

東京大学 大学院新領域創成科学研究科

基盤科学研究系物質系専攻

平成 30 年度

修士論文

超強磁場における近藤絶縁体 YbB_{12} の相転移現象

2019 年 1 月 22 日提出

指導教員 松田 康弘 准教授 印

柿田 頼輝

目次

第 1 章 序論.....	3
1-1 はじめに.....	3
1-2 近藤効果.....	4
1-3 RKKY 相互作用	5
1-4 近藤絶縁体	5
第 2 章 YbB ₁₂ の基本的物性	6
2-1 結晶構造と価数.....	6
2-2 ギャップの発達.....	8
2-3 磁場印加による絶縁体金属転移	12
第 3 章 研究目的	16
第 4 章 実験.....	17
4-1 強磁場の発生	17
4-2 低温環境.....	21
4-3 磁化測定.....	25
4-4 実験試料.....	26
第 5 章 実験結果と考察	27
5-1 YbB ₁₂ の磁化過程の温度依存性	27
5-1-1 4.2 K から 30 K における測定結果	27
5-1-2 磁化過程の温度依存性の結果	54
5-1-3 転移磁場の温度依存性についての考察	57
5-2 Yb _{0.95} Y _{0.05} B ₁₂ 、Yb _{0.95} Sr _{0.05} B ₁₂ の磁化過程	60
5-2-1 Yb _{0.95} Y _{0.05} B ₁₂ の測定結果	60
5-2-2 Yb _{0.95} Sr _{0.05} B ₁₂ の測定結果	63
5-2-3 考察.....	69
第 6 章 結論.....	71
参考文献	72
謝辞.....	74

第1章 序論

1-1 はじめに

元素はそれぞれが異なる電子構造を持っている。元素の中で原子番号が 57 の La から 71 の Lu までの 15 種類の元素はランタノイドと呼ばれ、Ce 以降の元素は内殻の $4f$ 電子を持つ。これらの元素に電子構造が類似している原子番号 21 の Sc と 39 の Y を加えた 17 種類の元素を希土類元素と呼ぶ。これらの局在した f 電子を持つ希土類元素を含んだ金属化合物においては、遍歴電子と局在電子の混成のような多体効果を根源とする様々な効果によって、超電導、非フェルミ液体などの興味深い現象が発現することが知られている。それらの重要な効果の一つとして近藤効果が上げられる。近藤淳博士によって希薄磁性合金の電気抵抗極小が理論的に解明されたため、近藤効果と呼ばれている。その後、近藤効果は、抵抗極小現象だけでなく、様々な化合物において多様な現象の起源であることが明らかにされていった。図 1-1 に示したように局在した軌道である $4f$ 軌道に電子を一つ持つため、Ce 系の化合物が主に研究対象とされてきたが、Yb 系の化合物も $4f$ 軌道に正孔を一つ持つため、同様な関心を持たれ、ここ 20 年の間に Yb 系の重い電子系化合物が多く研究者の手によって精力的に研究が行われてきた。これらの物質の中には降温と共に近藤効果が顕著になるにつれてフェルミエネルギー上にエネルギーギャップの形成が確認できる化合物が発見された。この物質群は近藤絶縁体と呼ばれている。本研究の対象である YbB_{12} は典型的な近藤絶縁体の 1 つとして知られており、1983 年に初めて合成された物質である [1]。 YbB_{12} は良い対称性の結晶構造を持ち、Yb イオンが $4f$ 軌道に 1 個だけホールを持つことから理論からのアプローチもしやすいため、 YbB_{12} に関する研究は理論、実験ともに盛んに行われてきた。しかし、 YbB_{12} のエネルギーギャップの形成機構は長年、議論の対象となっていて、現在でも多くの研究者がギャップの議論を行っている。

この論文では、この 1 章の後に近藤効果、近藤絶縁体などについて簡単な説明を示す。次に 2 章において本研究対象である YbB_{12} の先行研究について紹介する。3 章で本研究の目的を示した後に、4~5 章において実験の結果・考察を示す。そして 6 章において本研究の結論を示す。

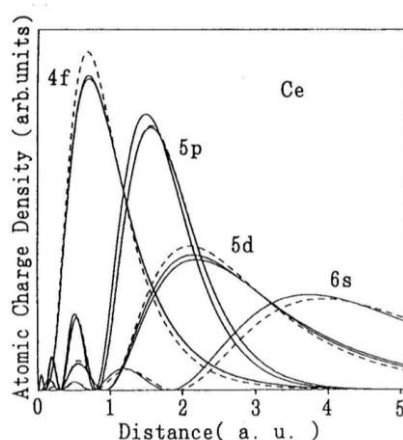


図 1-1 Ce の動径方向の波動関数の分布確立 [2]

1-2 近藤効果

通常の金属では、降温につれて熱による格子振動が小さくなり、抵抗が減少する。さらに降温で残留抵抗値と呼ばれる一定の大きさに近づく。しかし、1930 年代に磁性不純物を含む金属では降温過程においてある温度で抵抗が $-\ln T$ に比例して大きくなるという現象が発見された [3]。この現象は抵抗極小現象と呼ばれており、超電導と並ぶ固体物理学における謎として長い間研究が行われていた。そして、1964 年に近藤淳博士によって磁性不純物によって伝導電子が散乱されるというモデルにおいて高次の散乱過程まで考慮することによって理論的な解釈がされた [4]。その結果、多体散乱過程において伝導電子のスピンと局在電子のスピンが 1 重項を形成して局在磁気モーメントが消失する過程が近藤効果の本質であること [5]が分かり、抵抗極小現象に限らず、磁性体の比熱、帯磁率などいろいろな物理量に現れる特異な現象において近藤効果が重要であることが理解されるようになった。

典型的な近藤効果における磁気モーメントと電気抵抗の温度依存性を図 1-2 に示す [2]。磁気モーメントは高温では磁性不純物の磁気モーメントはキュリー-ワイス則に従うが、近藤温度では伝導電子のスピンにより局所的に遮蔽されて見かけ上消失する。このとき、不純物スピンと伝導電子の 1 重項基底状態が形成される。電気抵抗は先ほどあげた抵抗極小現象が見られ、 $-\ln T$ に比例して大きくなり、 T_K 以下では残留抵抗値に落ち着く。

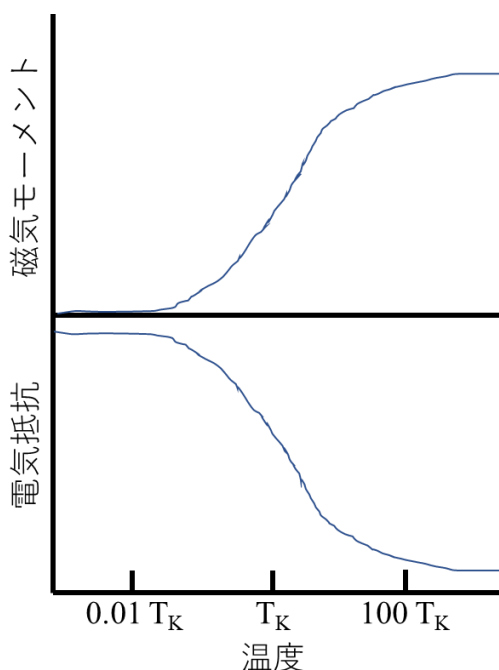


図 1-2 近藤効果における磁気モーメント、電気抵抗の温度依存性 [2]

1-3 RKKY 相互作用

伝導電子を媒介とする局在スピンの相互作用の効果として RKKY 相互作用というものがある。近藤効果とは逆に、局在した磁気モーメントを安定化させる働きをする効果である。局在スピンの周りにある伝導電子のスピンの分極が媒介し、離れた局在スピン同士に間接的に相互作用が働く。その結果、結晶中において強磁性や反強磁性相互作用が起こることが知られている。

1-4 近藤絶縁体

近藤効果を示す様々な物質の輸送現象は、温度を下げていっても多くの物質は金属的である。しかし、1968 年に低温でエネルギーギャップが発達し金属から絶縁体へと転移する SmB_6 が発見された [6]。図 1-3 に SmB_6 の電気抵抗の温度依存性を示す。室温から冷却していくと 50 K 程度までは金属的な振る舞いを示すが、50 K 以下では電気抵抗が半導体的に急激に増加する。当時は、 SmB_6 しかこのような振る舞いを示さなかったため、エネルギーギャップの形成機構に関する議論が進展しなかった。そのため、近藤効果が強くなる系において、新たな近藤絶縁体の合成に向けた研究が多くなされた。まず、局在した軌道である 4f 軌道に電子を一つ持つため、Ce 系の化合物が主に研究対象とされ、 CeNiSn [7]、 CeRhSb [8]、 $\text{Ce}_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$ [9] などが近藤絶縁体であると報告された。その後、Yb 系の化合物も 4f 軌道に正孔を一つ持つため、同様な関心を持たれ、本研究で用いた YbB_{12} も発見された [1]。

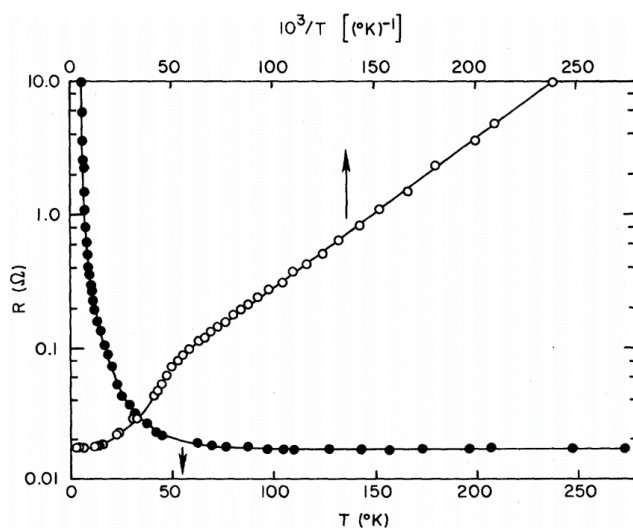


図 1-3 SmB_6 の電気抵抗の温度依存性 [6]

第2章 YbB₁₂ の基本的物性

2-1 結晶構造と価数

YbB₁₂は1983年にKasaya、Igaらによってはじめて合成された [1]。正八面体を作るホウ素 B₁₂とイッテルビウム Yb が図 2-1 のように NaCl 型の面心立方格子の結晶構造を取る [10]。格子定数は 7.469 Å である。

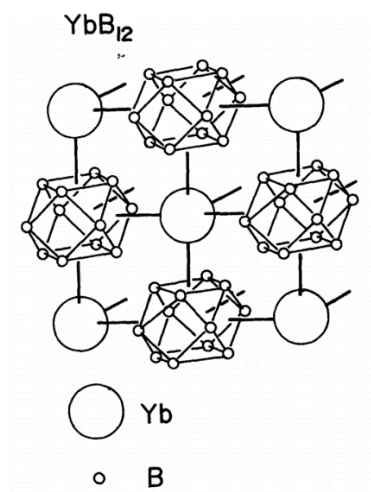


図 2-1 YbB₁₂ の結晶構造 [10]

希土類元素である Yb は基本的には 3 価の状態を取り、 $5d^16s^2$ が価電子となり、電子配置は $4f^{13}5s^25p^6$ で $J = 7/2$ ($S = 1/2$, $L = 3$) である。しかし、Yb は 2 価にもなる可能性があり、電子配置は $4f^{14}5s^25p^6$ で $J = 0$ ($S = L = 0$) の非磁性になる。YbB₁₂ では近藤効果が強い系の特徴である価数揺動が生じていることが知られている。

図 2-2 に TmB₁₂、YbB₁₂、LuB₁₂ の X 線光電分光法(XPS)の測定結果を示す [11]。(a)の TmB₁₂、(c)の LuB₁₂ では、フェルミエネルギー近傍に 2 価に当たる構造がなく、3 価のピークのみ確認できる。しかし、(b) YbB₁₂ では、3 価だけでなく 2 価のピークも確認できる。Yb²⁺と Yb³⁺のスペクトル強度の比が 1 : 9 であることから YbB₁₂ の価数は 2.9 と見積もられている。

また、図 2-3 に Yb_{1-x}Lu_xB₁₂($x=0, 0.125$)の価数の温度依存性を示す [12]。測定法により値に 0.05 程度の差はあるが、20 K から 200 K において YbB₁₂ の価数は低温になるにつれて 2 価側に僅かに変化することがわかる。しかし温度による変化量も 0.05 程度であり小さく、価数は約 2.9 であるといえる。

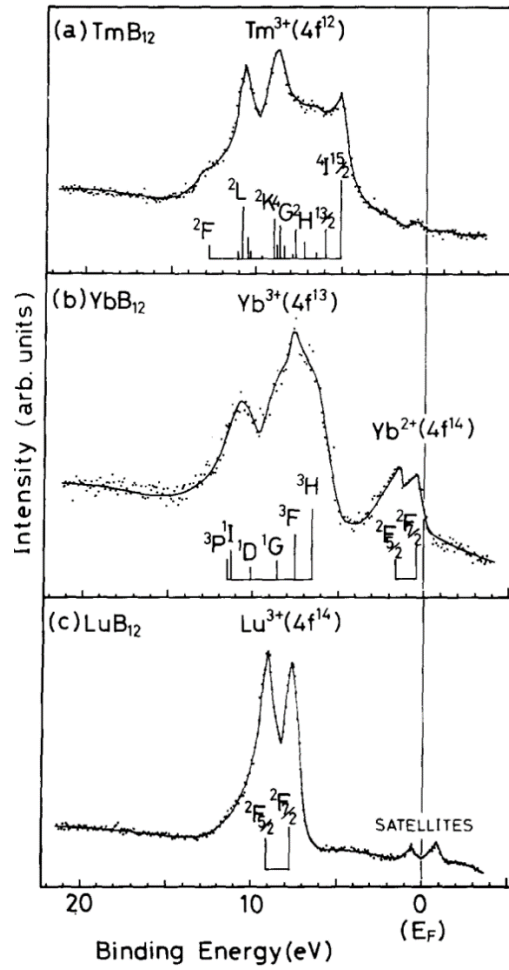


図 2-2 X 線光電分光法(XPS)のピーク強度 {(a): TmB_{12} 、(b): YbB_{12} 、(c): LuB_{12} } [11]

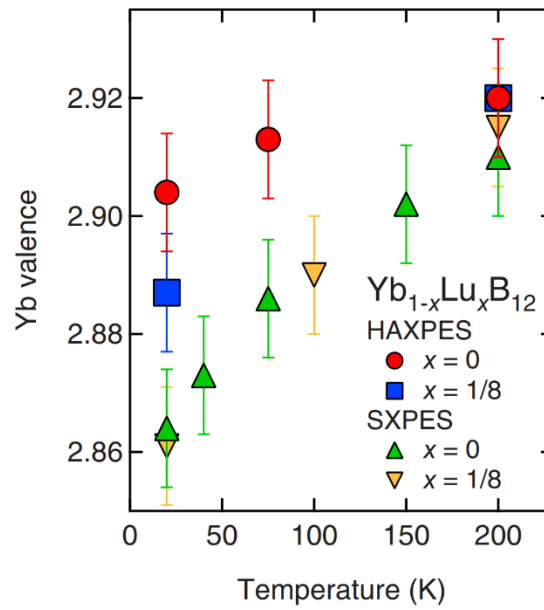


図 2-3 硬 x 線光電子分光(HAXPES)、軟 x 線光電子分光(SXPES)より求められた $\text{Yb}_{1-x}\text{Lu}_x\text{B}_{12}$ ($x=0, 0.125$) の価数の温度依存性 [12]

2-2 ギャップの発達

YbB_{12} は低温において電気抵抗が急激に上昇し、金属から絶縁体へと転移することが知られている。図 2-4 に電気抵抗の温度依存性 [1]を示す。高温では、金属的な振る舞いを見せるが、60 K あたりから抵抗率の急激な上昇がみられる。

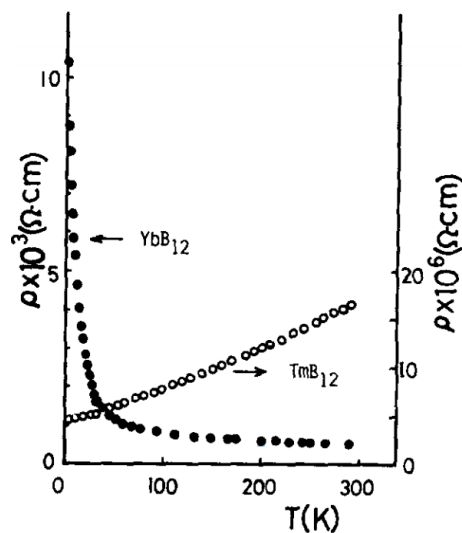


図 2-4 YbB_{12} 、 TmB_{12} の電気抵抗の温度依存性 [1]

図 2-5 に磁化率の温度依存性 [13]を示す。温度を下げていくと、徐々に磁化率は大きくなり、抵抗値が急激に上昇した温度域においてピークを持つことがわかる。この 80 K あたりに現れるピークの振る舞いは、この温度域において近藤効果が顕著になり、近藤一重項が形成され始めることで磁気モーメントが抑制されていることを示している。磁化率のピークが 80 K 程度にあることが確認できる。おおよそ磁化率のピークの 3 倍程度が近藤温度に相当することから、 YbB_{12} の近藤温度 T_K は 240 K 程度であるとされている。以上の電気抵抗、磁化率の温度依存性の振る舞いから YbB_{12} は 80 K あたりで近藤効果が強まり、磁化率が抑制され、絶縁体へと転移する近藤絶縁体として知られている。

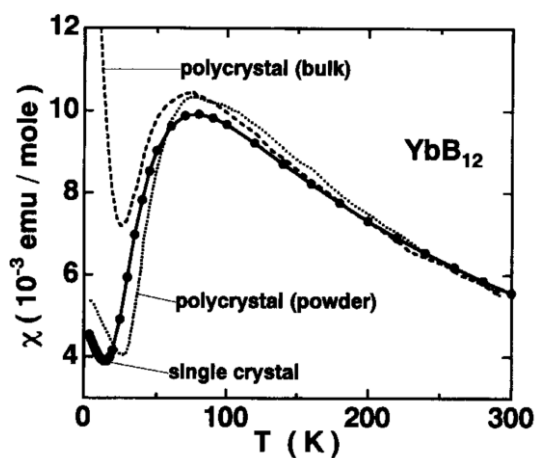


図 2-5 YbB_{12} の磁化率の温度依存性 [13]

次に YbB_{12} のギャップの大きさについて示す。 YbB_{12} は極低温において 15 meV の電荷ギャップが発達することが様々な測定手法によって確認されている。図 2-6 に光学電導度測定の温度依存性 [14] を示す。図 2-6(d) を見てみると 20 K 以下において 15 meV まで光学電導度スペクトルがほぼ 0 でそれ以上から大きくなることから、ギャップの大きさは 15 meV であることが確認されている。このギャップはインダイレクトギャップであると考えられている。また、80 K 以下からは矢印で示された 40 meV 付近に $\sigma(\omega)$ の落ち込みが見られる。これはダイレクトギャップの発達を示している。

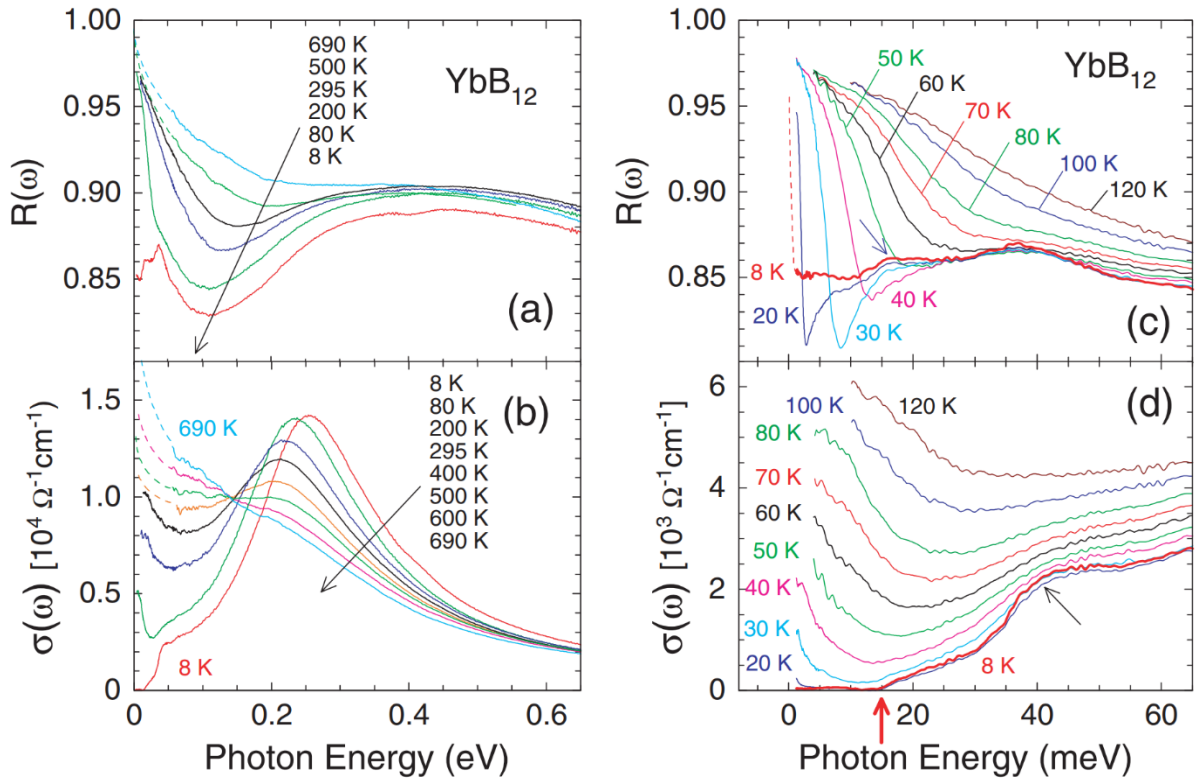


図 2-6 YbB_{12} の光学電導度測定の温度依存性 [14]

同様に光電子分光測定によっても 15 meV のエネルギーギャップが観測されている [15]。図 2-7(b)で示されている電子状態密度の測定結果を見てみると、15 meV にピーク構造を持ち、フェルミエネルギーに向かって、値が急激に減少している。図 2-7(c)、(d)のグラフにおいて、15 meV におけるピーク強度は温度を下げていくと、110 K 以下では大きくなっていることが確認できる。このことからエネルギーギャップは 110 K 程度から発達するのではないかと議論されている。また、30 meV、40 meV においてもピーク構造が観測されていて、これらのピーク構造は Yb の 4f 軌道の結晶場分裂に関連したピークだと考えられている。図 2-7(c)の A における 25 meV のピーク構造を見てみると、200 K 以下から発達していることが確認できる。この温度が近藤温度である 240 K に近いことから 25 meV のギャップ構造は近藤効果に起因する疑ギャップではないかと予想されている。

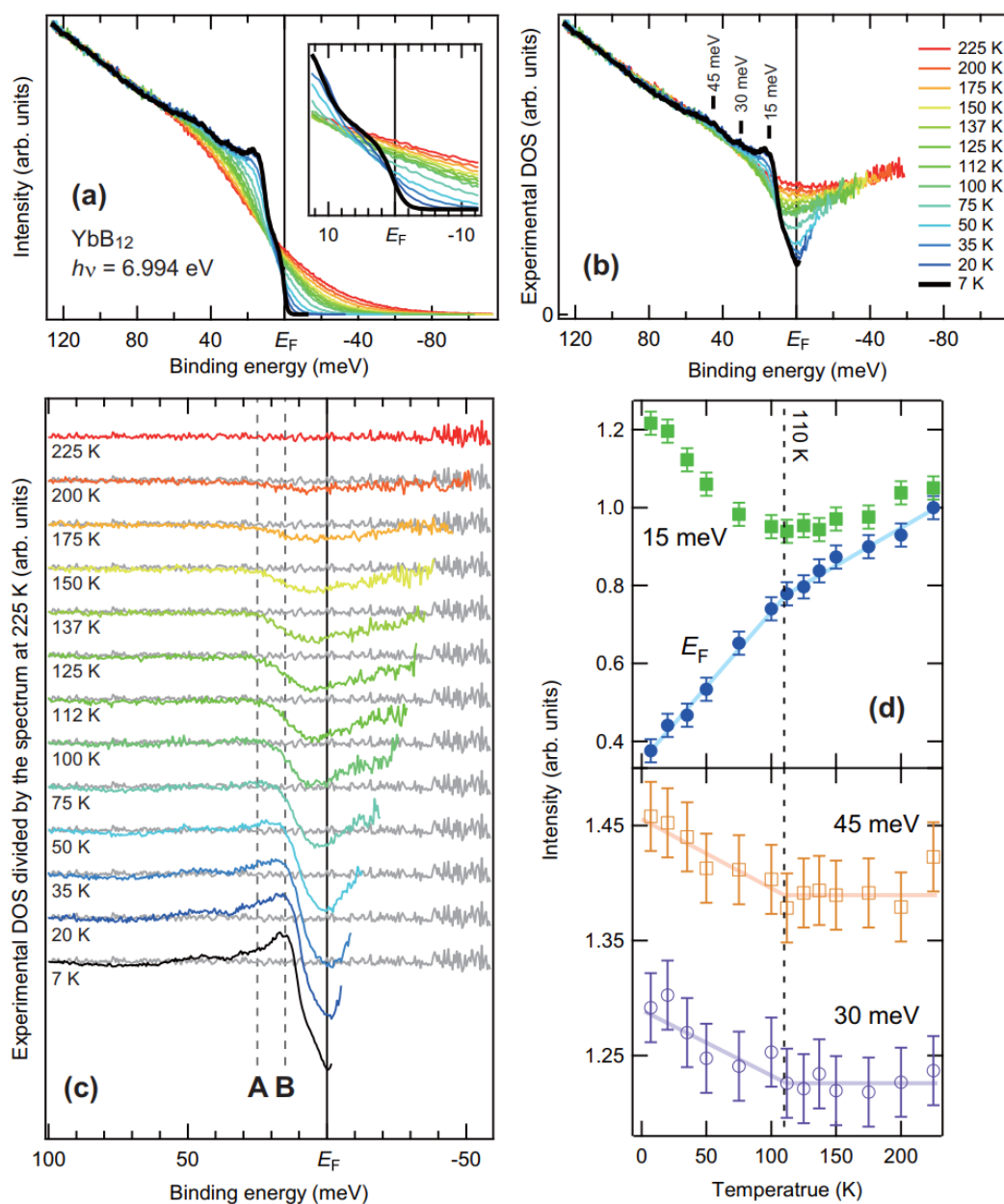


図 2-7 YbB₁₂ の光電子分光測定 [15]

次に YbB_{12} のエネルギーギャップの形成機構について今までに議論されている理論的解釈の 1 つを紹介する [16]。図 2-8 に示したのは、2 重縮退している $4f$ 軌道のバンドと縮退していない伝導バンドが混成した場合の描像である。波数 k に関わらず、エネルギーが一定であるのが $4f$ バンド、波数 k に比例してエネルギーが大きくなるのが伝導バンドである。この場合、1 つの $4f$ 軌道のバンドと 1 つの伝導バンドのみが混成し、図 2-8(b) のような形でギャップが開く。しかし、混成に関わらなかったもう 1 つの局在した $4f$ バンドが残ってしまうため、完全なギャップにならない可能性が残ってしまう。

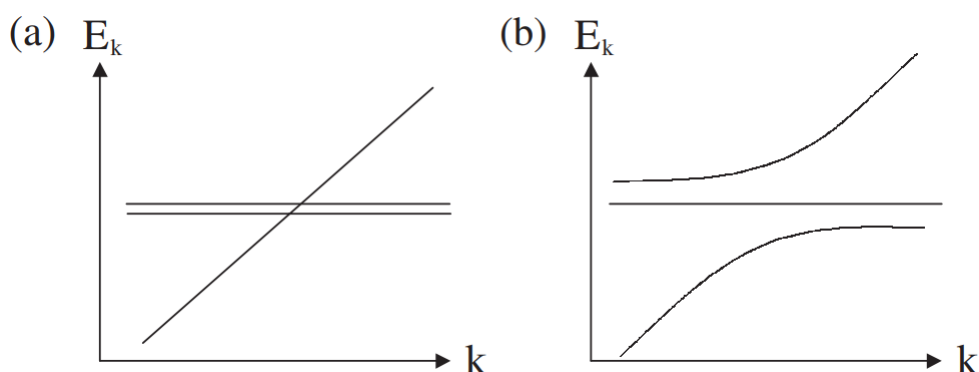


図 2-8 2 重縮退している f 軌道のバンドと縮退していない伝導バンドが混成してギャップが開く描像 (a : 混成前、b : 混成後) [16]

図 2-9 に示したのは、2 重縮退している $4f$ 軌道のバンドと 2 重縮退している伝導バンドが混成した場合の描像である。この場合、両方のバンドが同じ数だけ縮退し、すべてのバンドがそれぞれ混成し、図 2-9(b) のような形でギャップが開く。この形では完全にギャップが開くことが予想されている。そのため、完全なギャップが開くためには $4f$ バンドと伝導バンドの縮退度が等しいことが必要であると考えられている。

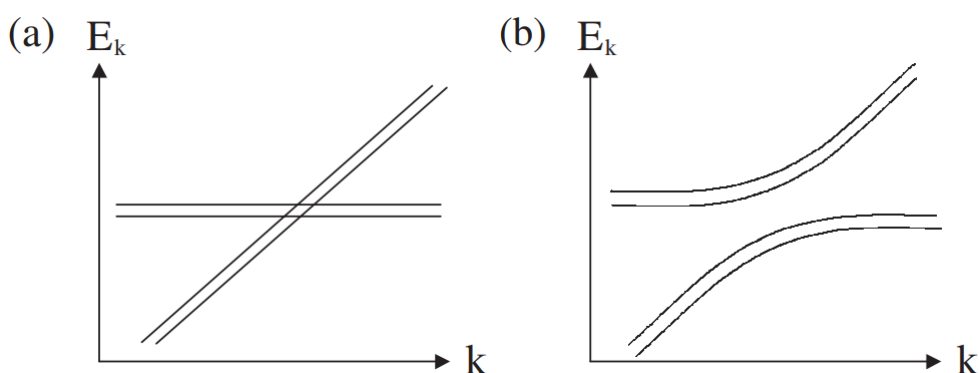


図 2-9 2 重縮退している f 軌道のバンドと 2 重縮退している伝導バンドが混成してギャップが開く描像 (a : 混成前、b : 混成後) [16]

2-3 磁場印加による絶縁体金属転移

YbB_{12} は磁場印加により絶縁体金属転移を起こすことが知られている。図 2-10 に単結晶の $\text{Yb}_{1-x}\text{Lu}_x\text{B}_{12}$ の電気抵抗の磁場依存性 [17]を示す。50 T 程度でキャリアの急激な減少が見られる。このことから、 YbB_{12} は 50 T 程度で磁場誘起絶縁体金属転移を起こすことが確認できる。また、[111]、[100]、[110]の各方向によって転移磁場が異なっていることも確認できる。しかし、Lu をドーピングすることによる転移磁場の変化は確認できない。

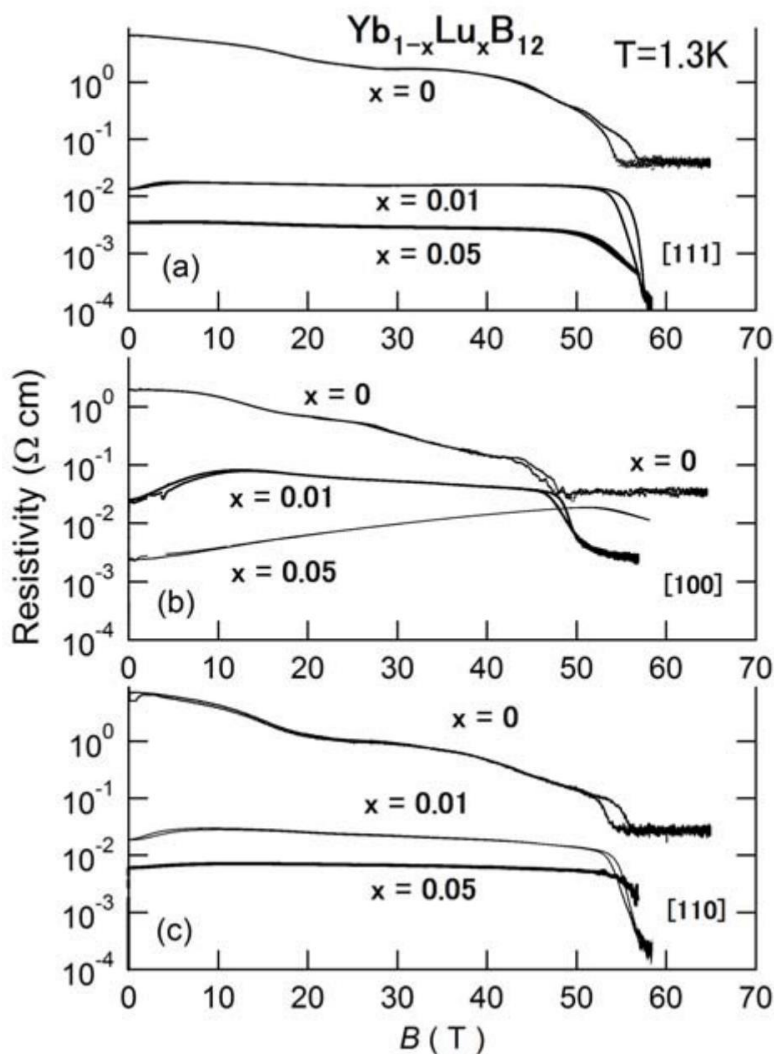


図 2-10 YbB_{12} の電気抵抗測定の磁場依存性 [17]

図 2-11 に単結晶の $\text{Yb}_{1-x}\text{Lu}_x\text{B}_{12}$ の磁化の磁場依存性 [17]を示す。磁化の測定結果においても電気抵抗と同様に異方性が見られ、50 T 程度で急激な磁化の上昇がみられる。このように磁化が急激に上昇する振る舞いはメタ磁性転移と呼ばれている。また、この測定は 68 T まで磁場が印加されているがどの方向においても飽和は観測されていない。

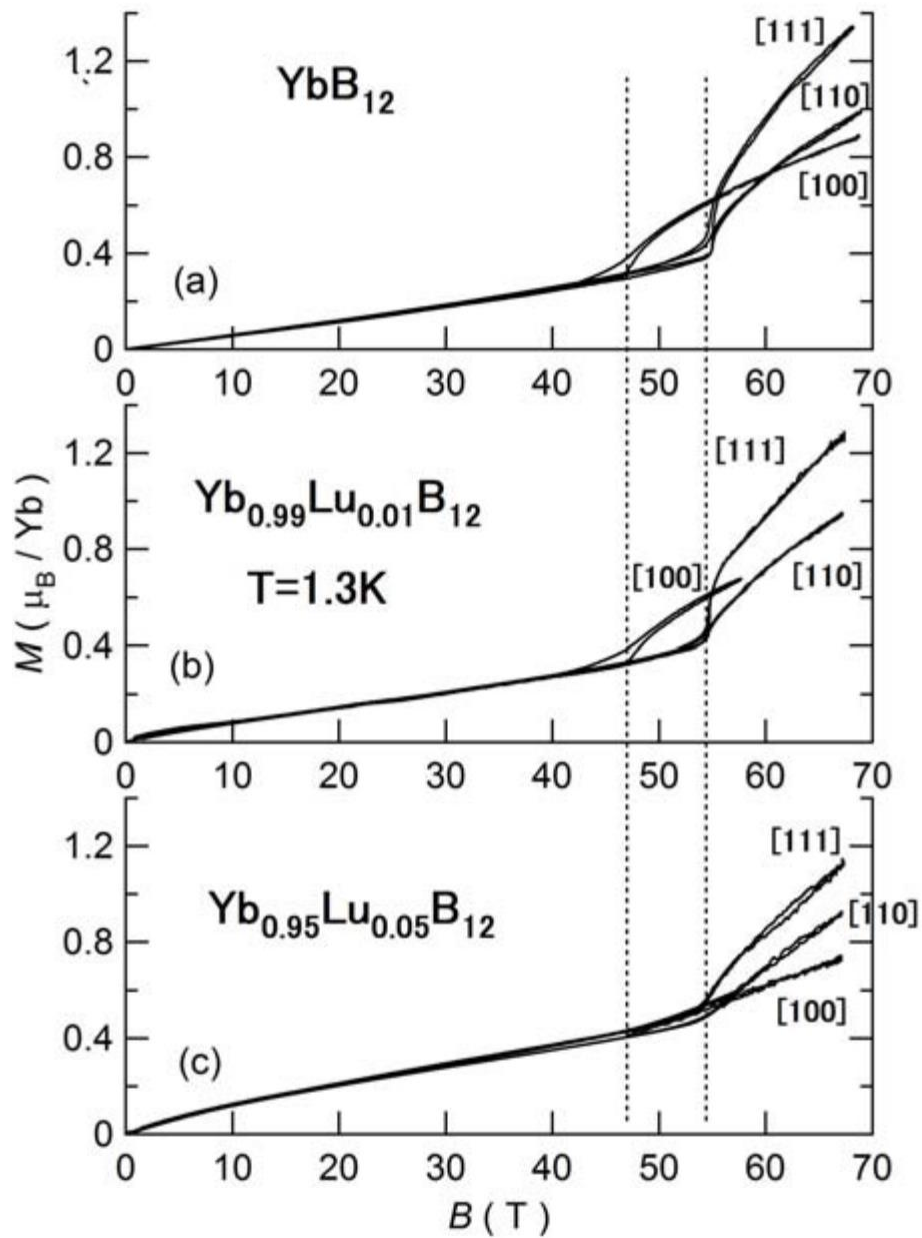


図 2-11 YbB_{12} の磁化の磁場依存性 [17]

図 2-12 に過去に測定された YbB_{12} の各温度における磁化過程 [10]を示す。1.3 K、4.2 K のみ 55 T 程度まで測定されており、メタ磁性転移が 50 T 程度で確認できる。しかし 10 K から 77 K においては 35 T 程度までしか測定ができていない。1.3 K から昇温させていくと、メタ磁性転移前の磁化の大きさは温度に比例して大きくなっていることが確認できる。また、20 K から 30 K において磁化の値が急激に上昇しているように見え、40 K 以上ではほぼ直線のような磁化曲線であることがわかる。

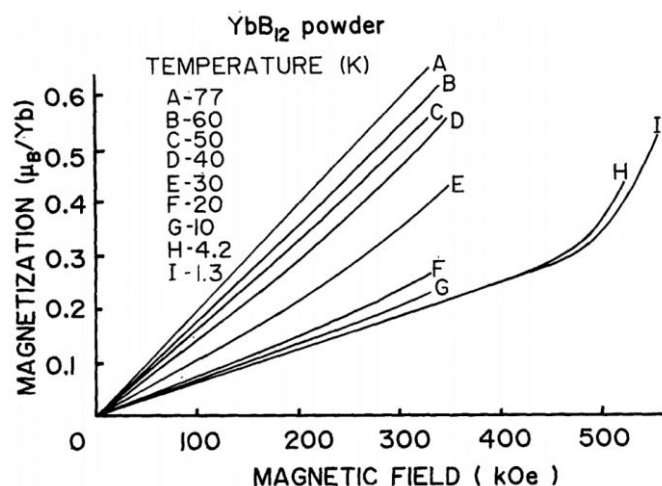


図 2-12 YbB_{12} の各温度における磁化の磁場依存性 [10]

図 2-13 は YbB_{12} の各温度における電気抵抗の磁場依存性をプロットしたもの [18]である。1.5 K では 45 T 程度に電気抵抗の急激な減少が明瞭に見られ、昇温とともに転移がぼやけていくことがわかる。40 K 以上はほぼ直線になり、転移を確認することはできない。

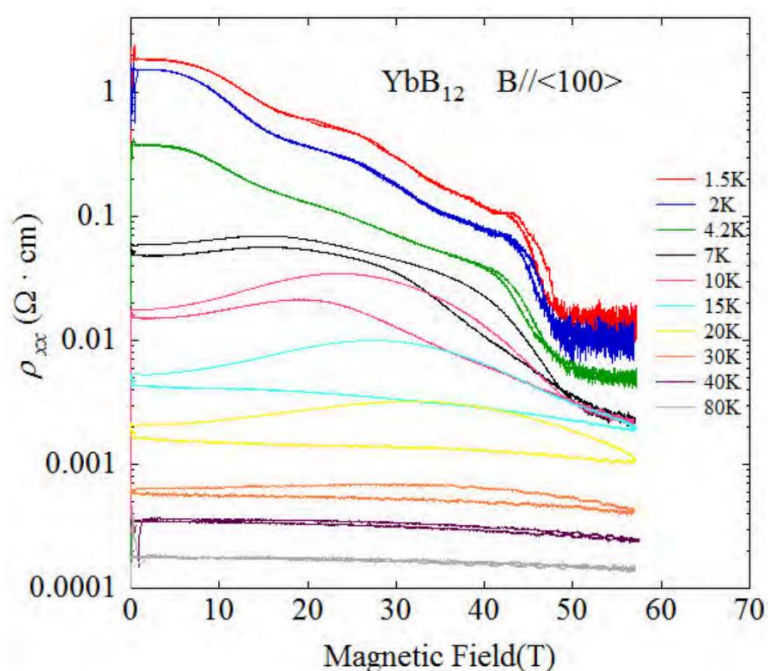


図 2-13 YbB_{12} の電気抵抗の磁場依存性 [18]

また、 YbB_{12} においては磁場誘起絶縁体金属転移が起こる転移磁場からエネルギーギャップを定量的に見積もることができる [19]。図 2-14 は Lea、Leask、Wolf ら [20] によって議論された正方晶における希土類の結晶場分裂におけるハミルトニアンにゼーマンエネルギーの項を加え、正方晶の対称性が磁場印加により変化しないと仮定して解くことで計算した Γ_6 、 Γ_7 、 Γ_8 の磁場依存性である。エネルギーギャップの大きさ 15 meV がゼーマンシフトによって閉じる場合に必要な転移磁場を次の式を用いて求めることができる。

$$2E_Z = 15 \text{ meV}$$

$$E_Z = g\mu_B B$$

この計算で得られる転移磁場と実験で得られる転移磁場を異方性も含めて比較すると表 2-1 のようになる。計算値と実験値が極めて近い値で得られることから、このようなモデルによって YbB_{12} の転移磁場を説明することができる。

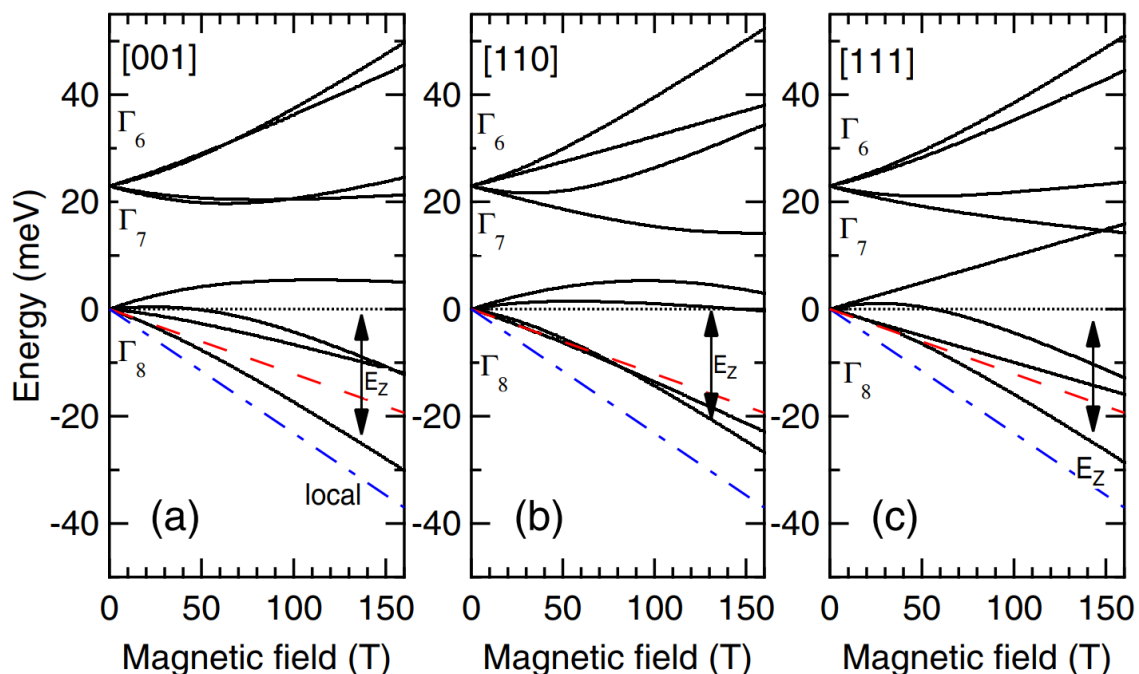


図 2-14 YbB_{12} の結晶場分裂の磁場依存性 [19]

表 2-1 YbB_{12} の計算で求めた転移磁場と実験で得られた転移磁場の比較

	[001]	[110]	[111]
$B_{c1}(\text{Cal.})$	49.5 T	59.5 T	56 T
$B_{c1}(\text{Exp.})$	49 T	59 T	56 T

第3章 研究目的

これまでに述べてきたように、典型的な近藤絶縁体の1つである YbB_{12} は高温では金属的な振る舞いをするが、降温でエネルギーギャップが形成され、抵抗値が急激に上昇する。そのギャップは 55 T 程度の磁場印加により潰れ、磁場誘起絶縁体金属転移を起こす。 YbB_{12} は簡単な結晶構造・電子構造を持ち、Yb イオンが 4f 軌道に 1 個だけホールを持つため、理論からのアプローチもしやすく、 YbB_{12} に関する研究は理論、実験ともに盛んに行われてきた。しかし、このギャップの起源については長年議論の対象となっているが、完璧な理解は得られていない。

本研究では長年議論の対象となっているエネルギーギャップの形成機構の理解の深化ため、 YbB_{12} のエネルギーギャップの温度依存性を決定することを目的とし、100 T 程度の強磁場発生が可能な一巻きコイル法を用いて、 YbB_{12} の磁化過程の温度依存性を詳しく調べる。

また、Yb の電子配置は $[\text{Xe}]4f^{14}6s^2$ であり、 Yb^{2+} では $[\text{Xe}] 4f^{14}$ 、 Yb^{3+} では $[\text{Xe}] 4f^{13}$ の電子配置を取る。 YbB_{12} では価数揺動が生じており、価数が整数でなく、2.9 である。これは、 Yb^{2+} と Yb^{3+} が 1 : 9 の割合で存在しているためである。価数の整数からのずれは、近藤効果の強さを示す指標となっており、ホールドーピングすることによる YbB_{12} の電子状態の変化は興味深い。 YbB_{12} において Yb の一部を $[\text{Kr}]5s^2$ の電子構造をもつ Sr に置換すると、Sr は 2 価の状態になるため、Sr 置換は YbB_{12} にとってホールドーピングとなる。そこで、Yb を Sr に 5% 置換した $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の磁場誘起絶縁体金属転移に対するホールドーピングの影響について明らかにすることを目的とし、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の磁化過程を調べる。また、置換による希釈効果が同じである試料に対して同様の測定をすることでホールドーピングのみの影響を得るために、 YbB_{12} に電子配置 $[\text{Kr}]4d^15s^2$ である Y をドーピングした $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ の磁化過程を調べる。ここで、Y は 3 価で入るためキャリアドーピングはされない。

第4章 実験

4-1 強磁場の発生

実験は東京大学物性研究所の破壊型一巻きコイル装置を用いて磁化を測定した。強磁場発生に際して生じる発熱、磁気応力の問題について説明し、一巻きコイル法を用いた破壊型磁場発生装置についての説明を示す。

・発熱について

コイルには主に銅線が用いられるが、有限の抵抗 R を持つため電流 I を流すと銅線にはジュール熱 Q が発生する。ジュールの法則によれば電流 I を t 秒間流した時に発生するジュール熱 Q は次のように書ける。

$$Q = RI^2t$$

強力な磁場を発生させるためには大電流が必須であるが、一般的なソレノイドコイルではジュール熱が非常に大きくなり、銅線が融解し断線してしまう。発熱を防ぎ、強力な磁場を出せるコイルを実現するには、以下のような手段が考えられる。

- ・電流を流す時間 t を短くする。
- ・抵抗 R がほぼ 0 である超伝導線を使う。
- ・コイルを冷やし、融解しないようにする。

超伝導線の利用は最も有効な手法と思われるが、超強磁場下では超伝導状態が壊れてしまうことや巨大な冷却設備が必要になることなどの問題がある。そのため、物性研究所では磁場発生時間 t が 10 万分の 1 秒 (10μ 秒) 程度の短さである「パルス磁場」を用いている。これはコンデンサーに電気エネルギーを充電し、短時間でコイルに大電流を放電する方法であり、発熱を防ぐことができるだけでなく、全体のエネルギー量を抑えつつ強い磁場を発生させることができる。

・磁気応力について

大電流がコイルに流れ、磁場が発生するとローレンツ力という力がコイルにかかる。ローレンツ力の方向はフレミング左手の法則にしたがい、力はコイルの外側に加わる。そのため、らせん状のソレノイドコイルであれば、コイルの線材が外側に膨張してしまい、変形が起こる。磁場を 100 T 出す際に発生する応力はおよそ 4 GPa にも及ぶ。鋼鉄の強度でも約 1 GPa が限界であり、材料を工夫したとしてもコイルの変形は防げない。この問題を回避するために、破壊型磁場発生手法ではマグネットの破壊にかかる有限の時間を利用している。電流を流す時間は、コンデンサーバンクの電気容量 C と回路のインダクタンス L を用いて表すことができ、 \sqrt{LC} に比例する。

回路の C 、 L を小さくする工夫として、一卷きコイル法がある。一般的なソレノイドコイルであれば、透磁率を μ 、コイルの巻き数を N 、断面積を S 、長さを l とすると、インダクタンスは $L = \mu N^2 |S| l^{-1}$ と書くことができる。インダクタンスを小さくするために、なるべく断面積 S を小さくし、巻き数 N を少なくすることができる一卷きコイルを採用している。また、コンデンサーバンクにおいて C が小さいものを採用しつつ、高い電圧を充電することで十分な電気エネルギーを稼いでいる。

・一卷きコイル法を用いた破壊型磁場発生装置について

100 T を超える超強磁場を発生させることができる磁場発生装置は世界でも数台しかなく、日本では物性研究所のみ所有する装置であり、非常に特殊な実験である。物性研究所には地面に平行にコイルをセットする横型一卷きコイルと地面に対して垂直にセットする縦型一卷きコイルの 2 台がある。本研究では、試料の安定した冷却が必要なため、縦型一卷きコイルを用いた。破壊型装置のコンデンサーバンクには最大 200 kJ ($C=250 \mu\text{F}$ 、 $V=40 \text{ kV}$) の充電が可能であり、電荷がギャップスイッチによって瞬間的に放電される。放電時間は 10 μsec 程度であり、3~4 MA のパルス電流が放電される。装置の回路の概略図を図 4-1 に示す。一卷きコイルは、実験装置に図 4-2 のような形でセットする。大電流を用い、破壊が伴う実験であるため、事故が起こる可能性が高い。そのため、周囲の防護や絶縁環境を整えることで事故を防いでいる。磁場発生に伴い一卷きコイルは、図 4-3 のような過程で破壊されてしまい、実験前後でコイルは図 4-4 のような姿になってしまう。

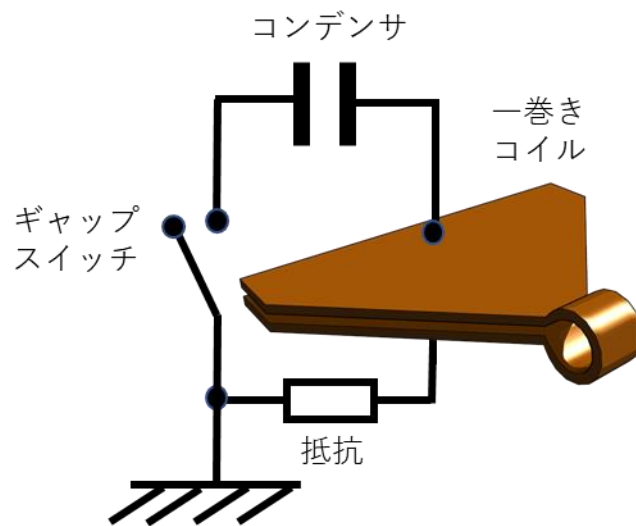


図 4-1 装置の回路の概略図

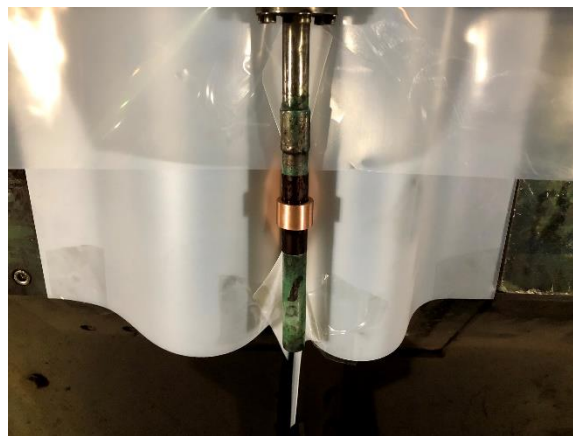


図 4-2 一巻きコイルセット時の様子

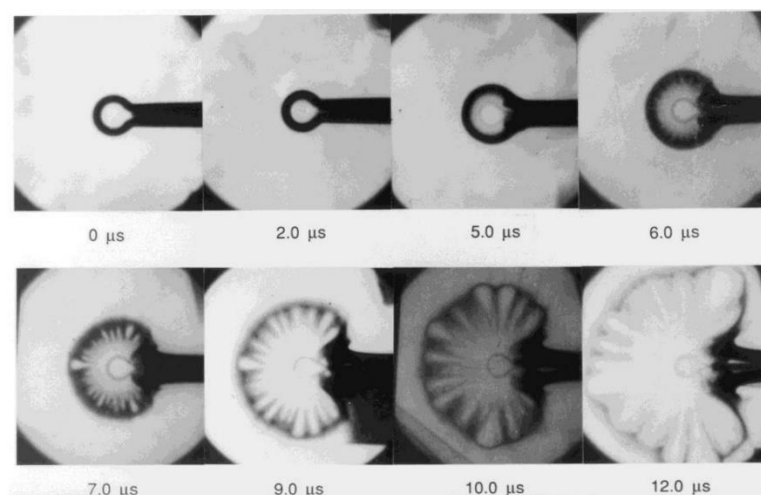


図 4-3 一巻きコイル法におけるコイル破壊過程の X 線写真 [21]



図 4-4 磁場発生前後の一巻きコイルの写真（左：実験前、右：実験後）

磁場の大きさは充電電圧とコイルの口径によって決まる。本研究では 100 T 程度の磁場が必要であるため、電圧 40 kV に設定し、内径が 14 mm の一巻きコイルを用いた。実験で得ることができる磁場波形を図 4-5 に示す。

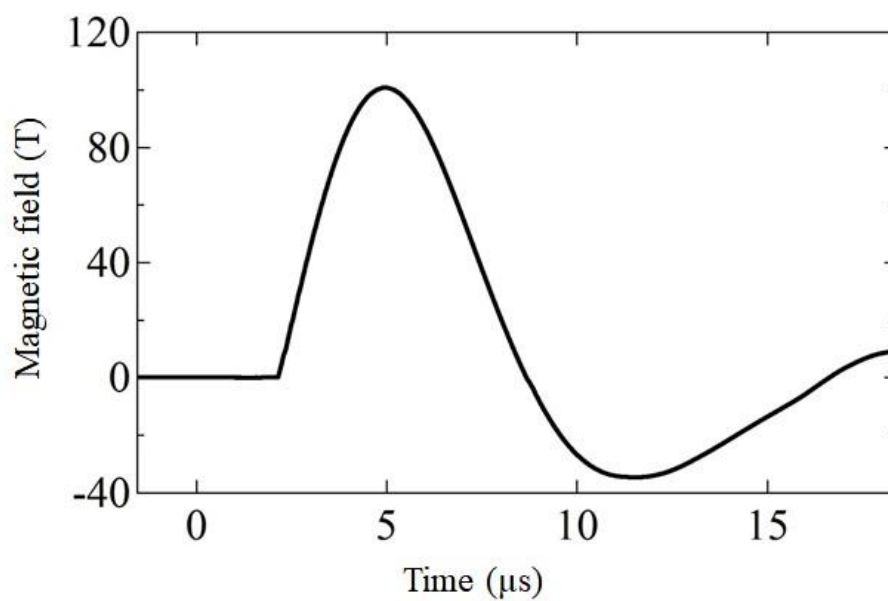


図 4-5 コイル径 14 mm、40 kV 充電時の磁場波形

4-2 低温環境

今回の実験では、4 K～30 K の低温領域で試料温度を設定した。破壊型一卷きコイルでは従来、図 4-6 に概念的に示すようなクライオスタットを用いている。プローブに試料を入れ、それを液体 He 層に直接漬けることで冷やしている。その周囲には液体 He を溜めるために必要な断熱層として真空層と液体 N₂ 層がある。真空層の真空度はおよそ 1.0×10^{-3} Pa である。これらの層の材質には金属ではなく、FRP (Fiber Reinforced Plastics) という非金属の繊維強化プラスチックを使用している。なぜなら破壊型一卷きコイル法では、コイル周辺に他の金属を用いることができず、また、コイル径がおよそ 10 mm 程度の狭い空間であり、強い磁場が加わるため材質の制限が多いためである。しかし、液体 He に試料を直接漬けているため、液体 He 温度の 4.2 K 以外での実験は難しいという問題点がある。

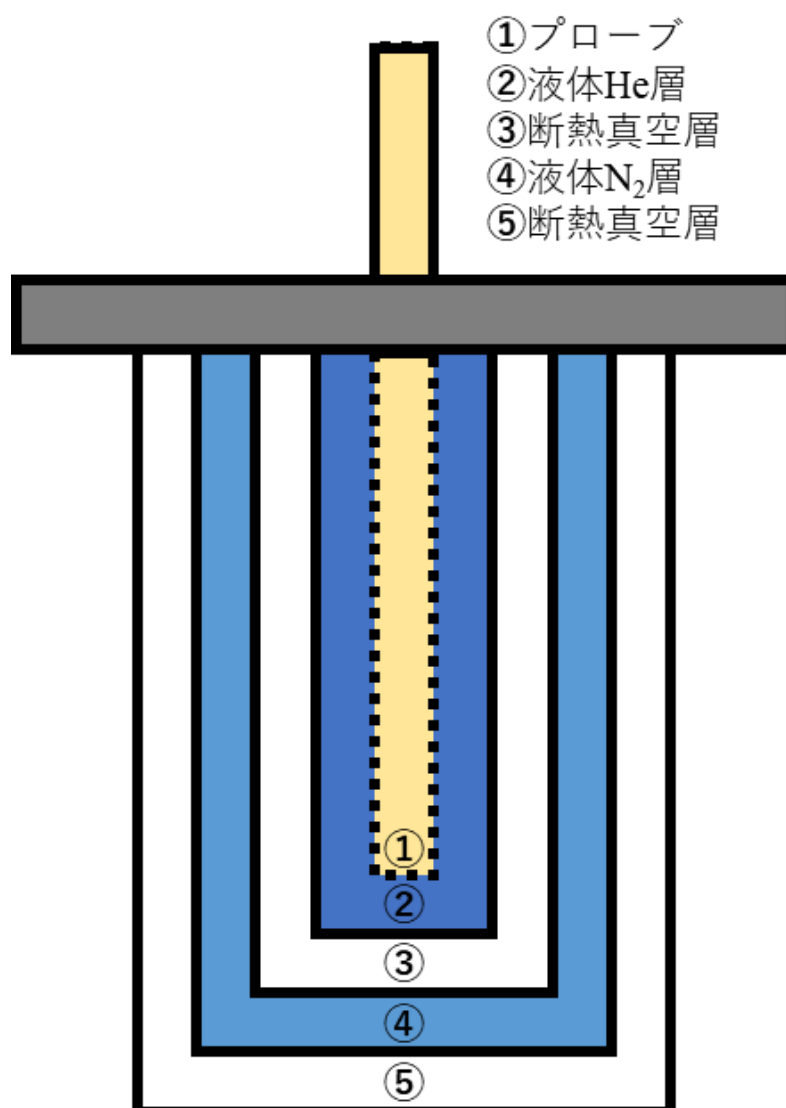


図 4-6 縦型一卷きコイル用クライオスタットの写真と概略図

液体 He 温度でしか測定が行えないという問題点を解決したのが最近開発された図 4-7 のような温調クライオスタットである。③層を流れる液体ヘリウムの流量を調整することで試料の温度を調整している。詳しい説明を示す。クライオスタット上部の③液体 He 層において、液体 He を溜める。その周囲に液体 He を溜めるための④真空層と⑤液体 N₂ 層がある。上部に溜まった液体 He は⑥ニードルバルブによって流量を調整しながら、下部へと気化しながら落ちていく。そして真空ポンプにより吸い上げられ、①層と②層を冷やししながら排気回収ラインへと流れていく。

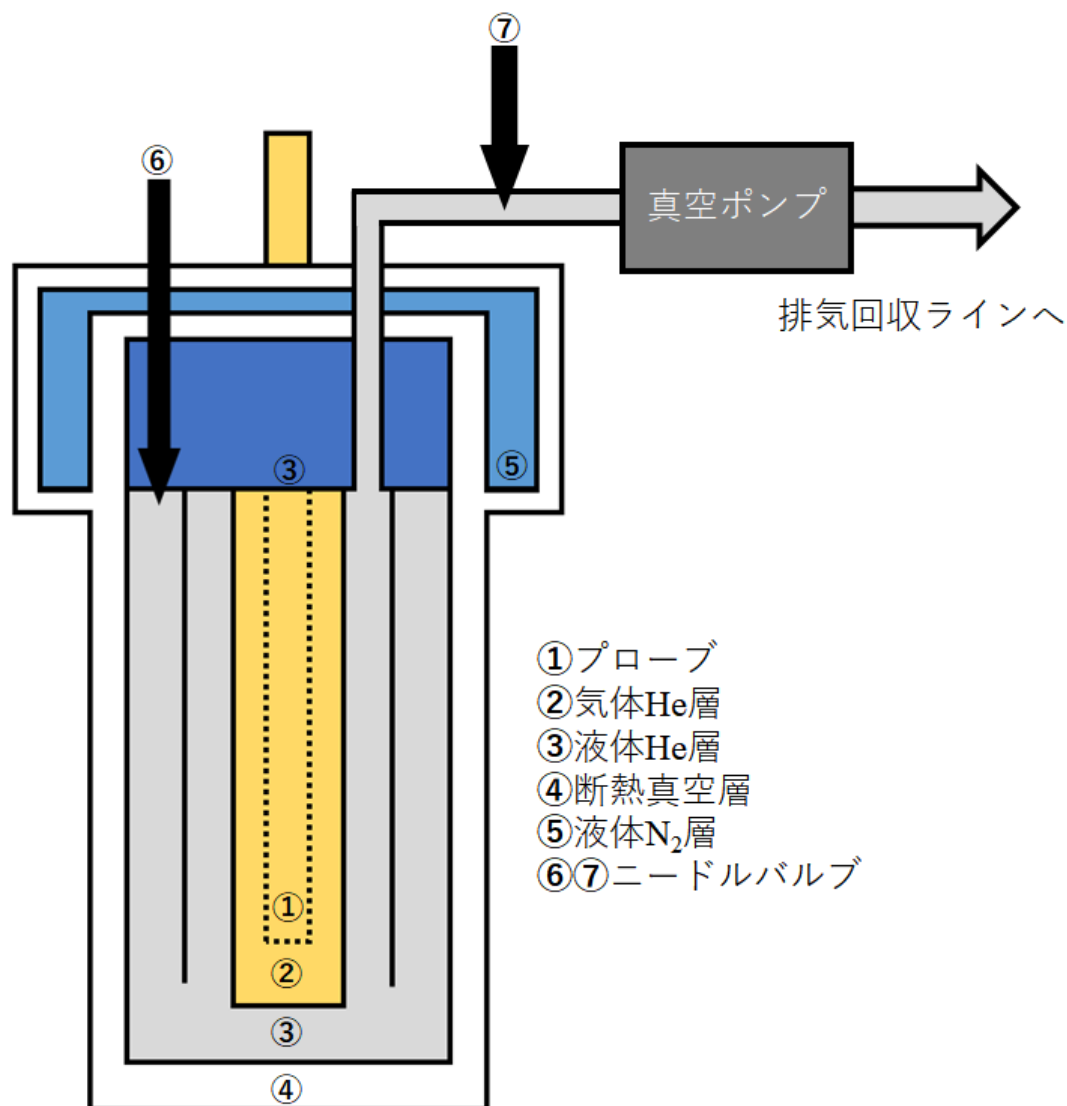


図 4-7 縦型一巻きコイル用温調クライオスタットの概略図

図 4-8 に実際のニードルバルブの写真を示す。実験を重ねるうちに、⑥ニードルバルブが低温により凍結し、精密な温度調整が困難であることがわかった。これを解決するために⑦ニードルバルブを追加し、真空ポンプによる吸引力の調整をすることで 0.1 K 程度の調整が容易になった。

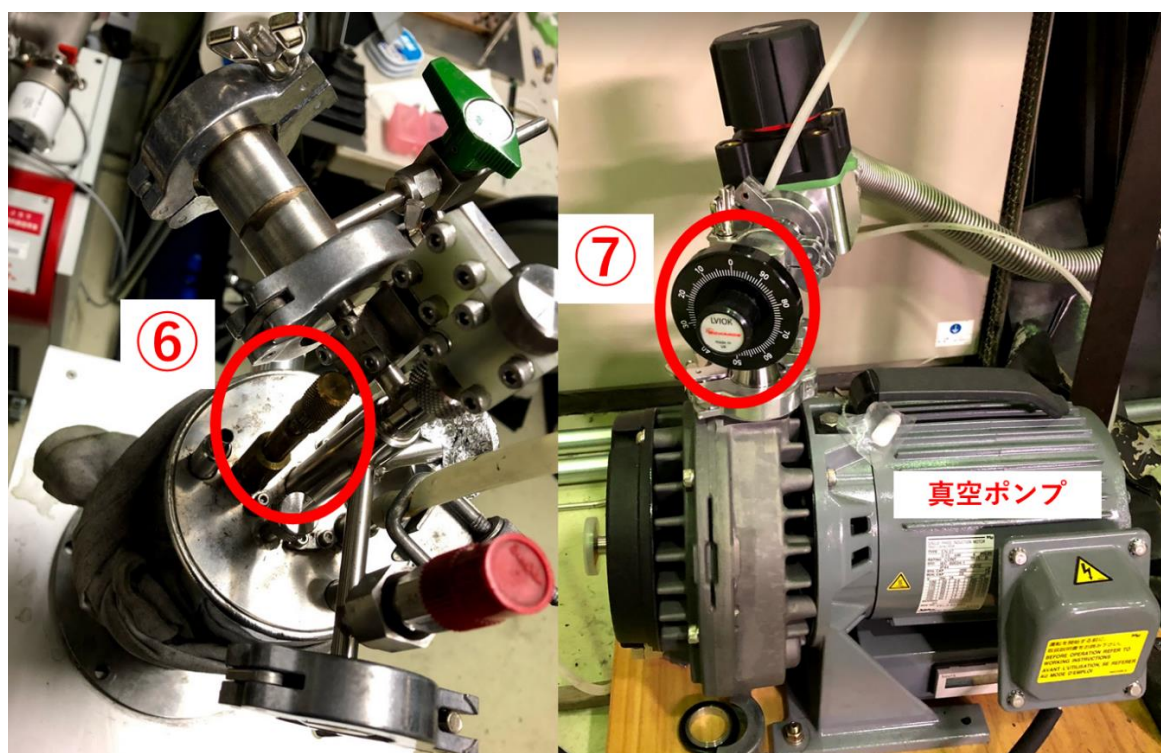


図 4-8 ⑥ニードルバルブと⑦ニードルバルブの写真

図 4-9 に実際に温調クライオスタットを用いて温度制御をした際の温度の時間変化を示す。⑥ニードルバルブを用いて 20 K 程度に安定した後に、⑦ニードルバルブを調節することによって図 4-9 のように温度を調節することができる。

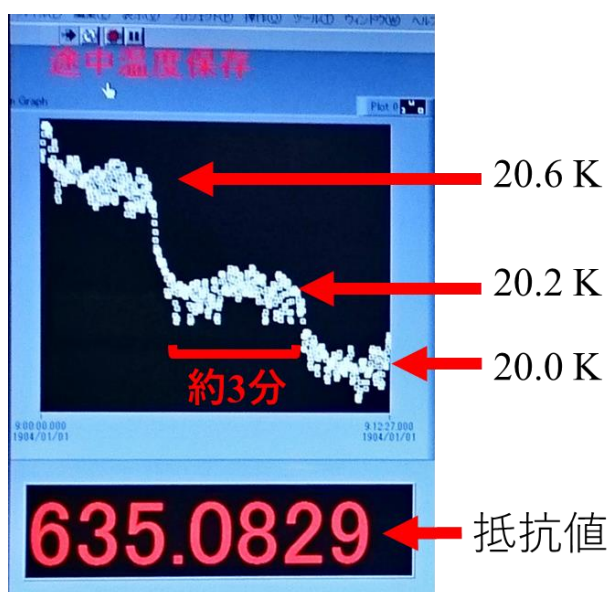


図 4-9 温調クライオスタットによる温度制御の様子

図 4-10 に本研究で用いた実際のクライオスタット、プローブの写真を示す。4.2 K[測定 No.2]の実験では従来のクライオスタット A とプローブ a を、また 4.2 K[測定 No.1]～30 K の実験に新たな温調クライオスタット B とプローブ b を用いた結果を示している。プローブ b では精密な温度測定をするために薄膜抵抗センサーであるセルノックスを用いている。

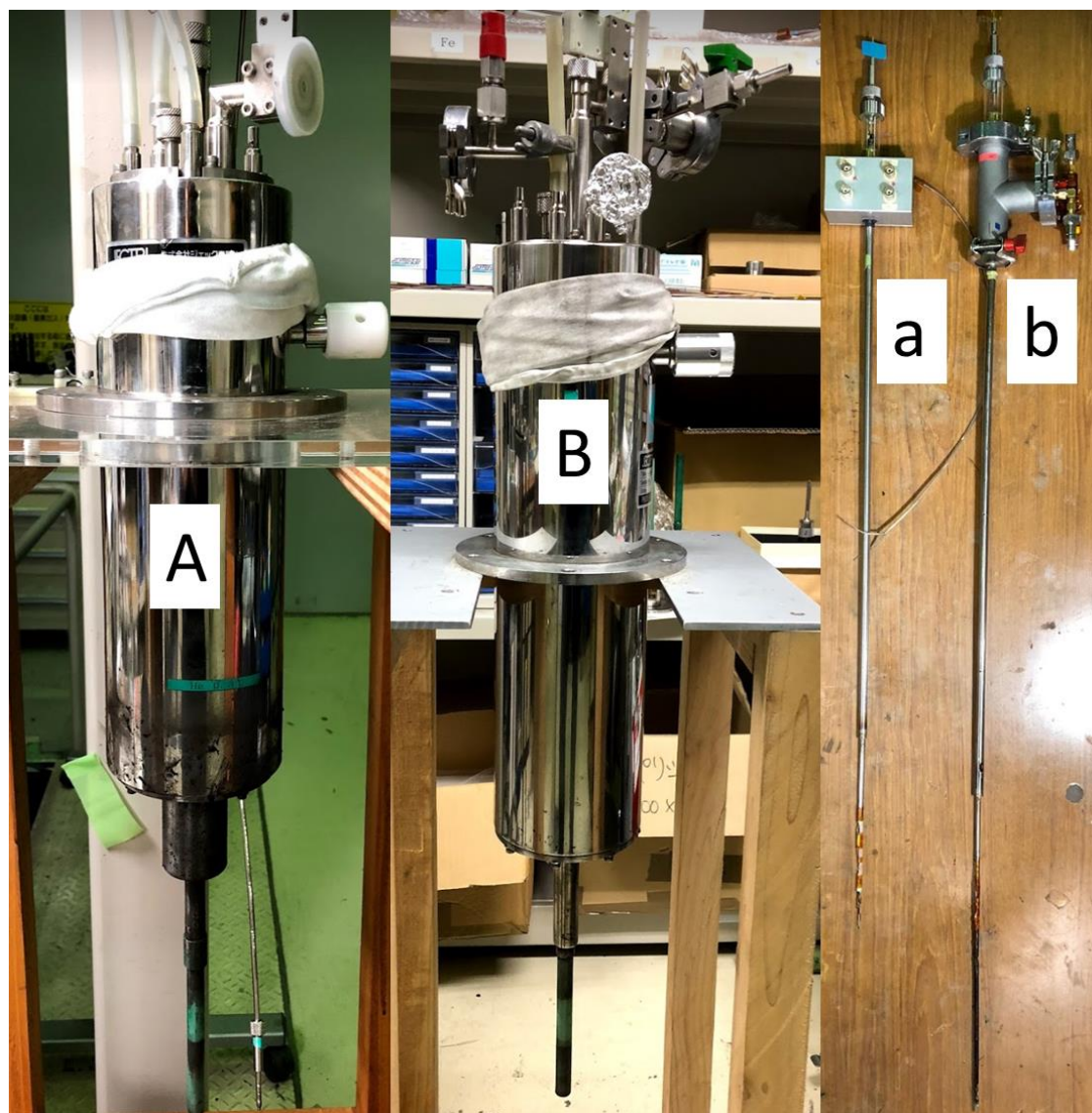


図 4-10 従来のクライオスタット A と使用したプローブ a
温調クライオスタット B と使用したプローブ b の写真

4-3 磁化測定

一巻きコイル法における磁化測定には内径 1.0 mm、厚さ 0.06 mm のカプトンチューブに直径 60 μm の銅線を左右 20 回ずつ逆向きに巻いた平行型のピックアップコイルを用いた。図 4-11 に平行型ピックアップコイルの概略図を示す。ピックアップコイルの中央に磁場を発生させることで、ピックアップコイルの左右の回路に生じる誘導起電力は互いに打ち消しあい、試料の磁化のみが反映された信号を得ることができ、ノイズが大きい破壊型実験において有用な測定法の一つである。しかし、ピックアップコイルは手作業で作られるものであり、一巻きコイル法では磁場の空間的不均一性が時間と共に変化するため、バックグラウンド信号を完全になくすことは難しい。そのため、試料の位置を入れ替え、2 回測定を行うことにより S/N 比が向上し、より精密な測定が可能になる。

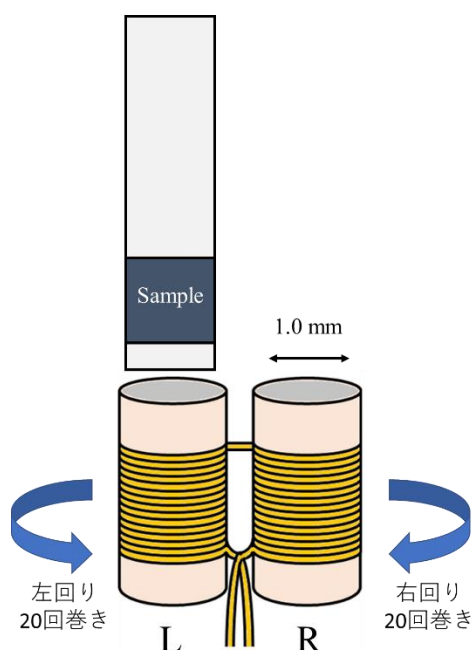


図 4-11 並行型ピックアップコイルの概略図

誘導法について詳しく説明する。コイルに生じる誘導起電力の大きさはコイルを貫く磁束の時間変化に依存するため、左右それぞれに試料を入れた場合のピックアップコイルを貫く磁束を考える。まず、左側のカプトンチューブに試料を入れ、1回目の磁場を印加した場合を考える。左右のピックアップコイルをそれぞれ貫く磁束 Φ_{L1} 、 Φ_{R1} は次のように書ける。左右のピックアップコイルの巻き数をそれぞれ n_L 、 n_R 、印加される磁場の大きさをそれぞれ H_{L1} 、 H_{L2} とした。

$$\begin{aligned}\Phi_{L1} &= \mu_0 n_L S_L H_{L1} + \mu_0 n_L S_L M \\ \Phi_{R1} &= \mu_0 n_R S_R H_{R1}\end{aligned}$$

コイルに生じる誘導起電力は以下のようになる。

$$V_1 = -\frac{d}{dt}(\Phi_{L1} - \Phi_{R1}) = -\mu_0 n_L S_L \frac{dM}{dt} - \mu_0 (n_L S_L \frac{dH_{L1}}{dt} - n_R S_R \frac{dH_{R1}}{dt})$$

次に左側から右側に試料を入れ替えて、2回目の磁場を印加した場合を考える。同様に、左、右のピックアップコイルを貫く磁束 Φ_{L2} 、 Φ_{R2} は次のように書ける。

$$\begin{aligned}\Phi_{L2} &= \mu_0 n_L S_L H_{L2} \\ \Phi_{R2} &= \mu_0 n_R S_R H_{R2} + \mu_0 n_L S_L M\end{aligned}$$

コイルに生じる誘導起電力は以下のようになる。

$$V_2 = -\frac{d}{dt}(\Phi_{L2} - \Phi_{R2}) = \mu_0 n_R S_R \frac{dM}{dt} - \mu_0 (n_L S_L \frac{dH_{L2}}{dt} - n_R S_R \frac{dH_{R2}}{dt})$$

1回目と2回目の差分 V_Δ は次のようになる。

$$V_\Delta = V_1 - V_2 \cong -\mu_0 (n_L S_L + n_R S_R) \frac{dM}{dt}$$

これにより試料の磁化の時間微分に比例した信号が得られる。これを積分することで試料の磁化 M に比例した値を得られる。

4-4 実験試料

実験試料である YbB_{12} 、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ 、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ は茨城大学理学部の伊賀教授に提供していただいた。 Yb を Sr に 5%置換した $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ は、 $\text{Yb}_{1-x}\text{Ca}_x\text{B}_{12}$ と同様の手法である高圧合成によって合成された [22]。渦電流の効果を減らすため、純良単結晶を粉砕、粉末化した。その後、 1Φ のカプトンチューブに 6 mm 程度の長さになるように詰めた。この時、試料の固定と粉末間の電氣的接触を抑制する目的で、STYCAST1266 を少量混ぜてから詰めた。

第5章 実験結果と考察

5-1 YbB₁₂ の磁化過程の温度依存性

ここでは、縦型一巻きコイル法を用いて行った YbB₁₂ の超強磁場下での磁化過程の測定結果について示す。試料はすべて同一のものを使用した。すべての測定において内径 14 mm の一巻きコイルを使い、充電電圧は 40 kV に設定した。それぞれの温度における詳細な測定データを示したのちに、転移磁場の値を整理して示す。

5-1-1 4.2 K から 30 K における測定結果

・ 4.2 K における実験結果：測定 No.1、2

[測定 No.1]：温調クライオスタット

図 5-1 は印加した磁場の時間依存性（黒線）と並行型磁化ピックアップコイルの右側に試料を入れて磁場を印加した場合と左側に入れて磁場を印加した場合に得られた電圧信号の時間依存性である（緑：右側、青：左側）。磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 2 V 程度生じており、2 μ s 程度で減衰して消えていく。長周期の成分は印加した磁場の分布がピックアップコイルに対して対称でないため、また、手作業で作成するピックアップコイル自身が完全な対称性を持っていないために生じるバックグラウンド信号の成分であるが、これは同じ条件で磁場印加することで再現することが多い。この測定では2つの測定が比較的良好に再現され、バックグラウンド信号がよく一致していることがわかる。

図 5-2 に示したのは、図 5-1 に示した右側の信号の大きさから左側の信号の大きさを差し引いたものである。2回の測定で生じたバックグラウンド信号が十分に一致していると仮定すると、この値が磁化の時間微分 (dM/dt) に比例した信号となる。この測定では矢印 a で示した 1 μ s あたりに磁場上昇時のメタ磁性転移から来るとされるピークがみられており、同矢印 b で示した 5 μ s あたりにも磁場下降時の同様なピークがみられている。

図 5-3 と図 5-4 の上側に示した曲線（黒線）は磁場上昇時、磁場下降時それぞれについての dM/dt を積分したものである。これは磁化 M に相当するものである。図 5-3 の下側に示した曲線（赤線）は磁場上昇時の磁化の磁場微分 (dM/dB) に相当するものであり、ピーク構造を見やすくするために必要に応じて二項分布でスムージングをしている。図 5-2 の矢印 a、b で示した信号のピークは図 5-3、図 5-4 でも表れている。図 5-3 の磁場上昇時と図 5-4 の磁場下降時の磁化曲線を比較してみると、似たような振る舞いを示しているが、磁場下降時のほうが若干ブロードになっている。この違いは磁場上昇時と磁場下降時のバックグラウンド信号の補償の程度が異なるためである。このように破壊を伴う一巻きコイル法では、得られる磁化曲線が大きく異なる可能性があるため、磁化の絶対値に関する詳細な議論は難しい。

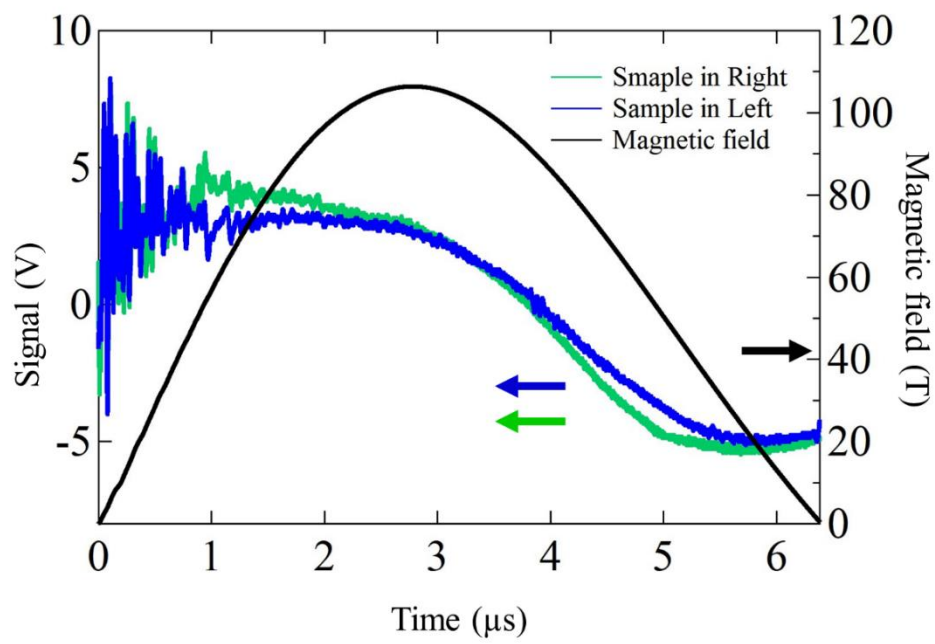


図 5-1 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.1]

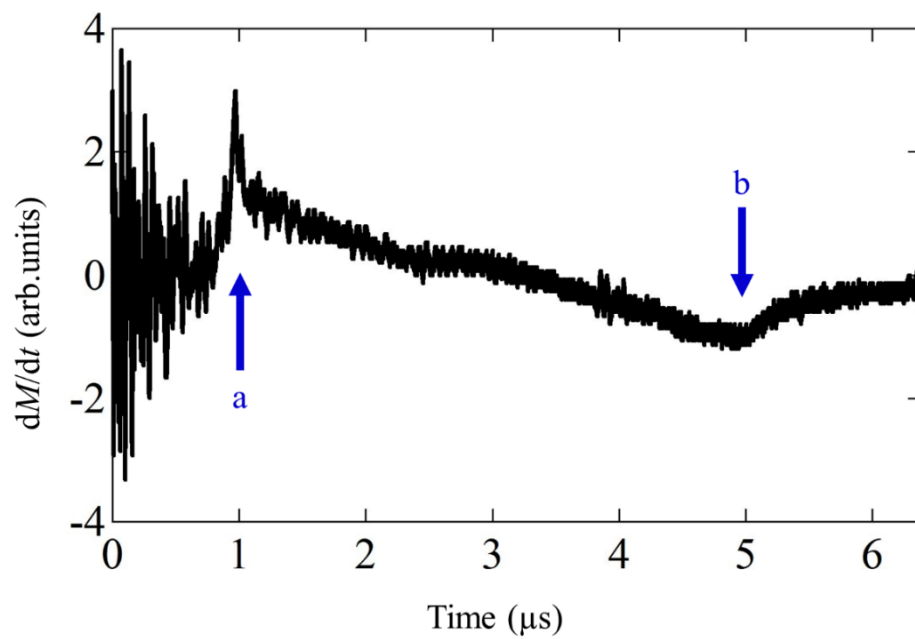


図 5-2 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.1]

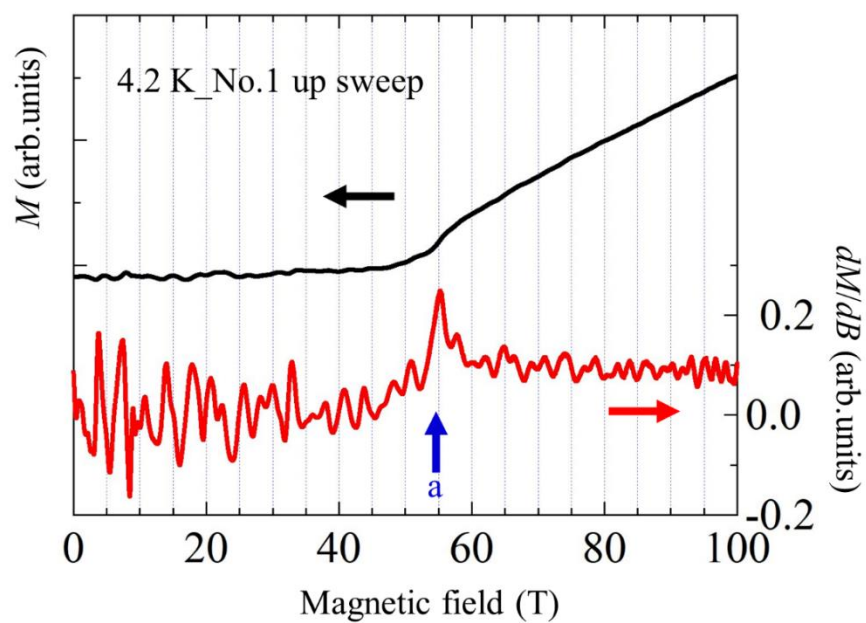


図 5-3 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.1]

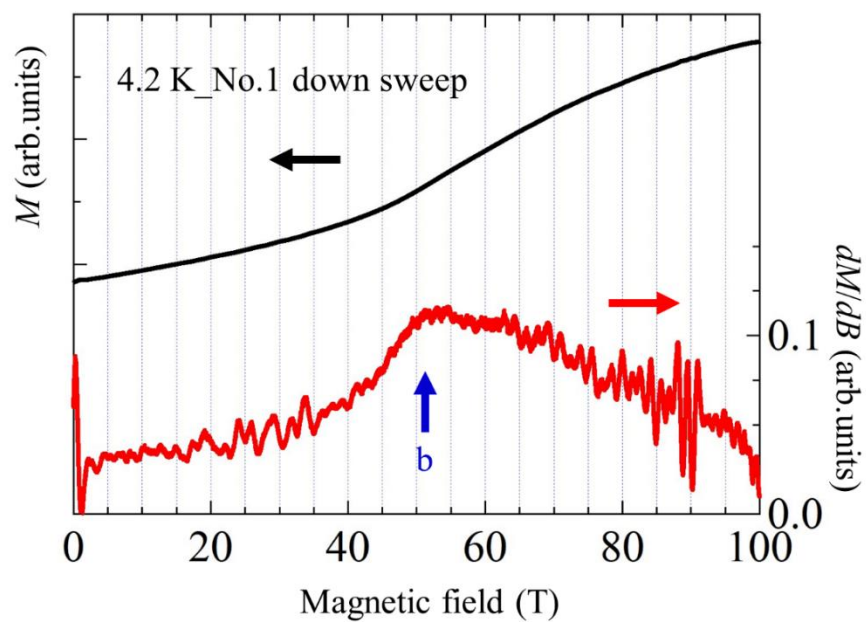


図 5-4 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.1]

[測定 No.2]：従来のクライオスタット

この実験はクライオスタットが異なることで転移磁場に大きな違いがないことを確認するために行った。図 5-5 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 1 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。2つの測定を比較するとバックグラウンド信号である長周期の成分はよく一致している。また、ノイズの大きさは[測定 No.1]に比べて小さく抑えることができている。図 5-6 では[測定 No.1]と同様の部分である矢印 a、b にピークを確認できる。

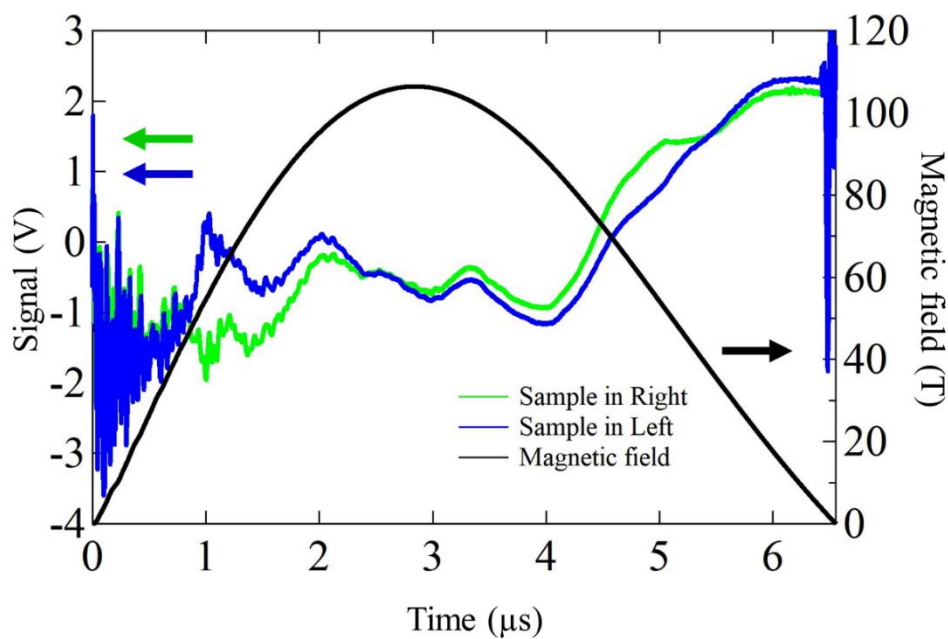


図 5-5 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.2]

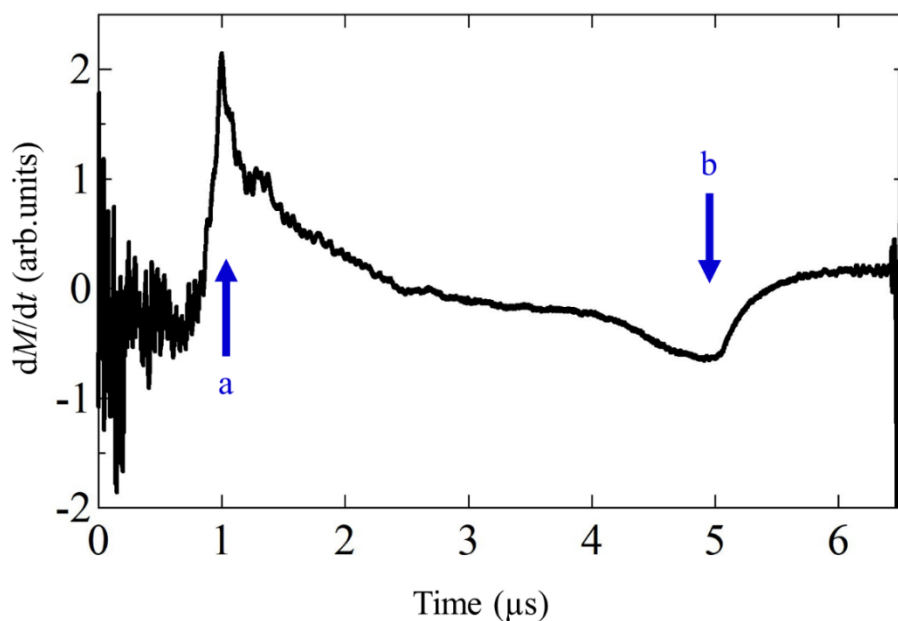


図 5-6 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.2]

図 5-7、図 5-8 の dM/dB 曲線においてもノイズは非常に小さく矢印 a、b で示した転移と思われるピーク構造は測定[No.1]と比べると、同様の位置である 55 T 付近に観測することができた。しかし、バックグラウンドの信号自体が小さくなったため、磁場上昇時、下降時ともにバックグラウンドの信号の再現性は悪く、良い磁化曲線を得ることができなかった。

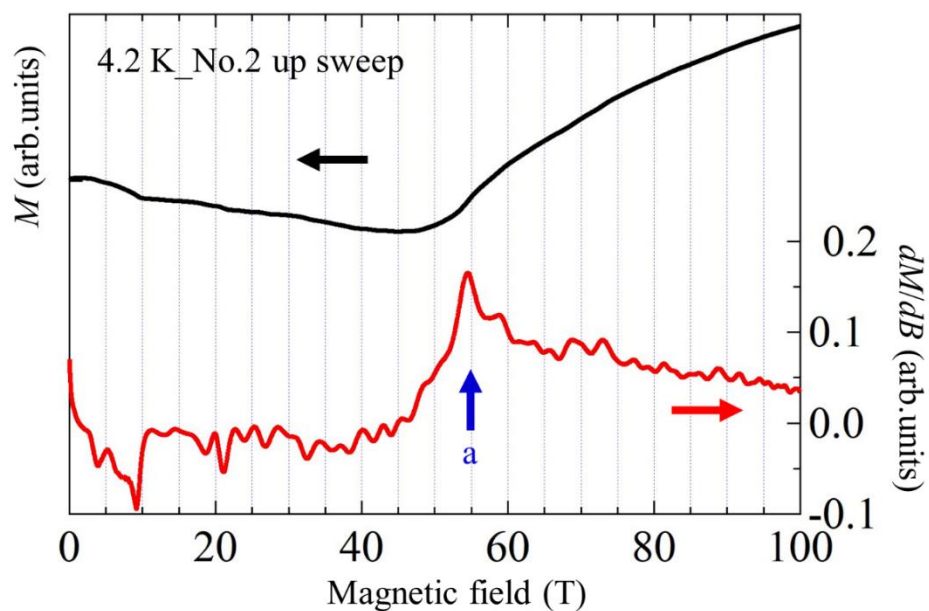


図 5-7 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.2]

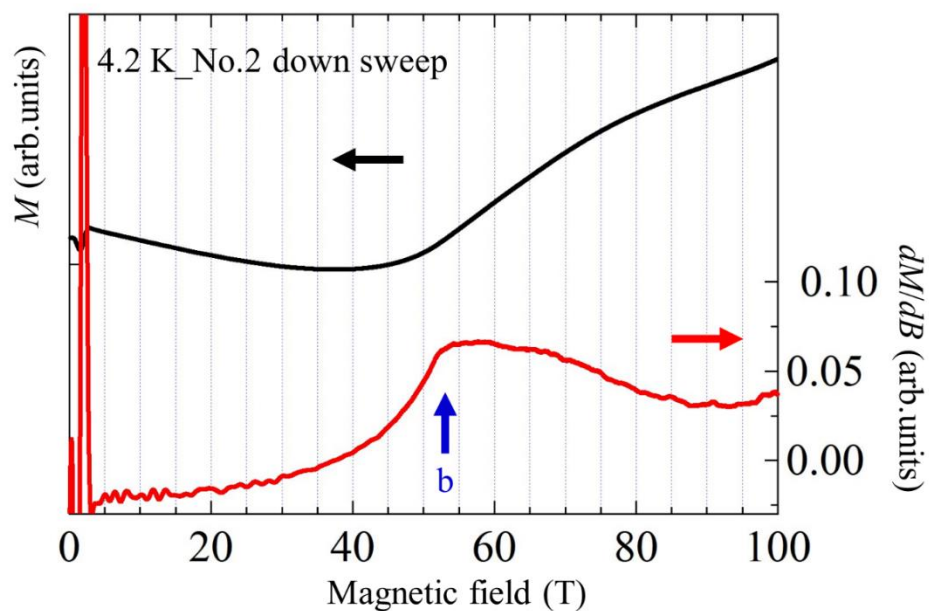


図 5-8 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.2]

・ 10 K における実験結果：測定 No.3

[測定 No.3]：温調クライオスタット

図 5-9 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 2.5 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。バックグラウンド信号である長周期の成分は非常に小さく、2 つの測定を比較するとよく一致している。図 5-10 では 4.2 K で測定と同様に矢印 a、b の位置にピークを確認できる。

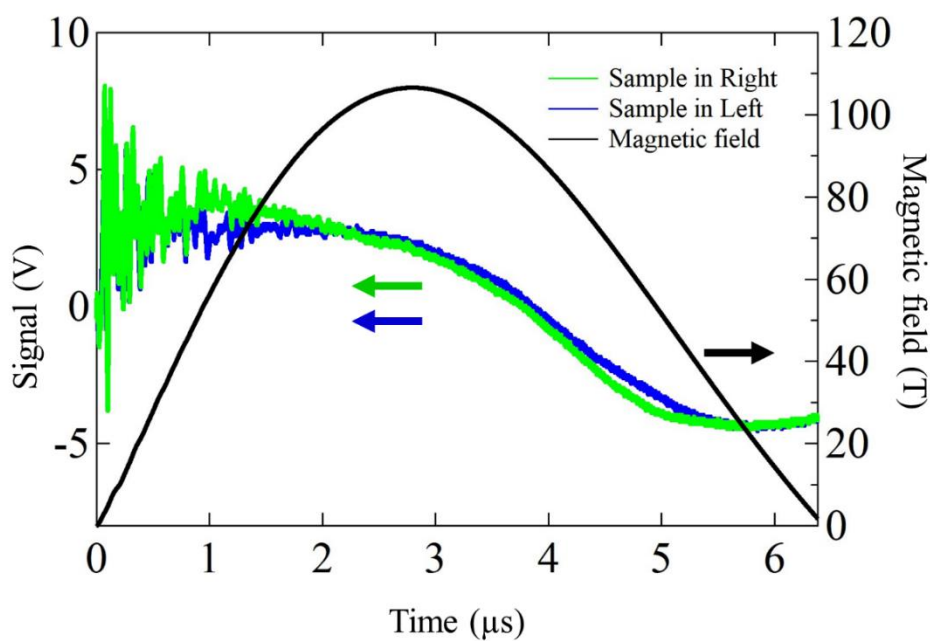


図 5-9 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.3]

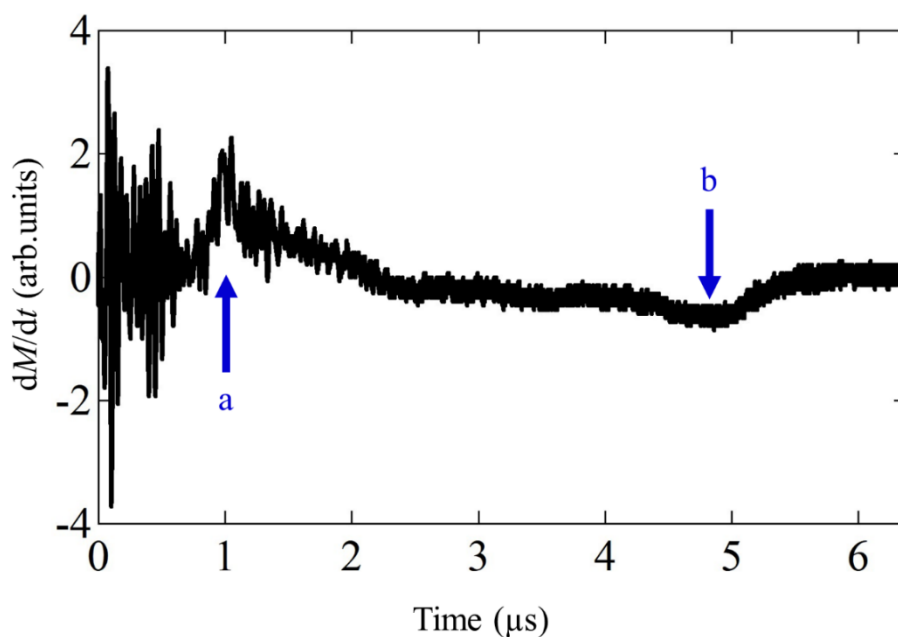


図 5-10 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.3]

図 5-11、図 5-12 の dM/dB 曲線においては 4.2 K における測定と同様に 55T 付近に転移と思われるピーク構造が確認できる。磁化曲線についても、4.2 K の測定と比べて特に大きな構造の変化は見られない。

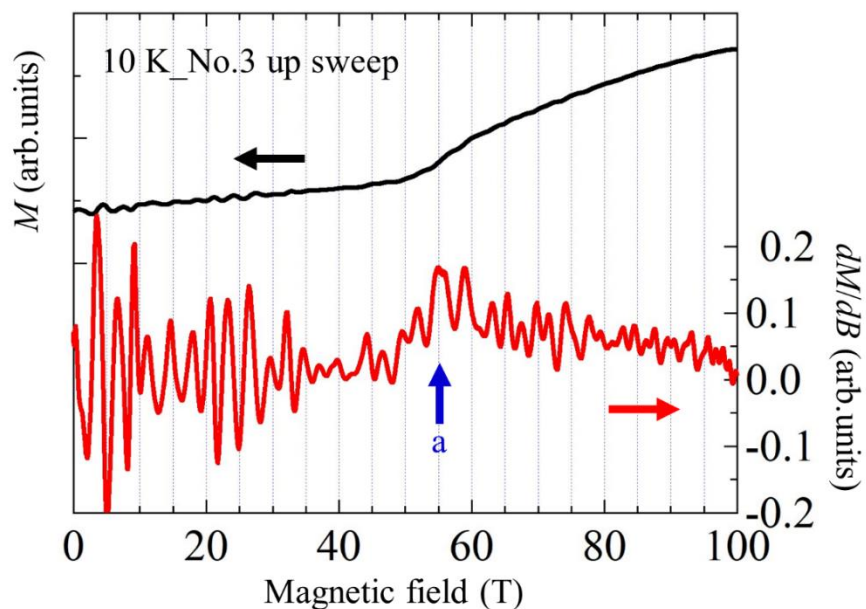


図 5-11 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.3]

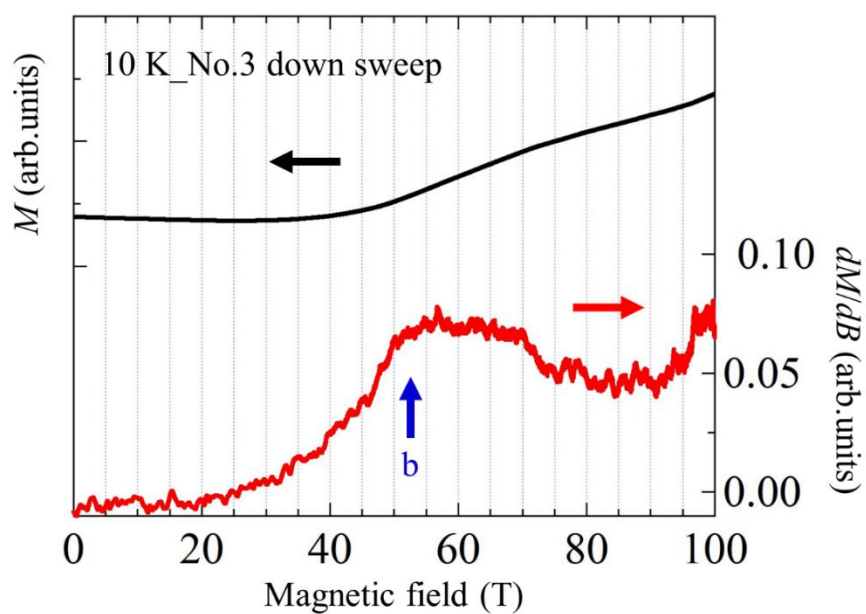


図 5-12 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.3]

・ 15 K における実験結果：測定 No.4、5

[測定 No.4]：温調クライオスタット

図 5-13 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 2.5 V 程度生じており、2 μ s 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は非常に大きくなっているが、2つの測定を比較すると大きく異なっていない。図 5-14 では 4.2 K での測定と同様に矢印 a、b の位置にピークを確認できる。

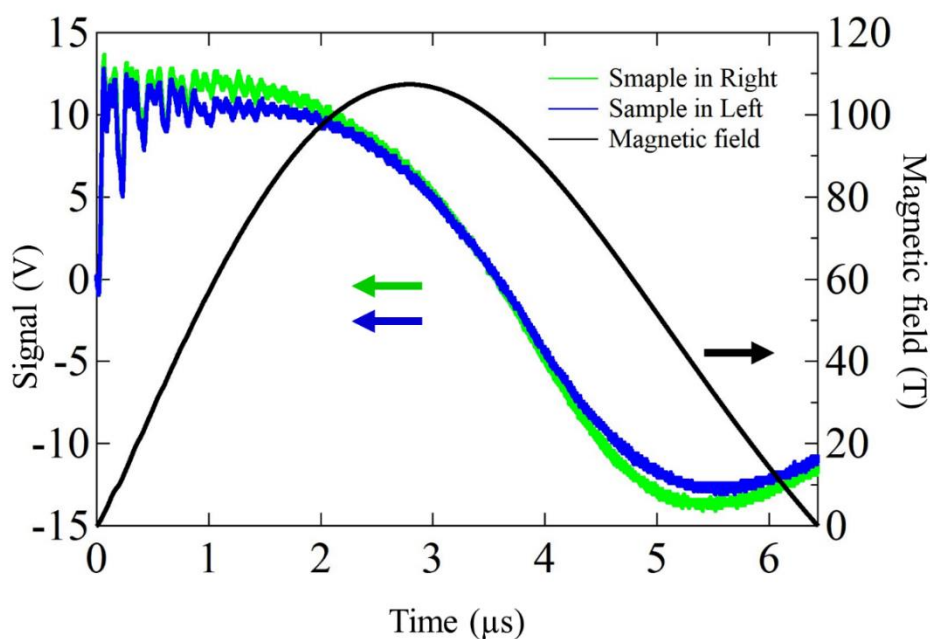


図 5-13 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.4]

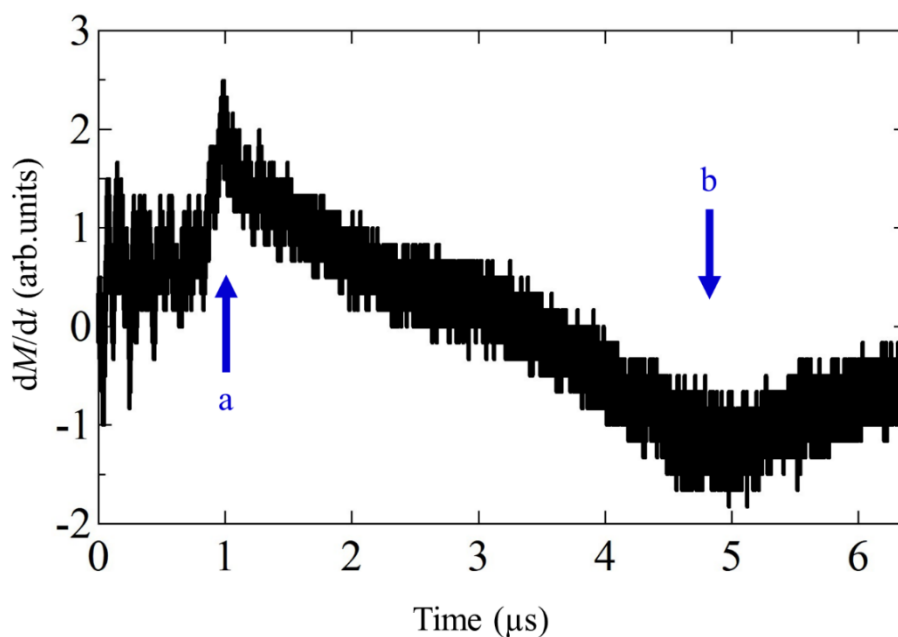


図 5-14 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.4]

図 5-15、図 5-16 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時は 4.2 K における測定と同様に 55T 付近に転移と思われるピーク構造が確認できる。しかし、磁場下降時は領域 b あたりにピークを持つが、不明瞭である。磁化曲線を見ても転移が 4.2 K、10 K での測定と比べると少し不明瞭になっている。

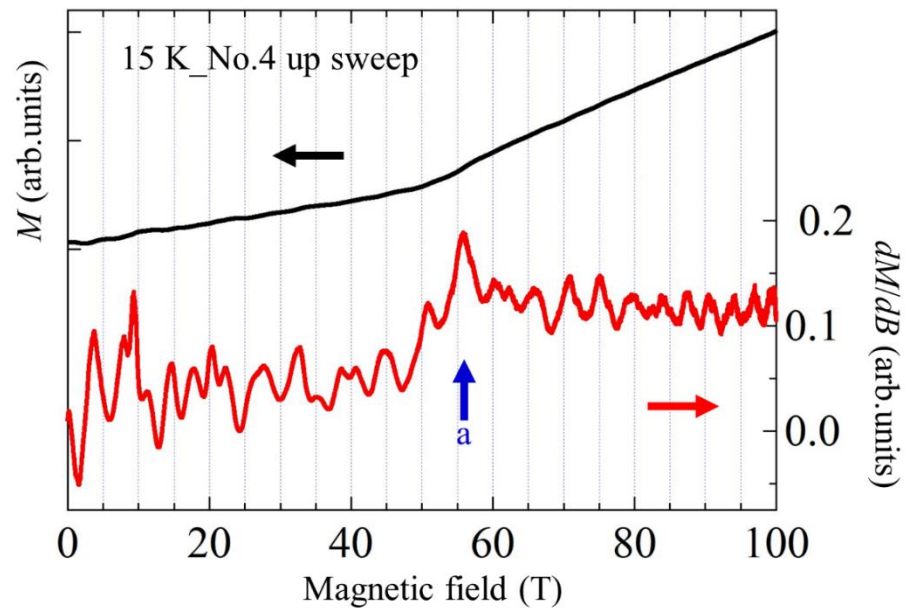


図 5-15 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.4]

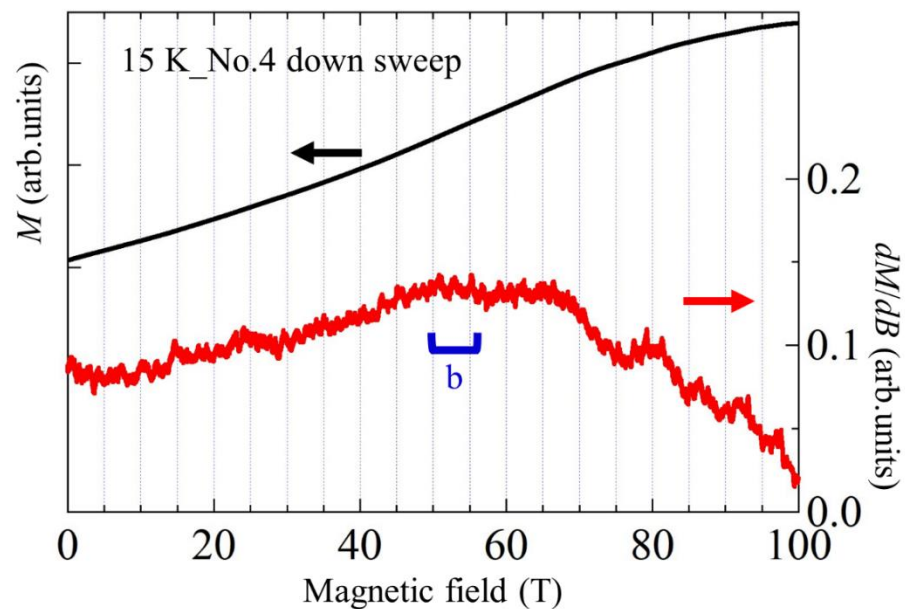


図 5-16 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.4]

[測定 No5]：温調クライオスタット

この測定は、[測定 No.4]のバックグラウンドが非常に大きかったため、再現性を確認するために行った。図 5-17 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 1 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は小さく、2つの測定を比較するとよく一致している。図 5-18 では $4.2\ \text{K}$ での測定と同様に矢印 a、b の位置にピークを確認できる。

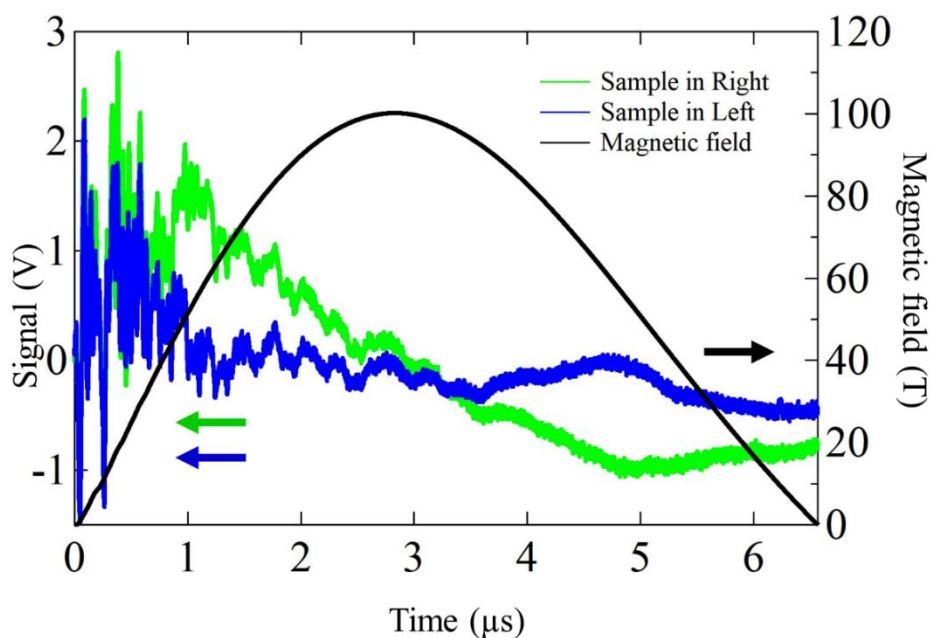


図 5-17 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.5]

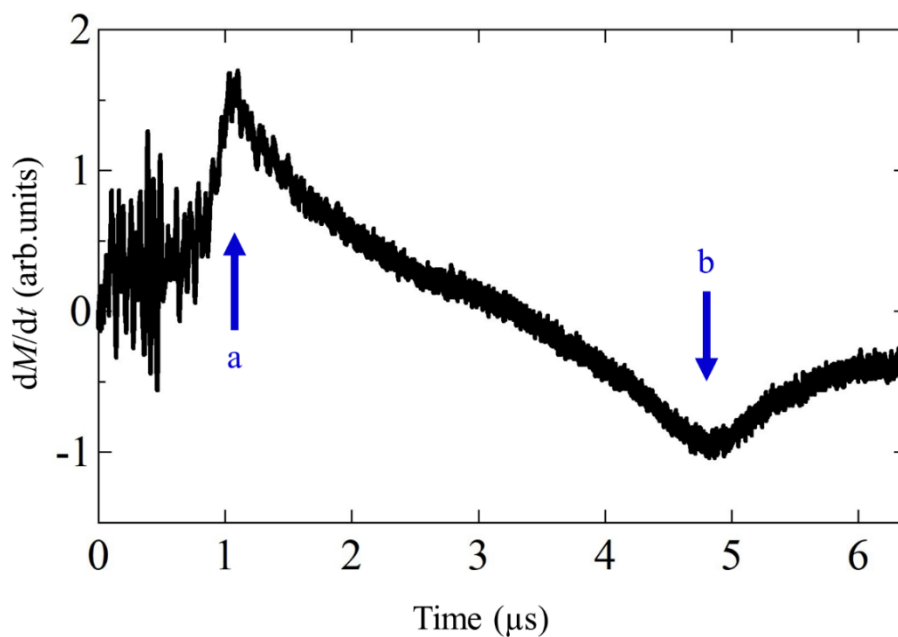


図 5-18 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.5]

図 5-19、図 5-20 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時、下降時ともに 4.2 K における測定と同様に 55T 付近に転移と思われるピーク構造が確認できる。磁化曲線を見ても転移が 4.2 K、10 K での測定と比べると、あまり変化はないように見える。

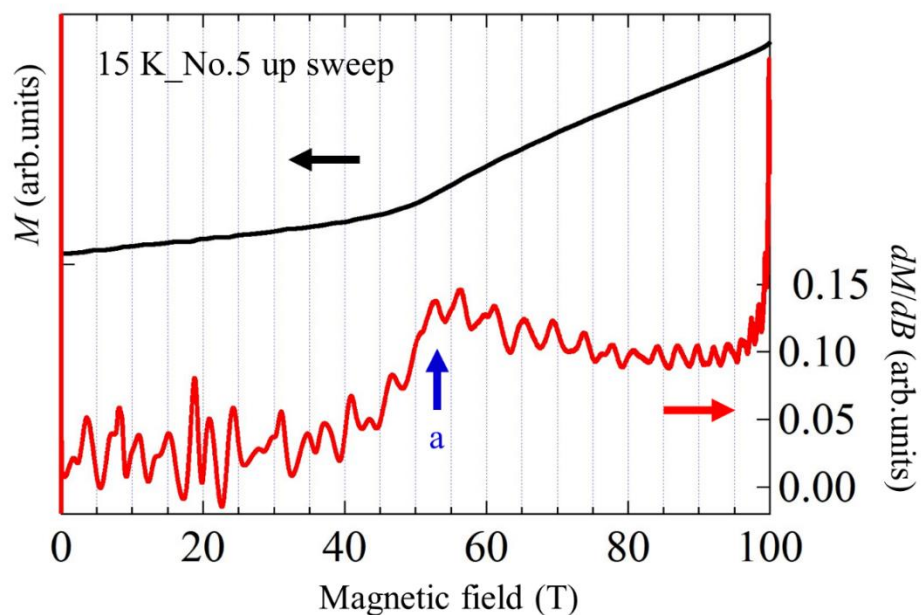


図 5-19 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.5]

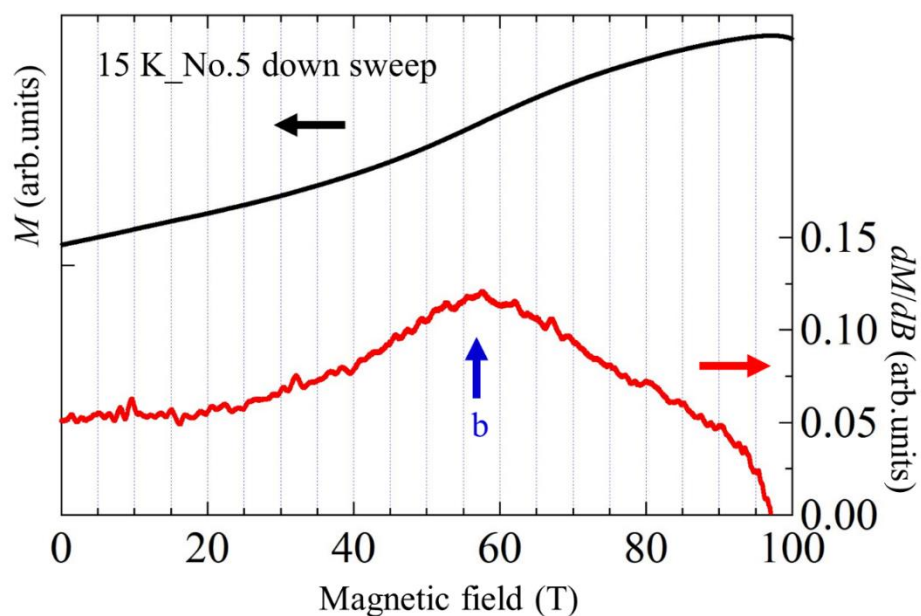


図 5-20 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.5]

・ 16 K における実験結果：測定 No.6

[測定 No.6]：温調クライオスタット

図 5-21 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 2.5 V 程度生じており、2 μ s 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は大きいですが、2 つの測定を比較するとよく一致している。図 5-22 では 4.2 K と比べて不明瞭ではあるが、矢印 a、領域 b の位置にピークを確認できる。

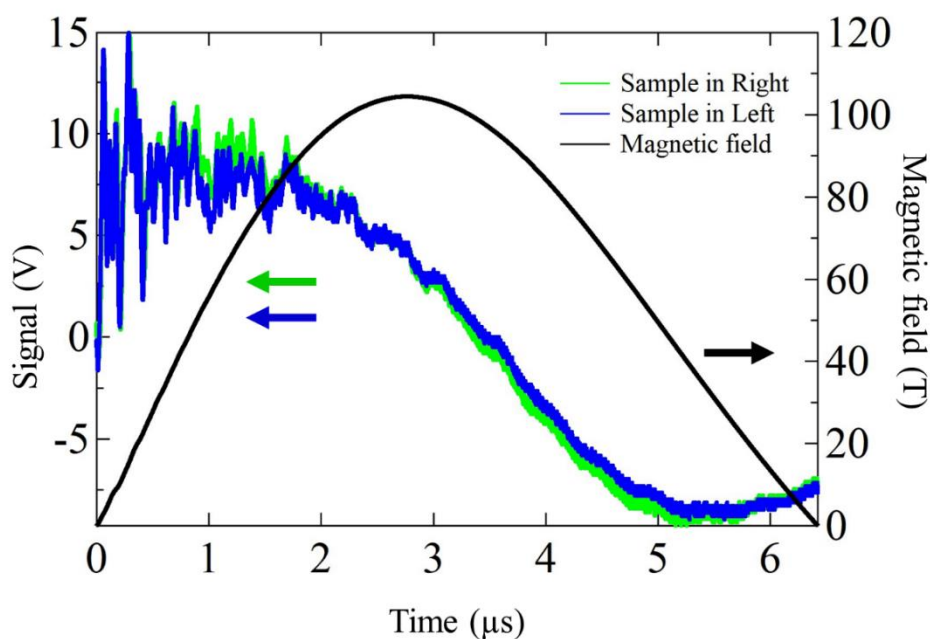


図 5-21 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.6]

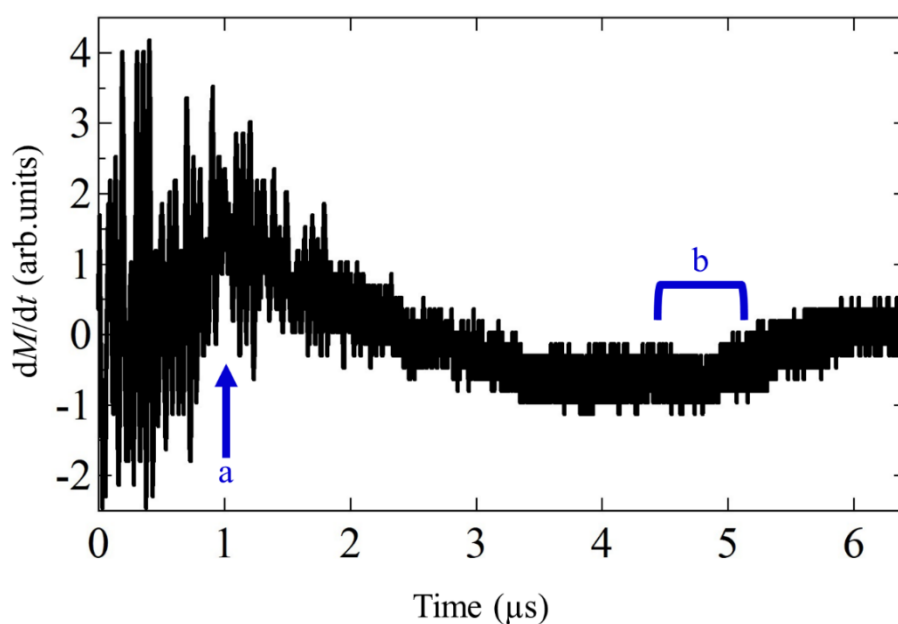


図 5-22 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.6]

図 5-23、図 5-24 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時、下降時ともに 4.2 K における測定と比べて不明瞭ではあるが、領域 a、領域 b の 55T 付近に転移と思われる構造が確認できる。磁化曲線を見ても転移が 4.2 K から 15 K での測定と比べると、変化が緩やかに見える。

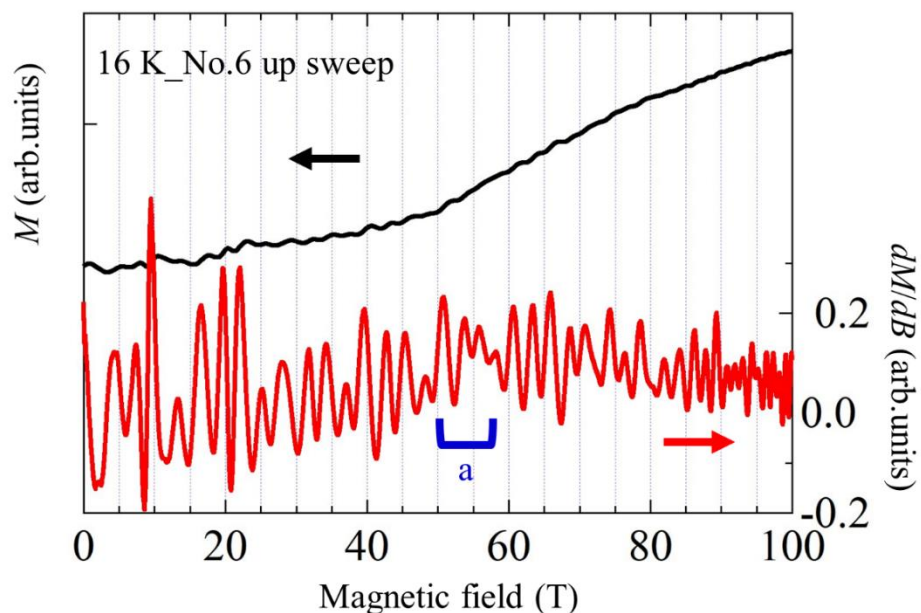


図 5-23 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.6]

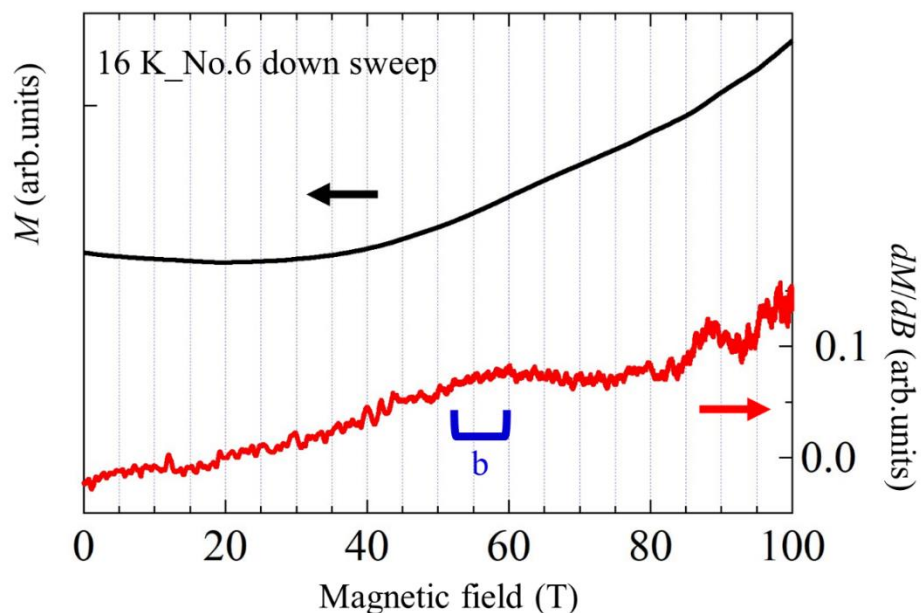


図 5-24 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.6]

・ 20 K における実験結果：測定 No.7、8、9、10

[測定 No.7]：温調クライオスタット

図 5-25 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 2 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は大きいですが、2 つの測定を比較するとよく一致している。図 5-26 では 4.2 K から 15 K と比べて不明瞭ではあるが、矢印 a、b の位置にピークを確認できる。

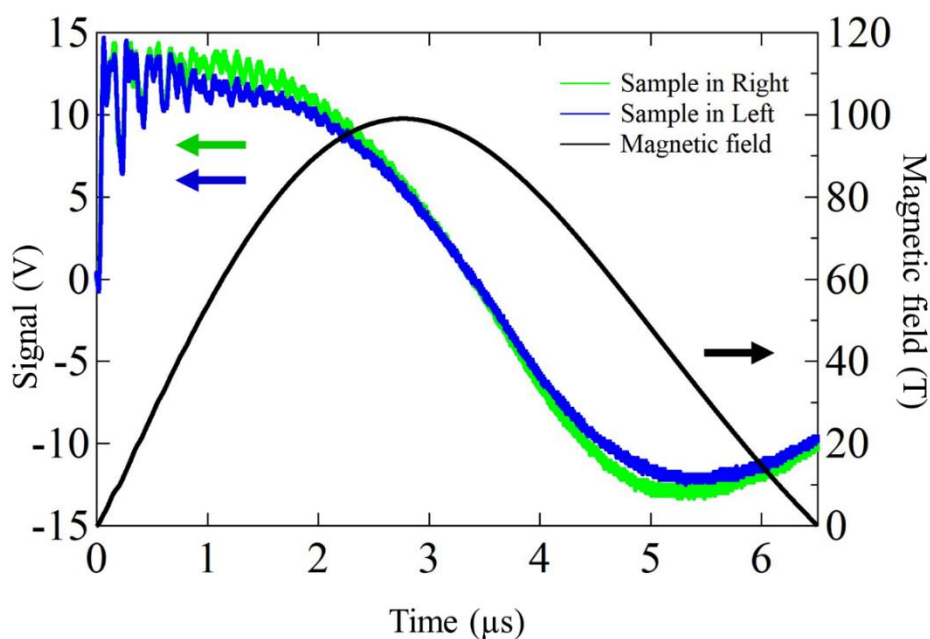


図 5-25 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.7]

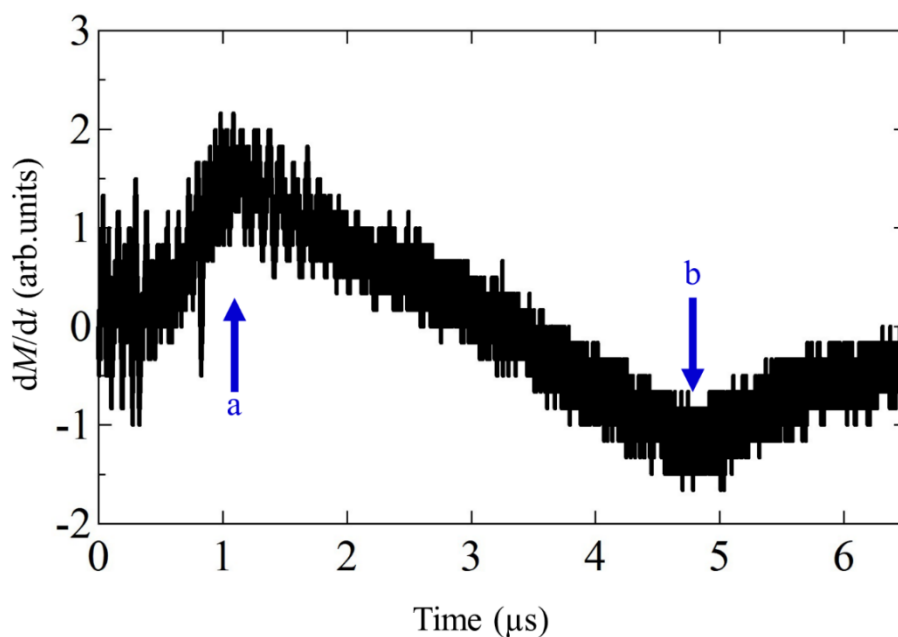


図 5-26 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.7]

図 5-27、図 5-28 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時、下降時ともに 4.2 K における測定と比べて不明瞭ではあるが、領域 a、領域 b の 55T 付近に転移と思われる構造が確認できる。磁化曲線を見ても転移が 4.2 K から 15 K での測定と比べると変化が緩やかに見える。

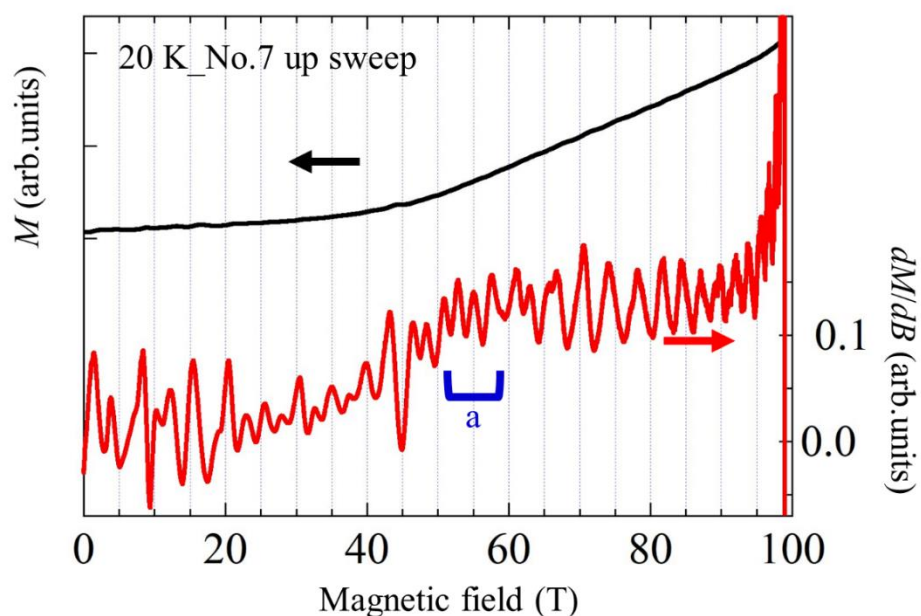


図 5-27 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.7]

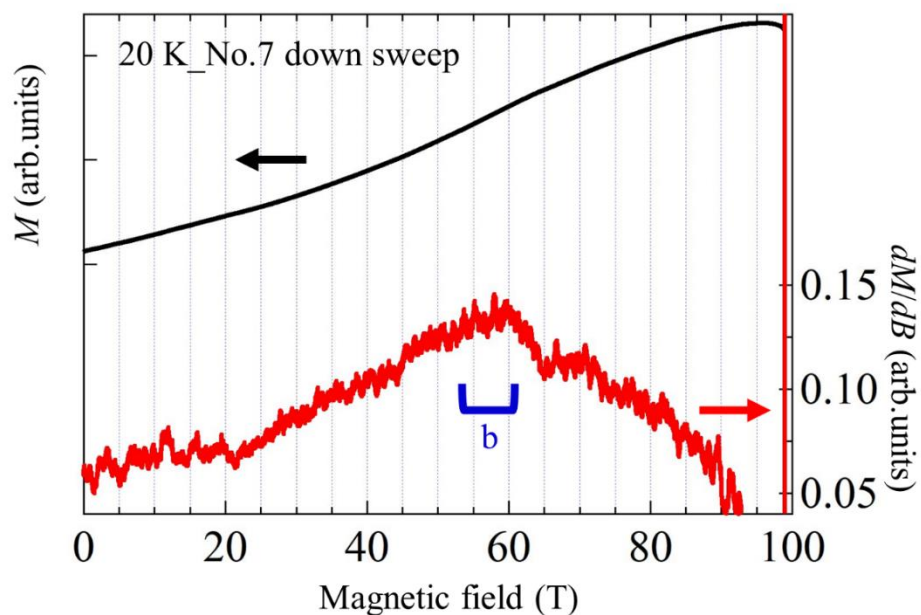


図 5-28 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.7]

[測定 No.8]：温調クライオスタット

図 5-29 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 0.5 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は非常に小さく、2つの測定を比較すると試料の信号が出ると思われる領域で大きく違いが出ている。図 5-30 では 4.2 K から 15 K と比べて不明瞭ではあるが、矢印 a、領域 b の位置にピークを確認できる。

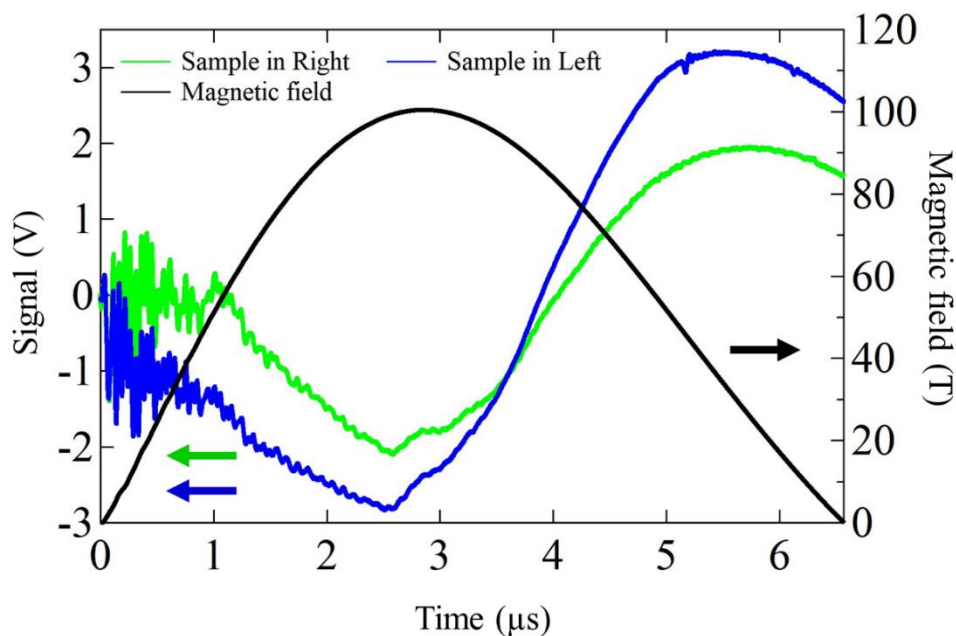


図 5-29 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.8]

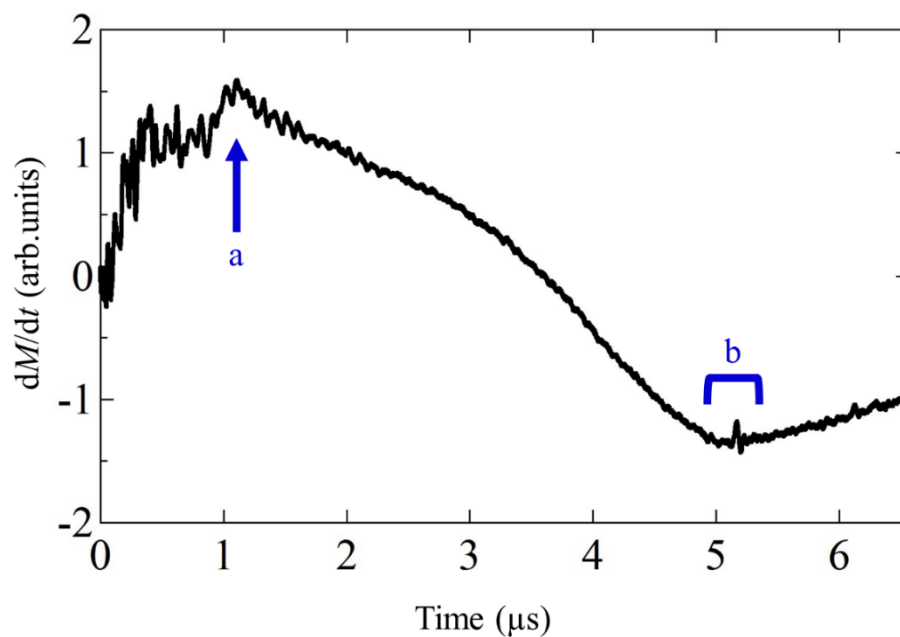


図 5-30 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.8]

図 5-31、図 5-32 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時のみ 4.2 K における測定と比べて不明瞭ではあるが、領域 a、領域 b の 55T 付近に転移と思われる構造が確認できる。磁化曲線を見ても転移が 4.2 K から 15 K での測定と比べると変化が緩やかに見える。

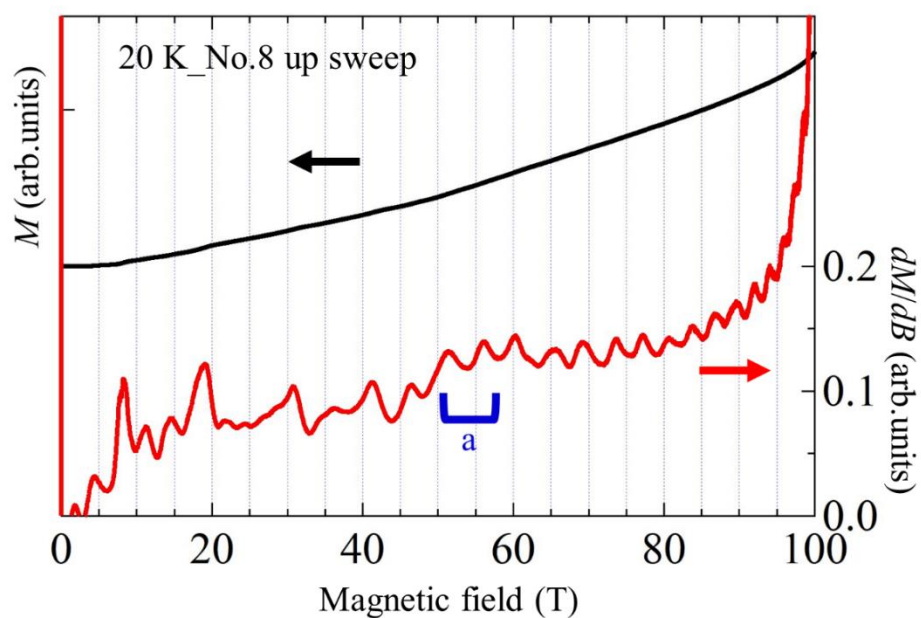


図 5-31 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.8]

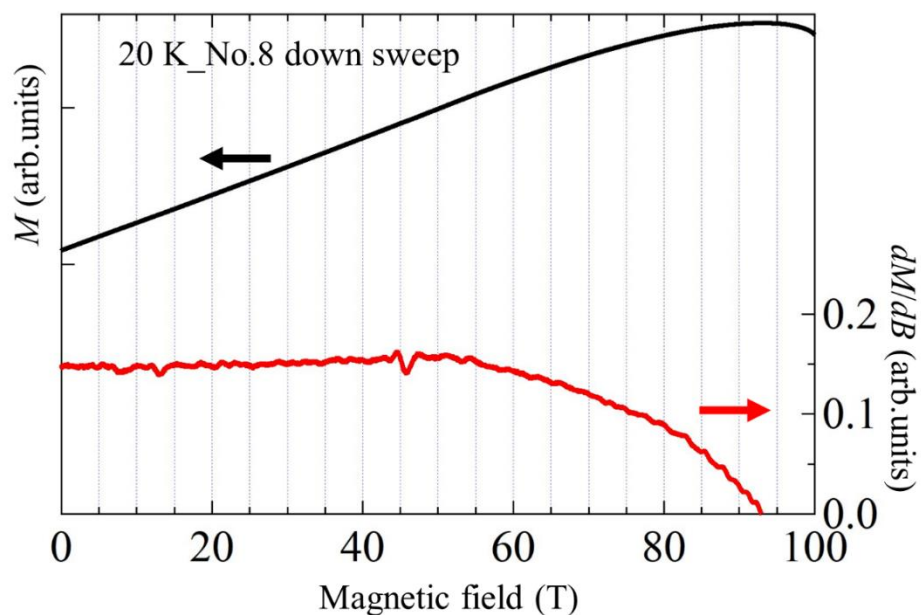


図 5-32 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.8]

[測定 No.9] : 温調クライオスタット

Sample in Left の測定では試料を完璧な位置に置くことができなかったため、試料の信号が他の測定と比べ小さい。図 5-33 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 1 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は小さく、2つの測定を比較すると試料の信号が出ると思われる領域で大きく違いが出ている。図 5-34 では 4.2 K から 15 K と比べて不明瞭ではあるが、矢印 a、領域 b の位置にピークを確認できる。

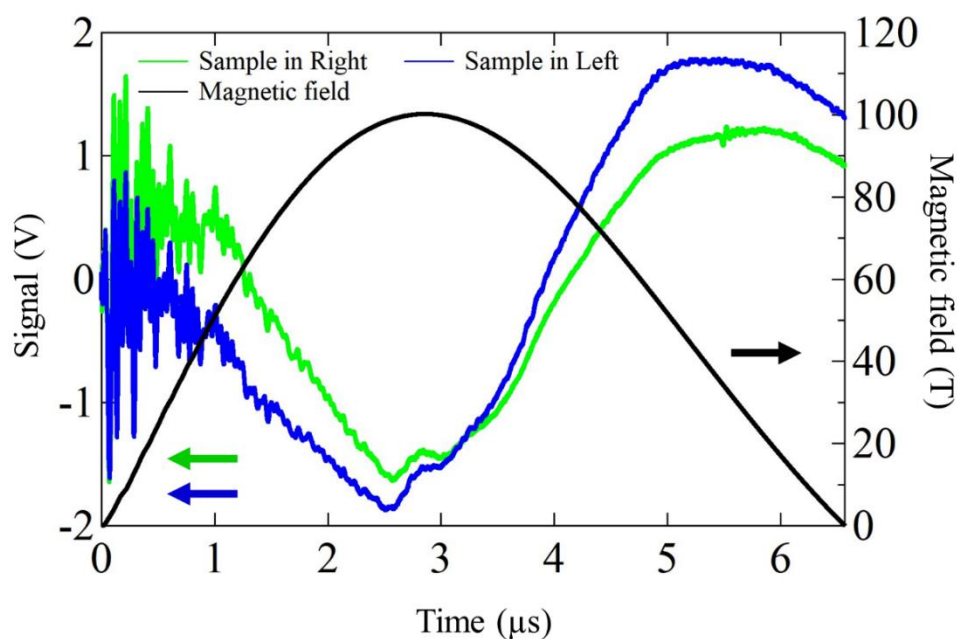


図 5-33 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.9]

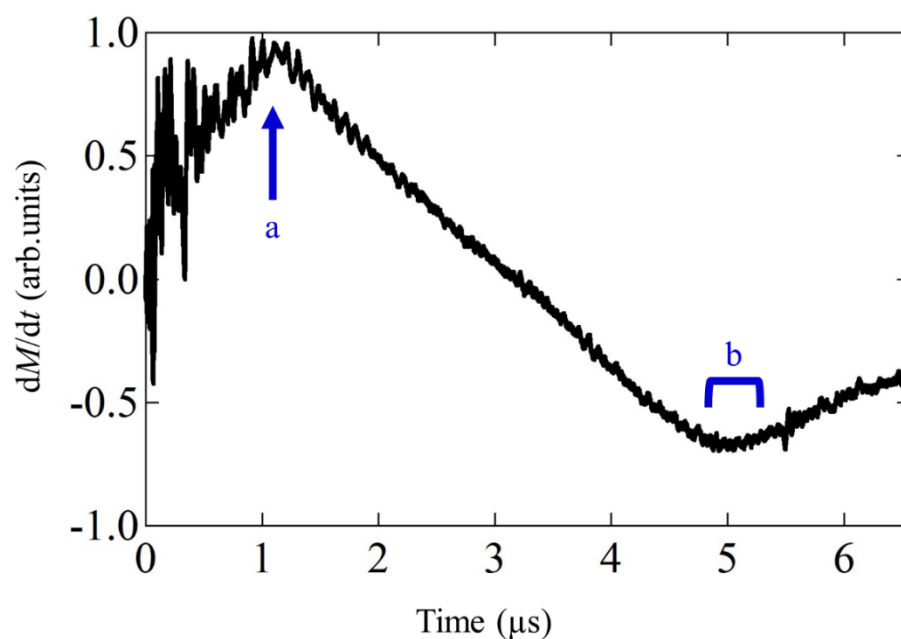


図 5-34 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.9]

図 5-35、図 5-36 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時、下降時ともに 4.2 K における測定と比べて不明瞭ではあるが、領域 a、領域 b の 55T 付近に転移と思われる構造が確認できる。磁化曲線を見ても転移が 4.2 K から 15 K での測定と比べると変化が緩やかに見える。

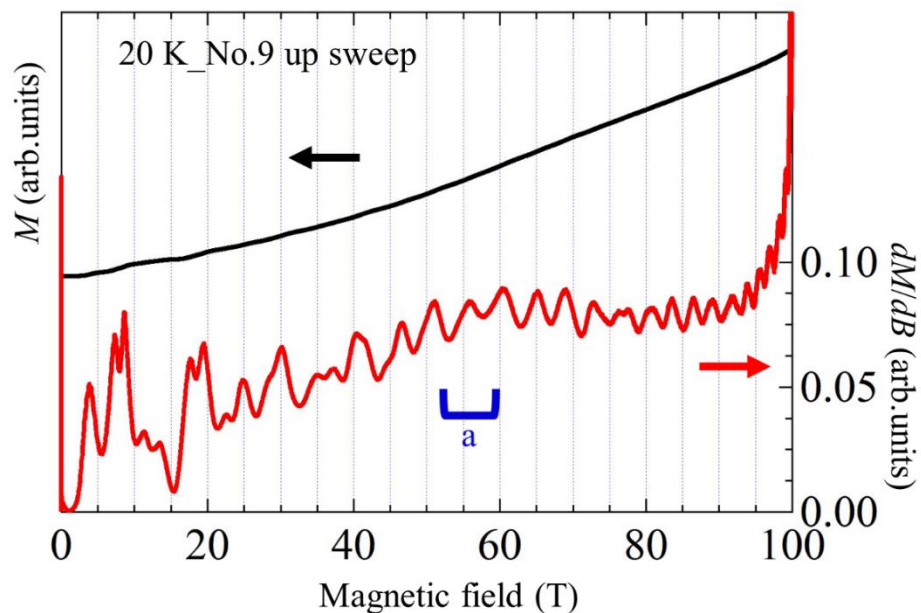


図 5-35 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.9]

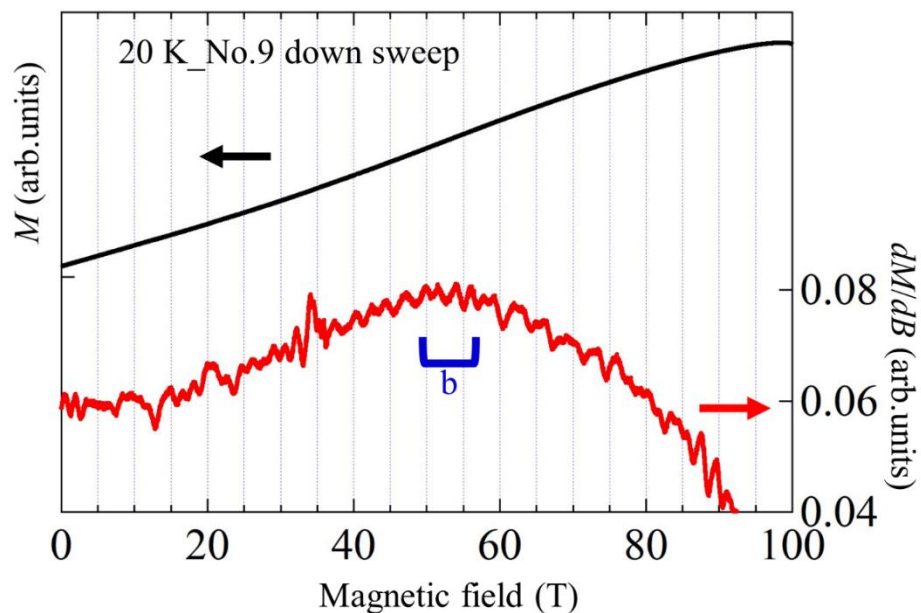


図 5-36 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.9]

[測定 No.10] : 温調クライオスタット

図 5-37 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 1 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は小さく、2つの測定を比較するとよく一致している。図 5-38 では 4.2 K から 15 K と比べて不明瞭ではあるが、矢印 a、領域 b の位置にピークを確認できる。

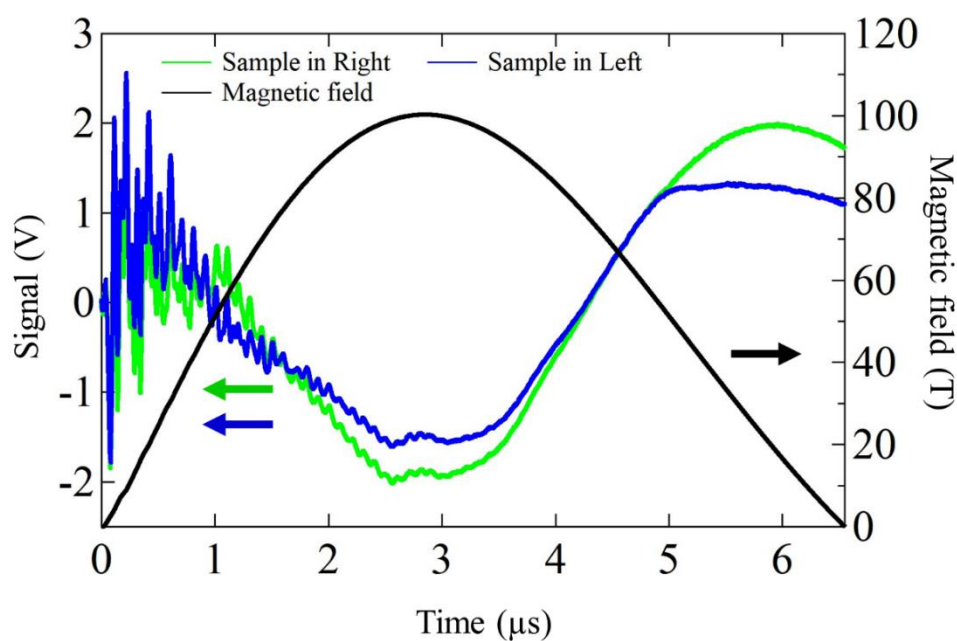


図 5-37 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.10]

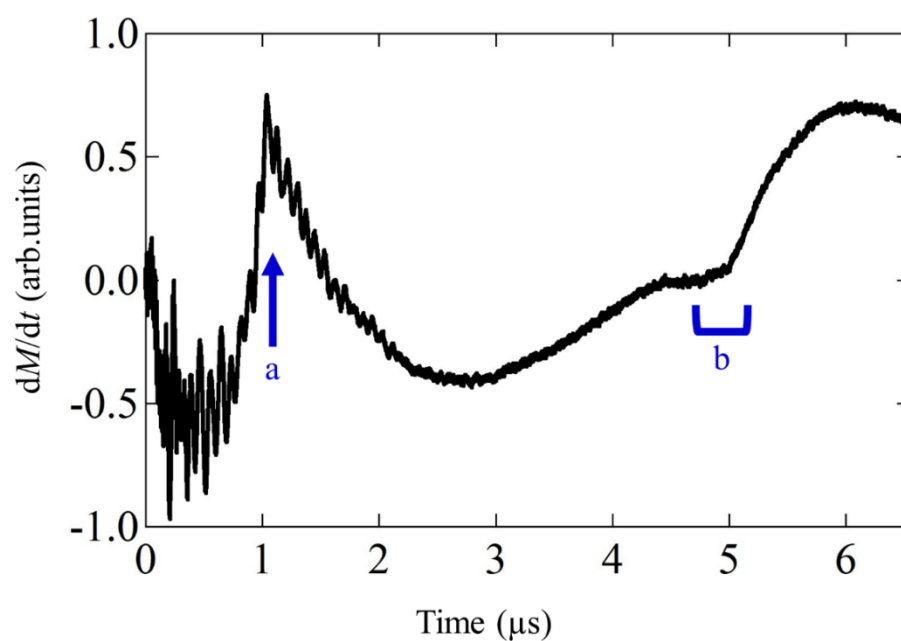


図 5-38 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.10]

図 5-39、図 5-40 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時、下降時ともに 4.2 K における測定と比べて不明瞭ではあるが、矢印 a、b の 55T 付近に転移と思われる構造が確認できる。磁化曲線を見ると、バックグラウンドの信号の再現性が悪いいため、異常な振る舞いになっているが、55 T 付近の転移は比較的明瞭に見える。

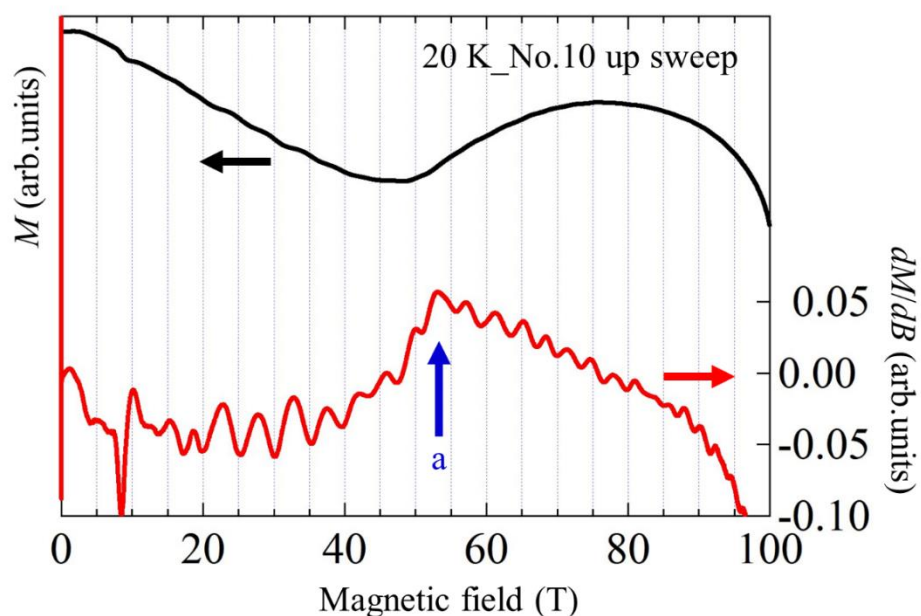


図 5-39 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.10]

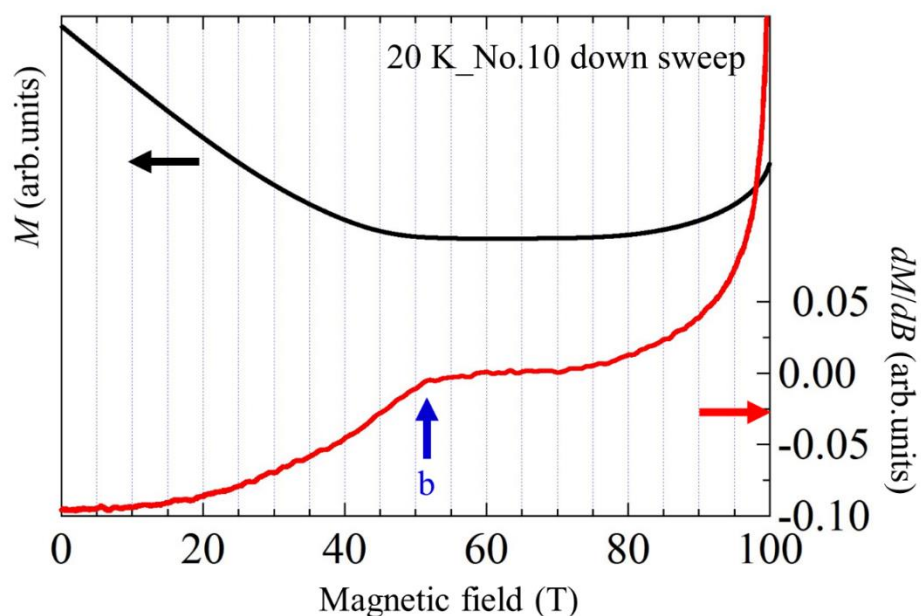


図 5-40 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.10]

・ 22.5 K における実験結果：測定 No.11

[測定 No.11]：温調クライオスタット

図 5-41 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 1 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は小さく、2つの測定を比較するとよく一致している。図 5-42 では 4.2 K から 15 K と比べて不明瞭ではあるが、矢印 a、領域 b の位置にピークを確認できる。

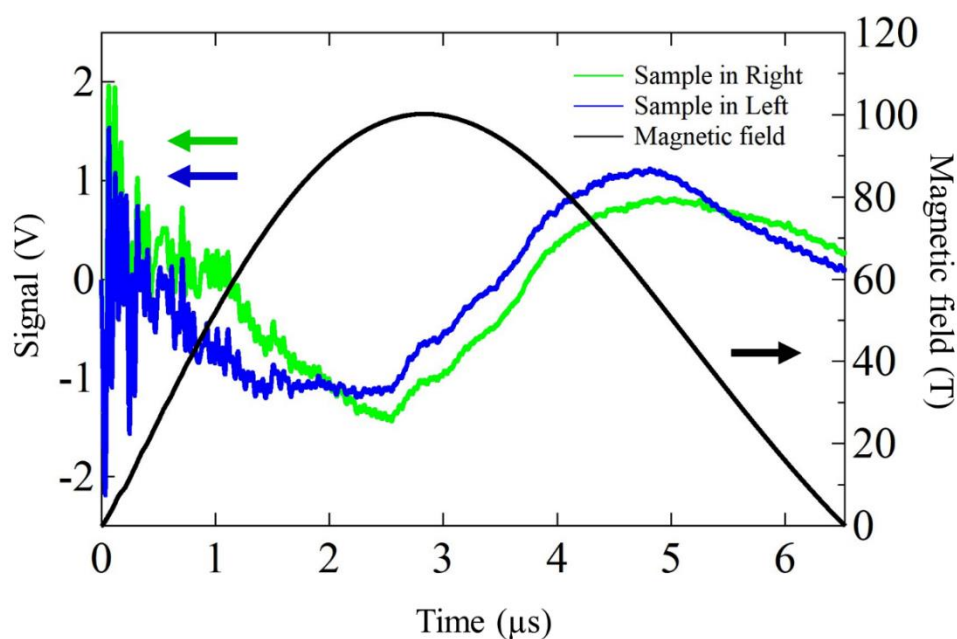


図 5-41 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.11]

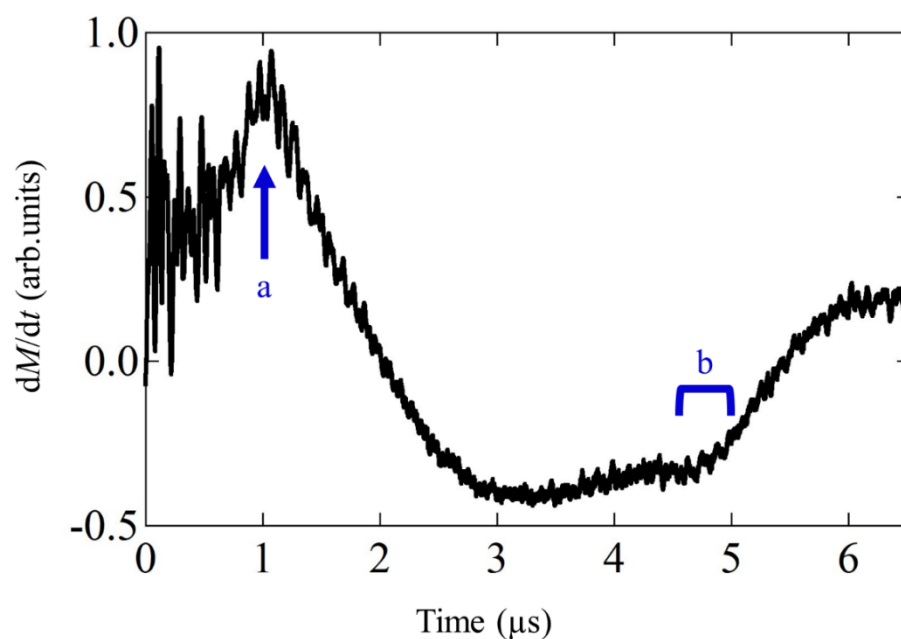


図 5-42 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.11]

図 5-43、図 5-44 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時、下降時ともに 4.2 K における測定と比べて不明瞭ではあり、矢印 a、b の 55T 付近に見える転移と思われる構造から転移磁場を決定するのは難しい。磁化曲線を見ると、転移を示す構造はかなり不明瞭になり、ほぼ直線である。

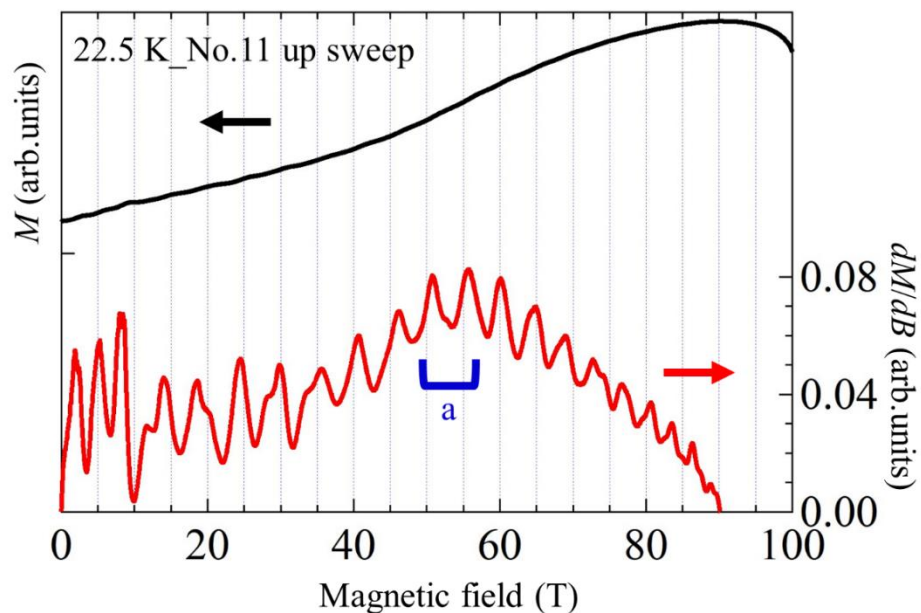


図 5-43 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.11]

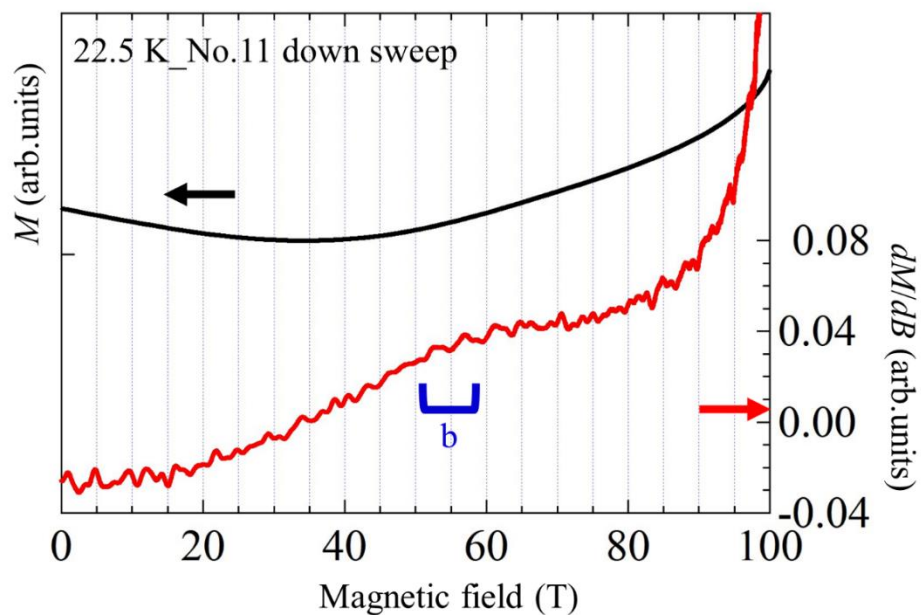


図 5-44 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.11]

・ 25 K における実験結果：測定 No.12

[測定 No.12]：温調クライオスタット

図 5-45 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 1 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は小さく、2つの測定を比較するとよく一致している。図 5-46 では 4.2 K から 15 K と比べて不明瞭ではあるが、矢印 a、領域 b の位置にピークを確認できる。

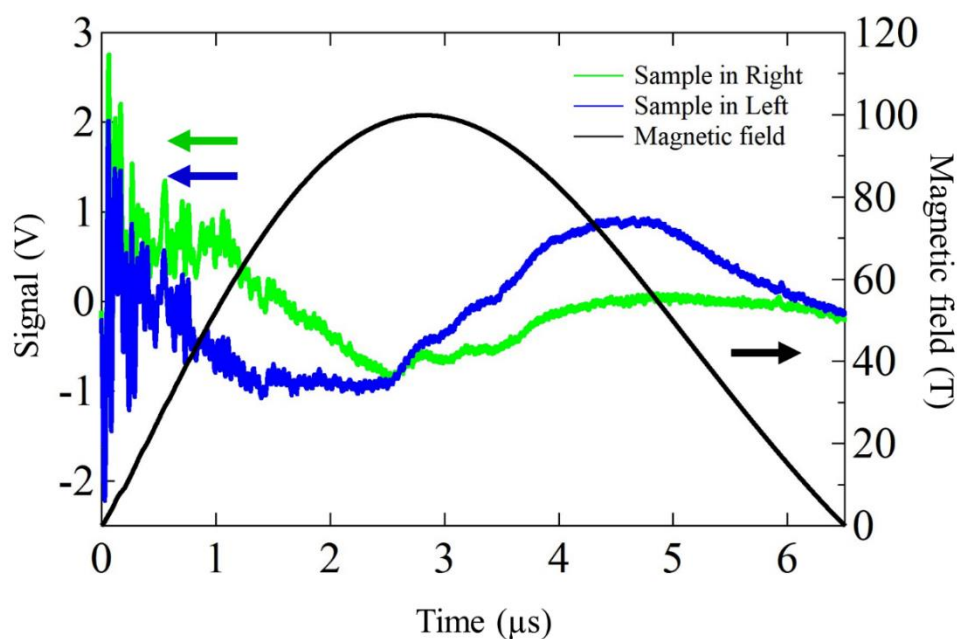


図 5-45 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.12]

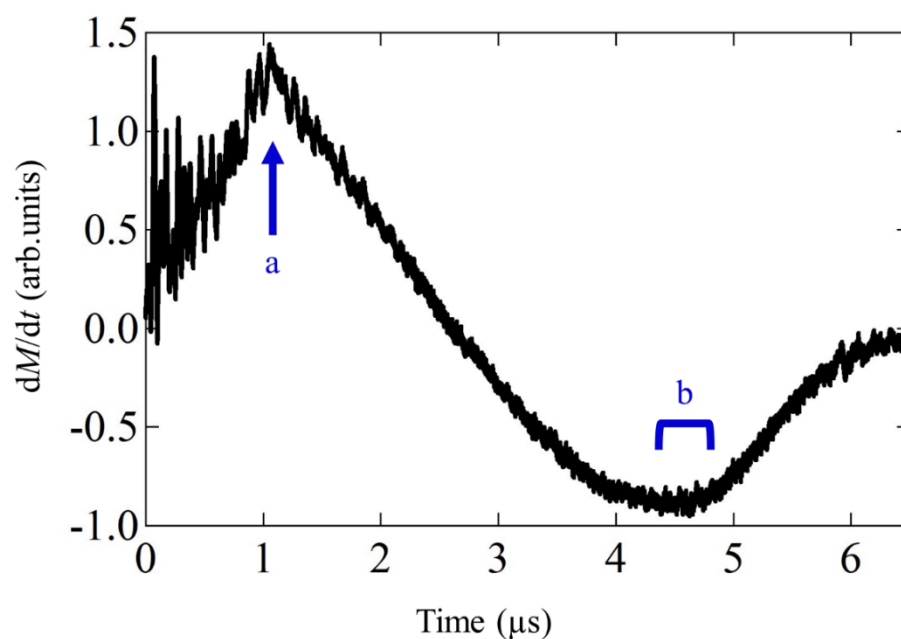


図 5-46 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.12]

図 5-47、図 5-48 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時、下降時ともに 4.2 K における測定と比べて不明瞭ではあり、領域 a、b の 55T 付近に転移と思われる構造から転移磁場を決定するのは難しい。磁化曲線を見ると、転移を示す構造はかなり不明瞭になり、ほぼ直線である。

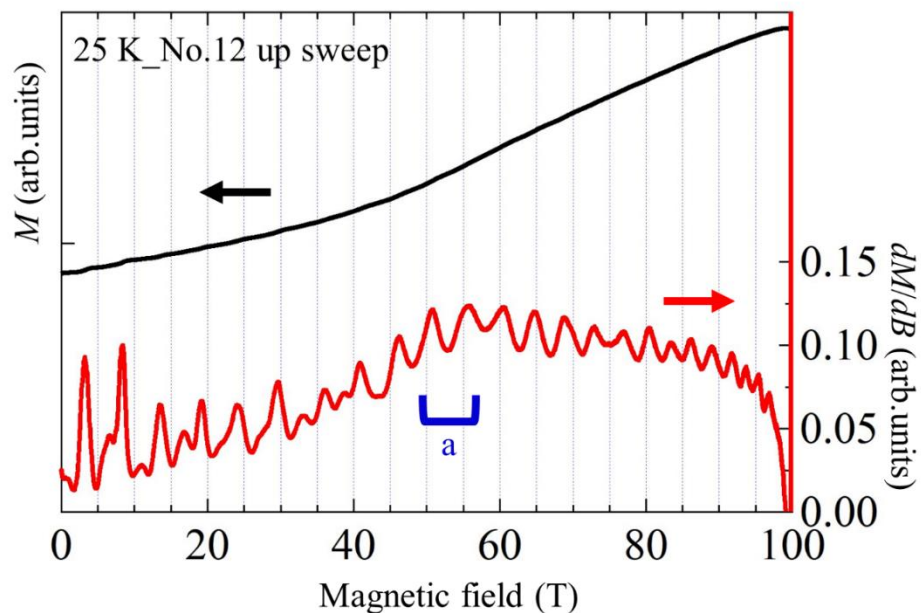


図 5-47 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.12]

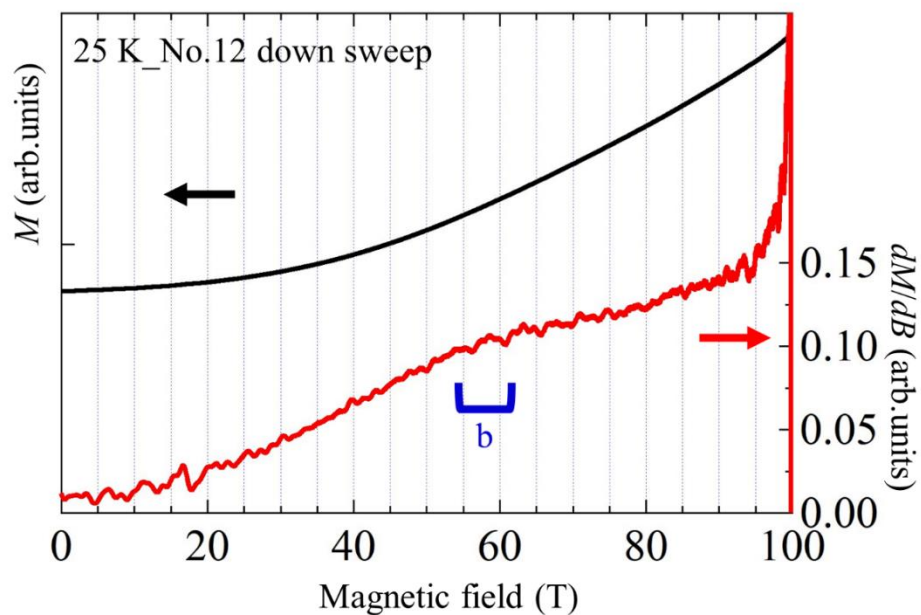


図 5-48 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.12]

・ 30 K における実験結果：測定 No.13

[測定 No.13]：温調クライオスタット

図 5-49 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 1 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。長周期信号の成分は大きいですが、2 つの測定を比較するとよく一致している。図 5-50 では 4.2 K から 15 K と比べて不明瞭で磁場上昇時のみ、矢印 a の位置にピークを確認できる。

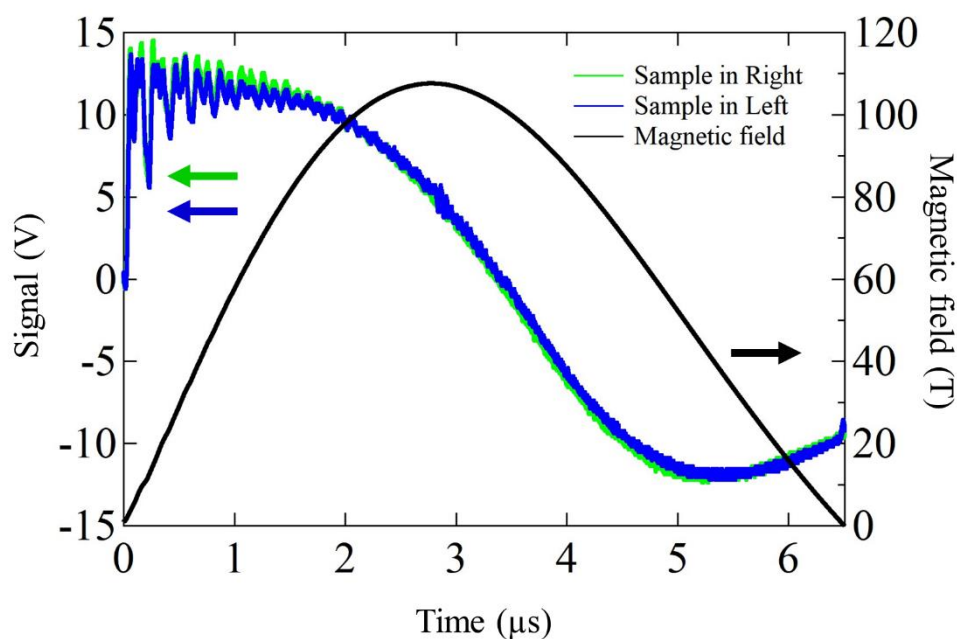


図 5-49 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.13]

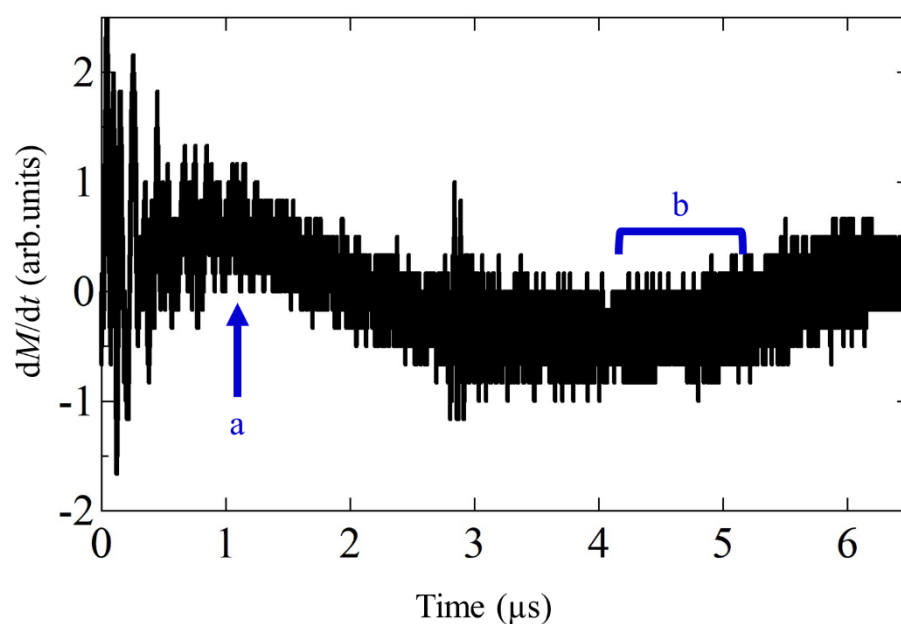


図 5-50 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.13]

図 5-51、図 5-52 の dM/dB 曲線において、磁場上昇時、下降時ともに 4.2 K における測定と比べて不明瞭であり、領域 a、b にあると思われる転移を示す構造から転移磁場を決定するのは難しい。磁化曲線を見ると、転移を示す構造はかなり不明瞭になっている。

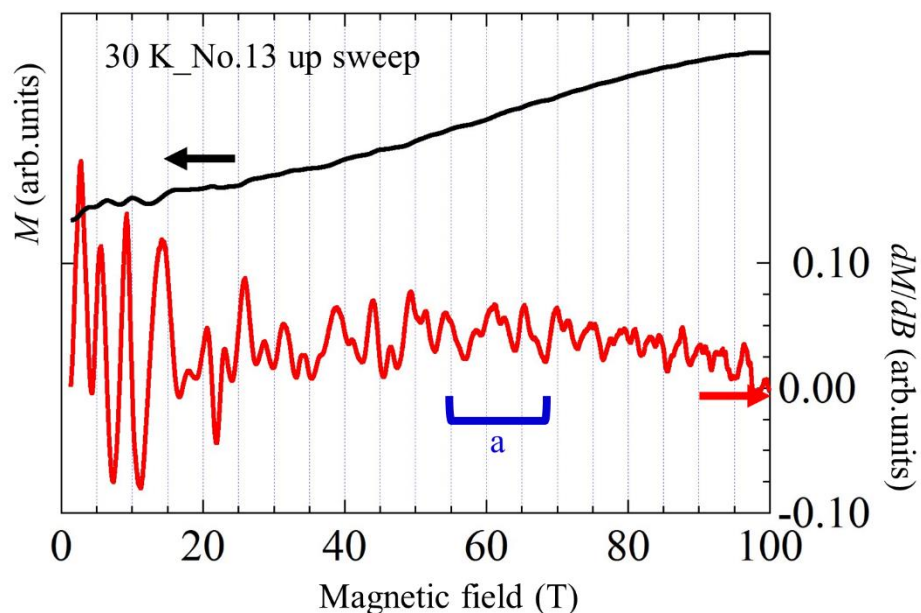


図 5-51 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.13]

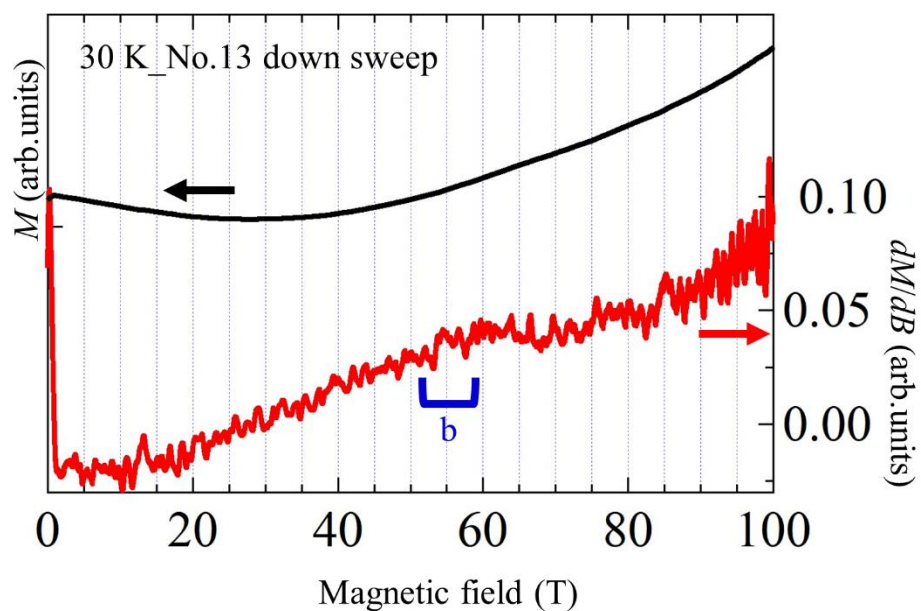


図 5-52 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.13]

5-1-2 磁化過程の温度依存性の結果

図 5-53 は今までに示した磁場上昇時の各温度で測定した磁化曲線の絶対値を校正したグラフである。それぞれの測定において dM/dB 曲線の磁場上昇時、下降時を比較し、バックグラウンド信号の再現性が良いもののみを採用している。磁場下降時は、一卷きコイルの破壊が進み、磁化曲線の校正に必要な低磁場での再現性が悪いため、磁化曲線の校正がうまくできなかった。図 5-53 を見ると、4 K では 55 T 程度において磁化が急激に上昇するメタ磁性転移を明瞭に確認できる。10 K でもほぼ同様な変化を示している。15 K では転移磁場付近での磁化の上昇が緩やかになっている。16 K においてもその傾向は続く。しかし 25 K、30 K では磁化曲線がほぼ直線のような形になり、メタ磁性転移を確認することは難しい。

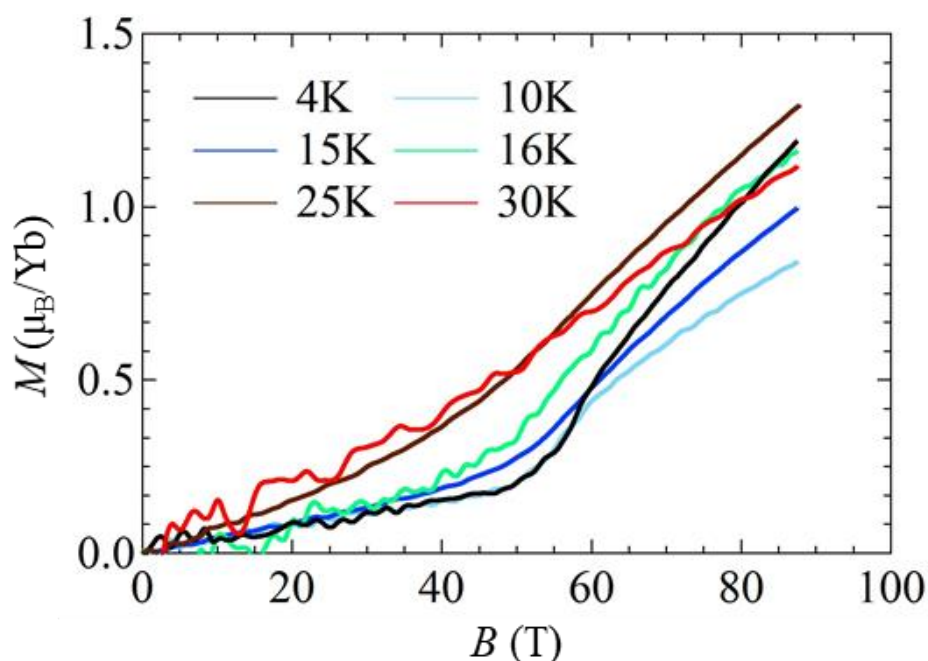


図 5-53 [磁場上昇時]YbB₁₂ の各温度における磁化曲線

図 5-54、図 5-55 に測定した磁場上昇時、下降時の dM/dB 曲線をまとめたものを示す。グラフの下から上に向かって、測定 No.1 から No.13 を示した。

図 5-54 の磁場上昇時の dM/dB 曲線の温度依存性を見てみると、4.2 K から 15 K までは 55 T 程度にメタ磁性転移を示すピーク構造が明瞭に観測された。温度を上昇させた 16 K 以上での測定ではピーク構造は不明瞭になっているが、 dM/dB の急な上昇は確認できる。

図 5-55 の磁場下降時の dM/dB 曲線の温度依存性を見てみると、磁場上昇時の振舞いと比べ、丸みを帯びたピーク構造ではあるが、4.2 K から 15 K では明瞭なピーク構造を確認できる。20 K では、測定 No.7、No.10 において明瞭なピーク構造が確認できる。30 K では拡大してみると転移磁場を決定することができた。22.5 K、25 K においては、転移磁場を決定することは難しいと判断したが、磁場上昇時には転移磁場を決定できたことから測定 No.11、No.12 においては磁場下降時のバックグラウンド信号の再現性が悪いためであると考えられる。

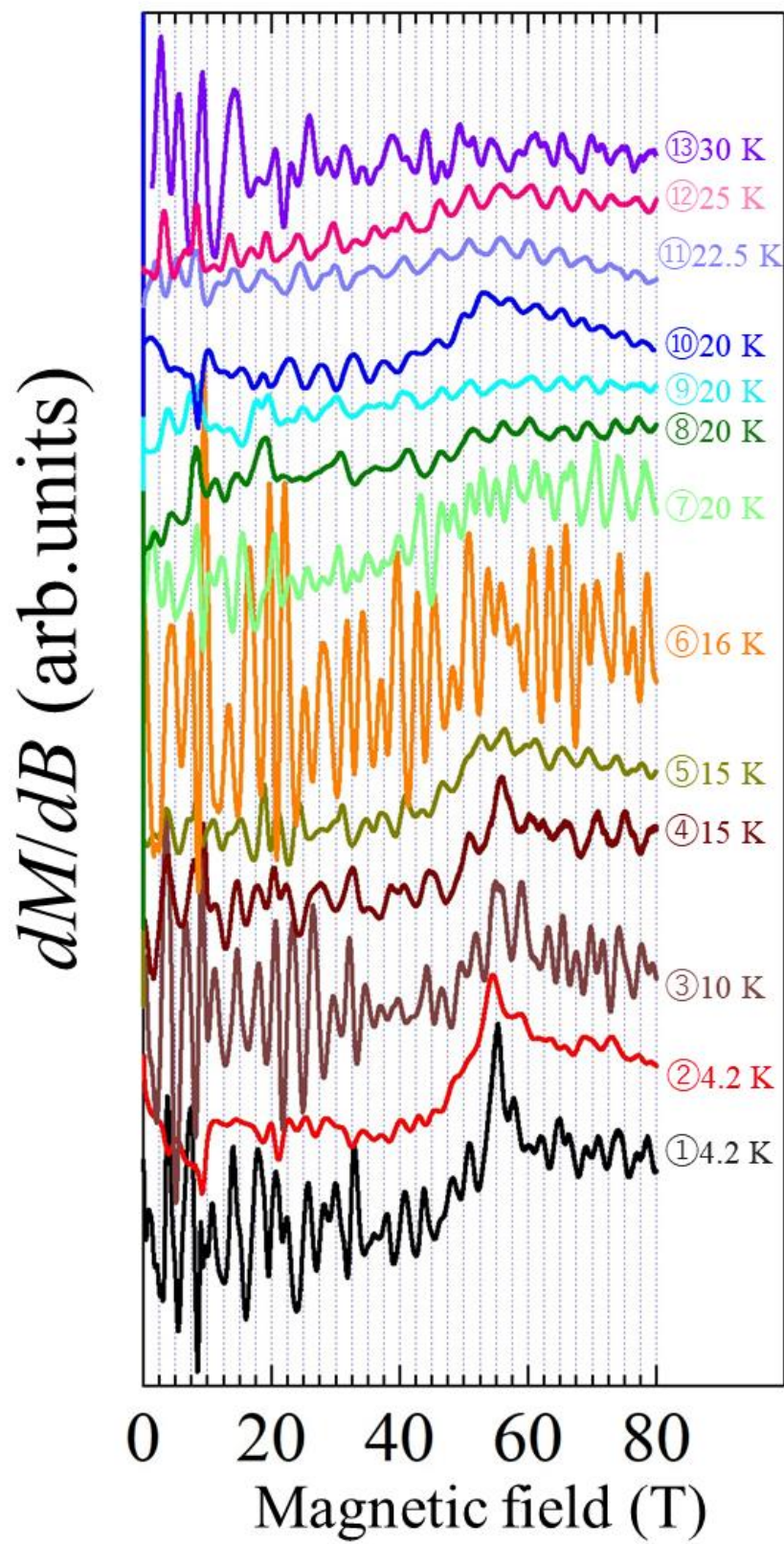


図 5-54 [磁場上昇時] dM/dB 曲線の温度依存性（縦軸に offset を入れている。）

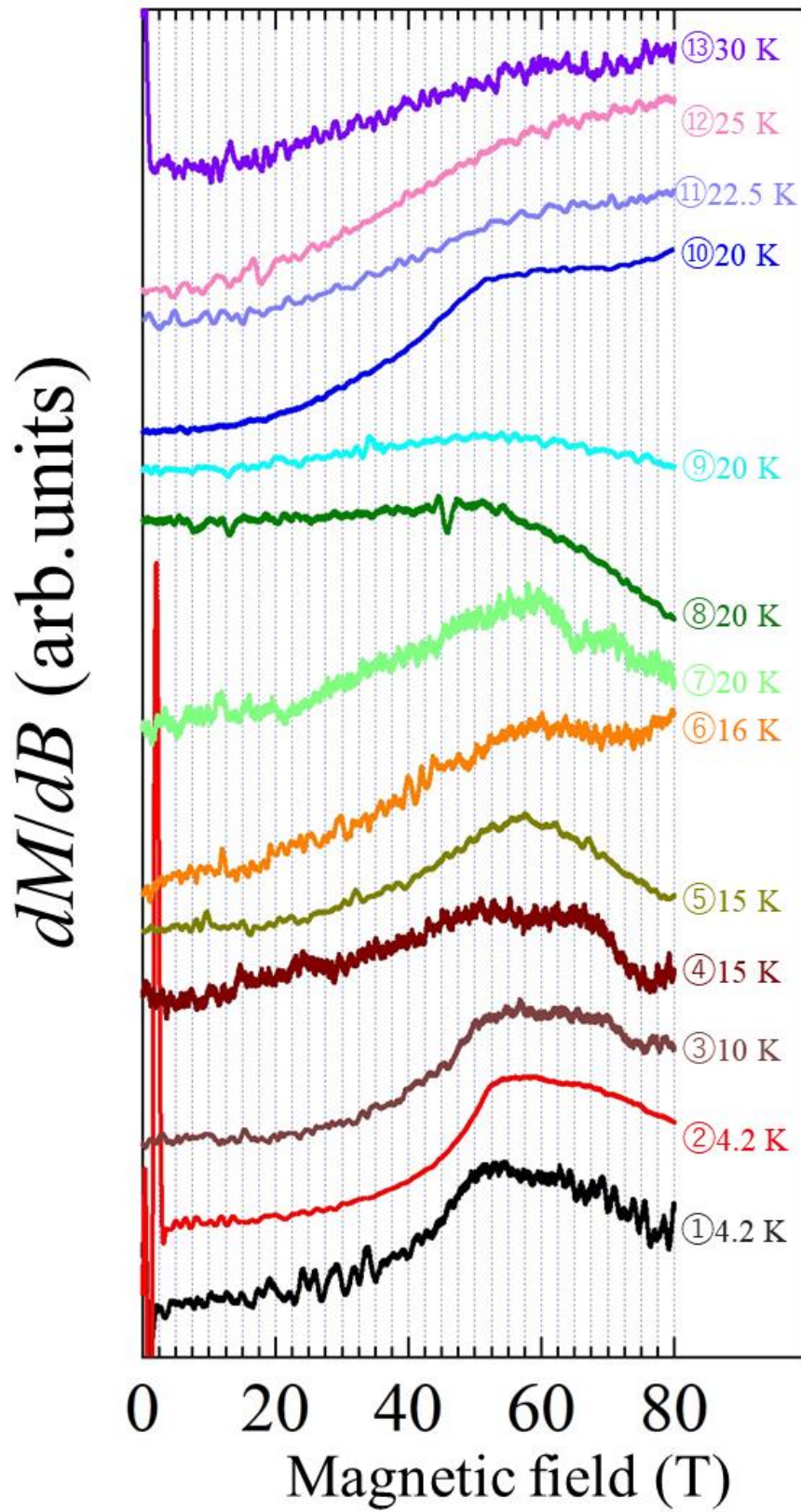


図 5-55 [磁場下降時] dM/dB 曲線の温度依存性 (縦軸に offset を入れている。)

5-1-3 転移磁場の温度依存性についての考察

5-1-1 で示したそれぞれの温度における dM/dB 曲線に対して、接線法を用いて転移磁場を決定した。4.2 K[測定 No.1]の場合を例に説明する。図 5-56 のように転移前後のほぼ直線の部分にそれぞれの漸近線(図 5-56 : 赤線)を引き、それらの交点における磁場の大きさを転移磁場の大きさとした。

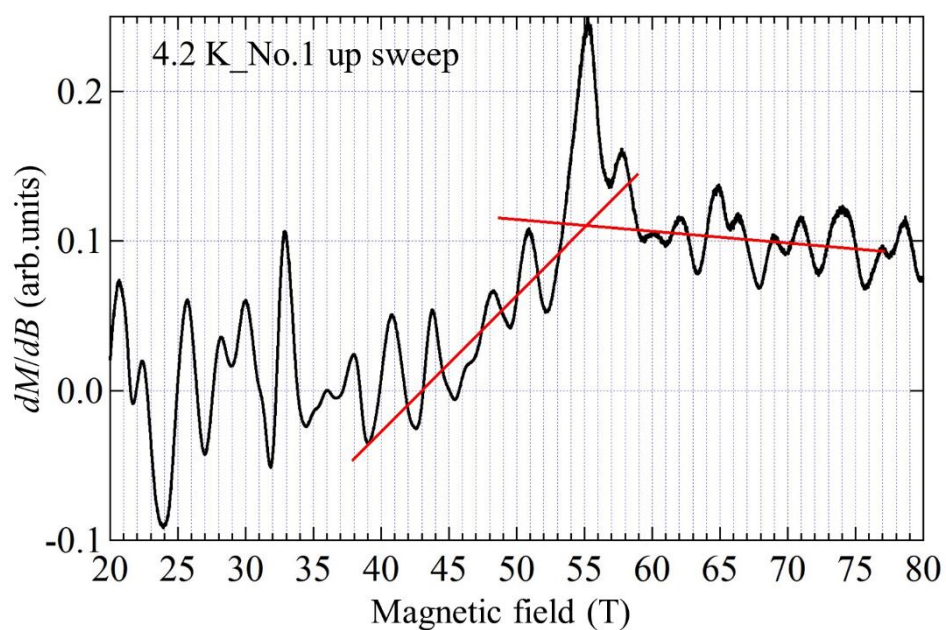


図 5-56 転移磁場の決定方法

この方法を用いて決定した磁場上昇時、下降時の転移磁場の温度依存性を図 5-57、図 5-58 に示す。磁場上昇時には 30 K において、転移磁場を決定することができなかった。また、磁場下降時の 22.5 K、25 K においても転移磁場を決定することができなかった。これは、バックグラウンド信号の再現性が悪くいためであると考えられる。結果、磁場上昇時、下降時ともに転移磁場は 4.2 K から 30 K まで温度に依存せず、55 T 付近で一定であることがわかる。つまり、YbB12 の磁場誘起絶縁体金属転移に必要な磁場の大きさは 4.2 K から 30 K において温度に依存しないことがわかった。転移磁場の大きさからエネルギーギャップの大きさを見積もることができる [19] ため、エネルギーギャップの大きさも温度に依存しないということになる。

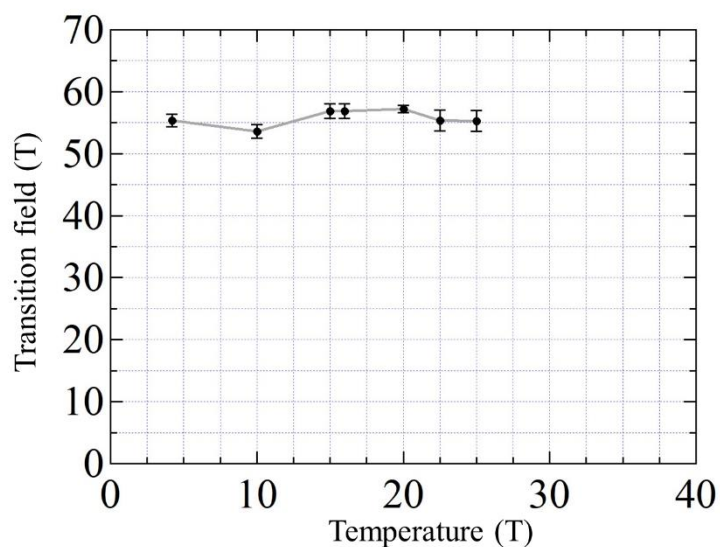


図 5-57 磁場上昇時の転移磁場の温度依存性

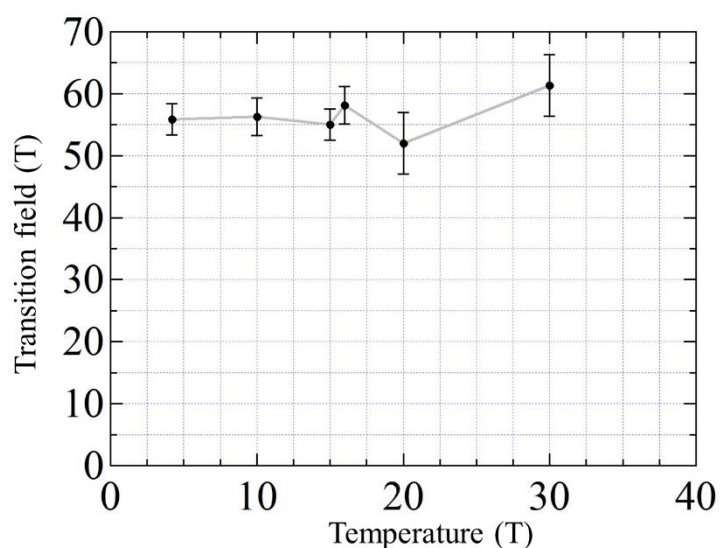


図 5-58 磁場下降時の転移磁場の温度依存性

強相関電子系の絶縁体金属転移において、しばしば転移に相当するギャップの温度依存性が BCS ギャップ関数に従う場合がある [23]。近似的な式は(5-1 式)で与えられる。 [24]

$$\Delta(T) = \Delta_0 \tanh(1.74 \sqrt{\frac{T_c}{T}} - 1) \cdot \cdot \cdot \cdot (5-1)$$

近藤絶縁体におけるエネルギーギャップについて、同様となるかについてはこれまでに議論がないが、試みに、混成ギャップが開き始めるとされる 110 K [15]を絶縁体に変化し始める特徴的な温度 T_c において、今回の磁化過程から得られた転移磁場の温度依存性を BCS 的だと仮定して議論したいと思う。転移磁場の大きさ 55 T はエネルギーギャップの大きさ $2\Delta = 15$ meV (= 174 K)に換算する。図 5-59 は、下記の BCS 関数を近似的に表す式(5-1 式)に、実験結果を重ねて示したものである。ただし、横軸は温度 T の関数として、縦軸は 2Δ として表示した。

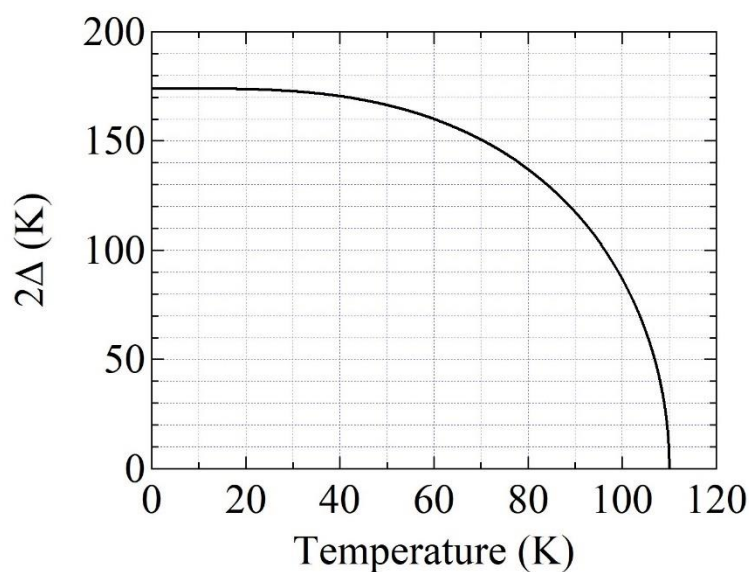


図 5-59 式(5-1)を用いて計算から求めたエネルギーギャップ 2Δ の温度依存性

これによると、30 K までにエネルギーギャップの温度依存性がほとんどないことは、BCS 的振る舞いと矛盾しない。問題は、30 K より高温で相転移がぼやけて観測できなくなることである。この原因のひとつとして、 YbB_{12} でしばしば議論される in-gap 状態が考えられる。これは、174 K のギャップの中に僅かな残留状態密度があり、さらにそこに 60 K 程度のギャップ的構造をもつというものである [10]。この in-gap 状態は、最近注目されている絶縁体相での量子振動の起源となるエキゾチックな準粒子 [25]が関与している可能性があり、極めて興味深い。仮に、in-gap 状態に数十 K の小さなギャップ構造があり、それが温度上昇によって状態を変えれば、状態密度の 174 K の大きなギャップのコントラストが 30 K 程度でぼやける可能性がある。そのような理由で、明瞭な磁場誘起転移を 30 K 以上で観測できなくなったと考えれば、今回の実験結果を説明可能である。

5-2 $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ 、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の磁化過程

ここでは、縦型一巻きコイル法を用いて行った $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ 、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ の超強磁場下での磁化過程の測定結果について示す。すべての測定において初期設定温度を 4.2 K とし、内径 14 mm の一巻きコイルを用いて、充電電圧は 40 kV に設定した。それぞれの詳細な測定データを示したのちに、転移磁場の値を整理して示す。

5-2-1 $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ の測定結果

この章では 5-1-1 で示した YbB_{12} の測定結果と同様に測定結果を示す。

[測定 No.14]：従来のクライオスタット

図 5-60 は印加した磁場の時間依存性（黒線）と並行型磁化ピックアップコイルの右側に試料を入れて磁場を印加した場合と左側に入れて磁場を印加した場合に得られた電圧信号の時間依存性である（緑：右側、青：左側）。磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 2 V 程度生じており、2 μs 程度で減衰して消えていく。この測定では長周期の成分の信号が 2 つの測定で比較的良好に再現され、バックグラウンド信号がよく一致していることがわかる。

図 5-61 に示したのは、図 5-60 に示した左側の信号の大きさから右側の信号の大きさを差し引いたものである。この測定では矢印 a で示した 1 μs あたりに磁場上昇時のメタ磁性転移から来るとされるピークがみられており、同矢印 b で示した 5 μs あたりにも磁場下降時の同様なピークがみられている。

図 5-62 と図 5-63 の上側に示した曲線（黒線）は磁場上昇時、磁場下降時それぞれについての dM/dt を積分したものである。図 5-62 と図 5-63 の下側に示した曲線（赤線）は磁場上昇時、下降時の磁化の磁場微分(dM/dB)に相当するものである。図 5-61 の矢印 a、b で示した信号のピークは図 5-62、図 5-63 でも表れており、 YbB_{12} の場合と比べると、少し大きい 60 T 程度に確認できる。

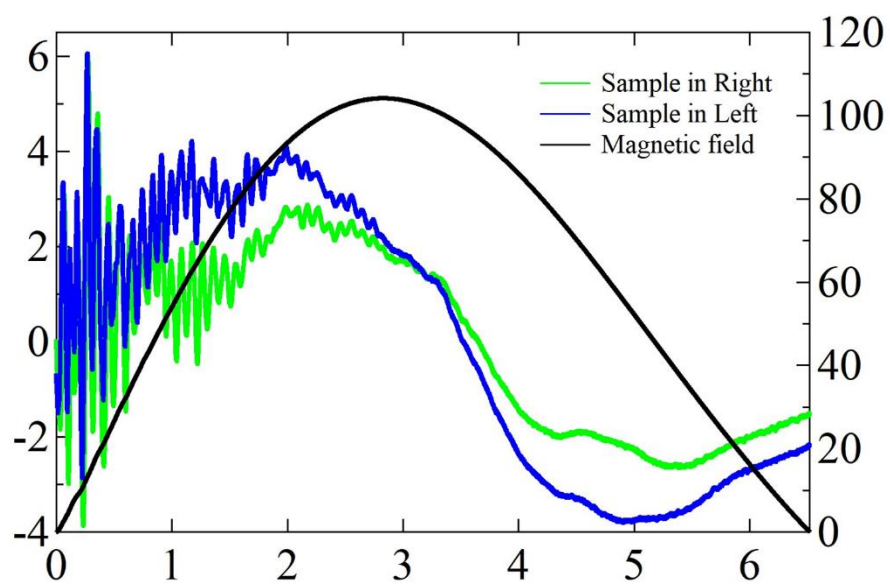


図 5-60 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.14]

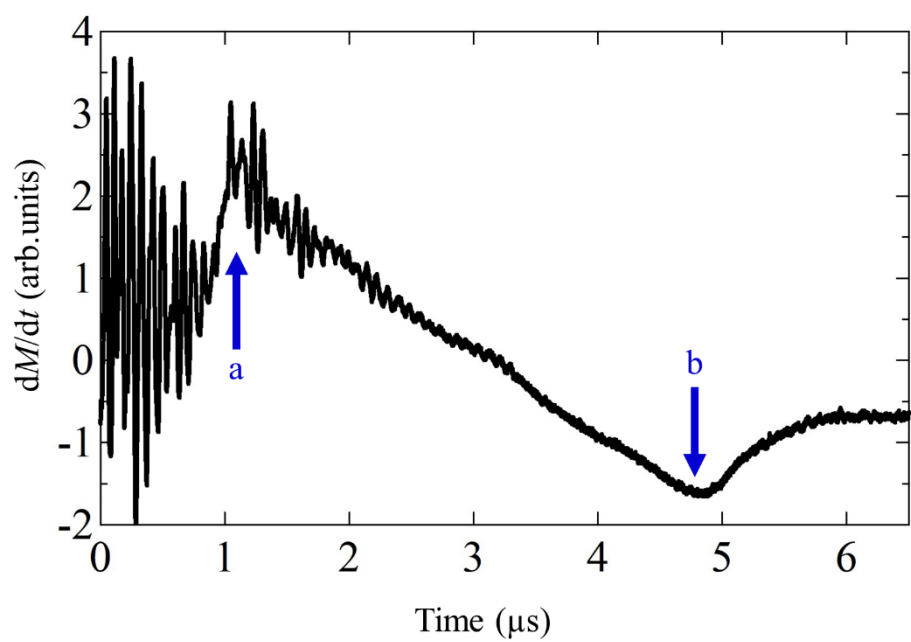


図 5-61 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.14]

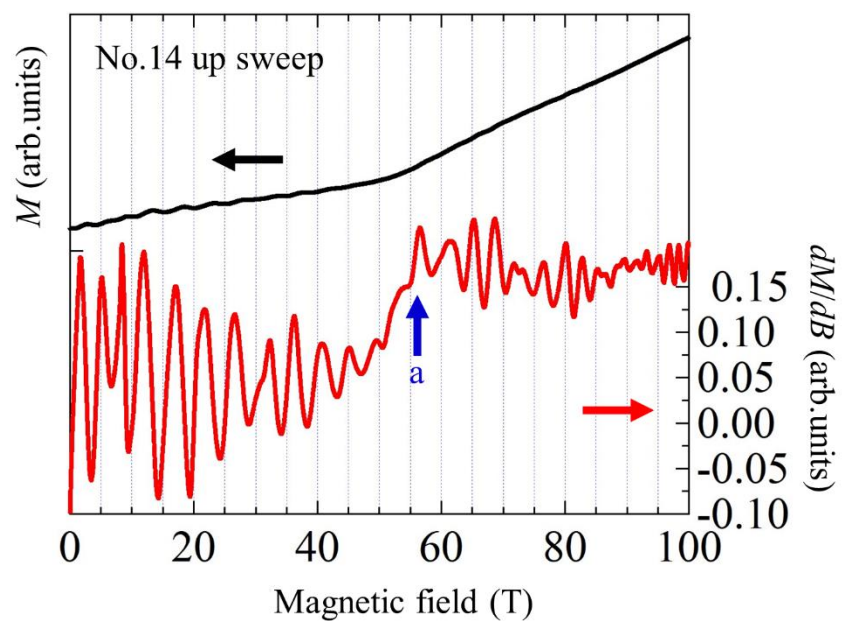


図 5-62 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.14]

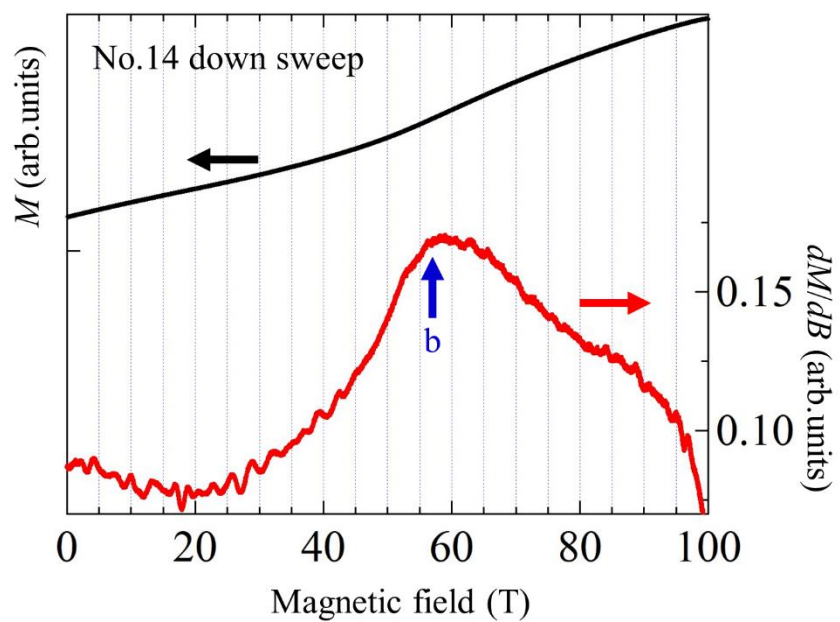


図 5-63 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.14]

5-2-2 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の測定結果

[測定 No.15] : 従来のクライオスタット

図 5-64 では磁場発生に伴う電磁ノイズが $\pm 1 \text{ V}$ 程度生じており、 $2 \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。2つの測定を比較するとバックグラウンド信号である長周期の成分はよく一致している。

図 5-65 では YbB_{12} と同様の部分である磁場上昇時の矢印 a のみピークを確認できる。領域 b で示した $5 \mu\text{s}$ あたりにも僅かに折れ曲がりが見える。

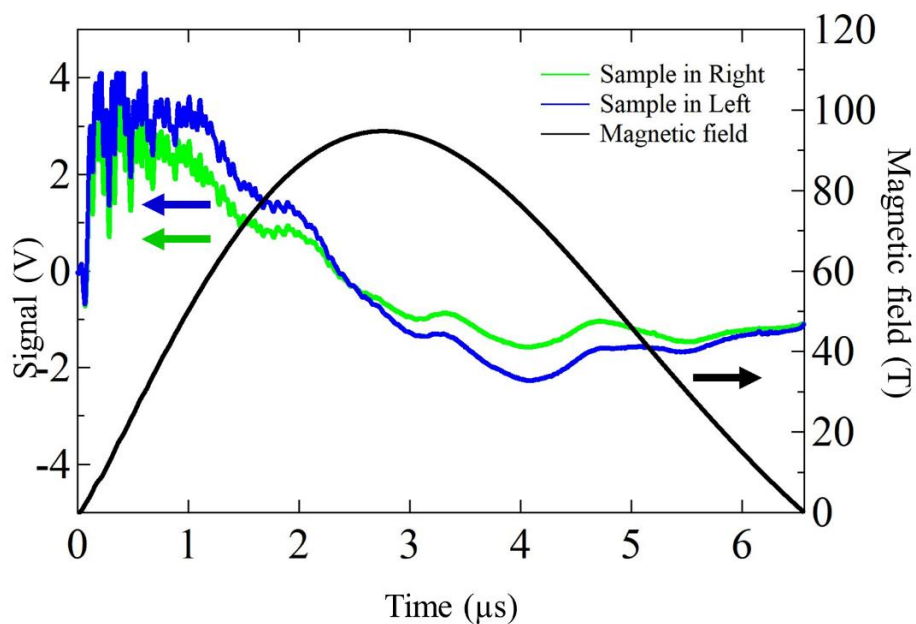


図 5-64 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.15]

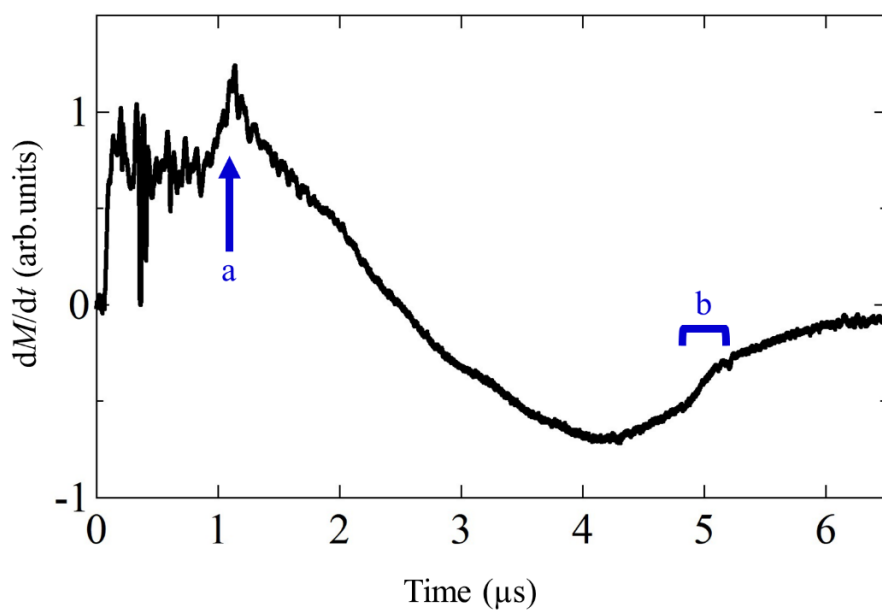


図 5-65 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.15]

図 5-66、図 5-67 の dM/dB 曲線においても矢印 a、b で示した位置に転移と思われるピーク構造を明瞭に確認できる。 YbB_{12} の場合と比べると、同様の位置である 55 T 付近に確認できる。

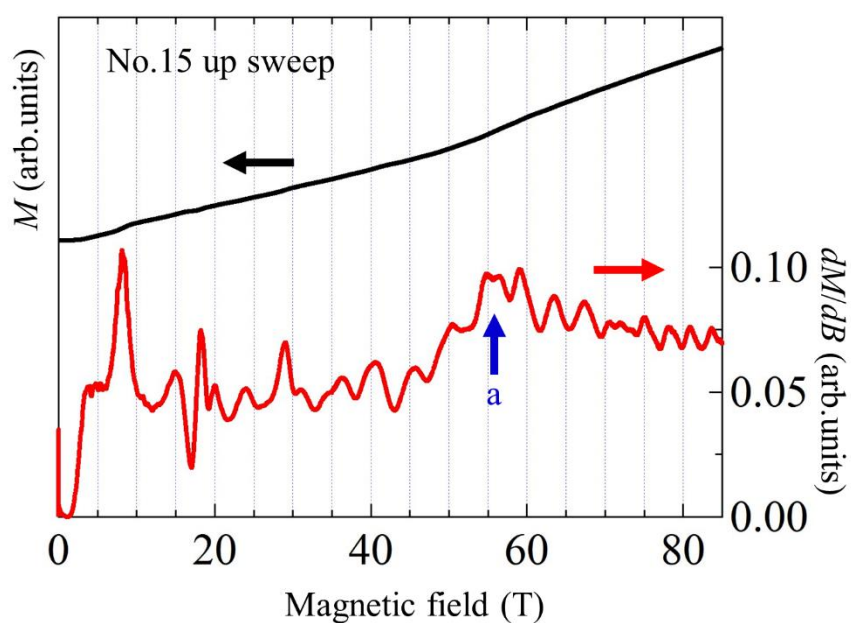


図 5-66 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.15]

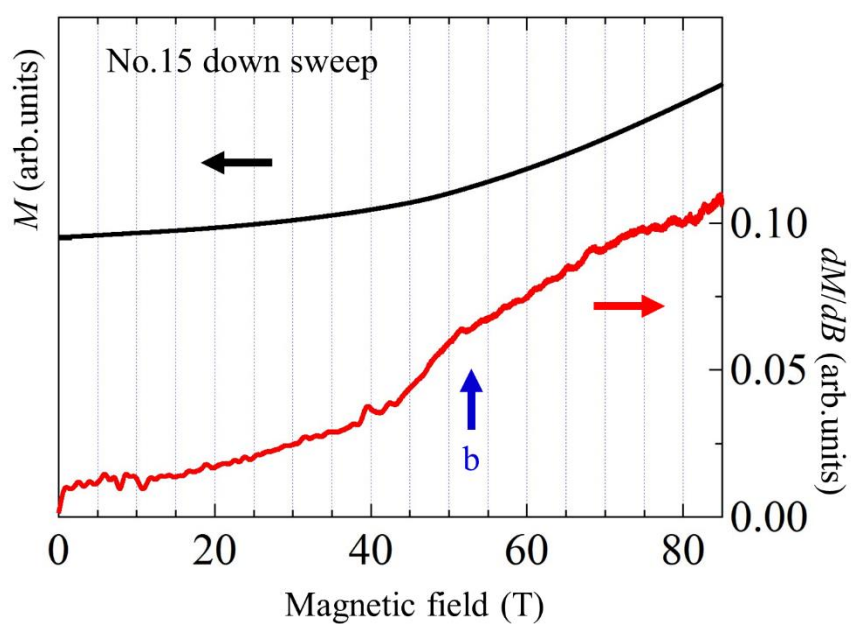


図 5-67 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.15]

[測定 No.16]：従来のクライオスタット

図 5-68 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 1 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。2つの測定を比較するとバックグラウンド信号である長周期の成分はよく一致している。

図 5-69 では[測定 No.15]と同様の部分である矢印 a、b にピークを確認できる。

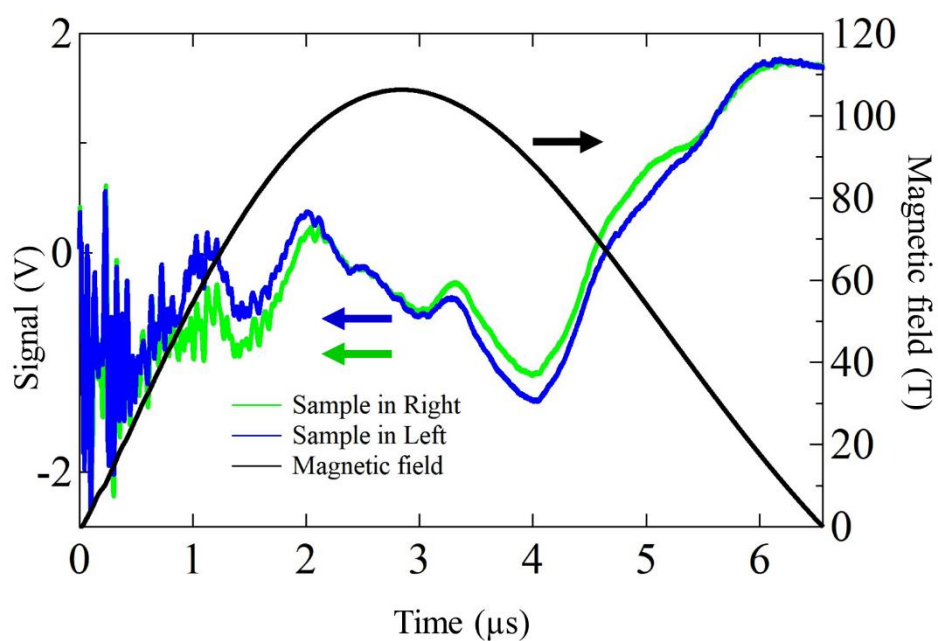


図 5-68 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.16]

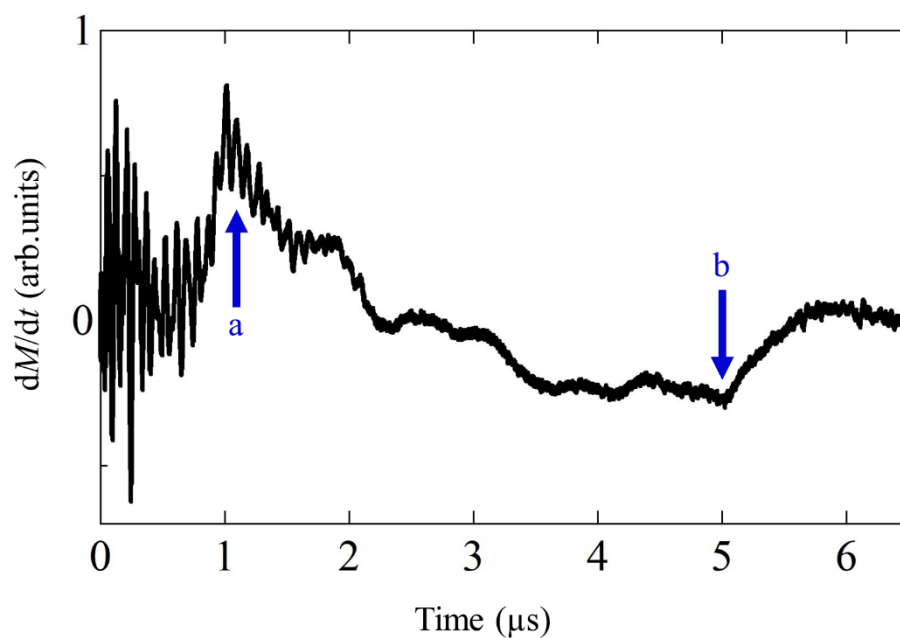


図 5-69 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.16]

図 5-70、図 5-71 の dM/dB 曲線においても矢印 a、b で示した位置に転移と思われるピーク構造を明瞭に確認できる。測定 No.15 の時と同様に、55 T 付近にピーク構造を確認できる。

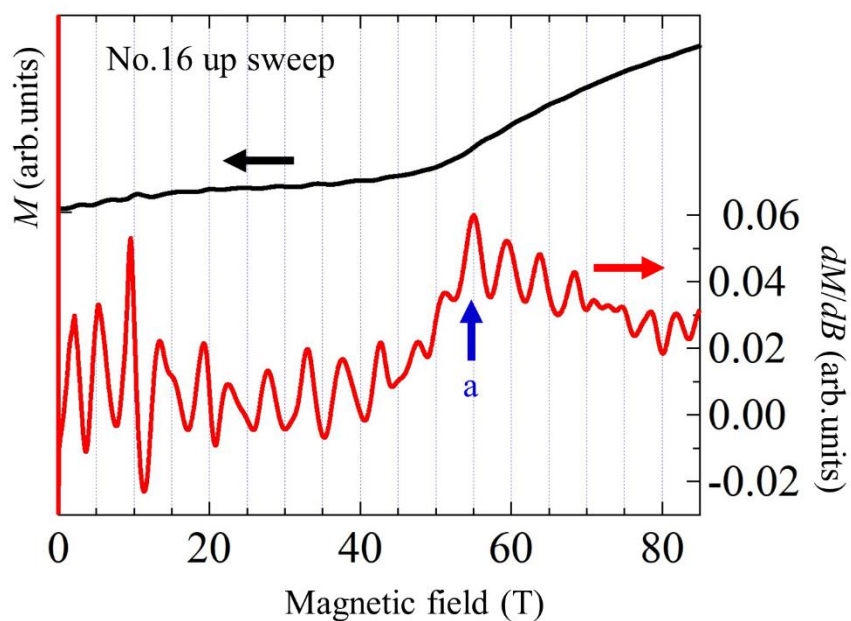


図 5-70 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.16]

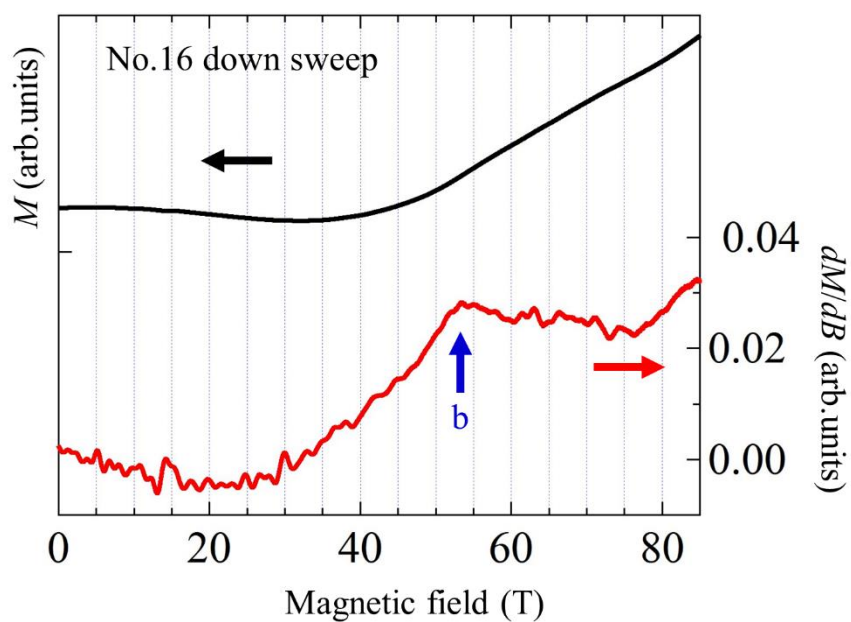


図 5-71 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.16]

[測定 No.17]：従来のクライオスタット

図 5-72 では磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 1 V 程度生じており、 $2\ \mu\text{s}$ 程度で減衰して消えていく。2つの測定を比較するとバックグラウンド信号である長周期の成分はよく一致している。

図 5-73 では[測定 No.15]と同様の部分である矢印 a、b にピークを確認できる。

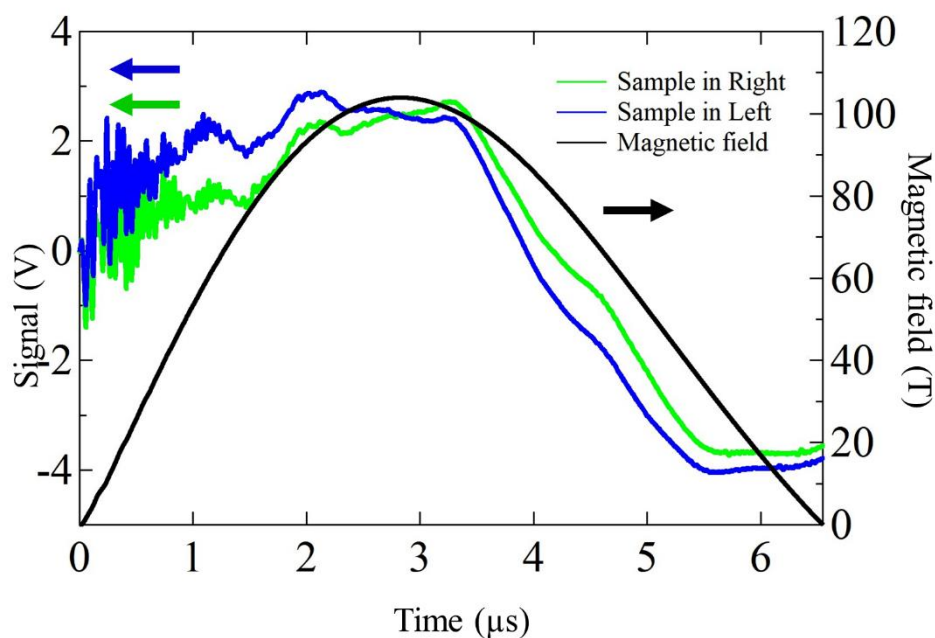


図 5-72 磁場波形とピックアップコイルの左右それぞれに試料を入れた場合の信号[測定 No.17]

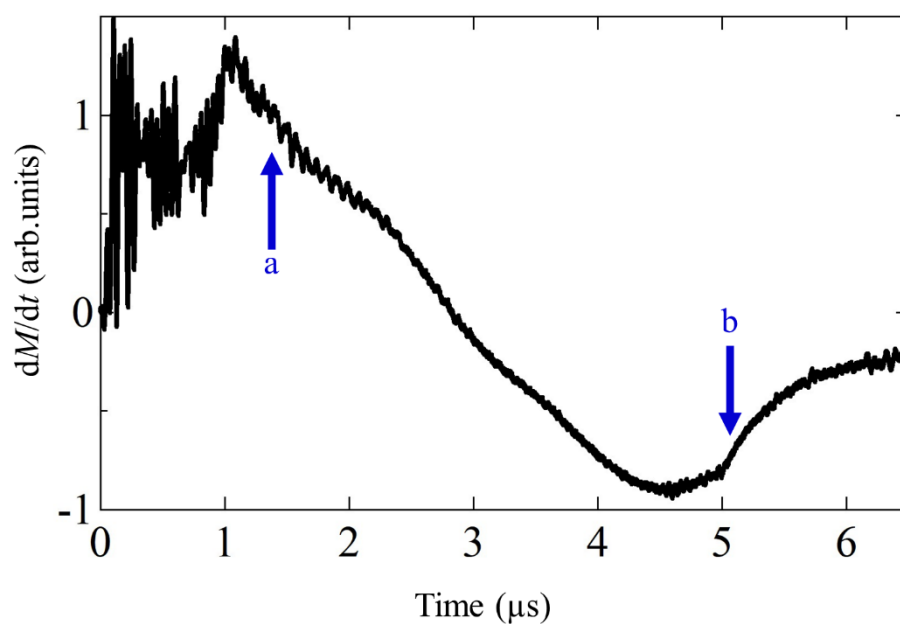


図 5-73 ピックアップコイルの左右に試料を入れた信号の差[測定 No.17]

図 5-74、図 5-75 の dM/dB 曲線においても矢印 a、b で示した位置に転移と思われるピーク構造を明瞭に確認できる。測定 No.15、16 の時と同様に、55 T 付近にピーク構造を確認できる。

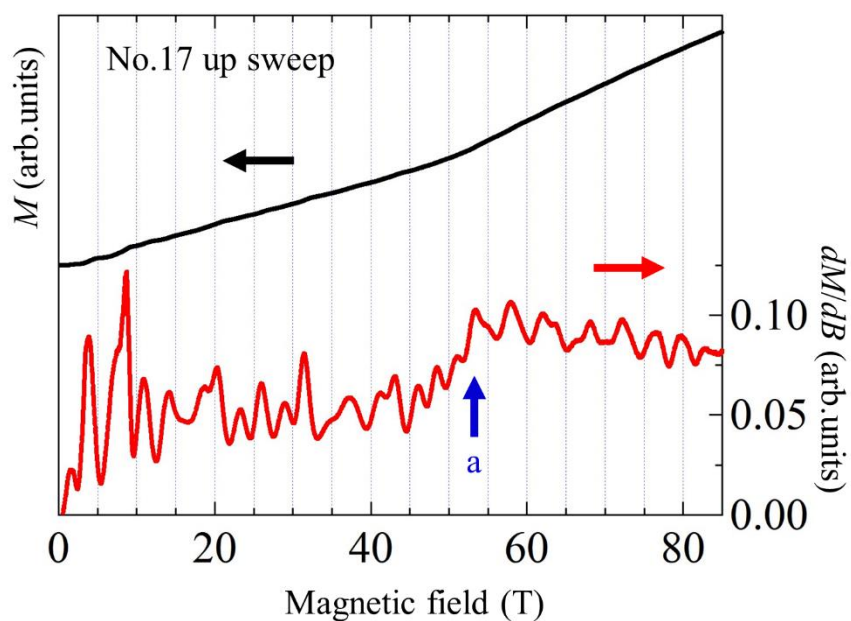


図 5-74 磁場上昇時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.17]

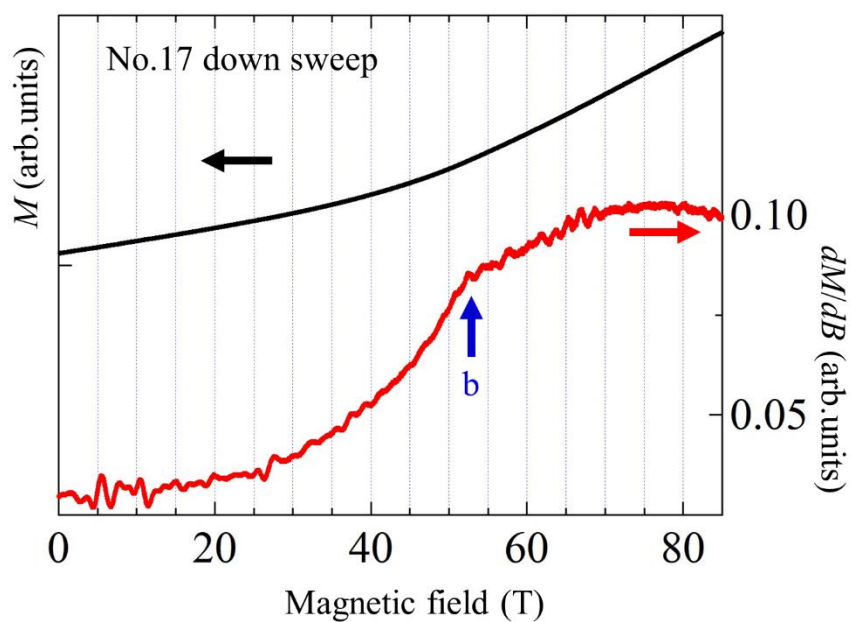


図 5-75 磁場下降時の dM/dB に比例する信号（赤線）と磁化曲線（黒線）[測定 No.17]

5-2-3 考察

5-2-1、5-2-2 で示したそれぞれの測定における dM/dB 曲線に対して、 YbB_{12} の転移磁場を決定した 5-1-3 で示したように $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ 、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の転移磁場の決定を行った。表 5-1 に dM/dB 曲線から求めた YbB_{12} 、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ 、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の磁場上昇時、下降時の転移磁場を示す。

表 5-1 YbB_{12} 、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ 、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の磁場上昇時、下降時の転移磁場の大きさ

	YbB_{12}	$\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$	$\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$
Up	55 T	57 T	56 T
Down	56 T	57 T	52 T

表 5-1 に示したように、Yb の密度を希釈したのみの $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ の転移磁場の大きさは磁場上昇時、下降時ともに 57 T 程度であった。測定を 1 回しか行えていないため、一巻きコイル法による測定の性質上、 57 ± 2 T 程度の誤差はあると考えられる。 $\text{Yb}_{1-x}\text{Y}_x\text{B}_{12}$ は図 5-76 に示すように置換率が上昇するにつれて格子状数が大きくなることが報告されている [26]。格子定数が小さくなるにつれて、 c - f 混成効果が強まることが予想されているため、5%の Y 置換によりわずかに格子定数が大きくなっている $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ においては、近藤効果がわずかに弱まることが期待される。しかし、図 5-77 に示した $\text{Yb}_{1-x}\text{Y}_x\text{B}_{12}$ の磁化率の温度依存性を見てみると、 $0 < x < 0.53$ の範囲において、近藤温度の目安となるピーク位置に変化が見られない。したがって、5%の Y を置換した $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ において近藤効果の強さに変化はないと考えられる。そのため、今回実験で得られた強磁場磁化過程における転移磁場が YbB_{12} と変化しないことからギャップが磁場により閉じる機構に対して 5%の希釈効果は大きな影響を及ぼしていないとわかった。

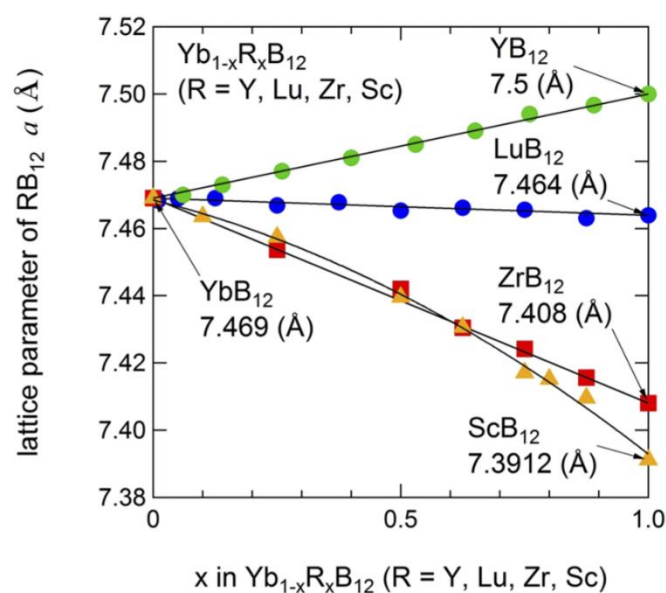


図 5-76 $\text{Yb}_{1-x}\text{R}_x\text{B}_{12}$ の置換による格子定数の変化 [26]

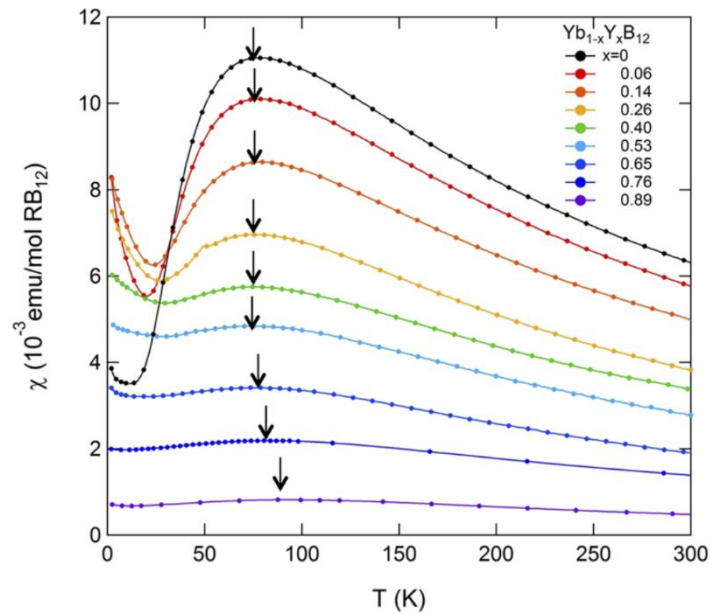


図 5-77 $\text{Yb}_{1-x}\text{Y}_x\text{B}_{12}$ の磁化率の温度依存性 [26]

磁場上昇時、下降時の $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の転移磁場の大きさは、 YbB_{12} と比べほぼ同じとなった。磁場下降時の値が YbB_{12} と比べ小さいが、実験手法特有の誤差範囲であると考ええる。これは YbB_{12} の測定では磁場上昇時、下降時の転移磁場の大きさにそれほど差が出ていないため、また今回用意できた $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の量が少なく、信号強度が小さいため、バックグラウンド信号の再現性が比較的悪い磁場下降時の dM/dB の構造からの判断においては誤差が生じやすいためである。

$\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の格子定数はまだ測定されていないが、図 5-76 が示すように 5%の他の元素置換 (Y, Zn, Sc) では格子定数が YbB_{12} とほぼ同じであり、Sr 置換についても 5%であれば格子定数の変化は小さいと予想される。また、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ の転移磁場も大きく変化しないことから、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の転移磁場の大きさに対して格子定数は影響を及ぼさないと考える。

次に、5%のホールドーピングによる影響を考える。RKKY 相互作用と近藤効果が拮抗している重い電子系においてはホールドーピングをしたことによるキャリア数の増大によって RKKY 相互作用の増強が期待される。 YbB_{12} では RKKY 相互作用の寄与は近藤効果が強いために、それほど明らかになっていないが、ホールが十分にドーピングされて金属的伝導が顕著になれば、伝導電子を媒介とする RKKY 相互作用によって Yb 間に反強磁性的相関が発達する可能性がある。しかし、今回の測定では転移磁場が大きく変化していないことから、ギャップが磁場により閉じる機構に対して Sr 置換はホールドーピングの観点からも大きな影響を及ぼしていないことがわかった。仮に Yb 間の反強磁性相互作用が強く効けば、磁化過程そのものが影響を受け、ギャップの閉じる転移磁場も変化すると考えられるため、Sr ドーピングによる反強磁性相関の発達などの磁気特性の変化は生じていないと考えられる。

第6章 結論

本研究では、近藤絶縁体 YbB_{12} の長年議論の対象となっているエネルギーギャップの形成機構の理解の深化ため、 YbB_{12} のエネルギーギャップの温度依存性を決定することを目的とし、100 T の強磁場発生が可能な一巻きコイル法を用いて、 YbB_{12} の磁化過程の温度依存性を詳しく調べた。

その結果、磁化過程は 4.2 K から昇温すると、55 T 付近のメタ磁性転移が徐々にブロードになり、30 K ではほぼ直線になった。 dM/dB 曲線から転移磁場を決定すると、4.2 K から 30 K において転移磁場は温度に依存せず、55 T 程度で一定となった。 YbB_{12} におけるエネルギーギャップの形成がモット絶縁体のギャップ形成過程でしばしば見られる BCS 的な振る舞いになるとすると、光電子分光測定でエネルギーギャップの開き始める温度として示唆されている 110 K の特性温度ならば 30 K 程度では転移磁場の温度依存性がほとんどないことは説明が可能であるとわかった。

次に、Yb を Sr に 5% 置換した $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の磁場誘起絶縁体金属転移に対するホールドープの影響について明らかにすることを目的とし、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の磁化過程を調べた。それに伴い、置換による希釈効果が同じである試料に対して同様の測定を行い、ホールドープのみの影響を得るために $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ の磁化過程を調べた。

その結果、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Y}_{0.05}\text{B}_{12}$ の転移磁場の大きさは YbB_{12} と比べてほとんど同じであった。そのため、ギャップが磁場により閉じる機構に対して 5% の希釈効果は大きな影響を及ぼしていないとわかった。そして、 $\text{Yb}_{0.95}\text{Sr}_{0.05}\text{B}_{12}$ の転移磁場の大きさも YbB_{12} と比べてほとんど同じであった。5% の希釈効果による転移磁場の増大はないと考えられるため、Sr 置換はギャップが磁場により閉じる機構に対して大きな影響を及ぼしていないとわかった。

参考文献

- [1] M. Kasaya, F. Iga, K. Negishi, S. Nakai, T. Kasuya, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **31-34**, 437(1983).
- [2] K. Ueda, Y. Onuki, 重い電子系の物理 裳華房(1998).
- [3] J. P. Franck, F. D. Manchester, Douglas L. Martin, Proc. Roy. Soc. A **263**, 497 (1961).
- [4] J. Kondo, Progress of Theoretical Physics **32**, 37(1964).
- [5] K. Yosida, PHYSICAL REVIEW **147**, 223(1966).
- [6] A. Menth, E. Buehler, T.H. Geballe, PHYSICAL REVIEW LETTERS **22**, 295(1969).
- [7] T. Takabatake, F. Teshima, H. Fujii, S. Nishigori, T. Suzuki, T. Fujita, Y. Yamaguchi, J. Sakurai, D. Jaccard, PHYSICAL REVIEW B **41**, 9607(1990).
- [8] D.T. Adroja, S.K. Malik, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **100**, 126(1991).
- [9] M.F. Hundley, P.C. Canfield, J.D. Thompson, Z. Fisk and J.M. Lawrence, Physica B **171**, 254(1991).
- [10] K. Sugiyama, F. Iga, M. Kasaya, T. Kasuya, M. Date, Journal of the Physical Society of Japan **57**, 3946(1988).
- [11] F. Iga, Y. Takakuwa, T. Takahashi, M. Kasaya, T. Kasuya, T. Sagawa, Solid State Communications **50**, 903(1984).
- [12] J. Yamaguchi, A. Sekiyama, S. Imada, H. Fujiwara, M. Yano, T. Miyamachi, G. Funabashi, M. Obara, A. Higashiya, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, F. Iga, T. Takabatake, S. Suga, PHYSICAL REVIEW B **79**, 125125(2009).
- [13] F. Iga, N. Shimizu, T. Takabatake, Journal of magnetism and magnetic materials **177**, 337 (1998).
- [14] H. Okamura, T. Michizawa, T. Nanba, S. Kimura, F. Iga, T. Takabatake, Journal of the Physical Society of Japan **74**, 1954 (2005).
- [15] M. Okawa, Y. Ishida, M. Takahashi, T. Shimada, F. Iga, T. Takabatake, T. Saitoh, S. Shin, Physical Review B **92**, 161108 (2015).
- [16] T. Saso, H. Harima, Journal of the Physical Society of Japan **72**, 1131 (2003).
- [17] F. Iga, K. Suga, K. Takeda, S. Michimura, K. Murakami, T. Takabatake, K. Kindo, Journal of Physics: Conference Series **200**, 012064 (2010).
- [18] K. Takeda, 修士論文 (2009).
- [19] T. T. Terashima, A. Ikeda, Y. H. Matsuda, A. Kondo, K. Kindo, F. Iga, Journal of the Physical Society of Japan **86**, 054710 (2017).
- [20] K. R. Lea, M. J. M. Leask, W. P. Wolf, J. Phys. Chem. Solids Pergamon Press **23**, 1381(1962).
- [21] N. Miura, Physica B **201**, 40(1994).
- [22] W. Matsuhira, K. Yokomichi, W. Hirano, S. Kikuchi, N. Uematsu, H. Nakayama, A. Kondo, K. Kindo, F. Iga, AIP Advances **8**, 101329 (2018).
- [23] T. Katsufuji, Y. Okimoto, T. Arima, Y. Tokura, J. B. Torrance, PHYSICAL REVIEW B **51**, 4830(1994).
- [24] M. Tachiki, T. Fujita, 高温超伝導の科学, 裳華房(1999).

- [25] Z. Xiang, Y. Kasahara, T. Asaba, B. Lawson, C. Tinsman, Lu Chen, K. Sugimoto, S. Kawaguchi, Y. Sato, G. Li, S. Yao, Y. L. Chen, F. Iga, John Singleton, Y. Matsuda, Lu Li, *Science* **362**, 65(2018).
- [26] F. Iga, K. Yokomichi, W. Matsuhra, H. Nakayama, A. Kondo, K. Kindo, H. Yoshizawa, *AIP Advances* **8**, 101335 (2018).
- .

謝辞

本研究を進めるにあたり、多くの方々にお世話になりました。ここで改めて振り返るとともに感謝を申し上げます。

指導教員の松田康弘准教授には、ここでしかできない一巻きコイル法を用いた研究テーマをいただき、研究を通して手厚いご指導をしてくださいました。私は実験で装置を壊してしまうことが多く、自分で直すことができずに何度も先生の手をお借りして、ご迷惑をおかけしてしまいました。学会発表にも積極的に参加させてくださり、発表練習にも多くの時間を費やしてくださいました。これ以外にもたくさんの貴重な体験はさせていただきました。大変お世話になりました。ありがとうございました。

嶽山正二郎教授には強磁場施設最年長としてセミナーや実験の際にはたくさんの助言をいただきました。ありがとうございました。

金道浩一教授にはイベントやサッカーで一緒にさせていただくことが多く、非常に楽しい時間を過ごさせていただきました。ありがとうございました。

茨城大の伊賀教授には本研究の試料をご提供いただき、共同研究者として松田先生とは異なる視点から様々な意見を頂戴しました。ありがとうございました。

徳永将史准教授には昼サッカーで大変お世話になりました。研究ではあまり関わりを持つことができませんでしたが、イベントや飲み会ではよく一緒にさせていただき、楽しい時間を過ごさせていただきました。ありがとうございました。

小濱芳允准教授には昼サッカーで大変お世話になりました。研究では鋭い指摘を頂戴し参考にさせていただきました。研究以外の普段の生活でも気をかけてよく話しかけてくださいました。ありがとうございました。

池田暁彦助教には質問に対して、学生の視点に立って細かく教えていただきました。またイベントやサッカーなどでは学生や強磁場グループの方々を引っ張り、みんなが楽しめる空間を作ってくださいました。ありがとうございました。

嶽山研究室の中村大輔助教には実験室で困った際に助言をくださり、円滑・安全に実験を進めることを支えてくださいました。ありがとうございました。

同じ研究グループの学生として野村和哉氏、秋元昂氏、周旭光氏、清水歩実氏、都築崇氏、三田航平氏、鈴木悠太氏、山田宗孝氏、巖正輝氏、安井伸氏、青木孝晶氏、下起敬史氏、Firza Septian 氏、肥塚遼氏とは普段の生活から一緒に楽しく過ごさせていただきました。また、イベント・ゼミ・実験などでも大変お世話になりました。特に野村和哉氏には同じ縦型一巻きコイル法を用いた研究をしている先輩としていろいろと気にかけてくださり、実験の仕方を1から丁寧に教えていただき、大変感謝しております。大阪大学から来ていた佐藤和樹氏にも昼サッカーや飲み会でお世話になりました。ありがとうございました。

同じ居室のメンバーとして小濱研究室の松井一樹特任研究員、Yang Zhuo 特任研究員、Dong Chao 氏にも多くの時間を一緒に過ごさせていただき、大変お世話になりました。

非破壊グループに所属する三宅厚志助教、三田村裕幸助教、木下雄斗特任助教、栗原綾佑特任研究員、今城周作特任助教、河智史朗氏には強磁場全体のイベントで一緒になった際には楽しく過ごさせていただきました。ありがとうございました。

澤部博信技術専門職員、川口孝志技術専門員、松尾晶技術専門職員には普段の実験生活のサポートをしていただきました。ありがとうございました。

秘書の大島香織氏、大野亜沙子氏、河野智恵美氏には書類申請などの事務作業のサポートをしていただきました。ありがとうございました。

物性研昼サッカー部の方々、海洋研サッカー部の方々、新領域バレーボールサークルの方々に課外活動において大変楽しい時間を一緒に過ごさせていただきました。ありがとうございました。

このほかにも、書ききれなかった強磁場グループの方々、事務の方々、物性研究所・物質系専攻の同期、先輩には大変お世話になりました。ありがとうございました。

最後に、経済的な支援を続けてくれた両親に感謝いたします。