

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 24 年度

修士論文

二次元直交ダイマー系の超強磁場磁化過程

2013 年 1 月 29 日提出

指導教員：松田 康弘 准教授 印

学籍番号：47-116001

阿部 望

目次

1. 序論	1
2. 量子スピン系	3
2.1 概要	3
2.2 スピンギャップ系	3
2.2.1 Haldane ギャップ系	5
2.2.2 ダイマー状態	6
2.2.3 ダイマーと Haldane 状態における基底状態の相転移	6
3. 直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の基本物性	8
3.1 結晶構造	8
3.2 Shastry-Sutherland 模型	10
3.3 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ のスピンギャップ	13
3.4 直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の磁化過程の研究	15
3.5 研究目的	20
4. 実験手法	21
4.1 強磁場発生方法	21
4.2 低温環境	25
4.3 磁化測定	30
4.4 Setup (一巻きコイル法による超強磁場下での磁化測定)	34
4.5 実験試料	40
5. 実験結果	42
5.1 4.2 K での測定結果 : 測定 No.1~3	43
5.2 約 2 K での測定結果(1) : 測定 No.4~9	50
5.3 約 2 K での測定結果(2) : 測定 No.10~14	63
6 考察	77
7 結論	84
謝辞	85
参考文献	88

1. 序論

磁氣的性質を持つ物質は、古来より産業技術の発展に伴い開発され続け、人類にとって最も重要で身近な物質群である。近代以降の日本においても、1917 年に東北帝国大学の本多光太郎氏と高木弘氏によって開発された K S 鋼を皮切りに、現在最強の磁力を持つ永久磁石として有名なネオジウム磁石の開発や、最近では磁気記憶デバイスの MR AM に使用されるコバルト・鉄系磁性体の開発等、磁性材料の研究はダイレクトに科学技術の発展に繋がり、日本経済を潤すとともに我々の生活を豊かにしてきた。磁性分野の歴史を少し遡ると、人類は既に紀元前 8 世紀から磁鉄鉱 (Fe_3O_4) が鉄を引き寄せることを発見していたという。しかしながらそこから人類がそのような磁気現象を理解できるようになるまでには長い時間を要し、量子力学の誕生まで待たねばならなかった。18 世紀初頭から 19 世紀にかけて起こった産業革命とともに電磁気学の基礎が築かれ、そして 20 世紀に入り待望の量子力学が成立したことにより、それまでのマクロな物理から一転して微視的な新しい物理を議論できるようになったのである。これにより磁性体への理解が加速度的に進み現在の“磁性体”にあふれた我々の生活が実現できているわけである。

そして 1980 年代に入り銅酸化物高温超伝導体が二次元モット反強磁性体の近傍に発見され、さらにはアンダードープ超伝導体において擬ギャップが見つかったことで、高温超伝導体の研究が盛んに行なわれると共に低次元磁性体特有の量子効果としてのスピングャップ現象が注目されるようになった[1]。

本研究で取り扱っている $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は磁性を持つ Cu^{2+} イオンが二量体（ダイマー）を組み、且つこのダイマーが二次元平面上に直交して配列していることから二次元直交ダイマー系と呼ばれている[2]。この二次元直交ダイマー系は幾何学的な特異性に起因した量子フラストレーションの効果と、基底状態と磁氣的な励起状態との間に有限なエネルギーギャップ（スピングャップ）を持つことにより、幾つかの興味深い現象が引き起こされる量子スピン系の典型的な例として知られている[3]。スピングャップに関しては帯磁率の温度依存性から約 35 K と見積もられている[3]。基底状態では、ダイマーが一重項状態をとり非磁性になり、磁氣的な励起に伴い三重項が形成される[4]。励起された三重項は量子効果によって局在化し、磁場中の磁化過程は Cu^{2+} イオンの全磁化の 1/8、1/4、1/3 等に相当する磁化プラトーが観測される[5]。これらの磁化プラトー領域においては理論研究も数多くなされており、さらに高磁場領域での磁化測定を行なうことによって 1/2 プラトーなどの新たな磁気構造の出現が予想されている[6]。

現在松田（康）研究室が所属している物性研究所国際超強磁場科学研究施設では、コイル破壊型の超強磁場発生装置であり 100 T 以上の磁場発生が可能な、一巻きコイル法を用いた超強磁場・低温環境下での磁化測定手法の開発を長年行なってきた。そしてこれまでに、フラストレートクロム系スピネル酸化物 CdCr_2O_4 の全磁化過程等

が明らかにされてきた[7,8]。

そこで本研究では、この一巻きコイル法を用いた磁化測定技術の開発について更なる改良を行い、二次元直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の 100 T 領域での低温磁化測定に挑戦し、未だ明らかにされていない高磁場領域での磁化過程の解明を試みた。 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ では磁性を担う Cu^{2+} イオンが $S = 1/2$ を持ち、 Cr^{3+} ($S = 3/2$) を持つ CdCr_2O_4 に比べ磁化の絶対値が小さく、従来よりも高い精度での測定が必要となる。

本論文は、以下に示す構成になっている。

第 2 章「量子スピン系」

量子スピン系の概念について述べた後、一次元系スピングャップ系等、幾つかの系について説明する。

第 3 章「 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の基礎物性」

二次元直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の磁気構造やこれまでの研究で明らかにされている事項について説明した後、本研究の目的について述べる。

第 4 章「実験手法及び開発」

一巻きコイル法の原理や低温測定のための一巻きコイル法に対応した液体ヘリウムクライオスタットの開発、磁化測定用プローブの開発について説明する。

第 5 章「実験結果」

得られた測定結果について整理して説明する。

第 6 章「考察」

磁化過程についての考察を行なう。

第 7 章「結論」

本論文についてのまとめと今後の展望について述べる。

2. 量子スピン系

2.1 概要 [9]

物質が示す磁気秩序は、固体中電子のスピン、軌道、格子間の様々な相互作用を起源として理解されている。また物質の次元性は深く物性に影響しており、1次元系、2次元系とみなせる低次元物質における磁性はいわゆる“量子効果”により多様性を持ち、非自明な現象を示す場合がある。そのような磁性体は総称して一般に「量子スピン系」と呼ばれ、従来から数多くの実験的・理論的研究が行なわれてきた。これは低次元であるために量子多体効果が顕著になり、マクロな量子現象として古典的には説明できない特異な磁気状態を示すからである。その中でも基底状態が非磁性であり、最低励起状態との間に有限のエネルギーギャップを持ついわゆるスピングャップ系の研究が近年非常に盛んに行なわれてきた。さらには1986年に銅酸化物高温超伝導体が二次元モット反強磁性体の近傍に見つかり、またアンダードープ型超伝導体にギャップ状態が発見され、高温超伝導の出現との関連性が取り上げられるようになり、低次元固有の量子効果としてのスピングャップ系が注目されるようになった。このスピングャップ系では、主にスピン量子数の大きさ、幾何学的配列、結晶格子の異方性などがエネルギーギャップの有無を本質的に支配すると考えられている。これまでこのようなスピングャップを持つ量子スピン系の磁性体として、一次元系では、整数スピンを鎖状に並べた Haldane ギャップ系、半整数スピン系においてスピン-格子結合により Spin-Peierls 転移と呼ばれる格子歪みを伴った二量化 (dimerization) の相転移を示す系 (CuGeO₃ 等)、スピン 1/2 を梯子上に並べたスピン・ラダー系などが代表例として知られている。二次元系では、plaquette-Resonating Valence Bond(RVB) 状態の基底状態を持つ CaV₄O₉ などが知られている。本研究で紹介する SrCu₂(BO₃)₂ は、CaV₄O₉ に続く二番目の二次元スピングャップ系であり、後に示すように特徴的な磁気構造を示すことから脚光を浴びている物質である。

2.2 スピングャップ系[9, 10]

スピングャップ系の基底状態では、合成スピンの 0 となる一重項 (シングレット) 状態におけるエネルギー利得が大きい。そのため、シングレットペアの組み合わせが系の新しい自由度として重要になる。

ここで、例として、大きさが 1/2 の二つのスピンについて考えると、Heisenberg 相互作用は、それぞれのスピン演算子を \mathbf{S}_1 、 \mathbf{S}_2 、スピン間相互作用定数を J とすると、

$$H = 2J\mathbf{S}_1 \cdot \mathbf{S}_2 - h \cdot (\mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2) \quad (2.2.1)$$

となる。ここで $h = g\mu_B H$ とし、 g はランデの g 因子、 μ_B はボーア磁子、 H は磁場を示す。固有状態は 4 つあり、

$$\begin{aligned} \text{Singlet} \quad S=0, S_z=0 &: \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \\ \text{Triplet} \quad S=1, S_z=1 &: |\uparrow\uparrow\rangle \\ S_z=0 &: \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \\ S_z=-1 &: |\downarrow\downarrow\rangle \end{aligned} \quad (2.2.2)$$

となる。 S は合成スピンの大きさ、 S_z は磁場方向の合成スピンの大きさである。 $|\uparrow\uparrow\rangle$ 、 $|\downarrow\downarrow\rangle$ は磁場方向にそろった状態を示す。 $|\uparrow\downarrow\rangle$ 、 $|\downarrow\uparrow\rangle$ は磁場と垂直な方向にスピンがある状態に対応するとみなせる。このときの固有エネルギーは

$$\begin{aligned} \text{Singlet} \quad S=0, S_z=0 &: E_{00} = -3J/2 \\ \text{Triplet} \quad S=1, S_z=i &: E_{1i} = J/2 - i g\mu_B H \quad (i=1, 0, -1) \end{aligned} \quad (2.2.3)$$

となる（ただし $\hbar = 1$ とした。）。今、 $J < 0$ なのでゼロ磁場においては、 $E_{00} < E_{1i}$ で一重項状態が基底状態である。この状態は、熱揺らぎなどで秩序が解消している常磁性状態ではなく、実効的にスピンの消失している状態である。そのため磁化過程において絶対零度では、エネルギーギャップ ΔE に相当する磁場より弱い磁場領域においては磁化が現れない。磁場によるゼーマンエネルギーが ΔE 以下のときは一重項が基底状態であり非磁性状態が維持される。そして、臨界磁場

$$H_c = \Delta E / g\mu_B S \quad (2.2.4)$$

から初めて磁化が現れる。

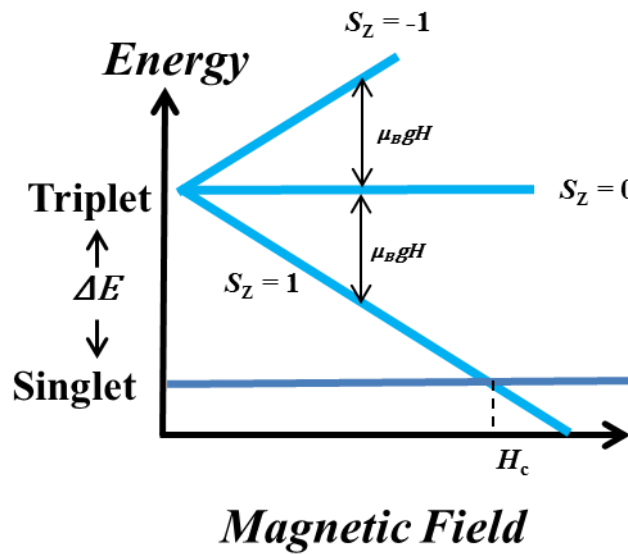


図 2.1 $S = 1/2$ を持つ 2 つのスピンの反強磁性相互作用により結合しているときのエネルギー準位の模式図

2.2.1 Haldane ギャップ系

1981 年に F. D. M. Haldane は一次元の反強磁性体では、スピン整列が完全に壊された量子性の強い基底状態を持つことを示し、この基底状態と励起状態との間には、エネルギーギャップが存在すると予想した。この場合、図 2.2 に示すように、最隣接原子のスピンと反強磁性的に結合して、一重項が形成されるため、格子の並進対称性が損なわれずにスピン・シングレット状態が維持される。実験的には有機物質 $\text{Ni}(\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{NO}(\text{ClO}_4)$ (NENP) における $\text{Ni}^{2+}(S = 1)$ 鎖の Haldane ギャップについて強磁場磁化過程の測定を行ない直接その存在を明らかにした Kastumata らの研究が良く知られている[11]。

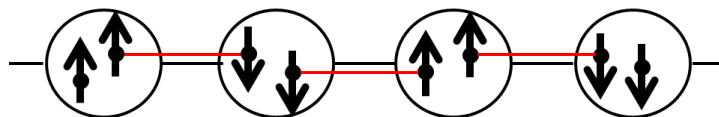


図 2.2 Haldane ギャップ系($S=1$) の基底一重項状態。○は磁性原子を表す。

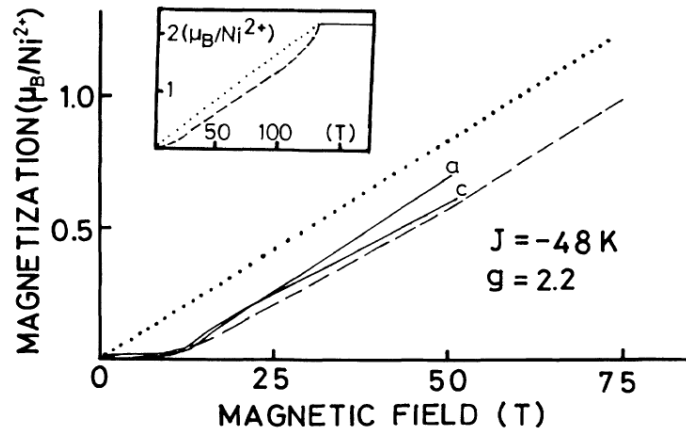


図 2.3 強磁場下での NENP の磁化過程[11]

2.2.2 ダイマー状態

ダイマー状態はスピンの2個ずつ強く一重項を形成しており、基底状態と励起状態の間にエネルギーギャップが存在するという点では、Haldane 状態と同じだが、空間的な並進対称性が損なわれているという点で異なる。このダイマー状態は主に二つの要因で起こりうる。

- 特定のスピン対間の反強磁性相互作用がその他の対間より強い場合
- 相互作用間のフラストレーションにより自発的に並進対称性が破られている場合

2.2.3 ダイマーと Haldane 状態における基底状態の相転移

前述した一次元系の $S = 1$ の反強磁性体の Haldane 状態に対し、交互に異なる大きさの相互作用を定めた場合、を考える。この場合のハミルトニアンは、

$$H = \sum_j J_1 \mathbf{S}_{2j-1} \cdot \mathbf{S}_{2j} + J_2 \mathbf{S}_{2j} \cdot \mathbf{S}_{2j+1} \quad (j = 1, 2, \dots) \quad (2.2.5)$$

となる。ここで j は格子点を表す。このとき、相互作用の比 J_1/J_2 がある程度以上大きいと、原子内でシングレットを形成するほうが原子間で一重項を形成する場合より低いエネルギーになり、個別のダイマーが形成された状態が基底状態になることが知られている。

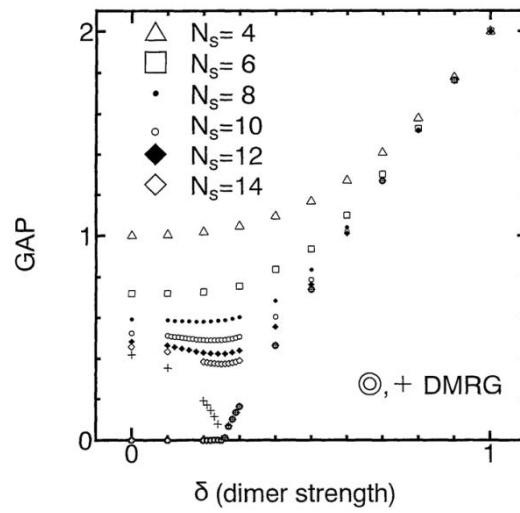


図 2.4 $S=1$ の反強磁性ハイゼンベルグモデルでの量子相転移[12]

本研究で取り扱う $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は直交ダイマー系と呼ばれ、量子力学的なフラストレーションの効果によって、興味深い現象を引き起こす典型的な量子スピン系の一つである。

3. 直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の基本物性

3.1 結晶構造

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は 1991 年に R. W. Smith と D. A. Keszler 等によって初めて合成された [13, 14]。 Cu^{2+} 、 B^{3+} 、 O^{2-} からなる層 (図 3.1.1) と、 (図 3.1.1 の×印上にある) Sr^{2+} からなる層とが交互に c 軸方向に積み重ねられた構造を持つ。 CuBO_3 層内では Cu^{2+} は CuO_4 のユニットで平面四配位をとり、このユニット二つが一部共有され、ダイマー Cu_2O_6 を形成している。ダイマー同士は三角形 BO_3 を介して二次元面上に直行したネットワークを組む。そしてこの二次元平面は Sr^{2+} イオンをはさみつつ 90° 度回転した配置で積層する。さらに正確には、互いの CuBO_3 層は Sr^{2+} 層を鏡面にして反転した関係にあるので、空間群 $\bar{1}4_2\text{m}$ の正方晶に属している。面内の格子定数は $a = 8.955 \text{ \AA}$ 垂直方向は $c = 6.649 \text{ \AA}$ である基本単位格子を持つ。また、最近接 Cu 間距離は 2.905 \AA 、第二近接間は 5.312 \AA 離れている。面間隔は 3.3 \AA と比較的離れている。

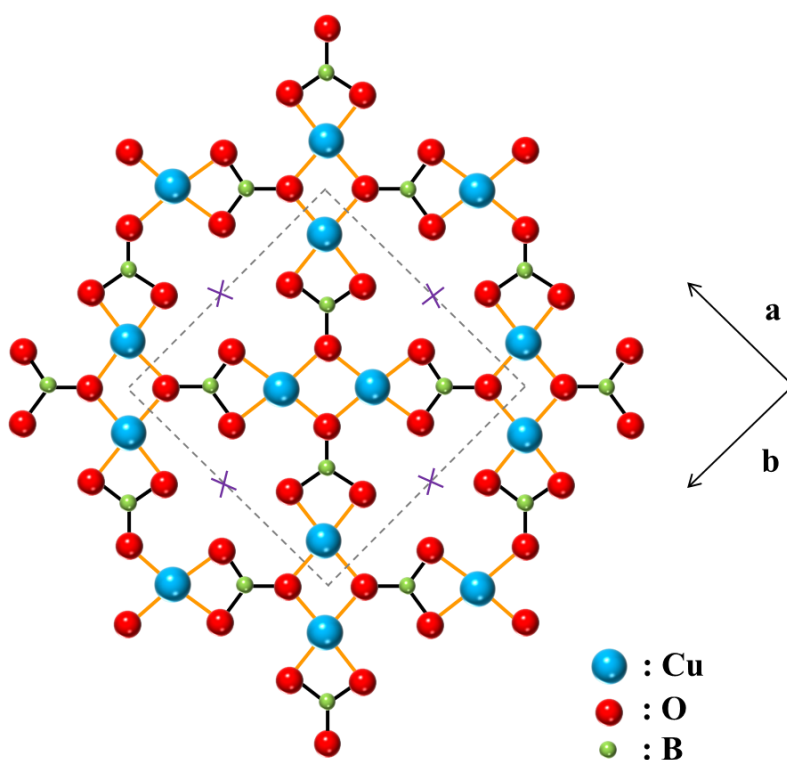


図 3.1.1 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の CuBO_3 層

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は $T_s = 395 \text{ K}$ 以上の温度領域では、 CuBO_3 層の凹凸が解消して完全なフラットな状態になることがX線回折実験により報告されている[15]。

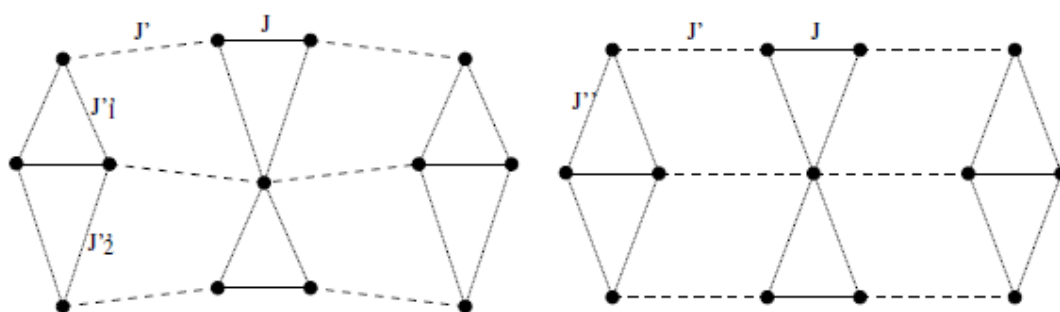
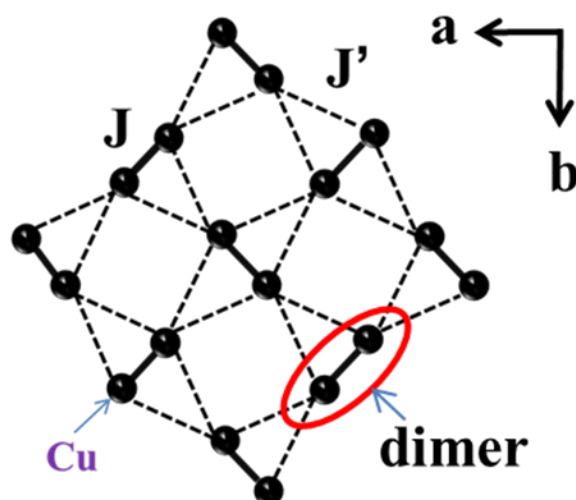


図 3.1.2 $T < T_S$ (左) と $T > T_S$ (右) の時の CuBO_3 層 ([110]面) [16]

図 3.1.1 から $S = 1/2$ のスピンを持つ Cu^{2+} イオンのみを取り出したのが図 3.1.3 である。上に述べたように、 CuBO_3 層は Sr^{2+} の非磁性層によって空間的に切り離されており比較的良い二次元性が維持されることが予想されるため、以下の議論では面内の相互作用を主に取り上げていく。最近接 Cu 間（ダイマー内）には相互作用 J がはたらき、第二近接 Cu 間（ダイマー間）は、相互作用 J' によって結合している。そしてこの物質の構造で最も重要な特徴は、互いに隣り合うダイマーが直交しているという点である。次節で詳しく述べるように、 $J > 0$ かつ $J' > 0$ と共に反強磁性相関であるため、ダイマーの直交配置に起因して、強い量子フラストレーション効果が生じる興味深い系である[2]。



— J : The intra-dimer interaction

.... J' : The inter-dimer interaction

図 3.1.3 Cu^{2+} による直交ダイマー格子と相互作用 J 、 J'

3.2 Shastry-Sutherland 模型

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の磁氣的性質は二次元直交ダイマー・ハイゼンベルグ模型

$$H = J \sum_{n,n} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S} + J' \sum_{n,n,n} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (3.2.1)$$

によりよく再現できる (図 3.2.1)。ここで \mathbf{S}_i , \mathbf{S}_j は格子 i , j にあるスピンを示す。ここでは最近接相互作用(nearest neighbor interaction) J と次最近接相互作用(next- nearest neighbor interaction) J' が存在し、隣り合う二つの最近接ボンド J が直交していることが、重要な役割を持っている。この模型は二次元直交ダイマー・ハイゼンベルグ模型と呼ばれている[17]。図 3.2.1 に示すようにこの二次元直交ダイマー・ハイゼンベルグ模型は 1981 年に B. S. Shastry と B. Sutherland によって提唱されたモデルとトポロジカルに等価な模型であり[18]、しばしば Shastry-Sutherland 模型と呼ばれる。 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は、それまでは机上の理論でしかなかったこの模型を実現する唯一の物質であることが 1999 年に Kageyama 等によって発見され、現在に至るまで注目を浴びている。

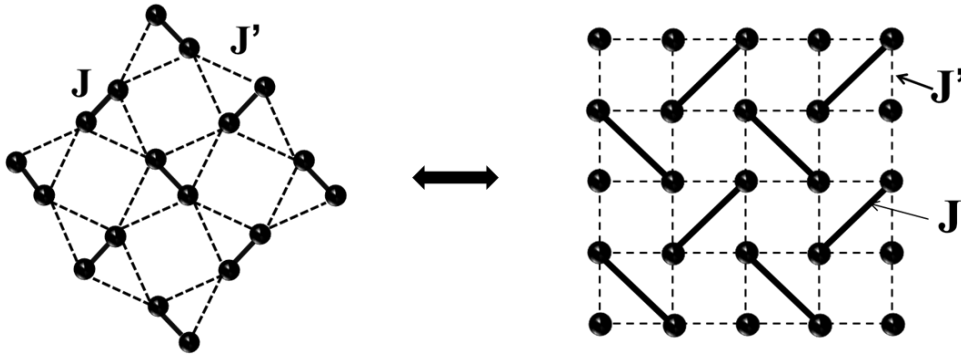


図 3.2.1 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ (左) と Shastry-Sutherland 格子 (右)

● 基底状態

この系では最近接相互作用 J と次最近接相互作用 J' の条件を変えていくと、少なくとも二つの基底状態を持てることが明らかである。一つは J が大きい極限でのスピングャップを持つダイマー・一重項状態であり、もう一つは J' が大きい極限でのギャップが開かない長距離秩序を持つ状態である。この二つの状態間において、最近接相互作用 J と次最近接相互作用 J' との兼ね合いによって量子相転移が起こることが知られている[19]。一般的に二次元系では、基底状態の波動関数を厳密に表記することは困難とされるが、ダイマー・一重項状態の場合はこの波動関数を厳密に表すことができる。この直交ダイマー・ハイゼンベルグ模型のダイマー・一重項状態における厳密な基底状態は次の式で表される[20]。

$$|\psi\rangle = \prod_a |s\rangle_a \quad (3.2.2)$$

$$|s\rangle_a = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle_a - |\downarrow\uparrow\rangle_a) \quad (3.2.3)$$

a は最近接ボンドを示す。この状態は最近接ボンド上で一重項を組む状態で、直交ダイマー模型の固有状態を表している。

● 量子相転移

二次元直交ダイマー模型では基底状態における量子相転移についてこれまでに多くの理論的な議論がなされおり、現在も研究が進行中である。表 3.2.1 はこれまでに議論がなされてきたものをまとめたものである。

表 3.2.1 直交ダイマー模型の量子相転移の過去の研究
 $(J'/J)_{C1}$ はダイマー・一重項状態から直接相転移する場合の臨界点
 $(J'/J)_{C2}$ は中間相から Neel 状態へ相転移する場合の臨界点

Main method	$(J'/J)_{C1}$	$(J'/J)_{C2}$	Intermediate phase
Variational method [18]	0.5	-	-
Schwinger boson mean field theory [19]	0.6	0.9	Helical ordered state
Exact diagonalization[17] (up to 20 sites)	0.70(1)	-	-
Ising expansion[20]	0.691(6)	-	-
Dimer expansion[21]	0.697(2)	-	-
Plaquette expansion[22]	0.677(2)	0.86	Plaquette singlet
Exact diagonalization[23] (up to 32 sites)	0.67	> 0.71	Plaquette singlet

これまでに、この系の基底状態の相図として3つの可能性が考案されている。一つはダイマー・一重項状態から反強磁性的な Neel 状態に直接相転移するような相図で、厳密対角化による有限系の計算により期待される。その他の二つについては中間層の存在が提唱されている。一つは Koga、Kawakami らによって提唱された Plaquette 状態を中間層とする相図で、スピンギャップを持つ[22]。もう一つは Helical 秩序を基底状態に持つ相図で Albrecht と Mila によって示された[19]。

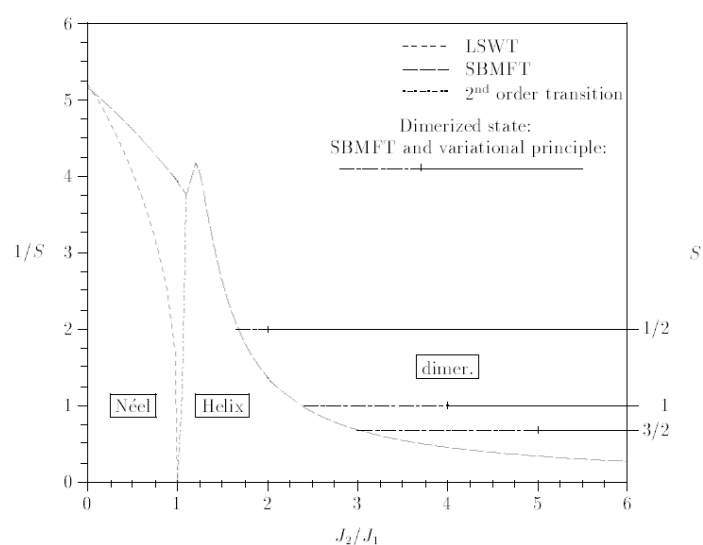


図 3.2.2 Albecht と Mila による相図[19]

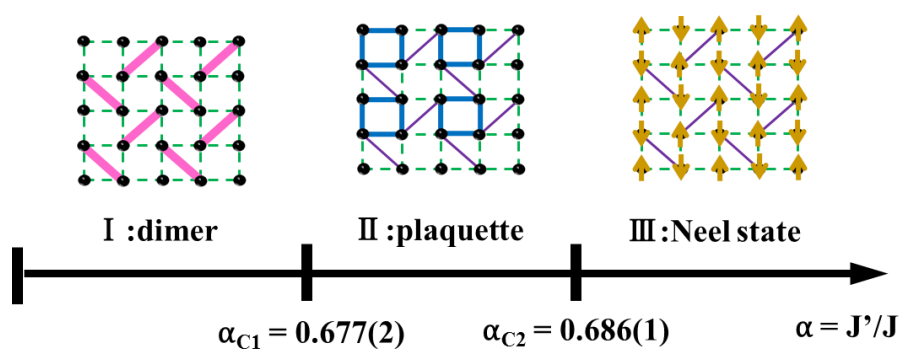


図 3.2.3 Koga と Kawakami によって提唱された量子相転移について[22]

本研究で取り扱う $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は、これまでの実験からスピングャップを持つことは明らかであり、ダイマー相あるいは Plaquette 相に位置することは間違いないが、さらにこれまでの様々な実験からダイマー相が基底状態であると考えられている。

3.3 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ のスピンギャップ

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の帯磁率 (χ) の温度依存性は図 3.3.1 に示すように、極大を持った後、低温で磁化率がゼロに向かって減少するように振る舞い、スピンギャップの存在を示している[24]。 χ は高温領域では Curie-Weiss 則に従い、Weiss 温度 $\theta = -97.8 \text{ K}$ 、 $g\text{-factor} = 2.28$ と計算された。これよりスピン間の相互作用は反強磁性的な振る舞いをすることが予想できる。低温にしていくと約 15 K で極大を持つ。さらに低温領域では、 0 へ向かって急激に減少し、やがてダイマー基底状態へ到達する。約 4 K 以下で Curie-like な χ の増加が見られるが、これは不純物等によって生じる結晶内の欠陥によるものである。

この帯磁率の 6 K 以下での fitting により $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ のスピンギャップを見積もると、 $\Delta = 34 \pm 1 \text{ K}$ となることが報告されている。帯磁率以外の研究によってもスピンギャップの見積もりがなされているのでそれらの結果を表 3.3.1 に示す。

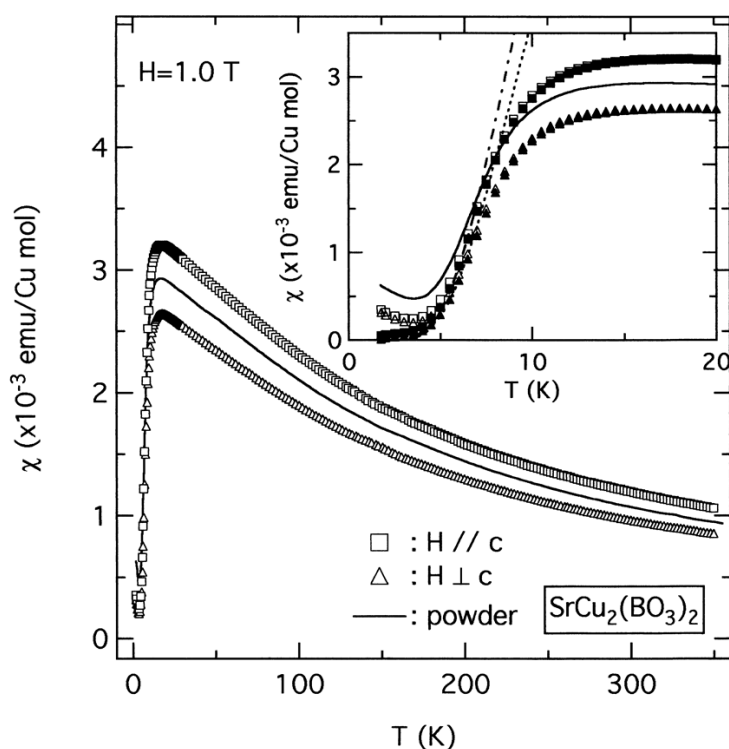


図 3.3.1 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の磁化率の温度依存性[24]

表 3.3.1 過去の実験結果からのスピングャップの見積もり

Method	Spin Gap
Magnetic susceptibility[4]	34 ± 1 K
Cu NQR[14]	30 K
Magnetization Curve[4]	31.3 K
Cu NMR Knight shift[24]	35 K
B NMR[24]	36 K
Specific heat[25]	35.0 K
ESR[26]	34.7 K
Neutron scattering[27]	35 K
Raman scattering[28]	35.2 K
Far infrared spectroscopy[29]	34.8 K

3.4 直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の磁化過程の研究

これまで $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の磁化過程については、Kageyama らによって 69 T まで明らかにされている[30]。この測定では、 Cu^{2+} イオンの全磁化の 1/8、1/4、1/3 に対応する磁化プラトーが観測された。この特異な磁化プラトーの発見により、 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ にさらに多くの興味が集まった。

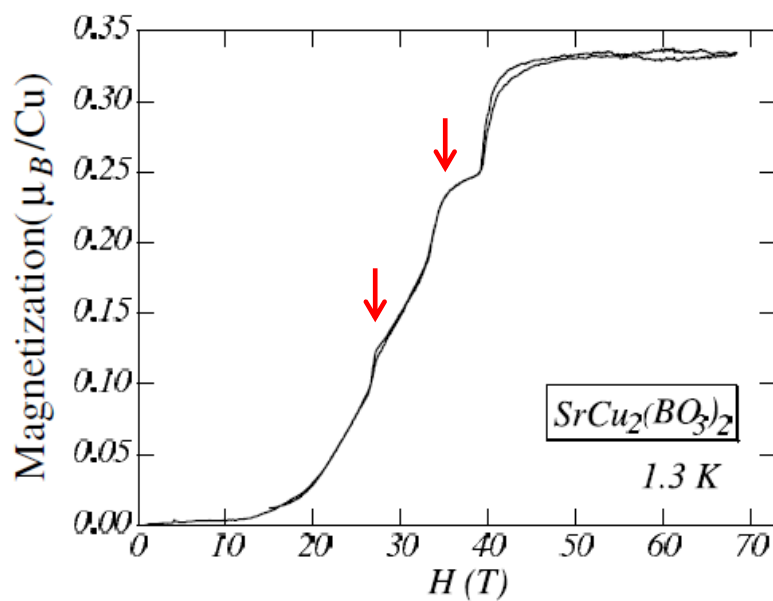


図 3.4.1 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の磁化曲線[30]

これらのプラトーの出現の要因は三重項励起の局在性が強いことに起因すると考えられている[17]。ダイマー・一重項状態の励起状態として、一重項が三重項へ励起される状態が考えられる。そしてこの三重項は、周囲の Cu^{2+} イオンとのフラストレーション効果により運動エネルギーが減少するため局在化する[31]。

印加する磁場を高めていくと、部分的に励起された三重項が結晶化することで安定な状態を形成し、磁気励起に対するギャップが生じることでプラトー領域が出現する。このような観点から、この磁化プラトーに対してこれまでに様々な理論研究がなされてきた。その多くはさらに高磁場中での実験を行なうことで、1/2 プラトーの存在も示唆している[32-36]。

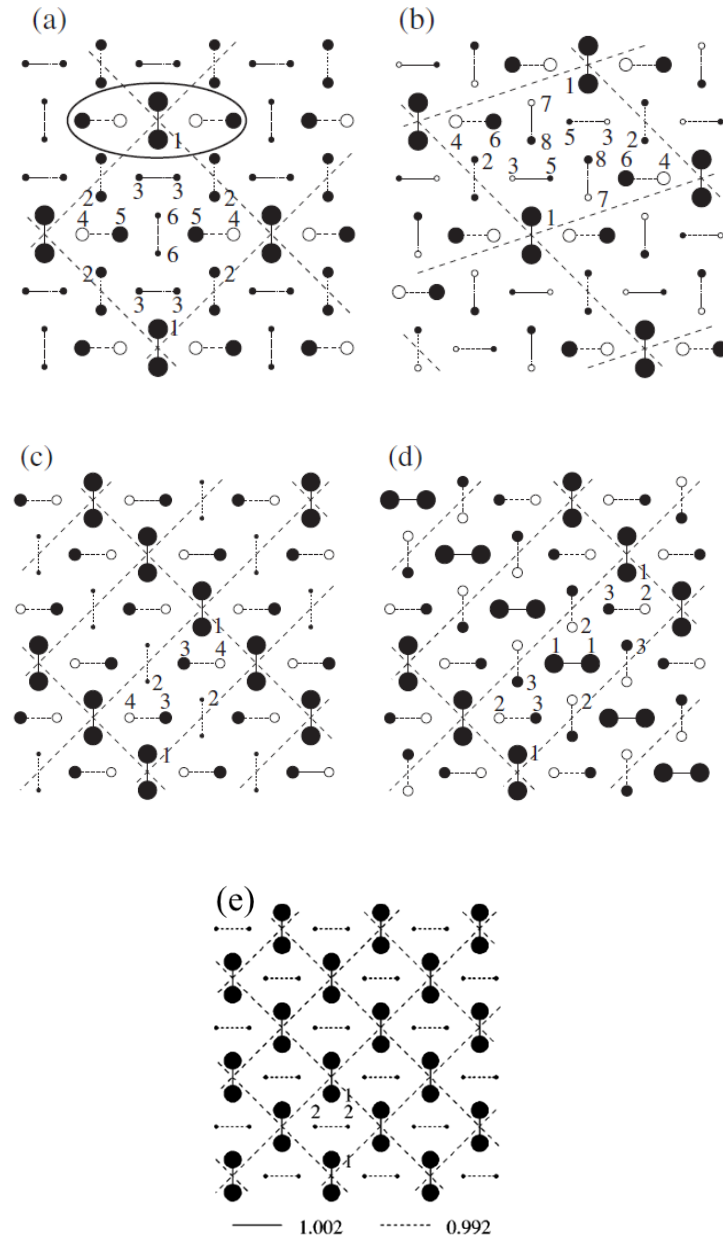


図 3.4.2 各プラトー領域で予想されるスピン密度プロファイル[34,35]
 (a),(b)は 1/8、(c)は 1/4、(d)は 1/3、(e)は 1/2 プラトー領域で予想されるスピン密度
 プロファイル。黒丸（白丸）は磁場に対して平行（反平行）なスピンを示す。
 丸の大きさは磁気モーメントの大きさを示す。

Momoi と Totsuka は三重項励起を粒子とみなした模型（ハード・コア・ボソン模型）を使ってこのボソンについての有効ハミルトニアンを摂動計算により導き出した[33]。これらの粒子は磁気モーメントを有しているため粒子密度が磁場に応答し、それらはもとのスピン系の磁化曲線に対応する。図 3.4.2 は $J'/J = 0.6$ から求めた磁化曲線と $N=24$ における厳密対角化による磁化曲線の計算結果を示している。

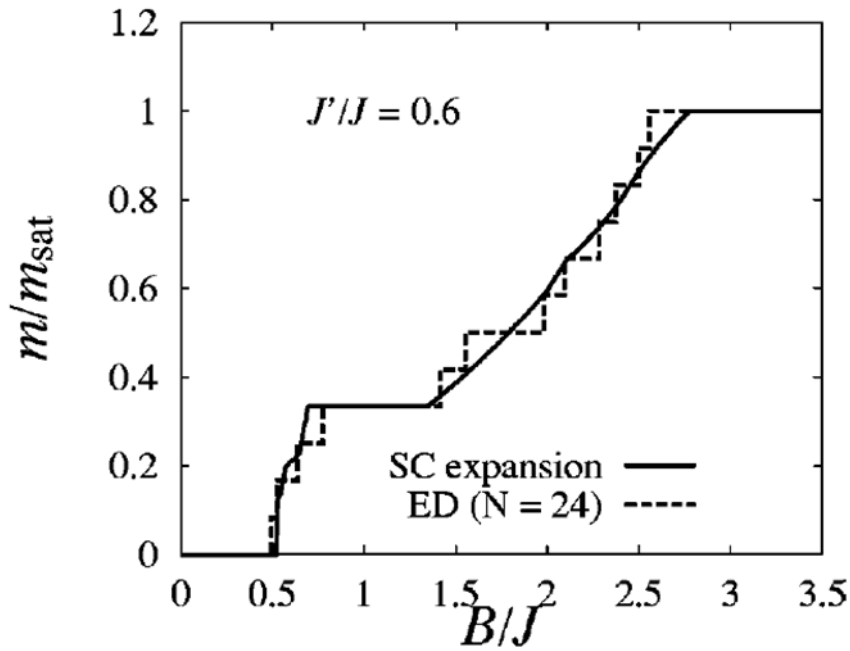


図 3.4.3 Shastry-Sutherland 模型 ($J'/J = 0.6$) における磁化曲線[33]

これらのプラトー領域では図 3.4.2 に示すような、ボソンがスピン密度波 (SDW) 構造と呼ばれる三重項励起が結晶化した状態の長距離秩序を形成している[33]。

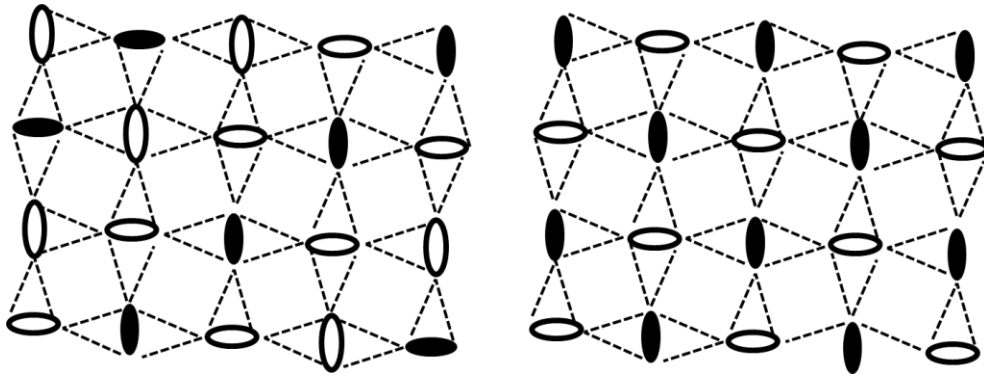


図 3.4.4 $M/M_{\text{sat}} = 1/3$ (左) と $1/2$ (右) のプラトー状態におけるスピン構造。白ボンドが一重項、黒ボンドが三重項を示す[32]。

さらに Momoi と Totsuka は $1/3$ プラトーと $1/2$ プラトーの後に Supersolid 状態へ連続的に変化していくことを示唆している。この Supersolid 状態では、SDW 状態と、Superfluid 状態が共存している。この Superfluid 状態では一重項と三重項の線型結合で表せられる擬スピンの現れる [33,37,38]。図 3.4.5 は Momoi と Totsuka によって提唱された $1/3$ プラトーと $1/2$ プラトーから生じる Supersolid 状態の概念図である。結晶化した三重項励起のストライプの間の領域で Superfluid 状態の擬スピンの現れ

ている。この領域では並進対称性が保たれたダイマーを形成しており、この領域内では一部励起された三重項は自由に移動することができる。プラトー相が無くなる臨界磁場はちょうど Superfluid が生じ始める値になる。

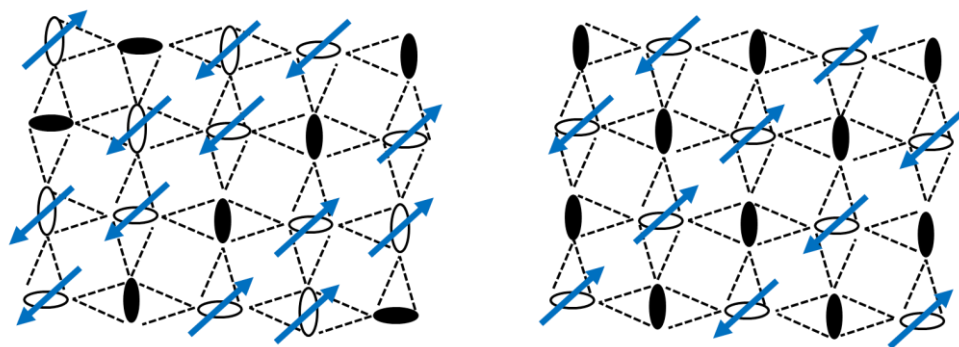


図 3.4.5 1/3 プラトー（左）と 1/2 プラトーから生じる Supersolid 状態のスピ構造。矢印は一重項と三重項の線形結合で表される擬スピン[33]。

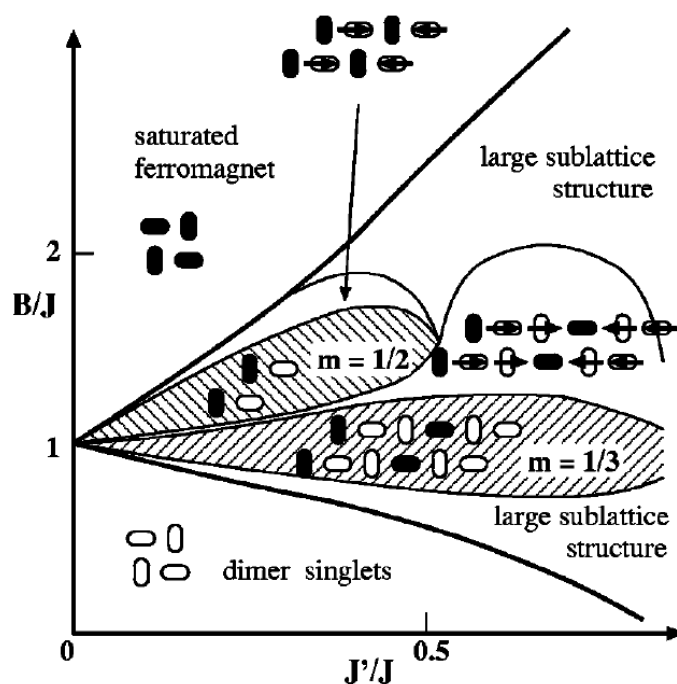






図 3.4.6 $T=0\text{ K}$ の J'/J vs B/J の相図[33]

上部と下部の二つの太線は最初の転移磁場と飽和磁場を示す。

白ボンドは一重項を示し、黒ボンドは三重項を示す。

また、Matsuda と Tsuneto は、この Supersolid 状態や Superfluid 状態のスピ構造について、並進対称性と回転対称性の観点から次の表 3.4.1 に示すように理解している[39]。

表 3.4.1 Matsuda と Tsuneto によるスピン構造と各物質相の対応表[39]

		Rotational symmetry	
		No	Yes
Translational symmetry	Yes	 Ferro Normal Fluid	 Spinflop Superfluid
	No	 Antiferro Normal Solid	 Intermediate SuperSolid

3.5 研究目的

これまで述べてきたように、直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は量子スピン系として興味深い物性を示し、特に磁化プラトー及びその前後の磁化過程の微視的理解については未だ議論のあるところである。さらには、これまで測定されていなかった高磁場領域において新たな磁化プラトーや、**Surpersolid** に対応する磁化過程が、予想されており、強磁場下での磁化過程は興味深い。そこで本研究の目的は、100 T 以上の磁場発生が可能な一巻きコイル法を使った磁化測定手法を用い、直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の超強磁場下での磁化過程を極低温において明らかにすることである。

4. 実験手法

4.1 強磁場発生方法[40]

磁場の発生方法としてはじめに思いあたるのは、コイルに電流を流して発生させる電磁石である。この電磁石は強い電流を流すほど強い磁場が発生できるわけだが、この場合消費電力とコイルに発生するジュール熱が増大するという問題があるため限界がある。そのため物性測定分野では、必要とされる強磁場を得るために、図 4.1.1 に示す幾つかの特殊な方法を用いている。

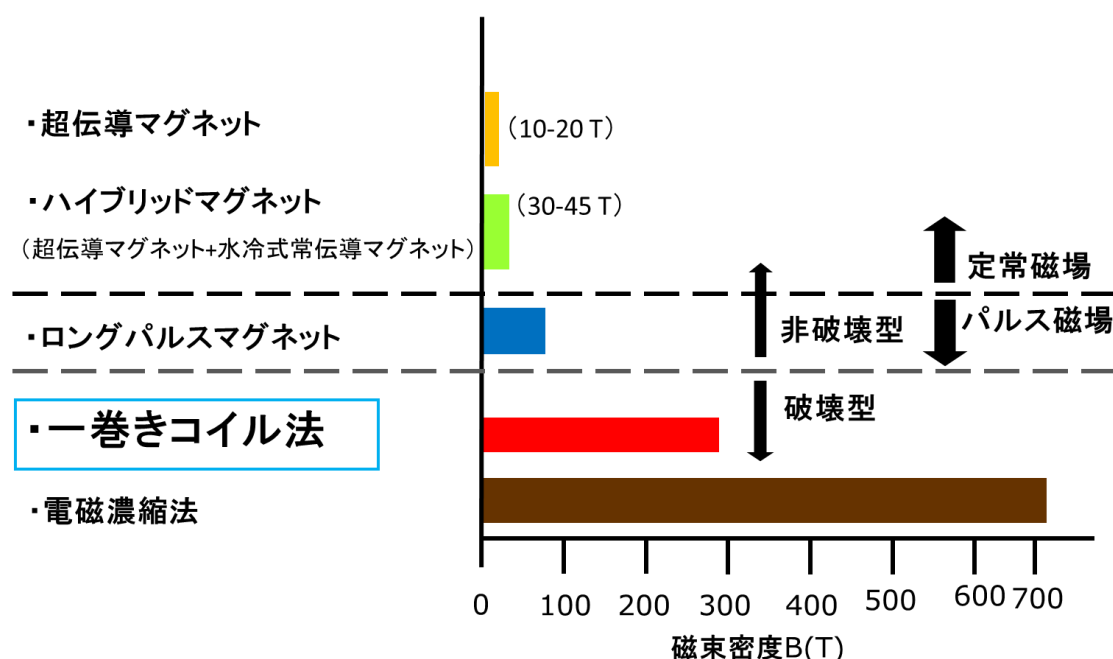


図 4.1.1 主な強磁場発生手法

定常磁場では、上記の問題を解消するためにコイルを巻く線材に超伝導体を使用した超伝導マグネットがある。しかし超伝導物質には、臨界磁場と臨界電流があるためこのマグネットでは最大 20 T 程度の磁場発生が限界となる。超伝導マグネットと水冷式銅マグネットを合わせたハイブリッドマグネットでは、最大 45 T 程度の定常磁場発生が実現しているが、大量の冷却水を要する点や、膨大な消費電力がかかるという点から、コスト面での欠点がある。

さらに強い磁場を得るためには、電流をパルス化して瞬間的に大電流を流すことで消費電力とジュール熱を抑えた、パルスマグネットによる磁場発生が必要である。しかしここで第二の問題が生じてくる。それはコイルに生じる Maxwell 応力である。コイルに電流を流した場合、そのコイルには 4.1 式に示す Maxwell 応力がコイルを広げる方向に加わる。

$$F = \frac{1}{2} \mu_0 H^2 \quad (4.1)$$

この Maxwell 応力がコイルの線材強度を上回るとき、コイルは破壊されてしまう。コイルの開発が進められ最近では、最大磁場が 100 T を更新し、磁歪等の一部の物性測定が可能になっている[41]。100 T よりさらに高い磁場領域での測定を実現するためには、コイルの破壊を伴う磁場発生が必要になる。このコイル破壊型の超強磁場発生方法には、最大 300 T 程度の磁場発生が可能な一巻きコイル法と最大 730 T 程度までの磁場発生が可能な電磁濃縮法がある[40]。

本研究では、100 T を超える超強磁場下での磁化測定としてコイル破壊型の一巻きコイル法を使用したのもので、その詳細について以下に説明する。

● 一巻きコイル法

一巻きコイル法はコイル破壊型の超強磁場発生方法で、図 4.1.2 に示すような回路からなりこの名前の由来のとおり厚さ 3 mm の銅板を折り曲げて作製された一巻きのコイルを使用する手法である。

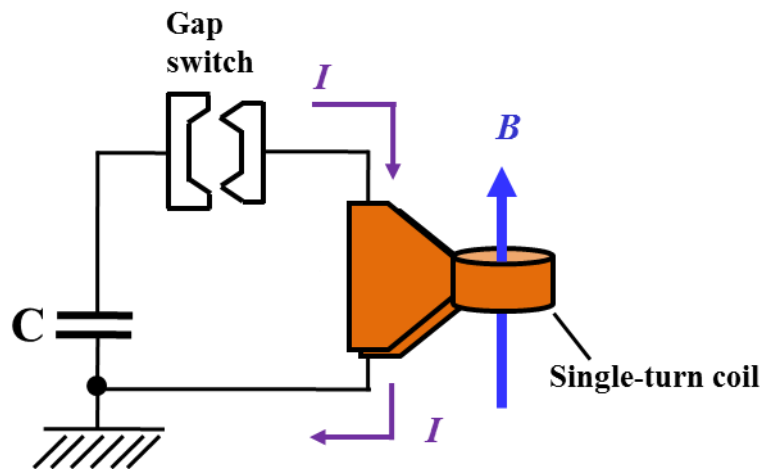


図 4.1.2 一巻きコイル法の電気回路

この一巻きのコイルにギャップスイッチを介してコンデンサーバンクに充電した電荷を 10 μsec 程度の非常に短い時間で瞬間的に放電させることで、コイルが Maxwell 応力により破壊される前に磁場発生を行なう。コンデンサーバンクには最大 200 kJ（ $C = 250 \mu\text{F}$, $V = 40 \text{ kV}$ ）まで充電可能で、ギャップスイッチを介して放電することで瞬間的に 3~4 MA 程度のパルス電流が発生する。破壊の過程でコイルの径が大きくなってしまうとコイル内の磁束密度が減少してしまうため、コイルの破壊が始まる前に磁場発生することが重要となる（図 4.1.3）。そのためコイルのインダクタンスを極力小さくする必要があり、一巻きのコイルが採用されている。磁場発生の際に一巻きコイルは、図 4.1.4 のように破壊されてしまうが、このときコイルは Maxwell 応力

により外向きの力を受けるので、コイル内部にセットされた試料や冷却システム等は基本的に無傷のまま残されるため、一巻きコイルを随時交換しながら繰り返し同じ条件の測定が可能である。これは一巻きコイル法の最大のメリットとも言える。

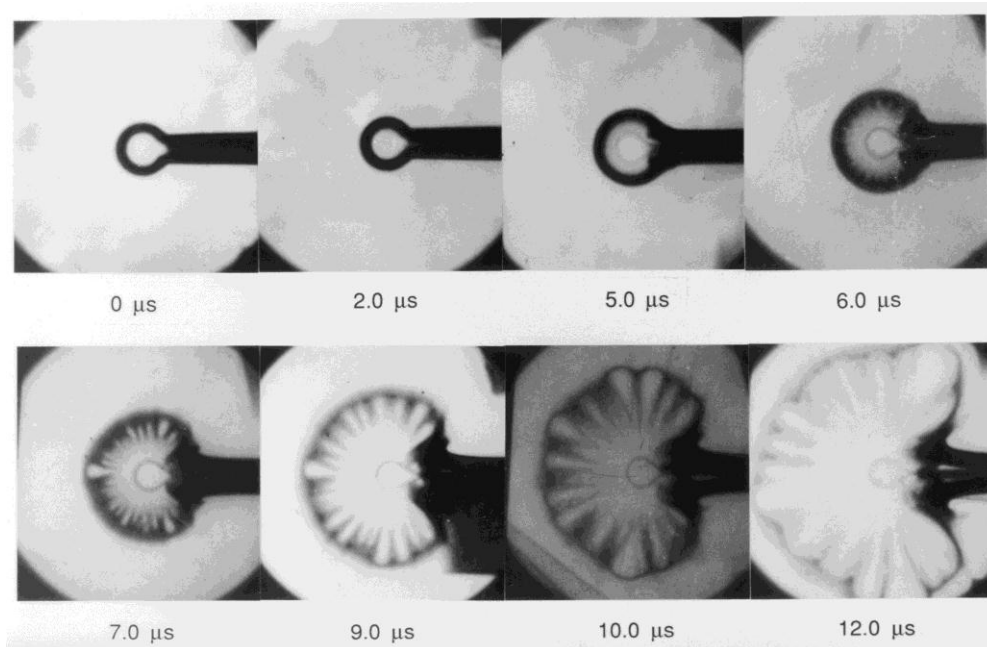


図 4.1.3 一巻きコイルが破壊される様子[40]



図 4.1.4 実験前後の一巻きコイルの写真

磁場の測定は直径 1.0 mm のカプトンチューブに直径 0.06 mm の銅線を数巻きしたピックアップコイルを使用した。電磁誘導の法則から、ピックアップコイルで検出される誘導起電力は磁場の時間微分に相当するので、この信号に対し 1/30 減衰器を通して読み取ったものを数値積分して磁場波形を得る。図 4.1.5 に磁場波形を示す。

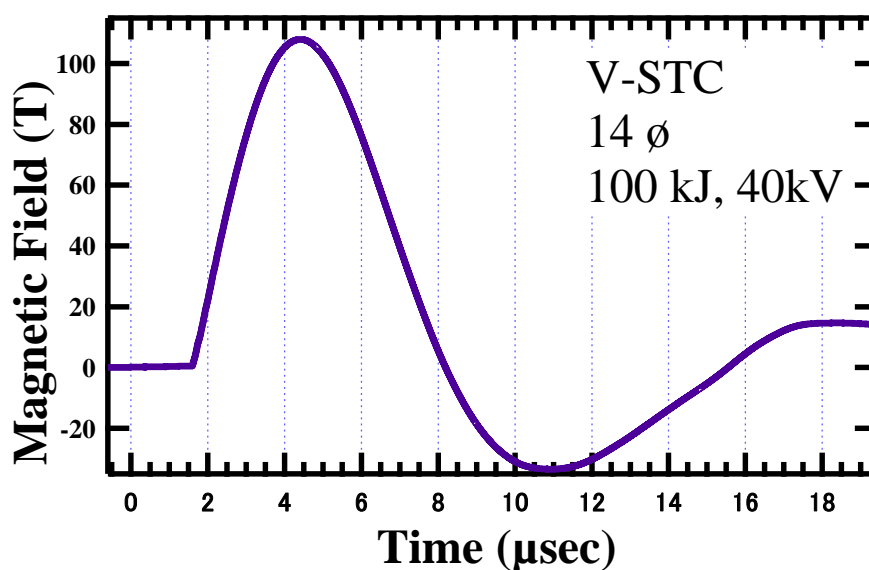


図 4.1.5 一巻きコイル法による発生磁場波形

現在、物性研究所国際超強磁場科学研究施設では横型及び縦型の二つの異なるタイプ（縦型、横型）の一巻きコイル法による超強磁場発生装置があり[42]、本研究では、液体ヘリウム温度以下の極低温環境が重要であり、一巻きコイル内部にクライオスタットを挿入した状態で、液体ヘリウムを溜める必要があるため、縦型一巻きコイル法を使用する。この縦型一巻きコイル法超強磁場発生装置は、最大電圧 40 kV、コンデンサーバンクへの最大蓄電エネルギーが 200 kJ となっている。また本研究では、コイル内部に挿入するクライオスタットの外径を考慮して、コイルの内径が 14、14.5、及び 16 mm のものを使用した。

4.2 低温環境

本研究では、液体ヘリウム温度以下の極低温環境が必要であることは前述したとおりであるが、縦型一巻きコイル法による超強磁場発生と極低温環境の両立させるためには、SQUID 等で使用されているような、一般的な冷却システムとは異なる特殊な材質のクライオスタットが必要となる。本研究では縦型一巻きコイル法超強磁場発生装置に対応した冷却システムとして、図 4.2.1 に示すようなクライオスタットを使用する。これは一般的なクライオスタットと同様に液体ヘリウム層、液体窒素層及び二つの真空層からなる四重構造になっている。コイルの破壊を伴う一巻きコイル法ではクライオスタットをコイル内部に挿入する必要があるため、空間的に制限される（図 4.2.2）。また、100 T 以上の磁場がマイクロ秒オーダーの掃印速度で発生する一巻きコイル法では、クライオスタットへの渦電流効果を防止するため、金属製のものは使用できない。そのためコイル内部への挿入部分は、Fiber-Reinforce Plastic (FRP) を使用している。

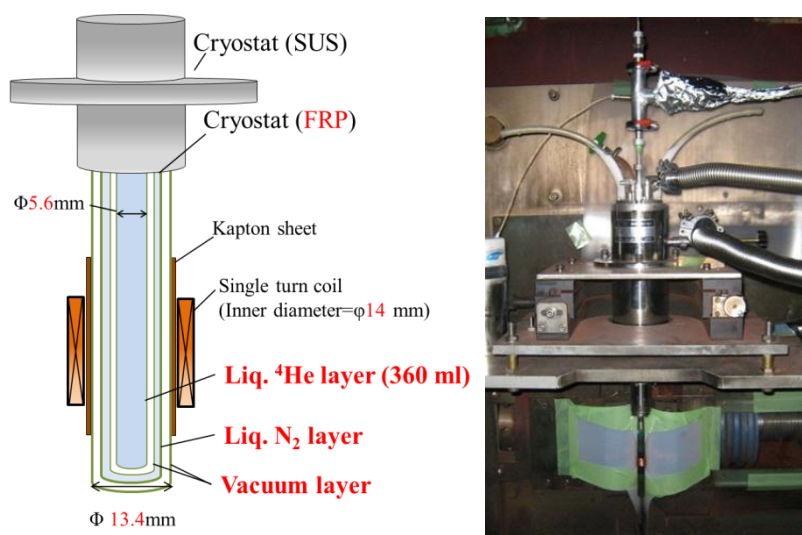


図 4.2.1 縦型一巻きコイル用クライオスタットの構造の概略図と写真

また、液体ヘリウム層を減圧することで、2 K 程度まで冷却できる。

表 4.2.1 縦型一巻きコイル用クライオスタットの性能
Time は温度持続時間を示す。

Temperature	Time
4.2 K	5 hours
2.1 K	2 hours

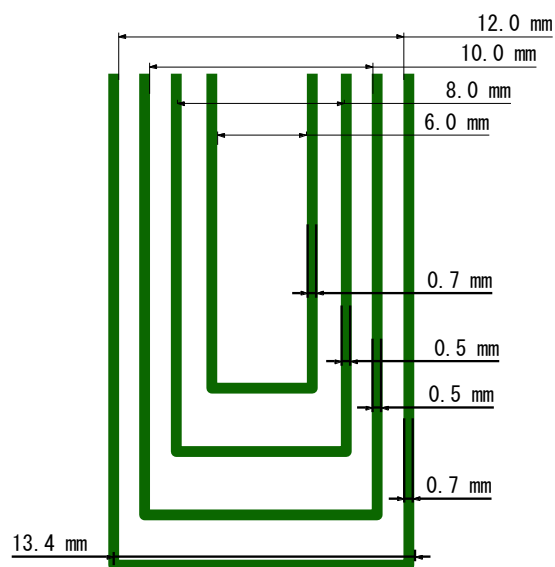


図 4.2.2 縦型一巻きコイル(14.0mm)用クライオスタットの
コイル挿入部分の概略図

● クライオスタットの作製手順&留意点&改良点

縦型一巻きコイル用液体ヘリウムクライオスタットは本体部分が SUS304 になっている。磁場発生の際に破損の恐れのある部分を着脱可能にしており、この各層を隔てる SUS パーツに低温接着剤（ニトフィックス）で FRP 部分を接着する。



図 4.2.3 ニトフィックスとクライオスタットの SUS パーツ部分の写真

SUS パーツと本体はインジウム ($1.0\text{mm}\phi$) によりシールする。このインジウムシールに不備があると、期待されるヘリウム温度持続時間を維持できない。図のように本体と接することになる SUS パーツの溝にインジウムを押し込み、インジウムが SUS パーツに確実に接着された状態にしてから本体と合わせてシールする。このとき本体と SUS パーツは S-ワッシャーとワッシャーをつけた状態で $\text{M}3\times 8\text{mm}$ の六角ボルトで仮締めした後、1 時間後に増し締めするのが望ましい。



図 4.2.4 SUS パーツにインジウムを接着した状態の写真

従来までは、SUS パーツと FRP の接合部分は、FRP の内側に SUS パーツを差し込むタイプだったが、二つの熱収縮率を考慮して同じ径の SUS パーツと FRP を外側から厚さ 0.15 mm の極薄 SUS パイプで接続するタイプにしたところ、低温時の接合部分の強度がかなり向上した。



図 4.2.5 SUS パーツと FRP パーツの接合部分（ニトフィックス塗布前）と極薄 SUS パイプの写真

内側の 3 つの FRP 部分には二つの真空層と液体窒素層のスペーサーの役割として釣り糸 ($\phi 0.128\text{ mm}$) を約 1 cm 間隔で巻きつける。液体窒素層にもスペーサーとし

て、下部まで液体窒素がスムーズに流れるようにするために念のため同様に釣り糸つけておくのが望ましい。



図 4.2.6 SUS パーツと FRP をニトフィックスにより接着した後
釣り糸を巻いた状態の写真

後に紹介するが本研究では、直径 14 mm, 14.5 mm, 16 mm の一巻きコイルを使用した。当初 14 mm コイル用のクライオスタットの規格で他のコイル径での測定も行ってきた。しかし、測定を重ねるうち、大きな径の一巻きコイルを用いて 14 mm コイル用クライオスタットを使用すると、一巻きコイルとクライオスタットとの間に多少の間隔があるためクライオスタットが不規則に振動し、磁場発生時に生じるノイズに再現性が得られないことがわかった。そこでこのクライオスタットの振動を抑えるために、一番外側の FRP パーツを新たに設計し、大きな径に対応したクライオスタットを考案した。図に 14 mm、14.5 mm, 16 mm コイル用の外側の FRP パーツの設計図を示す。

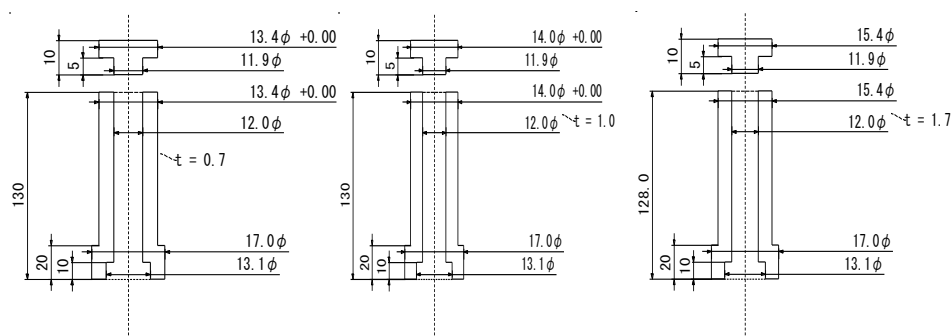



図 4.2.7 クライオスタット外側 FRP パーツの設計図

そしてここで特筆すべきことは外側の FRP パーツを厚くしたことで強度が増したため、さらに高い磁場発生 of 衝撃に耐えられるようになったという点である。これまで液体ヘリウム温度では 14 mm の一巻きコイルにより 120 T までの磁化測定が可能であった。そして本研究による新たなクライオスタット部品の開発により最大で 140

T までの磁化測定に挑戦できた。

<u>14 mm, AB-bank, 35 kV</u>	<u>120 T</u>
	
16 mm, AB-bank, 40 kV	133 T
14.5 mm, AB-bank, 40 kV	<u>140 T</u>

4.3 磁化測定

磁化測定はパラレルタイプのピックアップコイルを用いて誘導法により検出する。図 4.3.1 に磁化ピックアップコイルの写真を示す。外径 1.12 mm のカプトンチューブに直径 0.06 mm の銅線 (AIW(polyamide-imide enamellad round copper winding wires)) をそれぞれ逆巻きに 20 回巻いたものを直列に接続して、磁場による誘導起電力をできる限りキャンセルするように努めた。

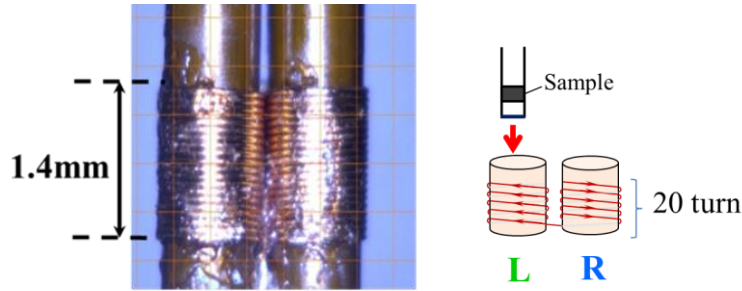


図 4.3.1 パラレルタイプに巻いたピックアップコイルの写真と概略図

測定時には試料を左右どちらかのコイルにのみ挿入する。このとき、左右のピックアップコイルで検出するパルス磁場の強さを $B_{\text{ext}} = \mu_0 H_{\text{ext}}$ 、単位体積あたりの試料の磁化を M とすると、試料を挿入したコイルと挿入していないコイルの磁束密度は

$$\begin{aligned} B_i &= \mu_0 H_{\text{ext}} + \mu_0 S M \\ B_o &= \mu_0 H_{\text{ext}} \end{aligned} \quad (4.3.1)$$

となる。左右のコイルの断面積を S_L, S_R 、巻き数を n_L, n_R とすると、それぞれのコイルにおいける内部の磁束 Φ_L, Φ_R は、

$$\begin{aligned} \Phi_L &= \mu_0 n_L S_L H_{\text{ext-L}} + \mu_0 n_L S_L M \\ \Phi_R &= \mu_0 n_R S_R H_{\text{ext-R}} \end{aligned} \quad (4.3.2)$$

となる。ここでは試料を左 (L) のコイルに入れ、右 (R) は空であるとした。また、左コイルと右コイルの位置が異なるため、磁場の不均一性を考慮して磁場をそれぞれ $H_{\text{ext-L}}, H_{\text{ext-R}}$ とした。パルス磁場を印加したときのコイル L とコイル R は極性が逆向きになるように接続されているので誘導起電力 V は、

$$V = - \frac{d(\Phi_L - \Phi_R)}{dt} = - \mu_0 n_L S_L \frac{dM}{dt} - \mu_0 (n_L S_L \frac{dH_{\text{ext-L}}}{dt} - n_R S_R \frac{dH_{\text{ext-R}}}{dt}) \quad (4.3.3)$$

が発生することになる。ピックアップコイルは $n_L S_L - n_R S_R \cong 0$ となるように慎重に作製するため、仮に $H_{\text{ext-L}} \cong H_{\text{ext-R}}$ であれば、4.3.3 式の右辺第二項はほぼ 0 となる。この機能を本論文では自己補償と呼ぶことにする。ピックアップコイルで検出した起電力は、

$$V \propto \frac{dM}{dt} \quad (4.3.4)$$

となり、この信号をオシロスコープで検出し、積分計算することで磁化 M を求めることができる。

$$M(t) \propto \int V(t) dt \quad (4.3.5)$$

しかし実際には、(4.3.3)式の右辺第二項の成分は有限に残り、測定誤差となる。そこで、試料を右コイルに入れて同じ条件で同様に測定して、二つの測定結果の差分を取り、この成分をできる限り除く。これによりさらに正確な信号を得ることができる。ピックアップコイルの左コイルに試料を入れた場合の 4.3.2 式と 4.3.3 式を次のように書き換える。コイルのそれぞれの位置での磁場は $H_{\text{ext-L1}}$ 、 $H_{\text{ext-R1}}$ とした（磁場発生一回目）

$$\begin{aligned} \Phi_{L1} &= \mu_0 n_L S_L H_{\text{ext-L1}} + \mu_0 n_L S_L M \\ \Phi_{R1} &= \mu_0 n_R S_R H_{\text{ext-R1}} \end{aligned} \quad (4.3.6)$$

$$V_1 = - \frac{d(\Phi_{L1} - \Phi_{R1})}{dt} = - \mu_0 n_L S_L \frac{dM}{dt} - \mu_0 (n_L S_L \frac{dH_{\text{ext-L1}}}{dt} - n_R S_R \frac{dH_{\text{ext-R1}}}{dt}) \quad (4.3.7)$$

次に試料を右コイルに入れて同じ条件で同様に測定した場合の磁束と起電力は以下のとおりになる。一巻きコイル法では、コイルは一度の磁場発生で破壊されるため、同型ではあるが厳密には別のコイルで磁場を発生させ、また、コイルの破壊の仕方も厳密には実験毎に異なる。そこで、左右のコイルのそれぞれの位置での磁場を $H_{\text{ext-L2}}$ 、 $H_{\text{ext-R2}}$ とおいた（磁場発生二回目）。

$$\begin{aligned} \Phi_{L2} &= \mu_0 n_L S_L H_{\text{ext-L2}} \\ \Phi_{R2} &= \mu_0 n_R S_R H_{\text{ext-R2}} + \mu_0 n_R S_R M \end{aligned} \quad (4.3.8)$$

$$V_2 = -\frac{d(\Phi_{L2} - \Phi_{R2})}{dt} = \mu_0 n_R S_R \frac{dM}{dt} - \mu_0 (n_L S_L \frac{dH_{ext-L2}}{dt} - n_R S_R \frac{dH_{ext-R2}}{dt}) \quad (4.3.9)$$

二回の磁場発生が等価であるとみなせる条件であるとすれば、 $H_{ext-L1} \cong H_{ext-L2}$, $H_{ext-R1} \cong H_{ext-R2}$ となり、 V_1 と V_2 の差をとると、(4.3.8)、(4.3.9)の右辺第二項はそれぞれ打ち消しあい、

$$V = V_2 - V_1 \cong \mu_0 (n_L S_L + n_R S_R) \frac{dM}{dt} \quad (4.3.10)$$

となり、磁化信号成分だけを取り出せる。

ここまでは、ピックアップコイルが試料の磁化の変化と磁場のみを検出する理想的な場合の磁化過程の導出について述べた。しかし実際の信号にはこのほかにも、高速の磁場発生に伴う様々な電磁ノイズ成分が加わる。そのため測定データから正確な磁化過程を得るためには、この電磁ノイズ成分を消去する方法が必要となる。電磁ノイズ成分は電極部分の火花放電や、ギャップスイッチの高電圧トリガ等に起因する複雑な時間依存性を持っており、完全に除去することはできないが、上記のように二回の測定をしてその差をとれば、このような電磁ノイズ成分についてもある程度は引きさることが可能である。

ここまででわかるように、一巻きコイル法での磁化測定ではピックアップコイルを精度良く作製することに加え、ノイズ成分も含めた磁場の再現性が極めて重要となる。

以下に得られた信号を磁化に変換する方法を述べる。ここでは電磁ノイズ成分を時間 t による磁化ノイズ成分 $f(t)$ とし、磁場の時間変化に比例するノイズ成分($\alpha(dH/dt)$)に分けて考える。ここで、近似的に右コイルと左コイルの場所における磁場の時間依存性の波形が、相似形であると仮定する。

$$H_{ext-R1} = \alpha H_{ext-L1} \quad (4.3.11)$$

$$H_{ext-R2} = \alpha H_{ext-L2} \quad (\alpha \text{ は定数}) \quad (4.3.12)$$

とすると、 V_1 、 V_2 は、式(4.3.7)、式(4.3.9)の V_1 、 V_2 に $f(t)$ を加えて、

$$V_1 = -\mu_0 n_L S_L \frac{dM}{dt} - \mu_0 (\alpha n_R S_R - n_L S_L) \frac{dH_{ext-L1}}{dt} + f(t) \quad (4.3.13)$$

$$V_2 = \mu_0 n_R S_R \frac{dM}{dt} - \mu_0 (\alpha n_R S_R - n_L S_L) \frac{dH_{ext-L2}}{dt} + f(t) \quad (4.3.14)$$

となる。さらに、一回目と二回目の磁場発生についても、同様に相似形の波形であると近似的に考えると、

$$\frac{dH_{ext-L2}}{dt} = \beta \frac{dH_{ext-L1}}{dt}, \quad \frac{dH_{ext-R2}}{dt} = \beta \frac{dH_{ext-R1}}{dt}$$

(β は定数) (4.3.15)

とできる。 V_1 と V_2 の差をとると、

$$\begin{aligned} V &= V_2 - V_1 \\ &= \mu_0(n_L S_L + n_R S_R) \frac{dM}{dt} + \mu_0(1 - \beta)(\alpha n_R S_R - n_L S_L) \frac{dH_{ext-L1}}{dt} \\ &= A \frac{dM}{dt} + B \frac{dH_{ext-L1}}{dt} \\ (A &= \mu_0(n_L S_L + n_R S_R), B = \mu_0(1 - \beta)(\alpha n_R S_R - n_L S_L)) \end{aligned}$$

(4.3.16)

となる。実際には、磁場は専用のピックアップコイルにより測定されるため、 H_{ext-L1} を H_{ext} と置き換えて考えることにする。このとき、 α 、 β の値は変わるが、上の議論はそのまま適用できる。式(4.3.16)を dH_{ext}/dt で割ると、

$$V / \frac{dH}{dt} = A \frac{dM}{dH} + B \quad (4.37)$$

となり、バックグラウンド成分である右辺第二項は時間に依存しない定数 (B) になる。解析では、(3.4.17)式右辺を数値積分して磁化を得るが、このとき定数 B をオフセットとして引き算することで、ノイズ成分を取り除いた磁化曲線を得る。

$$\therefore \int \left(\frac{dM}{dH} \right) dH \propto M \quad (4.38)$$

誘導法による磁化測定ではピックアップコイルをどれほど正確に巻けるかが良い精度で測定するための重要なファクターになってくる。殊に量子スピン系に属する磁性体は磁化の絶対値が小さいため、これまで同様の手法で測定されてきた試料に比べて、数十倍の精度での測定を必要とされる。

4.4 Setup（一巻きコイル法による超強磁場下での磁化測定）

縦型一巻きコイル法超強磁場発生装置を用いた誘導法による磁化測定の実験系の概略を図 4.4.1 に示す。

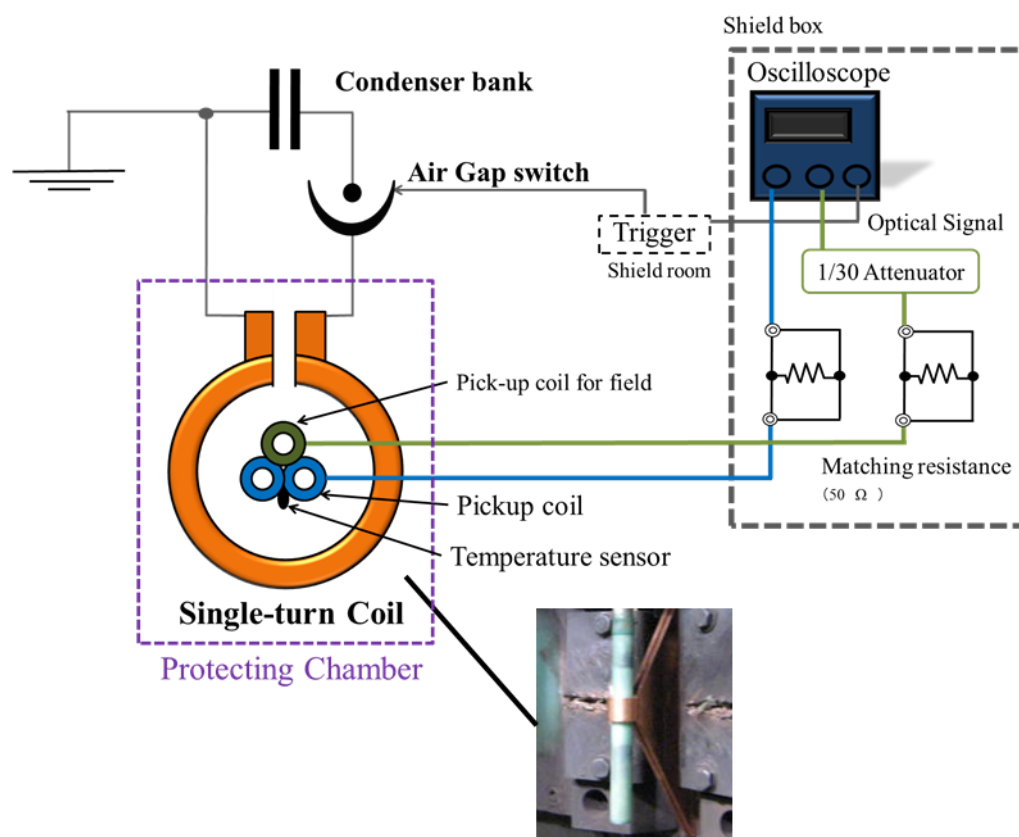


図 4.4.1 超強磁場下における磁化測定の概略図

ピックアップコイル及び試料は一巻きコイルに挿入されたクライオスタットに充填された液体ヘリウム内に配置されている。磁化の信号はパラレルタイプのピックアップコイルにより検出され（4.3 節参照）、磁場については磁化ピックアップコイルとは別に、外径 1.12 mm のカプトンチューブに 0.06 mm の導線を 4 巻き程度巻いたもので検出する（coil const. = 250-300）。ピックアップコイルより発生する誘導起電力はオシロスコープ（LeCroy : Waverunner 44Xi）より検出する。Sampling Interval は 2~0.2 ns で測定している。高速信号のインピーダンス整合をとるため、信号にはそれぞれ 50 Ω 程度のマッチング抵抗器をオシロスコープの入力端子に接続している。一巻きコイル法による磁場発生では、磁場発生と同時に瞬間的に大きな電磁波ノイズが生じる。この電磁波ノイズをいかに軽減できるかが非常に重要である。オシロスコープ等の測定器系はすべてシールド・ボックス（外側 Fe：厚さ 2.5 mm、内側 Al：3.0 mm）内に設置して実験を行なう。

● 磁化測定用プローブの作製

4.2 節で述べた縦型一巻きコイル用液体ヘリウムクライオスタットに対応した磁化測定プローブを開発した。(図 4.4.2) これは、[7]で紹介されているプローブをもとに作製し、幾つかの改良点を加えたものである。

プローブは液体ヘリウム層に直接浸されている状態になる。そのためプローブ内部は密閉されている必要がある。磁場発生時に生じるピックアップコイルの振動を抑えるため、磁化ピックアップコイルを巻いているカプトンチューブはプローブの先端部分に固定する必要がある。しかしピックアップコイルは磁場発生を繰り返すうちに衝撃により変形して磁場成分の自己補償が不十分になることや、断線する場合がある。そこで利便性を考えてピックアップコイルとプローブの先端部分の FRP パイプのみを取り替えて繰り返し使用できる構造にした。各パーツはできる限り接着剤を使用しないようにするため Wilson seal または O-ring で接続している。FRP パイプは低温接着剤ニトフィックスで接着しており、熱を加えると比較的簡単に外せるようになっている。

ピックアップコイルを巻いているカプトンチューブは、途中で同じ径のカプトンチューブで継がれ、プローブ上部のポリカーボネート製のパイプで外側から目視できる位置まで繋がっている。試料は直径 1.0 mm のデルリンロッド (約 1.2 m) の先端にスタイキャスト 1266 で接着したものを用意する (4.5 節参照)。これをプローブ上部から挿入しカプトンチューブを通して試料がピックアップコイルの中心に位置するようにセットする。試料の入れ替えはトップローディング方法であるため、試料空間の機密性を大きく破らずに行なえる。デルリンロッドをポリカーボネートパイプ部分まで Wilson seal の漏れに注意しながら引き抜き、左右のコイルのどちらかのチューブに通していく。サンプル自体を交換する際は、内圧を少し上げてから、ロッドを上部から引き抜いて交換する。

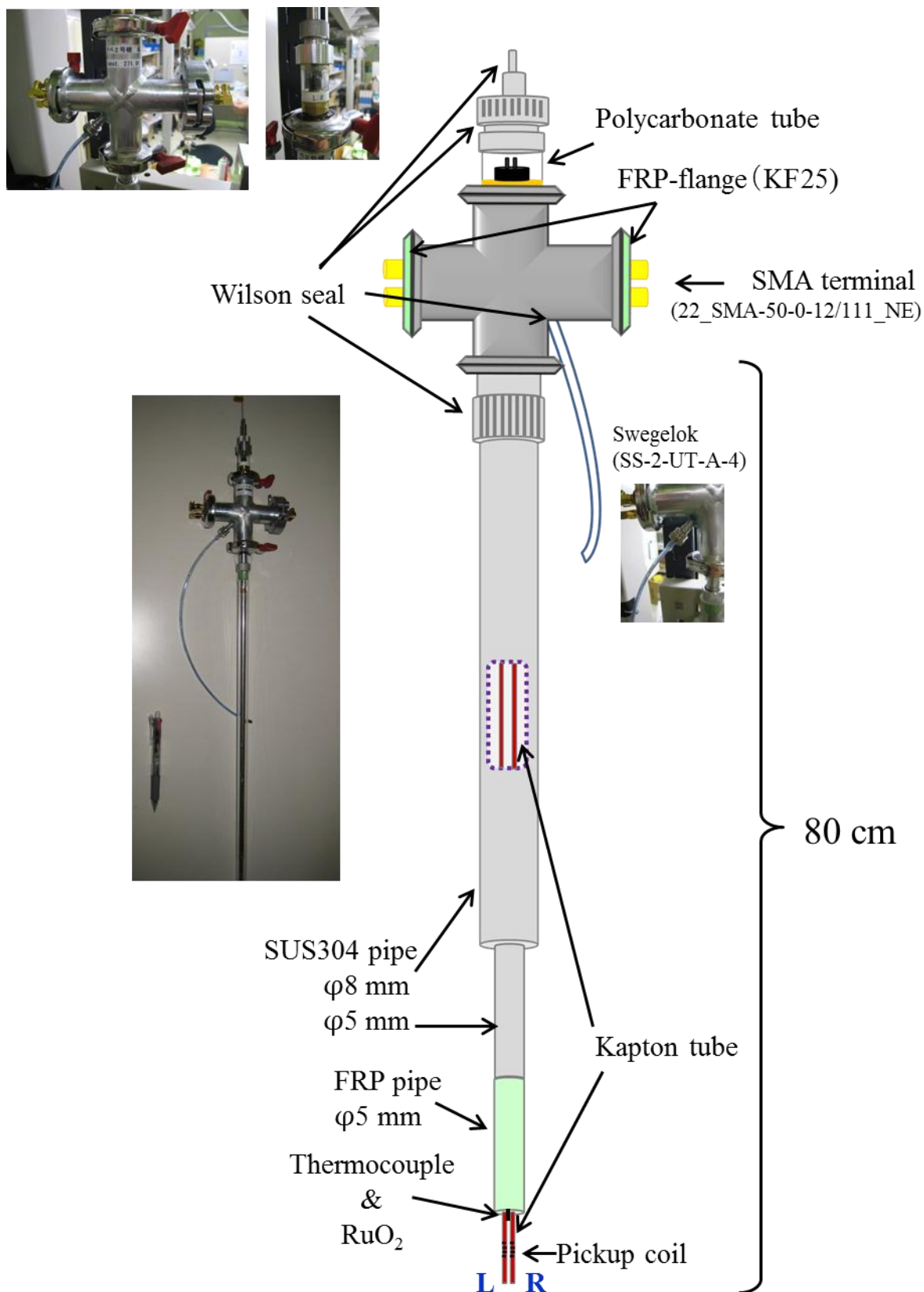


図 4.4.2 磁化測定プローブ概略図

● 温度測定

温度測定には、室温から 4.2 K までは Au(Fe)-chromel の熱電対を 10 K 以下からは RuO₂ チップ抵抗器(RS コンポーネンツ (株) ; RMC1/20-392JPA,0.05w,3)温度センサーとして用いた。この抵抗温度センサーは非常に小さく、狭いところにも使用でき、また 10 K 以下からの抵抗値の変化が大きいいため本測定には適している。抵抗値は PPMS (Quantum Design Japan) により約 8 K まであらかじめ較正しておいた。その較正曲線を図 4.4.3 に示す。

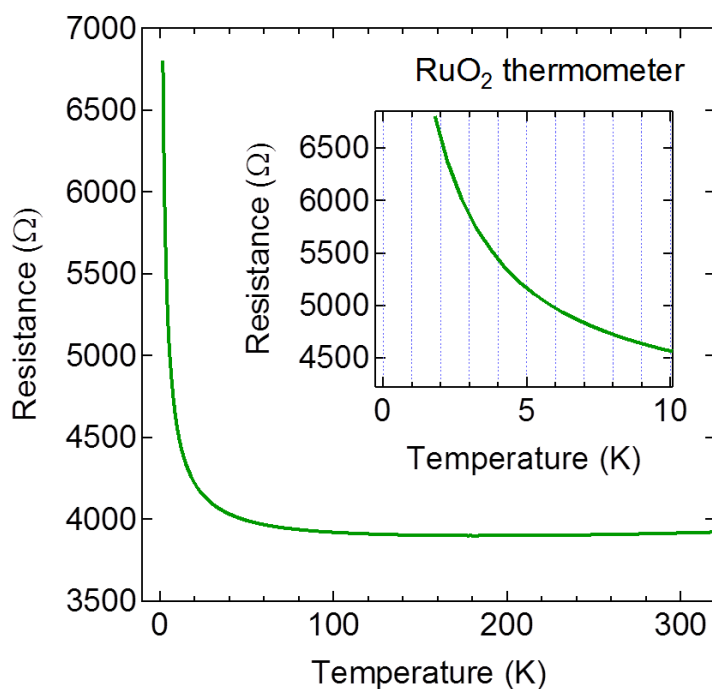


図 4.4.3 チップ抵抗の較正曲線

● ピックアップコイル-SMA 端子間の接続について

ピックアップコイルの導線には二つのタイプを採用しそれぞれについてプローブを作製した。どちらもプローブ上部の SMA 端子に接続している。一つはピックアップコイルをまいた導線を継ぐことなくツイスト線にして上部まで伸ばして直接端子に接続する方法で、もう一つは、途中で同軸タイプのケーブル (コアックス (株) : SC-119 150) で継いでから端子に接続する方法である。

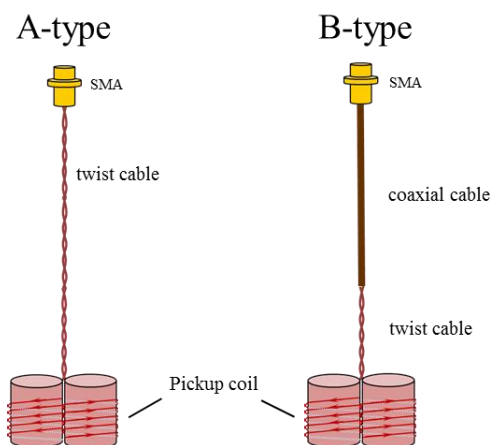


図 4.4.4 ピックアップコイル-SMA 端子間の接続

当初 A-type を採用していた理由の一つとして、同軸線を途中で接続した場合、接合部分から拾ってしまう電磁ノイズが測定信号に影響するのではないかという懸念があった。そこで、対策として B-type を作製するにあたって、接合部分は磁場発生領域から十分離し(約 10 cm)、外側の SUS パイプ等との電気的な接触を避けるため、はんだ付けした後スタイキャスト 1266 で接合部全体を覆い、さらにノイズ対策としてその上からアルミホイルで包んだ。

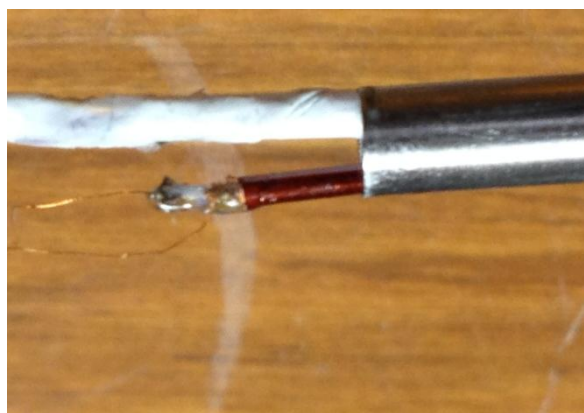


図 4.4.5 ピックアップコイルを巻いた導線と同軸ケーブルの接続部分の写真
(スタイキャスト 1266 で固めた状態)

当初は A-type を採用していたが、このとき信号に現れていた $1.4 \mu\text{s}$ 程度の周期のバックグラウンドノイズの原因が、ツイスト線内を信号が反射することであると考えられたため、B-type にすることでこの周期のノイズを軽減することができた。また、同軸ケーブルで継いだ B-type を採用したことで今後ピックアップコイルを取り替える際は、プローブ本体を分解せずに先端の FRP パイプのみを外して再度同軸ケーブルに新しいピックアップコイルを接続して修正できることもメリットの一つである。

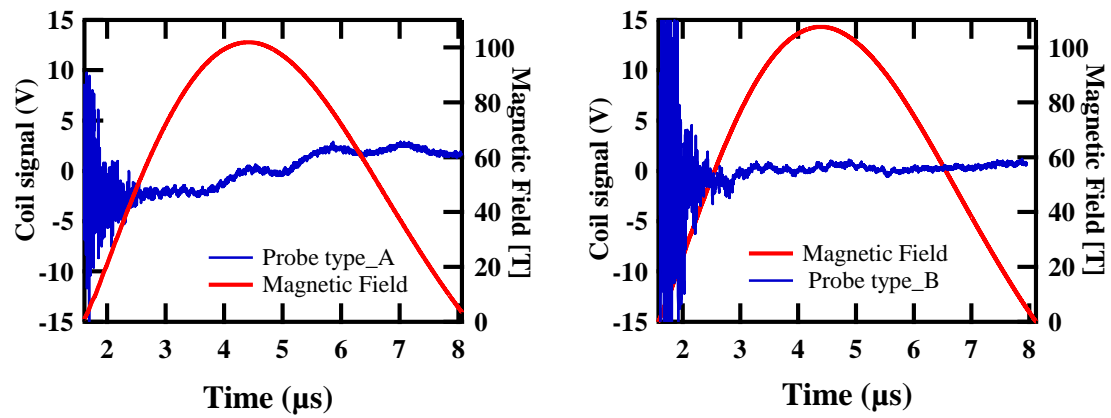


図 4.4.5 ピックアップコイル-SMA 端子間の二つの接続方法の比較。
A-type で生じている約 1.4 μs の振動成分が B-type では生じていない。

4.5 実験試料

試料は単結晶の $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ で京都大学の陰山洋教授より提供していただいたものである。本研究では sample-A, Sample-B の二つの試料を測定した。下の図 4.5.1 は Sample-A を切り出す前の状態の写真である。

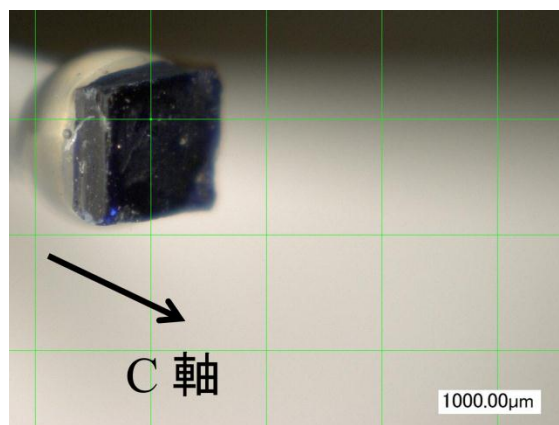


図 4.5.1 実験に使用した $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の単結晶

磁化ピックアップコイルの内径が 1.0 mm であるため、試料は内径 0.9 mm のカプトンチューブに入れる必要がある。そのため Sample-A は図 4.5.1 のバルクの単結晶をワイヤーソーで四等分したものを c 軸方向に揃えた状態で重ねてカプトンチューブに挿入し、スタイクキャスト 1266 で固定した。Sample-B は Sample-A よりも大きな単結晶だったため、ダイヤモンドヤスリで円柱状に成形したものを同様にセットした。

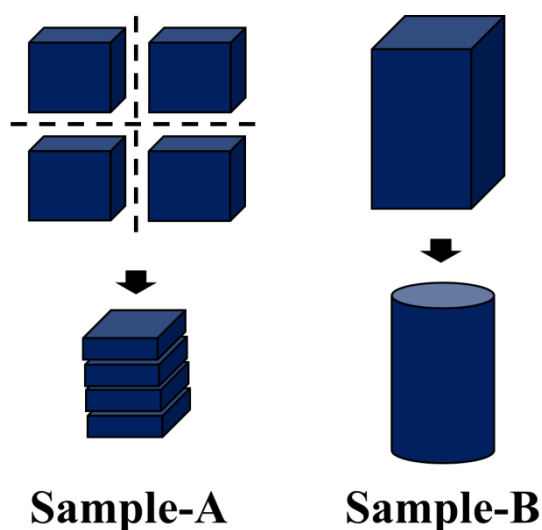


図 4.5.2 試料のセテッィングの概略図

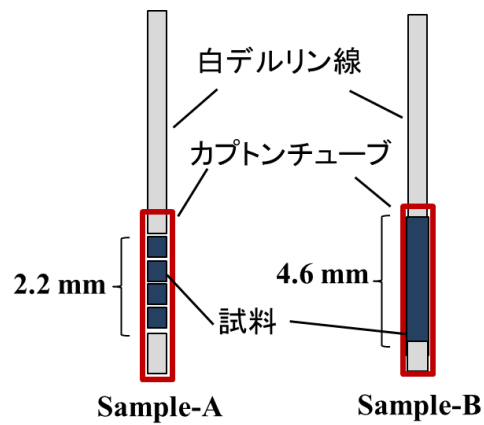


図 4.5.2 試料のセテッィングの概略図 2

二つの試料の重さは次のようになっている。

表 4.5 試料の重さ

Sample-A	2.26 mg
Sample-B	5.07 mg

5. 実験結果

この章では、縦型一巻きコイル法を用いて行なった超強磁場下での磁化測定結果について述べる。

本研究では、以下のように条件で必要に応じて、最大発生磁場を変えながら測定を行なった。試料は 4.4 節で紹介した、A、B 二つの試料を用いている。初めに本研究に用いた磁場発生条件を整理して表 5.1 に示す。図 5.1 には各条件での磁場波形を示した。測定温度は 4.2 K 及び 2.0~2.3 K である。

以下、測定条件の異なる 14 回の実験結果について整理して説明する。

表 5.1 磁場発生条件と最大磁場

No.	一巻きコイル直径 r (mm)	静電容量 C (μ F)	充電電圧 V (kV)	エネルギー E (kJ)	磁場 B (T)
(i)	14	125	36	81	98
(ii)	14	125	40	100	108
(iii)	16	250	35	153	117
(iv)	16	250	40	200	133
(v)	14.5	250	40	200	140

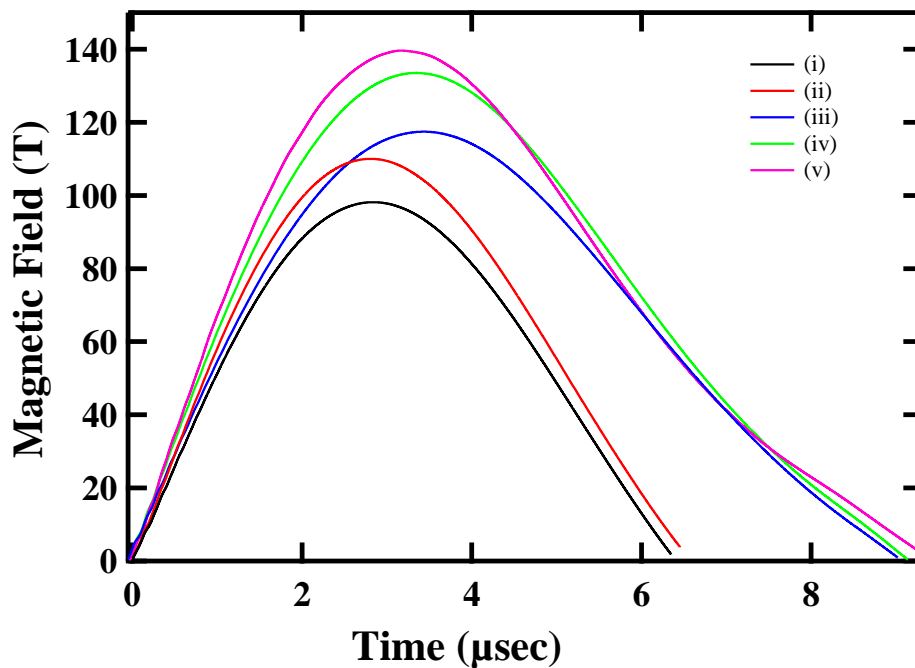


図 5.1 各条件での発生磁場波形

5.1 4.2 K での測定結果：測定 No.1~3

[測定 No.1]：磁場発生(ii), Sample-A

図 5.2(a)は試料を磁化ピックアップコイルの左側に入れた場合と右側に入れた場合の二つの測定で得られた誘導起電力と、このとき磁場の時間依存性を示したグラフである。これらは 4 章の(4.3.11)式と(4.3.11)式で表せる V_1 、 V_2 にそれぞれ対応している。この二つの信号の始まりには、磁場発生に伴う電磁ノイズが ± 20 V 程度生じており 2.5μ 秒程度で減衰して消えている。二つの信号に見られる長周期の成分は自己補償が不十分であることに起因するバックグラウンドノイズ成分であり、理想的には二つの信号を差し引く際に消去される。この No.1 の測定では、試料を左右のそれぞれのコイルに入れた二つの測定が比較的良く再現され、バックグラウンドノイズが良く一致しているのがわかる。図 5.2(b)は左右のコイルにそれぞれ試料を入れて測定した二つの測定結果の差をプロットしたものである。これは理想的には(4.3.10)式で示した dM/dt に比例する量に相当する。また同時に右縦軸には磁場ピックアップコイルにより検出した dH/dt に相当する誘導起電力をプロットした。 dM/dt 信号には磁場上昇時には(p),(q)の領域でピークが見られており、これに対応して磁場下降時には(r),(s)において負に二つピークが見えていることから、これらのピークが何らかの試料磁化の変化を示すものであると考えられる。

図 5.3(a),(b)は、それぞれグラフ下側が図 5.2(b)から得られた磁化の磁場微分(dM/dH)に相当するもので、必要に応じて二項分布でスムージングしている。上側はこれを磁場で積分して得られた磁化 M に相当するものである。磁化の絶対値は過去の低磁場での測定結果と比較して、約 40 T から観測される 1/3 プラトーより決定した。図 5.3(a)には磁場上昇時を示し、図 5.3(b)には磁場下降時の振る舞いを示している。図 5.2(b)で示した(p)~(s)の領域での変化に対応する構造は図 5.3(a),(b)でも現れており、同様に(p)~(s)で表した。これらの dM/dH の変化のうち、磁化曲線では低磁場領域に見られる(p)、(s)が約 20 T から増加し約 40 T 付近でプラトー領域が始まる部分に対応しており、(q)、(r)が約 70 T 辺りから増加し約 85 T で傾きのあるプラトー領域が始まる部分に対応しているように見える。

図 5.3(a),(b)を比較すると、大体似たような磁化曲線を描いているが、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ノイズの補償の程度が異なるためであり、このように本研究における磁化測定ではバックグラウンドノイズの状況によって、描かれる磁化曲線が大きく異なってくるため、繰り返し測定し、再現性を確かめる必要がある。

同様の表記で以下残りの 13 回の実験結果について紹介する。
その際、 dM/dH のピークの決定に関しては、磁場上昇時の 20 T までの低磁場領域で明らかなピークが見えている場合でも、これらは除外して考える。これは 20 T までの低磁場領域では一巻きコイル法による磁場発生法上常に生じてしまうスターティ

ングノイズによる影響がかなり大きくなっており正確な測定が困難だからである。

また、この章の最後に 14 回の測定において(4.3.17)式の dM/dH に相当する信号で観測されたピークでの磁場の値(H_c)を整理して示す。

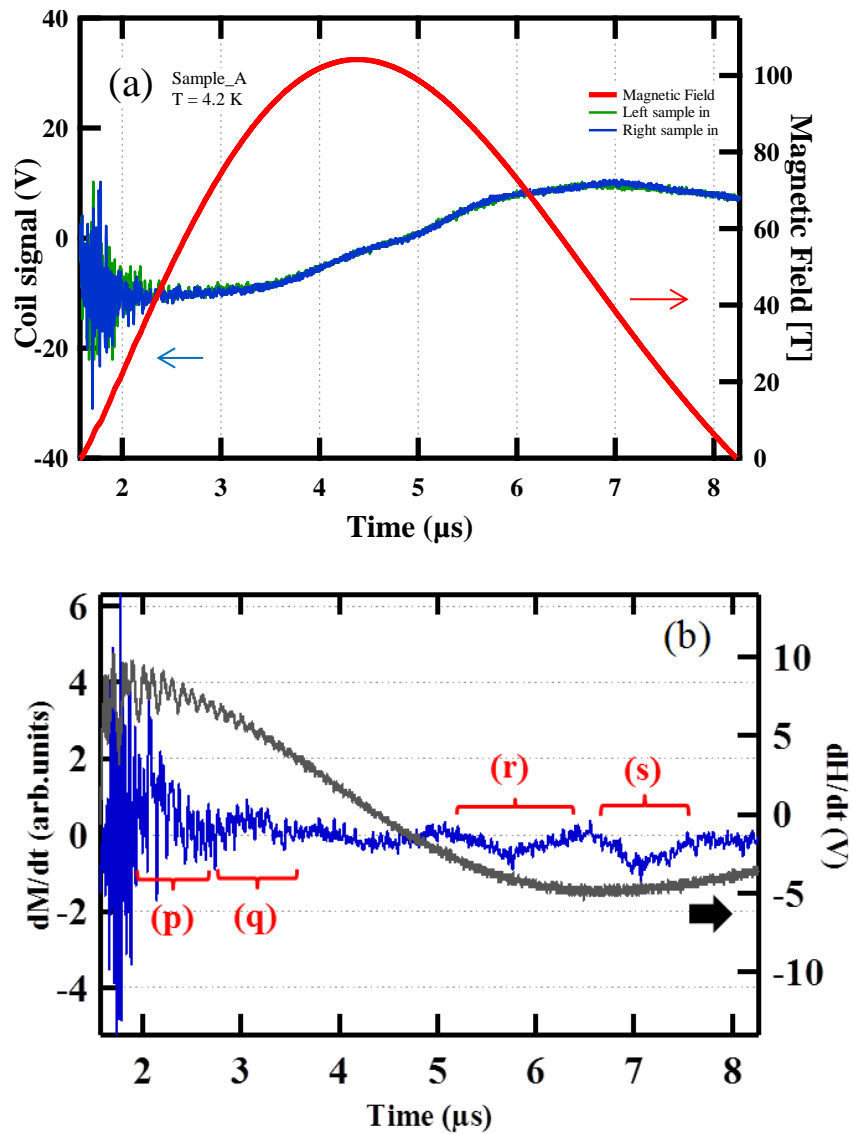


図 5.2 [No.1] : 磁場発生(ii), Sample-A

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

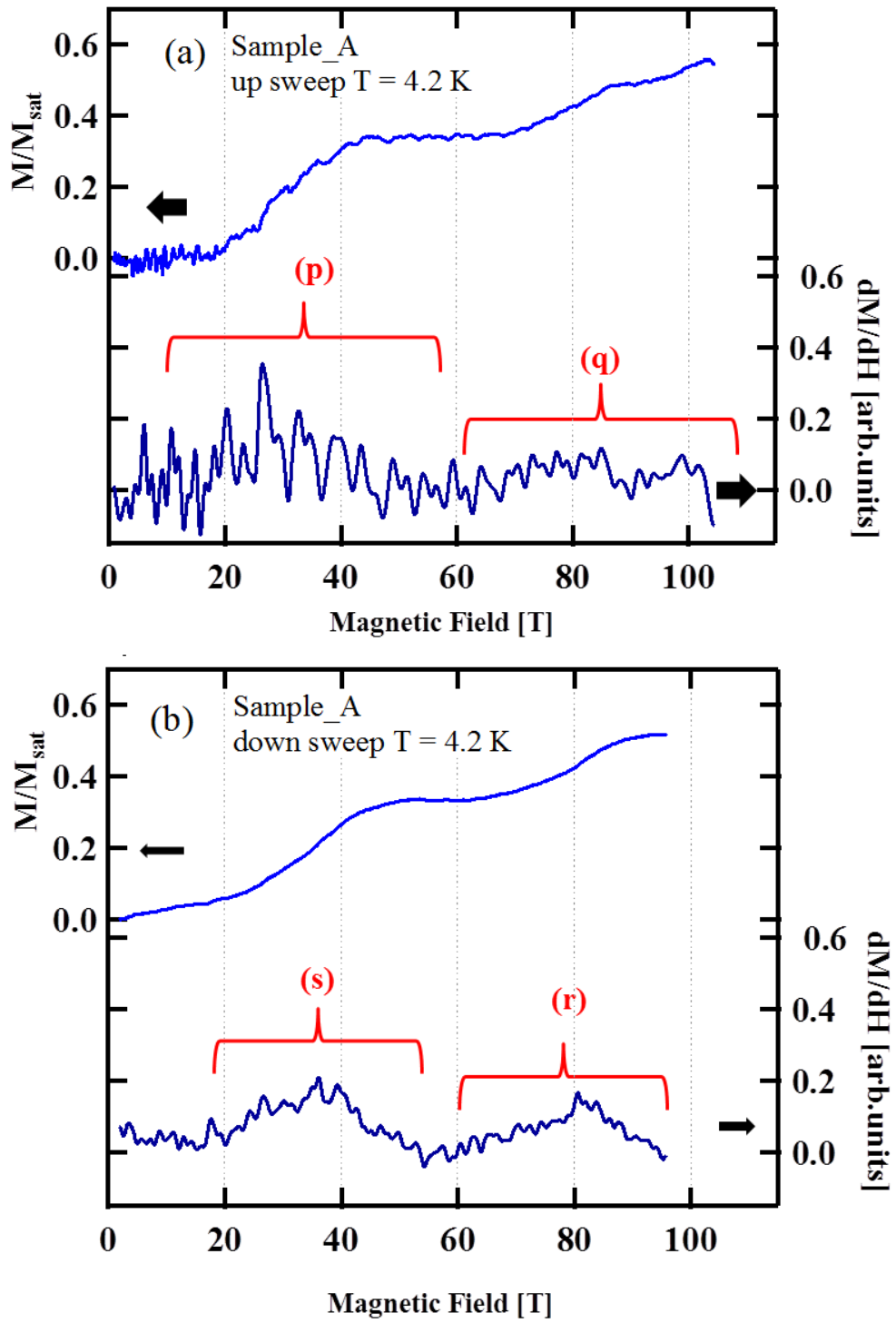


図 5.3 [No.1] : 磁場発生(ii), Sample-A
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

[測定 No.2] : 磁場発生(i), Sample-B

No.2 の測定は No.1 とほぼ同じ条件であるが、試料が Sample-B についての測定である。図 5.4(a)では二つの測定において共に ± 33 V 程度のスターティングノイズが観測されている。図 5.4(b)では dM/dt に比例する信号において No.1 と同様に (p)~(s) の領域で変化を確認できる。

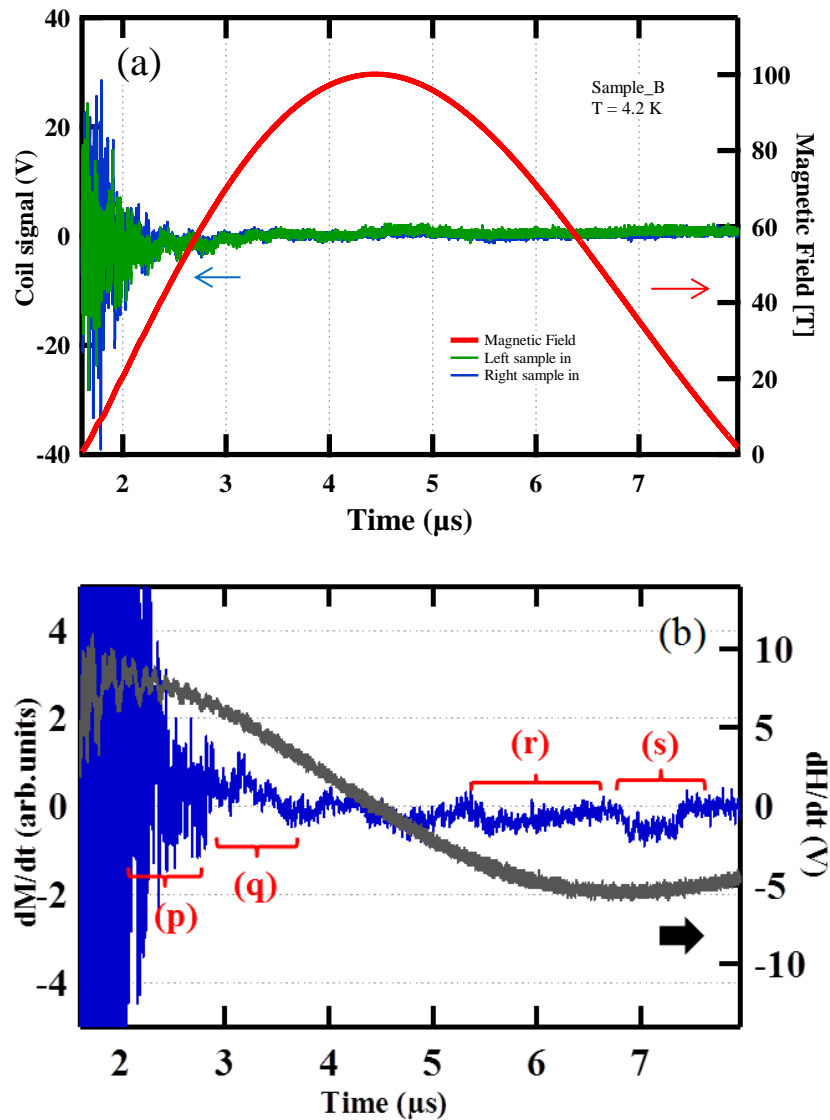


図 5.4 [No.2] : 磁場発生(i), Sample-B

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

図 5.5(a)の dM/dH は磁場発生時のノイズが大きく残っている。また高磁場領域では約 80 T 以上から負の値になっているため正確な磁化曲線は得られていない。同様に図 5.5(b)の dM/dH でも高磁場領域では精度が悪くなっており、90 T 以上から発散

している。磁場上昇時と磁場下降時の磁化曲線を比較すると 80 T 以降からは大きく異なる振る舞いを示しているためこの高磁場領域では大きなノイズのため、80 T 以上が正確な測定が行なわれていないと考えられる。

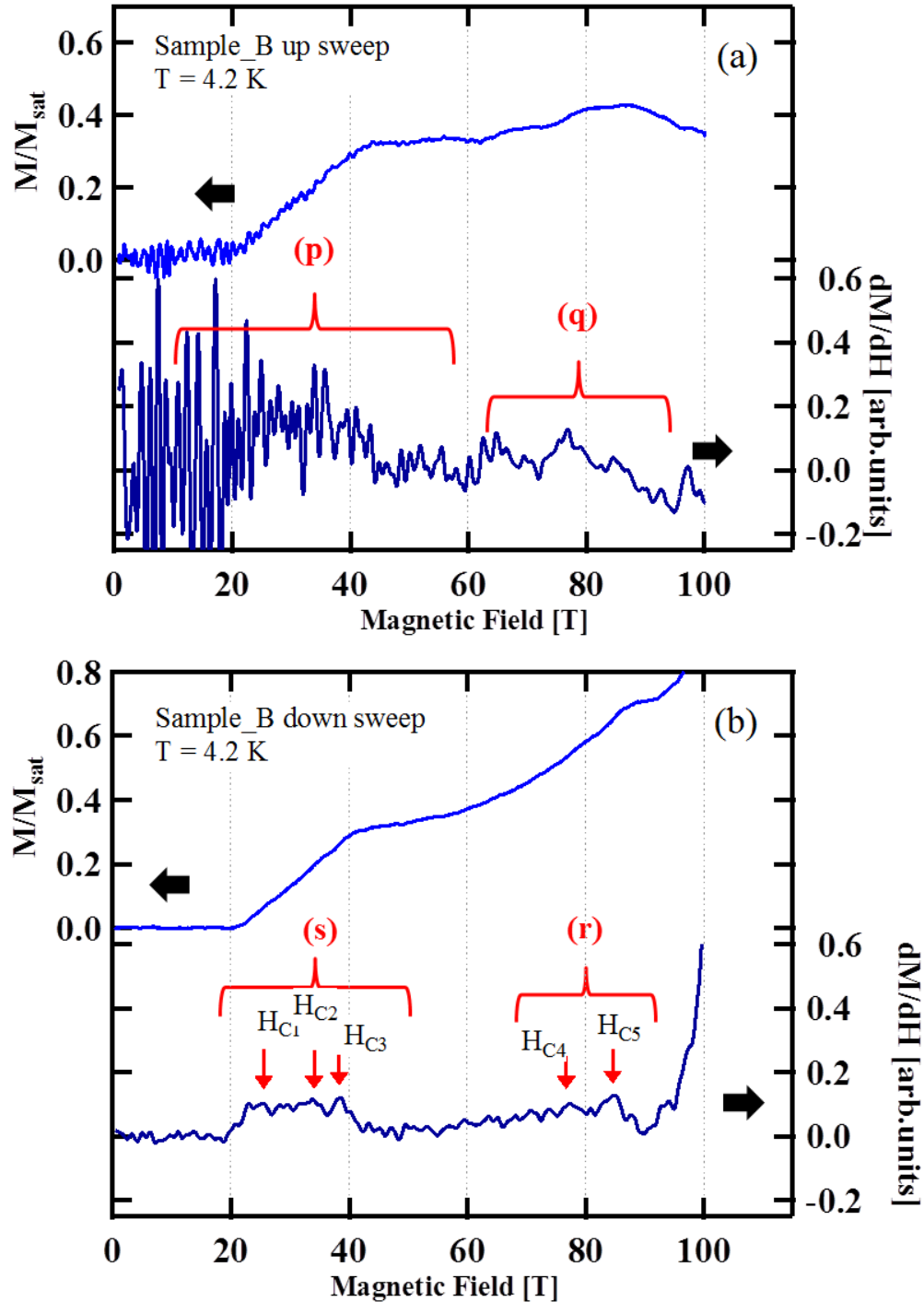


図 5.5 [測定 No.2]：磁場発生(i), Sample-B

dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

磁場下降時では $H_{C1} \sim H_{C5}$ のピークが観測された。磁化曲線では磁場上昇時、下降時

の両方で約 40 T から始まるプラトーが観測され、下降時のみ約 85 T 付近から始まるプラトーが観測された。

[測定 No.3] : 磁場発生(i), Sample-B

No.2 と同様であり、再現性を見るために行った。図 5.6(a)では ± 20 V 以上のスターティングノイズが確認できる。図 5.6(b)では dM/dt に比例する信号において (p)~(s) の領域で No.1, No.2 同様な変化を確認できる。

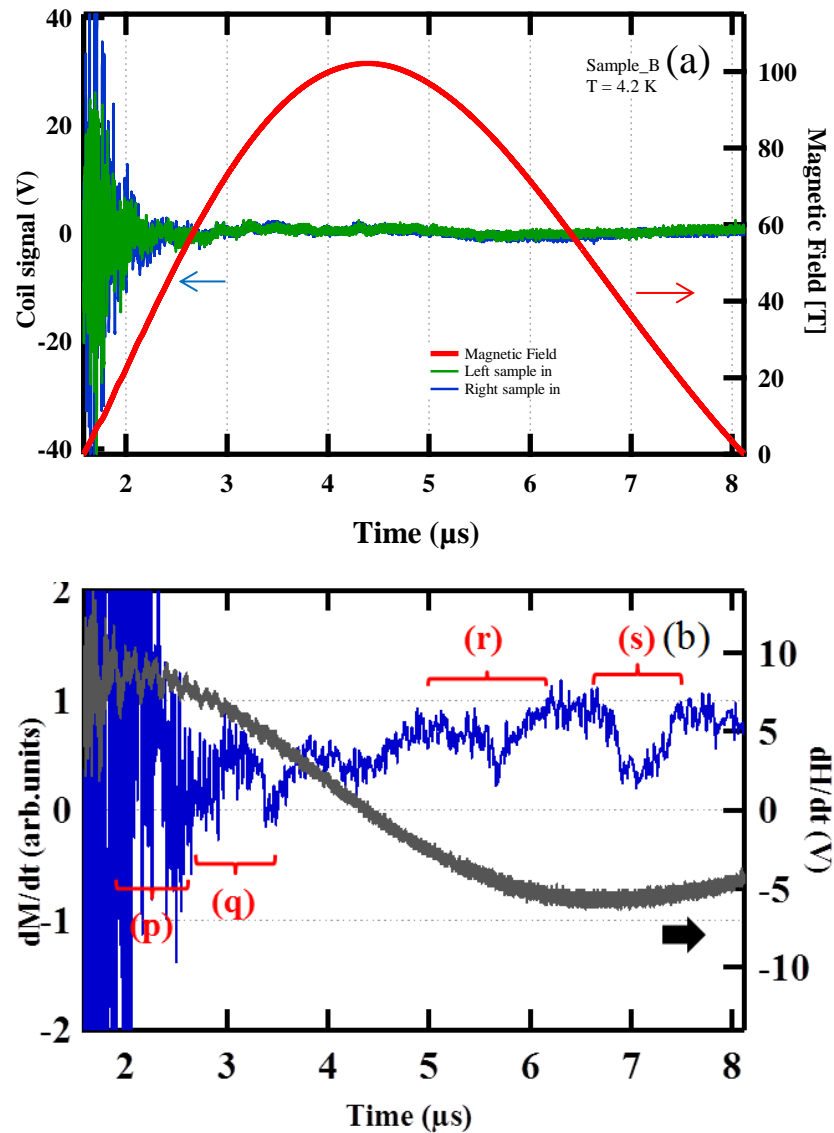


図 5.6 [測定 No.3] : 磁場発生(i), Sample-B
 (a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号
 (b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の
 二つの信号の差と磁場波形の時間微分

No.3 の dM/dH では、93 T 以上から発散し始めていたため図 5.7 ではそこまでの

磁場領域を表示している。磁場上昇時と下降時で非常に似た振る舞いを示している。どちらも No.1 と同様に約 40 T 付近から始まるプラトーと約 85 T 付近から始まるプラトーが観測されている。

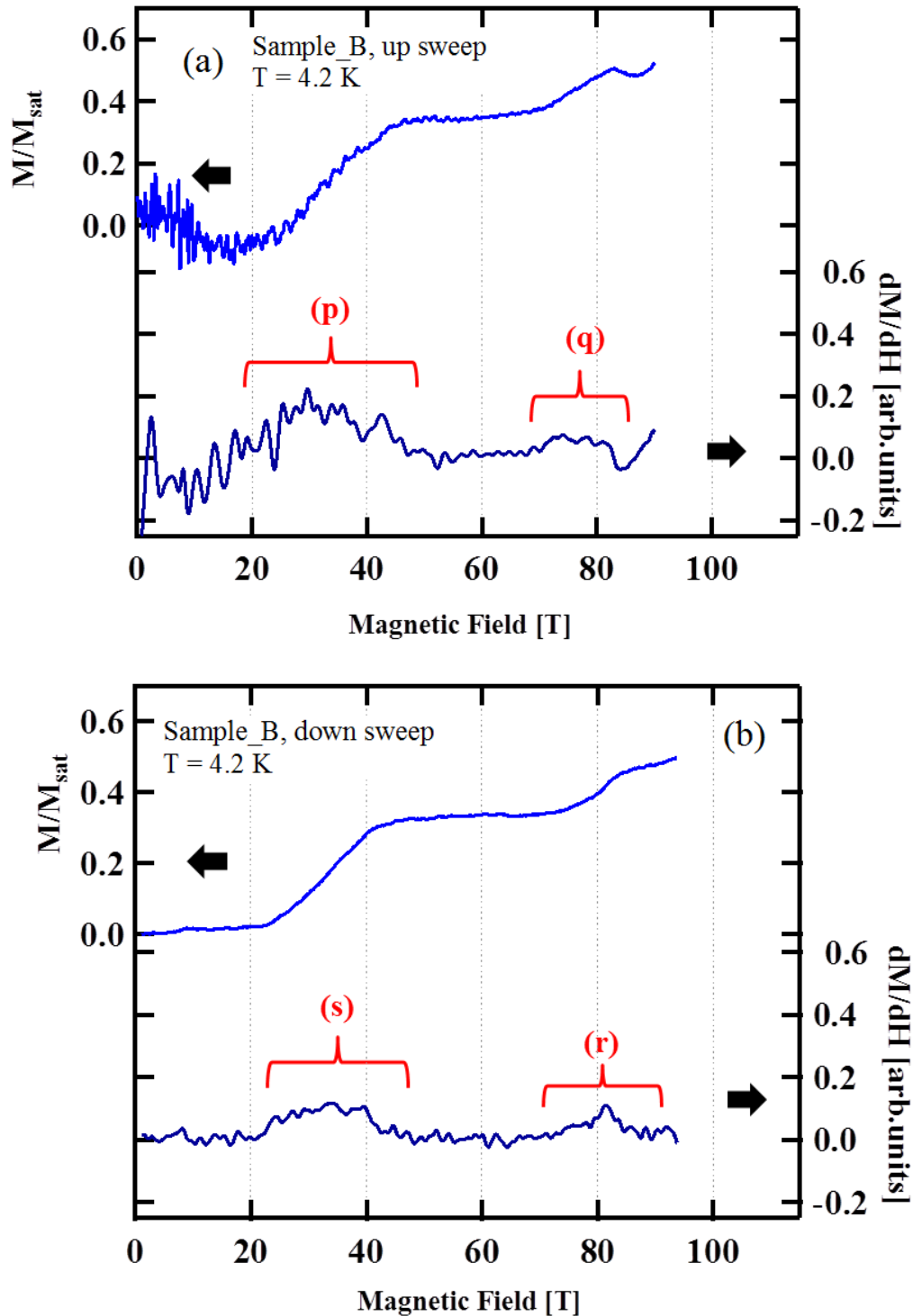


図 5.7 [測定 No.3] : 磁場発生(i), Sample-B
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

5.2 約 2 K での測定結果(1)：測定 No.4~9

[測定 No.4]：磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-A

これ以降、さらに低温（約 2 K）の測定について示していく。

図 5.8(a)ではスターティングノイズが ± 16 V 程度生じており、これは本研究の中では比較的小さい。図 5.8(b)では dM/dt に比例する信号においてこれまでの測定と同様に(p)~(s)の領域で変化が観測され、さらに磁場頂上付近で(v),(w)の領域でも変化が見られた。

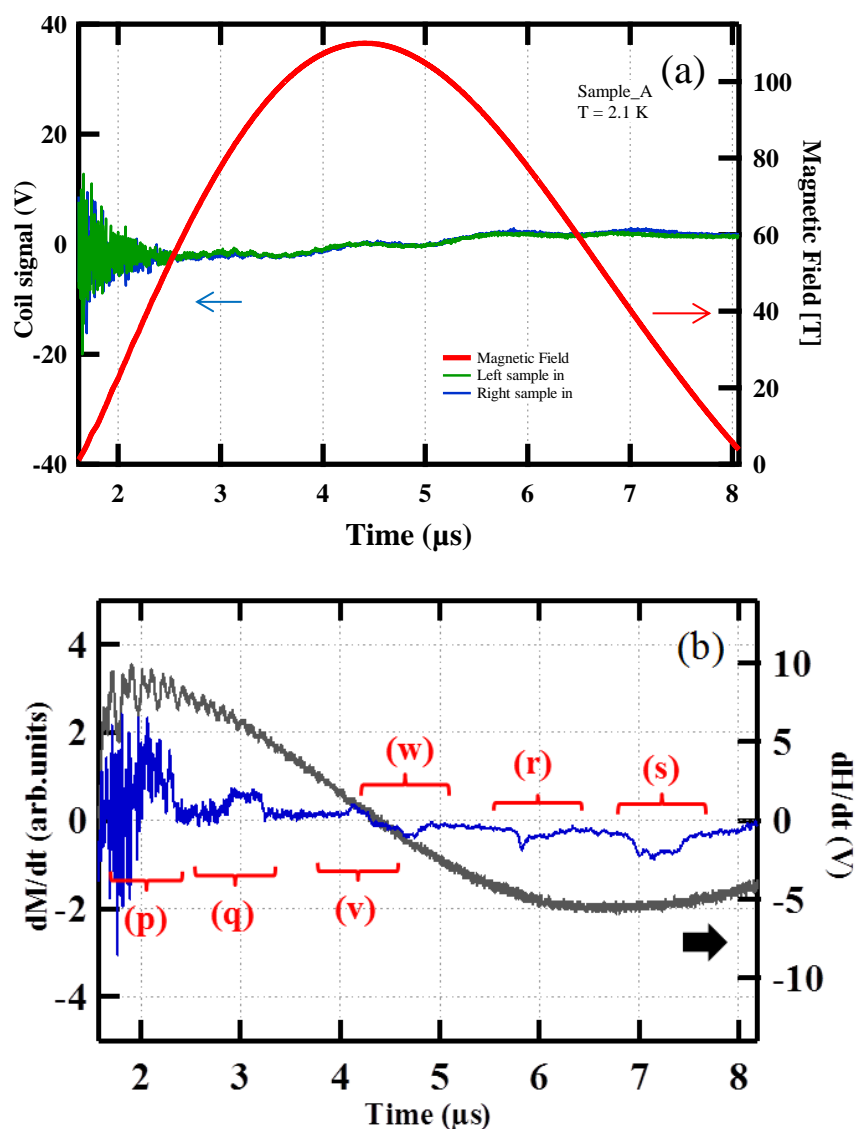


図 5.8 [測定 No.4]：磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-A

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

No.4 の dM/dH では磁場上昇時、下降時の両方で図 5.8(b) で示した dM/dt が変化している領域で $H_{C1} \sim H_{C6}$ のピークが明瞭に観測された。これは温度が No.1~No.3 の実験(4.2 K)よりも低いためであると考えられる。磁化曲線は No. 1 とどちらも磁場上昇時と下降時で似た振る舞いを示し、約 40 T 付近から始まるプラトーと約 85 T 付近から始まるプラトーが観測された。後者のプラトーと思われる磁化の振る舞いにおいては磁場上昇時に正の傾きを持ち、下降時には負の傾きになっているため、この有限の傾きが本質であるかどうかは現在のところでははっきりとは言えない。さらに約 107 T からは再び磁化が増加している。

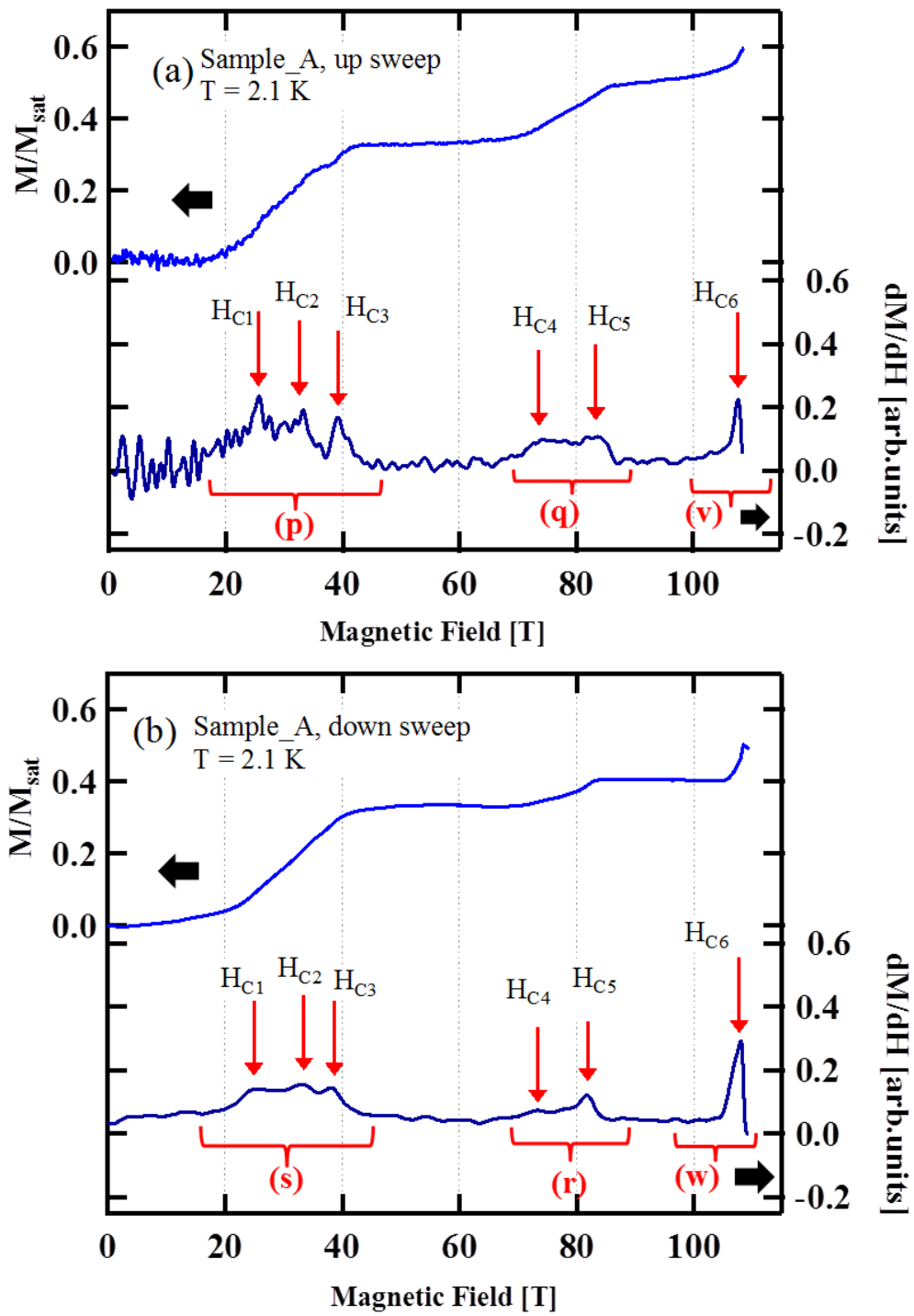


図 5.9 [測定 No.4] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-A
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

[測定 No.5] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

No.4 の条件と同じであるが、試料を Sample-B に変えた測定結果を示す。図 5.10(a) ではスターティングノイズが ± 20 V 程度生じている。図 5.10(b) では dM/dt に比例する信号において (p)~(s) の領域で変化が観測された。

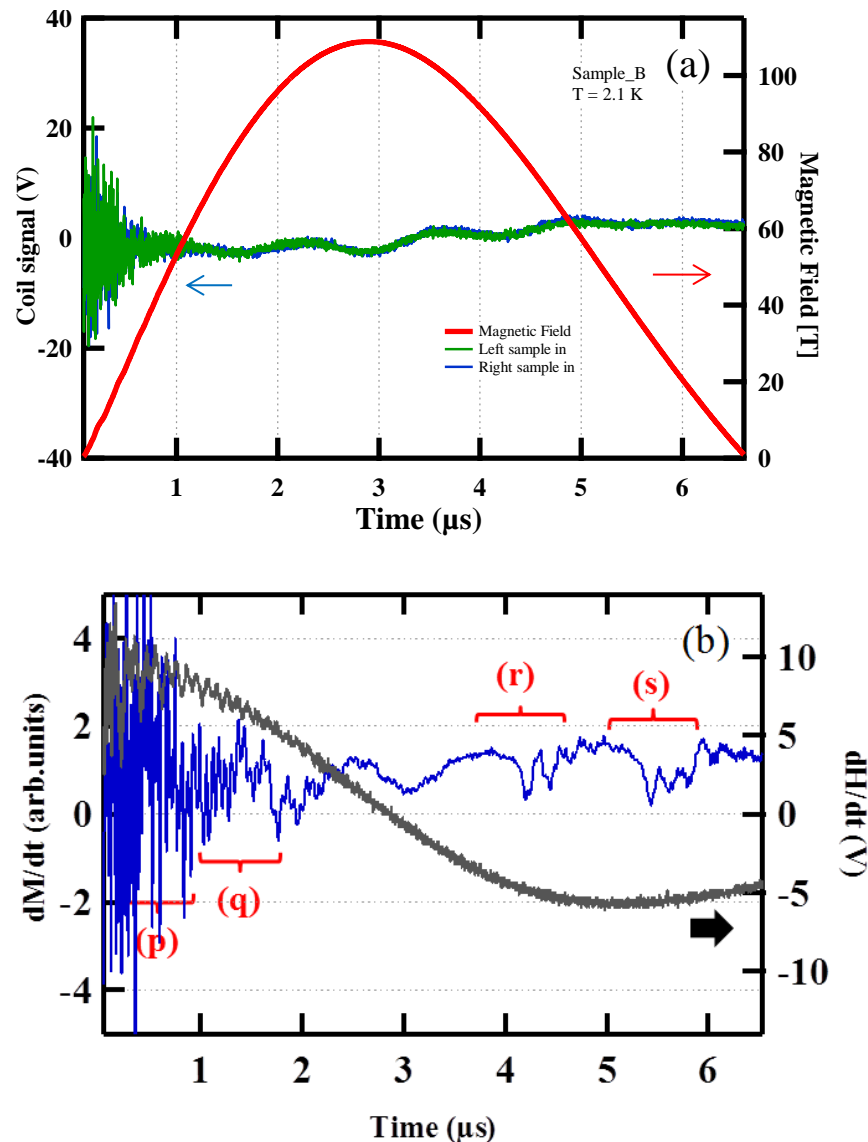


図 5.10 [測定 No.5] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の
二つの信号の差と磁場波形の時間微分

図 5.11 では磁場上昇時の dM/dH ではバックグラウンドノイズ成分が大きい、図 5.10(b) の (p), (q) の領域で $H_{C1} \sim H_{C3}$ と H_{C5} のピークが観測された。磁場下降時は上昇時に比べるとバックグラウンドノイズは小さく (r), (s) の領域で $H_{C1} \sim H_{C5}$ のピークが観測された。どちらも測定 No.1 と同様に二つのプラトー領域が観測されたが、全体と

してノイズ成分が残ってしまっており、磁化曲線は乱れた構造を示してしまっている。

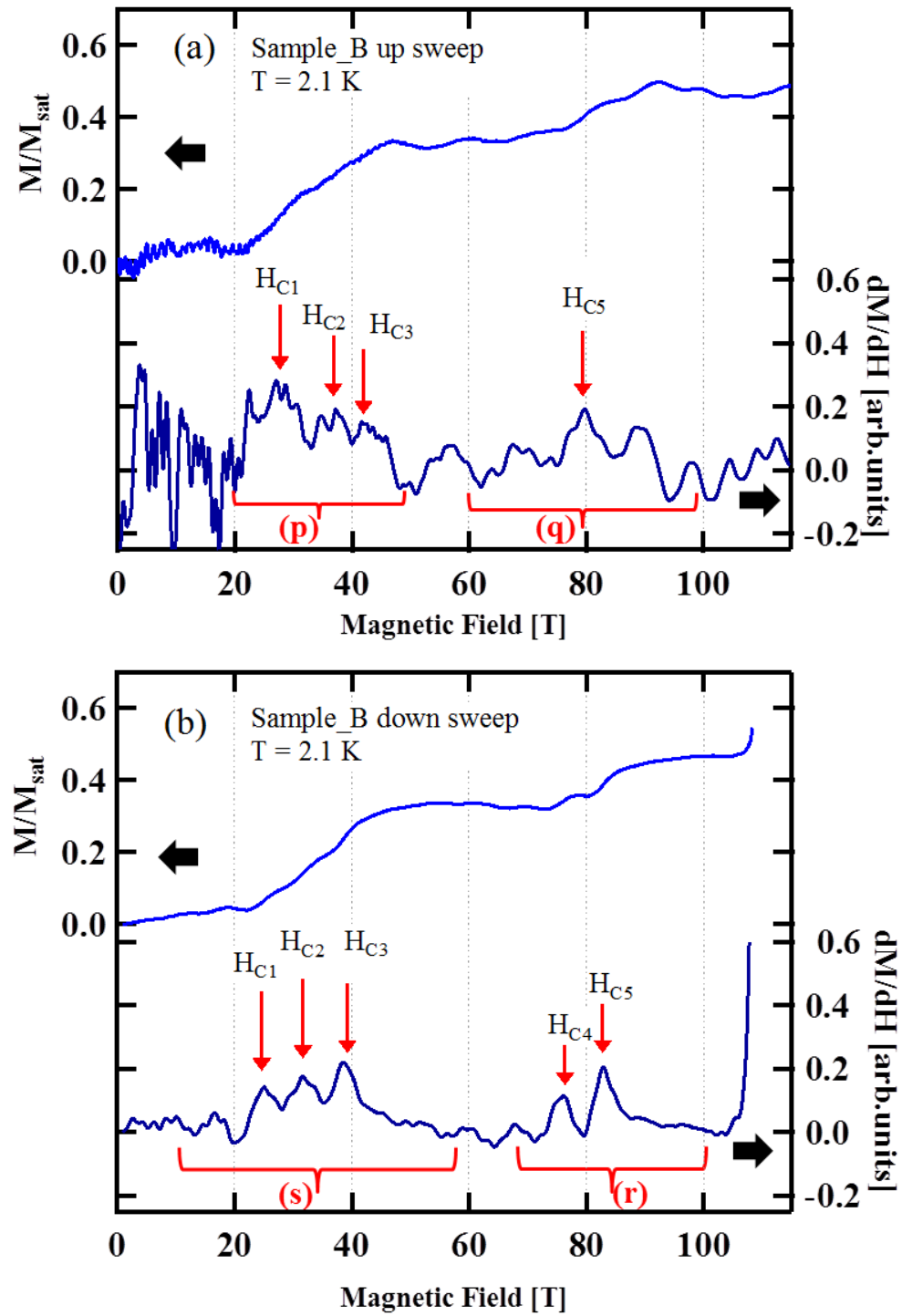


図 5.11 [測定 No.5] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

[測定 No.6] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

以下の No.6~No.9 の 4 回は No.5 と同条件の測定であり、再現性を見るために行っている。

図 5.12(a)ではスターティングノイズが ± 7 V 程度生じている。図 5.12(b)では dM/dt に比例する信号において (p)~(s)の領域で変化が観測された。

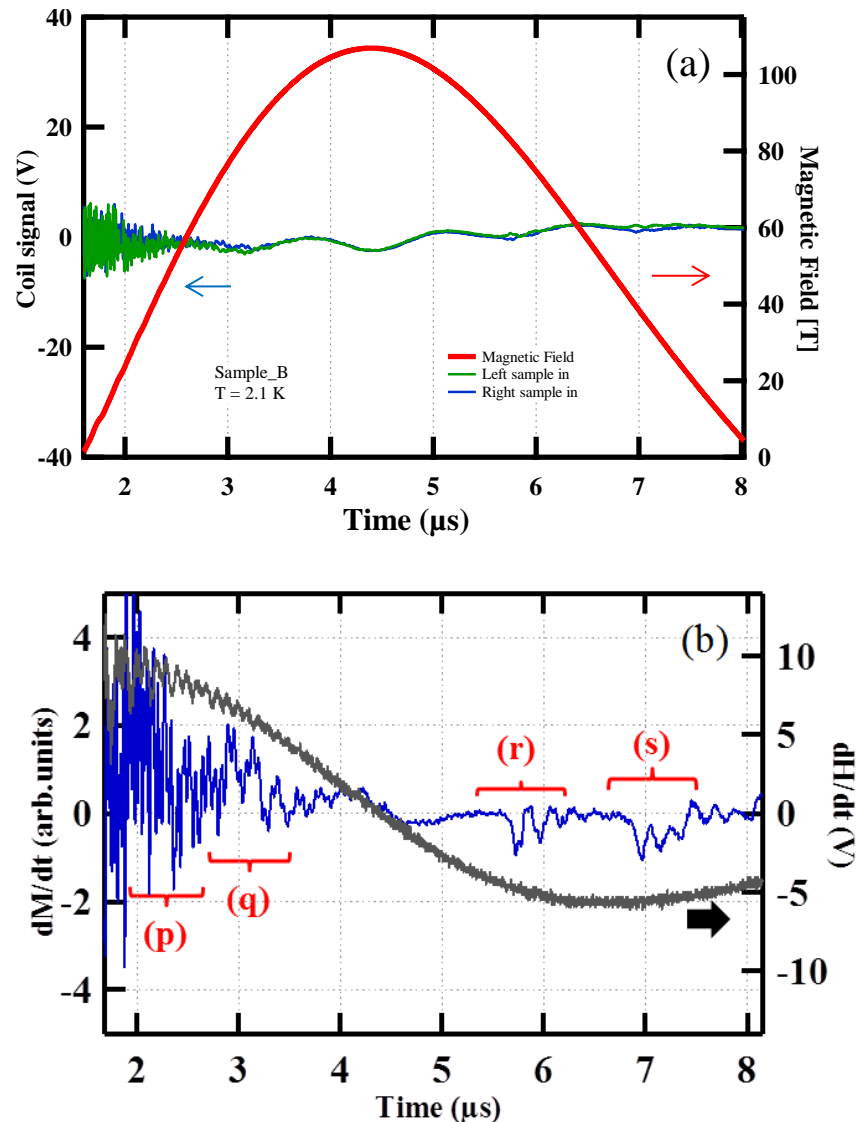


図 5.12 [測定 No.6] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

測定 No.6 の dM/dH については図 5.13(a)の磁場上昇時では(p),(q)の領域で変化を示している。磁場下降時では(r),(s)の領域で $H_{C1} \sim H_{C5}$ のピークが観測された。磁場上昇時は 100 T を超えたあたりから発散し始めている。磁化曲線はどちらも約 40 T か

ら始まるプラトーと約 85 T から始まるプラトーが観測されているが、比較的周期が短い振動ノイズが観測され、データとしての精度が低くなっている。

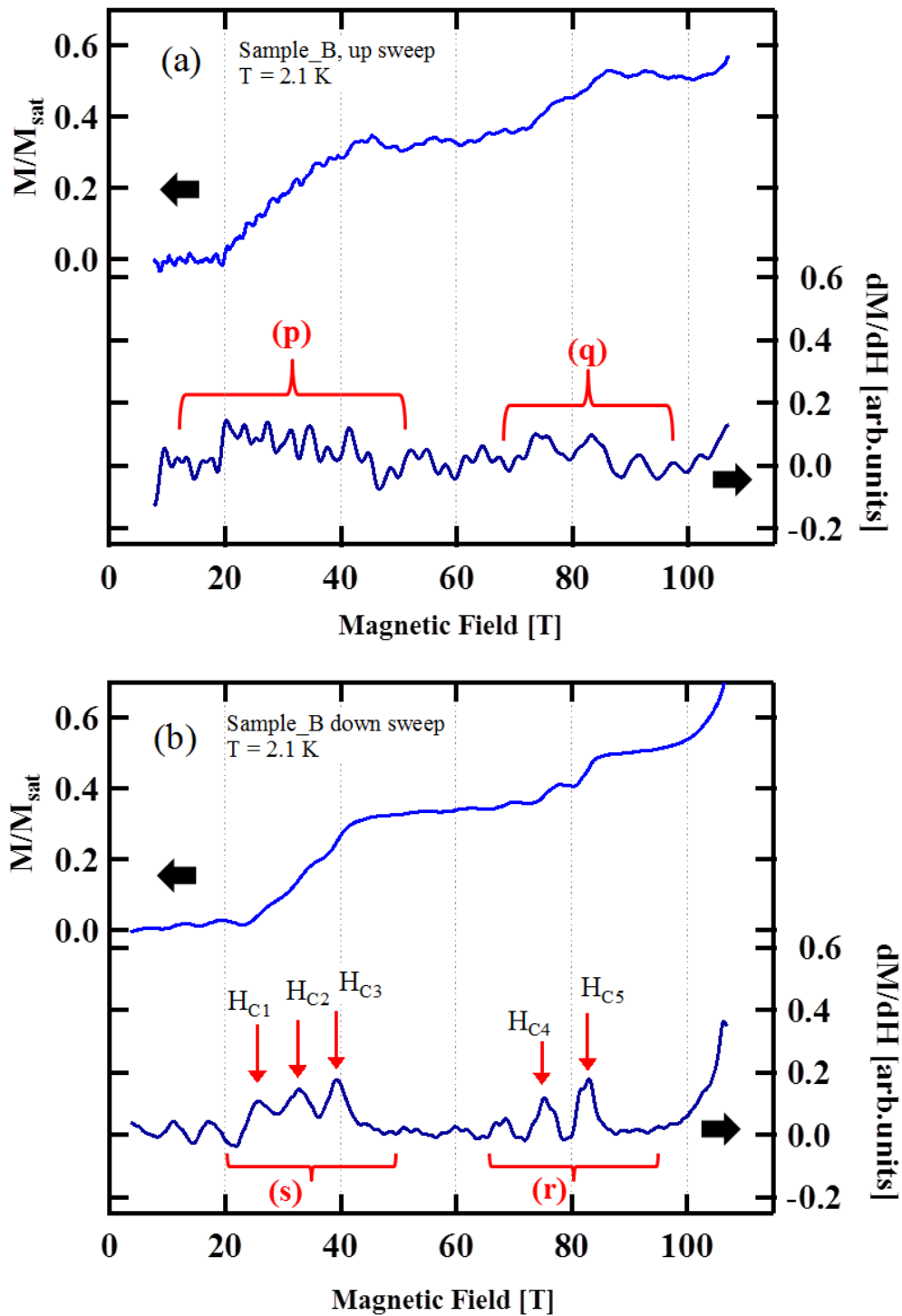


図 5.13 [測定 No.6] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

[測定 No.7] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

図 5.14(a)ではスターティングノイズが ± 6 V 程度生じている。図 5.14(b)では dM/dt に比例する信号において (p)~(s)の領域で変化が観測された。

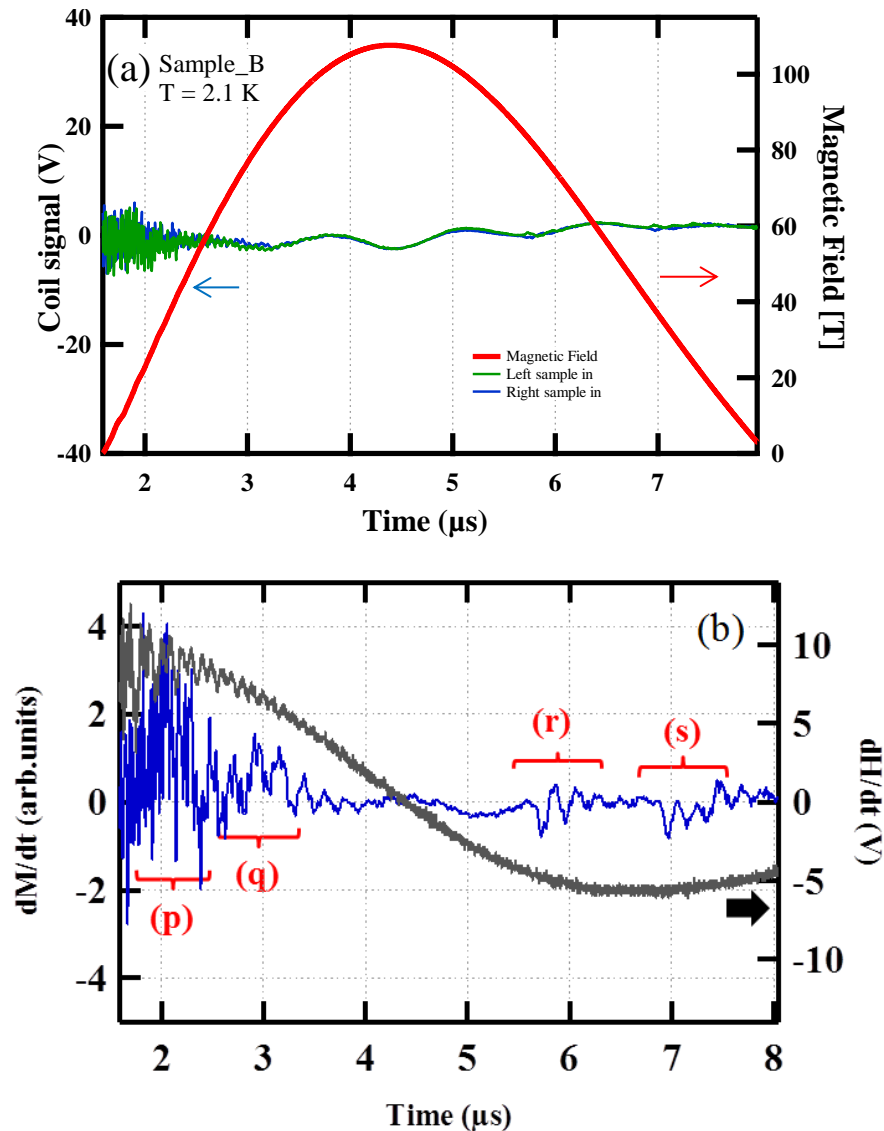


図 5.14 [測定 No.7] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

測定 No.7 の dM/dH については磁場上昇時と下降時の両方で $H_{C1} \sim H_{C5}$ のピークが観測された。磁化曲線ではどちらも 40 T から始まるプラトーが確認できるが、80 T 以降はそれぞれ発散始めており正確な測定結果ではないと考えている。磁場下降時の低磁場領域では磁化が減少しており、これも物理的にはありえないので測定がノイズのため正確ではないと思われる。

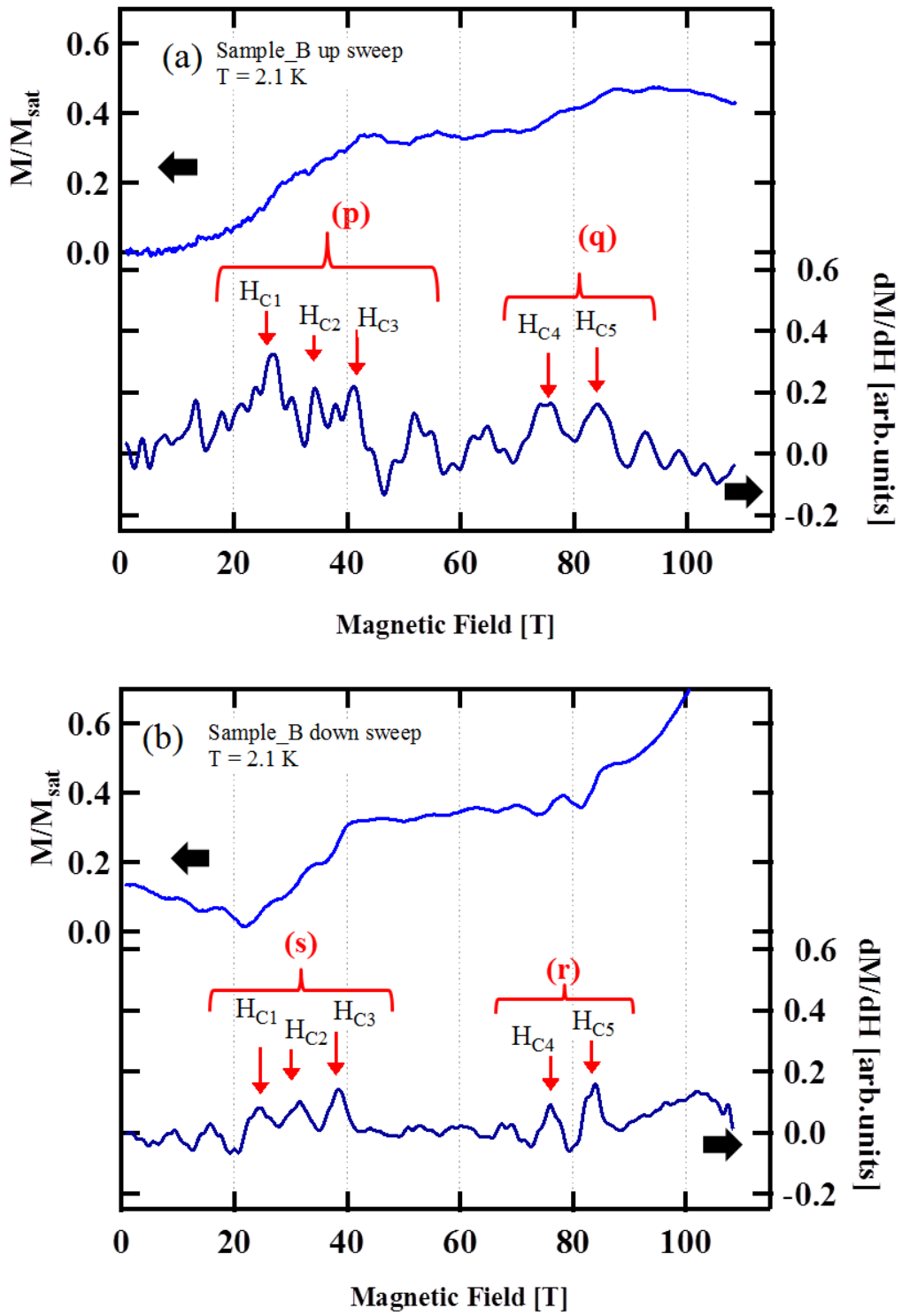


図 5.15 [測定 No.7] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

[測定 No.8] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

図 5.16(a)ではスターティングノイズが ± 7 V 程度生じている。図 5.16(b)では dM/dt に比例する信号において (p)~(s)の領域で変化が観測された。

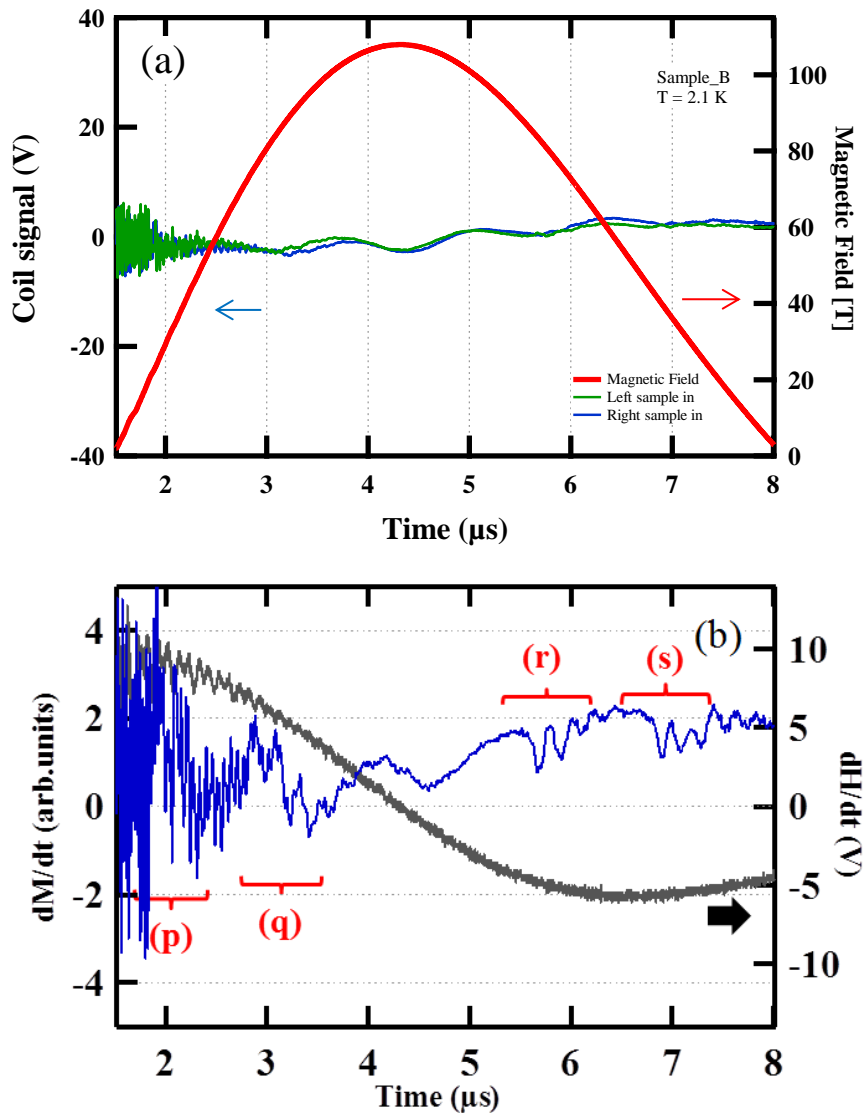


図 5.16[測定 No.8] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

測定 No.8 の dM/dH については磁場上昇時と下降時の両方で $H_{C1} \sim H_{C5}$ のピークが観測された。また、上昇時にはさらに H_{C9} のピークが、下降時には H_{C7} 、 H_{C8} のピークが観測された。上昇時は下降時に比べバックグラウンド成分が全体的に大きくなっている。磁化曲線はどちらも 80 T 付近までは No.1 に似た振る舞いを示しているが、それ以降についてはそれぞれ上昇時は負へ、下降時は正へ発散しており、この磁場領

域では No.8 の測定結果の信頼性は低いと考えられる。

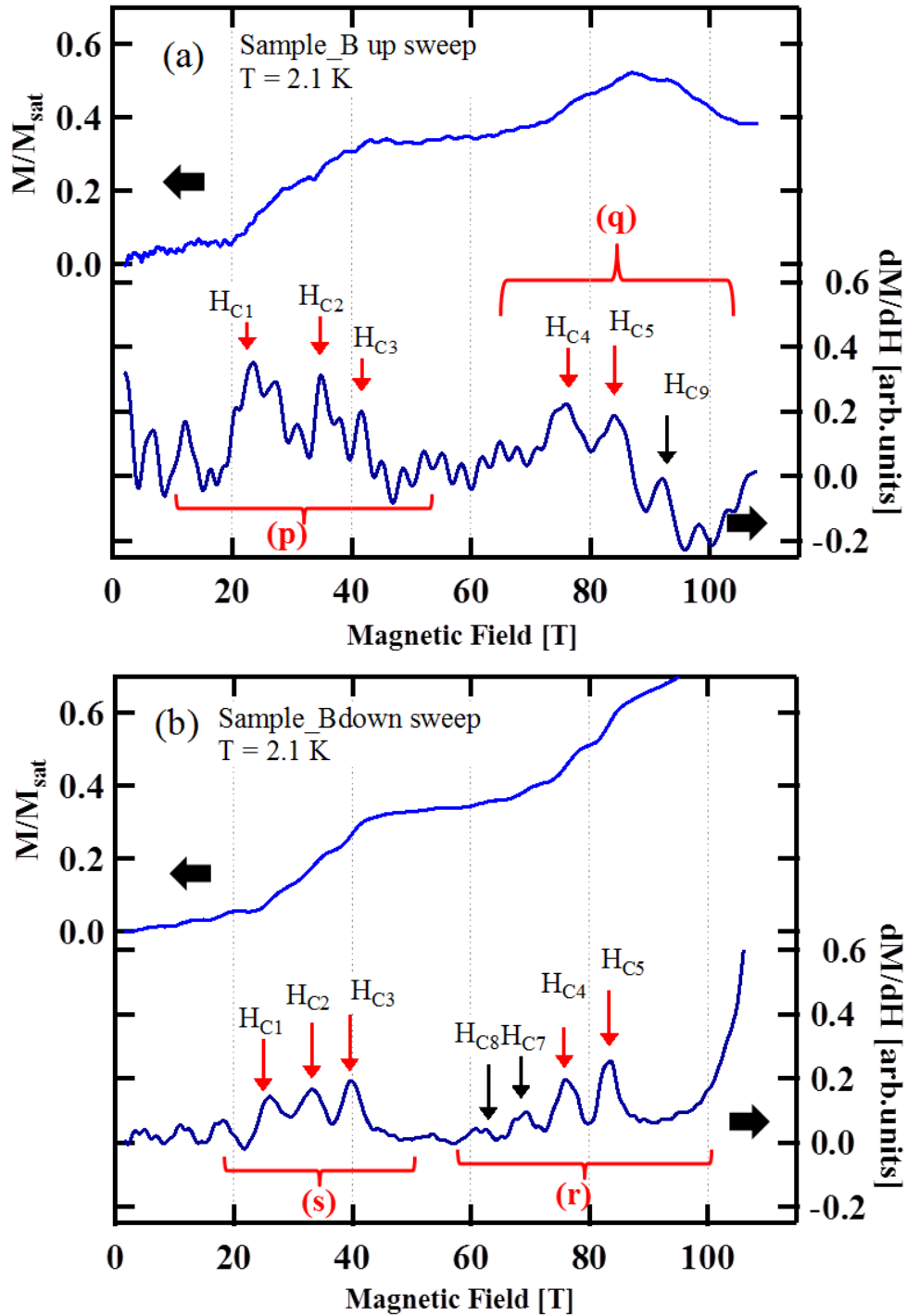


図 5.17 [測定 No.8] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

[測定 No.9] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

図 5.18(a)ではスターティングノイズが ± 40 V 程度生じている。図 5.18(b)では dM/dt に比例する信号において (p)~(s)の領域で変化が観測された。

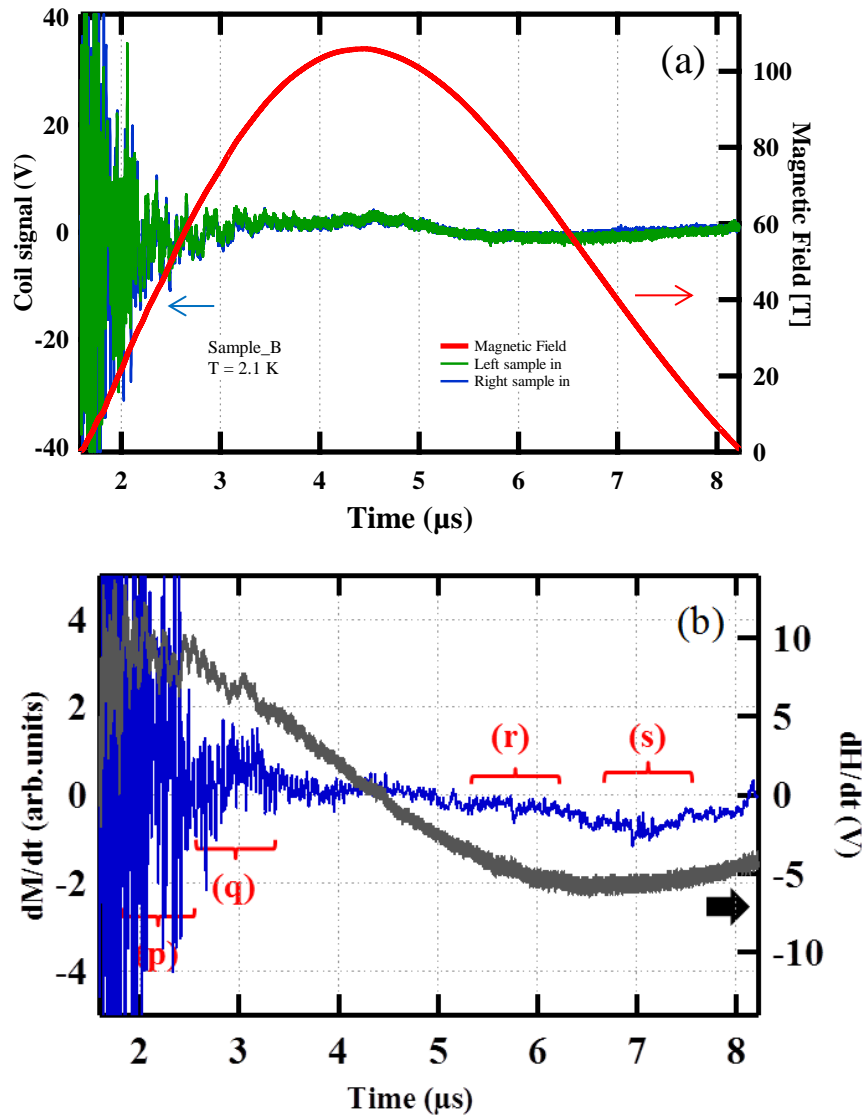


図 5.18[測定 No.9] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

測定 No.9 の dM/dH については図 5.18(b) の (p)~(s) の磁場領域で変化が観測された。磁化曲線では、上昇時は、No.1 と似た振る舞いを示し、約 40 T から始まるプラトーと約 85 T から始まる傾きのあるプラトーが観測された。磁場下降時では dM/dH で大きな変化は見られず磁化曲線もブロードになっている。No.9 の測定ではノイズ成分も小さいが、磁化信号と思われる dM/dH のピーク構造も No.6~No.8 に比べ小さく、その原因については不明である。

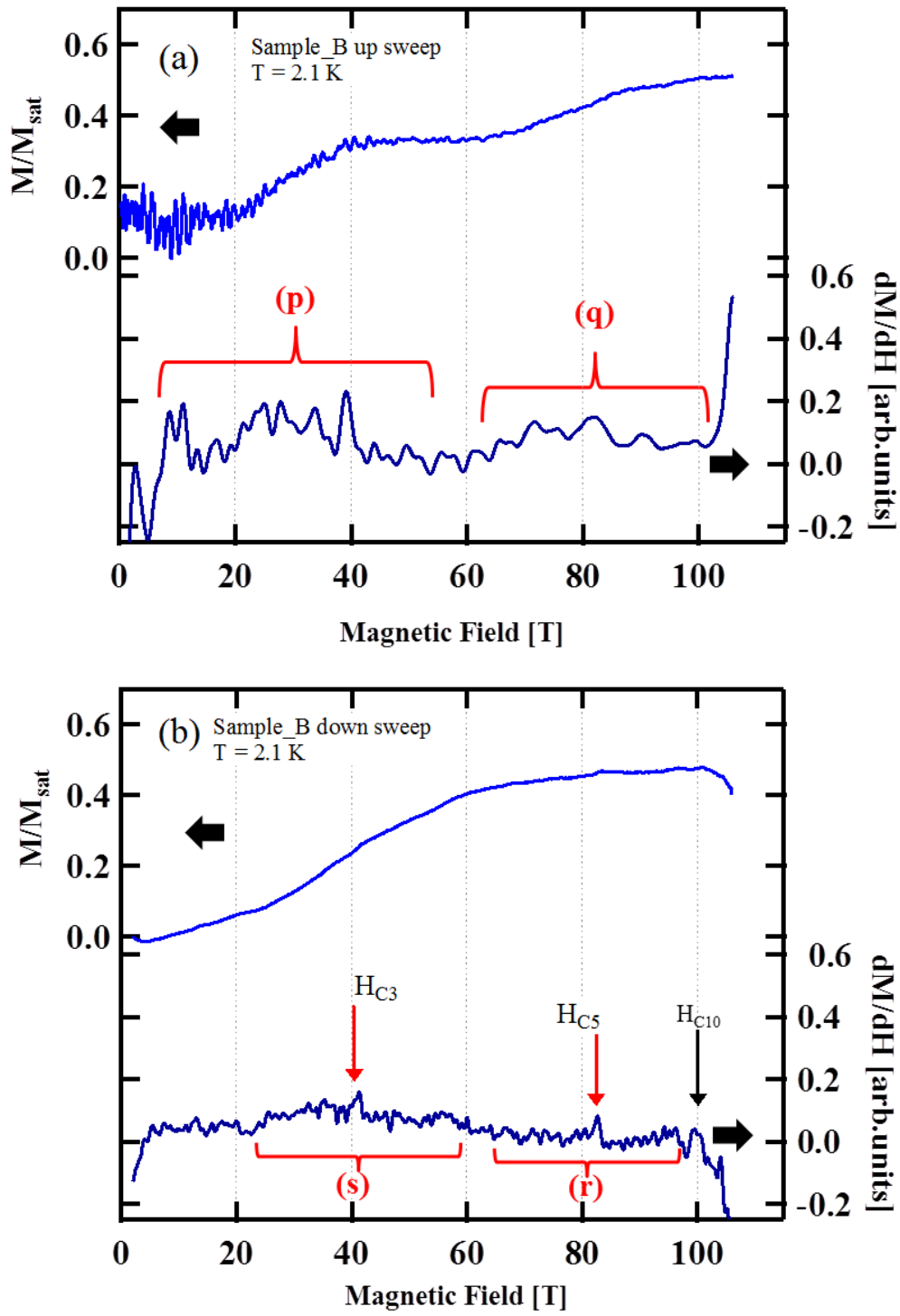


図 5.19 [測定 No.9] : 磁場発生(ii), $T = 2.1$ K, Sample-B
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

5.3 約 2 K での測定結果(2) : 測定 No.10~14

No.10~14 では No.1~No.9 での約 100 T までの測定よりも高い最高 120~140 T の磁場を用いて測定を行なった。

[測定 No.10] : 磁場発生(iii), $T = 2.1$ K, Sample-A

図 5.20(a)ではスターティングノイズが ± 15 V 程度生じている。図 5.20(b)では dM/dt に比例する信号において (p)~(w)の領域で変化が観測された。

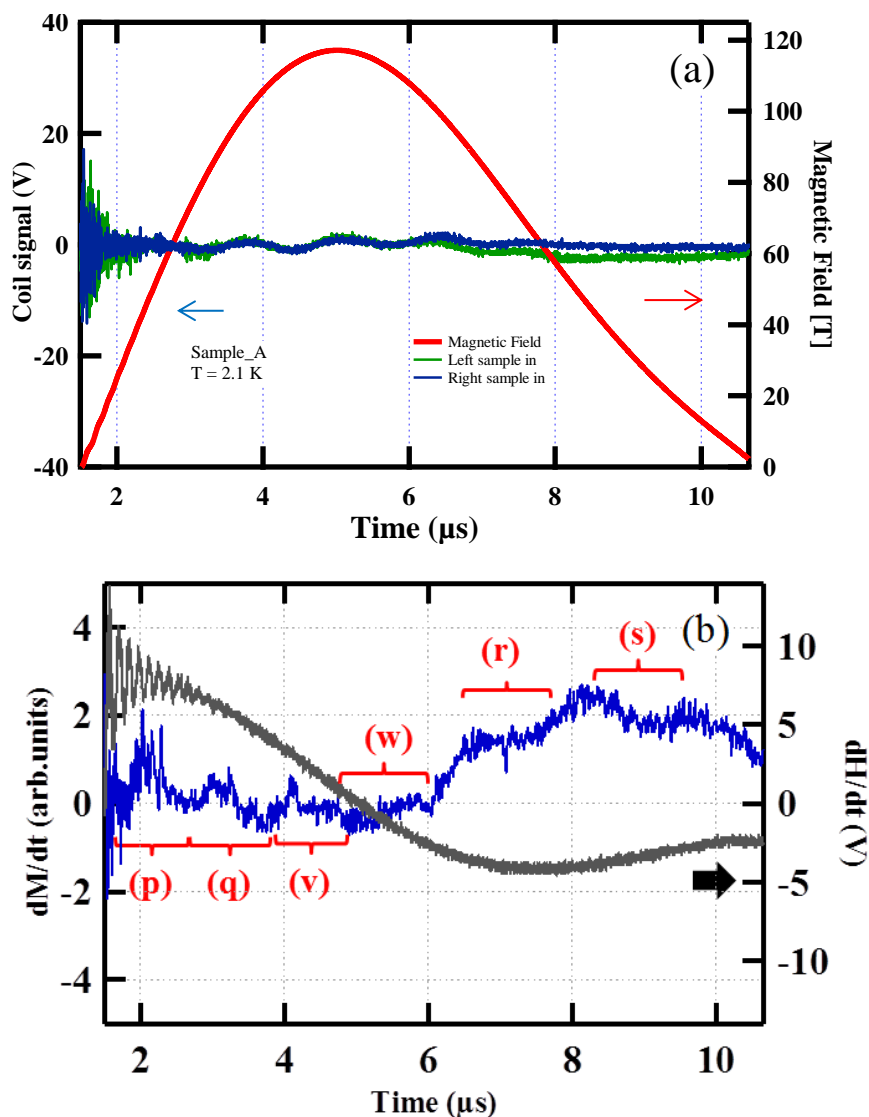


図 5.20[測定 No.10] : 磁場発生(iii), $T = 2.1$ K, Sample-A

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

測定 No.10 の dM/dH については図 5.20(b) ので示した (p)~(w) の磁場領域で変化が観測された。磁場上昇時は $H_{C1} \sim H_{C6}$ のピークが観測された。下降時では H_{C5} 、 H_{C6} のピークのみ観測された。また磁場上昇時は約 85 T から負に発散しており、下降時には正に発散し始めている。磁化曲線では磁場下降時がかなりブロードになっている。

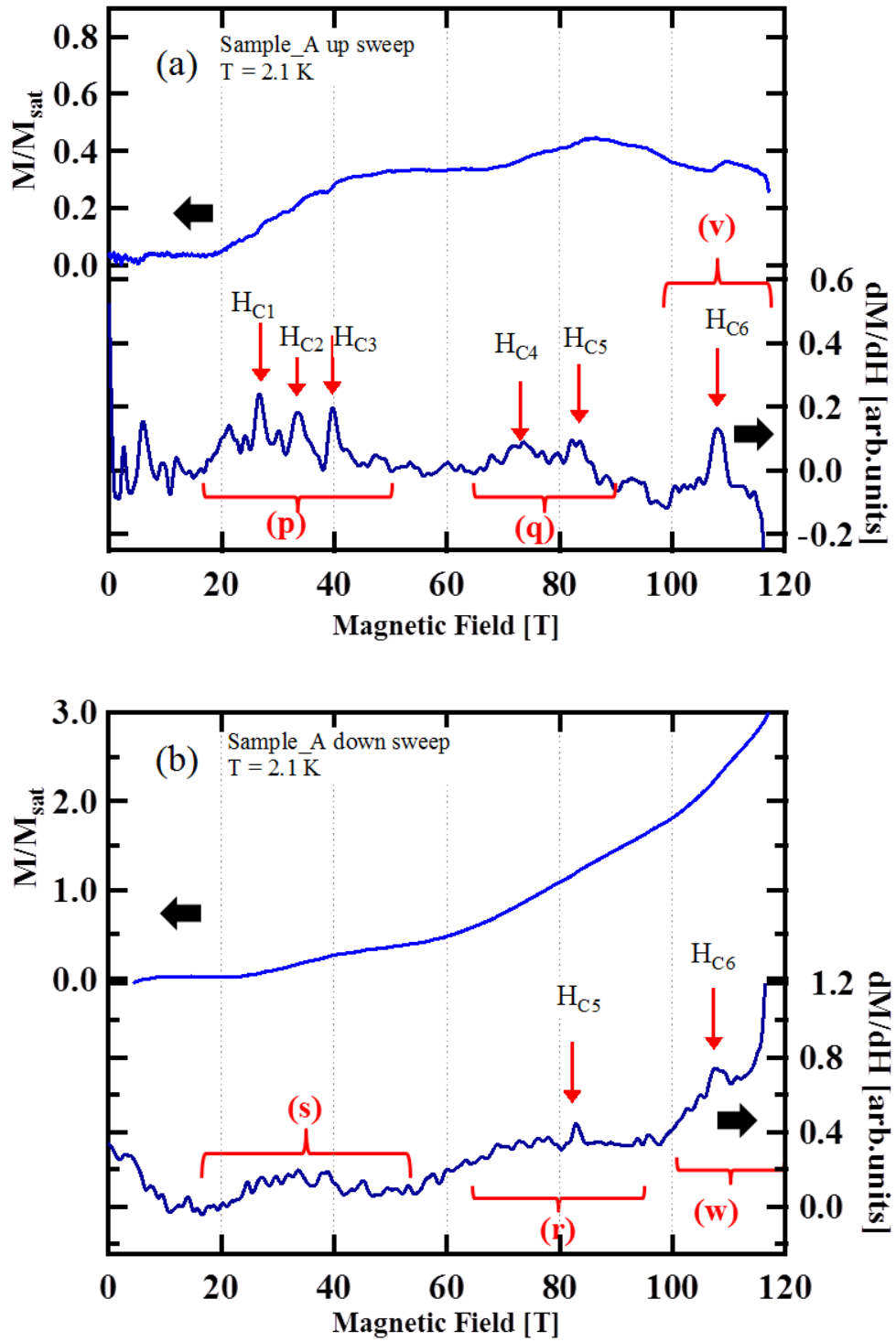


図 5.21 [測定 No.10] : 磁場発生(iii), $T = 2.1$ K, Sample-A
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

[測定 No.11] : 磁場発生(iii), $T = 2.2$ K, Sample-A

No.10 とほぼ同条件の測定であり、再現性を見るために行った。

図 5.22(a)ではスターティングノイズが ± 14 V 程度生じている。図 5.22(b)では dM/dt に比例する信号において (p)~(w)の領域で変化が観測された。

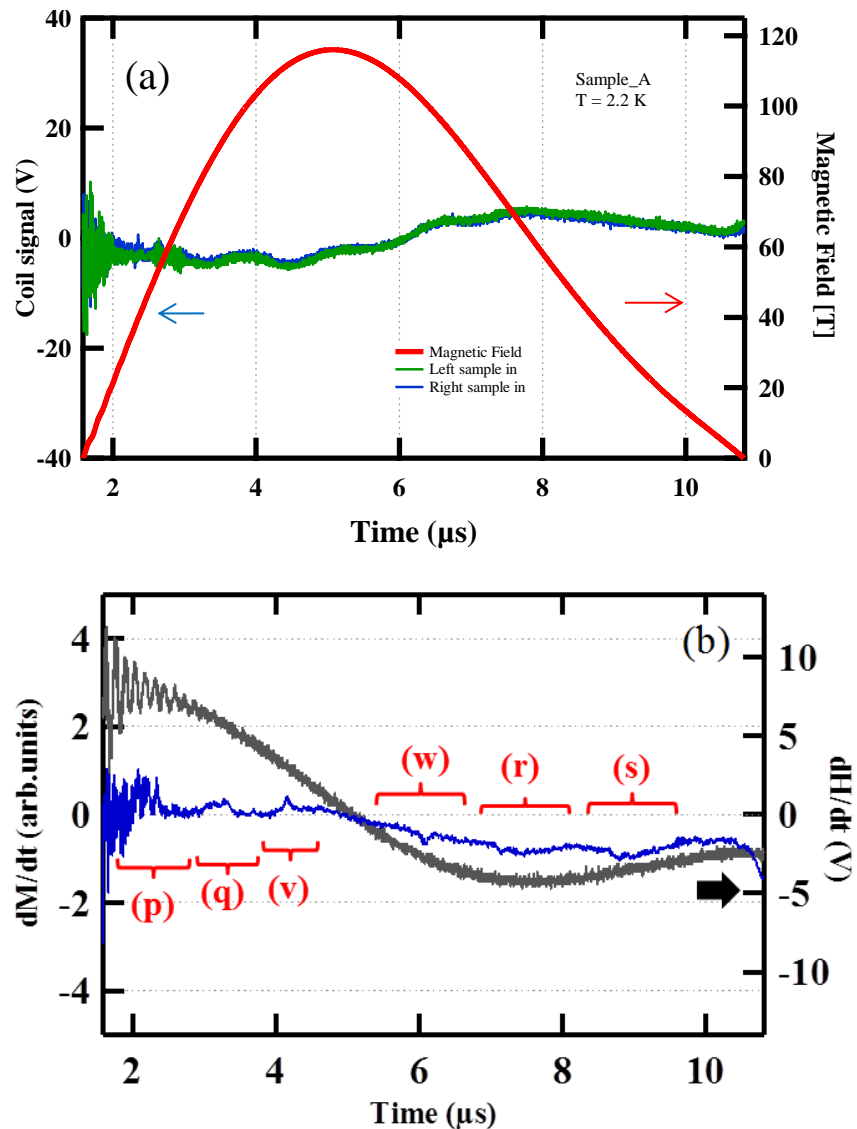


図 5.22[測定 No.11] : 磁場発生(iii), $T = 2.2$ K, Sample-A

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

測定 No.11 の dM/dH については図 5.22(b)の示した(p)~(w)の磁場領域で変化が観測された。磁場上昇時は H_{C1} 、 H_{C2} 、 H_{C3} 、 H_{C5} 、 H_{C6} のピークのみが観測された。下降時では $H_{C2} \sim H_{C6}$ のピークのみ観測された。磁場上昇時では約 100 T から正に発散し始めている。また、磁化曲線においてはスターティングノイズが良く引かれていな

いため、20 T までの磁化が減少する振る舞いを見せており、正確な磁化曲線ではないと考えられる。磁場下降時は約 85 T から負に発散し始めており、やはり信号にバックグラウンドノイズが残っているために正確な磁化曲線が得られていないと判断される。

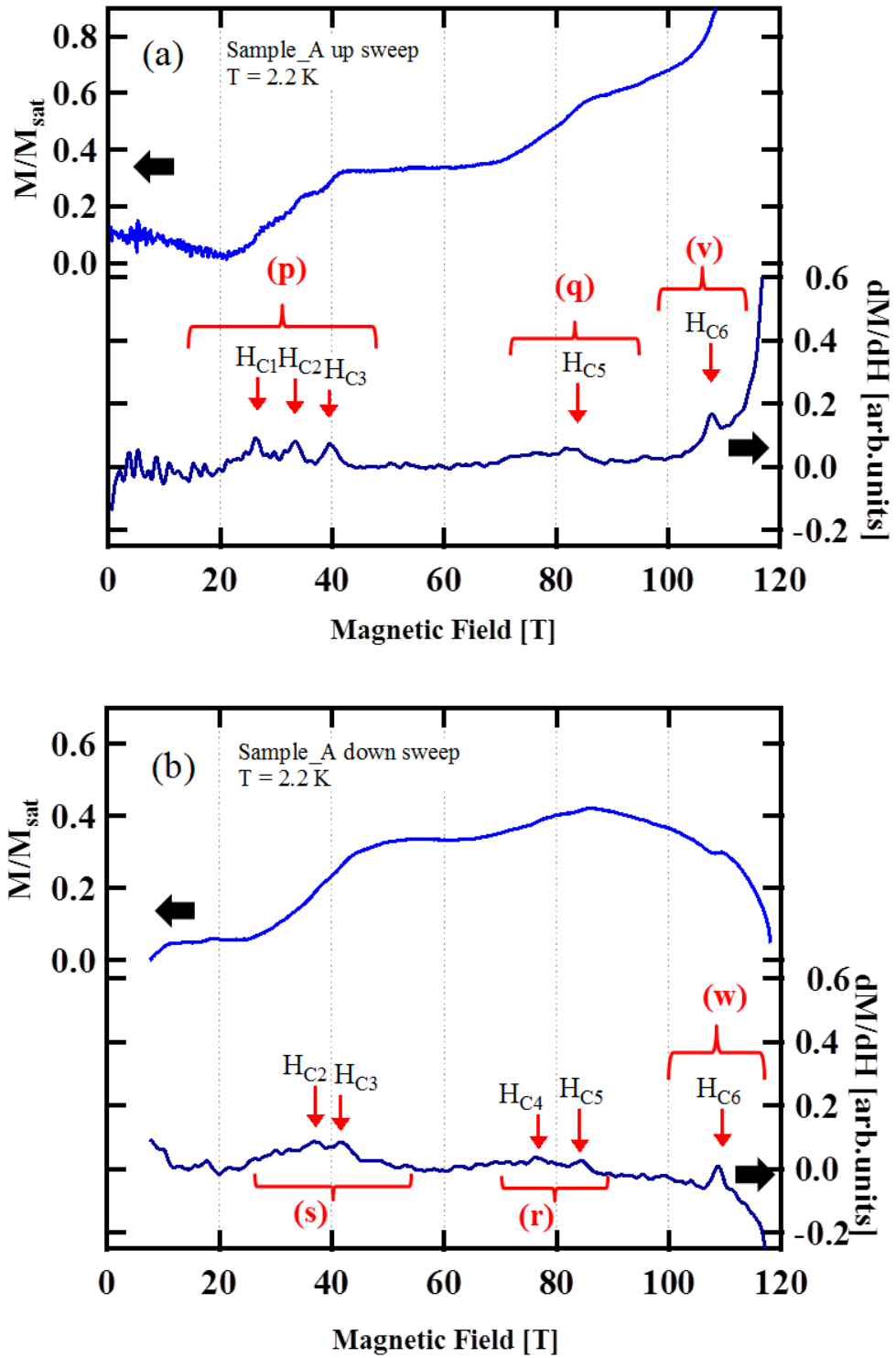


図 5.23 [測定 No.11] : 磁場発生(iii), $T = 2.2$ K, Sample-A
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

[測定 No.12] : 磁場発生(iii), $T = 2.0$ K, Sample-A

No.12 も No.10, 11 とほぼ同条件の測定である。図 5.24(a)ではスターティングノイズが ± 12 V 程度生じている。図 5.24(b)では dM/dt に比例する信号において (p)~(s) の領域で変化が観測された。

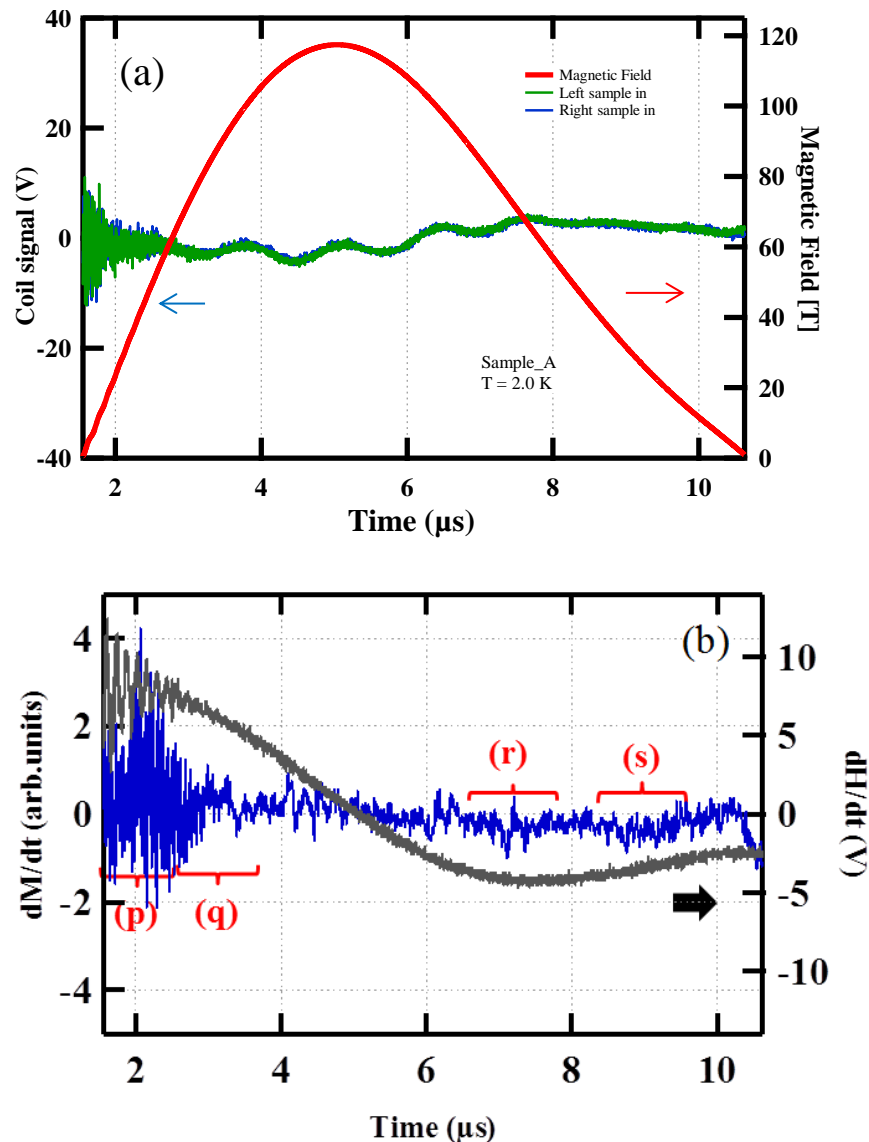


図 5.24[測定 No.12] : 磁場発生(iii), $T = 2.0$ K, Sample-A

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

測定 No.12 の図 5.25(a)では dM/dH については図 5.24(b)で示した(p)、(q)の磁場領域で変化が見られ、 $H_{C1} \sim H_{C6}$ のピークが観測された。磁化曲線はかなりブロードになっているが、約 40 T 付近から始まるプラトーと約 85 T から始まる傾きのあるプラトーが観測されている。磁場下降時は全体的にバックグラウンドに対して信号が弱く、正

確な磁化の変化を捉えられていないと考えられる。

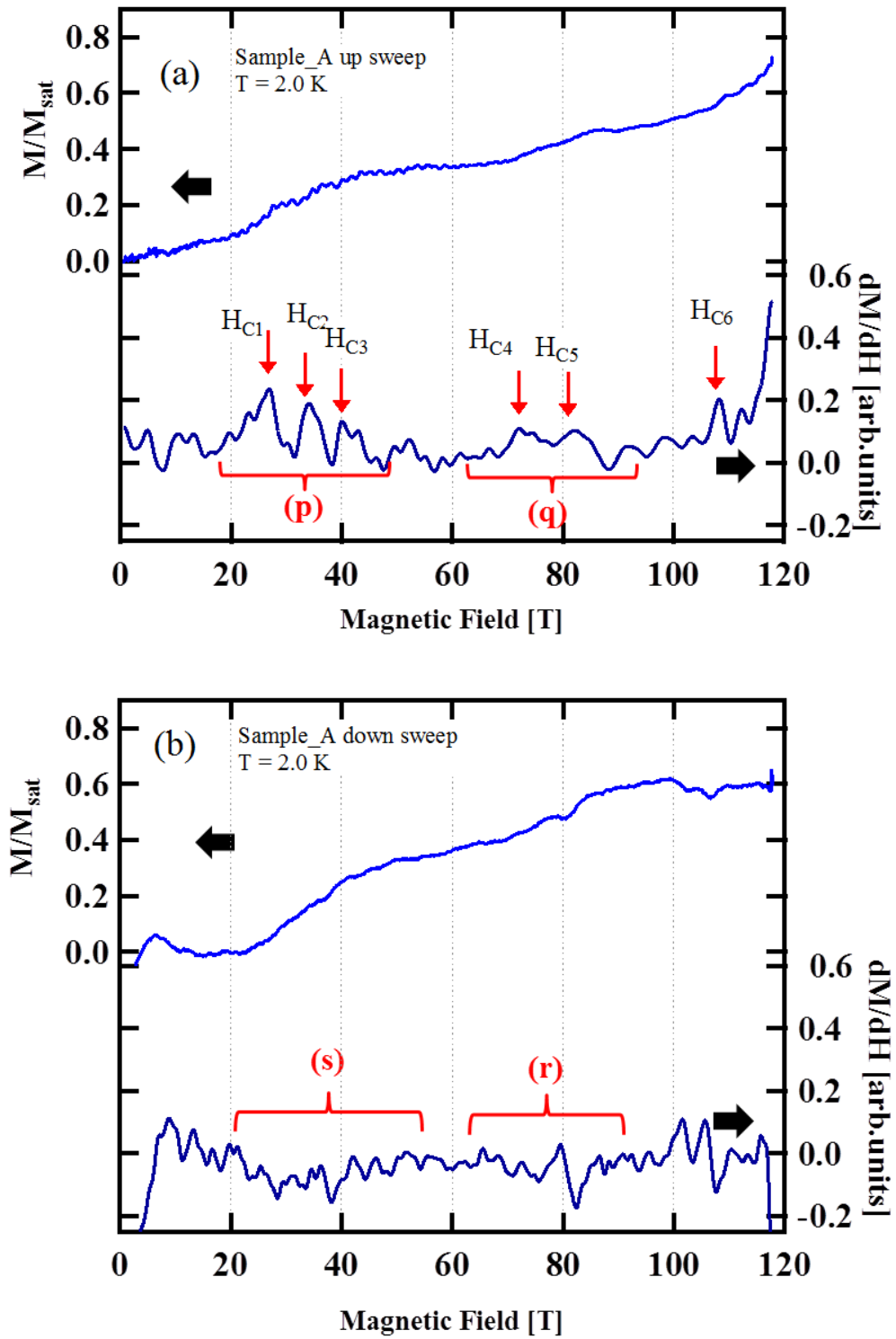


図 5.25 [No.12] : 磁場発生(iii), $T = 2.0$ K, Sample-A
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

[測定 No.13] : 磁場発生(iv), $T = 2.0$ K, Sample-A

図 5.26(a)ではスターティングノイズが ± 21 V 程度生じている。図 5.26(b)では dM/dt に比例する信号において (p)~(w)の領域で変化が観測された。

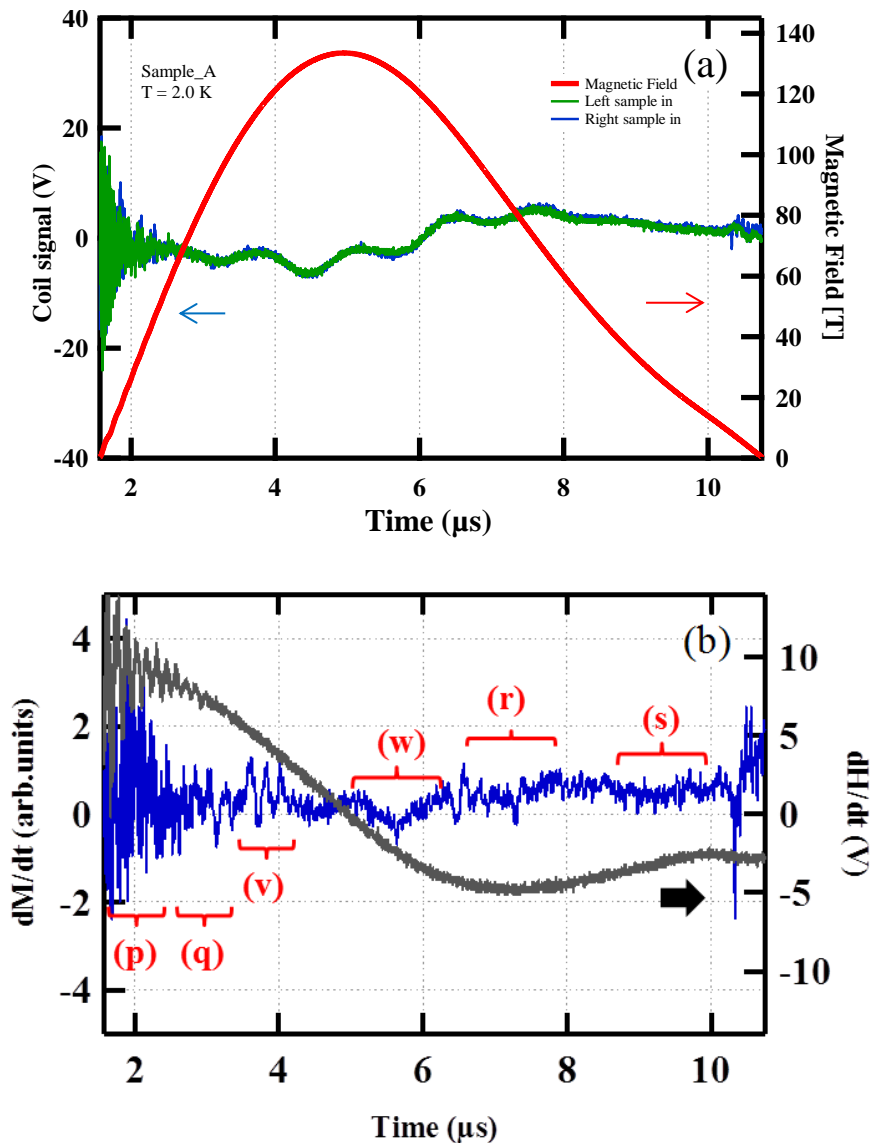


図 5.26[測定 No.13] : 磁場発生(iv), $T = 2.0$ K, Sample-A

(a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号

(b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の

二つの信号の差と磁場波形の時間微分

測定 No.13 の dM/dH については図 5.26(b)の示した(p)~(w)の磁場領域で変化が観測された。磁場上昇時では、 $H_{C4} \sim H_{C6}$ のピークが観測された。さらに H_{C12} 、 H_{C13} にもピークが見えている。磁化曲線は約 40 T のプラトーの始まりは見えているが、それ以降は正に発散してバックグラウンドノイズが大きく正確な曲線は得られていない。磁場下降時では、 $H_{C4} \sim H_{C6}$ のピークが観測された。

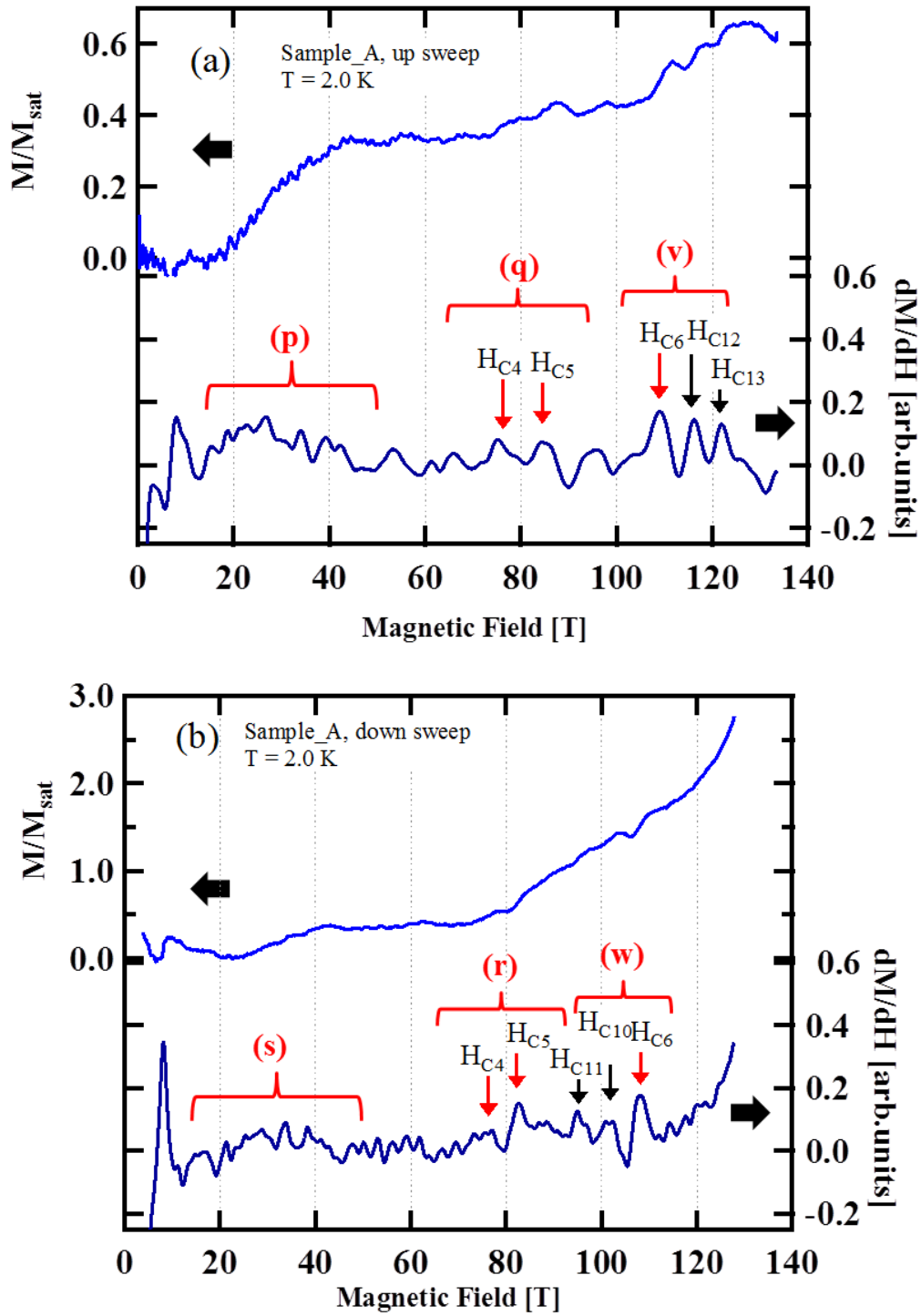


図 5.27 [No.13] : 磁場発生(iv), $T = 2.0$ K, Sample-A
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

さらに H_{C10} 、 H_{C11} にもピークが見えている。こちらも磁化曲線は約 40 T のプラトーの始まりは見えているが、それ以降は正に発散してバックグラウンドノイズが大きく正確な曲線は得られていない。

[測定 No.14] : 磁場発生(v), $T = 2.3$ K, Sample-B

No.14 は最高 140 T の磁場で測定を行った。図 5.28(a)ではスターティングノイズが ± 40 V 以上生じている。図 5.28(b)では dM/dt に比例する信号において (v)、(w) の領域でのみ有意な変化が観測された。最大 140 T の磁場発生のため、恐らくはコイルの変形による磁場の不均一性のために磁化ピックアップコイルの自己補償がかなり崩れている。

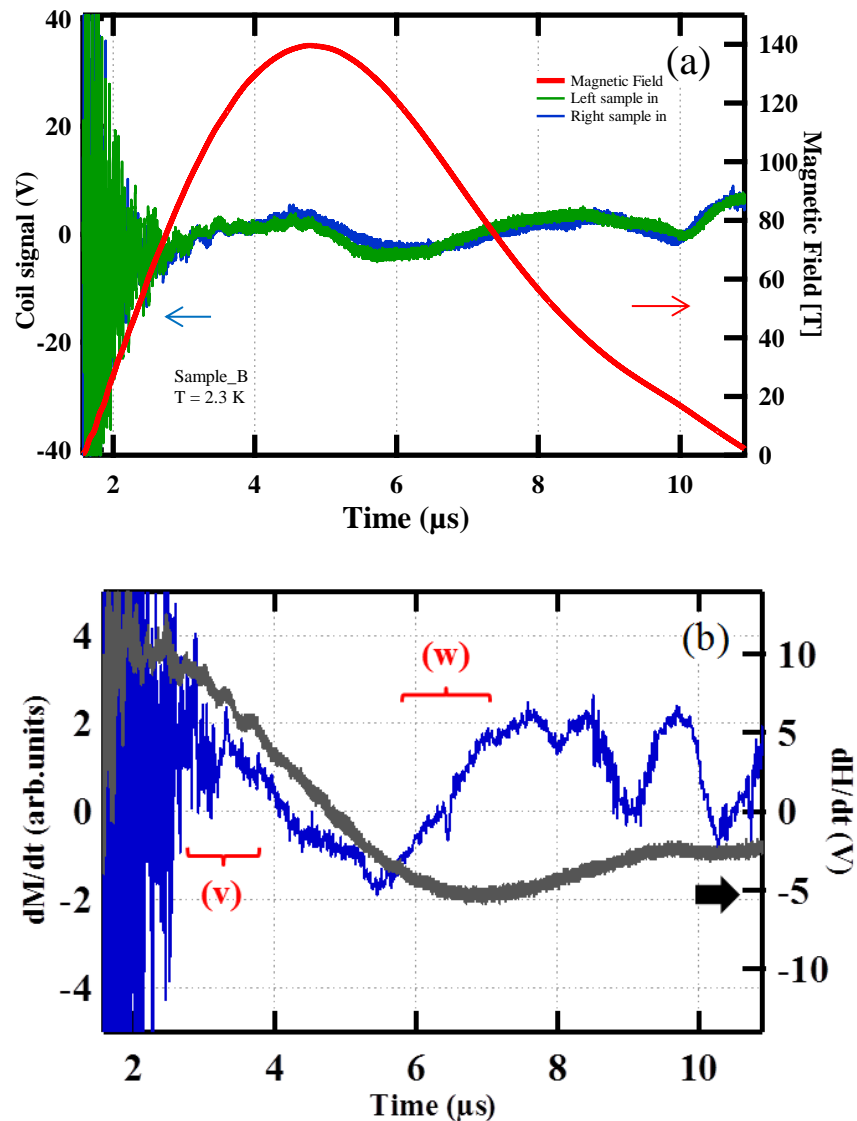


図 5.28[測定 No.14] : 磁場発生(v), $T = 2.3$ K, Sample-B

- (a) 磁場波形と左右にそれぞれ試料を入れた場合の信号
- (b) 試料をコイルの左右どちらかに入れた場合の
二つの信号の差と磁場波形の時間微分

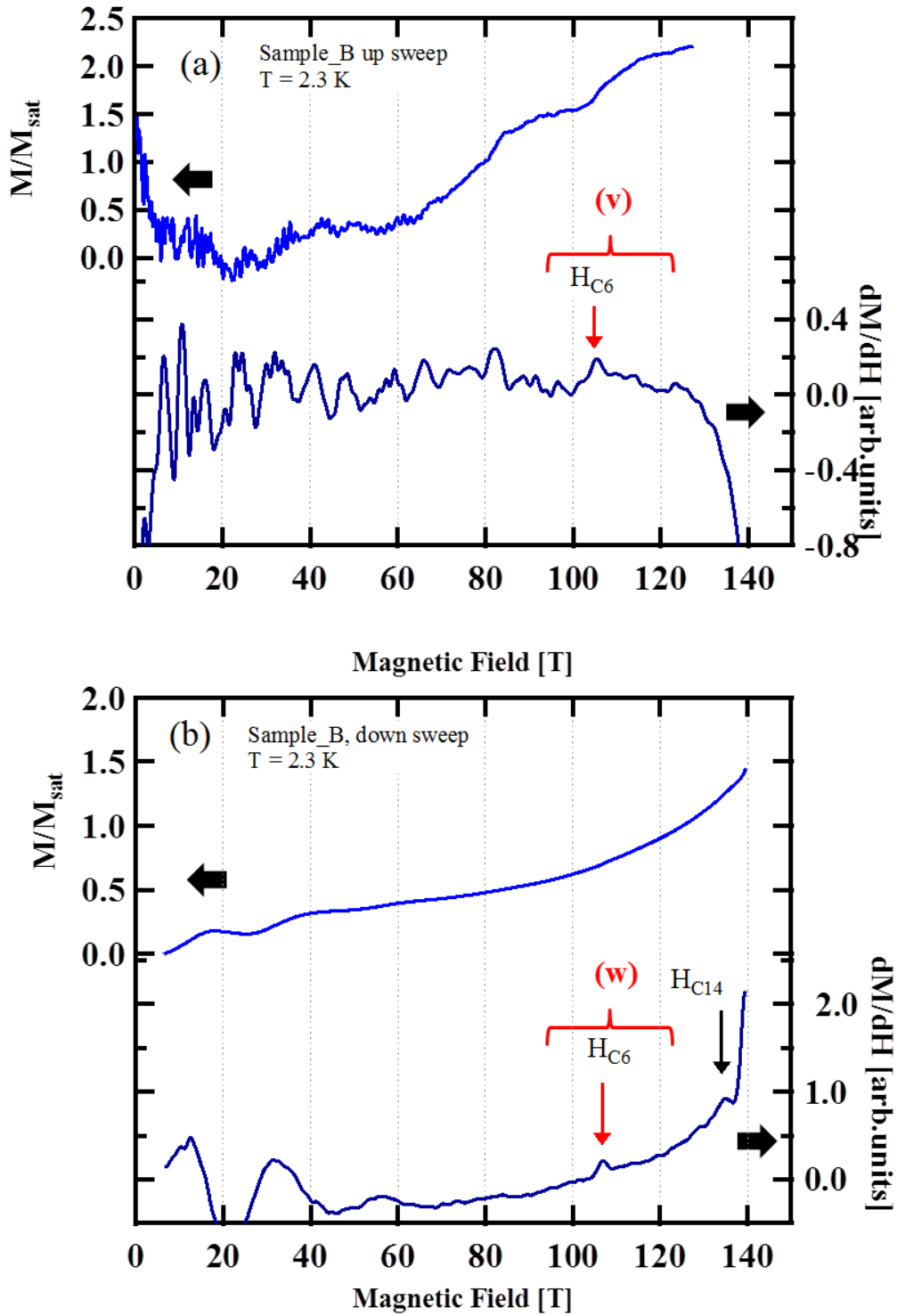


図 5.29 [測定 No.14] : 磁場発生(v), $T = 2.3$ K, Sample-B
 dM/dH に比例する信号と磁化曲線 ((a) 磁場上昇時、(b) 磁場下降時)

No.14 の測定では、 dM/dH ではどちらも H_{C6} のピークしか観測できていない。またどちらもかなりバックグラウンドノイズ成分が大きく、磁化曲線での議論は難しい。磁場下降時には 135 T 付近で H_{C14} の明らかなピークが観測できているが、今後の再

現実験などにより確かめる必要がある。

次章で議論するために以下の表にすべての測定結果における $H_{C1} \sim H_{C14}$ を示す。

表 6.1 dM/dH における転移磁場（磁場上昇時）

No.	H_{C1}	H_{C2}	H_{C3}	H_{C4}	H_{C5}	H_{C6}	H_{C7}	H_{C8}	H_{C9}	H_{C10}	H_{C11}	H_{C12}	H_{C13}	H_{C14}
1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4	26	33	39	74	84	107	-	-	-	-	-	-	-	-
5	27	37	42	-	80	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
7	27	34	41	76	84	-	-	-	-	-	-	-	-	-
8	24	35	42	76	84	-	-	-	92	-	-	-	-	-
9	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
10	27	34	40	74	84	108	-	-	-	-	-	-	-	-
11	26	33	40	-	83	108	-	-	-	-	-	-	-	-
12	27	34	40	72	82	108	-	-	-	-	-	-	-	-
13	-	-	-	75	85	109	-	-	-	-	-	115	122	-
14	-	-	-	-	-	106	-	-	-	-	-	-	-	-

表 6.2 dM/dH における転移磁場（磁場下降時）

No.	H_{C1}	H_{C2}	H_{C3}	H_{C4}	H_{C5}	H_{C6}	H_{C7}	H_{C8}	H_{C9}	H_{C10}	H_{C11}	H_{C12}	H_{C13}	H_{C14}
1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
2	25	34	39	77	85	-	-	-	-	-	-	-	-	-
3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
4	25	33	38	73	82	107	-	-	-	-	-	-	-	-
5	25	32	39	76	83	-	-	-	-	-	-	-	-	-
6	26	33	39	74	83	-	-	-	-	-	-	-	-	-
7	25	32	39	76	84	-	-	-	-	-	-	-	-	-
8	26	33	40	76	84	-	69	62	-	-	-	-	-	-
9	-	-	41	-	82	-	-	-	-	99	-	-	-	-
10	-	-	-	-	83	108	-	-	-	-	-	-	-	-
11	-	37	42	76	84	109	-	-	-	-	-	-	-	-
12	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
13	29	34	38	76	83	108	-	-	-	102	95	-	-	-
14	-	-	-	-	-	107	-	-	-	-	-	-	-	134

この二つの表から、 $H_{C1} \sim H_{C6}$ のピークはある程度再現性が得られたのに対し、 $H_{C7} \sim H_{C13}$ では $H_{C1} \sim H_{C6}$ と同程度の再現性が得られていないのがわかる。そのため、 $H_{C7} \sim H_{C13}$ のピークに関しては、測定上のノイズによるものとして本論文の議論からは除外する。 H_{C14} のピークについては、磁場発生(v)の実験を一度しか行なっていない

いため再現性に関しては確認できていない。

そこで次章からの議論には主に $H_{C1} \sim H_{C6}$ のピークを中心に議論を進めていく。特に No.4 の測定は、 $H_{C1} \sim H_{C6}$ の全てのピークが磁場上昇時と下降時の両方で明確に確認され、図 5.8 からわかるように試料を左右のそれぞれに入れた二つの測定の再現性も良く、またスターティングノイズも比較的少ない。そのため今後は No.4 の測定結果を信頼性の高い結果として考え、この結果について議論を進めていくことにする。

No.1~No.14 における各ピークの磁場値の平均と標準偏差を求めたものを表 5.4、5.5 に示す。

表 5.4 dM/dH における転移磁場（磁場上昇時）の
平均と標準偏差

	H_{C1}	H_{C2}	H_{C3}	H_{C4}	H_{C5}	H_{C6}
平均	26	34	41	75	83	108
標準偏差	1.3	1.3	1.1	1.4	1.5	0.9

表 5.5 dM/dH における転移磁場（磁場下降時）の
平均と標準偏差

	H_{C1}	H_{C2}	H_{C3}	H_{C4}	H_{C5}	H_{C6}
平均	26	34	40	76	83	108
標準偏差	1.4	1.3	1.3	1.2	10.9	0.7

測定上の精度の問題から、 ± 1 T 程度の誤差があるため、転移におけるヒステリシス等の議論は難しいことがこれよりわかる。

6 考察

● 磁化信号強度について

この節では、本研究の測定試料の信号強度についての考察を述べる。

本研究の先行研究として Takeyama 等により、一卷きコイル法を用いた磁化測定開発が行なわれてきた[7]。この先行研究の代表的な業績としてフラストレートクロムスピネル酸化物 CdCr_2O_4 の全磁化過程の観測などが上げられる。そこで、改良を加えた本研究の測定システムを用いて CdCr_2O_4 の磁化測定を行い、その信号強度と、既に明らかにされている磁化の変化から、 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ を同様に測定した場合にどの程度の信号が得られるのが妥当であるかを推測し、実際の結果と比べた。

図 6.1 は本研究で使用した測定システムによる CdCr_2O_4 の測定結果である。

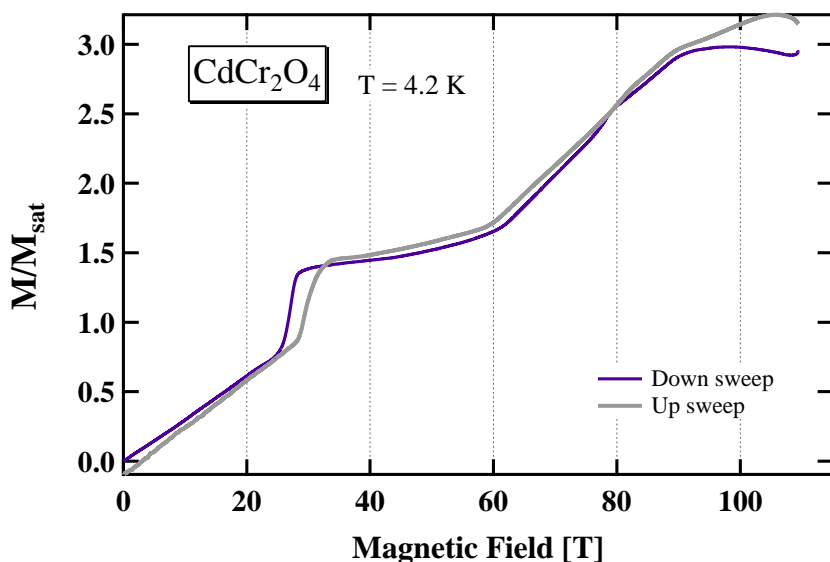


図 6.1 CdCr_2O_4 の磁化過程

上図に示されるように、 CdCr_2O_4 の磁化過程では、28 T 付近から約 56 T までの領域において、磁性を担う Cr^{3+} イオンの全磁化の 1/2 に相当するプラトーが見られる。この磁化過程の、試料をピックアップコイルの左右にそれぞれ入れて測定した二つの信号の差の成分であり、 dM/dt に比例する信号を図 6.2 に示す。

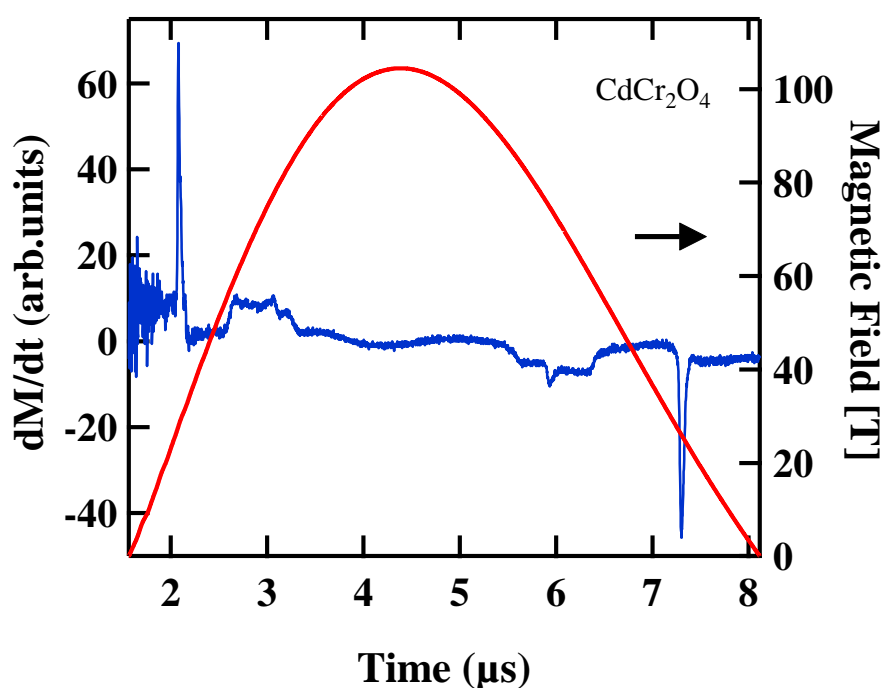


図 6.2 CdCr_2O_4 の dM/dt と磁場の時間依存性

上図では、1/2 プラトーの直前の急激な磁化の立ち上がりを示すピークが磁場上昇時と下降時で確認できる。このピークは磁場上昇時では約 69.4 T 程度となっている。この信号強度と、この領域における磁化の変化率との比率を求め、この値から、仮に同じ質量の $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ を同様に測定した場合にどの程度の信号が得られるかを推測する。比較する対象として、Onizuka 等の実験結果で得られている 1/3 プラトー直前の磁化の立ち上がりに注目した[5]。

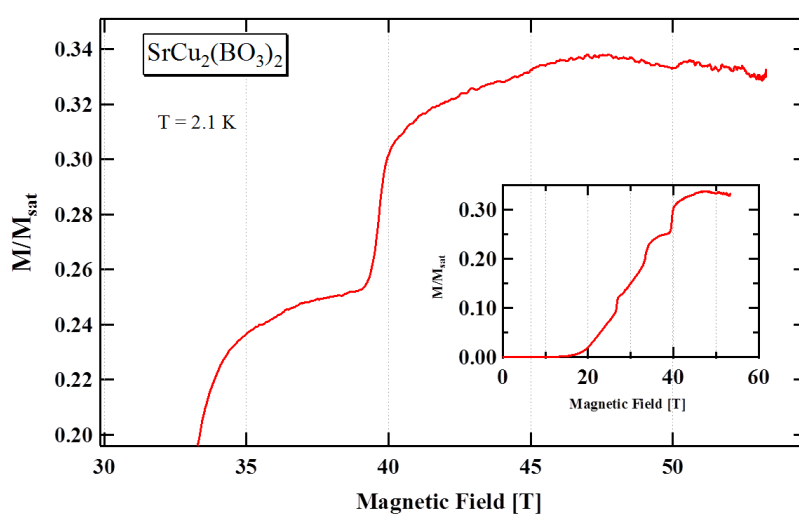


図 6.3 Onizuka 等による 53 T までの磁化過程[5]
(1/3 プラトー部分の拡大図)

信号強度と磁化の変化率との比率は、まず下図のように磁化と磁場の変化を定め、磁場の時間依存性から時間変化を求めた。

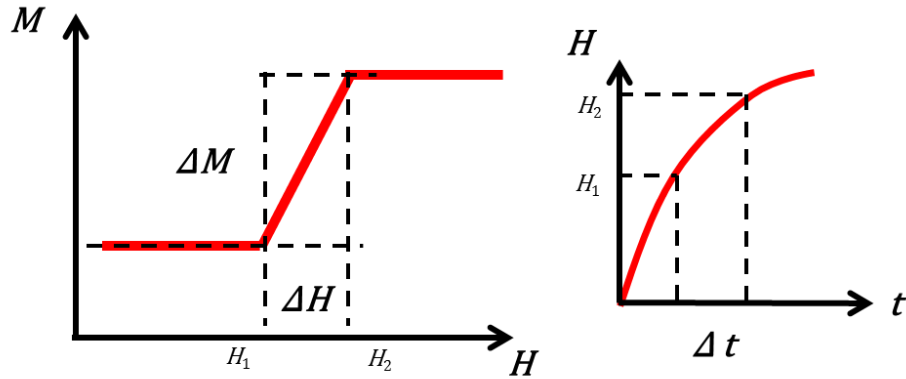


図 6.4 磁化と時間の変化率の定義

$$\left(\frac{\Delta M_{\text{CdCr}_2\text{O}_4}}{\Delta t_{\text{CdCr}_2\text{O}_4}} \cdot D_A / A \right) : 69.4 \text{ (V)} = \left(\frac{\Delta M_{\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2}}{\Delta t_{\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2}} \cdot D_B / B \right) : x \quad (6.1)$$

ここで A, B はそれぞれ、 CdCr_2O_4 の分子量 (280.4) と $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の分子量 (332.3) を示し、 D_A, D_B はそれぞれ CdCr_2O_4 の密度 (5.88 g/cm^3) と $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の密度 (4.13 g/cm^3) を示す。これより同体積の $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ に期待される 1/3 プラトーでの信号強度 x は

$$x = 5.28 \text{ (V)} \quad (6.2)$$

となった。

Sample-A を用いた No.4 の測定における磁場上昇時の 1/3 プラトーの直前の磁化の立ち上がりを示す信号は、1.6 V 程度であった。この信号強度は上記の 30 % 程度となり小さい。また、Sample-B を用いた No.7 の測定における磁場上昇時の 1/3 プラトーの直前の立ち上がりを示す信号は 4.0 程度となっており、上記の 68 % となっていてこちらも小さくなっている。これらの原因の一つに試料の充填率の違いがあると思われる。

また、No.4 の磁化過程を得る際には(4.37)式の定数 B に相当する offset を 0.16 V 差し引いて 1/3 プラトーが平坦になるようにした。この offset 成分は試料の磁化の信号強度の 10% 程度になるため、得られた磁化曲線の小さな変化についての議論は困難であると考えられる。しかし、 dM/dH において得られた再現性のあるピークが、試料の磁化に反映していることは明らかであり、

磁気相転移のような、明らかな変化についての転移磁場を決定することは可能であると考えられる。

● 磁化プラトーについての考察

実験結果の磁化曲線を議論する出発点として、本研究の測定結果とこれまでに報告されている低磁場領域での振舞いを比較する。図 6.5 に Onizuka らによって報告された 53 T までの磁化過程を示す[5]。図 6.6 は第 5 章 No.4 の磁場上昇時の測定結果と図 6.5 の磁化曲線の比較である。

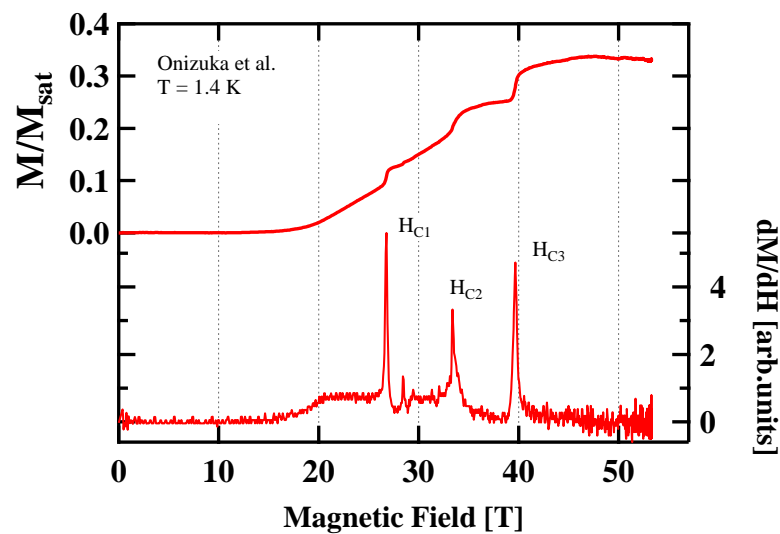


図 6.5 Onizuka 等による 53 T までの磁化過程（上）
と磁化の磁場微分（下）[5]

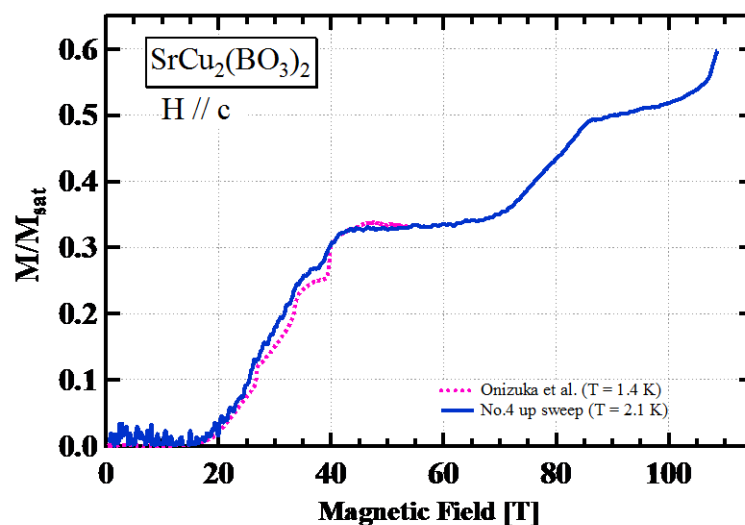


図 6.6 No.4 の磁場上昇時の測定結果と図 6.5 の磁化曲線の比較

図 6.5 下部の dM/dH では $1/8$, $1/4$, $1/3$ プラトーを示す 3 つのピーク ($H_{C1} \sim H_{C3}$) が観測されている。転移磁場はそれぞれ $H_{C1} = 26.8$ T, $H_{C2} = 33.4$ T, $H_{C3} = 39.7$ T となっている。これらの転移磁場と表 5.4, 5.5 の $H_{C1} \sim H_{C3}$ を比較するとかなり良い一致を示しているのがわかる。また、図 6.6 においても No.4 の磁場上昇時と Onizuka らにより測定された磁化曲線が近い振る舞いをしている。No.4 の磁化曲線の方が幾分緩やかな曲線を描いているが、測定温度が No.4 の方が高いことを考慮すると十分あり得る違いである。

以上のことから、No.4 の磁化曲線は 50 T 付近までの低磁場領域に関しては、過去の実験結果と良い一致を示し、 dM/dH では $1/8$, $1/4$, $1/3$ プラトーに相当するピークが観測できていると言える。

● 1/2 磁化プラトーの観測について

No.4 の測定結果において 50 T 付近までの信頼性は確認できた。そこで磁場頂上までの残りの領域について検証する。現在誘導法による直接的な磁化測定の実験結果では Sebastian 等により、約 80 T までの測定が報告されている[36]。No.4 の磁場上昇時の磁化曲線では、約 41 T 付近から $1/3$ プラトーが始まり、この領域は約 71 T まで続く。この点においても No.4 の測定結果は過去の Sebastian 等の実験結果と良く一致する[36]。その後は 86 T 付近まで緩やかに増加し続けている。そして新たに 107 T まで領域でプラトーと考えられる構造が観測されている。この新たに観測された磁化プラトー領域は Cu^{2+} イオンの全磁化の $1/2$ 付近に相当する。また、 dM/dH の H_{C5} に見られるピークはこの $1/2$ プラトーの始まりを示唆するものであることが推測できる。これらを考慮すると表 5.4, 5.5 から、かなりの確率で H_{C5} が現れているため、少なくともこの付近の磁場領域から $1/2$ プラトーが存在するのは間違いないと思われる。

強磁場下における磁化以外の研究としては、Jaime 等による磁歪の測定が 100.75 T まで報告されている[41]。これを図 6.7 に示す。この実験結果から 73.6 T 付近における Cu^{2+} イオンの全磁化の $2/5$ に相当するプラトーと 82.4 T 付近から Cu^{2+} イオンの全磁化の $1/2$ に相当する磁化プラトーが存在する可能性が示唆されている。本研究の測定結果における dM/dH の H_{C4} に見えるピークはちょうど Cu^{2+} イオンの全磁化の $2/5$ に相当する磁化領域で観測され、この点でも Jaime 等の主張と一致する。

図 6.8 は Jaime 等によって示された磁化過程の理論計算結果である。この計算では、DMRG (密度行列繰込み群) と呼ばれる手法により行われており、その計算結果は $N \times M$ スピンの N と M の選び方に依存することが予想される。図 6.8 を示す計算の過程では二次元配置したスピンを 4×30 と恣意的に選んでいる。従って、計算結果の妥当性にはまだ議論の余地はあるが、この計算結果と No.4 の結果を比較すると $1/3$, $1/2$ プラトーの磁場領域がかなり良く再現されているのが確認できる。Jaime 等の計算では 100 T を超えた辺りから $1/2$ プラトーが終わり、磁化の更なる増加が始ま

っている。その後 105 T 付近から磁化の傾きがわずかに減少しているのが確認できる。
No.4 の dM/dH の H_{C6} に見られるピークはこの部分を示していると推測できる。

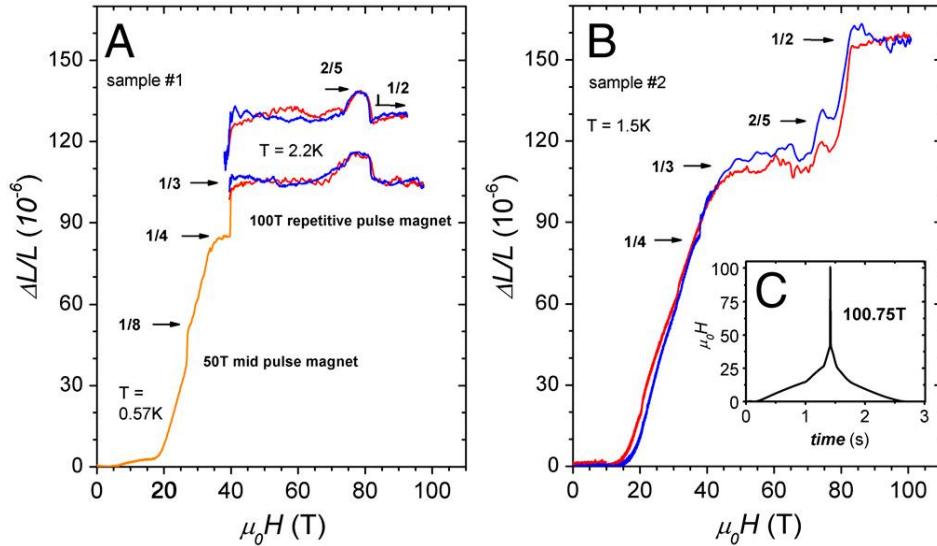


図 6.7 Jaime 等による強磁場下における磁歪測定[41]
A、B は試料の固定方法が異なる。C は磁場の時間依存性。

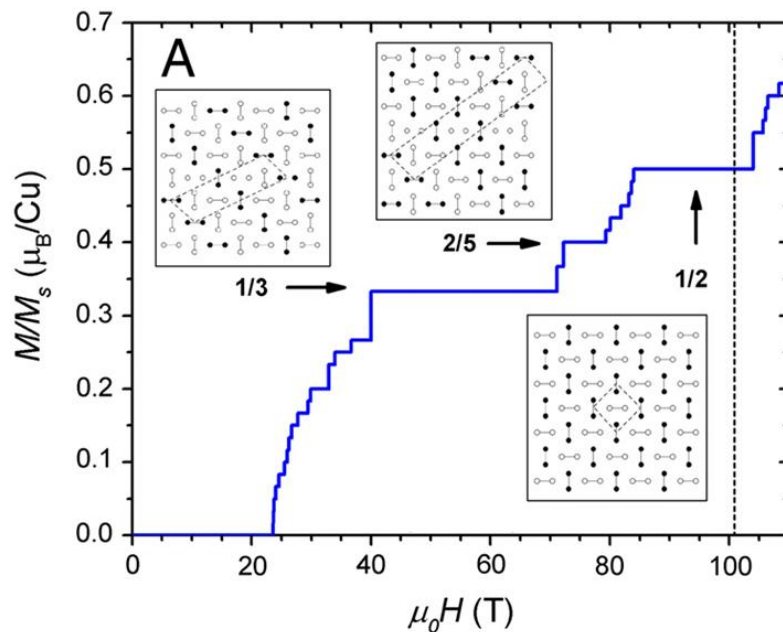


図 6.8 Jaime 等による磁化過程の計算結果[41]
各プラトーのモデルは磁化の割合と三重項の割合が対応している。
(黒ダンベルが三重項、白ダンベルが一重項)

本研究において観測された 86 – 107 T の磁場領域における 1/2 プラトーは有限の傾きを持っている。これについては未だ議論の最中であり、また前述したとおり dM/dt

に相当する信号に大きな offset があることから、実験技術的にこの有限の傾きが $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の性質を捉えた本質的な実験結果であるかどうかの判断は現状では難しい。しかしそれを踏まえたうえで、この有限の傾きが測定上の誤差でない場合に、その起源として考えられるのは、磁場掃印速度が速いために生じる磁気凍結効果の減少である[35, 43]。これについては Takigawa 等が低磁場領域での NMR の結果と非破壊型のパルスマグネットを使用した磁化測定の結果を比較することで詳しく述べている[35, 43]。そもそも約 0.5 K 以上の有限温度の測定では、熱励起の影響があるため本研究結果の各プラトー領域のような鋭い転移は現れない。しかし熱励起の緩和時間に対して十分に早い掃印速度を持つパルス磁場下では、擬似的な断熱冷却が起こるため、絶対零度に近い振る舞いが観測される。本研究においても同様の効果により 1/3 プラトーなどが明瞭に観測できている。しかし、1/2 プラトーが観測されている磁場の頂上付近の高磁場領域では、磁場掃印速度が著しく減少する。そのため熱励起の効果が現れ、1/2 プラトーに温度上昇による有限の傾きが生じる可能性がある。

3.4 節では、磁化過程の理論研究について述べた。その中でも特に Momoi と Totsuka は高磁場領域において 1/2 プラトー出現し、さらに 1/3 プラトーの後と 1/2 プラトーの後に Supersolid 状態が形成されることを予想していることを紹介した[33]。さらに、最近報告された Lou 等の計算結果では、1/2 プラトー後に新たに二つの Supersolid 状態が形成されることが示唆されている[44]。これらの予想については未だ議論が続いている。

本研究の実験結果では、それぞれ 40 - 71 T と 84 - 107 T の領域で 1/3 プラトーと 1/2 プラトーが観測され、さらに 1/3 プラトーと 1/2 プラトーの間の領域と 1/2 プラトー以降の高磁場領域では緩やかな磁化の増加が見られている。この実験結果は上記の理論計算の予想に一致する傾向を示しており、この 1/3 プラトー後の磁化の増加や、1/2 プラトーの後の変曲点や緩やかな磁化の増加等が示す振る舞いは、Supersolid 状態が形成されているという主張に整合するものになっている。

● 温度依存性

本研究では、4.2 K と約 2 K の温度で測定を行った。同様の条件で測定している 4.2 K と 2.1 K の dM/dH を比較する。図 6.9 に No.1(4.2 K) と No.4(2.1 K) の測定における磁場上昇時の dM/dH を示した。2.1 K では $H_{C1} \sim H_{C5}$ のピークが明確に確認できる。一方、4.2 K では H_{C3} や H_{C5} に相当する部分は見えているが、全体的に緩やかに変化しているためそれ以外のピークを定めることは難しい。

これは、4.2 K の測定結果のほうが熱揺らぎの効果が大きいため、 H_{C3} と H_{C5} 以外のピークが揺らぎの信号に埋もれてしまっているからである[45]。この点に関して Kageyama 等は、0.08~4.2 K までの温度領域で磁化測定を行い、1.5 K 以上から熱揺らぎの効果が現れることを報告しており、本研究の実験結果はこれとも良く一致する。

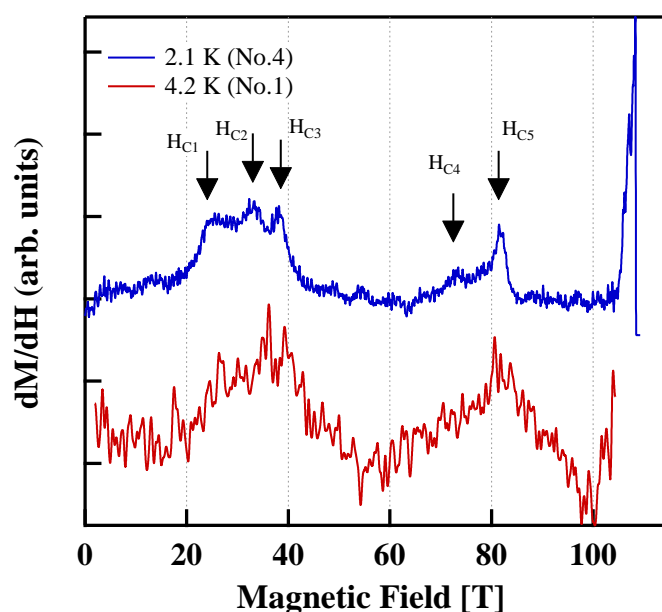


図 6.9 4.2 K と 2.1 K における dM/dH の比較

7 結論

本研究では二次元直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の高磁場領域における磁化過程を明らかにするため、一巻きコイル法を用いて極低温下での磁化測定手法の改良を試み、温度 4.2 ~ 2.0 K、最大磁場 140 T の条件のもと磁化測定を行なった。

その結果、2.1 K において 1/8、1/4、1/3 磁化プラトーを観測し、これらの磁場値はこれまでに報告されていた実験結果と良い一致を示した。さらに 84 - 107 T の高磁場領域において初めて 1/2 磁化プラトーを観測した。これらの磁化の振る舞いは最近の計算結果や磁歪の実験結果と良い一致を示している。一方で理論的な妥当性には検討の余地があり、今後のこの分野の研究に新たな方向性を与えると期待できる。本研究で明らかにされた高磁場領域での磁化過程は、新たな磁化プラトーだけでなく、Supersolid 相などの新規な強磁場相の出現の可能性も示唆しており、二次元直交ダイマー系の深い理解につながるものであると考える。

謝辞

本研究を進めるにあたり、多くの方々にご指導・ご協力頂きましたのでこの場をお借りして感謝の意を述べたいと思います。

指導教官の松田康弘准教授には、物性研究所国際超強磁場科学研究施設という恵まれた実験環境の中で、世界的にも数箇所しかなく、100 T以上の超強磁場発生が可能な一巻きコイル法に関する研究テーマを与えて頂きました。このような貴重な実験装置の測定手法の開発に携われたことが私の物性研での研究における最大の財産だと感じております。松田先生には、正しい方向性で研究が進むよう常に的確なご指導をして頂きました。松田先生のご指導により比較的早い時期から良い測定結果を得ることができ、健全な研究生生活を送ることができました。また、四度にわたる物理学会や国際会議での発表の際には予稿や発表内容についてその度に根気強くご指導頂きました。私が文章を書くことや、英語が不得手であったため一層大変だったと思います。また、我々学生と共にたくさんのイベントや昼サッカーにも積極的にご参加頂きました。飲み会の席ではいつも二次会までお付き合い頂きました。このように研究においては勿論のこと、学生生活においても完璧なご指導を頂きました。松田研究室に配属されたことを、本当に幸運なことであったと身にしみて感じております。本当に二年間お世話になりました。有難うございました。

東京大学物性研究所の嶽山正二郎教授には、測定装置全般において、大変多くのご指導を頂きました。温厚なお人柄の嶽山教授は、私が実験やその準備をしているときにいつも気さくにお声をかけてくださいました。そしてその度に豊富な装置開発のご経験や知識をもとに、実験手法等について私が気づき得ない有力なご指摘を頂きました。測定精度の向上が必須であった本研究においては、そのような嶽山教授のご指導は、本当に何ものにも代えがたい貴重なものでした。有難うございました。

京都大学工学系研究科の陰山洋教授には本研究で使用した試料をご提供いただきました。有難うございました。

東京大学物性研究所の金道浩一教授には、物性研での様々なイベントの取りまとめをして頂きました。また毎日の昼サッカーで一緒にさせて頂きました。朝のテニスにも誘って頂きました。金道教授自ら多くのイベントに意欲的に取り組まれていたので、学生の私たちも心置きなく楽しむことができました。有難うございました。

東京大学物性研究所の徳永将史准教授には、金道浩一教授と同様に毎日昼サッカーと一緒にさせて頂きました。有難うございました。

松田研のイ・スヨンさん、野村肇宏氏、寺島拓君、吉田理絵さん、嶽山研の中村大輔助教授、中澤徳郎氏、澤部博信氏、宮田敦彦博士、周偉航博士、斉藤宏晃氏、佐々木達也氏、間祐樹君、野田真友子さんには、学生生活を送る上で、多大なご支援・ご協力を頂きました。松田研と嶽山研は共同で研究を行なっているため、日々の生活を大変賑やかに楽しく送ることができました。有難うございました。

中村助教には公私共に大変お世話になりました。中村助教授は物理において幅広い知識を習得されており、日々の生活やセミナーを通して、本当に多くのご指導を頂きました。また研究室の風紀を整えるべく、自らも厳しく真剣に研究に取り組まれる姿勢は常に我々学生の良い指針になっておりました。また週末はいつも野村氏と共に夕食をご一緒させて頂きました。有難うございました。

宮田博士には、学生生活を送る上で大変お世話になりました。研究の面では、居室の席が近くだったこともあり研究室へ配属された当初から、本当に多くのご指導を頂きました。特に昨年度はご自身が D3 の大変お忙しい時期にも関わらず私の幼稚な質問にも、いつも嫌な顔一つせず対応して頂きました。有難うございました。また、昼サッカーや物性研での各イベント、温泉や飲み会など、ほとんど全てのイベントに参加されて、その場を盛り上げて頂きました。宮田博士にその度にお誘い頂き、研究面以外でも本当に充実した学生生活を送ることができました。有難うございました。

斉藤氏には、各イベントや松田・嶽山研合同輪読セミナーで大変お世話になりました。有難うございました。

松田研の同輩である野村氏とは、この修士課程の 2 年間で最も多くの時間を共に過ごしました。研究について相談したり、共通の趣味である音楽の話をしたり、週末には中村助教授と共に 3 人で夕飯を作ったりと本当に多くの時間を共に過ごしながらか々なことを語り合いました。野村氏はとても器量が良く、一風変わった独自の視点を持っているため、研究においても次々となしていき、その様子は、私に大変良い刺激になりました。本研究についても野村氏のお知恵をたくさん頂きました。本当に良い同輩に出会えたことを心より幸運に思います。有難うございました。

寺島君には 1 年間昼サッカーのグラウンドの鍵を取りに行って頂きました。有難うございました。

金道研の近藤晃弘助教には昼サッカーをご一緒させて頂いたり、飲み会の席では楽しいお話をたくさんして頂いたり、ご自身で車を出して定期的に温泉に誘って頂きました。私が仙人になる予定は当分ございませんが、近藤助教の物事に対する考え方や研究への覚悟には心より敬服致しました。有難うございました。

金道研の小濱芳允特任助教授、川口孝志氏、松尾晶博士、岩佐歩氏、望月健生君、荒木和代さん、徳永研の赤木暢博士、木原工氏、河智史朗君には、研究生活を送る上で様々なご協力・援助をして頂きました。また昼サッカーやソフトボール大会、テニス大会等の様々なイベントでご一緒させて頂きました。有難うございました。

小濱特任助教にはいつも飲み会の席で場を盛り上げて頂きました。また実験技術や理想の夫婦像等多くのことを教えて頂きました。有難うございました。

川口氏には工作技術についていつも丁寧に教えて頂きました。また昼サッカーの際にも多くのご指導を頂きました。この二年間川口氏のパスを受け続けて、多少はサッカーもうまくなった気がします。有難うございました。

松尾博士、荒木さんとは、M2 の後半から「金道朝テニスの会」でご一緒させて頂

き、熱心なご指導を頂きました。テニスはこれからもコミュニケーションのツールとして役立ちそうなので続けていきたいと思います。有難うございました。

望月君には、イベントの際や温泉に行く際にいつも車をだして頂きました。引き続き強磁場での研究生活を楽しみつつ、良い成果が得られることを同じ学院生として心より期待しております。有難うございました。

松田研 OB の中村俊幸氏、何金龍博士には研究生活を送るうえで、様々なご協力・援助を頂きました。有難うございました。

上記の方々以外にも昼サッカーメンバーの方々や物性研の同期の方々等、本当に多くの方々から、多大なご支援を頂きました。有難うございました。この物性研での二年間で本当に多くの経験をさせて頂きました。今思い返すと、その中でも私にとって一番の財産になったことは皆様との「出会い」であったと思います。研究への覚悟や、仕事へ真っ直ぐ取り組む姿勢、物事を前向きに考えて楽しむこと、周囲への厚い配慮等、これまでお世話になった方々の多くの価値観を学ばせて頂きました。今後の人生は、物性研での経験を礎として自分自身と向き合いながら日々精進して参りたいと思います。本当に有難うございました。今後ともよろしくお願い致します。

最後に遠き故郷から経済的な面でご支援頂いた私の両親に感謝の意を表します。有難うございました。

参考文献

- [1]J. G. Bednorz, and K. A. Müller, *Z. Phys. B* (1986) 189
- [2]H. Kageyama, K. Yoshimura, R. Stern, N. Mushnikov, K Onizuka, M. Kato, K .Kosuge, C . Slichter, T Goto and Y. Ueda (1999) *Phys. Rev. Lett.* **82** 3168
- [3]H. Kageyama, K. Onizuka, T. Yamauchi, Y. Ueda, S. Hane, H. Mitamura, T. Goto, K. Yoshimura and Kosuge K. (1999) *J. Phys. Soc. Jpn* **68** 1821
- [4]K. Kodama, M. Takigawa, M. Horvatić, C. Berthier, H. Kageyama, Y. Ueda, S. Miyahara, F. Becca, F. Mila (2002) *Science* **298** 395
- [5]K. Onizuka, H. Kageyama, Y. Narumi, K. Kindo, Y Ueda and T. Goto (2000) *J. Phys. Soc. Japan* **69** 1016
- [6]S. Miyahara, and K. Ueda (2000) *Phys. Rev. B* **61** 3417
- [7]S. Takeyama, R. Sakakura, Y. H. Matsuda, A. Miyata, and M. Tokunaga, (2012) *J. Phys. Soc. Jpn.* **81** 014702.
- [8]K. Nakao, F. Herlach, T. Goto, S. Takeyama, T. Sakakibara, and N. Miura (1985) *J. Phys. E, Sci. Inst.* **18** 1018
- [9]量子スピン系 (宮下精一 著：岩波書店)
- [10]磁性 I (久保健、田中秀数 著：朝倉書店)
- [11]K. Katsumata, H. Hori, T. Takeuchi, and M. Date, A. Yamagishi, J. P. Renard (1989) *Phys. Rev. Lett.* **63** 86
- [12]Y. Kato, A. Tanaka (1994) *J. Phys. Soc. Jpn.*, (1994) **63** 1277
- [13]R. W. Smith and D. A. Keszler (1991) *J. Solid State Chem.* **93** 430
- [14]C. Vecchini, O. Adamopoulos, L. C. Chapon, A. Lappas, H. Kageyama, Y. Ueda, and A. Zorko (2009) *J. Solid State Chem.* **182** 3275
- [15]K. Sparta, G. J. Redhammer, P. Roussel, G. Heger, G. Roth, P. Lemmens, A. Ionescu, M. Grove, G. Güntherodt, F. Hüning, H. Lueken, H. Kageyama, K. Onizuka, and Y. Ueda (2001) *Eur. Phys. J.* **19** 507
- [16]S. Miyahara and K. Ueda (2003) *J. Phys.: Condens. Matter* **15** R327-366
- [17]S. Miyahara and K. Ueda (1999) *Phys. Rev. Lett.* **82** 3701
- [18]B. S. Shastry and B. Sutherland (1981) *Physica B* **108** 1069
- [19]M. Albrecht and F. Mila (1996) *Europhys. Lett.* **34** 145
- [20]Z. Weihong, J. Oitmaa and C. J. Hamer (1999) *Phys. Rev. B* **60** 6608
- [21]E. Müller-Hartmann, R. R. P. Singh, C. Knetter and G. S. Uhrig (2000) *Phys. Rev. Lett.* **84** 808
- [22]A. Koga, N. Kawakami (2000) *Phys. Rev. Lett.* **84** 4461
- [23]A. Läuchli, S. Wessel and M. Sigrist (2002) *Phys. Rev. B* **66** 014401

- [24]K. Kodama, J. Yamazaki, M. Takigawa, H. Kageyama, K. Onizuka and Y. Ueda (2002) *J. Phys.: Condens. Matter* **14** L319
- [25]H. Kageyama, K. Onizuka, Y. Ueda, M. Nohara, H. Suzuki and N. Takagi N (2000) *J. Exp. Theor. Phys.* **90** 129
- [26]H. Nojiri, H. Kageyama, K. Onizuka, Y. Ueda and M. Motokawa (1999) *J. Phys. Soc. Jpn* **68** 2906
- [27]H. Kageyama, M. Nishi, N. Aso, K. Onizuka, T. Yosihama, K. Nukui, K. Kodama, K. Kakurai and Y. Ueda (2000) *Phys. Rev. Lett.* **84** 5876
- [28]P. Lemmens, M. Grove, M. Fischer, G. Guntherodt, V. N. Kotov, H. Kageyama, K. Onizuka and Y. Ueda (2000) *Phys. Rev. Lett.* **85** 2605
- [29]T. R  m, U. Nagel, E. Lippmaa, H. Kageyama, K. Onizuka and Y. Ueda (2000) *Phys. Rev. B* **61** 14342
- [30]H. Kageyama Y. Ueda, Y. Narumi, K. Kindo, M. Kosaka and Y. Uwatoko *Prog. Theor. Phys. Suppl.* (2002) **145**
- [31]S. Miyahara and K. Ueda (2000) *Phys. Rev. B* **61** 3417
- [32]G. Misguich, T. Jolicoeur, and S. M. Girvin (2001) *Phys. Rev. Lett.* **87** 097203
- [33]T. Momoi and K. Totsuka (2000) *Phys. Rev. B* **62** 15067.
- [34]S. Miyahara, F. Becca and F. Mila (2003) *Phys. Rev. B* **68** 024401
- [35]M. Takigawa, T. Waaki, M. Horvati  , and C. Berthier (2010) *J. Phys. Soc. Jpn.* **79** 011005
- [36]S. E. Sebastian, N. Harrison, P. Sengupta, C. D. Batista, S. Francoual, E. Palm, T. Murphy, N. Marcano, H. A. Dabkowska, and B. D. Gaulin (2008) *PNAS* **105** 20157
- [37]K. P. Schmidt, J. Dorier, A. M. L  uchli, and F. Mila (2008) *Phys. Rev. Lett.* **100** 090401
- [38]N. Laflorencie, and F. Mila (2007) *Phys. Rev. Lett.* **99** 027202
- [39]H. Matsuda. T. Tsuneto, *Prog. Theor.* (1970) *Phys. Supplement* **46** 441
- [40] 実験物理学講座 12 実験環境技術 (藤井保彦、本河光博 編 : 丸善 (株))
- [41]M. Jaime, R. Daou, S. A. Crooker, F. Weickert, A. Uchida, A. E. Feiguin, C. D. Batista, H. A. Dabkowska, and B. D. Gaulin (2012) *PNAS* **109** 12405
- [42]N. Miura, Y.H. Matsuda, K. Uchida, S. Todo, T. Goto, H. Mitamura, T. Osada, E. Ohmichi (2001) *Physica B*, **294-295** 562-567
- [43]F. Levy, I. Sheikin, C. Berthier, M. Horvati  , M. Takigawa, H. Kageyama, T. Waaki, and Y. Ueda (2008) *Europhys. Lett.* **81** 67004
- [44]J. Lou, T. Suzuki, K. Harada, and N. Kawashima arXiv:1212.1999v1 [cond-mat.str-ell 10 Dec 2012
- [45]H. Kageyama, Y. Narumi, K. Kindo, K. Onizuka, Y. Ueda, and T. Goto, (2001) *J.*

Alloys and Compounds **317-318** 17782

[46]N. Abe, Y. H. Matsuda, S. Takeyama, K. Sato, H. Kageyama, and Y. Nishiwaki
(2013) *J. Low Temp. Phys.* **170** 452-456

平成二十四年度修士論文 二次元直交ダイマー系の超強磁場磁化過程