

タイトル：量子スピン系における ESR の光学選択則

講演者：木村尚次郎

所属：東北大学金属材料研究所

要旨： 磁気的なエネルギー準位間の光学遷移を観測する ESR は、磁性体を調べる有効な実験手法の一つである。一般に ESR を引き起こす磁気双極遷移では電子スピンの磁気モーメントと電磁波の振動磁場が相互作用し、通常は光学遷移の前後で測定対象となる系のスピン量子数と波数が保存する。しかし、いくつかの物質でこの選択則が破れた光学遷移が観測されている。例えば Haldane 系 $\text{Ni}(\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{NO}_2\text{ClO}_4$ (NENP) では、波数 $k = 0$ のスピンシングレット状態から $k = \pi$ のトリプレット状態への遷移が生じる。本講演では、このような禁制遷移が観測されたいくつかの物質について、直線偏光を用いた ESR 測定によって光学選択則を調べ禁制遷移の起源を明らかにした結果について述べる。上述の NENP では、磁性を担う Ni^{2+} 鎖の交替構造に由来して磁場印加時に発生する staggered 磁場によるスピンシングレットとトリプレット状態の混成が、両者の間の光学遷移の起源となっていると提案されている[1]。さらにこのような摂動的な磁気相互作用による状態混成の他に、スピンが電気双極子と結合するために生じる電気双極子遷移が禁制遷移の起源になっている場合がある。 $S = 1/2$ スピンダイマー系 KCuCl_3 では、結晶学的に異なる 2 種類のダイマーの存在を反映して図 1 のように A, B の二組のシングレット-トリプレット遷移が観測されるが、図 2 に示した ESR スペクトルの偏光方向依存性は、A, B がともに振動電場による電気双極子遷移によって生じていることを示している[2]。一方、 $S = 1/2$ Ising 型一次元反強磁性体 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ でみられた $k = \pi$ および $k = \pi/2$ の励起状態への遷移の場合、選択則は励起モードごとに異なっており、磁気双極子遷移によって観測されるモードもあれば電気双極子遷移で励起されるものもあることが偏光を用いた ESR 測定で明らかになった[3]。

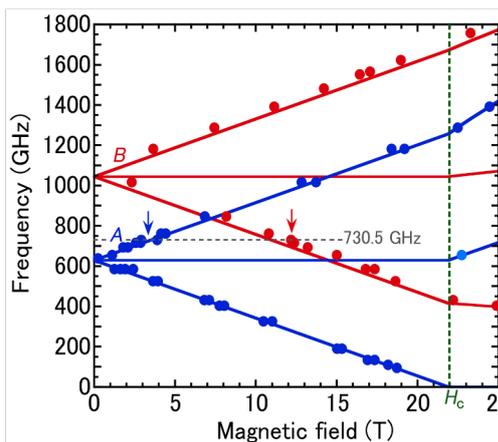


図 1 : KCuCl_3 の ESR 周波数磁場プロット

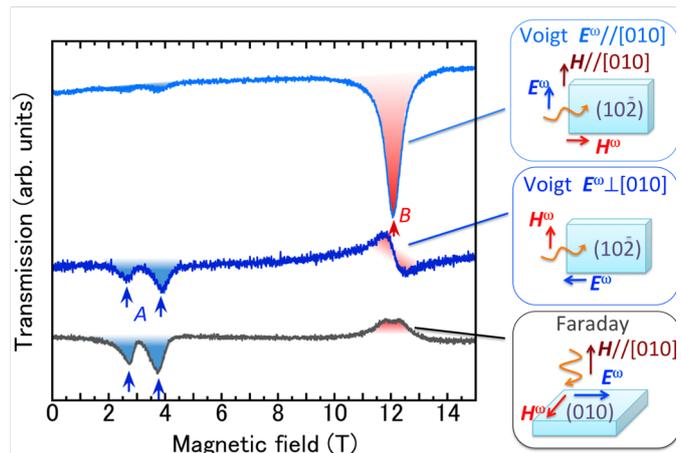


図 2 : KCuCl_3 の偏光 ESR スペクトル

[1] T. Sakai and H. Shiba, J. Phys. Soc. Jpn. **63**, 867 (1994).

[2] S. Kimura *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 140406(R) (2018).

[3] S. Kimura *et al.*, Phys. Rev. B **105**, 014417 (2023).

タイトル：パルス強磁場・高圧力下における三角格子反強磁性体 CsCuCl₃ の磁気相図

講演者：二本木克旭^A, 木田孝則^A, 山本大輔^B, 鳴海康雄^A, Julien Zaccaro^C, 高阪勇輔^D, 井上克也^E, 上床美也^F, 金道浩一^F, 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日本大学文理学部,
^C仏ネール研究所,^D大阪公立大学大学院工学研究科,
^E広島大学大学院先進理工系科学研究科,^F東京大学物性研究所

要旨：三角格子反強磁性体 CsCuCl₃ は、容易面異方性と量子揺らぎの効果に起因して、磁場中で量子相転移が観測された初めての系として知られている。c 軸(三角格子面に垂直)方向の強磁場磁化測定から、12.5 T で umbrella 相から 2-1 coplanar 相への量子相転移に対応する磁化の飛びを示し、31 T (=H_{sat})で飽和する [1]。近年、圧力下での磁化測定により、0.68 GPa 以上で umbrella 相と 2-1coplanar 相の間の磁場領域で up-up-down(uud)相に対応する飽和磁場の 1/3 磁化プラトーの発現が報告されている[2]。この系に対して行われた数値計算によると、さらなる高圧力下で uud 相の直前の磁場領域で Y 相の出現が示唆されている[3,4]。本研究では、我々が開発した LC 共振回路を用いたパルス強磁場・高圧力下磁化測定(LC 法)を行い、飽和に至るまでの磁場 - 圧力相図を作成することに成功した。LC 法では、磁場印加時に LC 共振回路内の検出コイルに内包した試料の磁化率の変化($\Delta M/\Delta H$)を LC 共振回路の周波数応答($-\Delta f$)として検出する[5,6]。

図 1(a)に LC 法による圧力下での周波数応答の磁場依存性を示す。0.7 GPa 以上の圧力下では、 $H_{c1} \leq H \leq H_{c2}$ で uud 相に対応する dip が観測された。この uud 相の磁場領域は、圧力増加に伴い高磁場側へ拡大していくことが分かった。また、H_{sat}で観測される shoulder は、圧力増加に伴い高磁場側に移動することが分かった。さらに図 1(b)の H_{c1} 付近の拡大図から、1.55 GPa で H_{c1} に cusp が、1.97 GPa で H_{c1} 直前の H_{c0} に shoulder が観測された(図 1(b))。1.97 GPa における $H_{c0} \leq H \leq H_{c1}$ の磁場領域は、数値計算で示唆されていた Y 相であり、H_{c1} で cusp が Y 相から uud 相への転移を示していると考えられる。講演では、本測定で得られた飽和磁場を含んだ磁場 - 圧力相図を示すとともに、各磁気相の発現機構についてスピン波理論を用いて計算した理論相図との比較について報告する。

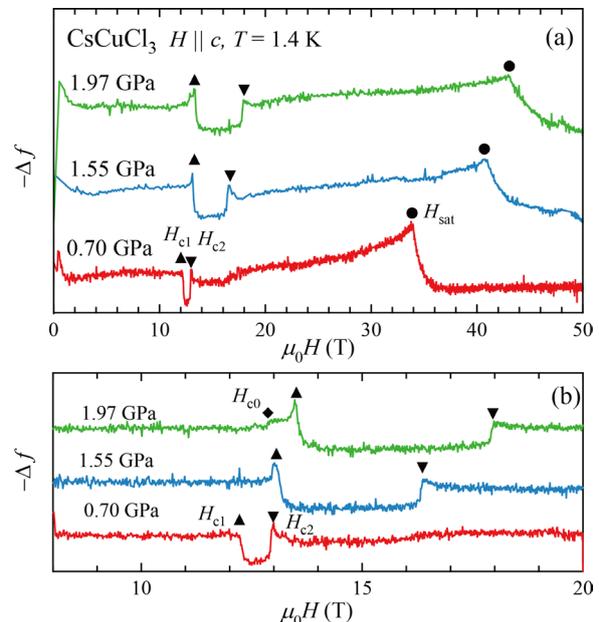


図 1(a) 様々な圧力下における周波数応答の磁場依存性。(b) H_{c1} 付近の拡大図。

- [1] H. Nojiri *et al.*, J. Phys. (Paris) **49**, Suppl. C8, 1459 (1988). [2] A. Sera *et al.*, PRB **96**, 014419 (2017). [3] M. Hosoi *et al.*, JPSJ **87**, 075001 (2018). [4] D. Yamamoto *et al.*, Nat. Commun. **12**, 4263 (2021). [5] M. M. Altarawneh *et al.*, RSI **80**, 066104 (2009). [6] S. Ghannadzadeh *et al.*, PRB **87**, 241102(R) (2013).

タイトル：一次元系反強磁性体 $\text{Ca}_2\text{Cu}(\text{OH})_4[\text{B}(\text{OH})_4]_2$ における

ESR 局在モードの観測

講演者：林哉汰, 倉知豊, 石川裕也, 古谷峻介^A, 浅野貴行^B, 光藤誠太郎^B, 菊池彦光,

山本孟^C, 高橋英幸^D, 大道英二^E, 大久保晋^{D,E}, 太田仁^{D,E}, 藤井裕

所属：福井大遠赤セ, 埼玉医大^A, 福井大工^B, 東北大多元研^C, 神戸大分子フォトセ^D,

神戸大院理^E

要旨： $\text{Ca}_2\text{Cu}(\text{OH})_4[\text{B}(\text{OH})_4]_2$ (Henmilite)は、 $S=1/2$ を持つ Cu^{2+} イオンが歪んだ二次元正方格子状に配列しており、水素結合を介した相互作用ネットワークにより形成された二本足梯子が横に結合した反強磁性量子スピンモデルと考えられている [1]。磁化率及び比熱測定から、磁場-温度の磁気相図にはドーム状の反強磁性秩序領域が存在し、強い量子ゆらぎの効果を示している[1]。この量子スピン系の磁性を微視的な観点から調べるため、我々はこれまでに、X-band (~10 GHz)の電子スピン共鳴(ESR)測定を行った。ESRスペクトルの線幅の結晶軸角度依存性から、Cuスピン間の相互作用が二次元的であると示唆された [2]。さらに、X-bandよりも高周波、高磁場での磁性の振る舞いを調べるため、W- (~94 GHz)、D- (~129 GHz)、J-band (~300 GHz)の周波数帯でESR測定を行ったところ、X-bandでの単一のスペクトルとは対照的に、相互作用(~3 K)よりもはるかに高い温度(数十 K)の常磁性領域から、ESRスペクトルが複数のピークへと分裂した。また、このピークの分裂幅は温度の低下とともに単調に増大し、過去のESRの研究報告に無い振る舞いを見せている。さらに、分裂した各々のピークの線幅も温度低下に伴い増大する。¹HのNMR測定からは、結晶学的に等価でない¹Hサイトの超微細相互作用により、ESRと同様に低温において複数のピークを持つ構造を観測した。しかし、ESRスペクトルのピークの分裂幅は数十mTと大きく、超微細相互作用では定量的に説明することができない。また、磁性面間にある¹¹BのNMRによる電場勾配の温度依存性や低温でのXRD測定では構造相転移は観測されなかった。

上述のような、ESRスペクトルの異常の起源として、Henmiliteの相互作用のパスである水素結合を形成する水素の位置のランダムネスの影響を考察した。HenmiliteはOH基の水素が反強誘電的に並んでいるが、水素原子位置の局所的な無秩序化によって、実効的にスピン間相互作用にランダムネスが生じる可能性がある。一方、二本足梯子系にランダムな交換相互作用が存在すると、局在状態が形成され、固有エネルギーがある波数 q に対してその周辺がほぼ一定となることが報告されている[3]。外部磁場を受けると局在状態の固有エネルギーがZeemanエネルギー分増減するため、局在状態が分裂し、低温でのESRスペクトルのピークの分裂を引き起こすと考えられる。以上から、水素の位置のランダムネスにより、上記のESR測定の結果を定性的に説明できる可能性がある。

[1] H. Yamamoto *et al.*, Phys. Rev. Materials **5**, 104405, (2021).

[2] K. Hayashi *et al.*, JPS Conf. Proc., **38**, 011144 (2023).

[3] M. Hörmann *et al.*, Phys. Rev. Letters **121**, 167201 (2018).

タイトル：CsFeCl₃の強磁場 ESR 測定Ⅱ

講演者：瀬川和磨^A、原茂生^B、櫻井敬博^B、大久保晋^{A,C}、太田仁^{A,C}、松本正茂^D、栗田伸之^E、
田中秀数^E

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静岡大理、^E東工大院理

要旨：CsFeCl₃はFe²⁺がc軸方向に強磁性一次元鎖（ $J=5.27$ K）、ab面内に弱い反強磁性三角格子（ $J'=0.28$ K）を形成するが、単イオン異方性による大きなD項（ $D=25.3$ K）があるため[1]、ゼロ磁場中では秩序化しない。しかし、c軸方向に磁場を印加すると $H_{c1}=7.5$ T、 $H_{c2}=34$ Tで磁気相転移が起きることが確認されている[2,3]。この転移磁場 H_{c2} は、 $S_z=-2$ の準位が磁場で降りてくる単純なモデルでは説明できない。この解釈のために、伊達らは $S_z=-2$ の準位が転移磁場近傍で急激に下がるモデルを提唱している[4]。

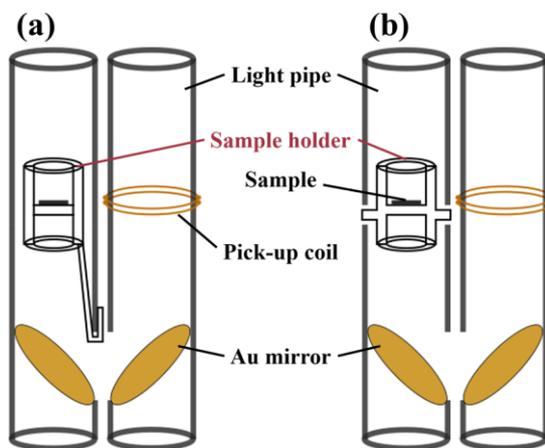


図1：実験装置の改良前(a)、改良後(b)。

そこで我々は、CsFeCl₃の4.2 K、 $H \parallel c$ における多周波数強磁場 ESR 測定を行い、その結果を報告している[5]。しかし、転移磁場 H_{c2} に対応する ESR モードの交差は35 Tで、千葉らの報告[2]から1 Tずれていた。その要因として、結晶のc軸の向きが印加磁場の向きから僅かにずれていた状態で測定している可能性がある。そこで今回、パルス強磁場 ESR 装置[6]の改良を行った(図1)。ライトパイプ内に設置されたサンプルホルダーは、従来は熱収縮チューブとPEシートで構成され、水平にするのが難しかった。角度ずれを防ぐため、新しい装置ではデルリンを一体加工したサンプルホルダーを分割したライトパイプで上下から挟むことで高精度に水平をだすことができるようになった。

装置の詳細や測定結果は当日報告する。

[1] H. Yoshizawa *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **49**, 144 (1980)

[2] M. Chiba *et al.*, Solid State Commun. **63**, 427 (1987)

[3] 二本木克旭 他, 日本物理学会講演概要集 第77巻 第1号 2022年年次大会, 17aT11-3

[4] 伊達宗行, 堀秀信, 固体物理 **23**, 698 (1988)

[5] 瀬川和磨 他, 日本物理学会講演概要集 第78巻 第1号 2023年春季大会, 25aC1-6

[6] 瀬川和磨 他, 日本物理学会講演概要集 第77巻 第2号 2022年秋季大会, 12aPSA-18

タイトル： $S=1/2$ 二本足スピンラダーCu(DEP)Cl₂の圧力下磁性

講演者：森本大幹^A，二本木克旭^A，木田孝則^A，鳴海康雄^A，本多善太郎^B，金道浩一^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埼玉大学大学院理工学研究科，^C東京大学物性研究所

要旨：Cu(DEP)X₂ (X = Br, Cl)は、磁性イオンCu²⁺が a 軸方向に沿った二本足の梯子鎖を形成する物質であり、横木の方向をXイオン、足の方向をDEP(2,3-ジエチルピラジン)が架橋する[1-3]。この物質は低温で非磁性基底状態と磁気的な第一励起状態の間にエネルギーギャップ(Δ_s)を持つスピンギャップ系物質だが、横木と足の交換相互作用 J_{rung} 、 J_{leg} と梯子間の交換相互作用 J_{int} の大きさを制御することができれば、例えばギャップを有した状態からギャップレス状態への変化のような磁性の大きな変化が期待される。これまでに行った常圧下の強磁場磁化測定の結果からエネルギーギャップ $\Delta_s=10.6$ Kと見積もっている[4]。また、常圧下の磁化率の温度変化測定から、10 K付近にブロードなピークを持ち、さらに低温で指数関数的に減少すること、そして圧力下(~0.7 GPa)においては、そのピーク位置の温度が高温側へシフトし、全体に磁化率の値は減少する傾向があることを報告してきた。今回の研究会では、これまで測定してきた圧力下での実験結果の再現性を確認し、さらに別の圧力下での磁化率測定を行ったのでその結果を報告する。

図1にCu(DEP)Cl₂の高圧力下磁化率測定の結果を示す。これまで行った圧力下磁化率測定結果[4]の再現性が確認できた。 $P \geq 0.34$ GPaでは磁化率のピークが0.16 GPa以下の圧力下での磁化率の値から急激に減少し、低温で磁化率が上昇する振る舞いが見られた。また、足方向は固いpyridineが架橋する事から J_{leg} が圧力で変化しないと仮定して J_{rung} を変化させた際の磁化率の温度変化を量子モンテカルロ法で計算したところ、交換相互作用の比 $J_{\text{rung}}/J_{\text{leg}}$ が圧力印加によって大きくなるとして計算した結果が実験結果をほぼ再現した。講演では、圧力下強磁場磁化測定の結果も示すことで、この物質の磁性の圧力依存性について Δ_s の変化も示しながら議論する予定である。

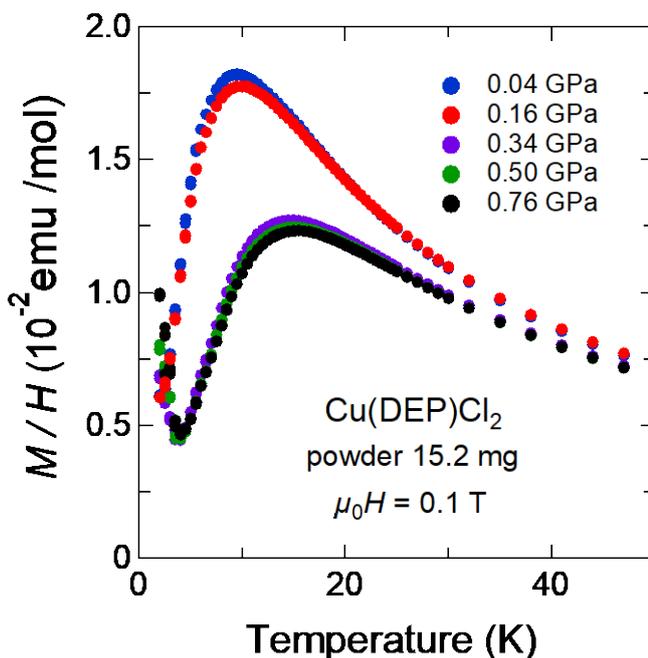


図1. Cu(DEP)Cl₂の様々な圧力下における磁化率の温度変化

- [1] S. Lindroos et al., Act. Cryst. C 46, 2039(1990).
 [2] Z. Honda et al., J. Phys. Soc. Jpn. 81, 113710 (2012).
 [3] T. Morimoto et al., JPS Conf. Proc. 38, 011146 (2023).
 [4] 森本大幹 他, 日本物理学会 2023 年春季大会, 25aC1-1

タイトル：反強磁性 J_1 - J_2 鎖 $\text{Cd}_2\text{Cu}_2(\text{PO}_4)_2\text{SO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ の核磁気緩和講演者：丸山薫, 伊藤颯人, 林哉汰, 藤原理賀^A, 石川裕也, 藤井裕所属：福井大遠赤セ, 原子力機構先端研^A

要旨：スピン鎖が最近接相互作用 J_1 と次近接相互作用 J_2 で形成される zigzag 鎖において、基底状態やギャップの有無は J_2/J_1 の比に依存する。 J_1 と J_2 が共に反強磁性的であるとき、Dimer 相や、Tomonaga-Luttinger liquid (TLL) 相など、ゼロ磁場および磁場中で様々な相の存在が示唆されている[1]。本研究対象化合物である $\text{Cd}_2\text{Cu}_2(\text{PO}_4)_2\text{SO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ はごく最近合成された zigzag 鎖反強磁性体のモデル物質である。平面四配位構造を持つ Cu^{2+} が四面体構造のリン酸イオンを介して zigzag 鎖を形成している。磁化率の温度依存性は一次元性を示すブロードな極大が 48 K 近傍に現れ、比熱測定から最低 0.4 K まで長距離秩序を持たないことが明らかにされているが[2]、 J_1 、 J_2 の大きさは定まっていない。候補は、 $J_2/J_1 = 0.22$ ($J_1/k_B = 90$ K) と $J_2/J_1 = 2.86$ ($J_1/k_B = 41$ K) である[2]。前者のパラメータは臨界値 $J_2/J_1 = 0.2411$ より小さく基底状態がギャップレス(TLL)であるのに対し、後者は Dimer 相でありギャップは 2 K 程度と考えられる。したがって、ギャップの有無を調べるのが基底状態や相互作用パラメータを調べるのに有効であり、本化合物は Cd や H_2O を含むため中性子非弾性散乱測定が困難であることを鑑みると、NMR はその有力な測定手段である。過去に、我々は 1 T 以下の磁場で粉末試料を用いて ^1H と ^{31}P の核磁気共鳴測定を行い、核磁気緩和率 $1/T_1$ はいずれも低温領域でおおよそ $1/T_1 \sim T^{-0.2}$ に従っており、磁場依存性は非常に小さいことを報告した[3]。今回、磁場依存性を調べることを目的として、より広い範囲 (0.14 ~ 5.45 T) で測定を行った (図 1)。その結果、 ^{31}P の $1/T_1$ の温度依存性が磁場依存すること、磁場依存は一次元系の特徴を示すことが分かった。さらに、ごく最近 1 K 以下でも測定を行ったのであわせて報告する予定である。

[1] T. Hikihara *et al.*, Phys. Rev. B **81** (2010) 224433.

[2] M. Fujihala *et al.*, Phys. Rev. Materials **6** (2022) 114408.

[3] 丸山ら、日本物理学会 2022 年秋季大会 12pPSB-28.

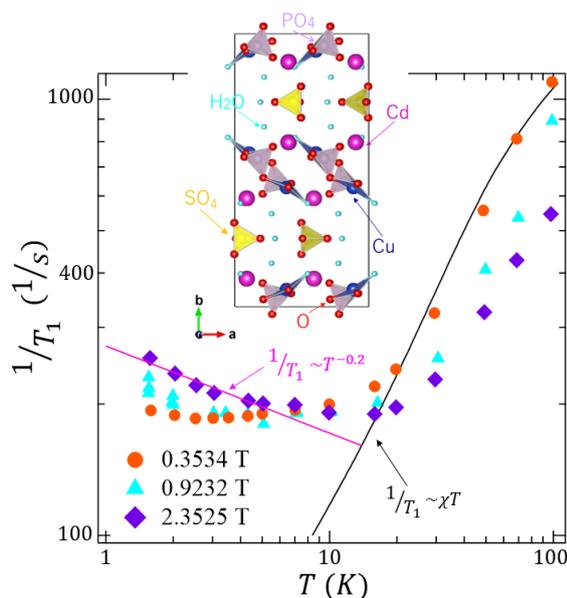


図 1 : ^{31}P の核磁気緩和率の温度依存性。挿図は c 軸から見た結晶構造。

タイトル：黒リンの圧力下サイクロトロン共鳴による研究

講演者：鍋田百花^A, 櫻井敬博^B, 松岡英一^A, 菅原仁^A, 大久保晋^C, 太田仁^C, 岡村英一^D所属：^A神戸大学大学院理学研究科物理学専攻,^B神戸大学研究基盤センター,^C神戸大学分子フォトセンター,^D徳島大学大学院創成科学研究科

要旨：黒リンは常圧、バルクの状態で約 0.3 eV のエネルギーギャップを持つ半導体で、圧力をかけていくと 1.5 GPa 程度で半導体半金属転移を起こす [1]。この転移に伴い、フェルミエネルギー近傍で線形の分散構造が生じると予想されている [2]。本研究では、周波数と共鳴磁場の関係を調べることで圧力下でのランダウ準位を直接的に観測できる圧力下サイクロトロン共鳴 (CR) を用い、系の圧力下での電子状態について調べた。

実験にはラサ工業 (株) から提供された単結晶試料を用いた。また磁場は試料の ac 面に垂直に印加した。CR 信号は低温、常圧下で観測できなかつたが、1.5 GPa の圧力下で観測することに成功した。1.5 GPa で温度変化させて測定を行うと、信号強度は 7 K で最大となった。このことから、系のギャップは消失していないと考えられ、半導体半金属転移も起こっていないと思われる。

また、温度 7 K、周波数 400-700 GHz 程度で共鳴磁場と周波数の関係を調べ図 1 の結果を得た。原点を通る直線でフィットした傾きより、有効質量は $m^* = 0.0825 m_0$ と求められた。ここで、図 1 には比較のため既報の常圧での有効質量 $m^* = 0.222 m_0$ [3] の場合の周波数依存性も示している。以上より、半金属転移後の CR 信号を観測するには至らなかつたが、1.5 GPa で CR 信号の観測に成功した。また、1.5 GPa の圧力下で有効質量は常圧の半分以下になり半導体半金属転移に向かい小さくなっていることを明らかにした。

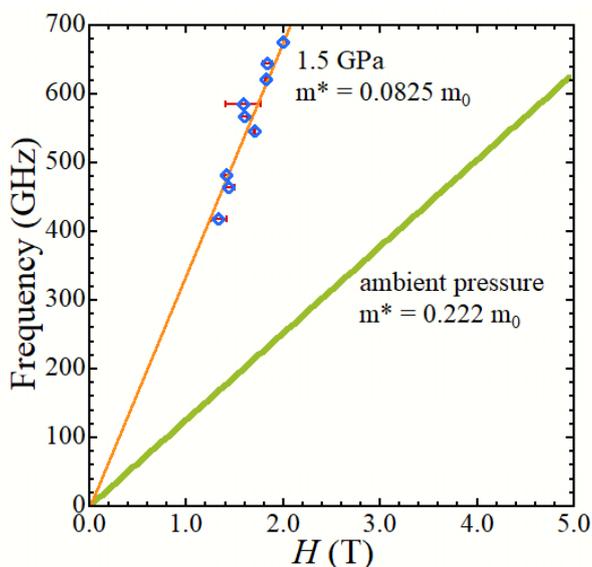


図 1 : 共鳴磁場の周波数依存性

[1] K. Akiba et al., J. Phys. Soc. Jpn., 84, 073708 (2015).

[2] Fei et al., Phys. Rev. B 91, 195319 (2015).

[3] S. Narita et al., J. Phys. Soc. Jpn., 52, 3544 (1983).

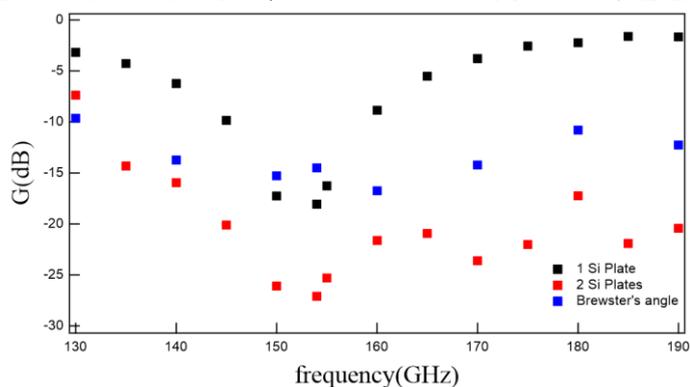
タイトル：ジャイロトロンを用いた Pulsed-ESR 装置のための新しい光駆動半導体スイッチの特性評価

講演者：高橋雅人^A、片山大和^A、西尾英通^A、石川裕也^A、藤井裕^A、菊池彦光^A、浅野貴行^{A,B}、
光藤誠太郎^{A,B}

所属：^A福井大学遠赤外領域開発研究センター、^B福井大学工学部

要旨：パルス電子スピン共鳴(Pulsed Electron Spin Resonance : Pulsed-ESR)は数十 ns 程度の強力な電磁波をパルスの試料に照射し、電子スピンの動的過程を観測する測定手法である。我々は高周波(154 GHz)、高出力(150 W)の発振が可能な Gyrotron FU CW VIIB を光源に用いて Pulsed-ESR 装置の開発を行っている。Gyrotron FU CW VIIB は 20 ms のコヒーレントなパルス発振を行っており、Pulsed-ESR を行うには Si 板と Nd:YAG レーザーを用いた光駆動半導体スイッチ(以下、光スイッチという)を用いてそこから数 ns のパルスをいくつか切り出し、形成して Pulsed-ESR を行っている。

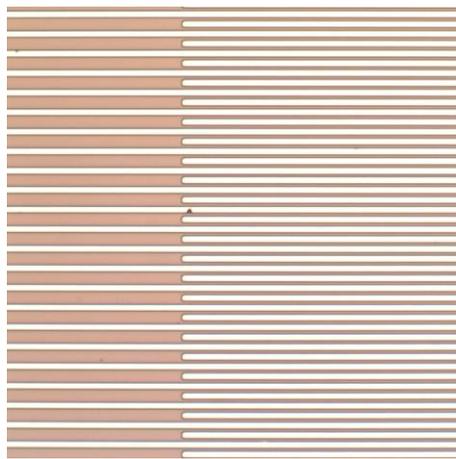
光スイッチは Si 板にレーザーを当てることによって Si 板表面を絶縁体から金属に切り替えてミリ波の透過と反射を制御することでミリ波のシャッターの役割をもたせ、数 ns のミリ波のパルスを生成することができる。現在、1 枚の Si 板を用いて Brewster 角でミリ波のビームを入射することでミリ波の Si 板透過時の反射をおさえている。しかし、Si の Brewster 角は約 70°と大きく、ミリ波の断面は楕円形上に広がり小さなスポットでなければ Si 板からはみ出してしまうという問題点がある。そこで、45°でミリ波が入射できるようにするため、2 枚の Si 板を用いた干渉効果により反射成分を打ち消すことができる光スイッチの開発を行った。Si 板 2 枚による干渉効果を確認するために、ミリ波の周波数を変えてパルスのバックグラウンドがどの程度抑えられるかを調べた。図 1 は Si 板が 1 枚・2 枚・ブリュースター角入射における励起パルスに対するバックグラウンドの強度比である。1 枚の場合 150 GHz のかなり狭い範囲でしか反射を抑えられていないが、2 枚の Si 板の距離を周波数に合わせて最適化することにより、バックグラウンドを 30 GHz の範囲にわたって抑えることが可能である。また、ブリュースター角入射の場合と比較しても 2 枚の Si 板を使用した場合のほうがより多くのバックグラウンドを抑えることが可能である。本研究ではさらにミリ波の入射角特性等々を評価し、2 枚の Si 板を用いた光スイッチが広範囲で有効に機能するかを示す。



タイトル：Si:P 試料の抵抗検出型 ESR および従来型 ESR の同時測定を試み

講演者：大橋 央宜, 倉知 豊, 林 哉汰, 石川 裕也, 藤井 裕, 福田 昭^A, 大岩 顕^B,Xiao-Fei Liu^B, Gulak Maia Gabriel^B所属：福井大学遠赤センター, 兵庫医大医物理^A, 阪大産研^B

要旨：近年、³¹Pが希薄にドーピングされたシリコン結晶(Si:P)を用いた量子コンピュータモデルが提唱され、コヒーレンス時間の優位性等により注目されていた[1]。その実現には、0.3 K 以下の超低温かつ 3 T 以上の強磁場におけるドナー電子スピンと核スピンの観測と制御が必要であるが、少数スピンになるほど観測は困難である。我々は高感度の電子スピン共鳴(ESR)測定手段である電気的検出磁気共鳴(EDMR)[2]に着目し、Si:P の EDMR 信号の測定を目標としてきた。EDMR は ESR 時に起こる試料の電気抵抗の変化を観測する手法であり、キャリアの光励起と試料の抵抗値が測定可能な範囲にあることが重要となる。過去に我々が行った研究では、12 mm 角の正方形試料の四隅に電極を付けた Van der Pauw 法により抵抗測定を試みたが、低温で抵抗値が大きくなり 20 K 以下の抵抗値を測定することができなかった[3]。本研究ではこの課題を解決するため、試料の抵抗値を小さくするために対向するくし形の電極を用い、さらに光が強く照射されるようにファイバーの配置を変更した。各電極は線幅 10 μ m、間隔 10 μ m で長さを 5mm 確保した(図)。この電極の向きと照射されるミリ波の偏光を合わせることで試料内にミリ波が透過するようにした。まず、Si:P に白色光を照射したとき試料抵抗が発散せずに 4 K 程度の極低温までの抵抗測定ができることがわかった。また EDMR を行う前のステップとして、通常の cw-ESR 測定を行った。光照射を行った状態で 4.3K において ESR 信号を検出した。本講演では、EDMR 実験の試みについても報告する。



図：Al くし形電極付き Si:P 試料の顕微鏡写真

[1] B. E. Kane, Nature **393**, 133 (1998).[2] D. R. McCamey, Appl. Phys. Lett. **89**, 182115 (2006).

[3] 大見謝ら, 日本物理学会秋季大会 10aPS-70 (2019).

タイトル：極低温・高磁場下における二重磁気共鳴用円筒型共振器を用いた

ENDOR 測定を試み

講演者：廣澤康平^A, 石川裕也^A, 林哉汰^A, 倉知豊^A, 菊池彦光^A, 光藤誠太郎^B, 藤井裕^A所属：^A福井大遠赤セ,^B福井大工

要旨：我々は電子スピン共鳴(ESR)と核磁気共鳴(NMR)の技術を組み合わせた、動的核偏極(DNP)を用いた希薄スピン系の NMR(DNP-NMR)や電子-核二重共鳴(ENDOR)を目指してミリ波帯における二重磁気共鳴用の共振器開発を行っている。これまでに我々は、ESR/NMR 共用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 型共振器を用いて研究を進めてきた[1]。しかし、試料量が限られるために NMR の高感度化は困難であった。そこで、NMR 感度を向上させるために Fabry-Pérot 型共振器に比べ共振器内に試料を多く挿入することが可能な円筒型共振器に着目し、ミリ波帯における ESR/NMR 二重磁気共鳴用円筒型共振器の開発を進めてきた[2]。

今回、二重磁気共鳴用円筒型共振器を用いて coal の ESR、NMR 測定を行い、ENDOR 測定を行った。coal は X-band 等低周波領域における ENDOR 用標準試料として知られているが、その基礎物性は産地によって異なる。そこで、ENDOR 実験に向けて評価用試料として用いる coal の ESR 遷移の飽和過程を調べた。107 GHz 及び 10 K において出力電力が 53 mW にて飽和することが分かった。また、ESR と同じ印加磁場下で 163.2 MHz において ¹H-NMR 信号を検出した。これらの結果を基に、3.83 T, 10 K 及び 160 MHz 近傍において ENDOR 測定を実施した。本講演では二重磁気共鳴用円筒型共振器を用いた ENDOR 測定の見通しについて報告する。

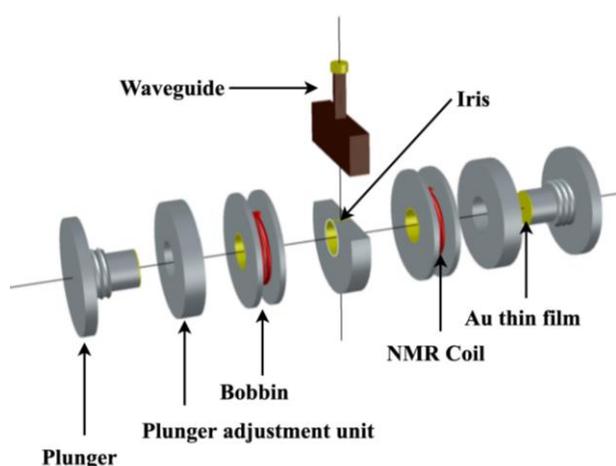


図 1：金薄膜を施した円筒型共振器の概要図。

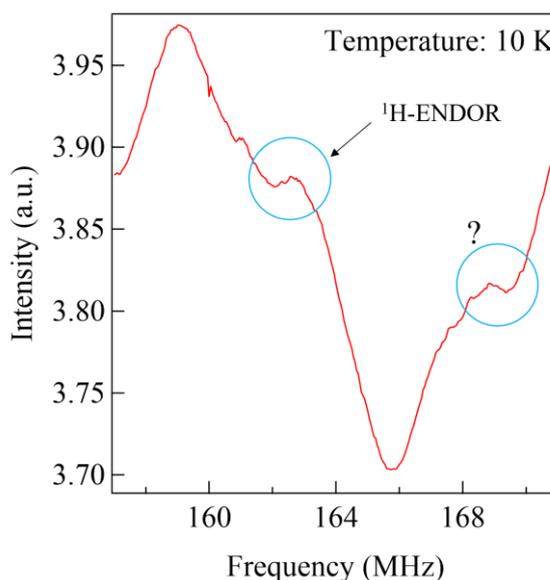


図 2：160 MHz 付近における共鳴磁場と非共鳴磁場での ¹H-ENDOR 測定結果の差分スペクトル。

[1] Y. Fujii *et al.* : Appl. Magn. Reson. **49**, 783 (2018).

[2] 廣澤ら, 日本物理学会 2022 年第 77 回年次大会, 17pPSC-62 (2022).

タイトル：2組の同軸型ピックアップコイルを用いたパルス強磁場磁化測定装置の開発

講演者：辻林実莉^A、野口悟^{AB}、新井野修二郎^A、細越裕子^{AB}

所属：^A大阪公立大学大学院理学研究科、^B大阪公立大学強磁場環境利用研究センター

要旨：強磁場下での物性測定には、ピックアップコイルを用いた電磁誘導法が一般的に用いられている。電磁誘導法による磁化測定では、試料をピックアップコイル内に入れてあるときのデータ(サンプルシグナル)からピックアップコイル内に試料がないときのデータ(ブランクシグナル)を差し引くことで外部磁場によるノイズを排除し、より精度の高い試料の磁化曲線を得る。しかし1 K以下の磁化測定では測定条件の変化が生じるため試料を動かすことが出来ないことが予想される。本研究では、検出コイルの外側にキャンセルコイルを被せる同軸型ピックアップコイルを2組作製することでサンプルシグナルとブランクシグナルを一度の放電で両方同時に測定することを試みた。

室温でブランクシグナルを測定し検出コイル、キャンセルコイルの調整を試みたが、結果としてはバランスを完全にそろえることができなかった。しかし今回作製したシステムは補償コイルとのブリッジバランスを用いず、磁化の信号線が分岐することなく測定できるようにした。その一例として有機磁性体 4-Cl-2-NN-BIP の 1.2 K、40 T での磁化測定の結果を示す。上の同軸ピックアップコイルを用いて、試料ありとなしの2回測定したときのデータである。このときの下の同軸コイルの波形は上の同軸コイルのブランクシグナルの波形と全く異なるので、今回は使用していない。サンプルシグナルとブランクシグナルの差をとり、積分することで磁化曲線が得られる。発表では磁化測定の詳細と有機磁性体 4-Cl-2-NN-BIP の結果について報告する。

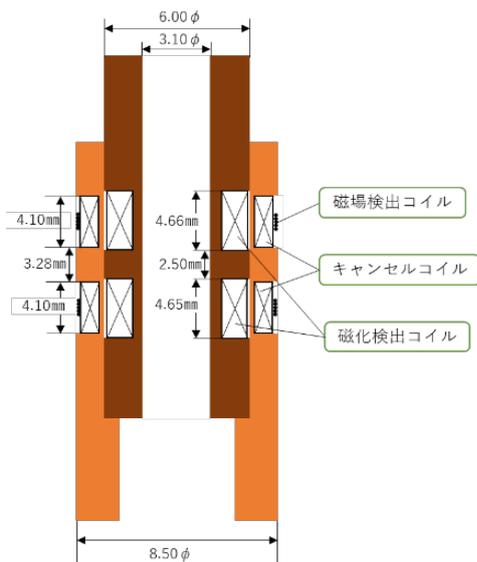


図1. 作製したピックアップコイルの断面図

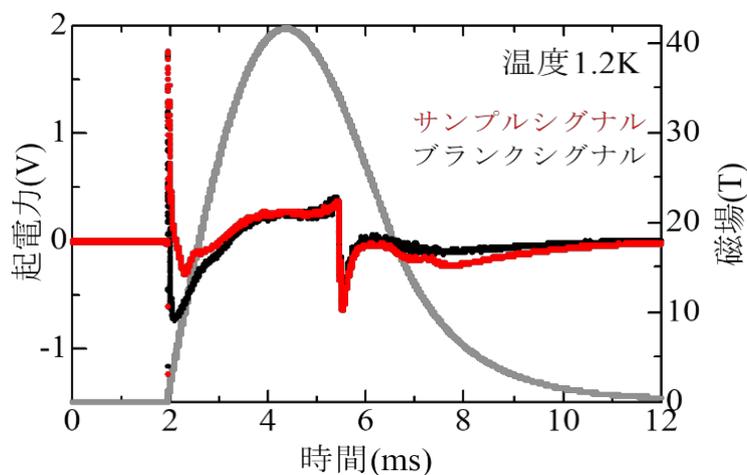


図2. ピックアップコイルから検出された磁化起電力
灰色の線は磁場波形

タイトル：超伝導マグネットシステムを転用したパルス強磁場断熱消磁クライオスタットの開発Ⅱ

講演者：前川翔^A、野口悟^{A,B}

所属：^A大阪公立大学大学院理学研究科物理学専攻、

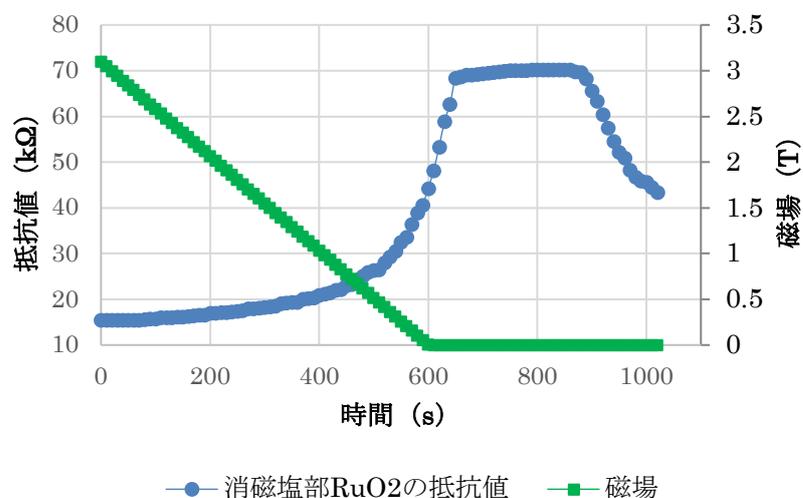
^B大阪公立大学強磁場環境利用研究センター

要旨：

量子スピン系では、プラトー、ジャンプなどのユニークな磁化曲線が強磁場域でしばしば観測される。これらの磁化は、熱揺らぎの影響を受けやすいため、1 K 以下の極低温強磁場環境の開発が必要である。1 K 以下の極低温は、³He を使わず実現するためには断熱消磁法を用いることになる。我々は、今までに上部で断熱消磁を行い、下部のパルスマグネットにより磁化測定するクライオスタットを作製してきた [1]。そのクライオスタットでは、現時点で 0.5 K まで下げられることが確認されているが、断熱消磁空間が比較的小さいため、冷却能力が弱い。そこで、0.1 K・20 T 以上の複合極限環境を創成する、より冷却能力を重視したクライオスタットを作製した。

新たなクライオスタットでは、既製の超伝導マグネットシステムを断熱消磁用に転用し、下部で断熱消磁を行い、上部のパルスマグネットにより磁化測定を行うことを目指している。消磁塩の体積は 123 cm³ で以前のものより 5 倍大きく、超伝導マグネットは最高 8 - 10 T 出せるので、冷却能力は 10 倍以上上昇している。

断熱消磁冷却実験の結果を下図に示す。初期温度 2.6 K、初期磁場 3.1 T から 10 分で消磁した。消磁終了後まもなく、消磁塩部 RuO₂ 温度計で 70 kΩ (継続時間 200 秒) を観測した。30 kΩ で 0.5 K であるが、それ以下の温度校正ができていない状況である。正確な温度はわからないが、0.1 K 付近まで下げられたと推測している。



[1] S. Yoshida *et al.*, to be published in JPS Conf. Proc. **38**, 011193 (2023).

タイトル：GGG 基板の磁気熱量効果を用いた SQUID 磁束計用冷凍機の開発

講演者：三川基^A，鳴海康雄^A，高阪勇輔^B，浅野貴行^C，仲川晃平^D，光藤誠太郎^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大阪公立大学大学院工学研究科，^C福井大学学術研究院工学系部門，^D福井大学遠赤外領域開発研究センター

要旨：極低温での磁化測定は、強相関電子系物質の超伝導やフラストレート系物質の量子スピン液体といった量子物性現象を研究する上で有効な実験手法である。我々の研究室は、カンタム・デザイン社製 SQUID 磁束計(MPMS-XL7)を所有しており、室温から 1.8 K までの温度領域で精度の高い磁化測定を行うことができる。我々はその MPMS-XL7 に断熱消磁冷凍機を組み込むことで、1.8 K 以下の磁化測定を行うことができる装置の開発を行っている[1]。磁気冷却材料である GGG($\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$)の単結晶基板(サイズ $10 \times 5 \times 0.5 \text{ mm}^3$)を 100 mm にわたって一様に並べ、その中心部に測定試料を配置して磁化測定を行う。磁性体である GGG 基板の全長(100 mm)を SQUID 磁束計のピックアップコイルの長さ(30 mm)より十分長くすることで、GGG 基板由来の信号を抑制することができる。その結果、図 1 に示すように最低到達温度 0.18 K を確認し、亜鉛($T_c = 0.85 \text{ K}$ の超伝導体)の超伝導転移に伴う完全反磁性の測定に成功した(図 2) [2]。この温度は SQUID 磁束計で実現された温度の中で最も低い記録となっている。だが、測定時のバックグラウンドの値が大きく(0.5 K で $3 \times 10^{-5} \text{ emu/Oe}$)、測定可能な物質が限られるという課題があった。

本研究では、バックグラウンドの参照磁性体として Ni 線(直径 0.5 mm)を用い、その Ni 線の長さを変えながらピックアップコイルの出力分布の変化を測定することで、従来よりもバックグラウンドが抑制された GGG 基板の最適な配置を求めた。本講演では、SQUID 磁束計用断熱消磁冷凍機開発の現状について報告するとともに、マイクロ波加熱法による GGG 合成の取り組みについても紹介する。

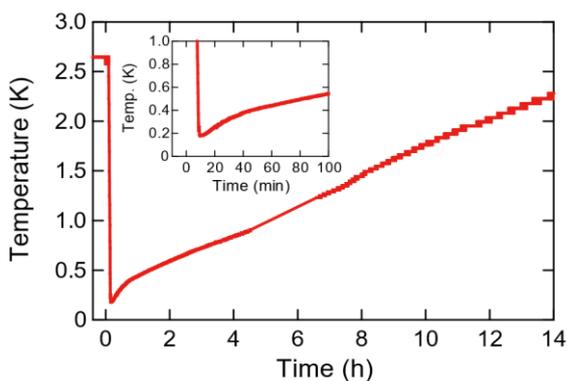


図 1：断熱消磁冷凍機を用いた冷却・昇温過程

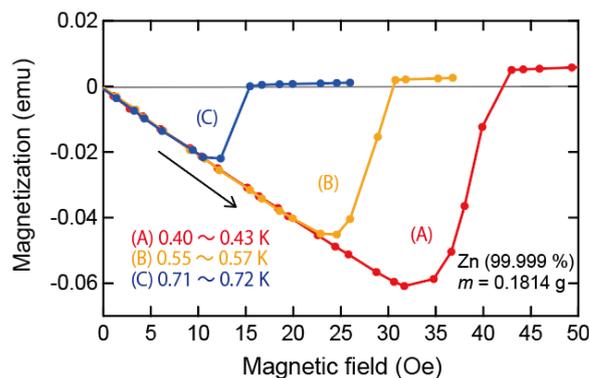


図 2：亜鉛の磁化過程の温度依存性

[1] M. Mikawa *et al.*, JPS Conf. Proc. **38** 011196 (2023).

[2] 三川基 他, 日本物理学会 2023 年春季大会, 25pC1-1.