学大学院理学研究科,

<sup>B</sup>大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター, <sup>C</sup>JST さきがけ

$R\text{AlGe}$  ( $R = \text{La}, \text{Ce}, \text{Pr}$ ) は正方晶  $\text{LaPtSi}$  型結晶構造をとり、空間反転対称性を破ることで、カイラリティの異なる線形分散の交差点(ワイル点)がペアで出現するワイル半金属であることが理論計算により指摘されている[1]。その中で、 $\text{CeAlGe}$  と  $\text{PrAlGe}$  では、各希土類金属の  $4f$  電子による局在磁気モーメントが磁気秩序を形成するが、 $\text{CeAlGe}$  は磁気秩序と絡んだ電気伝導特性を持つ事が報告されている[2]。

そこで本研究では、 $\text{PrAlGe}$  の磁気構造と関連した電気伝導特性の観測を目指し、Al フラックス法で合成した単結晶を用いて、磁化測定と電気抵抗率測定を行った。その結果、 $\text{PrAlGe}$  は 14 K で強磁性転移し、 $c$  軸を容易軸とする強い磁気異方性を持つ事が分かった。図は  $T = 2$  K における、 $H // c$  軸方向としたときの磁化とホール抵抗率の磁場依存性を示している。磁化は磁場 0.4 T で  $3.1 \mu_B / \text{Pr atom}$  に飽和し、ヒステリシスを示した。また、この磁化の振る舞いに対応した異常ホール効果が観測された。この異常ホール効果の起源について、トポロジカルなバンド分散による内因的機構により期待される値と比較して議論していく予定である。

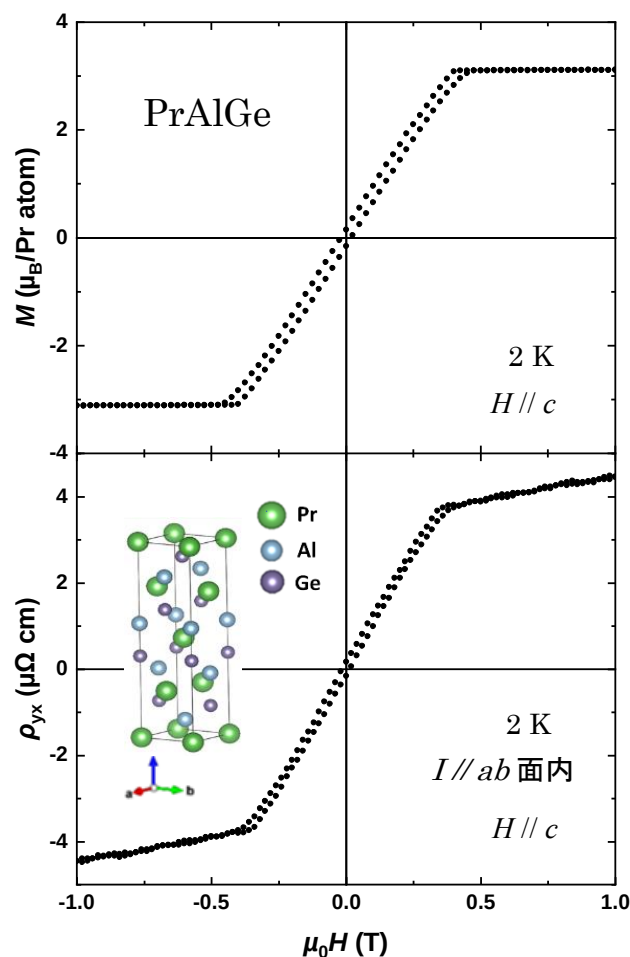


図:  $\text{PrAlGe}$  の磁化と異常ホール効果

挿入図は  $\text{PrAlGe}$  の結晶構造

[1] Guoqing Chang *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 041104 (2018).

[2] H. Hodovanets *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 245132 (2018).

## カイラル半導体における量子極限状態での非相反磁気抵抗

須藤健太<sup>A</sup>, 木俣基<sup>A</sup>, 小林夏野<sup>B</sup>,

<sup>A</sup> 東北大学金属材料研究所, <sup>B</sup> 岡山大学,

非相反磁気抵抗とは、磁場中での電気抵抗が電流の方向に依存して異なる現象であり、空間反転対称性の破れた結晶構造をもつ物質で普遍的に発現すると考えられている。この現象は、空間反転対称性の破れによってスピン分裂したバンド構造とも密接に関連し、伝導電子を持つ系における電気磁気効果の新形態と考えることも出来る。これまで積層方向に空間反転を持たないラシュバ型の極性半導体において観測例[1]があるが、他の対称性破れを持つ構造での検証は進んでいない。また、ランダウ量子化や量子極限などの強磁場中での顕著な効果が非相反抵抗にどのような様に現れるのかも未解明である。本研究ではカイラル(らせん)構造をもつ非磁性半導体 Te に着目し、非相反磁気抵抗測定を行なった。また、極低温強磁場下で測定することで新現象の発見を目指した。

非相反磁気抵抗はロックインアンプを用いた交流抵抗測定の倍周波成分を検出することで観測できる。実験では、Te のバルク結晶において磁場の角度を変化させながら(図 1)ロックイン測定を行うことで、磁気抵抗および、非相反磁気抵抗の電流と磁場の角度依存性を測定した。図 2 に主要な結果を示す。単純なモデルでは、非相反磁気抵抗の角度依存性は三角関数の 1 次の項のみで記述でき、振幅も磁場の増加に伴い単調に増加することが期待される。しかし強磁場下では明確に 3 次以上の角度依存性を示す項が現れ、振幅も非自明な振る舞いを示した(図 2)。

発表では高次の角度依存性が出現する条件や非自明な振幅の磁場依存性を考察し、量子極限状態との関連を含めてその起源を議論する。

[1] T. Ideue et al. Bulk rectification effect in a polar semiconductor Nat.Phys. 13 578-583 (2017)

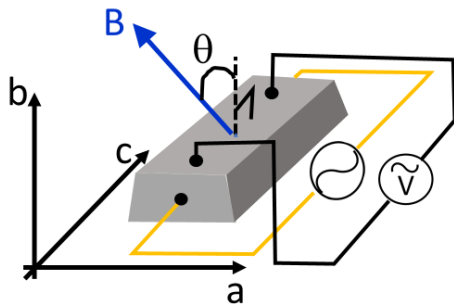


図 1 電流と磁場の角度

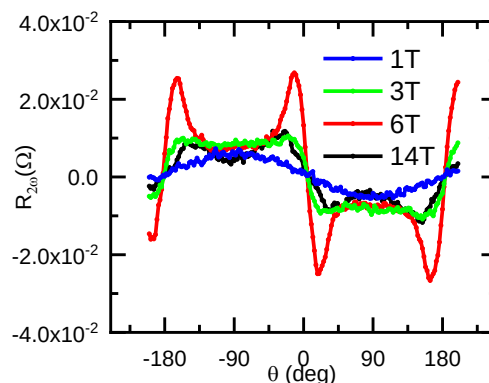


図 2 2Kにおける非相反磁気抵抗の角度依存性

## Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> 磁場誘起半金属-半導体転移の探索

藤田琢也<sup>A</sup>, 徳永将史<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 東京大学物性研究所

全電子が最低ランダウ準位のみ占有する量子極限状態は強磁場特有の物質状態である。電子のサイクロトロン質量が小さい Bi は、わずか 10T 程度で量子極限状態に達することが知られ、量子極限での物性研究が多くなされている。磁場が量子極限より大きい状況では電子とホールバンドの重なりがなくなり、半金属-半導体転移が起きることが予想される。転移点付近では励起子相の存在などが理論的に予言されているが、その転移磁場は Bi においてでも大きく、実験的に実現されていない。

Bi に同族元素 Sb をドーピングした Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> では Bi の磁場スケールを下げる事が知られており、Bi の強磁場下での物性をより小さな磁場下で実現できる。われわれは  $x=0.041$  の Bi<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub> において磁場を Bisectrix 軸方向に印加し、40T 付近で横磁気抵抗の発散を観測した。対応する量子振動の振幅の温度依存性、発散磁場の磁場方向依存性などから、これを半金属-半導体転移であると考えた。

## Evidence of BCS-BEC Crossover Obtained from Upper Critical Field $H_{c2}$ in Annealed $\text{Fe}_{1+y}\text{Se}_x\text{Te}_{1-x}$ Single Crystals

Yongqiang Pan<sup>A</sup>, Nan Zhou<sup>A</sup>, Xiangzhuo Xing<sup>A</sup>, Zhixiang Shi<sup>A</sup>, Jinhua Wang<sup>B</sup>, Zengwei Zhu<sup>B</sup>, Masashi Tokunaga<sup>C</sup>

<sup>A</sup>Department of Physics, Southeast University, Nanjing, People's Republic of China.

<sup>B</sup>Wuhan High Magnetic Field Center, Wuhan, People's Republic of China.

<sup>C</sup>The Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo.

### Abstract

After the ARPES experiments revealed the occurrence of BCS-BEC crossover by changing excess Fe content  $y$  in  $\text{Fe}_{1+y}\text{Se}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  single crystals [1], this superconductor attracted renewed attention. Recently we prepared the  $\text{Fe}_{1+y}\text{Se}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  single crystals that contain different excess Fe content  $y$  by annealing with Se, and measured the upper critical field  $H_{c2}$  of those samples in Wuhan High Magnetic Field center and the Institute for Solid State Physics. The difference in  $H_{c2}$  behavior indicates that excess Fe content has an effect on the superconductor pairing mode or coupling strength. After analyzing and fitting the behavior of  $H_{c2}$  by using the disordered Hubbard model [2], we find possible relationship between  $y$  and coupling strength. The  $y$ -related coupling strength value shows a threshold between BCS weak coupling strength ( $\ll 1$ ) and BEC strong coupling strength ( $\gg 1$ ) according to the disordered Hubbard model, which can be another important evidence to support the crossover of BCS-BEC determined by excess Fe content  $y$  in  $\text{Fe}_{1+y}\text{Se}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$  single crystals.

[1] Rinott *et al.*, Sci. Adv. 3: e1602372(2017).

[2] E. Z. Kuchinskii *et al.*, J. Exp. Theor. Phys. **125**, 1127 (2017).

## 神戸大学における強磁場を用いた多重極限 THz ESR

太田仁<sup>A</sup>, 大久保晋<sup>A</sup>, 大道英二<sup>B</sup>, 櫻井敬博<sup>C</sup>, 高橋英幸<sup>A,D</sup>, 原茂生<sup>C</sup>

<sup>A</sup> 神戸大学分子フォトサイエンス研究センター, <sup>B</sup> 神戸大学大学院理学研究科,

<sup>C</sup> 神戸大学研究基盤センター, <sup>D</sup> JST さきがけ

神戸大学の多重極限 THz ESR について報告する。その特徴は次の通りである。

- 1) ガン発振器と増倍器, BWO, FIR レーザーで 0.03~7 THz をカバー[1]。
- 2) パルス磁場で 55 T, 超伝導磁石で 15 T をカバー[1]。
- 3) 高圧はピストンシリンダーセルで, パルス磁場なら 1.5 GPa まで[2], 定常磁場ならハイブリッドタイプで 2.7 GPa まで[3]をカバー。
- 4) 高感度力検出 THz ESR なら, マイクロカンチレバーESR[4]で 1.1 THz まで[5]カバー。

これまでの進展として, 市販の membrane-type surface stress sensor を用いた高感度磁気検出[6]と高感度 THz ESR[7]や, ハイブリッドタイプ圧力セルを用いた Shastry-Sutherland モデル物質  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の THz ESR による圧力誘起相転移 ( $P_c=1.85$  GPa) の発見[8]がある。最新の成果として, 東北大金研強磁場センターの無冷媒 25T 超伝導磁石と, 我々のハイブリッドタイプ圧力セルを組み合わせた THz ESR の共同開発と[9], それを用いた成果について触れたい[10]。

- [1] H. Ohta et al., *J. Low Temp. Phys.* **2013**, 170, 511.
- [2] T. Sakurai et al., *Rev. Sci. Instr.* **2007**, 78, 065107; T. Sakurai, *J. Phys.: Conf. Series*, **2010**, 215, 012184.
- [3] K. Fujimoto et al., *Appl. Mag. Res.* **2013**, 44, 893; T. Sakurai et al., *J. Mag. Res.*, **2015**, 259,108; *J. Mag. Res.*, **2017**, 280, 3 (**Invited review**).
- [4] H. Ohta et al., *AIP Conf. Proceedings* **2006**, 850, 1643; E. Ohmichi et al., *Rev. Sci. Instrum.* **2008**, 79, 103903; E. Ohmichi et al., *Rev. Sci. Instrum.* **2009**, 80, 013904; H. Ohta and E. Ohmichi, *Appl. Mag. Res.* **2010**, 37, 881; E. Ohmichi et al., *J. Mag. Res.* **2013**, 227, 9; E. Ohmichi et al., *Rev. Sci. Instrum.* **2016**, 87, 073904; E. Ohmichi et al., *J. Inorganic Biochemistry* **2016**, 162, 160 (**Invited paper**).
- [5] H. Takahashi, E. Ohmichi, H. Ohta, *Appl. Phys. Lett.* **2015**, 107, 182405.
- [6] H. Takahashi et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **2017**, 86, 063002 (**Editor's Choice**).
- [7] H. Takahashi et al., *Rev. Sci. Instrum.* **2018**, 89, 036108
- [8] H. Ohta et al., *J. Phys. Chem. B* **2015**, 119,13755 (**Invited paper**); T. Sakurai et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **2018**, 87, 033701.
- [9] T. Sakurai et al., *J. Mag. Res.* **2018**, 296, 1-4
- [10] S. A. Zvyagin et al., *Nature Communications*, **2019**, 10,1064



## 1000 T 磁場による強相関絶縁体の磁場誘起金属相の研究

松田康弘, 池田暁彦, 中村大輔, 澤部博信

東京大学物性研究所

物性研究所では電磁濃縮法による超強磁場発生技術の開発とその物性研究への応用に長期にわたり取り組んでいる。2018 年度には新型装置を用いることで 1200 T の発生に成功した[1]。この磁場領域では、従来不可能であった室温程度の強い相互作用を持つ物質群のスピン制御が可能となり、様々な新規の磁場誘起相転移の発現が期待できる。

モット絶縁体近傍の物質群は低温で絶縁体化と同時に反強磁性秩序やスピン一重項状態をとるため、そのような研究の対象物質として興味深い。絶縁体化におけるスピンの役割や電子状態のスピン依存性は多くの物質で明らかになっていない。例えば、典型的な強相関絶縁体の 1 つである  $\text{VO}_2$  は 340 K で金属絶縁体 (MI) 転移が起こるが、同時にバナジウム 2 量体化による構造相転移を伴い、磁氣的基底状態はスピン一重項となる。発見から 60 年経った現在もその金属絶縁体転移のメカニズムは十分理解されていない。最近我々は、W 置換で MI 転移温度を 100 K 程度にコントロールした  $\text{V}_{1-x}\text{W}_x\text{O}_2$  ( $x = 0.06$ ) において低温で磁場誘起絶縁体金属転移を 500 T で見出した。この結果から、磁場によるバナジウム 2 量体の抑制が期待され、 $\text{VO}_2$  の絶縁体化において構造不安定性が主たる要因であることが示唆される。また一方で、低温強磁場で現れる新規金属相では電子相関効果が強く効いていると期待でき、その物性の解明は今後の研究課題である。さらに、低温でスピン一重項状態を伴って絶縁体化する強相関物質は多数発見されており、 $\text{VO}_2$  と同様に電子状態のスピン依存性はよく理解されていないため、興味深い研究対象となる。

講演では、 $\text{V}_{1-x}\text{W}_x\text{O}_2$  ( $x=0.06$ ) についての最近の超強磁場実験の結果を紹介し、1000 T 強磁場を用いた強相関絶縁体の今後の研究展開について議論したい。

[1] D. Nakamura, A. Ikeda, H. Sawabe, Y. H. Matsuda, and S. Takeyama, "Record indoor magnetic field of 1200 T generated by electromagnetic flux- compression, "Rev. Sci. Instrum. **89**, 095106 (2018).

## 超強磁場におけるバナジウム強相関電子系の磁化過程

鈴木悠太<sup>A</sup>, 松田康弘<sup>A</sup>, 三宅厚志<sup>A</sup>, 徳永将史<sup>A</sup>, 山内徹<sup>A</sup>, 池田暁彦<sup>A</sup>, 櫻井裕也<sup>B</sup>

東大物性研<sup>A</sup>, 物材機構<sup>B</sup>

バナジウム酸化物  $\text{Sr}_2\text{VO}_4$  は  $\text{K}_2\text{NiF}_4$  型構造を持ち、 $\text{V}^{4+}$  ( $3d^1$ ) が二次元正方格子を形成する、 $S = 1/2$  のモット絶縁体である。正方対称の結晶場によって基底状態が縮退した  $d_{yz}/d_{zx}$  軌道を 1 つの  $3d$  電子が占有し軌道自由度が残ることから、スピン軌道相互作用によって非自明な磁氣的性質が発現することが予想される。この系では以下のような構造相転移が観測される。高温では正方晶であり、 $T_2 = 127 \text{ K}$  で直方晶に転じた後、 $T_1 = 101 \text{ K}$  で再び正方晶になる[1]。この構造相転移の起源はまだ明らかになっていない。磁氣的状態に関しては  $T_N = 10 \text{ K}$  で反強磁性転移がみられ、この温度領域のみで内部磁場が観測される[2]。また基底状態に関して、ストライプ型スピン軌道秩序モデル[3]と磁気八極子秩序モデル[4]が提案されているが明らかとなっていない。

これまでに我々は粉末試料を用いて、60 T まで様々な温度での磁化過程を調べてきた。そこでは、温度に依存する非単調な磁化過程が見出されたが[5]、飽和磁化の 1/6 程度しか観測されておらず、さらに強磁場領域での実験が望まれていた。本研究では磁場誘起新規相の探索を目的に、一卷きコイル法を用いて 100 T 以上の磁場領域における磁化測定を行っている。4 K で得られた磁化曲線にはいくつかの特徴的な折れ曲がりが見出されたが、エラーバーと同程度の変化であるため、さらなる検証が必要である。当日は、 $T_1$  直下の 100 K 近傍での測定過程についても紹介する。

[1] H. Sakurai, Phys. Procedia, **75**, 829 (2015)

[2] I. Yamauchi, et al., Phys. Rev. B. **92**, 064408 (2015)

[3] Y. Imai et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 176405 (2005)

[4] G. Jackeli et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 067205 (2009)

[5] 三宅厚志ら、未出版

## High power THz spectroscopy in strong magnetic fields

Dmytro Kamenskyi

*Experimental Physics V, Center for Electronic Correlations and Magnetism, Institute of Physics, University of Augsburg, Germany*

Recent development of the connection between Free Electron Laser (FEL) THz-radiation facility (FELIX laboratory) and High Magnetic Field Laboratory (HFML) at Radboud University (Nijmegen, Netherlands) opens new opportunities for the THz spectroscopy in high magnetic fields. In this talk, I am going to discuss first experiments performed using this unique combination and new opportunities for the users of HFML and FELIX facilities.

The FELIX Laboratory exploits intense, short-pulsed infrared and THz free electron lasers. The three lasers FELIX-1, FELIX-2 and FLARE each produce their own range of wavelengths and together, they provide a tuning range between 3 and 1500  $\mu\text{m}$  (7 - 3000  $\text{cm}^{-1}$ ). Recently, the 90m-long evacuated, optical beam transportation line with 41 gold-coated mirrors was built to couple the lasers to the HFML high-field Bitter magnets which generate fields up to 37.5 tesla.

There are several experimental setups already available for users. The combination of the tunable THz FEL with high-field magnets makes multifrequency magnetic resonance (MR) experiments straightforward. The developed MR setup apart from the resonance studies over unique range of frequencies and magnetic fields allows for the high-resolution study of the FEL spectral characteristics [1]. In my presentation I'm going to discuss the coherency of the pulsed radiation from FEL and its manifestations in Electron Paramagnetic resonance spectra.

Another important feature of the THz FEL radiation is extremely high flux of the photons (up to  $10^{20}$  for a 3  $\mu\text{s}$  pulse). Such flux triggers non-linear phenomena in semiconductors and gases. As examples I'll show the non-linear development of cyclotron resonance spectra in p-doped germanium and THz induced plasma emission in helium gas.

[1] M. Ozerov *et al.* Appl Phys. Lett. **110**, 094106 (2017)

## 電気二重層コンデンサによるロングパルス磁場の発生

小濱 芳允, 松井 一樹, 金道 浩一

東京大学物性研究所

“磁場”は物性物理のみならず、日常生活においても広く利用される外場である。しかし強い磁場の発生は非常に高コストであり、例えば20テスラの磁場を発生できる超伝導磁石は、およそ数千万円の膨大な費用がかかる。このような高価な超伝導磁石の代替手法としてパルス磁場があるが、安価に発生できるパルス磁場は測定時間が数ミリ秒と非常に短く、精密な物性測定は困難といえる。一方、2桁以上長い測定時間（～1秒）を有する“ロングパルス磁場”は、比熱や核磁気共鳴（NMR）などの低速測定に適しており、詳細な物性研究のプラットフォームとなりえる。しかしながら、このようなロングパルス磁場の発生には、フライホイール発電機などの特殊な電源が必要であり<sup>1</sup>、数億～数十億円規模の費用がかかるため、限られた強磁場施設以外ではその整備は不可能とされていた。このためパルス磁場を使った研究は、一般の研究者にとって敷居が高く、ほとんど全ての物性研究は、せいぜい20テスラまでの低い磁場領域に限られていた。

本研究では、非常に高価なロングパルス磁場を“安価な電気二重層コンデンサ電源で発生可能”とし、これにより多くの研究者に高磁場環境を利用可能とすることを目標としている。本研究の核となる“電気二重層コンデンサ”は、昨今の社会的なニーズの高まりにより、電気自動車や瞬停装置などに広く利用され、この20年で3桁のコストダウンが達成された。この研究では、この安価な電源を使うことで、磁場発生における大幅なコストダウンを狙っている。小規模なスーパーキャパシタ電源を使ったテストを進めており、現在のところ20テスラ弱であれば、1～20秒幅のロングパルス磁場の発生に成功し、約6キロアンペアの放電にも成功した(図1)。この電流および磁場データを議論しつつ、マグネットや電気二重層コンデンサの性能を変えることで、どのようなロングパルス磁場が発生されるかについて議論する。

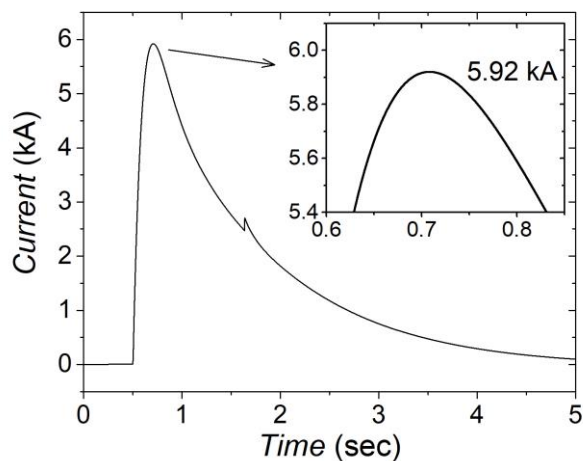


図1 電気二重層コンデンサによる放電波形

[1] L. J. Campbell, H. J. Boenig, D. G. Rickel, J. B. Schillig, H. J. Schneider-Muntau and J. R. Sims, *Physica B* **216**, 218 (1996).

## 圧力下強磁場 ESR 装置における圧力較正方法の確立

安谷佳将<sup>A</sup>, 櫻井敬博<sup>B</sup>, 菅原仁<sup>A</sup>, 大久保晋<sup>C</sup>, 太田仁<sup>C</sup>

<sup>A</sup> 神戸大院理, <sup>B</sup> 神戸大研究基盤セ, <sup>C</sup> 神戸大分子フォトセ

我々は高圧下強磁場 ESR 装置の開発を行っている。その課題の一つは ESR 測定と同環境下における圧力較正手法の確立である。我々の ESR 測定では、全ての内部部品がセラミクスで出来た電磁波透過型の圧力セル[1]を用い、セル中の試料の透過電磁波強度を観測しているため、電磁波の進行の妨げになる様な試料空間への導線導入が困難である。そこで、圧力セルとインサーションとの間にあるスペースを利用し、交流磁化率測定により、圧力セル内のスズの超伝導転移温度の測定から試料空間内部の発生圧力を較正する装置の開発を行った。

作製した装置による交流磁化率測定の結果は図のようになった。図 1 において、圧力の増加に伴う、スズの超伝導転移温度の低温側へのシフトの測定に成功した。この結果を用いて、圧力セル内での発生圧力を計算した結果が図 2 である。過去に別の実験方法を用いて求めた発生圧力のプロットと曲線上でよく一致し、今回作製した装置によって正しく圧力較正が可能であることを確認することができた。また、現在までに ESR 測定に十分な透過電磁波強度も確認しており、ESR 測定と同環境下における圧力較正が可能になったと考えられる。講演ではこれらの詳細について報告する。

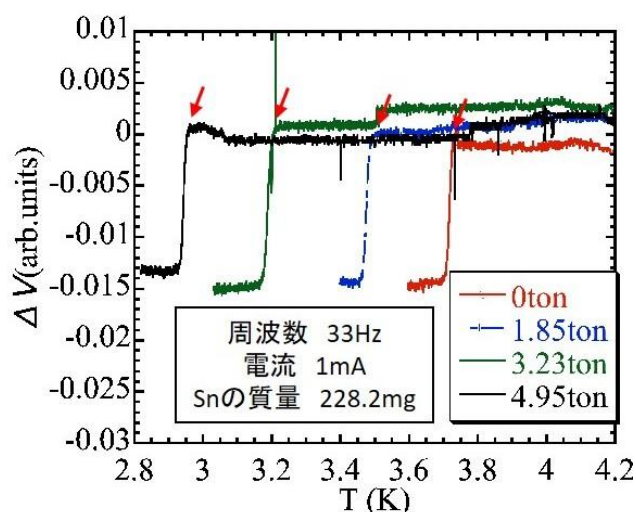


図 1 圧力に対する超伝導転移温度の変化

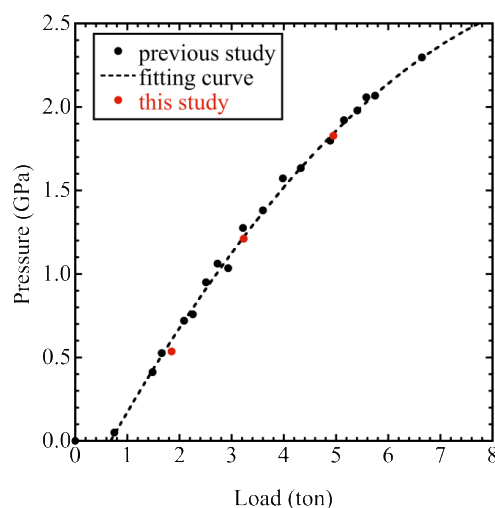


図 2 室温での荷重に対する低温での発生圧力

## 強磁場精密偏光 ESR 測定に向けた回転プローブの開発

西井健剛, 菊田朋生, 赤木暢, 澤田祐也, 谷口一也, 萩原政幸

大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター

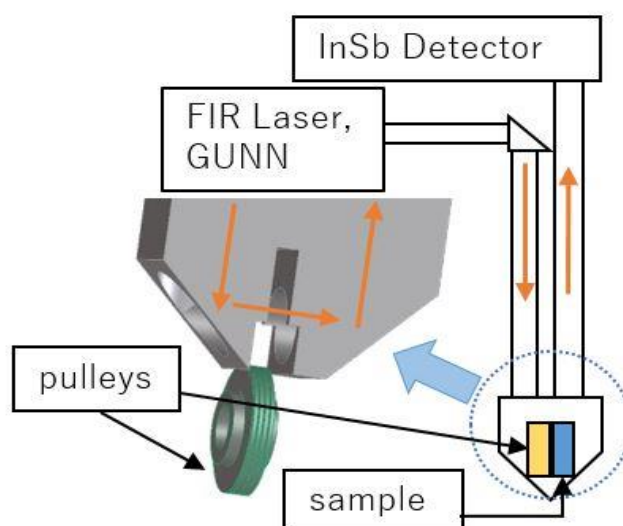
近年、電場により磁化が変化、磁場により電気分極が変化するなど誘電性と磁性が強くカップルしたマルチフェロイック物質が注目を集めている。マルチフェロイック物質の中には電場で励起できるマグノン(エレクトロマグノン)が存在するものがあり、その発現機構に関する研究が盛んにおこなわれている。

エレクトロマグノンを観測する方法として、電子スピンの励起を透過光強度の変化で観測する電子スピン共鳴 (ESR) 測定は非常に有力である。さらに ESR とパルス強磁場を組み合わせることによって、励起モードの振る舞いを強磁場まで観測することで、より詳しく解析することが可能となる。ESR の結果からエレクトロマグノン励起を同定するためには、入射光を偏光し振動電場の向きを制御し、偏光角度依存性を詳しく調べる必要がある。また、オケルマナイト型物質  $\text{Sr}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  などで見られるスピン四極子励起では、特異な偏光角度依存性が示唆されている。このように、ESR における偏光角度依存性の測定は非常に有意義なものである。

しかし、従来のパルス強磁場 ESR 測定では偏光角度依存性を測定する際、一度光を止めプローブをマグネットから取り出し、内部の偏光子を回してプローブをマグネットに入れ、もう一度光を入射する必要があった。その際、光源の出力、光路などの変化によって強度の偏光依存性比較が困難であった。このため、エレクトロマグノン励起の判別が出来なかった。このようなことからプローブの外から偏光方向を変える機構の必要性を感じた。

今回、プーリーの中に偏光子を入れ回転させるプローブを製作し、プローブの外部から偏光子を回すことに成功し、偏光角度を  $0^\circ$  から  $180^\circ$  の範囲で調節することが可能になった。

講演では今回製作したプローブの性能評価の結果について発表する。



図：強磁場精密偏光 ESR 用回転プローブの概念図



# 光伝導アンテナを用いた連続周波数可変テラヘルツ

## ESR 測定法の開発

港啓介<sup>A</sup>, 大道英二<sup>A</sup>, 太田仁<sup>B</sup>

<sup>A</sup> 神戸大学大学院理学研究科, <sup>B</sup> 神戸大学分子フォトサイエンス研究センター

電子スピン共鳴 (ESR) と呼ばれる測定手法を用いることで、着目する不対電子の置かれている局所環境について知ることができる。通常、ESR 測定は X-band ( $\sim 9.4$  GHz) 帯の装置を用いて行われる。しかし、磁性体のように線幅の広い ESR 信号に対しては十分なスペクトル分解能を得ることが難しい。そのような場合、電磁波の周波数をテラヘルツ帯へと拡張することで信号観測が可能になる。テラヘルツ波を発生できる光源には後進行波管 (BWO) などが知られているが、出力が発振周波数に大きく依存することが知られている。連続的に波長が変えられるテラヘルツ光源があれば、分光的な観点からは大きな利点となる。本研究ではこのようなテラヘルツ光源として、光伝導アンテナを用いた連続周波数可変光源に着目し、テラヘルツ領域における新しい ESR 測定装置の開発を行った。

実験装置の概略図を図 1 に示す。2 台の DFB レーザーから照射された波長のわずかに異なる 2 色の光が光伝導アンテナに照射されると、うなりの周波数であるテラヘルツ帯の電磁波が光伝導アンテナから発生する (photomixing)。試料を透過したテラヘルツ波は検出器用光伝導アンテナにより検出される。この方法では DFB レーザーの波長を変えることにより、50-1100 GHz の範囲で発生できるテラヘルツ波の周波数を連続的に変えることができる。

図 2 に ESR 標準試料である DPPH ラジカル (質量 29.50 mg) のペレット試料について室温下で観測された ESR 信号を示す。181.33 GHz の測定周波数に対し、6.43 T 付近に鋭い吸収が観測された。測定周波数を 50-250 GHz まで 10 GHz 毎に変えて測定を行ったところ、全ての周波数で ESR 信号を取得することに成功した。信号雑音比から、最小検出スピンの数は  $1 \times 10^{16}$  スピン、最小検出スピン感度は  $4 \times 10^{15}$  スピン/mT と見積もられた。

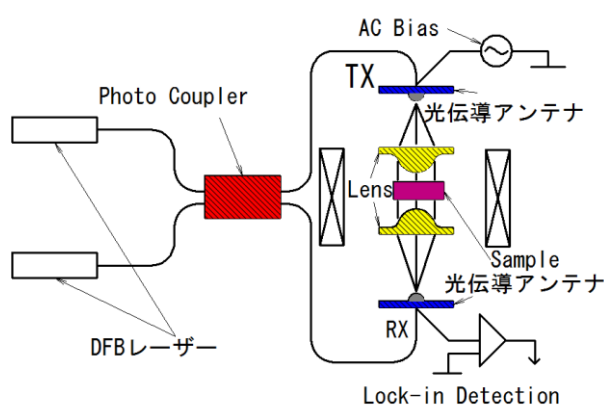


図 1: 実験装置の概略図

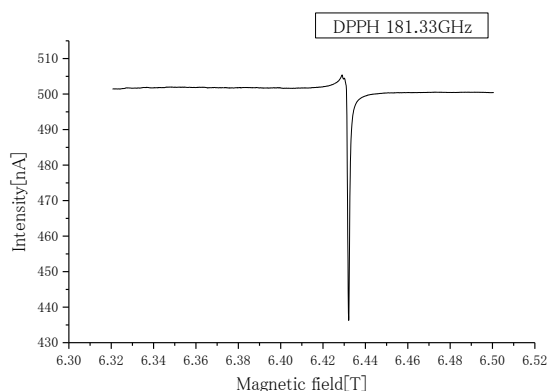


図 2: DPPH の ESR 信号

## 重い電子系の強磁場物性研究

海老原孝雄<sup>A</sup>, Jumaeda Jatmika<sup>A</sup>, Md. Shahidur Rahman<sup>A</sup>, 丸山博史<sup>A</sup>,

三宅厚志<sup>B</sup>, 金道浩一<sup>B</sup>, 徳永将史<sup>B</sup>

<sup>A</sup> 静岡大学大学院総合科学技術研究科, <sup>B</sup> 東京大学物性研究所

Ce および Yb 系の金属間化合物は、重い電子状態や新奇超伝導状態あるいは非フェルミ液体状態のような特異な興味ある物性を示すため、注目を集めている。このような特異な物性は、RKKY 磁気相互作用と近藤効果が拮抗する量子臨界点 (Quantum Critical Point: QCP) 近傍で出現する。

Ce および Yb 系の金属間化合物の中でも、ThCr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 型正方晶を組む物質群では、CeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> (新奇超伝導) や CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> (非フェルミ液体、新奇超伝導、非磁性メタ磁性) あるいは CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> (非磁性メタ磁性) などが QCP 近傍に位置し、多くの興味ある物性を示す。<sup>[1-4]</sup> 本研究室では、この中でも非磁性の Ce および Yb 系金属間化合物で、ThCr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 型正方晶を組む物質に着目し、強磁場物性研究を進めてきた。最近、CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> と YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の単結晶を用いた強磁場磁化過程を観測し、~30 T と ~40 T 付近にメタ磁性的磁化の増大を見出した。<sup>[5]</sup> 一方で、CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> と YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> におけるゼロ磁場での測定が多く行われてきた反面、磁場中の電子状態研究は必ずしも多くなく、またメタ磁性転移磁場が高いことから、メタ磁性前後の電子状態研究もあまり進んでいない。本研究ではこれらの点に着目し、YbNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の単結晶を用いて、メタ磁性転移磁場以下での磁場中比熱と磁化・磁化率の測定を行なったので報告する。

### References

- [1] F M Grosche et al. J. Phys.: Condens. Matter **12**, L533 (2000).
- [2] H. Sato et al., J. Magn. Magn. Mat. **177-181**, 409 (1998).
- [3] T. Fukuhara et al., J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 1559 (1996).
- [4] J. Fluque et al., Physica B **215**, 77 (1995)
- [5] A. Miyake et al., Phys. Rev. B **96**, 085127 (2017).

## メンブレン検出電子スピン共鳴測定之感度増強に向けた テラヘルツ帯 bull's eye アンテナの作製

藤岡廉<sup>A</sup>, 高橋英幸<sup>B,C</sup>, 菅原賢悟<sup>D</sup>, 大道英二<sup>A</sup>, 太田仁<sup>B</sup>

<sup>A</sup>神戸大学大学院理学研究科, <sup>B</sup>神戸大学分子フォトサイエンスセンター,

<sup>C</sup>JST さきがけ, <sup>D</sup>近畿大学理工学部

我々のグループではテラヘルツ光源を用いた力検出型電子スピン共鳴 (ESR) 測定法の開発を行っている。テラヘルツ領域では電磁波強度が弱く、溶液等のスピン濃度が低い物質への応用には試料に電磁波を集光するための技術が必要不可欠である。特にカンチレバーやメンブレンを用いた ESR 測定では、デバイスサイズが波長と同程度かそれ以下になるため、高い集光性能を持った光学素子が必要となる。

そこで本研究ではテラヘルツ領域における集光素子として bull's eye アンテナに着目した。bull's eye アンテナとは、図 1 に示すような同心円状の微細な周期構造を持つアンテナである。アンテナ面で受信した電磁波を中心の穴に集光し、透過強度を増加させることが可能である。bull's eye アンテナは円盤状で場所をとらず、単純な構造で波長程度まで集光できることから、このアンテナを用いることで力検出型 ESR 測定之感度向上が期待できる。そこで本研究では、シリコンの微細加工技術を用いて bull's eye アンテナの作製を行い、性能評価を行う。

測定周波数である 0.2 THz での集光ピークを得るために bull's eye アンテナ構造の最適化を行った。その結果、溝の周期を 1.5  $\mu\text{m}$ 、中心穴の直径 0.75  $\mu\text{m}$ 、厚さ 0.225  $\mu\text{m}$ 、溝の深さ 0.15  $\mu\text{m}$  とした場合に最適な結果が得られた。このパラメータを用いた中心穴内部における磁場強度成分のシミュレーション結果を図 2 に示す。0.2 THz 付近で磁場強度が単純な穴構造に比べて 10 倍程度増加していることがわかる。電磁波強度が磁場強度の 2 乗に比例することを考慮すると、電磁波強度としては 100 倍程度の増大が見込まれることから力検出型 ESR 測定之大幅な感度向上が期待される。

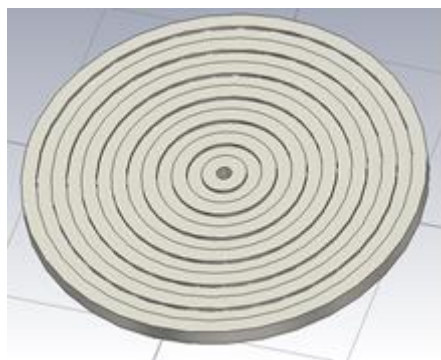


図 1 : bull's eye アンテナの形状。

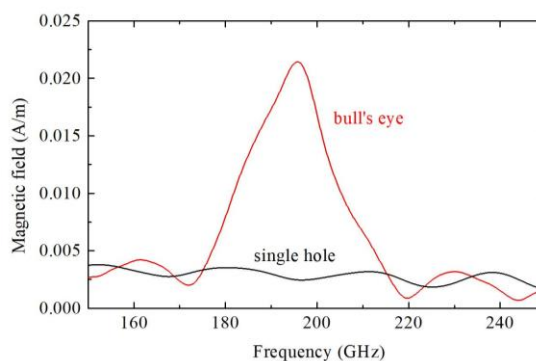


図 2 : 磁場強度のシミュレーション結果 : 周期構造あり (赤) と周期構造なし (黒)。

## テラヘルツ量子カスケードレーザーを用いた

## 磁気共鳴分光装置の開発

木下雄斗, 三宅厚志, 徳永将史

東京大学物性研究所

0.1~10 THz の周波数帯を表すテラヘルツ領域には、格子振動、分子振動、マグノンといった種々の固有モードが多く存在しており、本領域の分光研究は非常に重要である。特に最近では、マルチフェロイック物質におけるエレクトロマグノン[1]や、トポロジカル絶縁体における輸送現象の研究[2]など、強磁場下におけるテラヘルツ分光が注目されている。テラヘルツ分光にはテラヘルツ時間領域分光法(Terahertz time-domain spectroscopy: THzTDS)が一般的に用いられる。しかしながら、通常の THz-TDS の手法では測定時間は数秒~数分程度のオーダーであり、定常磁場では実現できないような強磁場を発生できるパルス磁場下で測定を行うことが困難であった。そこで、我々はパルス磁場下におけるテラヘルツ分光の新たな光源として、テラヘルツ量子カスケードレーザーに着目した。通常の半導体レーザーでは電子・正孔対がバンド間遷移により再結合することで光子が放出される。一方、量子カスケードレーザーは半導体のヘテロ接合を繰り返した超格子構造を有しており、サブバンド間遷移により光子が放出される。一度光子が放出されると、電子は次の周期のサブバンド間遷移を経て光子を放出する。この過程を繰り返すことで、単一の電子で複数の光子が放出される。これにより量子効率 1 を超えた高出力のレーザーが得られる。発振周波数は超格子の周期を変えることで可変となっている。商用化されているものでは中赤外域(波長  $4\mu\text{m} \sim 10\mu\text{m}$ )に発振周波数を有するものが一般的であるが、最近ではより長波長のテラヘルツ帯で発振するテラヘルツ量子カスケードレーザーの開発が急速に進んでいる [3-5]。これらは、数百 mA 程度の電流で駆動し、数 mW もの高い出力が得られる。本研究ではこのテラヘルツ量子カスケードレーザーを光源としたパルス磁場下での磁気共鳴分光装置の開発を目的とした。講演では開発の現状と今後の展望について発表する予定である。

[1] U. Nagel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 257201 (2013).

[2] L. Wu *et al.*, *Science* **354**, 1124 (2016).

[3] R. Kohler *et al.*, *Nature* **417**, 156 (2002).

[4] M. Giehler *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 161102 (2007).

[5] H. Richer *et al.*, *IEEE Trans. THz Sci. Technol.* **5**, 539 (2015).

## 破壊型超強磁場中における超音波測定技術の開発

野村肇宏<sup>A</sup>, 小濱芳允<sup>A</sup>, 松田康弘<sup>A</sup>, A. Hauspurg<sup>B</sup>, D. Gorbunov<sup>B</sup>, S. Zherlitsyn<sup>B</sup><sup>A</sup> 東京大学物性研究所, <sup>B</sup> ドレスデン強磁場研究所

一卷きコイルは 100 テスラ超の強磁場を発生できる破壊型磁場発生手法である。しかしながら一卷きコイル法では実験条件の過酷さから、限られた物理量のみ測定可能であった。本研究では超強磁場における新たなプローブとして超音波に着目し、100 T 超の磁場領域における格子物性測定に挑戦した。

一卷きコイル法の主な制約は、①数マイクロ秒という磁場発生時間の短さ、②パルス磁場由来の誘導電圧、③大電流スイッチ由来の電磁波ノイズ、の三点である。超音波は光や電気信号に比べ伝搬時間が長いことから、①磁場発生時間の短さ、が測定技術開発で最大の障壁となる。本研究では従来用いられるパルスエコー法と比べて高速計測が可能な連続励起法 (CW 法) を採用し、時間の問題を回避する。

予備測定の結果を図に示す。ここでは非破壊で 30 T までのテスト磁場発生が可能な、補強付き一卷きコイルを用いた (図(a))。一卷きコイル法の結果は、非破壊ロングパルスで得られた結果と非常に良い一致を示している (図(b))。発表では 100 T 級磁場下での実験結果を報告し、技術的課題および将来展望を議論する。

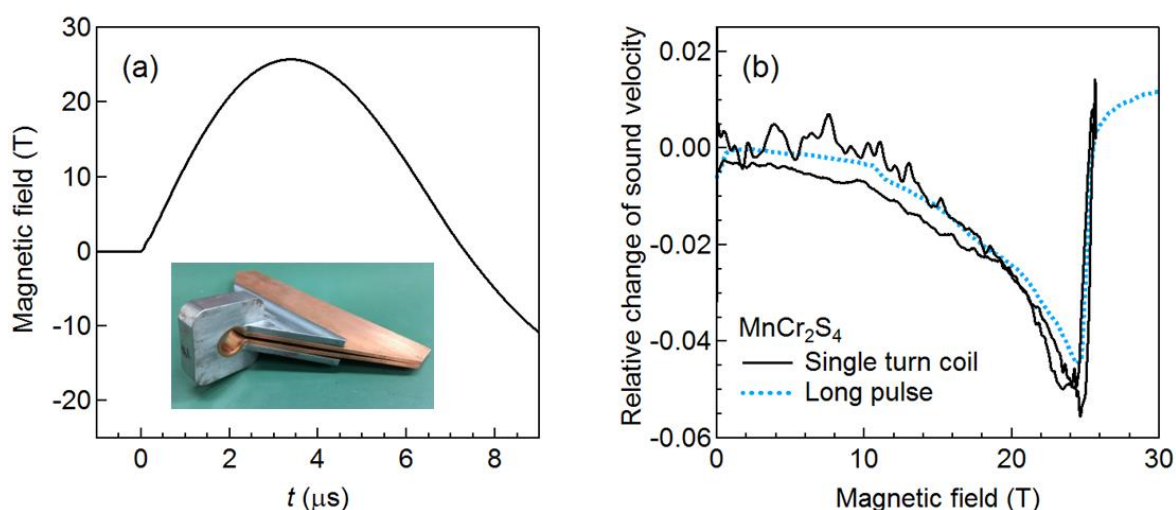


図 一卷きコイル法を用いた超音波測定の予備実験結果。(a) テスト測定用に補強した非破壊一卷きコイルと磁場波形。(b)  $\text{MnCr}_2\text{S}_4$  の超音波音速の磁場依存性。測定温度は 4.2 K。周波数は 40 MHz。

## 高引張強度かつ高電気伝導度特性を持つ銅銀合金線の物性研究

松尾晶<sup>A</sup>, 坂井義和<sup>A</sup>, 川口孝志<sup>A</sup>, 菊池章弘<sup>B</sup>, 金道浩一<sup>A</sup><sup>A</sup> 東京大学物性研究所, <sup>B</sup> 物質・材料研究機構,

超伝導マグネットで出せない磁場を作ることができるパルス磁場は、常に2つの問題と向き合っている。大電流がマグネットに流れるために生じる熱と、マグネットを径方向押し広げ軸方向に押し縮めようとするマクスウェル応力である。どちらも投入エネルギーに対して磁場発生効率を下げ、最終的にはマグネットを壊してしまう可能性がある。応力は磁場の2乗に比例し、50 Tではおおよそ1 GPa、100 Tでは4 GPaにもなる。純銅の引張強度が300 MPa、熱処理をして硬化させた銅で1 GPa程度であるので、材料科学の立場からすると大変な力である。

熱的・力学的な課題があるパルス強磁場発生では、発熱を減らすには高い電気伝導度を、応力に抗するには引張強度を兼ね備えた導体を用いることが重要になるが、一般的に電気伝導度と引張強度はトレードオフの関係にあり両立しない。われわれは20年以上前に開発が始まった銅銀合金線[1]を使って長年磁場開発を行っている。銀の含有量と熱処理の改良により[2]、現在では引張強度が1 GPa以上、電気伝導度が純銅と比較して80%前後確保されている銅銀線を用いることができ、単パルスとしては世界最高となる85.8 Tの磁場発生に成功している。ところが、ほぼ同じ物性値をもつ銅銀線で作った複数のマグネットのなかでも磁場の再現性や耐久性に大きなばらつきがあることが分かった。引張強度や電気伝導度では判断できない大きなばらつきを生む要因を探るために走査型電子線顕微鏡(SEM)やX線回折実験などを通してミクロな組織観察を始めた。現段階では要因を解明するには至っていないが、観察した約30本のほぼ同じ引張強度と電気伝導度を持つ銅銀線は、従来言われていた通り[1]銀が析出し、さらにその銀繊維の形状が異なる2種類とSEMレベルでは銀の析出が確認できない1種類に分類できた。従来型の合金は析出強化型で、銀の析出が確認できない物は固溶強化型であることが示唆される。析出型は断面形状が真円に近くその径が1  $\mu\text{m}$ のタイプAと断面の輪郭が複雑で径が数  $\mu\text{m}$ のタイプBに分類され、析出が確認できていない物をタイプCとすると、タイプA:B:Cは2:2:1の割合で存在することが分かった。今後、靱性を決定する結晶粒のサイズや結晶粒界の状態を調べる予定にしており、上の結果と合わせて銅銀合金線のマグネット線としての評価を行う。

[1] Y. Sakai *et al.*, IEEE, Trans. Mag. **28** (1992) 888[2] Y. Sakai *et al.*, MRS Adv. **1** (2016) 1137



## インナー閉コイルを用いたパルス磁場発生時の渦電流の抑制

太田麗嗣<sup>A</sup>, 田原大夢<sup>A</sup>, 木田孝則<sup>A</sup>, 谷口一也<sup>A</sup>, 鳴海康雄<sup>A</sup>, 萩原政幸<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター

我々は非破壊型パルスマグネットと圧力セルを組み合わせた複合極限環境下物性測定装置の開発を進めてきている[1]。10 GPa を超える圧力を発生させるためには、ダイヤモンドアンビル型セル (DAC) を使う必要がある。DAC の構成部品の多くは金属であるため、パルス磁場中では金属部品の渦電流によるジュール発熱が深刻な問題となる。渦電流の大きさはパルス磁場の立ち上がりの傾きに依存する。そこで、本研究ではパルスマグネット (outer coil) のボア内にインナー閉コイル (inner closed coil) を挿入し、その相互誘導効果を利用して立ち上がりの傾きを低下させることを試みた。Outer coil にはボア径 48 mm のパルスマグネット ( $L = 9.45$  mH) を、inner closed coil には outer coil と同じ線材の Cu-Ag 合金線で作製した単層コイル ( $L = 17.4$   $\mu$ H) を用いた。図 1(a) に示すように、パルス磁場発

生に伴って、inner closed coil には減衰振動する相互誘導電流が発生した。その結果、通常時 (normal) に比べて磁場の立ち上がりの傾きが抑制された (図 1(b)の実線)。

渦電流発生の評価は、DAC の構成部品の SUS 製ガスケットと Ni-Cr-Al 製台座をパルス磁場中に配置して行った。ジュール発熱の発生は、Nb-Ti 超伝導線の直流電気抵抗および表面インピーダンス測定からその上部臨界磁場を決定し、その磁場-温度相図から評価した。講演ではこれらの結果について報告する。

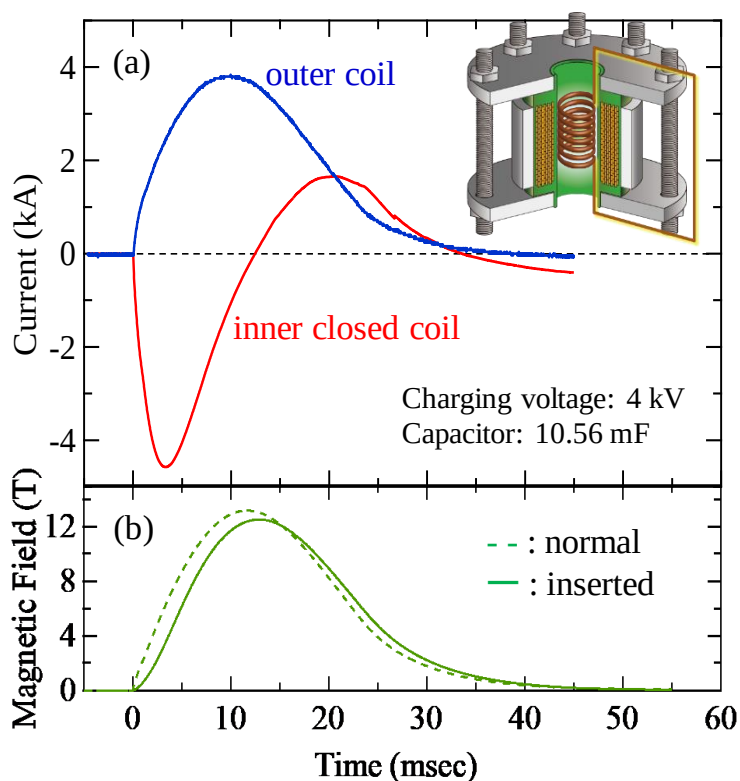


図 1. (a)パルス磁場発生時のコイルに流れる電流および(b)磁場波形。

## シールドコイルによる渦電流抑制と磁場増幅効果

下起敬史, 野村肇宏, 小濱芳允

東京大学物性研究所

パルス磁場発生中の磁場変化  $dB/dt$  は、ミリ秒マグネットでおおよそ  $10^4$  T/s、マイクロ秒マグネットでおおよそ  $10^8$  T/s にまで達し、巨大な誘導起電力を発生させるもととなる。そのため、金属的なサンプルをパルス磁場中で測定しようとする、誘導される渦電流のジュール発熱により、温度一定の実験条件を守ることが難しい。とりわけサンプルの抵抗率と比熱が小さい極低温での実験においては、この発熱が致命的な温度上昇を招くこともあるため、誘導起電力の抑制は重要な課題である。

今回我々は、シールドコイルという小型の装置を開発し、誘導起電力の抑制を試みた。この装置は銅の閉コイルでできており、内部に流れる誘導電流を利用してキャンセル磁場を発生させ、磁場変化  $dB/dt$  を相殺する効果を持つ (図 1)。その結果、シールドコイルの内部では緩やかな磁場の変化が期待される。

シールドコイルを用いた際の磁場波形を測定したところ、磁場印加直後の磁場変化  $dB/dt$  が小さくなっていることが確認された (図 2)。また、磁場の最大値が 1~2 T 程度上昇していることもわかった。これは、磁場のキャンセル効果が磁場の上昇時だけでなく磁場の下降時にもはたらくためと考えられる。

発表では、シールドコイルを用いた場合にどのくらい渦電流による発熱を抑えることができるか、実際にグラファイトの温度上昇を比較したデータを提示する。また、ミリ秒パルスマグネットだけでなく、マイクロ秒パルスの一巻きコイルにおいても機能するシールドコイルの開発に成功したため、これも併せて紹介する。

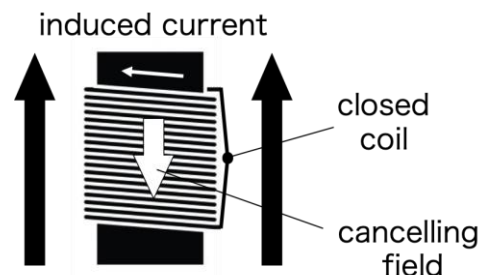


図 1 シールドコイルの模式図。パルス磁場を印加するとシールドコイルには誘導電流が流れ、外部磁場とは逆向きの磁場を発生する。

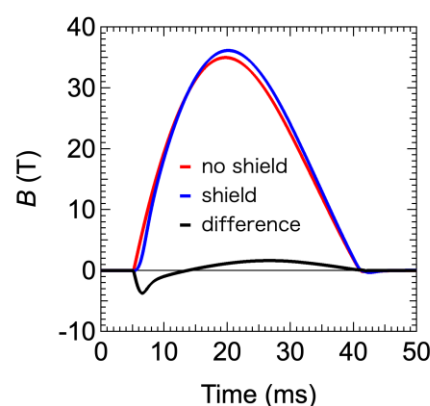


図 2 シールドコイルあり (青) となし (赤) の磁場波形。黒の実線はそれらの差で、シールドコイルが発生したキャンセル磁場を表している。

## パルス強磁場中金属製圧力セルの渦電流による磁場遮蔽効果

二本木克旭<sup>A</sup>, 木田孝則<sup>A</sup>, 田原大夢<sup>A</sup>, 鳴海康雄<sup>A</sup>, 萩原政幸<sup>A</sup><sup>A</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター

強磁場や超高圧、極低温などの環境は極限環境と呼ばれている。このような極限環境を複数組み合わせた複合極限環境下ではスピンや軌道、電荷、格子といった物質の内部自由度を変化させることで特異な物理現象が期待されている。例えば、高温超伝導体や重い電子系化合物に代表される強相関電子系物質では圧力誘起量子臨界現象の発現[1]が、幾何学的フラストレート磁性体では圧力誘起による新たな量子相転移の発現[2]など興味深い物理現象が観測されている。我々の研究室では非破壊型パルスマグネットと金属製ピストンシリンダ型圧力セル(PCC)を組み合わせた複合極限環境下物性測定装置の開発を進めている。これまでに最高磁場 55 T、最高圧力 1 GPa での誘導法による磁化測定が行われている[3]。PCC の材質には Cu-Be 合金及び Ni-Cr-Al 合金が用いられ、内径と外径はそれぞれ 2 mm と 6 mm である。 $dH/dt$  が大きいパルス強磁場中では金属製の圧力セルに誘導される渦電流がジュール発熱と磁場遮蔽効果を引き起こし、実験結果を変える大きな問題となりうる。本研究ではパルス強磁場-高圧力下磁化測定装置における上記 2 種類の圧力セルの試料空間における渦電流の影響を調べた。

圧力セル中に  $MnF_2$  を入れ、圧力セルの外に配置したピックアップコイルを用いた誘導法による磁化測定を 4.2 K で行った。圧力セル内は常圧である。Cu-Be 製の PCC において、 $MnF_2$  のスピントロップ転移のシグナルが転移磁場 9.24 T から最大 7% 高磁場側にずれていることが観測された。この結果から Cu-Be 製の PCC の試料空間の温度が渦電流によるジュール発熱で高くなっている、あるいは磁場遮蔽により圧力セル内の  $dH/dt$  が小さくなっていることが予想される。一方、電気抵抗率が Cu-Be より一桁大きい Ni-Cr-Al 製の PCC ではスピントロップ転移の転移磁場からのずれはなかった。講演では、圧力セル内に磁場ピックアップコイルを配置し、圧力セル内外の磁場を比較した実験結果も示す。

[1] 例えば、上田和夫、大貫惇睦 共著、「重い電子系の物理」(裳華房、1998)

[2] S. A. Zvyagin *et al.*, Nat. Commun. **10**, 1064 (2019).

[3] T. Matsunaga *et al.*, J. Low Temp. Phys. **159**, 7-10 (2010)

## パルス強磁場磁化測定 of 断熱消磁法を用いた 1 K 以下への展開

土田稜<sup>A</sup>, 松山友樹<sup>A</sup>, 中川豪<sup>A</sup>, 久米誓<sup>A</sup>, 野口悟<sup>AB</sup>, 鳴海康雄<sup>C</sup>, 萩原政幸<sup>C</sup>,  
<sup>A</sup>大阪府立大学大学院理学系研究科, <sup>B</sup>大阪府立大学強磁場環境利用研究センター,  
<sup>C</sup>阪大先端強磁場

Expansion to temperature region below 1 K by using adiabatic demagnetization method in magnetization measurements under a pulsed high magnetic field

R. Tsuchida<sup>A</sup>, T. Matsuyama<sup>A</sup>, T. Nakagawa<sup>A</sup>, T. Kume<sup>A</sup>, S. Noguchi<sup>AB</sup>, Y. Narumi<sup>C</sup>, M. Hagiwara<sup>C</sup>

Grad. School of Science, Osaka Pref. Univ.<sup>A</sup>, RC-UHMF, Osaka Pref. Univ.<sup>B</sup>,

AHMF, Grad. Sch. Sci., Osaka Univ.<sup>C</sup>

我々は 15 kV、250 kJ の電源を用いて、磁場空間 30 Φ のパルス強磁場 50 T と温度 0.1 K の極低温パルス強磁場測定装置の開発を進めている。極低温環境の開発については <sup>3</sup>He を用いない断熱消磁法を採用している。断熱消磁部とパルス強磁場印加部を 30 cm 隔離し、かつ良好な熱伝導を確保することによって強磁場極低温の複合環境の構築を目指している。現状の課題は消磁塩の初期冷却のための熱スイッチの開発と断熱消磁部－パルス強磁場印加部の良好な熱伝導システムの開発である。銅を用いれば良好な熱伝導が確保されるが、パルス強磁場中では渦電流発熱のため金属材料の使用が極度に困難である。実際、これまで 30 μm 径の被覆銅細線束を用いて良好な熱伝導を確認してきたが、温度 4.2 K において磁場 25 T、パルス幅 40 ms のパルス強磁場印加によって 3.5 % の温度上昇が観測され、現在定量的な解析を進めている。

被覆銅細線束に替わる熱伝導材料を検討しなければならぬため[1]、熱スイッチ、断熱消磁部と磁化測定部の熱伝達に <sup>4</sup>He ガスを使用することを考え、<sup>4</sup>He ガスでの熱伝導を評価するための試作用クライオスタットを制作した(図1)。断熱管内に上部から操作できるバルブを作り77 Kで<sup>4</sup>Heガスを流入させバルブを閉じ、真空引きすることで消磁塩以下のみを<sup>4</sup>He ガスで満たせるようになっている。断熱消磁塩部と測定試料部(パルス強磁場印加部)に抵抗温度計を設置し、<sup>4</sup>He ガスでの熱伝導を評価するため断熱消磁実験を行っている。

[1] 松山友樹、他 日本物理学会2019年春季大会14pS-PS-88

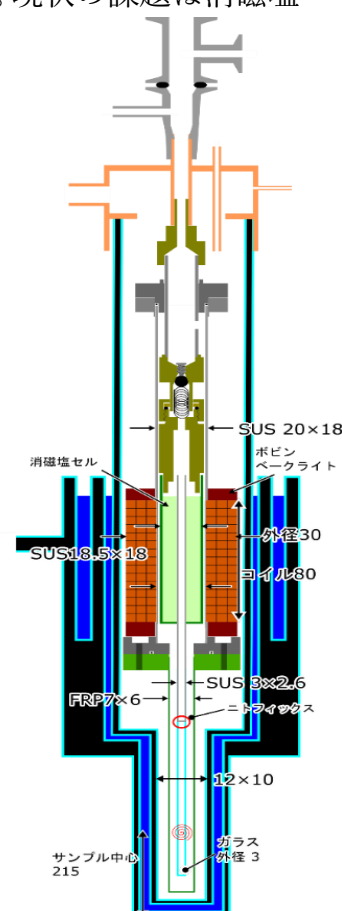


図 1

## パルス強磁場下における 1K 以下極低温装置開発

松崎大亮<sup>A</sup>, 佐藤和樹<sup>A</sup>, 鳴海康雄<sup>A</sup>, 竹内徹也<sup>B</sup>, 萩原政幸<sup>A</sup>

<sup>A</sup> 大阪大学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センター,

<sup>B</sup> 大阪大学低温センター

パルス強磁場下の実験では、極低温環境を実現するために必要な装置や技術を使用することができない制約がいくつもある。我々は、パルス強磁場環境と極低温環境を最大限に組み合わせることを目的として、様々な装置開発を行ってきた。現状我々の施設では、パルス強磁場下の実験で 1 K 以下の極低温環境をつくるためには、 $^3\text{He}$  が必要となってくる。そのことを踏まえ以下の装置開発を行っている。

$^4\text{He}$  を使った実験では、非金属性のガラスデュワーを用いているが、 $^3\text{He}$  実験では、シーリングの配慮のため容器の一部に金属が用いられてきた。しかし、金属製の容器に生じる渦電流によって電磁ノイズが発生し、信号の小さい微小単結晶の測定においては、この問題は深刻である。そこで我々は、1 K 以下のパルス強磁場磁化測定データの高感度化を目的とし、金属の部品的一部分を非金属である繊維強化プラスチック (FRP) に変更した新型クライオスタットの装置開発を行っている。

もう一つの試みは、上記で述べた  $^3\text{He}$  は  $^4\text{He}$  に比べると非常に希少であり高価である。そこで、過去に振り返ると  $^4\text{He}$  のみを使用して 1 K 以下の極低温環境を達成している事例があり [1]、古典的ではあるがその事例を参考に、パルス強磁場下において  $^3\text{He}$  を使用せず  $^4\text{He}$  のみで 1 K 以下の極低温環境実験を手軽に行える装置の開発を行っている。現状我々の施設では、液体ヘリウム ( $^4\text{He}$ ) をポンピングするだけでは、1 K 以下の到達は難しい。これは  $^4\text{He}$  の飽和蒸気圧は 1 K 以下で 10 Pa 以下になることに加え、 $^4\text{He}$  の蒸発熱が非常に小さいことによる。そのため、上記の飽和蒸気圧に達するためには、大きな排気速度かつ高い到達真空度を備えたポンプが必要になる。しかし、排気速度を大きくするために、排気口の系が巨大な規格のポンプなどが必要となるので、現状我々の施設でのパルス強磁場下の実験において実用的ではない。さらに、1 K 以下に到達するために障害となる要因として、 $^4\text{He}$  の超流動状態時 (2.2 K 以下) の性質であるフィルムフローがある。この状態では液体ヘリウムがフィルム状にデュワーの壁を這い上がる特性があり、なおかつ熱伝導率が非常に良いので熱流入の大きな原因になる。そこで我々は、ポンプの排気速度を最大限保ち、フィルムフローの問題点の改善を試みて、 $^4\text{He}$  を使ってパルス強磁場下で 1 K 以下の極低温環境をつくることを目的とした装置開発を行っている。

本講演では、上記のことを中心に我々の施設で行っているパルス強磁場下の極低温実験のための装置開発の現状を報告する。

[1] H.Kamerlingh Onnes., Comm. Phys. Lab. Univ. Leiden, 15 (1922) No. 159