$BiFeO_3$ の磁場誘起スピン構造転移と、室温強磁性強誘電体への展開

講演者：東 正樹[A]、山本 孟[A]、清水啓祐[A]、重松 圭[A]、北條 元[B]、徳永将史[C]、壬生 攻[D]
所属：[A]東工大フロンティア材料研、[B]九大総合理工、[C]東大物性研、[D]名工大

要旨：$BiFeO_3$ は室温で強誘電秩序と反強磁性秩序を併せ持つマルチフェロイック物質である。隣り合うスピンが反平行に揃う G 型反強磁性秩序の次近接方向に 62nm 周期のサイクロイド変調が重畳しており、スピンキャントによる自発磁化は生じない。単結晶試料の中性子回折の結果から、室温で 22T の強磁場下ではサイクロイド変調が消失し、コリニア型のスピン構造へと転移する[1]。シングルドメイン単結晶を用いて強磁場磁化過程測定を行ったところ、メタ磁性的な磁化の増大が観測され、コリニア相はスピンキャントによる弱強磁性を持つ事が示唆された[2]。同様のサイクロイド型からコリニア型のスピン構造変化は、Fe を一部 Co で置換した $BiFe_{1-x}Co_xO_3$ ($x \leq 0.2$)でも生じる。粉末中性子回折[3]とメスバウアー分光[4]の測定から、スピンは電気分極と垂直な面内に秩序化しており、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用により、面内に自発磁化が生じることが期待される。実際、昇温するとサイクロイド型からコリニア型へのスピン構造変化に伴って磁化が増大し、室温では $0.03\mu_B$/f.u.の自発磁化を持つ弱強磁性体である事が分かる。

PLD 法で 111 配向の $SrTiO_3$ 基板上に成膜した薄膜試料においては、室温で弱強磁性と強誘電性の共存が確認出来る[5]。また、磁化の異方性から、上記の考察の通り自発磁化は面内に閉じ込められており、面直方向の電気分極と直交することも分かる。基板を 001 配向の $GdScO_3$ に変更すると、磁化が面直成分を持つようになり、磁気力顕微鏡（MFM）での観察が可能となる。さらに、電気分極の 71°スイッチングに伴って、磁化の面外成分を反転できることを確かめている。

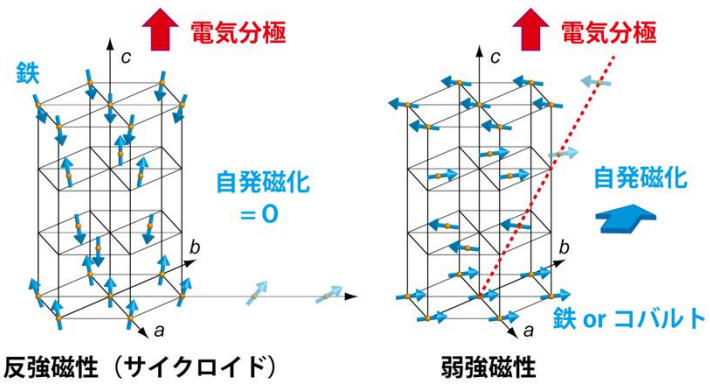

図１：$BiFe_{1-x}Co_xO_3$ のサイクロイド相と弱強磁性コリニア相

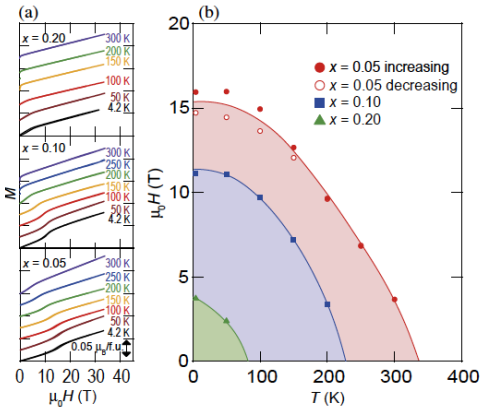

図２：$BiFe_{1-x}Co_xO_3$ の温度-磁場相図

[1] K. Ohoyama *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80,** 125001 (2011)
[2] M. Tokunaga, MA *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 064713 (2010).
[3] I. Sosnowska, MA *et al.*, Inorg. Chem. **52**, 13269 (2013).
[4] H. Yamamoto, T. Kihara, M. Tokunaga, K. Mibu, M. Azuma, J. Phys Soc. Jpn. **85**, 064704 (2016).
[5] H. Hojo, R. Kawabe, K. Shimizu, H. Yamamoto, K. Mibu, K. Samanta, T. Saha-Dasgupta and M. Azuma, Adv. Mater., **29**, 160313 (2017).

タイトル：有機ラジカル系によって形成される新規フラストレート系の強磁場物性

講演者：山口博則 [A]，木田孝則 [B]，萩原政幸 [B]，河野洋平 [C]，橘高俊一郎 [C]，榊原俊郎 [C]，吉田誠 [D]，瀧川仁 [C]，大久保毅 [E]

所属：[A] 大阪府立大学理学系研究科, [B] 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，[C] 東京大学物性研究所, [D] マックスプランク研究所, [E] 東京大学理学系研究科

要旨：無機物を形作る原子軌道の特性によって、無機磁性体の多様性は大きな制約を受けている。分子軌道の重なりによって作りだされる有機物では、数 100 万種類にも及ぶ有機分子の多様性によって、莫大な数の有機磁性体が生み出されると期待されてきた。最近我々は、分子軌道の柔軟性と多様性を効果的に取り込んだ新しいタイプの有機磁性体の開発に成功した。それらにおいては、無機磁性体の対称性と安定性のもとでは形成が困難であったものを多数実現している[1-3]。本研究では、有機ラジカル系による磁性体デザインによって実現した新規フラストレート系に対して、強磁場下での物性測定を進めてきた。それらの一部を紹介する。

フェルダジルラジカル β-2,3,5-Cl_3-V は、ジグザグ鎖と梯子鎖が交互に繋がって 2 次元のシートを形成している。このようなスピンモデルはトレリス格子と呼称されており、銅酸化物超伝導体の母胎の一例として関心が持たれていた。本系は S=1/2 トレリス格子の新しいモデルを実現した。フラストレーションの存在と強磁性相互作用の寄与が予想されている。強磁場磁化の測定においては、飽和磁場の近傍で非自明な振る舞いが観測された。比熱にも対応する特異な傾向が見られており、スピンネマティック相関の発達を示唆している可能性が考えられる。

フェルダジル系電荷移動錯体(o-MePy-V)PF_6 では、強磁性と反強磁性の相互作用の競合によって、S=1/2 正方格子においてフラストレーションが生じている。6 種類の相互作用から成り、2 種類のスピンサイトを持っている。ゼロ磁場では約 1.7 K で長距離秩序への相転移が観測されているが、磁化曲線は転移温度以下の温度領域であっても無秩序的な緩やかな立ち上がりを示す。さらに、飽和の 1/2 に入る近辺で非単調な変化も観測された。NMR 測定による各サイトの局所磁場、テンソルネットーワークによるモデル解析によって、磁場によってスピンの縮みが増強された効果であることが示唆された。

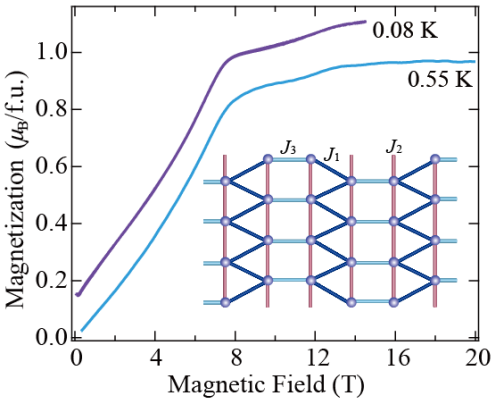

図 1：β-2,3,5-Cl_3-V の磁化曲線

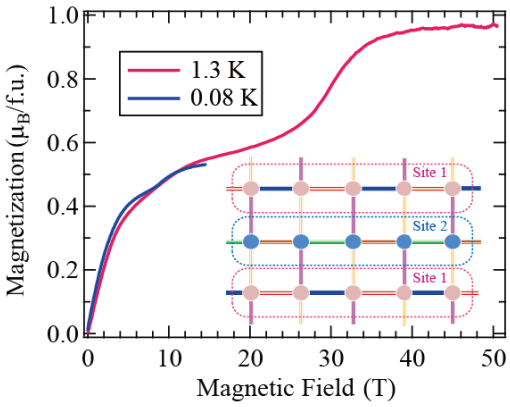

図 2：(o-MePy-V)PF_6 の磁化曲線

[1] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 157205 (2013).

[2] H. Yamaguchi *et al.*, Sci. Rep. **5**, 15327 (2015).

[3] H. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 115145 (2016).

タイトル：いくつかの二次元フラストレート磁性体の強磁場磁化

講演者：菊池彦光 [A]，藤井裕 [B]、松尾晶 [C]，金道浩一 [C]
所属：[A] 福井大 工，[B] 福井大 遠赤センター、[C] 東京大学 物性研究所

要旨：幾何学的条件のために磁気的交換相互作用が競合するフラストレート磁性体の磁化曲線には、磁化プラトー等の興味深い特性が現れることから興味が持たれている。我々は、三角格子やかごめ格子反強磁性体といった典型的なフラストレート格子のみならず、新しいスピン格子探索を行い、新規な物性を見いだすことを目標としている。今回は、それらの中から、pseudomalachite、rouaite 等に関する強磁場磁化過程を中心に講演する。

$Cu_5(PO_4)_2(OH)_4$ (pseudomalachite； 擬孔雀石)は層状化合物であり、*bc* 面内の銅イオンは三角形と五角形からなる大変特徴的なスピン格子を形成する（図１）。格子のモチーフに五角形を含む格子はほとんど例がなく、新しいフラストレート格子磁性体と考えられるため、磁化率、比熱、磁気共鳴、強磁場磁化測定により磁気的性質を調べた [1]。試料には天然鉱物を用いた。大きな結晶がとれないため粉末試料に対する測定を行った。比熱等から 4.2 K で磁気秩序の存在が示唆されたが転移点でのエントロピー変化は小さい。約 60 T までの磁化において、飽和磁化の 1/5 の磁化に対応する磁化プラトーを 10～30T の磁場域において観測した。この結果を、二次元格子を互いに独立な一次元鎖、ダイマー、モノマーに分解した簡単なモデルにより説明した。このモデルにしたがえば、ダイマーの飽和に対応して、飽和磁化の 3/5 の値を持つ磁化プラトーが観測されるはずである。最近、72 T までの強磁場磁化を測定したところ、図２に示すように予測通り二段目プラトーのオンセットを観測することができた [2]。

当日は三角格子磁性体 $Cu_2(NO_3)(OH)_2$ (rouaite)の強磁場磁化についても紹介する。三角及びハニカムストリップからなる格子を有する二次元磁性体 $Cu_5(VO_4)_2(OH)_4$ についても触れたい。

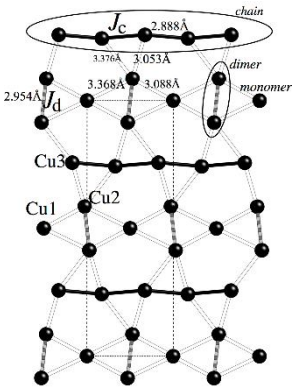

図 1: $Cu_5(PO_4)_2(OH)_4$ の結晶構造。銅サイトのみを記す。磁化解析に用いたモデルについても表示している。

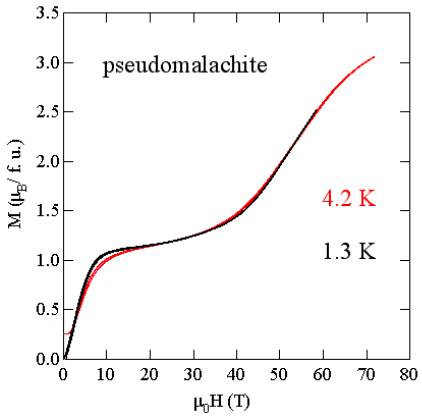

図 2: $Cu_5(PO_4)_2(OH)_4$ の 4.2 及び 1.3 K における強磁場磁化。 約 65 T 以上からプラトーのオンセットが見られる。

[1] H. Kikuchi *et al*., J. Kor. Phys.Soc. **62**, 2037-2040 (2013).
[2] Y. Fujii *et al.* submitted to proceedings of HFM2016 (Taipei, Taiwan).

タイトル：メンブレン型共振器を用いた磁気測定および磁気共鳴測定

講演者：髙橋英幸 [A]，石村謙斗 [B]，岡本翔 [B]，大道英二 [B]，太田仁 [C]
所属：[A] 神戸大学先端融合研究環，[B] 神戸大学大学院理学研究科，[C] 神戸大学分子フォトサイエンス研究センター

要旨：ピエゾ抵抗検知型のマイクロカンチレバーは強磁場下における磁気測定のツールとして用いられてきたが、近年、市販製品の生産が終了したために入手が困難になっている。我々は、カンチレバーの代替となるセンサーとして、スイスの Nanoworld 社から入手できるメンブレン型表面応力センサー（MSS:Membrane-type surface-stress sensor）に着目し、磁化測定及び磁化検出型電子スピン共鳴検出法の開発に取り組んでいる。このセンサーは直径 1mm、厚さ約 5 μm のシリコンのメンブレンが 4 本の梁で保持された構造を持つ。梁部分にはピエゾ抵抗が埋め込まれており、膜の変形を電気的に検出できる。4 つのピエゾ抵抗は、チップ上のアルミ配線を介してホイートストンブリッジを形成している。

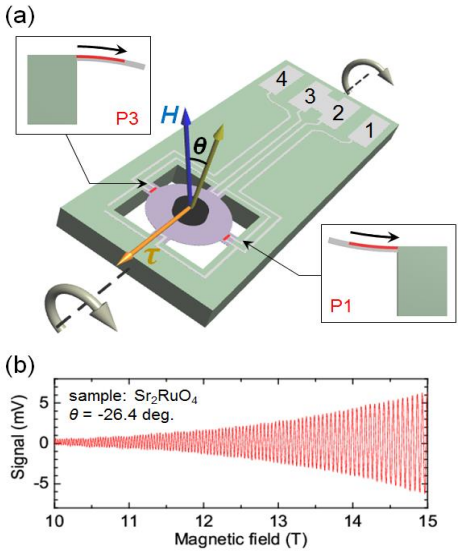

図 1.(a)磁気トルク測定のセットアップ。(b) Sr_2RuO_4 単結晶の磁化振動。

図 1(a)は、このセンサーを用いて磁気トルク測定を行う際のセットアップである。トルク測定では、チップ上のアルミ配線の一部をあえて切断し、バイアス電流が一つの対向するピエゾ抵抗ペア（P1 と P3）のみを流れるようにする。対向するピエゾ抵抗ペアの特性はマッチングがとれているので、外部抵抗を用いてブリッジ回路を形成することで、磁気抵抗により生じるバックグラウンドを打ち消すことができる[1]。図 1(b)はこの手法を用いて測定した Sr_2RuO_4 単結晶（0.35×0.35×0.14 mm^3）のドハース・ファンアルフェン振動である。

一方、磁化検出型 ESR に用いる際は、光変調と組み合わせることで、チップ上のブリッジ回路をそのまま使用できる。図 2(a)のように MSS の直下にフェライト磁石を配置し、振幅変調した電磁波を照射すると、ESR に伴い周期的に磁場勾配力が変化する。図 2(b)は 105 GHz のミリ波を照射した際の DPPH の ESR 信号である。

講演では、これらの手法に加えて、トルク検出型 ESR や、今後の検出感度向上の方針について議論する。

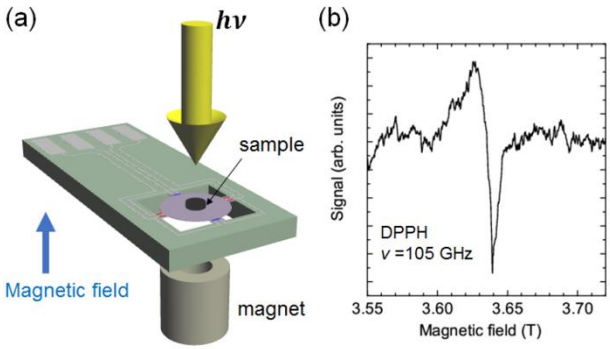

図 2.(a)ファラデー型磁化検出 ESR 測定のセットアップ。(b)DPPH の ESR スペクトル。

[1] Hideyuki Takahashi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **86** (2017) 063002.

タイトル：スピングラス物質における電気磁気光学効果

講演者：澤田祐也
所属：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

要旨：スピングラス磁性体 $Ni_xMn_{1-x}TiO_3$（NMTO）はイルメナイト構造を形成し，*R*-3 の空間群に属する物質である．$0.40 \leqq x \leqq 0.48$ の組成では，約 10 K 以下の温度領域でスピンがランダムな方向を向いたまま凍結したスピングラス状態を取ることが知られている. 強い面内異方性によって，スピンはハニカム格子面内にランダムに凍結する XY 型のスピングラスである．また，この物質の電気分極測定から, スピングラス相においてハニカム格子面内に磁場を印加することで, これと直交する方向に電気分極が誘起される電気磁気効果を発現することが知られている[1]. 電気磁気効果の発現には，らせん磁気構造に代表されるような，空間反転対称性および時間反転対称性を同時に破る特殊な磁気構造を有する必要があるが, この物質においてはスピンがランダムに凍結し，長距離秩序を持たないことから，ここで観測された電気磁気効果は従来の発現機構では説明ができない新奇の現象である．これは，スピングラス相においてトロイダルモーメントが発現したことに起因して生じたと考えられている[2]．トロイダルモーメントとは，スピンが渦巻き状に配列したときに有限となる物理量であり, 空間反転対称性および時間反転対称性を同時に破ることから電気磁気効果を生み出す微視的な要素となる.

電気磁気効果を発現する物質では, これを周波数領域へ拡張することで光の持つ振動磁場もしくは振動電場による振動電気分極もしくは振動磁化の誘起によって, 物質に入射する光の進行方向の反転により光吸収や屈折率が変化する非相反応答である電気磁気光学効果の発現が期待される．これらの中で，直線偏光に対して光の進行方向の反転によってその吸収係数が変化する現象を方向二色性と呼ぶ. 大きな方向二色性を持つ物質においては, 一方向からは光が透過するが, 逆方向からは透過しないといった光学応答の実現が可能となる．今回，NMTO の可視光領域における強磁場分光実験を行い, この物質のスピングラス相において存在が示唆されているトロイダルモーメントが起源となって生じたと考えられる方向二色性の観測に関する報告をする.

謝辞：本研究は，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の木村尚次郎准教授，大阪大学大学院基礎工学研究科の山口泰弘氏および顕谷祐輝氏，東京大学大学院新領域創成科学研究科の有馬孝尚教授および木村剛教授との共同研究である.

[1] Y. Yamaguchi *et al., Phys. Rev. Lett.* **108**, 057203 (2012).
[2] Y. Yamaguchi and T. Kimura, *Nat. Commun.* **4**, 2063 (2013).

パルス強磁場中での被覆銅細線束の温度変化

石打翔馬 [A]，野口悟 [B]，鳴海康雄 [C]，萩原政幸 [C]，石田武和 [A]
[A] 大阪府立大学大学院工学研究科，[B] 大阪府立大学大学院理学系研究科，[C] 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 15 kV、250 kJ のコンデンサバンクを用いて、内径 30Φ、温度 0.1 K、最高磁場 50 T の極低温パルス強磁場磁化測定装置の開発を進めている。極低温の実現には断熱消磁冷却法を用いており、断熱消磁部とパルスマグネットは磁気的に干渉しないように距離（～300 mm）を取っているため、試料への冷熱伝達には直径 0.03Φ の被覆銅細線束を 2800 本束ねたものを使用している。このシステムで 0.227 K の最低温度を 150 秒以上維持させることに成功した[1]。被覆銅細線束はパルス強磁場による渦電流発熱の抑制に大きな効果があるが、定量的な評価が十分でない。そこで本研究では、被覆銅細線束を実際のパルス強磁場中に挿入し、その渦電流発熱による温度上昇の評価を進めている。前回、温度センサーに Cernox-1030-SD　(LakeShore 社)を用いたところ、10 T 程度の磁場で 4.2 K から 10 K 程度まで温度上昇が見られた[1]。これはセンサーの外部パッケージが発熱し、温度上昇したと考えられる。そこで今回、温度センサーに Cernox-1030-BC (LakeShore 社) を用いることで、センサー自身の発熱を抑え、被覆銅細線束の温度変化を測定できると考えた。磁場中心から上下 10 mm の位置に Cernox-1030-SD と Cernox-1030-BC をそれぞれワニスで固定し、また、石英棒(3Φ)を銅線束のリファレンスとして使用し、被覆銅細線束同様ワニスでセンサーを固定した。図 1,2 に強磁場中での Cernox-1030-SD と Cernox-1030-BC の温度変化をそれぞれ示す。青線と赤線がそれぞれ被覆銅細線と石英棒を使用した結果である。いずれも Cernox-1030-BC では明らかに温度上昇が抑制されている。被覆銅細線束と石英棒のそれぞれの場合の温度を比較したところ、図 1 では、被覆銅細線束の方が発熱が大きいが、図 2 ではその差がパルス磁場発生時にはかなり小さくなり、これが被覆銅細線束によるものかどうか判断が難しい。また、図 2 では 25 ms あたりまで温度上昇がみられ、Cernox-1030-SD の発熱が被覆銅細線束および石英棒を介して熱を伝えていると考えている。そこで現在、Cernox-1030-BC のみで実験を行っており、当日結果を報告する。今後もデータによる解析を進め、パルス磁場中での被覆銅細線束の温度変化について研究していく。

[1] 石打翔馬、他　日本物理学会第72回年次大会(2017) 17pC-PS-34.

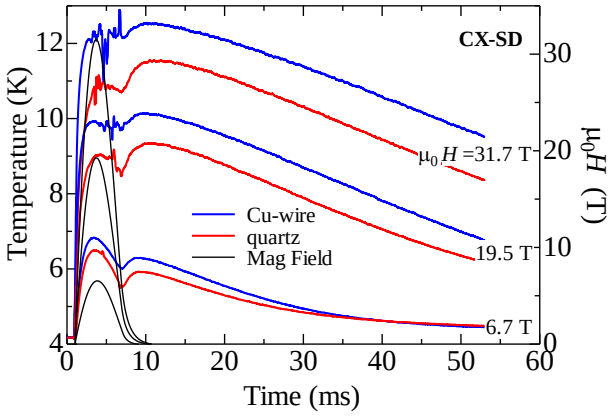

図 1：Cernox-SD の温度変化

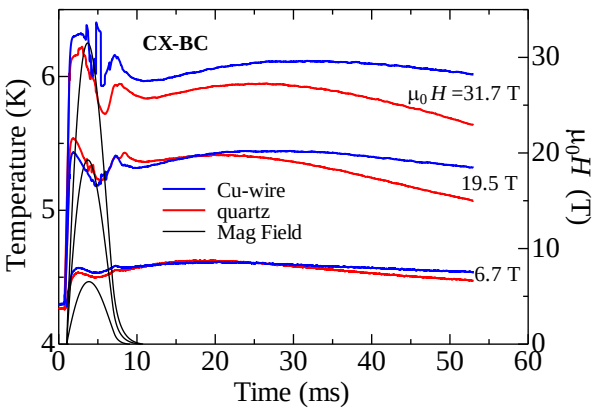

図 2：Cernox-BC の温度変化

1 K 以下、50 T パルス強磁場磁化計測システム開発

楠佳也 [A]，石打翔馬 [A]，土田稜 [B]，松山友樹 [B]，野口悟 [B]，石田武和 [A]
[A] 大阪府立大学大学院工学研究科，[B] 大阪府立大学大学院理学系研究科

パルス強磁場実験は、誘導電流や磁気熱量効果による温度変化などが原因で、特に 1 K 以下の極低温データの計測は困難とされている。本研究では 15 kV、250 kJ のコンデンサバンクを用いて、内径 30Φ、温度 0.1 K、最高磁場 50 T の極低温パルス強磁場磁化計測システムの開発を進めている。試料空間の拡大やスペーサーによる熱接触の低減を図り、断熱消磁冷却を行ったところ、0.227 K まで冷却され、最低到達温度を 150 秒以上維持させていること、物性研で作製された内径 18Φ と 30Φ のパルスマグネットの磁場発生テストを 50 T まで行い 30Φ の磁場空間を確保できたことを報告している[1]。今回はこの広い磁場空間を活用した断熱消磁用クライオスタットの設計、製作の進展について報告する。

図 1 は内径 30Φ パルスマグネット専用クライオスタットの概略図となっている。マグネットの径とクライオスタット内部空間が拡大されることによる熱接触の低減と、断熱消磁部とパルス磁場印加部の熱リンクとして、従来の被覆銅線束の先端（パルス印加部）に非金属で熱伝導が良いサファイアまたは石英のロッドを付けたものを用いることで、パルス磁場印加時の熱リンクの発熱とローレンツ力を阻止する。また、熱交換媒体を He ガスからメカニカル熱スイッチに変更しガスの残留をなくす。これらより、最低到達温度がさらに下がり、パルス磁場中での温度維持が見込まれる。

今後は、内径 30Φ パルスマグネット専用クライオスタットの製作を進め、パルス強磁場 50 T と温度 0.1 K のそれぞれの性能を評価し、両者を組み合わせた 50 T、0.1 K の複合極限環境の実現を進め、その環境下での磁化測定を目指す。

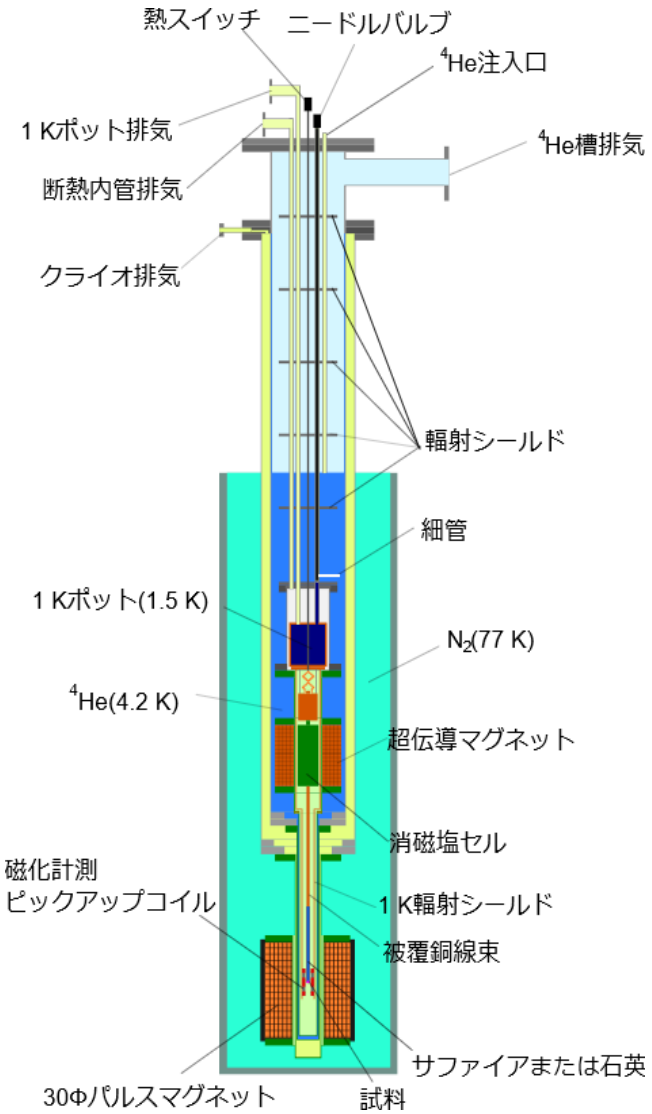

図 1 内径 30Φ パルスマグネット専用クライオスタット

[1] 石打翔馬、他　日本物理学会第72回年次大会(2017) 17pC-PS-34.

タイトル：電荷移動塩(*o*-MePy-V)$FeCl_4$ の特異な低温物性

講演者：岩崎義己 [A], 山口博則 [A], 木田孝則 [B], 萩原政幸 [B], 川上貴資 [C]
所属：[A] 大阪府立大学理学系研究科, [B] 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, [C] 大阪大学理学研究科

要旨：数 100 万種類にも及ぶ有機分子の多様性は、莫大な数の有機磁性体を生み出すことができると期待されてきた。最近我々は、分子軌道の柔軟性と多様性を効果的に取り込んだ新しいタイプの有機磁性体の開発に成功し、様々な新規量子磁気状態の実現を可能にした[1-3]。本研究では、そのような有機磁性体に遷移金属元素を取り込むことで、磁性体のデザイン性を拡張することを目的とした。スピンサイズの設計、さらには有機-無機ハイブリッドスピンをユニットとしたスピンモデル設計を可能にする。

(*o*-MePy-V)$FeCl_4$ は、カチオン化されたフェルダジルラジカル(*o*-MePy-V)$^+$とアニオン $FeCl_4^-$ から成る電荷移動塩となっている。フェルダジルラジカルの S = 1/2 とアニオンの S = 5/2 (Fe^{3+}) によってスピンモデルが形成されている。磁化率の温度依存性から、温度低下に伴う部分的な反強磁性相関の発達により、約 10 K 以下でラジカルとアニオンのダイマーによる合成スピン 2 の形成が明らかになった。さらに 5.2 K では長距離秩序状態への相転移が観測された。相転移に伴うエントロピー変化は合成スピン 2 の自由度に対応していることから、転移温度以下では合成スピン 2 をユニットとして、それらの間に働く磁気相関によって有機-無機ハイブリッドスピン系になっていると考えられる。実際に磁化曲線においては、低磁場側では古典スピン的な線形増加を示しており、約 10 T 近傍でスピン 2 が磁場方向に偏極した状態を示唆するプラトーのような振る舞いが観測された。一方で、より高磁場では、量子スピン的な非線形の磁化の増加が観測された。第一原理計算から予想される 5 種類の磁気相関によって、磁場印加に伴う実効的な量子スピンモデルが構築されていると考えられる。詳細な実験及び解析結果を報告する。

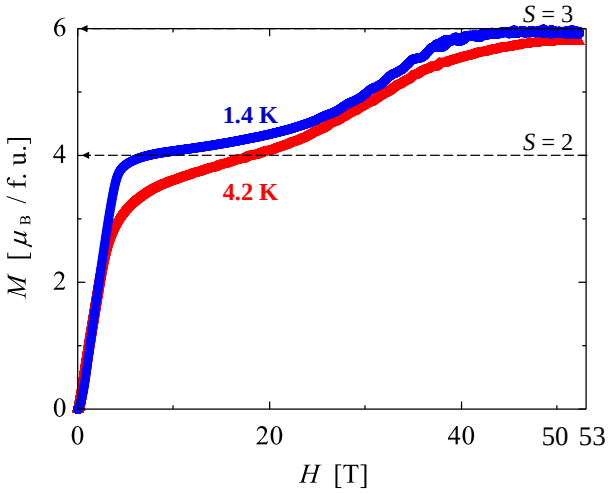

図 1：(*o*-MePy-V)$FeCl_4$ の磁化曲線

[1] H. Yamaguchi *et al*., Phys. Rev. Lett. **110**, 157205 (2013).
[2] H. Yamaguchi *et al*., Phys. Rev. B. **89**, 220402(R) (2014).
[3] H. Yamaguchi *et al*., Phys. Rev. B **93**, 115145 (2016).

タイトル：金属ポルフィリン錯体ヘミンの強磁場 ESR 測定

講演者：岡本翔 [A]，大道英二 [A]，大久保晋 [B]，太田仁 [B]
所属：[A] 神戸大学大学院理学研究科，[B] 神戸大学分子フォトサイエンス研究センター

要旨：ヘモグロビンなどに代表されるヘムタンパク質の研究は 1950 年代から行われており、X 線構造解析や赤外分光、磁気共鳴など様々な手法を用いて研究が進められてきた。特に生体内で酸素の運搬・貯蔵に関わるヘモグロビンやミオグロビンの研究も活発に行われてきた。ヘモグロビンやミオグロビンでは、ヘムと呼ばれる鉄イオンを中心に持つ平面構造の錯体が活性中心を担っており、鉄イオンに酸素が配位、脱離することで生体内の酸素供給量を調節している。しかし鉄イオン周囲のミクロな電子状態については未解明な部分が多く残っている。

ヘムタンパク質の活性中心であるヘムだけを取り出した分子「ヘミン」は、ヘムタンパク質のモデル錯体として古くから研究対象となっている。例えばミオグロビンと比べると分子量は数十倍小さいため、スピン数を稼ぎやすく、ESR 研究において扱いやすい。ヘミンは数百 GHz オーダーのゼロ磁場分裂を持つことが知られているが [1]、X-band 帯の ESR 測定ではゼロ磁場分裂準位間の ESR 信号を観測することは不可能であり、高周波・強磁場 ESR 測定が必要不可欠である。ところが、ヘミンの高周波・強磁場 ESR 測定はこれまでに数例しかなく [2]、磁場中の分光的観点からの研究が十分でない。特に、ヘム面内異方性についてはこれまで議論されておらず、ESR 測定による異方性由来の信号観測例も無い。

本研究では、ヘミンのさらに詳細な電子状態に関する知見を得る目的で、磁場掃引透過型の ESR 装置を用いて、温度 4.2 K においてヘミン（Fe^{3+}, S = 5/2）の多結晶の高周波・強磁場 ESR 測定を行った。その結果、~15 T, ~700 GHz までの範囲で様々なエネルギー準位間の ESR 信号を観測することに成功した。特に、ゼロ磁場分裂準位間の ESR 信号を多周波数で観測することに成功し、ゼロ磁場分裂定数を $D \sim 6.90$ cm^{-1}, $E \sim 0.055$ cm^{-1} と決定した。面内異方性を示す E 値の実験的見積りは本研究が初である。また、過去の文献で報告されていない新たな ESR 信号を観測することにも成功した。

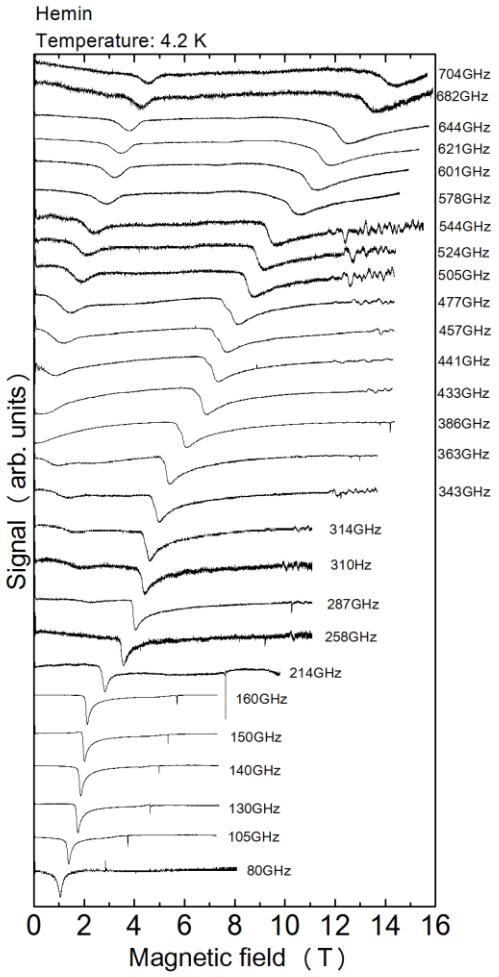

図 1：ヘミンの ESR 測定結果

[1] H. Uenoyama, Biochim. Biophys. Acta **230**, (1971) 479-481.
[2] T. Okamoto, *et al.*, J. Inorg. Biochem. submitted.

P-5

タイトル：S= 1/2 歪んだダイヤモンド鎖化合物($Cu_3(OH)_2(CH_3CO_2)(H_2O)_xX_y$)の強磁場 ESR 測定

講演者：宮崎大輔 [A], Khalif Benzid[B], 大久保晋 [A,B], 原茂生 [C], 櫻井敬博 [C], 太田仁 [A,B], 藤田渉 [D]
所属：[A] 神戸大学大学院理学研究科, [B] 神戸大学分子フォトサイエンス研究センター, [C] 神戸大学研究基盤センター, [D] 成蹊大学理工学部

要旨：S = 1/2 ダイヤモンド鎖は一次元量子磁性体であり、これに分類される物質の基底状態は大きな量子揺らぎを持つ。また、各頂点に存在するスピン間に反強磁性的相互作用が働けば幾何学的スピンフラストレーション効果も期待される。さらに、相互作用の強弱の比によって基底状態が異なることも理論的に提唱されている [1]。($Cu_3(OH)_2(CH_3CO_2)_2(H_2O)_xX_y$)は、$Cu^{2+}$($S$ = 1/2)が酸素で結びついており、S = 1/2 ダイヤモンド鎖のモデル化合物と期待される。X_y には有機アニオンの 2,6-$Np(SO_3)_2$, 1,5-$Np(SO_3)_2$, $EtC_6H_4SO_3$(Np はナフタレン)などが入る。これらによって基底状態の異なるダイヤモンド鎖の比較検証が可能である。この中で 2,6-$Np(SO_3)_2$ は斜方晶であり、磁化率はアズライトに類似して、70K 付近でブロードな山が、20K 付近で小さい肩が存在する [2]。今回、上記化合物の磁気異方性を調べる目的で X-band　ESR、高周波 ESR 測定を行い、吸収の温度依存性、周波数依存性について測定した。温度範囲は 4.2~265K, 周波数範囲は 60~350GHz である。図 1 に 2,6-$Np(SO_3)_2$ の 160GHz における吸収の温度依存性を示す。5.3T 付近の大きな吸収は装置由来のものである。黒丸のマーカーは 4.2K から存在する吸収を示し、白抜き四角のマーカーは 20K 付近から低温の領域で見られる吸収を示している。これは磁化率の肩が現れる温度と一致しており、状態の変化に対応しているものと考えられる。発表ではこの系のスピンダイナミクスについて報告する。

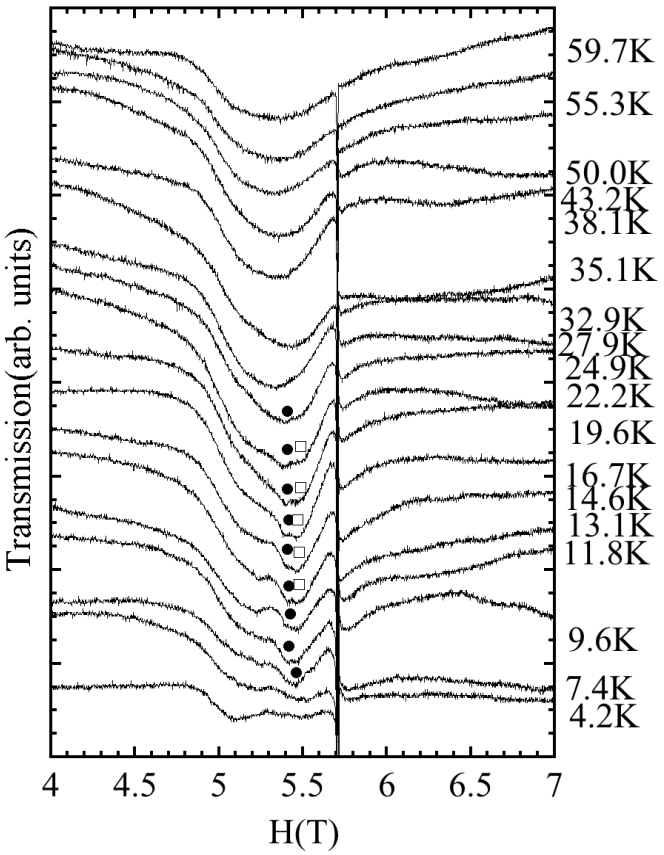

図 1 2,6-$Np(SO_3)_2$ の 160GHz における ESR スペクトルの温度依存性

[1] K. Okamoto *et al*., J. Phys: Cond. Matt. **15** (2003) 5979-5995
[2] W. Fujita *et al*., CrystEngComm **18** (2016) 8614-8621

タイトル：*S*=1/2 反強磁性鎖 $KCuMoO_4(OH)$配向試料を用いた ESR 測定

講演者：久保田創 [A], 原茂生 [B], 櫻井敬博 [C], 大久保晋 [A,C], 太田仁 [A,C], 那波和宏 [D], 矢島健 [E], 岡本佳比古 [F], 廣井善二 [G]

所属：[A] 神戸大院理, [B] 神戸大研究基盤セ, [C] 神戸大分子フォトセ, [D] 東北大多元研, [E] 東大物性研, [F] 名大院工

要旨：*S*=1/2 ハイゼンベルグ反強磁性鎖は一次元の磁性体の最も基本的なモデルの一つであり、Cu benzoate が代表的な物質として挙げられる[2]。Cu benzoate は低温で Breather 励起と呼ばれるソリトン-アンチソリトン対による励起の ESR の吸収が観測される。この現象はこれまでにいくつかの物質でしか観測されておらず新物質での観測が期待されている。$KCuMoO_4(OH)$は空間群 *Pnma* に属し、CuO_6 八面体が稜共有して *b* 軸方向に連なることで *S*=1/2 の一次元鎖を形成する[1]。磁化率の温度依存性は那波らによって行われている[1]。*a* 軸、*c* 軸に磁場を印加したときには 150K 近傍に低次元磁性体に特有な短距離秩序に伴うブロードピークを示す。高温の磁化率のモデルフィッティングにより交換相互作用の大きさは *J*=238K と見積もられている。結晶構造から DM 相互作用の存在が示唆されている。$KCuMoO_4(OH)$の Breather 励起を観測するための強磁場 ESR 測定を行った。

図 1 は 1.8K におけるポリクリスタル試料の ESR スペクトルの周波数依存性図である。3-6T 付近に見られるシャープな吸収は DPPH である。低温において、0-2T 付近に周波数依存性を持つ吸収が確認できた。しかし、粉末試料で測定を行ったため高周波側での吸収がブロードな結果となった。そこで磁場中配向試料を作成し、軸ごとの吸収の測定を目指した。配向試料の作成方法は、粉末にした試料にスタイキャストを混ぜた後、静磁場 10T 中に配置し、スタイキャストが固まるまで放置した。配向試料は磁場対し垂直方向、平行方向の 2 種類作成した。実験結果はポスターで発表する。

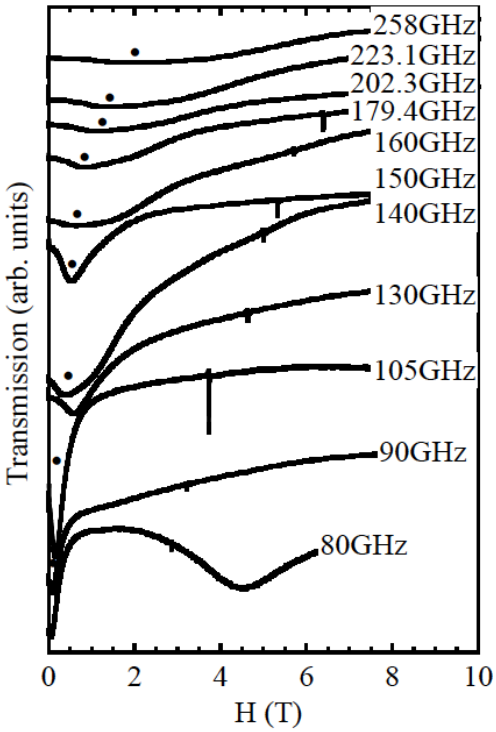

図 1 粉末試料 1.8K における ESR スペクトルの周波数依存性

[1] K. Nawa, T. Yajima, Y. Okamoto, and Z. Hiroi, Inorg. Chem. **54** 5566 (2015).

[2] H. Koizumi, K. Osaki, and T. Watanabe, J. Phys. Soc. Jpn. **18**, 117 (1963)

タイトル ： カシミール力測定にむけた高感度力検出装置の開発

講演者 ： 堀江秀和[A]，大道英二[A]，太田仁[B]
所属 ： [A]神戸大学大学院理学研究科，[B]神戸大学分子フォトサイエンス研究センター

要旨 ： カシミール力とは電磁場の零点エネルギーの粗密により、電気的に中性な 2 枚の近接した金属板間に働く引力のことである。近年、カシミール力は量子論、物性物理、工学、生物分野など多岐にわたり注目を集めている。カシミール力の測定ではしばしば市販の原子間力顕微鏡を用いて測定が行われる。しかし、我々のグループではカシミール力の測定を様々な物質系や測定環境に拡張することを目指し、カシミール力の測定装置を自作している[1]。

カシミール力の大きさは典型的には 1 pN のオーダーであり、極めて高感度な力検出系が必要になる。本研究では金蒸着した微小球を取り付けたカンチレバーと金ミラーが 1 μm 以下の距離で対向した配置を実現し、カンチレバーにはたらくカシミール力をカンチレバーの変位として検出する。カンチレバーの変位検出はファイバ光学系を用いた Fabry-Perot 干渉計により行う。Fabry-Perot 干渉計はファイバの端面とカンチレバーの背面で構成されおり、カンチレバーのたわみによるキャビティ長の変化を干渉強度の変化として検出することができる。

本研究では、低コヒーレンス光源である SLD(Super-Luminescent Diode)光源を用いた新しいカシミール力測定系の構築を行った[1]。フォトディテクタの帯域が 17 kHz から 500 kHz に広がったことにより、使用できるカンチレバーの選択肢が広がった。図 1 には本研究で構築した力検出系の装置写真を示す。Fabry-Perot 干渉計には 3 軸の直動ステージが組み込まれており、光ファイバとカンチレバーの位置合わせが容易に行える。カンチレバーの固有振動数シフトから、微小球と金ミラー間にはたらくカシミール力の力勾配を検出することができる。測定では、実際に両者の間の距離を近づけていくにつれて増大するカシミール力の検出に成功した。現在は、微小球と金ミラー間にはたらく静電気力のより正確な補正に向けた、測定手法の開発を行っている。当日は作製した装置の詳細ならびに、カシミール力測定の進捗状況について報告したい。

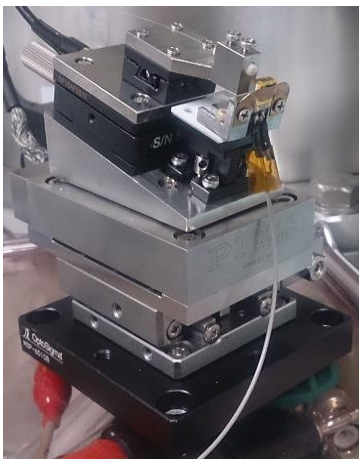

図 1：本研究で構築した力検出系の装置写真

[1] 堀江他、日本物理学会 2017 年 春季大会 18aB-22

P-8

タイトル：三角格子反強磁性体 $CsCuCl_3$ の圧力下磁化プラトー現象の起源解明

講演者：大木瑛登[A]，櫻井敬博[B]，大久保晋[C]，太田仁[C]，上床美也[D]，田中秀数[E]，世良文香[F,G]，高坂勇輔[F,G]，秋光純[F,G]，世良正文[I]，井上克也[F,G,I]
所属：神戸大院理[A]，神戸大研究基盤セ[B]，神戸大分子フォトセ[C]，東大物性研[D]，東工大院理[E]，広大院理[F]，広大キラル物性研究拠点[G]，広大 IAMR[H]，広大院先端[I]

要旨：三角格子反強磁性体 $CsCuCl_3$ は 、H ∥ c、1.5 K、0.7 GPa 程度の圧力下で、磁化過程に 1/3 プラトーを示すことが報告され、近年大きな注目を集めている[1]。しかし、その起源は完全には解明されておらず、本研究では圧力下 ESR 等によりその詳細を明らかにすることを目的としている。

本系には、三角格子面内の反強磁性相互作用 J_1、面間の強磁性相互作用 J_0 に加え、面内の異方性 Δ と DM 相互作用 d の 4 つの相互作用が存在する。圧力下での ESR および磁化率測定で、反強磁性共鳴モードと T_N の圧力依存性をそれぞれ調べ、各パラメータの圧力依存性を分離して評価した（図１）。その結果、圧力増加に伴って、Δ と d の変化に比べ、J_0 と J_1 の変化が大きいことがわかった。この変化と圧力による 1/3 プラトー出現との関連性を調べるため、これら４つのパラメータを含む有限系のモデルに対し、厳密対角化を用いた磁化過程の計算を行った。Δ、d を適当な値に固定し、J_0 に対する J_1 の比を κ としたときの様々な κ での計算結果を図２に示す。有限系（24 サイト）での計算であるため、磁化は階段状になるが（図２挿入図）、$M/M_s = 1/3$ のステップの大きさ（ΔH）のみ κ の増加に伴って他に比べ有意に広がっている。

上記の結果より、$CsCuCl_3$ の圧力下磁化プラトーの起源が κ の変化にある可能性が見いだせた。講演ではこれらの詳細を報告する。

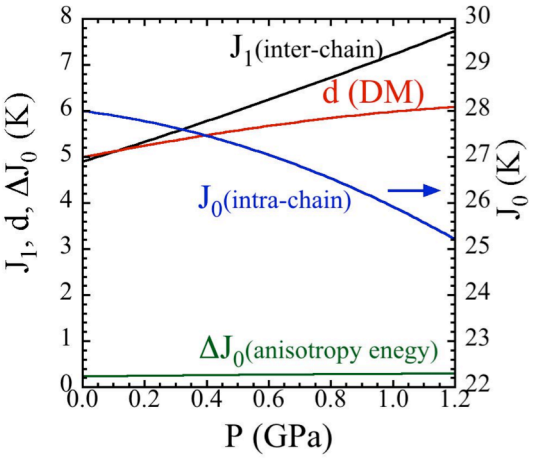

図 1．各パラメータの圧力依存性.

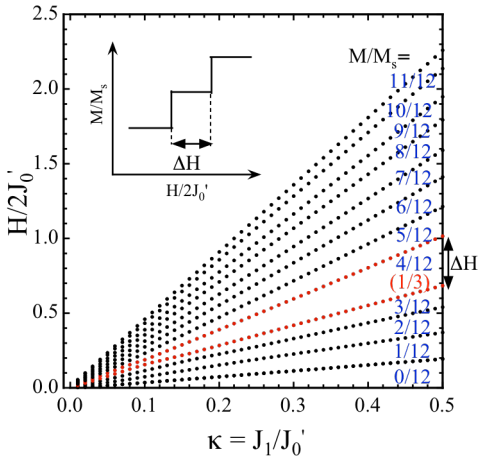

図 2．磁化のとびの κ 依存性.
点線で囲まれた領域がステップの大きさに対応する．挿入図は計算による磁化過程の模式図.

[1] A. Sera, Y. Kousaka, J. Akimitsu, M. Sera, and K. Inoue, Phys. Rev. B **96**, 014419 (2017).

タイトル：微小磁気チップ付きマイクロカンチレバーの作製

講演者：出口健太[A], 大道英二[A], 太田仁[B]
所属：[A]神戸大学大学院理学研究科, [B]神戸大学分子フォトサイエンス研究セミナー

要旨：我々のグループではマイクロカンチレバーを用いた高周波電子スピン共鳴（ESR）測定法の開発を行っている。ESR 吸収に伴う試料の磁化変化をカンチレバーに作用するトルクや力の変化として検出する。従来のカンチレバーを用いた ESR 測定法では、磁場勾配の存在下でカンチレバー上に試料を乗せて高周波 ESR 測定していた。一方、試料と勾配磁石の位置関係を逆転し、カンチレバー上に微小な磁気チップをのせて試料上を走査することによりイメージング測定が可能になる。

そこで本研究では微細加工技術を用いて磁気チップ付きマイクロカンチレバーの自作を行うことを目的とする。カンチレバーの変位検出方法としては、Fabry-Perot 干渉計方式を採用する。この方法では、カンチレバー直上に配置した光ファイバーとカンチレバーからなる Fabry-Perot 干渉計によりカンチレバーの変位を検出する。このため、カンチレバー上には反射率を向上するため、金蒸着によりミラー部を作製する（図 1）。カンチレバー先端に作製する磁気チップの大きさは小さいほど大きな磁場勾配を発生できるため、形状的には 1 μm 以下であることが望ましい（図 2）。そのため、本研究では、最近、導入した電子線描画装置により磁気チップの作製を試みる。

本講演では微小磁気チップ付きマイクロカンチレバーの開発について現状を報告する。

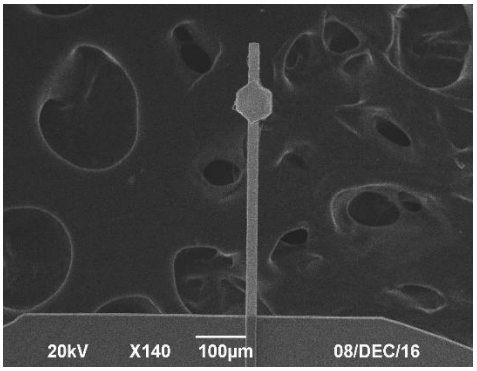

図 1　Fabry-Perot 型カンチレバー

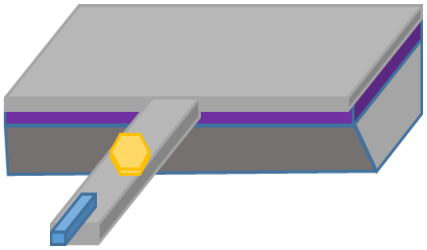

図 2　微小磁気チップ付きカンチレバー

タイトル：メンブレン型ピエゾ抵抗センサーを用いた角度回転高周波 ESR

講演者：石村謙斗 [A]，岡本翔 [A]，高橋英幸 [B]，大道英二 [A]，太田仁 [C]
所属：[A] 神戸大院理，[B] 神戸大先端融合研究環，[C] 神戸大分子フォトセ

要旨：我々のグループは、メンブレン型ピエゾ抵抗センサーを用いた新しい磁気トルク測定法について報告している[1,2]。このセンサーはもともと匂いを感知するセンサーとして開発されたものであるが、メンブレン上に試料をのせることで磁気トルク測定を可能にしている。このデバイスは市販されており、また微小試料の測定が簡単に行えることから、ピエゾ抵抗型カンチレバーに代わる新しい測定手法として期待される。本研究では、このメンブレン型ピエゾ抵抗センサーを角度回転電子スピン共鳴（ESR）測定法に応用した。一般にテラヘルツ（THz）領域の ESR 測定では角度回転が容易ではないが、このような素子を使うことで微小試料の回転測定が容易になる。

シリコン製メンブレン（厚さ 2.5 または 5.2 μm、直径 1 mm）は、4 つのピエゾ抵抗素子によって機械的に支えられている。メンブレンが変形することによってピエゾ抵抗素子に力が加わり、抵抗が変化する。4 つのピエゾ抵抗素子はセンサーチップ上でホイートストンブリッジ回路を形成しており、メンブレンに加わる応力を効果的に検出することができる。

本研究では、磁気トルクを用いた検出方式による高周波 ESR 測定を行った。磁気トルク検出ではメンブレン上に貼り付けた試料に働く磁気トルクの変化 $\Delta\boldsymbol{\tau}=\Delta\boldsymbol{M}\times\boldsymbol{B}$ として ESR 信号を検出した。角度回転は、メンブレンを角度回転ステージにのせて回転させて行った。トルク検出手法の詳細については[3]を参照されたい。

試料に Co-Tutton 塩を使用した ESR 測定結果を図 1 に示す。測定周波数は 130 GHz、温度は 1.6 K（超流動ヘリウム中）であった。図に示すように、角度変化に伴う ESR 吸収磁場の系統的な変化を観測した。この ESR 信号の角度依存性は 160 GHz まで確認した。

本研究会では、メンブレンを用いた角度回転 ESR 測定の装置構成、実験結果の詳細について報告する。

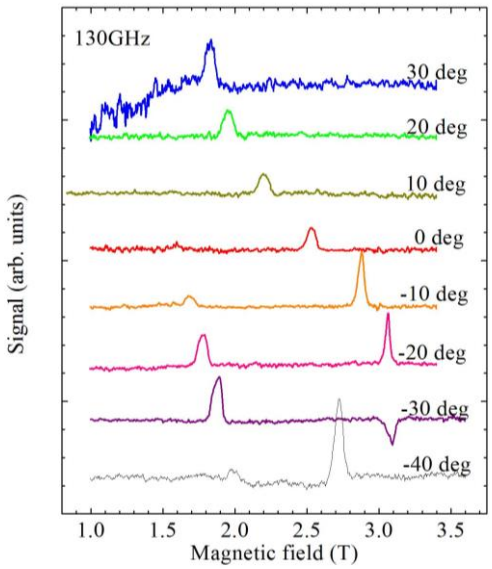

図 1: Co-Tutton 塩の ESR 測定データ

[1] 大道英二他、日本物理学会第 72 回年次大会（2017）18aC21-8.
[2] Hideyuki Takahashi *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **86** (2017) 063002.
[3]高橋英幸他、本研究会での口頭発表

P-11

タイトル：波長可変光源を用いた磁場中テラヘルツ分光法の開発

講演者：藤本達也 [A], 大道英二 [A], 太田仁 [B]
所属：[A] 神戸大学大学院理学研究科, [B] 神戸大学分子フォトサイエンス研究セミナー

要旨：本研究では、光伝導アンテナを用いた波長可変テラヘルツ光源による磁場中テラヘルツ分光法の開発を行う（図 1）。通常のテラヘルツ分光では、しばしばピコ秒光パルスを用いた手法が用いられるが、本研究では 2 つの DFB レーザーによりテラヘルツ連続波を発生させる点が特徴である。原理としては、まず、わずかに波長の異なる 2 つの DFB レーザーからの出力光をフォトカプラーで混合した後、光伝導アンテナに照射する。すると、光伝導アンテナに流れる光電流はビート周波数で変調されるため、ビート周波数に対応するテラヘルツ電磁波が発生する。本研究では 1.5 ・m 帯 DFB レーザーの発振波長を連続的にチューニングすることにより、テラヘルツ光発生範囲を 100-1100 GHz の間で連続的に変えることができる。試料を透過したテラヘルツ光は光伝導アンテナ検出器を用いてコヒーレント検出される。この方法により 90 dB という高いダイナミックレンジを得ることができる。

本研究ではまず、光学系の構築、テラヘルツ光源の評価を行った。その結果、空気の透過スペクトルには 560 GHz と 1100 GHz 付近に水蒸気に由来する吸収が観測された。また、ラクトース・1 水和物についても同様の測定を行い、試料に由来する吸収を観測することに成功した。今後はこの測定系を磁場中セットアップに拡張し、磁場中テラヘルツ分光測定を行う予定である。最終的には、電子スピン共鳴（ESR）測定への拡張を行い、新しい強磁場 ESR 測定法としての確立を目指している。講演では、装置の概要ならびに最近の進展について報告する。

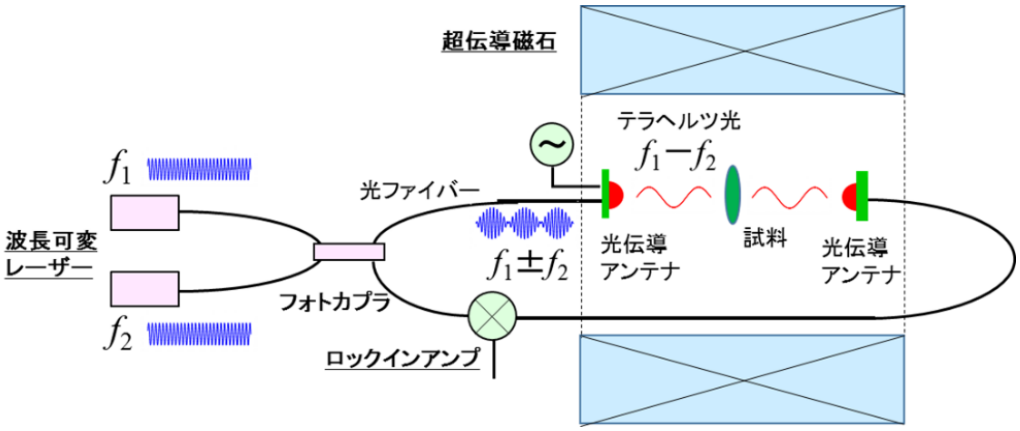

図 1：測定装置の概略図

P-12

タイトル：Co 正方格子反強磁性体の強磁場 ESR 測定

講演者：下城世那[A]，高橋昭彦[A]，吉田翔太[A]，K.Benzid[B]，齋藤佑[C]，原茂生[C]，
櫻井敬博[C]，大久保晋[A,B]，太田仁[A,B]，佐藤博彦[D]，
所属：[A]神戸大院理，[B]神戸大分子フォトセ，[C]神戸大研究基盤セ，[D]中大理工

要旨：近年、磁性イオンが 2 次元正方格子を形成する反強磁性体のモデルの物質が複数見いだされ、新たに注目を持たれている。本研究では磁性イオン Co^{2+}(S=3/2 ，$3d^7$)が ab 面で正方格子を形成している反強磁性体 $Sr_2CoGe_2O_7$ に注目した。この物質の結晶構造は正方晶で、格子定数 a=8.16210Å, b=8.16210Å, c=5.31010Å と報告されている。磁化率の温度依存性では 8.4K で FC/ZFC が分離する。比熱と中性子測定から 6.5 K 付近で反強磁性転移を示し、有効ボーア磁子は p_{eff}=4.39 と報告されている [1]。フラストレーションが存在すると 2 次元正方格子磁性体でもスピンネマチック状態が実現すると理論的に予想されている。これまでの $Sr_2CoGe_2O_7$ に関する報告は多結晶試料のみであり磁気異方性の情報を得ることが困難であったため、今回は水熱合成により 0.1mm 程度のサイズの純良単結晶試料を得ることが出来たので、約 100 個を c 軸に揃えて並べた配向試料の作製を行い、強磁場 ESR 測定を行った。測定温度領域は 1.8K～300K、光源には Gunn 発振器と BWO(Backward Wave Oscillator)を用いて 60GHz～365GHz の領域で測定した。1.8K における ESR スペクトルの周波数依存性を図 1 に示す。反強磁性共鳴と考えられる複数の吸収が観測された。図 2 にその共鳴を周波数-磁場プロットにしたものを示す。講演では、反強磁性共鳴によって決定された磁気異方性パラメータを報告する。

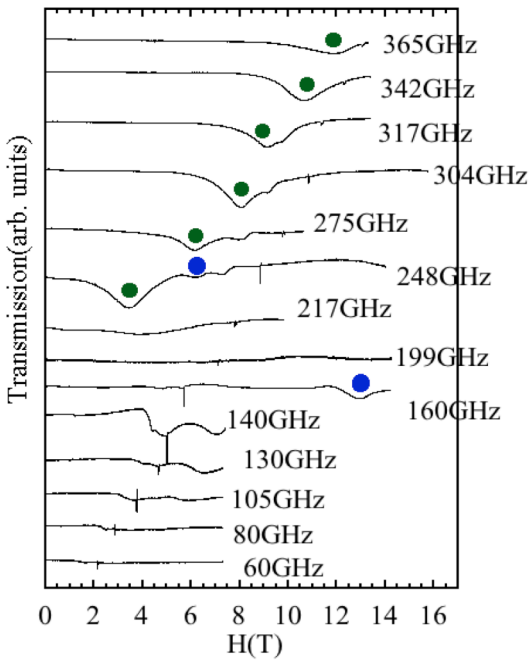

図 1：1.8K における $H//c$ の ESR スペクトルの周波数依存性

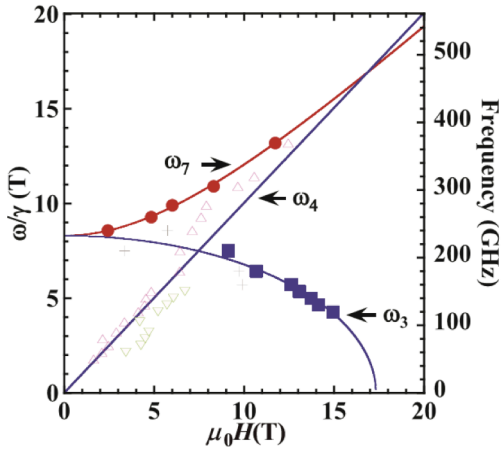

図 2：1.8K における $H//c$ の周波数-磁場プロット

[1] Takashi Endo *et al.*, Inorg. Chem. **51**, 3572-3578 (2012)

P-13

タイトル：High frequency ESR study of magnetic field induced transition in powdered Co-substituted $BiFeO_3$

講演者：K. Benzid[A], A. Morimitsu[B], S. Okubo[A], T. Sakurai[C], S. Hara[C], H. Ohta[A], H. Yamamoto[D], M. Azuma[E]

所属：[A]Molecular Photoscience Research Center, Kobe University, [B]Graduate School of Science, Kobe University, [C]Research Facility Center for Science and Technology, Kobe University, [D]Interdisciplinary Graduate School of Science and Engineering, Tokyo Institute of Technology, [E]Laboratory for Materials and Structures, Tokyo Institute of Technology

要旨：The $BiFeO_3$ is perhaps the only magneto-electric (ME) material at room temperature with T_c~1100K and T_N~640K. This ME material knows tow magnetic phases below T_N, cycloidal and canted G-type antiferromagnetic (G-AFM) phases. It was demonstrated theoretically that the relativistic Lifshitz invariant is at the origin to create incommensurate spin cycloid with very long repeat distance about ~64nm [1]–[3], where the crystal structure allows three symmetry equivalent cycloid directions [3], [4]. B. Ruette *et al.*[2], and U. Nagal *et al.*[4], at T~4K, have reviewed the existence of field induced phase transition from cycloidal to G-AFM state above H_c~18T. It is known that the polarization comes from B^{3+} sites and the magnetization comes from Fe^{3+} sites [5]. For this, many attempts were made to explore the magnetization and the polarization in such material by both Bi and Fe sites substitution. The Co-substituted $BiFeO_3$ is suggested to show some promising magnetic features in this multiferroic where the Co^{3+} ions are in the diamagnetic low-spin state [6]. In this poster, we present the magnetically induced transition of $BiFe_{1-x}Co_xO_3$ with *x=0.1* and *0.2*, from view point of High Frequency/Field ESR spectroscopy.

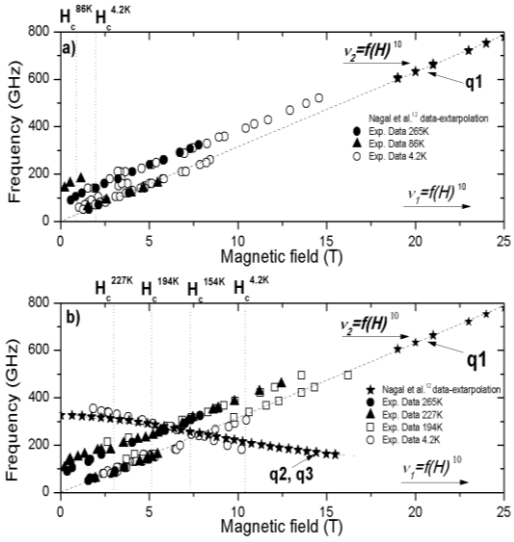

Figure 1: ESR resonance Field-Frequency diagram as function of temperature of; **a)** $BiFe_{0.8}Co_{0.2}O_3$ and **b)** $BiFe_{0.9}Co_{0.1}O_3$ with simulation of field induced transition of Landau-Ginzburg theory [2] ($\nu_2 = f(H)$ solid line and dashed line for $\nu_1 = f(H)$) and U. Nagal *et al.*[4] data (solid star) and their extrapolation (dashed line) of the cycloidal modes in $BiFeO_3$ single crystal

The figure 1 shows the ESR resonance field-frequency diagram recorded at various temperatures for $BiFe_{0.8}Co_{0.2}O_3$ (Fig.1.a) and $BiFe_{0.9}Co_{0.1}O_3$ (Fig.1.b). In the $BiFe_{0.9}Co_{0.1}O_3$, for $H<H_c$~11T, at $T<T_c$~227K, the system is attributed to the cycloidal phase (*open forms*), where the three possible cycloid modes q1, q2 and q3 (*open circles and squares*), calculated and seen in $BiFeO_3$ single crystal [4] (*stars*), are all observed (Fig.1.b). Whereas, in $BiFe_{0.8}Co_{0.2}O_3$, for $H<H_c$~4T, at $T<T_c$~86K, the cycloidal state seems preferring only the *energetically lowered cycloid mode* q1 (Fig.1.a). One say that below T_c and H_c, slight increase of Co substitution could change the magnetic domain structure leading to depopulate q1 and q2 modes and only the q1 cycloid mode [4] could remain. Above T_c and H_c, transition to G-AFM phase occurs. The data picked up for various temperatures (*closed forms*) are fitted by Landau-Ginzburg theory [2] for field induced transition (FIT) with $K_u/\chi = 1.65 \times 10^{10} \mathrm{erg/cm^3}$ and $H_{DM} = \beta . P_z = 1.02 \times 10^5$ Oe both parameters are bit changed from those of FIT in $BiFeO_3$. For both samples, at fixed T, the high FIT (ν_1) seen in $BiFeO_3$ single crystal [2] was not observable here, whereas that of low FIT (ν_2) presents a prefect agreement with our data. It proved theoretically that the Dzyaloshinskii-Moriya field H_{DM} and the uniaxial magnetic anisotropy (K_u) affects FIT (ν_1) and has no-significant effect on FIT (ν_2). To confirm that this what happened here, studies on this point are in progress using very high field ESR (up to 55T) and make new magnetically oriented samples.

[1] I. Sosnowska *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 140–144, Part 1, p. 167, 1995.
[2] B. Ruette, *Phys. Rev. B*, vol. 69, no. 6, 2004.
[3] D. Lebeugle *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, vol.100, no.22, p.227602, 2008.
[4] U. Nagel *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, vol.110, no.25, p.257201, 2013.
[5] G. Catalan *et al.*, *Adv. Mater.*, vol. 21, no. 24, p. 2463, 2009.
[6] H. Yamamoto *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol. 85, no. 6, p. 064704, 2016.

タイトル：*S*=1/2 擬一次元鎖反強磁性体 $Cu(C_4H_4N_2)(NO_3)_2$ の超低温高周波 ESR

講演者：石川裕也 [A]，藤井裕 [B]，三浦俊亮 [A]，大矢健太 [B]，浅野貴行 [A]，小泉優太 [B]，光藤誠太郎 [B]，福田昭 [C]，水崎隆雄 [B]，菊池彦光 [A]，松原明 [D]，山森英智 [A]，

所属：[A] 福井大工，[B] 福井大遠赤セ，[C] 兵庫医大物理，[D] 京大理

要旨：我々は核スピンが希薄な系に対し、ESR 遷移による動的核偏極(DNP)効果を用いて核磁気共鳴(NMR)信号を直接検出することを目指し、磁気共鳴装置の開発を行っている。ESR 測定においては、照射されるミリ波によって試料の温度が上昇する可能性がある。試料温度の直接観測は困難なため、ESR 測定から温度評価をできると便利である。ESR において良く知られている標準試料として常磁性試料($Mn_xMg_{1-x}O$ (x =1/10000)など)の温度変化が磁化に比例する、または g 値がシフトする試料を用いる事が考えられる。しかし、希釈冷凍機温度領域では磁気秩序の発達などにより、線幅の増大や緩和時間の変化などが起き、十分に温度指標として役立つものは今のところ知られていない[1]。$Cu(C_4H_4N_2)(NO_3)_2$ は S = 1/2 を持つ Cu^{2+} が a 軸方向に擬一次元鎖を形成しており、J = 10.3 K の反強磁性的(AF)交換相互作用が働く[2]。μSR 測定により T_N =107 mK で長距離秩序の存在が示唆され、鎖間に J = 0.046 K の AF 相互作用が働くことが予想されている[3]。しかし、比熱、磁化などのマクロな測定において長距離磁気秩序は観測されておらず[2,4]、この点においてもこの物質の磁性を磁気共鳴の観点から調べることは興味ある課題である。ミリ波領域での ESR 測定は低温での周波数変化が既報であり、b 軸と c 軸の中間となる角度に対し平行に外部磁場を印加すると、g 値の異なる 2 本の分裂した ESR スペクトルが観測される[5]。今回我々は、単結晶試料を用いて中間角度に平行に磁場を印加し、100 mK – 6.5 K の温度範囲にて ESR 測定を行った。2 本の ESR スペクトルの分裂は温度の低下に伴い増大した。本講演では結果の詳細について報告する。

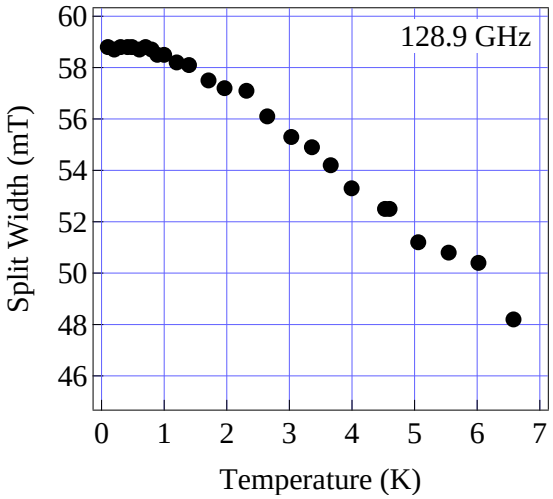

図 1：128.9 GHz における、$Cu(C_4H_4N_2)(NO_3)_2$ の分裂幅の温度依存性。b 軸と c 軸の中間となる角度に対し平行に外部磁場を印加した。

[1] 石川裕也 *et al.*, 日本赤外線学会誌 第 27 巻 1 号 65-73 (2017).
[2] P. R. Hammar *et al.*, Phys. Rev. B, **59**, 1008 (1999).
[3] T. Lancaster *et al.*, Phys. Rev. B, **73**, 020410 (2006).
[4] Y. Kono *et al.*, Phys. Rev. Lett., **114**, 037202 (2015).
[5] A. A. Validov *et al.*, J. Phys.: Cond. Matter, **26**, 026003 (2014).

タイトル：ESR/NMR 二重磁気共鳴に向けたミリ波帯円筒型共振器の開発

講演者：大矢健太 [A]，三浦俊亮 [B]，小泉優太 [A]，石川裕也 [B]，藤井裕 [A]，福田昭 [C]，
光藤誠太郎 [A]，菊池彦光 [B]
所属：[A] 福井大学遠赤外領域開発研究センター，[B] 福井大学大学院工学研究科，[C] 兵庫医科大学物理教室

要旨：我々は、電子スピン共鳴(ESR)と核磁気共鳴(NMR)を同時に行う動的核偏極(DNP)-NMR や電子-核二重共鳴(ENDOR)といった二重磁気共鳴測定を超低温・高磁場域で行うことを目標に、^{3}He/^{4}He 希釈冷凍機を用いた装置開発を行っている。しかし、希釈冷凍機を用いたこの磁気共鳴システムは、発振器から試料までの導波管経路が長くなるために経路内で電磁波の減衰が大きく、ESR 感度が悪化してしまうという問題がある。この問題に対して、共振器を使用することにより、試料に効率良くミリ波を照射するとともに感度を向上させることが可能となる。これまで我々は、この共振器として、球面ミラーと平面ミラーを対に並べた Fabry-Pérot 型共振器を用いてきた。この共振器は金薄膜の平面ミラー(母材は絶縁体樹脂板)をもち、さらにその平面ミラー上の試料近傍にヘルムホルツ型の RF コイルを設置することにより、二重磁気共鳴を可能とするものである。Fabry-Pérot 型共振器を用いて超低温域で Si:P の ESR 測定及びミラー母材の絶縁体樹脂中に含まれる ^{1}H の NMR 測定に成功した[1]。しかし、このヘルムホルツ型コイルは試料の充填率に限界があるため、NMR 感度が低い。そこで我々は、NMR 感度を向上させるために新たなデザインの二重磁気共鳴用の円筒型共振器を開発している。共振器を円筒型にすることで Fabry-Pérot 型よりも試料量を増やすことが可能になり充填率の向上が見込める。現在までに、無酸素銅で円筒型共振器を製作し、ミリ波帯における円筒型共振器の共振特性を評価した。さらに現在は、RF コイルを円筒に沿うように設置するために、円筒を STYCAST1266 で製作し、その内壁に金のスパッタを施した円筒型共振器を開発している(図 1)。講演では、この二重磁気共鳴用円筒型共振器の共振特性および磁気共鳴測定の結果について報告する。

[1]大矢ら：第 3 回西日本強磁場科学研究会 P15 (2016).

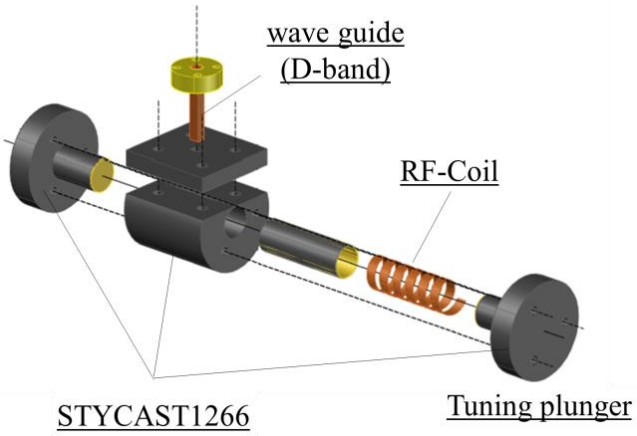

図 1：円筒型二重磁気共鳴用共振器

P-16

タイトル： ピエゾアクチュエータを用いた極低温ミリ波帯 ESR 装置の開発

講演者：三浦俊亮 [A]，大矢健太 [B]，石川裕也 [A]，藤井裕 [B]，菊池彦光 [A]，福田昭 [C]，光藤誠太郎 [B]，戸田充 [B, D]

所属：[A] 福井大学工学研究科，[B] 福井大学遠赤外領域開発研究センター，[C] 兵庫医科大学物理教室，[D] 株式会社　JEOL RESONANCE

要旨： 現在までに我々は超低温・高磁場で ESR と NMR の二重磁気共鳴が可能なシステムを希釈冷凍機に構築し[1]、$Mn_xMg_{1-x}O$ (x = 1/10000)の ESR 測定を行った[2]。このシステムにおいて我々は、信号検出感度を高めるために Fabry-Pérot 型共振器を用いた。この共振器は 2 枚の向かい合うミラーで構成される共振器で、ここでは球面-平面で構成された Fabry-Pérot 型共振器を用いており、測定試料は下側の平面ミラーに設置していた。この共振器はミラー間の距離によって共振周波数が決まり、ミラー間距離を変えることで共振周波数を調整することが可能である。しかしこれまでは、室温部からミラー間距離の調整機構はなく、トップロード型ではない希釈冷凍機とともに共振器を冷却した後は固定周波数でのみの測定であった。さらに温度変化による共振周波数の変化も大きいことから、ESR 信号検出感度の良い周波数を狙って調整するのは困難であった。そこで我々はピエゾアクチュエータを自作し、遠隔操作により試料を乗せる下側の平面ミラーの高さを外部から調整できる機構を持つ Fabry-Pérot 型共振器の製作を行い、DPPH の多周波 ESR 測定により評価した[3]。しかし、この構造では共振周波数を調整すると試料位置が磁場中心から外れていき、結果として線幅が測定周波数によって変化してしまうという問題が残った。

そこで今回我々は、球面ミラーと平面ミラーの位置を入れ替え、下側に位置する球面ミラーが可動するようにして、試料部である平面ミラーは固定となるような改良を加えた共振器を製作した。そして、この共振器を用いて DPPH の多周波 ESR を行い、線幅の変化を評価した。また、導波管と共振器とのカップリングの最適化を目指して金薄膜を用いるなどの試みを行った。詳細は当日報告する。

[1] Y. Fujii *et al.*: J. Phys.: Conf. Ser., **568**, 042005 (2015).

[2]石川裕也ら: 日本赤外線学会誌 第 27 巻 1 号 65-73 (2017).

[3]三浦俊亮ら: 日本物理学会第 72 回年次大会 17pC-PS-29 (2017).

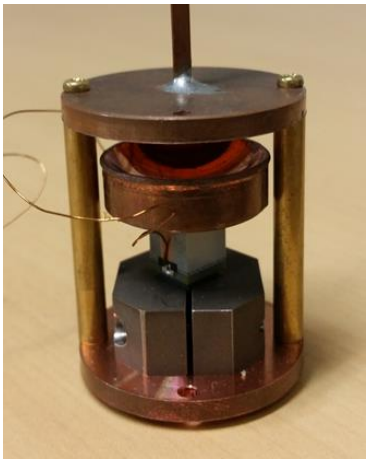

図 1 : 改良後の Fabry-Pérot 型共振器

タイトル：DNP-NMR 測定に向けた平面型コイルの開発

講演者：小泉優太 [A]，石川裕也 [B]，大矢健太 [A]，三浦俊亮 [B]，藤井裕 [A]，福田昭 [C]，
光藤誠太郎 [A]，菊池彦光 [B]，
所属：[A] 福井大遠赤セ，[B] 福井大工，[C] 兵庫医大物理

要旨：我々は、超低温・高磁場域で、核スピンが希薄な系に対し、動的核偏極（DNP）効果を用いて核磁気共鳴（NMR）信号を直接検出することを目指し、ESR/NMR 二重磁気共鳴装置の開発を行っている[1]。これまで、Fabry-Perot 型共振器を用いて RF 磁場を発生させるために磁場均一度の高い helmholtz 型のコイルを試料付近に設置していたが、ミリ波共振モードを乱さないように RF コイルを試料から離れた位置に設置しなければならないために、主にフィリングファクターの問題から、通常の RF コイルでは、高感度な NMR 信号の検出は難しい。そこで、我々は、Fabry-Perot 型共振器構造はそのままにして、NMR コイルの形状をメアンダラインと呼ばれる蛇型の平面コイル（図 1）に変更することを検討した。この平面コイルでは、その平面を外部静磁場と垂直に設置し薄い試料をコイルの上に載せる。これは円筒型のソレノイドではフィリングファクターが小さいような薄い試料でも高感度に NMR 測定できるように提案されたものである[2]。

二重磁気共鳴においては、Fabry-Perot 型共振器の平面ミラーを金薄膜として、その直下にメアンダラインコイルを設置することにより、薄い試料の NMR 信号検出感度を向上させることができ、DNP-NMR に有利になると期待される。そこで、メアンダライン平面コイルを試作し、コバルト多結晶を用いた ^{59}Co-NMR 測定やテフロンシートの ^{19}F-NMR 測定を常温で行い、試料-コイル間距離と信号強度の関係などを調べるとともに、最適なメアンダラインコイルの形状パラメーターを探索した。さらに、テフロンシートを重ねていくことで、試料の厚みに対する信号強度の関係性を調べた(図２)。また、平面コイルを Fabry-Perot 型共振器に組み込み、^{3}He/^{4}He 希釈冷凍機を用いて、Si:P の ESR/NMR 二重磁気共鳴の観測を目指している。本講演では、平面コイルの特性及び、二重磁気共鳴の測定結果について報告する予定である。

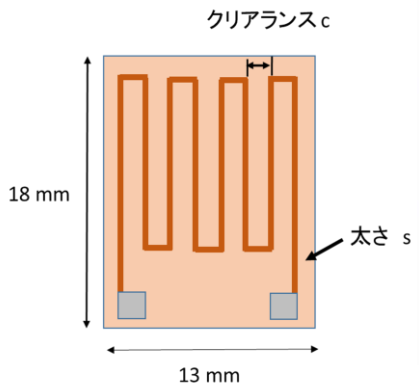

図 1：メアンダラインの概要図

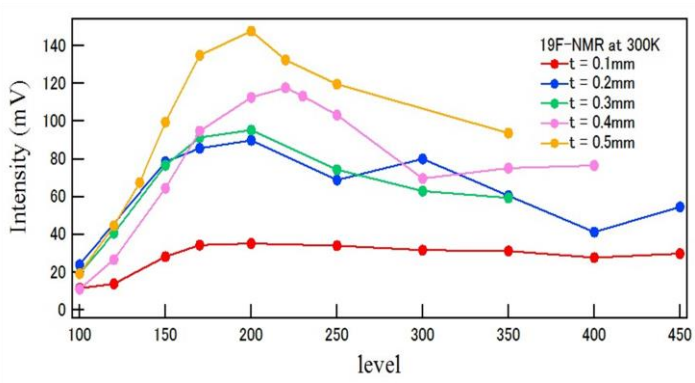

図 2：テフロンシートの厚みによる信号強度の依存性

[1]大矢ら：日本物理学会 2016 年秋季大会 13aPS-93 (2016).
[2] M. L. BUESS *et al.*: J. Magnetic Resonance.**92,** 348-362 (1991).

タイトル：高出力ジャイロトロン光源を用いた強磁場パルス ESR 装置の開発

講演者：柊木健志 [A], 河野海志 [A], 堂野壱暉 [A], 光藤誠太郎 [A]

所属：[A] 福井大学遠赤外領域開発研究センター

要旨：パルス ESR は電子スピンの動的性質を調べるために有効な手法である。電子スピンの動的性質は量子コンピュータや巨大タンパク質の構造解析などの実現にとって重要な情報となっている。高周波のパルス ESR 装置の発振源として自由電子レーザーによる装置が開発されているが、我々は高出力ミリ波光源である 154 GHz Gyrotron FU CW VIIA を用いることで、コンパクトであり研究室レベルで実現可能な高周波パルス ESR 装置の実現を目指している。

開発を行っている高周波パルス ESR 装置の概略図を図 1 に示す。Gyrotron により出力されたミリ波は、初めに形状変換を容易にするために、5 枚の楕円ミラーによってガウシアンビームに変換される。その後、ミリ波は光駆動半導体スイッチによって数ナノ秒の励起パルスに成形される。光駆動半導体スイッチでは、高抵抗 Si 板に Gyrotron の繰り返し発振に同期させた Nd:YAG レーザーを照射することで Si 板がシャッターのような役割を果たし、狙った時間に数ナノ秒の励起パルスを生成することができる。この励起パルスは直線偏光性とパルス波形を維持したまま長距離伝送を行い、液体ヘリウム温度まで温調可能で、約 5 テスラの磁場中に置かれた試料に照射する必要がある。そこで、楕円ミラーを用いた準光学伝送系により長距離伝送を行い、コルゲート導波管を用いた直交偏波検出法を行うために ESR プローブとなっている円形コルゲート導波管に結合するようビーム形状を変形している。一方で、ESR プローブにより試料に照射されたミリ波は、試料下部に設置されたミラーによって反射され、入射時と同様の形状で逆の進行方向となる。ここで入射波と反射波の経路を分けるための Wire Grid (WG) と 45 度 Faraday Rotator (FR) が組み込まれており、入射波と反射波の偏光面が 90 度変えられているので、反射波は WG により検出系へ反射される。検出系では、信号強度が励起パルスの 1/1000 程となる spin echo を検出する。検出器が壊れないよう励起パルスを取り除き信号のみを検出器に入れる必要がある。そこで, 光駆動半導体スイッチと同様 Si シャッターを用いることで spin echo のみを検出器へ入れている。

今回開発を行った検出系では、ビーム伝送効率を考慮し, Si 板・Detector horn それぞれの位置に対してビームウエストを作った。これにより、信号強度と励起パルスの減衰率が向上した。

さらに、これらの装置を用いて ESR 信号の検出を行ったのでこの実験結果についての報告を行う。

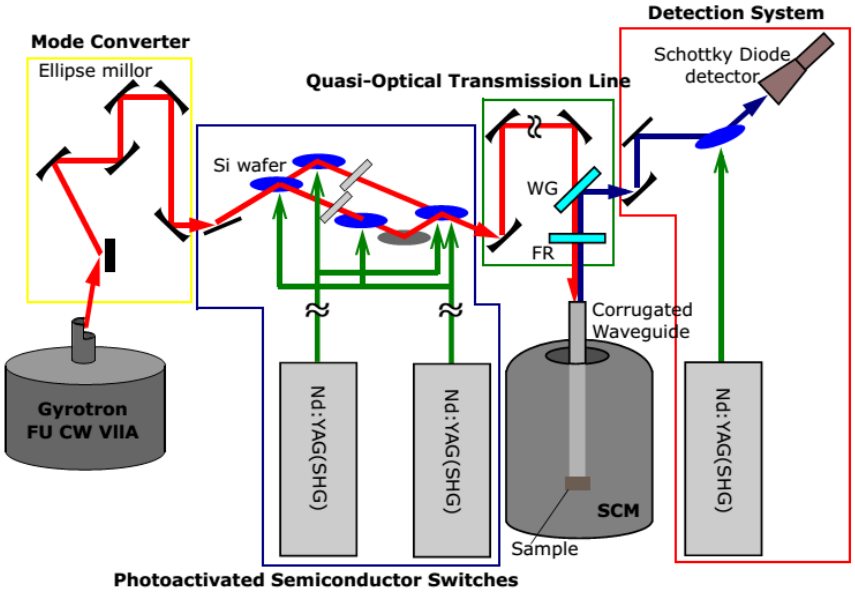

図 1：高周波パルス ESR 装置の概略図

タイトル： 強磁場パルス ESR システムの周波数可変性

講演者：河野海志 [A]，柊木健志 [A]，堂野壱暉 [A]，成岡夢有 [A]，光藤誠太郎 [A]
所属：[A] 福井大学遠赤外線領域開発研究センター

要旨：パルス ESR は電子スピンの動的性質を調べるために有効な手法である。電子スピンの動的性質は量子コンピュータや巨大タンパク質の構造解析などの実現にとって重要な情報となっている。高周波のパルス ESR 装置に必要な高出力高周波発振源として、自由電子レーザーによる装置が開発されているが、我々は高出力ミリ波光源であるジャイロトロンを用いることで、コンパクトであり研究室レベルで実現可能な高周波パルス ESR 装置の実現を目指している。

開発を行っている 154 GHz 高周波パルス ESR 装置は導波管を用いず、準光学ミラーを用いた伝送系により開発を行っている。準光学伝送システムを用いることで、矩形導波管に比べて伝送時の減衰が抑えられることに加えて幅広い周波数可変性を持たせることができる。本研究ではパルス ESR 用に開発した準光学伝送系ではあるが、その周波数可変性を利用して 100 GHz から 200 GHz の多周波ミリ波 CW-ESR 測定を行った結果について報告する。図 1 に準光学整合器 MOU-Ⅱ(Matching Optics Unit-Ⅱ)の概略図を示す。MOU-Ⅱを用いることでミリ波を磁場中に置かれた ESR 試料に導くコルゲート導波管(CWG)に最適に結合するようにビーム形状を変換している。パルス ESR では高出力の励起パルスのビーム形状を楕円ミラーEM1 と EM2 により，円形ホーン(CH)から放射される mW レベルの同一周波数(154 .1GHz)で連続発振するミリ波ビームと同一形状に変換する。これにより、 本システムでは連続波による CW-ESR とパルス ESR を、平面ミラー(FMS)を 90 度回転することで切り替えて行うことができるようになっている。

ミリ波は MOU-Ⅱをガウシアンビームとして伝送される。ガウシアンビーム形状は一組の楕円ミラー(EM3,EM4)によりビームウエストのサイズと位置を任意に変換することができる。また一組の楕円ミラーを用いた場合、周波数(波長)を変化してもビームウエスト位置はほとんど動かないことが知られている。そこで、パルス ESR の高周波化の予備実験および周波数可変の CW-ESR 装置としての評価を行うために、伝送系の設計値に用いた最適な周波数(154 GHz)以外の周波数の電磁波における準光学伝送の様子を数値計算から確認した。また、実際に多周波 CW-ESR 測定を行い、ESR の周波数可変性を確かめた。試料はスチレンの中に拡散した 50 mM の 4-Oxo-TEMPO を用いた。結果を図 2 に示す。検出には感度向上のために変調磁場をかけロックインアンプを用いた検出を行った。

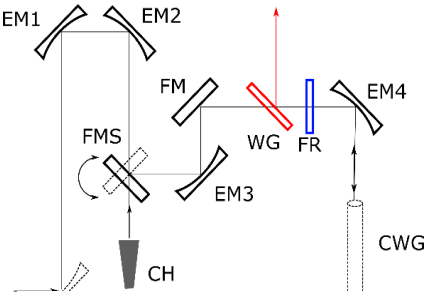

図 1：MOU-Ⅱ概略図

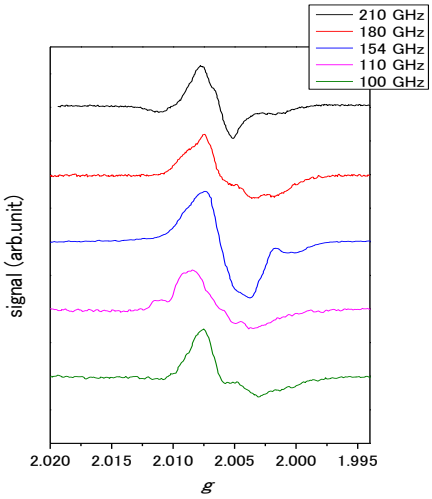

図 2：MOU-Ⅱを用いた多周波数 CW-ESR スペクトル

タイトル：電磁波焼結による高周波高圧力セル用アルミナ材料の開発

講演者：蟹江良尚[A]，縄手知樹[A]，山本悠太[A]，光藤誠太郎[A]，櫻井敬博[B]
所属：[A]福井大学遠赤外領域開発研究センター，[B]神戸大学・研究基盤センター

要旨：強磁場・低温・高圧下の電子スピン共鳴 (ESR) 装置の開発では高周波領域で測定が可能な圧力セル用セラミックスの開発が求められている。ミリ波・サブミリ波帯の電磁波透過の点から、有力な材料としては高密度・高純度のアルミナセラミックス Al_2O_3 が挙げられる。しかし、高密度アルミナセラミックスは高硬度ではあるが靭性値が低く、高い破壊靭性値が要求される圧力セル部材としては不向きである。高い破壊靭性値を持つ複合材料として、高密度アルミナセラミックスの高硬度特性とジルコニアミックスの高靭性特性を合わせることにより、高い破壊靭性値を実現するジルコニア強化アルミナセラミックスがある。しかし、ジルコニアセラミックスはホッピング電導性があり、高周波の電磁波の透過性能を低下させる。そのため、高い電磁波透過性が要求される高周波 ESR 用の圧力セル材料としては望ましくない。一方、破壊靭性値はセラミックス粒径を小さくすることで、応力ひずみを分散し、亀裂の進展を妨げることで、脆性破壊の進展を食い止めることでも破壊靭性値を高めることができる。しかし、一般的には、高硬度(高密度)のセラミックスを得るためには高温で長時間の焼結処理が必要となり、それに伴い粒成長が進むため、破壊靭性値は低下してしまう。そのため高い破壊靭性値が期待できる高硬度ながら小粒径のセラミックスを得ることは難しい。

一方、我々のグループではミリ波焼結特有の効果を利用することで高密度小粒径のアルミナセラミックスの焼結について研究を行ってきた。本研究ではこれらの知見を用いることで、上記の問題解決に取り組んでいる。はじめに、焼結体に大きな影響を与える、成型体(グリーンサンプル)の形状の違いによる影響を調べた。圧力セルの内部部品として規格に合う焼結体の生成にあたり、これまでの焼結で用いられていた試料の大きさ φ 20 × 3 mm から φ 18 × 20 mm への形状の変更を行った。図 1 より形状の変化は焼結温度と相対密度について 1500 度以上では影響がないことが分かった。また、図 2 から、粒径についても同程度のものが得られることを確認できた。さらに、粒径の均一度についても試料内部と側面で粒径の大きさの差は 0.2 μm 程度であり、焼結時の温度分布も小さく形状変更の影響を小さく抑えることができた。

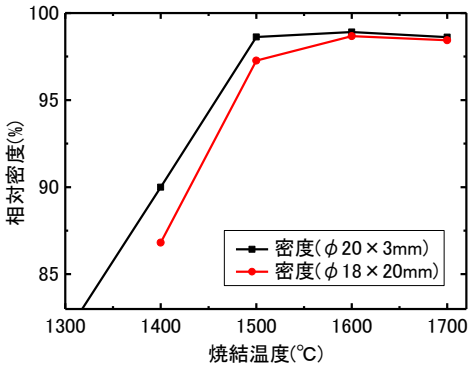

図 1：焼結温度と密度

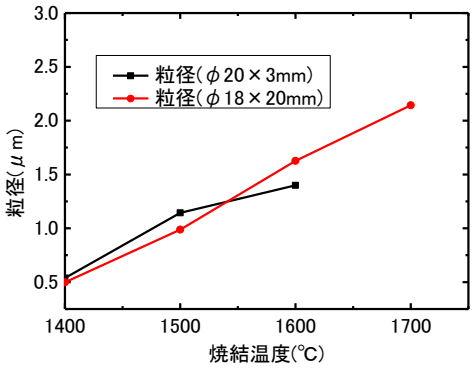

図 2：焼結温度と粒径

タイトル：反強磁性金属 $FeSn_2$ の強磁場輸送現象

講演者：木田孝則 [A], 田原大夢 [A], 垣花将司 [B], 辺土正人 [B], 仲間隆男 [B], 大貫惇睦 [B], 萩原政幸 [A]
所属：[A] 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，[B] 琉球大学理学部

要旨：$FeSn_2$ は正方晶の結晶構造を有し、[001]方向に伸びた針状の結晶である。磁性は 378 K 以下で反強磁性を示し、更に 93 K で Fe スピンが[100]軸を向いたコリニアな磁気構造から(001)面内で[110]方向へ傾いたノンコリニアな磁気構造へ変わることが報告されている[1]。一方、輸送特性についてはあまり報告がない。本研究では、この物質の磁性と輸送現象の関係を明らかにする目的で磁気抵抗の測定を行った。試料は自己フラックス法で作成し、磁気抵抗は超伝導マグネット（$\mu_0 H \leq 14$ T）および非破壊型パルスマグネット（$\mu_0 H < 52$ T）を用いて測定した。

図 1 に電流方向を $I \parallel [001]$ とした場合の、$T = 1.5$ K における磁気抵抗の磁場方位依存性を示す。$H \parallel [110]$ では 14 T で磁気抵抗比 $\Delta\rho/\rho_0 \sim 2200\%$ の比較的大きな正の磁気抵抗が観測され、温度上昇とともに $\Delta\rho/\rho_0$ は減少した。(001)面内で磁場方位を変化させると、挿入図に示すように、1.5 K、13 T の $\Delta\rho/\rho_0$ は結晶構造の対称性を反映して 4 回対称の磁気抵抗効果を示すことが分かった。また、横磁気抵抗配置での磁場中電気抵抗率は低温で極小を示し、温度の低下とともに -log$T$ に比例して上昇した後ある一定値に漸近する振る舞いを示した。一方、$H \parallel [001]$ では 6 T で $\Delta\rho/\rho_0 \sim 20\%$ の正の磁気抵抗を示し、その後飽和する振る舞いを示した。講演では、パルス強磁場を用いて測定した高磁場磁気抵抗の結果を示すとともに、この物質の磁気輸送現象について議論する。

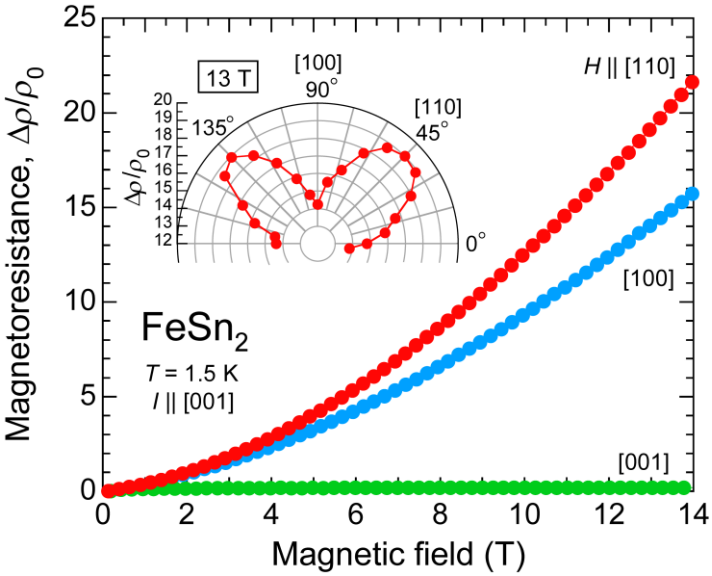

図 1： $FeSn_2$ の磁気抵抗の磁場方位依存性

[1] G. Venturini *et al.*, J. Phys. F: Met. Phys. **15**, 427 (1985).

タイトル：$Ca_2CoSi_2O_7$ におけるパルス強磁場電子スピン共鳴測定

講演者：赤木暢，金井田小夏，萩原政幸
所属：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

要旨： 物質内の磁気励起を観測する電子スピン共鳴（ESR）は、 磁性体の研究において微視的情報を得ることのできる測定手法の一つである。さらにスピンと電気分極の相関を持つマルチフェロイック物質では、2 つの相関が生み出す特異なスピン励起が観測されることもあり、電気磁気マルチフェロイック物質の研究に重要な知見をもたらすことが期待できる。本研究対象の $Ca_2CoSi_2O_7$ は、スピン誘起の電気分極を持つマルチフェロイック物質である。$Ca_2CoSi_2O_7$ では、*c* 軸方向磁場印加時に 20～50 T という広い磁場範囲で飽和磁化の 85%程度の磁化を示す特異な磁化プラトー状態が観測されている[1]（図 1 (a)参照）。本研究では、この磁化プラトーの磁気状態の解明を目的とし、多周波強磁場 ESR 測定を行った。

FZ 法で成長させた $Ca_2CoSi_2O_7$ 単結晶を結晶軸に沿って切り出した後、パルス強磁場下での ESR 測定を行った。図 1 (b)にパルス強磁場 ESR 測定から得られた共鳴点の周波数 - 磁場プロットを示す。この実験から、20~50 T の磁化プラトー状態で多くの磁気共鳴吸収が観測された。このことから、複雑な磁気状態が実現していることが予想できる。当日は、他の磁場印加方向における測定結果を含めた、$Ca_2CoSi_2O_7$ の磁気励起の詳細について報告する。

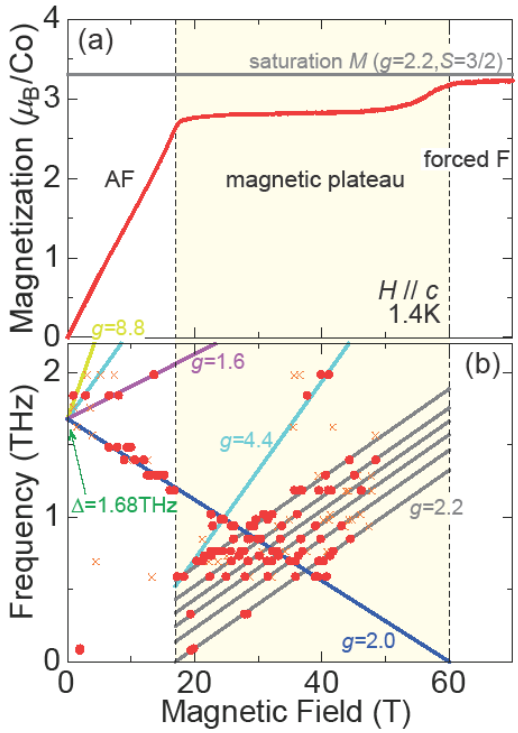

図 1 . (a) $Ca_2CoSi_2O_7$ の磁化曲線（1.4K, *H*//*c*）
(b) 共鳴点の周波数 - 磁場プロット

[1] M. Akaki *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 093704 (2014).

タイトル： $BaVS_3$ における金属絶縁体転移の圧力効果

講演者：田原大夢 [A]，木田孝則 [A]，鳴海康雄 [A]，中村裕之 [B]，萩原政幸 [A]
所属：[A] 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，[B] 京都大学工学部

要旨：遷移金属硫化物 $BaVS_3$ は、面共有した VS_6 が c 軸に沿って一次元的に連なった結晶構造を持つ。この物質は $T_{MI} \sim 70$ K で電荷密度波の形成に起因する金属-絶縁体(MI)転移を示す[1,2]。T_{MI} で帯磁率はピークを示し、反強磁性秩序しているように見えるが、中性子散乱の実験から、反強磁性磁気秩序は $T_X \sim 30$ K 以下で起こることがわかっている[3]。70 T までの強磁場磁化測定及び磁気抵抗測定から、$BaVS_3$ の MI 転移には複数のエネルギーギャップを生じさせる機構が関係していることが分かっている[4]。我々は、ダイヤモンドアンビル型圧力セルおよびピストンシリンダー型圧力セルとパルス強磁場を用いて高圧力下磁気抵抗測定、磁化測定を行い、エネルギーギャップの圧力による変化を調べた。図 1 に圧力下での帯磁率の温度変化を示す。先行研究の圧力下電気抵抗測定[5]や、圧力下帯磁率測定[6]と同様に、圧力を印加することで T_{MI} が抑制されていく様子がみられる。講演では強磁場実験の結果を示すとともに、特に MI 転移が消失する臨界圧力近傍の振る舞いに注目し、エネルギーギャップの起源について議論する予定である。

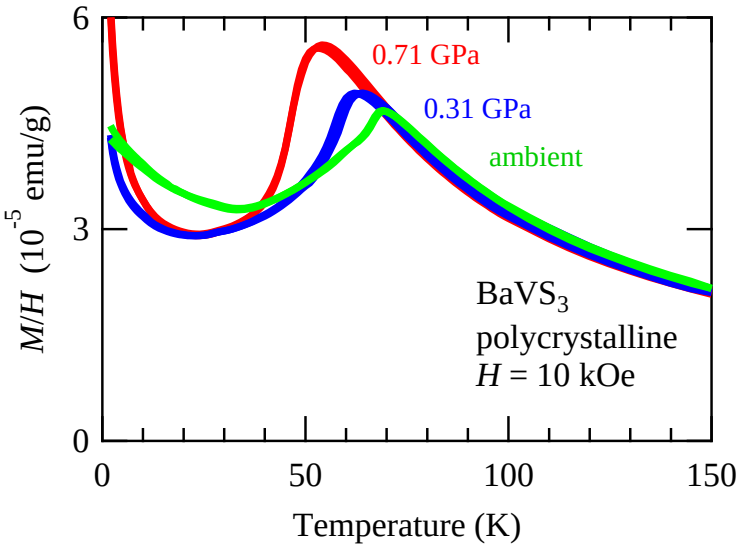

図 1: $BaVS_3$ の帯磁率の圧力依存性.

[1] T. Inami *et al*., Phys. Rev. B **66**, 073108 (2002).
[2] G. Mihály et al., Phys. Rev. B., **61**, 7831 (2000).
[3] H. Nakamura *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. **69**, 2763 (2000).
[4] Y. Narumi *et al*., J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 013706 (2007).
[5] L. Forró *et al*., Phys. Rev. Lett., **85**, 1938 (2000).
[6] T. Kobayashi et al., private communication.

タイトル：複合極限環境下物性測定装置の開発

講演者：有留那愉多[A]，田原大夢[A]，木田孝則[A]，竹内徹也[B]，大貫惇睦[C]，萩原政幸[A]
所属：[A]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，[B]大阪大学低温センター，[C]琉球大学理学部

要旨：超強磁場，超高圧及び極低温などに代表される環境は極限環境と呼ばれる。このような極限環境を組み合わせた複合極限環境下で、物質が様々な新奇現象を示すことはよく知られている。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の物質群では、圧力誘起の量子臨界現象がしばしば観測されており、その研究においては高圧力での実験技術が必要である。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、パルス強磁場・高圧力下物性測定装置の開発を進めてきた。従来のミッドパルスマグネット（ボア径：18 mm）では最大発生圧力が約 1 GPa のピストンシリンダー型圧力セル（NiCrAl 合金製）を用いたパルス強磁場・高圧力下磁化測定が可能であり、ボア径が 48 mm のワイドボアパルスマグネットではダイヤモンドアンビル型圧力セル（NiCrAl 合金製）を用いて、10 GPa、50 T の圧力-磁場範囲での輸送現象測定装置の開発を進めている。これまでのところ、液体 ^{4}He のポンピング温度（1.4 K）が最低温度であるが、本研究では ^{3}He 用いた 1 K 以下の極低温下での磁化および輸送現象測定を目指している。

磁化測定用として最大発生圧力が 2 GPa のブリッジマンアンビル型圧力セルの開発を進めている。一方、輸送現象測定（トンネルダイオード振動法による表面インピーダンス測定と電気抵抗測定）用として最大発生圧力が 1 GPa のピストンシリンダー型圧力セルの開発も進めている。講演ではこれらの開発の現状について報告する。

タイトル:パルス強磁場磁化-電気抵抗-磁歪同時測定による磁場誘起マルテンサイト変態の研究

講演者：吐合慶亮 [A]，鳴海康雄 [A]，福田隆 [B]，田中雅也 [B]，掛下知行 [B]，木田孝則 [A]，萩原政幸 [A]
所属：[A] 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，[B] 大阪大学大学院工学研究科

要旨:形状記憶や超弾性を示す物質において観測される原子の拡散を伴わない一次の構造相転移をマルテンサイト変態(M 変態)と呼ぶ。M 変態は非等温過程と等温過程と呼ばれる二つの過程に分類され、非等温過程では系のエネルギーがあるポテンシャル障壁を超えたときに相転移が起こり、それに対して等温過程ではポテンシャル障壁を超えるためのエネルギーに加えてある潜伏時間を経て相転移が起こる。本研究の目的は、等温過程における M 変態を特徴づける潜伏時間の物理的メカニズムを明らかにすることである。図 1 に Fe-24.9Ni-3.9Mn 合金に対する定常磁場中の磁化測定によって決定された Time-Temperature-Transformation 図(TTT 図）を示す[1]。この相図から、磁場の増強に伴って潜伏時間は減少し、ノーズ温度と呼ばれる温度で最小値をとることがわかる。今回、より高い磁場領域を短時間で掃印可能なパルス磁場を用いた磁化測定によって、潜伏時間を評価する実験を行った。図 1 にパルス幅が約 35 ミリ秒のミッドパルスマグネットを用いて 77 K で測定した Fe-24.9Ni-3.9Mn 合金の磁化と磁場の時間変化を示す。この測定から 77K における変態磁場が約 16T であることを確認した。磁場ピーク付近の磁場がほぼ一定であると仮定すると、潜伏時間は数ミリ秒かそれ以下であると見積もられる。今後、異なる試料片を用いた再現性実験や、磁場掃印条件を変えた実験も計画している。M 変態は、磁性だけで無く構造や導電性にもその変化が現れる。そこで我々は現在、磁化と電気抵抗、もしくは構造変化に対応する磁歪を同時に測定できる装置開発を行っている。同時測定を行う事で、不可逆な磁場誘起 M 変態においても、2 つの物理量を正確に比較することが可能となる。これによって磁化測定では捉えることの出来ない潜伏時間で起こりうる物理量の変化の観測が期待され、M 変態における潜伏時間を支配するメカニズムの解明につながると考えている。今回の発表では定常磁場での結果も交えながら磁化測定の結果について考察するとともに、磁化・電気抵抗同時測定の開発状況について報告する。

［1］T. Kakeshita *et al.* Mater. Trans. JIM **34** (1993) 415

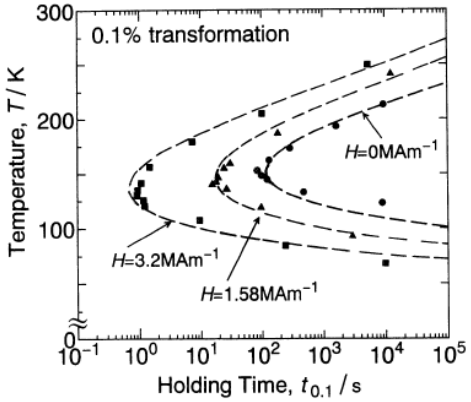

図 1 . Fe-24.9Ni-3.9Mn の TTT 図
(1MA/m ≒ 1.25T)

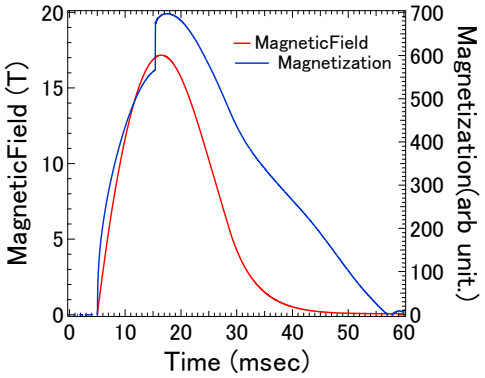

図 2 . Fe-24.9Ni-3.9Mn の磁化曲線