

強磁場物性の現状と将来展望

長時間パルス強磁場施設建設 に向けて

平成 14 年 7 月

強磁場フォーラム

はしがき

強磁場を用いた研究は、強磁場発生技術の進歩とともに最近国内外で急速に進展しつつある。米国およびヨーロッパでは、国家的な規模の大型強磁場施設の建設が相次ぎ、現在計画中のものを含めるとその数はかなりの多数に上る。我が国では伝統的に磁性研究が盛んであることから強磁場発生技術とそれを用いた物性研究の分野では、東北大学、物性研究所、大阪大学を中心とした研究活動は世界をリードしてきたといえる。日本の国際的な先進性、優位性は、米国、ヨーロッパにおける新施設建設のための調査報告書において、常に日本のこの分野における研究実績が目標とすべき手本としてあげられてきたことから明らかである。欧米における新しい強磁場施設における研究活動が本格的な成果を生みだしつつある現在では、この情勢が大きく変わりつつある。特に、強相関電子系、有機伝導体、半導体の量子構造やナノ構造などの分野において、欧米の諸新施設から多くの新しい注目すべき研究成果が生み出され発表されている。強磁場科学の分野ではいくつかのシリーズの国際会議が数年ごとに開かれているが、最近では毎年いずれかの強磁場関連国際会議が必ず一つ以上開かれ、そこではこれらの欧米各国からの発表が脚光を浴びている。また強磁場施設間の協力を促進するための国際フォーラムの結成も検討されている。また国際純正および応用物理学連合(IUPAP)では、中性子散乱設備など物理学研究のための大型研究施設を将来どのようにするかを検討するための活動が開始され、その中に強磁場施設も考えられているとのことである。

このような情勢にあって、我が国における研究グループの連携、協力関係を一層緊密にして、この分野における研究体制を強化し、再び世界を先導するような優れた成果を生み出すことが急務であると考えられる。平成 11 年 9 月 20 日—22 日の物性研究所研究会シリーズの研究会では、研究グループの協力体制の強化の必要性が指摘された。そこで強磁場研究者が集まって平成 13 年 3 月 2 日、11 月 5, 6 日の 2 回の研究会において議論を重ねた結果、我が国の強磁場研究推進のために「強磁場フォーラム」を設立することになった。このフォーラムでは強磁場研究における協力体制および共同利用体制の強化、研究成果や強磁場技術などについての討論と情報交換、若手研究者間の共同研究援助などを目指している。このためにフォーラム準備会では、定期的な研究会開催と、ホームページの整備を行っている。

フォーラム結成の議論の過程で、我が国においても本格的な共同利用施設としての長時間パルス強磁場施設の建設が急務であることが明らかとなってきた。施設としては、最高 60-80 T、持続時間数 10 ms 1 s のパルス磁場マグネットを各実験種別用に数台備え、施設の研究者、技術開発と共同利用支援のための人員数人を配置した施設を考えている。この領域は、物性研究所で培ってきたメガガウス領域の超強磁場最前線と現在の定常強磁場との中間の磁場領域にあるが、最近の非破壊的磁場発生技術や測定技術の著しい向

上と相まって、かつてない圧倒的なデータの精度や超低温・超高圧との組み合わせ等の可能性を開き、物性の宝庫を開拓するもと考えられる。米国、ヨーロッパではこのような施設建設計画が急ピッチで展開され、あるいはすでに稼働を始めている。

ここで強調しなければならないことは、このような大規模施設は全国ないし世界の研究者のためのユーザー・ファシリティであることである。そのためには、耐えざる技術開発を行う技術者グループ、利用者の実験を支援するサポートグループが充実していることが必須の条件である。世界的にも希有の特徴ある装置である物性研究所のメガガウス超強磁場施設や、パルスではできない実験のために必要な東北大学金属材料研究所、物質材料研究機構の定常磁場施設などは別に新施設として建設され、これらが有機的に協力しつつ強磁場物性の発展に寄与していくことが望まれる。

長時間パルス強磁場施設が建設された場合、物性のあらゆる分野で 21 世紀の科学を先導するような有意義な研究が可能になると考えられる。そこでこの度、現在我が国で物性の各分野の第一線で活躍しておられる方々にこのような新施設によって始めて可能となるサイエンスの可能性について、現状を踏まえた提言という形の原稿をご執筆いただいた。これらの原稿については、平成 14 年 5 月 29 日（水）に物性研究所で開かれた ISSP ワークショップ「強磁場物性の現状と将来展望」で執筆者自身にご説明をいただき、内容の議論を行った。本書はその原稿をまとめたものである。ワークショップでは、本書にあるようなサイエンスの可能性についての活潑な討論がなされ、長時間パルス強磁場施設計画検討をさらに前進させることについての合意が得られた。また平成 14 年 10 月に「強磁場フォーラム」の設立総会を開いてフォーラムを正式に立ち上げるにあたり、趣意書、規約などの素案についての合意が得られた。

今後、我が国に本格的な長時間パルス強磁場施設を建設するためのガイドラインとして、本書が役立つことを期待したい。

平成 14 年 7 月

東京大学物性研究所
三浦 登

目 次

はしがき	三浦 登	i
I. 強相関電子系		
A 重い電子系	大貫惇睦	1
B 高温超伝導	安藤陽一	6
II. 強磁場磁性		
A 量子スピン系	田中秀数	17
B 低次元量子スピン系の強磁場磁性	網代茅民	23
III. 有機伝導体と有機磁性体	宇治進也、太田仁	36
IV. 伝導電子の強磁場物性		
A メソスコピック系の超強磁場下電子状態	勝本信吾	43
B 強磁場中のブロッホ電子	長田俊人	54
V. 量子ホール効果		
A 量子ホール効果の実験	高増 正	59
B 量子ホール効果の理論	青木秀夫	62
VI. 磁気光学	横井裕之、嶽山正二郎	70
VII. テラヘルツスペクトロスコピー		
A 磁気共鳴	野尻浩之	81
B 半導体のマグネトスペクトロスコピー	河野淳一郎	86
VIII. 表面研究・化学反応	小森文夫	97
IX. 非破壊的マグネットの技術的可能性	金道浩一、F. Herlach	101

I. 強相関電子系

A 重い電子系

大阪大学大学院理学研究科
大貫惇睦

希土類・ウラン化合物の伝導電子と f 電子が低温で織りなす強相関電子系（重い電子系）について、パルス強磁場を使ってどのような研究が展開できるかという観点にたって述べる。特に長時間パルス強磁場（最高 60–80 T, 持続時間数 10 ms, 1 s）を想定する。まず重い電子系の特徴を概観し、次にパルス強磁場の条件、そしてこれまでどのような実験がなされてきたかを述べ、最後にこれからの展望で本文を結ぶ。

1. 重い電子系とは

重い電子系の特性温度は、局在性の強い f 電子間を結びつけている RKKY 相互作用による磁気秩序温度 T_{ord} と、逆に f 電子の磁気モーメントを打ち消そうとする近藤温度 T_K である。両者の力の拮抗で、スピン・価数揺動や小さな磁気モーメント、あるいは異方的な超伝導現象を引き起こす。RKKY 相互作用も近藤効果もその本質は伝導電子と局在性の強い f 電子の磁気モーメント間の交換相互作用にあって根は共通である。RKKY 相互作用では伝導電子の助けを借りた協力現象によって局在モーメントを安定化させようとするのに対し、近藤効果では伝導電子が局在モーメントを遮蔽しようとする。もしも近藤効果が RKKY 相互作用に打ち勝てば、 f 電子を持つ系にもかかわらず磁気秩序のない特異な常磁性金属相が実現するだろう。この非磁性の常磁性金属相は、伝導電子と f 電子が渾然一体となった状態であり、これを重い電子系と呼ぶ。

図 1 は典型的なセリウムとウラン化合物の磁化率の温度依存性である。単純なセリウム化合物で考えよう。Ce³⁺の局在 $4f^1$ の 14 重の準位は 6 重縮退の $J=5/2$ と 8 重縮退の $J=7/2$ にスピン・軌道相互作用で分裂する。 $J=7/2$ は $J=5/2$ から約 3000 K 離れているので無視され、 $J=5/2$ のみを考えれば良い。 $J=5/2$ は結晶場によって 3 つの 2 重縮退に分裂する。分裂の大きさは 30–500 K である。図 1 のセリウム化合物では、 $J=5/2$ の磁気モーメントに基づくキュリー・ワイス則に従って磁化率は降温とともに増大し、近藤効果によりある温度で磁化率は一定値になる。通常は図 1 に示すように磁化率はゆるやかな極大値を持つ。その極大値に対応する温度 $T_{\chi \text{max}}$ は近藤温度 T_K におおよそ対応する。

重い電子系は $J=5/2$ の基底状態の 2 重項による磁気比熱が電子比熱 $C(=\gamma T)$ に変貌したとして

$$\int_0^{T_K} \frac{C}{T} dT = R \ln 2 \quad (1)$$

$$\gamma = \frac{R \ln 2}{T_K} - \frac{10^4}{T_K} \text{ (mJ/K}^2 \cdot \text{mol)} \quad (2)$$

が得られる。もしも近藤温度 T_K が 5 K であれば約 $2000 \text{ mJ/K}^2 \cdot \text{mol}$ の非常に大きな電子比熱係数 γ となる。これが CeCu_6 である。重い電子系は T_K 、あるいは $T_{\chi \text{max}}$ が 1–50 K のものである。電子比熱係数で言えば $100 \text{ mJ/K}^2 \cdot \text{mol}$ 以上となる。高温で各原子に局在していたと思える f 電子が、低温で有効質量の極めて大きな電子となって結晶中を遍歴するのである。もしも $T_K \sim 10 \text{ K}$ の重い電子系では、それより 1 桁小さい 1 K 以下でフェルミ液体としての重い電子系になるので、実験条件の一つとして低温を必要とする。このような重い電子系が超伝導を発現すると、 s 波でない d 波または p 波（あるいは f ）波の異方的超伝導となる。超伝導の転移温度 T_c は約 1 K、あるいはそれ以下である。重い電子系なので T_c は小さいが、超伝導の上部臨界磁場 H_{c2} は $2 \sim 10 \text{ T}$ と大きい。

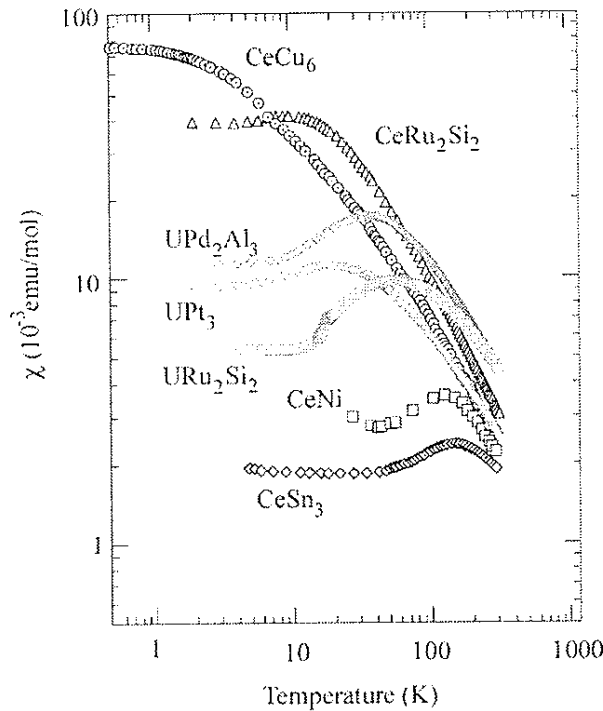


図1 重い電子系の磁化率の温度依存性. 磁化率が山を持つ温度 $T_{\chi \text{max}}$ が近藤温度 T_K に対応する。

2. パルス強磁場の条件

大阪大学極限科学研究センターのパルス強磁場を一例として現状の強磁場の特徴を考えよう。重い電子系でのパルス強磁場の利用は主として低温での磁化測定である。通常の使用では (1) 最高 50–60 T, 持続時間数 20 ms, 最低温度 1.3 K と, (2) 最高 50–70 T, 持続時間 10 ms, 最低温度 0.1 K の 2 種類の設備が対応している。絶縁体の場合は試料の形状は大きな問題でないが、金属の場合は試料の厚みを薄くする必要がある。残留抵抗値が $1 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ 以下の良質単結晶では $1 \times 2 \times 0.2 \text{ mm}^3$ の試料をおよそ 2–3 枚用意する必要がある。現在の持続時間が 20 ms から 1 s になると厚みは 1–2 mm でも良いことになる。つまり、電気抵抗等で使用した試料でそのまま強磁場磁化の実験ができる。

セリウムやウラン化合物の重い電子系の特性温度 T_K ($\sim T_{\chi \text{max}}$) は 1–50 K なので、 $k_B T_K = g \mu_B H_c$ に対応する重い電子系特有のメタ磁性の転移磁場 H_c は、現在のパルス強磁場で何とか

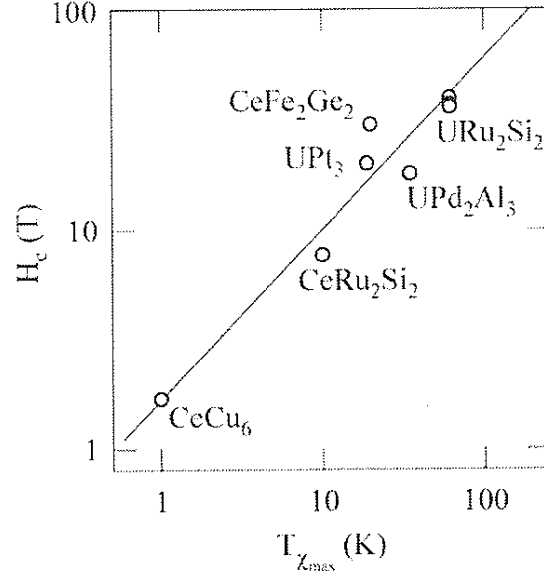


図2 磁化率が極大値を示す温度 $T_{\chi \max}$ とメタ磁性の転移磁場 H_c .

応答できる状況にある．ここで、 H_c は重い電子状態が磁場で壊されて局在性の強い f 電子状態に転移する磁場であり、磁化にメタ磁性として反映される． $T_{\chi \max}$ と H_c の関係を図2に示す．

磁化や磁気抵抗には、時としてドハース・ファンアルフェン振動が見いだされることがある．超伝導マグネットが現在のように利用される数10年前は、ドハース・ファンアルフェン振動の検出にパルス強磁場が積極的に利用された．しかし、約20 T 近くの強磁場まで超伝導マグネットが利用できるようになったので、超伝導を利用した磁場変調法で現在検出されている．ドハース・ファンアルフェン振動を単純化して表現すると

$$V_{\text{osc}} \propto e^{-\alpha \frac{m^*}{H} (T+T_D)} \sin \frac{2\pi F}{H} \quad (3)$$

$$F = \frac{c\hbar}{2\pi e} S_F \quad (4)$$

$$T_D = \frac{\hbar}{2\pi k_B} \frac{1}{\tau} \quad (5)$$

$$\alpha = \frac{2\pi^2 c k_B}{e\hbar} \quad (6)$$

となる．フェルミ面の極値断面積 S_F に比例するドハース・ファンアルフェン振動数 F は磁場と同じ単位で表現されている．

試料の良し悪し、すなわち伝導電子の散乱の緩和時間での逆数を温度で表現したディンゲル温度 T_D は極めて純良な単結晶では $T_D=0.1$ K である． CeRu_2Si_2 や UPt_3 、 CeCoIn_5 などでは約 $100 m_0$ (m_0 : 電子の静止質量) の重い電子が超伝導マグネットの 15–20 T、希釈冷凍機の 20–50 mK で検出されている．質量 $m_c^*=100 m_0$ 、 $T_D=0.1$ K、検出温度を $T=50$ mK とし、磁場が

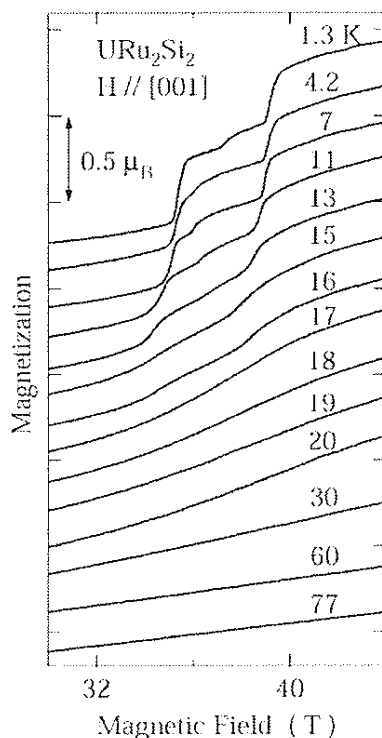


図3 URu₂Si₂ のメタ磁性. ネール温度 $T_N=17.5$ K であるが, メタ磁性は $T_{\chi \max} \sim 55$ K まで見いだされる.

20 T から 60 T になれば $m_c \cdot (T+T_D)/H$ の係数は $1/3$ 小さくなり, 指数関数なので検出感度は 10^3 倍になる. もしも検出温度が 1 K になると磁場が 60 T でも 10^{-10} 倍に落ちてしまう. 重い電子系ではディンゲル温度 T_D が小さく, 温度が低いということが磁場強度より重要になってくる.

磁場強度が大きいことは重要である. 主要フェルミ面のドハース・ファンアルフェン振動数は $F=10^8$ Oe ($=10^4$ T) のオーダーである. 例えば磁場を増大させたとき, 1 T 付近での振動の山から次の山までの幅は 1 Oe (10^{-4} T), 20 T 付近で 400 Oe (0.04 T), 80 T 付近で 6500 Oe (0.65 T) となる. 通常の超伝導マグネットでは 1–10 Oe の磁場精度である. かつての実験例からパルス強磁場で主要フェルミ面は検出可能である^{1,2)}. ご承知のごとく, 通常の磁化測定では小さなポケットフェルミ面のドハース・ファンアルフェン振動しか見出せず, 磁場変調法を必要とする. 超伝導マグネットでは変調周波数は 10–200 Hz である. 金属の圧力セルを導入し, 希釈冷凍機の低温度で実験するには, 10 Hz あるいはそれ以下で行わざるを得ない. パルス磁場のときは 3 桁以上変調周波数を大きくする必要がある. 温度上昇が問題となるかもしれない. しかしながら, 超伝導マグネットより数倍も磁場強度が大きい利点は検出感度には有効である. 超音波でのパルス強磁場を使った音響ドハース測定も有効と思う. また磁気抵抗に反映されるマグネティックブレイクスルー効果は, Mg などの例として教科書に記載されているが, 強相関電子系の例として USb₂ にも見出され, 大きなパルス強磁場ではより有効である. USb₂ の詳細は筆者らの固体物理の解説を参照されたい³⁾.

3. 典型的な実験例

URu₂Si₂ における磁化測定を実験例として紹介する. この物質はネール温度は 17.5 K で,

磁気モーメントは $0.02 \mu_B/U$ と極めて小さく、1.5 K で超伝導になる。磁化率が極大値を示す温度 $T_{x\max}$ は 55 K である。反強磁性状態では図 3 に示すように 3 段の磁化が階段状に増大するいわゆるメタ磁性転移が見出され、 $0.02 \mu_B$ の磁気モーメントは約 $1.5 \mu_B$ の大きさに変貌する。ただし $T > T_N$ では 1 段のメタ磁性転移となり、このメタ磁性転移は予想通り $T_{x\max}$ (≈ 55 K) 付近まで見出され、微分磁化で一層明瞭となる。

CeRu₂Si₂, UPd₂Al₃, UPt₃ などのメタ磁性転移磁場は超伝導マグネットでかろうじて到達する磁場付近にあるので、メタ磁性に伴うフェルミ面の変貌がドハース・ファンアルフェン効果により研究されている。これは重い電子系の本質をつく実験研究であるが、超伝導マグネットの磁場強度が不足し実験の不充分さもあって完全な決着は見えていない。パルス強磁場でチャレンジする価値は充分にある。

4. 展望

現在の重い電子系の最前線の研究は希釈冷凍機で到達する温度 0.1 K 以下、強磁場（超伝導マグネットでは 20 T、パルス強磁場で 50–70 T）と高圧（3–6 GPa）の多重極限環境で物質の性質をコントロールすることにある。重い電子系は低温で、磁場強度としては 50–70 T で充分コントロールされることは上で述べた。同時に圧力でもコントロールできる。極端な例では磁場のかわりに圧力 P でおきかえることも可能である。最近発見された強磁性体 UGe₂ では、キュリー温度 $T_C=52$ K は $P \sim 1.5$ GPa で $T_C \rightarrow 0$ となる。 $P > P_c$ の常磁性状態は、通常の常磁性ではなく磁場を印可するとメタ磁性転移が起きて新たな磁性状態が出現する。現在筆者はこの多重極限の実験に興味を持って実験を推進している。0.5–0.08 K ぐらいの温度領域でパルス強磁場に高圧セルを組み合わせた実験が現在求められていると思う。

これまで筆者はドハース・ファンアルフェン効果によって基底状態にある重い電子系のサイクロトロン質量に反映される多体効果（近藤効果）の研究をしてきた。また一方では、パルス強磁場でメタ磁性転移後のいわば $T > T_{x\max}$ の状態を磁化測定から研究してきた。パルス強磁場でドハース・ファンアルフェン効果を測定することは基本的には可能なので、また希釈冷凍機を組み合わせることも現在容易にできるようになったので、実験手段を確立する必要があると思う。そして、低温・高圧下でのパルス強磁場を使った磁化・電気抵抗・ドハース・ファンアルフェン効果の測定は今後最も重要な実験手段となる。

参考文献

- 田沼静一責任編集：実験物理学講座 15「低温」（共立出版，1974），小林はな子，田沼静一，14 章 p. 357.
D. Shoenberg, F. R. S.: Magnetic Oscillations in Metals (Cambridge University Press, 1984) p. 96.
青木 大，ピョートル・ヴィシニユフスキー，大貫惇睦：固体物理 35 (2000) 355.

B 高温超伝導

(財)電力中央研究所

安藤陽一

1. はじめに

高温超伝導体においては超伝導転移温度 T_c が高いことに伴って上部臨界磁場 H_{c2} も非常に大きく、通常 100 T のオーダーである。このため、高温超伝導体の H_{c2} の研究や、さらに磁場で超伝導を壊した時の常伝導状態の研究には、必然的にパルス強磁場が必要になってくる。そう考えると、これまでに数多くのパルス強磁場による高温超伝導体の研究がなされていて当然に思われるが、実際にはそのような研究の数は非常に限られている。その主な理由は、高温超伝導体は通常は「良い金属」であるため試料のインピーダンスが低く、ノイズの多い測定環境になりがちなパルス強磁場中では S/N の良い測定をすることが非常に難しいことにある。ここでは、そのような困難にもかかわらずこれまでになされてきたパイオニア的研究をいくつかの具体的なテーマに分けて紹介し、併せてそれぞれのテーマにおける今後の展望を概観してみることにする。

2. 上部臨界磁場の測定

パルス強磁場を用いて高温超伝導体を研究する、という点とまず思い浮かぶのが H_{c2} の測定である。過去にロスアラモスのグループが爆縮型の極短パルス磁場を用いて H_{c2} の測定を報告した例¹⁾などもあるが、これは H_{c2} の決め方に問題があり、あまり信用できるデータとは見なされていない。パルス強磁場を用いた H_{c2} の測定として信頼できる結果を報告しており、よく知られているのが Osofsky らの 1993 年の仕事²⁾である。彼らは S/N を上げるために薄膜試料を用いて試料のインピーダンスを大きくし、また測定対象として T_c の低い(約 18 K) 物質である Bi-2201 系を選ぶことによって 35 T のロングパルスマグネットでも極低温まで H_{c2} が測定レンジに入るように工夫をしている。彼らは H_{c2} の温度依存性が図 1 に示すように通常の WHH 理論とは全く合わない極端な上反りの振舞いを示すことを報告したが、同様の振舞いは Mackenzie らによって DC マグネットを用いた Tl-2201 系の測定³⁾でも見出され、共に高温超伝導体の超伝導状態の異常を示す結果として注目を集めた。これらの実験では基本的に、磁場によって抵抗が復活してそれ以上変化しなくなったところを常伝導状態になったと考えて H_{c2} を決めているが(図 1 挿入図参照)、最近の研究によると、高温超伝導体では「抵抗が完全に復活していても常伝導状態になっていない」という従来の常識に反する状況が生じてい

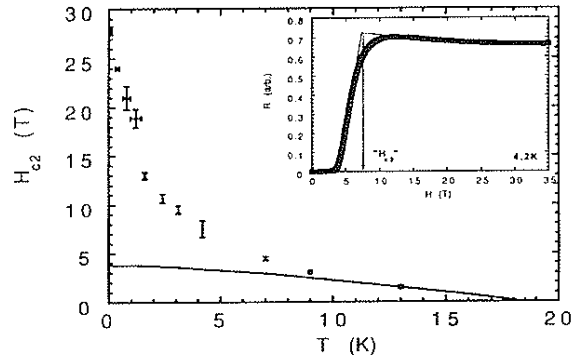


図1 Bi-2201 薄膜試料における上部臨界磁場 H_{c2} の温度依存性の測定結果。挿入図は抵抗率の磁場依存性からどのように H_{c2} を決めたかを示す図。(参考文献2より)

て、Osofsky らや Mackenzie らの結果は H_{c2} を過小評価している、という可能性が指摘されている⁴⁾。従って、高温超伝導体の H_{c2} の測定は未だに未解決の課題であり、今後もパルス強磁場の活躍が期待されるところである。なお最近、YBCO 系の H_{c2} について、過去の結果を踏まえて信頼性を高めた 150 T 極短パルス強磁場実験の結果が報告されている⁵⁾。

3. 極低温での常伝導状態の測定

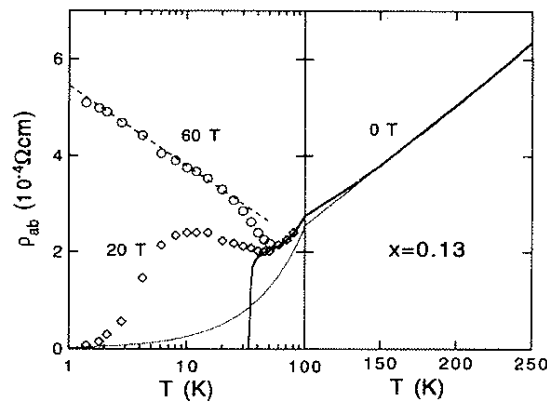


図2 LSCO 系単結晶試料における常伝導面内抵抗率の温度依存性の測定結果。60 T の磁場で超伝導を壊した時の T_c 以下の常伝導抵抗率は、 $\log(1/T)$ で発散する「絶縁体的」な振舞いをしているのがわかる。(参考文献8より)

パルス強磁場を用いて高温超伝導体を研究する、というときに、 H_{c2} 測定の次に思い浮かぶのが、磁場で超伝導を壊した時の常伝導状態の物性測定である。極低温での de Haas-van Alphen 効果の測定などもこの範疇に含まれるが、過去に報告されたロスアラモスのグループの測定⁶⁾は真偽の程に疑問があり⁷⁾、いまだに信頼するに足る de Haas-van Alphen 効果（も

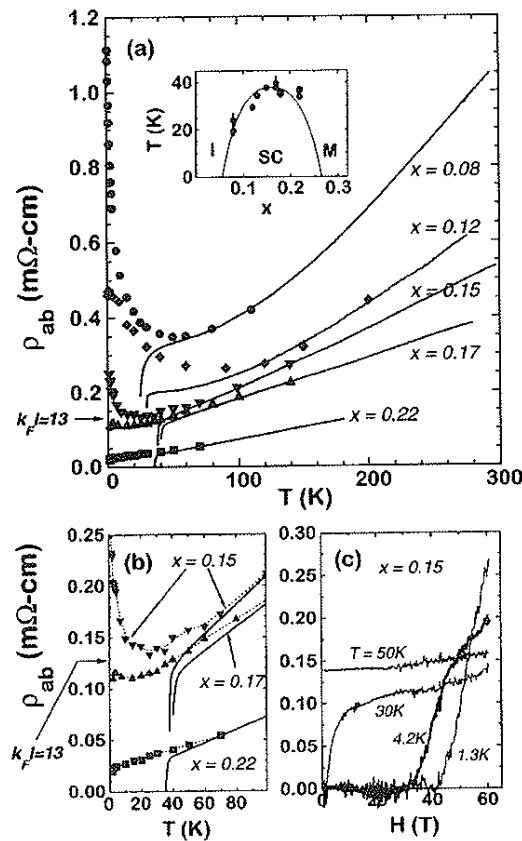


図3 ホール濃度 x を変えた様々な LSCO 単結晶試料における常伝導面内抵抗率の温度依存性の測定結果。 $\log(1/T)$ で発散する「絶縁体的」な常伝導抵抗率は x が 0.15 以下の不足ドーピングの試料で観測される。(参考文献 9 より)

しくは Shubnikov-de Haas 効果) の測定例は無い。なお、有機超伝導体などでは、完全に常伝導状態にならなくても混合状態で量子振動が観測されるので、高温超伝導体の場合も電子の平均自由行程の十分長い試料であれば H_{c2} に達しない磁場でも de Haas-van Alphen 効果等が観測できる可能性がある。今後の進展が期待できる分野である。

一方、量子振動効果よりももっと単純な測定として、常伝導状態の抵抗率の温度依存性を極低温まで測定する、という研究がある。通常の超伝導体では、超伝導を磁場で壊して抵抗を測定しても、観測されるのは温度に依らない残留抵抗だけであるのが普通なので、高温超伝導体においてもそのような測定は特に面白くないだろう、と考えられていた。しかし、1995 年に Ando らによって LSCO 系について報告された結果⁸⁾は、実はこのような測定が非常に興味深い物理を教えてくれることを明らかにした。

そもそも高温超伝導は、反強磁性モット絶縁体にキャリアをドーピングしていった時に現れる現象であることはよく認識されているが、果たしてモット絶縁体はいつ「絶縁体」でなくなるのだろうか？高温超伝導体では、母物質にキャリアをドーピングしていくと絶縁体相からいきなり超伝導相が現れ、途中に非超伝導金属相は観測されない。従って、この超伝導相が現れ

るところが「絶縁体」でなくなるところである、と考えるのが常識的だが、実はこの「常識」が破れているかもしれない、という可能性がパルス強磁場による実験で明らかにされたのである。実験は、不足ドーピング領域の超伝導相にある LSCO 単結晶試料において、60 T マグネットを用いて 0.7 K の極低温まで超伝導を壊すことによって行われた。その結果、60 T 下の常伝導状態での面内抵抗率は図 2 に示すように $\log(1/T)$ でよくフィットできる温度依存性を示すことが発見された⁸⁾。この温度依存性は $T \rightarrow 0$ で発散する関数形なので、このような試料は「絶縁体的」と考えることが出来る。つまりこの結果は「超伝導状態は絶縁体的な常伝導相を持つ電子系の基底状態として発現している」という可能性を示唆している。これは即ち、超伝導を壊したときの相図を書くと、「絶縁体」が終わって「金属」が始まるのは超伝導が現れ始めるキャリア濃度ではなく、それよりもっと高いキャリア濃度のところである、ということを示唆する。この示唆を受けて、LSCO 系においてキャリア濃度をひろく振って極低温の常伝導抵抗率の振舞いを調べる実験が同じグループによって行われ（図 3）、その結果、「絶縁体」から「金属」へクロスオーバーするキャリア濃度は LSCO 系の場合ちょうど T_c が最高になる最適ドーピング付近 ($x = 0.16$) であること（図 4）が明らかにされた⁹⁾。

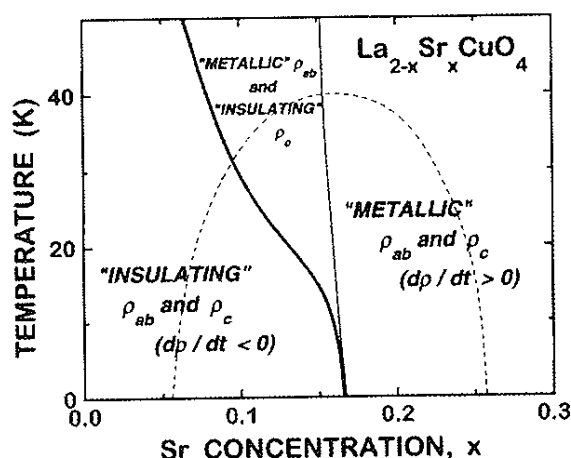


図 4 60 T のパルス強磁場の実験によって得られた LSCO 系高温超伝導体の相図。この系では、「金属」と「絶縁体」の間のクロスオーバーは、ちょうど T_c が最高になる最適ドーピングで起こっている。（参考文献 9 より）

当然、このような「最適ドーピングで起こる金属-絶縁体クロスオーバー」が果たしてすべての高温超伝導体に共通なものなのか、それとも LSCO 系に特有の事情（例えば近年盛んに議論されている電荷ストライプは LSCO 系において特に強く現れることが知られている）によるものなのかが問題になる。最近、La ドーピング Bi-2201 系の高温超伝導体では低温の常伝導状態における金属-絶縁体クロスオーバーは最適ドーピングからずれたところで起こっていることが、やはり 60 T のパルス強磁場を用いた Ando らのグループによる実験で明らかにされた¹⁰⁾。この系

は最適ドーピングにおける T_c が LSCO 系と同程度で約 36 K と比較的低いので、60 T の磁場によって 0.7 K の低温まで十分に常伝導抵抗率を測定することが出来る。なお、この系（正確には $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+\delta}$ ）では Sr を La で置換することによってキャリア濃度をコントロールしており、La 置換量が多いほど不足ドーピングになる。この系での常伝導面内抵抗率の温度依存性を様々なキャリア濃度についてプロットしたのが図 5 であるが、不足ドーピング領域にある La 置換量 0.66 の試料でも常伝導抵抗率が「金属的」な残留抵抗を示している点が、LSCO 系の測定結果と異なっている。これよりもさらにキャリア濃度を減らした La 置換量 0.76 の試料でやっと温度の低下に伴う抵抗率の顕著な上昇が観測され始めるが、このときの温度依存性は図 5 でもわかるようにやはり低温で $\log(1/T)$ となっており、系は「絶縁体的」と考えることが出来る。図 6 にはこうして得られた Bi-2201 系の相図を示すが、LSCO 系で観測された金属-絶縁体クロスオーバーがちょうど最適ドーピングを境にして起こっていたのに対して、Bi-2201 系ではこのクロスオーバーが不足ドーピング領域の中で起こっている。このクロスオーバーの所の La 置換量 0.7 はキャリア濃度になると Cu 原子 1 個あたり約 1/8 に対応する¹⁰⁾ので、この実験結果は 1/8 異常（すなわち電荷ストライプ不安定性）が金属-絶縁体クロスオーバーと関係している可能性を示唆する。

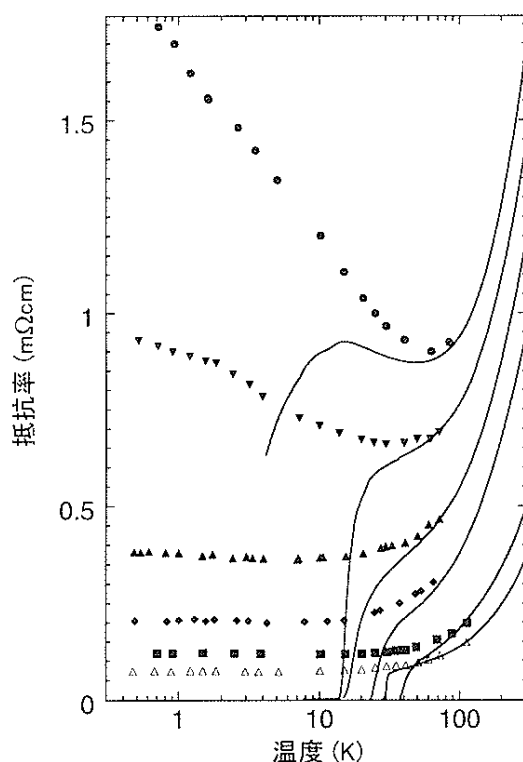


図 5 La 置換量 x を変えた様々な Bi-2201 単結晶試料における 60 T 中での常伝導面内抵抗率の温度依存性の測定結果。不足ドーピング領域にある La 置換量 0.66 の試料でも常伝導抵抗率が「金属的」な残留抵抗を示している。(参考文献 10 参照)

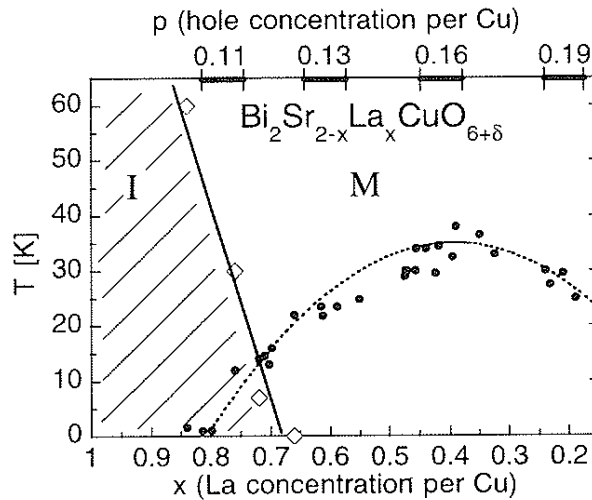


図6 60 Tのパルス強磁場の実験によって得られたBi-2201系高温超伝導体の相図。この系では、「金属」と「絶縁体」間のクロスオーバーは不足ドープ領域内で起こっており、LSCO系の結果とは異なっている。このBi-2201系で金属-絶縁体クロスオーバーが起こるときのホール濃度はちょうどCu原子1個あたり1/8になっており、いわゆる「1/8異常」（すなわち電荷ストライプ不安定性）が金属-絶縁体クロスオーバーと関係している可能性を示唆する。（参考文献10より）

上記のように、高温超伝導体においてどのくらいキャリアをドーピングすれば常伝導状態が「金属」になり、何が金属-絶縁体転移を支配しているか、という問題は、まだ研究が進行中の段階であり、未解決である。しかし、この問題はモット絶縁体にキャリアをドーピングしていく時の物理を理解するために欠かせない問題であり、高温超伝導発現機構の解明に直接結びつく問題でもあるので（例えば、この金属-絶縁体転移は絶対零度での量子相転移と関係しており、高温超伝導はその量子臨界点に伴った量子揺らぎによって起こっているのではないか、という提案がある）、今後パルス強磁場を活用して高温超伝導を研究していく上での一つの中心的な問題になるだろう。より多くの高温超伝導体の系でこのような研究を進めるためには、当然LSCO系やBi-2201系より T_c の高い試料で超伝導を壊す必要があり、60 Tを超える磁場の必要性が高い研究テーマでもある。

4. 擬ギャップとc軸トランスポート

高温超伝導体では、 T_c よりも高温からフェルミエネルギーにおける状態密度が減少する「擬ギャップ」といわれる現象が存在することがここ数年の間に確立されてきた¹¹⁾。この擬ギャップはフェルミ面上で等方的に発達するわけではなく、ブリランゾーンの対角方向にノードを持つ「d波」的な対称性を持つこともわかっている。また高温超伝導体では、c軸方向（ CuO_2 面に垂直な方向）の抵抗率が非常に大きな絶対値を示し、その温度依存性も低温で半導体的

(もしくは絶縁体的)であることが良く知られているが、この c 軸抵抗率と擬ギャップの関係が最近盛んに研究されている。これまでに、 c 軸方向の電気伝導は基本的に電子のトンネル現象によるものであることが確認され、さらにその時のトンネル効果の行列要素は面内の電子の波数ベクトル k に対して等方的ではなく、ちょうど擬ギャップによる状態密度の減少を「増幅」して反映するような k 依存性をもつ¹²⁾ことが知られるようになった。このことから、 c 軸トランスポートの測定は擬ギャップの物理を研究するのに適していることが明らかになり、この関連でパルス強磁場を利用した研究がいくつか報告されている。技術的にも、高温超伝導体の c 軸抵抗率は面内抵抗率より典型的に 1000 倍程度大きいので試料のインピーダンスも大きくとれ、ノイズの多い環境であるパルス強磁場中でも測定が行いやすいということも、 c 軸トランスポートの研究をやりやすくしている。

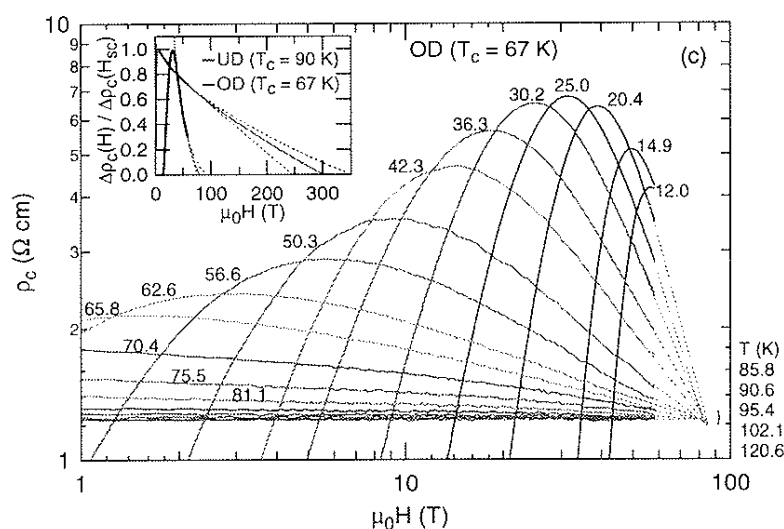


図7 60 Tパルス強磁場による過剰ドーパ Bi-2212 試料の c 軸抵抗率の磁場依存性の測定例。データの外挿から、擬ギャップが低温では温度に依らず約 90 T 程度で壊れるという結論が導かれる。(参考文献 15 より)

以前から、 T_c 以下で c 軸抵抗率の磁場依存性を測定すると、ある磁場で抵抗率はピークを示してそれ以上の磁場では負の磁気抵抗が観測されることが知られており¹³⁾、この負の磁気抵抗は常伝導状態の性質であろうと考えられていた。これに対してロスアラモスの Maley らのグループは、Bi-2212 の低温での c 軸抵抗率の磁場依存性を 60 T までのパルス強磁場中で測定し、 c 軸トランスポートが準粒子トンネル現象によるものである、という理解に基づいた独自のモデルで c 軸抵抗率の磁場依存性がよくフィットできることを示して、「高磁場中の負の磁気抵抗が観測される領域はまだ常伝導にはなっておらず、 d 波の超伝導状態中の準粒子トンネルに支配されている」と主張した¹⁴⁾。しかしこのグループはその後少し解釈を変え、高磁場での c 軸トランスポートにおける負の磁気抵抗は主に常伝導状態の準粒子トンネ

ルが磁場による擬ギャップの抑制によって回復することによって起こっているとして、60 T のパルス強磁場による過剰ドーピング Bi-2212 試料の測定 (図 7) から、その組成では擬ギャップは 90 T 程度で壊れる、とした論文¹⁵⁾を 2001 年に発表している。このように c 軸トランスポートと擬ギャップの関係をどのように理解し、どのように高温超伝導体の電子物性の解明につなげていくかというのはまだまだ検討の余地のある問題であり、測定の行いやすさもある

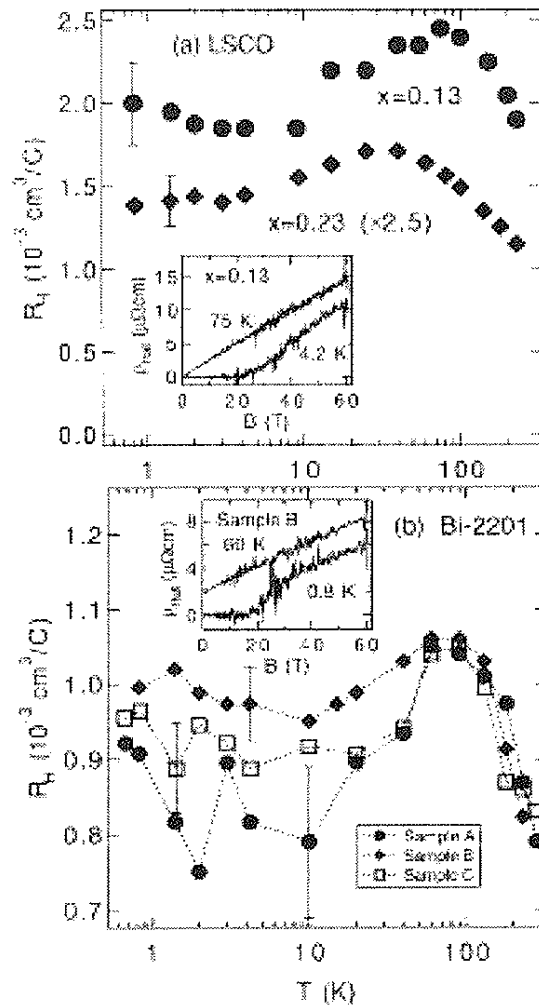


図 8 60 T の磁場で超伝導を壊した時の LSCO 系 (a) と Bi-2201 系 (b) における常伝導ホール係数の温度依存性。抵抗率の温度依存性とは異なり、約 10 K 以下の低温でホール係数は温度依存性を失う。(参考文献 17 より)

って今後もパルス強磁場を利用した研究が活発に展開されていくものと期待される。

また、擬ギャップとは直接関係はないが、Y-124 系という二重 CuO 鎖を含む高温超伝導体において、35 T までのパルス強磁場をかけて c 軸抵抗率を測定した Hussey らの報告¹⁶⁾がある。この物質では、キャリア濃度が不足ドーピング領域にあることを反映して擬ギャップが開くことが知られており、通常なら c 軸抵抗率の温度依存性も半導体的になるはずであるが、実際に

は T_c まで金属的な振舞いをする c 軸抵抗率が観測されている。このため Y-124 系は、高温超伝導体の一般的振舞いから外れた例外的な物質である、と見なされていた。しかしパルス強磁場を用いた実験の結果、 CuO 鎖に垂直な方向に磁場をかけると約 19 T の磁場で二重 CuO 鎖ブロック間の結合が切れ、 c 軸抵抗率が金属的な振舞いから半導体的な振舞いにクロスオーバーすることが見出された¹⁶⁾。このことから、ゼロ磁場中で観測されていた金属的な c 軸抵抗率の温度依存性は二重 CuO 鎖バンド間の伝導が引き起こしていたもので、 CuO_2 面間のホッピングは他の高温超伝導体と変わらないことが明らかにされた。

5. ホール係数測定

極低温における高温超伝導体の常伝導ホール係数の温度依存性も、 CuO_2 面内の物理に関して重要な情報を提供する。例えば不足ドーピング領域で観測されている、常伝導面内抵抗率が $\log(1/T)$ で発散する振舞い⁸⁾の起源を明らかにする上で、ホール係数も同様に $\log(1/T)$ の温度依存性を示すのか、それともホール係数は低温で温度に依らない値を示すのかによって、面内輸送現象の絶縁体的な振舞いが状態密度の変化によるものなのか不純物散乱によるものなのか判断できる¹⁷⁾。LSCO 系と Bi-2201 系の試料について、60 T のパルス強磁場を用いて行われた Ando らの実験では、極低温でホール係数は温度依存性を失う、という結果 (図 8) が報告され¹⁷⁾、抵抗率の $\log(1/T)$ 依存性の原因は不純物散乱である可能性が高い、という結論が得られている。

最近の高温超伝導の理論の中には、最適ドーピング付近に量子臨界点が存在することを仮定するものがある。そのような理論の中には、極低温で測定される常伝導ホール係数 R_H は真のキャリア濃度を反映するので、その値は量子臨界点をはさんで $R_H \sim 1/x$ から $R_H \sim 1/(1-x)$ へ不連続に変化する (x は Cu 原子 1 個あたりのドーピング量) はずだ、と予想するものがある¹⁸⁾。このようにホール係数は、量子相転移に伴う電子系 (Fermi 面) の変化を知るためのプローブとして有力であるので、パルス強磁場を用いた極低温常伝導状態におけるホール係数の系統的な測定は興味深い結果をもたらす事が期待できる。ただし高温超伝導体においては、通常はホール電圧は面内電気抵抗による電圧よりも 1 桁以上小さいので、ホール係数測定は面内電気抵抗率測定に較べてかなり困難な実験となる。しかしもし長時間パルス強磁場施設が実現すれば、これまでよりも格段に測定時のノイズが改善されるはずなので、この方面の研究が大きく進展することが期待できる。

6. 磁気抵抗測定

高温超伝導体の常伝導状態における磁気抵抗測定も、パルス強磁場を用いて研究する価値

のあるテーマである。過去には Tl-2201 系において 60 T パルス強磁場を用いた Ando-Boebinger-Mackenzie らのグループによる測定例¹⁹⁾がある。その結果によると、高磁場で磁気抵抗の磁場依存性が B^2 よりも弱くなることが観測され（図 9）、これは磁気抵抗の弱磁場極限（ $\omega_c \tau \ll 1$ ）の近似が効かない領域になったと解釈するのが妥当であるため、その磁場依存性の解析から $\omega_c \tau$ を求めることが出来る¹⁹⁾。高温超伝導体では、1つのキャリアが見かけ上 2 種類の異なった散乱時間を持つという「散乱時間の分離」が輸送特性の特徴の一つとして知られており、この原因を明らかにすることが高温超伝導体の電子状態の特異性の起源を解明することにつながると考えられているので、高磁場の磁気抵抗から散乱時間を求める実験はこの目的のために重要な知見をもたらす事が期待される。

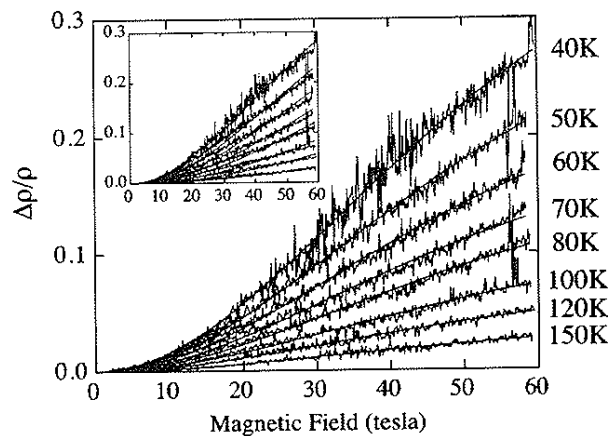


図 9 60 T までの磁場中での Tl-2201 系単結晶の常伝導磁気抵抗。高磁場で磁気抵抗の磁場依存性が B^2 よりも弱くなっており、この磁場依存性の解析から散乱時間を求めることが出来る。（参考文献 19 より）

ただし磁気抵抗の測定は、典型的には面内電気抵抗率が磁場とともにせいぜい数%変化するのを求める実験になるため、前節で述べたホール係数の測定よりもさらに難しい。通常はパルス強磁場中での抵抗測定には 100 kHz 程度の交流を用いたロックイン法を用いるが、この周波数領域では試料につけたリード線が磁場中でローレンツ力により振動してしまうため、数%からひどい時には数十%程度の余分な電圧がデータに乗ってしまうことが多く、信頼性の高い抵抗測定は非常に困難だからである。上記の Tl-2201 系における測定では、たまたま磁気抵抗が通常よりも 1 桁程度大きかったことと、リード線をエポキシで固めるなどの工夫をしたことによって測定が可能になったが、今後、他の高温超伝導体で磁気抵抗の測定を行うためには、パルス強磁場中での精密な抵抗測定の技術を新たに開発することが必須である。

7. その他のテーマ

これまでに述べた研究の可能性以外にも、長時間パルス強磁場施設が実現すれば様々な新しいテーマの実験が可能になる。例えば、パルス時間が十分長ければ磁場で超伝導を壊した時の比熱の測定が可能になり、常伝導電子比熱係数 γ の決定を通して高温超伝導体中の電子相関を直接測定することが可能になる。また、磁場で超伝導を壊した時のトンネル分光の実験なども擬ギャップの起源を解明する上で重要な知見をもたらす事が期待できる。さらに、磁場で超伝導を壊した時の熱伝導率の測定によって Wiedemann-Franz 則の成立性を調べることも、高温超伝導体の電子系が「非フェルミ液体」になっているかどうかを検証²⁰⁾することにつながる重要なテーマである。

参考文献

- 1) J. L. Smith *et al.*, J. Supercond. **7**, 269 (1994).
- 2) M. Osofsky *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 2315 (1993).
- 3) A. P. Mackenzie *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1238 (1993).
- 4) C. Bergemann *et al.*, Phys. Rev. B **57**, 14387 (1998).
- 5) J. L. O'Brien, Phys. Rev. B **61**, 1584 (2000).
- 6) C. M. Fowler *et al.*, Phys. Rev. Lett. **68**, 534 (1992).
- 7) M. Springford *et al.*, Phys. Rev. Lett. **69**, 2453 (1992).
- 8) Y. Ando *et al.*, Phys. Rev. Lett. **75**, 4662 (1995).
- 9) G. S. Boebinger *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 5417 (1996).
- 10) S. Ono *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 638 (2000).
- 11) T. Timusk and B. Statt, Rep. Prog. Phys. **62**, 61 (1999).
- 12) L. B. Ioffe and A. J. Millis, Phys. Rev. B **58**, 11631 (1998).
- 13) Y. Ando *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 2065 (1996).
- 14) N. Morozov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84**, 1784 (2000).
- 15) T. Shibauchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 5763 (2001).
- 16) N. E. Hussey *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 2909 (1998).
- 17) Y. Ando *et al.*, Phys. Rev. B **56**, R8530 (1997).
- 18) S. Chakravarty, R. B. Laughlin, D. K. Morr, and C. Nayak, Phys. Rev. B **63**, 094503 (2001).
- 19) A. W. Tyler *et al.*, Phys. Rev. B **57**, R728 (1998).
- 20) R. W. Hill *et al.*, Nature **414**, 711 (2001).

II 強磁場磁性

A 量子スピン系

東京工業大学大学院理工学研究科

田中秀数

本稿では、最近の強磁場技術を中心とした実験技術の進歩と新しい物質の開拓、そして理論的研究成果によって近年急速に研究が進展している強磁場磁性、特に強磁場中の量子スピン系の研究について現状と将来の展望について述べたい。

スピンが磁性原子に局在する絶縁体の磁性はスピン系として記述される。スピン間には Heisenberg 模型や Ising 模型で表される交換相互作用が働く。この簡単な模型から様々な現象が現れるために、スピン系は磁性や統計力学の研究対象として長く研究者の心を引き付けてきた。

スピンは量子力学的物理量であるが、従来からスピンは向きの自由度しかもたないと考えられ、磁性体は向きをもつスピンというベクトルの集団として捉えられてきた。そしてスピンの向きの秩序化が相転移であり、外から加える磁場の主な働きはスピンの向きを変えることと考えられてきた。こうした従来の磁性体の磁気構造はスピンをベクトルとしたモデル（古典スピンモデル）で定性的に説明され、量子効果はその補正としての役割しか持たなかった。それでも交換相互作用の競合、磁性原子の幾何学的配置によるフラストレーションあるいは種々の磁気異方性のために、相転移は多彩で多くの研究者の興味を引き付けてきた。従来の磁性体において強磁場が誘起する現象としては反強磁性体のスピントロップ転移と Ising 性の強い反強磁性体におけるメタ磁性転移がよく知られている[1]。そしてこういった磁場誘起現象の研究にパルス強磁場は威力を発揮してきた。

このような古典スピン系に対して、量子効果が顕著で磁気現象がスピンをベクトルのように考えたのでは定性的にさえも説明できないスピン系が量子スピン系である。磁場が誘起する顕著な量子現象としては、1次元反強磁性体の磁気励起の問題が古くから理論的に知られている。スピンの大きさが $1/2$ の場合には、ゼロ磁場での磁気励起エネルギーは波数 Q の関数として $\epsilon(Q) = \pi J |\sin Q|$ のように表されることが des Cloizeaux と Pearson によって厳密に示されている[2]。これは実験的にも $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{D}_5$ などのモデル物質を用いた中性子散乱実験で確かめられている[3]。このようにゼロ磁場では Q が 0 や π のときに励起エネルギーは 0 になる。ここに磁場を加えると、励起エネルギーが 0 となる Q が 0 や π の位置から磁場の大きさに比例してシフトし、不整合的な分散が生ずることが厳密に示された[4]。これは線形スピン波近似の結果とは著しく異なる顕著な量子現象である。この現象を磁場中中性子散乱によって観測しようとする試みは長く続けられているが、これを明確に捉えた実験はまだない。

ようである。その一因は、磁場が交換相互作用 J の半分くらいの大きさになってはじめてこの現象が明確に現れてくるために、非常に大きな磁場が必要であるためである。

近年新しい量子スピン系の研究が理論と実験の両面から急速に押し進められている。その発端の1つが「1次元 Heisenberg 反強磁性体では、スピンの半奇数の場合には基底状態と励起状態との間にギャップはないが、スピンの整数の場合には有限のギャップが存在する」という Haldane による仮説である[5]。このギャップは Haldane ギャップと呼ばれ、その存在は $\text{Ni}(\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{NO}_2(\text{ClO}_4)$ (略して NENP) などの物質で実験的に確認されている。この Haldane ギャップの大きさを求める実験として我が国で行われたパルス強磁場を用いた磁化過程の測定が大きな役割を果たしている[6, 7]。ギャップが閉じる臨界磁場 H_c までは磁化が0であるが、 H_c 以上では磁化が出現する。この H_c の測定から Haldane ギャップの大きさが正確に求められたのである。この実験はパルス強磁場が磁性研究に極めて有用であることを示した1例である。

この Haldane 系のように基底状態がスピン1重項で励起状態との間に有限のエネルギーギャップが存在する磁性体はスピンギャップ系と呼ばれている。スピンギャップは顕著な量子効果の現れであり、Haldane 系の他にスピン・パイエルス系やスピン梯子系、或いは反強磁性ダイマーが2次元3次的に結合した系などで見られる。近年、物質開拓が精力的に行われ、新しいスピンギャップ系が次々と開拓されている。これには我が国の研究者の貢献が非常に大きい。

先に Haldane 系について述べたように、こうしたスピンギャップ系に強磁場を加えると、ギャップが閉じる。そして3次的な相互作用があれば磁気秩序状態に相転移が起こる。この磁場誘起相転移を詳細に調べると、後に述べるようにマグノンのボース・アインシュタイン凝縮（略してボース凝縮）という新しい物理が見えてきた。また磁化曲線に磁場方向に依らない平坦領域（磁化プラトー）が幾つか現れるなどの新現象が、ごく最近我が国の研究者を中心として発見された。この磁化プラトーは Ising スピン系に見られるメタ磁性とは全く異なる新しい量子現象である。従来の古典的スピンの見方では、この磁場誘起相転移や磁化プラトーを説明することはできない。

スピンギャップをもつ多くの磁性体ではスピンの対（ダイマー）が構成単位になっているものが多い。強磁場中では、ダイマーの3重項状態の中で2つのスピンの共に磁場の向きを向いた状態が重要になる。ダイマーのこの3重項はダイマー間の交換相互作用の横成分 $J_{ij}(S_i^+S_j^- + S_i^-S_j^+)$ のために隣の位置に次々と移ってゆき、あたかも粒子のように結晶中を運動する。この準粒子はボース粒子の性格をもちマグノンと呼ばれる。ダイマー間の交換相互作用の縦成分 $2J_{ij}S_i^zS_j^z$ はマグノン間の相互作用を生み出す。交換相互作用が反強磁性的であれば斥力、強磁性的であれば引力になる。したがって、こうしたスピンギャップ系は強磁場中で相互作用をするボース粒子系として自然に表すことができる。このとき磁場はマグノンの化学ポテンシャルとして働き、新しい役割を担う。図1はこの様子を模式的に表したものであ

る。

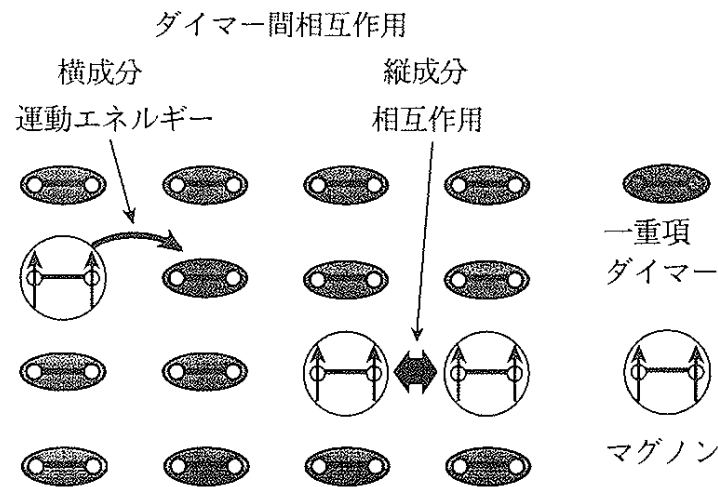


図1 磁場で誘起されるマグノンの運動と相互作用。

磁化プラトーはマグノンの並進運動が極端に抑制されて、その結果マグノンが周期的に配列するために生ずると考えられる。これはマグノンの実空間での凝縮である。この並進運動の抑制は周期的なポテンシャルによる場合もあるし、パリティーによる制約や幾何学的フラストレーションによっても起こる。後者の場合には、マグノン間に働く斥力のためにマグノンの周期的配列が生ずる。これはマグノンによる Wigner 結晶と見ることが出来る。このような機構によると考えられる磁化プラトーが最近 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ で発見されている[8]。

磁化プラトーは量子ホール効果と類似した磁化の量子化現象であり、上記のダイマーが結合した系以外にも様々な系で起こることが最近の研究から分かってきた[9]。最近では量子ホール効果の理論を持ち込んで、磁化プラトーを扱う理論も出されている。磁化プラトー状態では磁化の値とスピン状態の周期との間にある量子化条件が成り立つことが知られているが[10]、それが破れる特殊な場合があることも指摘されている。その場合には分数量子ホール効果と対応付けられるエキゾチックなスピン状態が実現することになる。

磁化プラトー状態では磁化をもつ部分と持たない部分とがナノスケールで規則的に配列した新しい磁化状態が実現している。幾つもの磁化プラトーが存在する場合には、磁場を変化させることによってこの配列パターンを次々と変えることができる。このように磁化プラトーは新しい磁気物理学の問題であるとともにナノスケールの磁化パターン形成を用いた応用に発展する可能性を十分もった現象である。したがって様々な物質で磁化プラトーを発見し、その機構と構造を解明することは重要である。

これに対して、スピンギャップ系において臨界磁場以上で起こる磁場誘起相転移ではマグノンの並進運動が重要である。磁場が臨界磁場より僅かに大きい場合にはマグノンの密度は

小さいので、系は弱く斥力を及ぼしあうボース粒子系として表すことができる。そして磁場誘起相転移はマグノンのボース凝縮として自然に記述することができる。これはマグノンがコヒーレント状態を形成することによって起こるもので、マグノンの運動量空間での凝縮である。最近 TlCuCl_3 おいて磁場誘起相転移が詳しく調べられていて、観測された相転移に伴う磁化の温度変化や相転移温度の磁場依存性はマグノンのボース凝縮理論から半定量的に説明できることが分かった[11]。

ボース凝縮は最も顕著な巨視的量子現象であり、これが実際の粒子ではない準粒子でも起こることが分かってきたことは意義深い。古くから知られているヘリウムの超流動や最近ではレーザー冷却された中性原子でボース凝縮が観測されている。これらの場合には粒子数が一定であるのに対して、マグノンの場合には粒子数が自然に変化するという異なる状況でのボース凝縮である。また粒子の化学ポテンシャルを磁場で自由に制御することもできる。理論的には、このマグノンのボース凝縮は系が磁場のまわりに回転対称であれば起こる普遍的な現象であるので、様々なスピングャップ系で観測されると思われる。マグノンのボース凝縮は磁気相転移の新概念である。

マグノンのボース凝縮が起これば、これに附随してマグノンのコヒーレントな流れ、すなわち超流動が起こるのではと期待が膨らむ。マグノンの超流動は位相の流れであるので、これが起こると磁場のまわりにスピンの巨大回転現象 (Giant Spin Rotation) が起こると考えられる。これはスピンの平衡状態のまわりでの微小振動であるスピン波とは異なる新しい現象である。しかし、マグノンの場合はヘリウムの超流動などとは異なり、磁気異方性が位相の流れをロックする効果をもつため、簡単には超流動は起こらないかも知れない。だが、磁場勾配をつくるなどしてマグノンのコヒーレントな流れをつくることができれば、超流動が観測されるかも知れない。これは将来の重要なテーマと考えている。

このように磁性体は量子力学的粒子の集団としての性質を強く示す場合があることが明らかになってきた。これは磁性体の新概念の1つである。このように量子スピン系は既成の概念では捉えられない新しい現象を強磁場中で示す。

この他にも新しい量子現象は幾つも予言されている。例えば1次元量子スピン系はラティンジャー液体というエキゾチックな状態になることが理論で示されている。1次元量子スピン系には厳密な理論の他に、場の理論や精密数値計算などの手法で磁場誘起エネルギーギャップなどの磁場中新現象が理論的に予言されている。これを実際に実験で検証することは重要な課題である。

三角格子反強磁性体や籠目格子反強磁性体などのフラストレーションの強い系では多くのスピン構造がエネルギー的に拮抗している。このような系を磁場中に置くと、量子揺らぎがスピン構造の安定化に決定的な役割を果たす。量子揺らぎを考える上で、スピン系を調和振動子の集まりで記述するスピン波理論は分かりやすい。スピン波理論では量子揺らぎは零点振動として表される。零点振動のエネルギーがスピン構造によって異なり、磁場とともに増大す

るために、スピンをベクトルとする古典的な理論では不安定なスピン構造が磁場中で安定化される。そのために磁化曲線に飛びやプラトーが出現するなどの現象が起こる。この量子揺らぎが原動力となって起こる磁化の飛びを伴う磁場中相転移が CsCuCl_3 において発見されている[12, 13]。この研究によって、パルス強磁場とパルス中性子を組み合わせた磁場中中性子散乱実験の有用性が実証された。最近このような量子揺らぎによると考えられる磁化プラトーが Cs_2CuBr_4 においてパルス強磁場による磁化測定で発見されている[14]。

このように量子スピン系では強磁場中で新しい量子現象が出現することが分かってきた。また Haldane ギャップのように理論的に予想もされていない現象がまだ多く眠っているに違いない。格子、軌道あるいは電荷などの自由度が絡んだ新量子現象も大いに期待される。このような量子スピン系の磁場誘起新量子現象の発見とその機構の解明を目的とした科学研究費補助金特定領域研究(B)「磁場が誘起する磁性体の新量子現象」が平成 13 年度から始まっている。パルス強磁場を用いた磁化測定、ESR、中性子散乱実験などには大きな期待が寄せられている。

参考文献

- [1] 金森順次郎：新物理学シリーズ7「磁性」培風館
- [2] J. des Cloizeaux and J. J. Pearson: Phys. Rev. **128** (1962) 2131.
- [3] Y. Endoh, G. Shirane, R. J. Birgeneaut, P. M. Richards and S. L. Holt: Phys. Rev. Lett. **32** (1974) 170.
- [4] N. Ishimura and H. Shiba: Prog. Theor. Phys. **57** (1977) 1862.
- [5] 例えば、物理学論文選集 VIII “Haldane Gap” (1997).
- [6] K. Katsumata, H. Hori, T. Takeuchi, M. Date, A. Yamagishi and J. P. Renard: Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 86.
- [7] Y. Ajiro, T. Goto, H. Kikuchi, T. Sakakibara and T. Inami: Phys. Rev. Lett. **63** (1989) 1424.
- [8] 陰山 洋, 宮原 慎：日本物理学会誌 **55** (2000) 786.
- [9] 科学研究費補助金特定領域研究(B)「磁場が誘起する磁性体の新量子現象」Newsletter No. 1.
- [10] 押川正毅, 戸塚圭介, 山中雅則：日本物理学会誌 **54** (1999) 814.
- [11] 田中秀数, 大沢 明, 二国徹郎, 押川正毅：日本物理学会誌 **56** (2001) 110.
- [12] T. Nikuni and H. Shiba: J. Phys. Soc. Jpn. **62** (1993) 3268.
- [13] M. Motokawa, M. Arai, H. Ohta, M. Mino, H. Tanaka and K. Ubukata: Physica B **211** (1995) 199.

- [14] H. Tanaka, T. Ono, H. Aruga Katori, H. Mitamura, F. Ishikawa and T. Goto:
Prog. Theor. Phys. Suppl. 印刷中.

B 低次元量子スピン系の強磁場磁性

九州大学大学院理学研究院物理学部門

網代 芳民

最近の低次元磁性体の研究分野では単一相互作用からなる構造的には単純・一様な一次元鎖や正方格子系に留まらず、交替鎖や梯子鎖などに代表されるように複数の相互作用が周期的に混在して相互作用がトポロジカルな空間構造を構成する修飾された変形磁気鎖が興味の対象になっているが、磁氣的構成単位を「原子」から「分子」にすることで物質設計の自由度が飛躍的に拡大し、多彩な物質群において特徴的なスピン系の構築が可能になる。より包括的に言うならば、電荷、スピン、軌道、格子等の関わりが新しい機能発現に重要であるとの認識から、魅力的な物質の探索が行われており、これらの物質を舞台として展開される強磁場物性研究への期待は多大なものである。

低次元磁性体の実験研究が開始された当初から強磁場実験は重要な実験手段であった。我が国の強磁場施設としては古くから強磁場御三家として北から東北大学金属材料研究所、東京大学物性研究所、大阪大学強磁場施設が知られている。近年は金属材料技術研究所が加わり、低次元磁性分野においてこれらの施設は輝かしい業績をあげている。ここでは、筆者が関わって来たごく限られた本主題の展開に必要なものにとどめて思い付くままに辿りながら、量子効果に起因する新しい磁性に関する我々の研究を中心に紹介し、強磁場を利用して展開される多彩な量子スピン効果の研究の現状と将来の展開を述べる。

1. 何故、低次元磁性体の相転移研究か？

自然界で見られる強磁性や超伝導などの興味ある物質の性質は、電子・原子・分子などのミクロな粒子が個別にもつ性質ではなく、物質を構成する数多くのミクロな粒子が互いに協力的あるときには反発的な相互作用を及ぼしあって示す相転移という多体現象を通して現われる粒子集団の性質である。その結果、物質を構成するミクロな粒子が個別には持たない千変万化の物性が巨視的に現われる。原子の集まりである分子からはじまって、階層構造を持つ複雑なシステムにおいては、その構造の多様性を反映したさまざまな協力現象と機能が生じる。こうした観点から、自然界で発現する種々の協力現象・相転移の機構や普遍性を追及することによって、新しい機能の発現を目指すことができる。

磁氣的相互作用が近似的に一次元もしくは二次元格子内に限定された系、いわゆる低次元格子上的スピン系に着目する理由は、種々の協力現象の普遍的な理解にとって基本的かつ簡明な系であると同時に、低次元系に固有の未知の現象の発見を通じて相転移現象のより深い理解に寄与できると考えられるからである。より一般的に言えば、低次元化や極小化、ときには構造周期を破壊した無秩序化による物質状態の極限化あるいは極低温や強磁場、高圧等の外部パラメータの極限化によって、非日常的な極限条件下で発現する特徴的な物質の存在形式や運動形式を追及することによって、日常世界では隠されている新しい現象と機能が発

見できると考えられる。

2. 量子スピン系

低次元磁性体の研究によって、最近では相転移に関する量子スピン効果とスピンプラストレーション効果(相互作用の競合効果)が極めて重要な概念として認識されるに至っている。通常の磁性体では低温になって熱ゆらぎが抑えられると協力的なスピン間相互作用によって強磁性体や反強磁性体など隣り合うスピンが平行や反平行の矢印として揃っている秩序化した静的・規則的な磁気秩序が生じる。量子効果やスピンプラストレーション効果がさほど大きくなければ古典的な基底状態に補正を加えた近似的な描像が成立するが、これらの効果が大きくなると熱的ゆらぎが完全に消失する絶対零度においてもスピン秩序がなく、古典的状态と対応関係のない新しい状態が出現する。

低次元磁性体において顕著に現れる量子スピン効果は Bethe 以来論じられて来た古くて新しい問題である。比較的最近(1983 年)Haldane によって一次元反強磁性ハイゼンベルグ系に対して基底状態、励起状態が整数スピン、半整数スピンの場合に本質的に異なることが提唱されたことはよく知られている。半整数スピン系の基底状態では相関関数が長距離的なべき乗則に従って緩やかに減衰することから長距離秩序状態に似た準長距離的な状態にあり、秩序と無秩序の境界に位置する臨界的な(marginal)状況にあると言える。基底状態と第一励起状態との間にエネルギーギャップは存在せず、低エネルギー励起の分散関係は古典的基底状態からのずれを表わすスピン波に似ているように見えるがその性格は本質的に異質であり「スピノン対」の励起と考えられている。整数スピン系では基底状態と第一励起状態との間に有限のエネルギーギャップ(量子スピンギャップ)が存在するのみならず、相関関数は短距離的な指数関数則に従って急速に減衰することから無秩序な状態にある。Haldane が予想したスピンギャップを有する基底状態(Haldane 相)が Affleck-Kennedy-Lieb-Tasaki によって Valence Bond Solid(VBS)状態と言われるスピナー重項対の敷き詰め状態として理解されることが示されて以来、量子効果によってスピンギャップを生じる系が活発に研究されている。VBS 状態では $S=1$ のスピナーが対称化された 2 個の $S=1/2$ スピナーで表現され、隣り合う格子点上の $S=1/2$ スピナー間で形成される一重項対(Valence Bond)で格子を敷き詰めることができる。この VBS 状態の描像から、整数、半整数スピン系の基底状態の違いが直観的に理解される。整数スピン系では一重項対を組み合わせることで並進対称な VBS 状態を作ることができるが、半整数スピン系では並進対称性が保てない。

スピナー重項対の敷き詰め状態の概念は、フラストレーション効果をもつ三角格子反強磁性体の基底状態モデルとして Anderson が提案した Resonating Valence Bond(RVB)モデルにさかのぼると考えられるが、この RVB モデルがその後、高温超伝導機構モデルとして再び登

場した。今や、より一般的な強相関係のスピングャップの問題が超伝導発現機構とも関連して活発に研究されている。スピングャップそのものは異方的なスピン系や単純な反強磁性二量体で現われるが、多体量子効果による等方的なスピングャップ状態は、量子系固有のエネルギーギャップをもつ特異な一重項基底状態(量子スピングャップ相)であることが注目されている。この観点から、整数スピン一次元反強磁性体、スピンパイエルス系を含む交代ボンド系や梯子格子系、より一般的には相互作用が周期的に変わる一次元スピン多量体系などの空間構造を有する修飾された変形磁気鎖において予想される一重項対の種々の配置による新しい基底状態の研究が興味ある話題を提供している。

このように、一次元ハイゼンベルグ反強磁性体に代表される量子スピン系では多体効果によって量子効果が増幅され基底状態は古典的な描像とは全く異質のものになる。そこでは古典描像から予想される反強磁性的な長距離秩序は破壊されている。温度効果による長距離秩序の破壊の原因が「熱ゆらぎ」による擾乱と言われるように、熱擾乱のない絶対零度において重要となる量子効果による破壊の原因は「量子ゆらぎ」による擾乱と言われている。ある種のスピン系において絶対零度でもスピン秩序がなく、それ故、スピンの固体状態が出現しないと言うことは、液体ヘリウムが量子効果のために固体になりえないことを想起させる。液体ヘリウムは低温においてボーズ凝縮によって超流動状態に転移する。量子スピン状態ははたして如何なる状態にあるのであろうか。最近の研究によれば、大きなゆらぎを持つ量子スピン系において古典的な意味での無秩序状態のなかに豊富な量子力学的な構造が発見されつつあり、それらが新しい秩序形態として注目されてきている。例えば、局所的な量子共鳴状態であるスピン一重項対を秩序の単位としてそれらが空間的にある特別な配置で敷き詰められた状態が現われる。これらの秩序単位の配置は空間的な広がりをもつばかりではなく個々のスピンは時間的に変化する動的状態にあるが、さりとて無秩序ではなく量子的コヒーレンスを持った一つの相を形成する。これらの状態は古典スピン系に対応状態をもたない全く新しいタイプの量子基底状態であり、高温超伝導の発現機構とも関連して活発な研究がなされている。実験的には、これらの時間的、空間的に大きな揺らぎをもつ基底状態の検証と解明、さらには新しい量子凝縮相の発見をめざして、典型物質となり得るモデル磁性体を探索、合成し、比熱・磁化率等の熱力学的諸量の測定、磁気共鳴、中性子回折、 μ -SR、強磁場磁化測定などによる広範な実験研究が行われている。

3. 強磁場磁性研究の歩みー 筆者の関わりを中心とした一断章

当然ながら当初から強磁場磁性研究の主要な目的は強力な外部磁場の印加によって反強磁性相互作用や異方性を相殺した新しい磁気相を実現する事にある。反強磁性磁化過程におけるスピン・フロップ転移やメタ磁性転移の研究によって重要な物質パラメータである交換相

相互作用や結晶場異方性を決定する事が出来る。草創期における画期的に面白い例は金研強磁場を用いて小林花子、長谷田泰一郎両先生が測定した $\text{CoCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ の 2 段階逐次転移で、金森順次郎先生の「磁性」教科書にも記載されている。一方、伊達宗行先生、本河博光氏は阪大強磁場を用いて強磁場磁気共鳴実験を開始し、一次元イジング強磁性体の最初の例であるこの物質の特異なスピン励起をスピン・クラスター共鳴として確立した事は良く知られている。**強磁場磁化測定と強磁場磁気共鳴の流れはこの時すでに現在の潮流を決めている。**大型超伝導磁石が常識的に国内研究室にある現在と違って、標準的な電磁石と自作の超伝導磁石しかない時代に 10 テスラを超える磁場は夢を抱かせるに十分な強力な実験手段を提供した。その頃筆者が取り組んでいた二次元磁性体 $\text{Mn}(\text{HCOO})_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ の磁場中全相図がライデン強磁場施設で観測されたり、先輩の松浦基浩氏が同じ施設を利用して一次元反強磁性体 $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{pyridine}$ の磁化過程を明らかにしたこともあり、強磁場の威力を実感した。

このようにして着実に低次元磁性研究に不可欠な tool として強磁場実験は定着して来たが、伊達グループによる非破壊多層パルス磁石の開発によってブレークスルーがもたらされた。最高磁場が一気に上昇したのに加え、各施設の綿密な努力が強磁場物性を精密科学の段階まで押し進めた。後に、量子効果の重要性がス波氏等によって指摘された CsCuCl_3 の磁化が本河氏によって測定されたのもこの時期である。それと同時にこれまで専門家集団の Tool であった強磁場が共同利用を通じて大衆化の道が開かれた。

筆者が強磁場磁化測定に関与したのは一次元反強磁性体 CsCoCl_3 [1]や結晶場基底一重項磁性体 RbFeCl_3 [2]などの所謂 ABX_3 化合物試料を天谷氏を通じて物性研グループに提供したことに始まる。強磁場測定が活きるテーマとして選択した試料であり、当時の最高磁場を活用して磁化過程の全貌を明らかにする興味ある結果が得られた。 CsCoCl_3 については後年、物性研後藤グループと共同で非磁性イオンで切断した有限長磁気鎖の磁化過程を測定し、理論的に予言されていた鎖端効果の直接的検証を行った[3]。物性研後藤グループでは阪大グループから移動していた榊原氏が我々素人の共同利用研究者でも良質のデータが得られる程に装置を整備していた。後は共同利用者である我々ユーザがいかに強磁場測定が活きる試料を持ち込むかであった。

狙いすまして準備したのが二量体一重項磁性体 $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Cl}_9$ で、当時の最大磁場 40 テスラを目一杯に活用して 3 段階ステップ磁化を観測した。近年活発に研究されているハイゼンベルグ磁性体における磁化の量子化を反映した所謂磁化プラトーの研究の先駆となる結果である[4]。この物質については、最近の発展を次節でとりあげる。

同年 1989 年は現在活発に行われている強磁場を用いた量子スピン系の研究にとってブレークスルーとなった年である。1983 年にハルデン予想が提唱され、理論的な混沌を経て 1987 年に Renard 等によって整数スピン $S=1$ の一次元反強磁性体 NENP の実験が報告された。上述したように我々はこの時スピン・ギャップがある基底一重項磁性体 $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Cl}_9$ の実験で強磁

場磁化測定の威力を熟知していたので、直ちに菊池彦光君が NENP 単結晶を作製し後藤グループと共同で磁化測定を行い、スピン・ギャップを持つ一重項非磁性状態の存在と磁場中でギャップが破壊される様子を直接的に観測した[5]。我々としては残念であったが、阪大強磁場を利用して伊達グループと共同で磁化測定を行った勝又氏が独立に一步先んじて結果を報告した[6]。しかし、我が国の強磁場施設を利用して世界に先駆けた結果が同時に二ヶ所でなされた事実は、我が国の強磁場施設と低次元磁性研究者のポテンシャルの高さを示すものであると考える事が出来る。

一度このようにスピン・ギャップ磁性体に対する強磁場磁化測定の有効性が低次元磁性研究者に認識されると、後は、草原の火の様に量子スピン系の分野で新しい物質系に対する強磁場磁化測定が始まった。第一番目の適用例は、新しく発見したスピン・パイエルス化合物 CuGeO_3 について内野倉グループが三浦グループと共同で行ったスピン・ギャップの直接観測である[7]。 CuGeO_3 については我々も後藤グループと共同で非磁性イオン置換効果を測定し、同時に測定したハルデン系の不純物効果と比較して著しくギャップ安定性に違いがある事を明らかにした[8]。一方、整数、半整数スピンから成る量子スピン系の本質が $S=1/2$ スピン間で形成される一重項対であることに着眼して、 $S=1/2$ を構成要素として多様な組み合わせで量子スピン系を構築する研究を開始し、強磁性結合した $S=1/2$ の三量体鎖 $3\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{dioxane}$ の強磁場磁化測定をこの時期に行っている[9]。このモデル物質の解析を通じて飛田氏が理論的に最初に量子化された $1/3$ 磁化プラトーの出現を予想し、その後の構造を持つ修飾された磁気鎖の研究の導火線となった[10]。

この間、物性研強磁場施設スタッフの努力で実験技術も着実に成長し、後藤グループに新しく着任した有賀-後の香取さんと共同で一巻コイルを利用した 100 テスラ磁場下での磁化測定を行った。フラストレートした三角格子反強磁性体 CuFeO_2 [11]や CsNiCl_3 [12]の全磁化過程を観測する事が出来た。因に後者の測定は 110 テスラに至る直接磁化測定の world record である。さらに、この頃、三浦グループに神戸大・本河グループから異動していた野尻氏と共同で、共に $S=1$ のハルデン物質 NENP と CsNiCl_3 の全磁化過程を Faraday 回転の観測によって 150 テスラの磁場まで測定した[13]。

4. 最近の研究から

有限温度で生じる相転移は、特定の臨界温度以下で構成要素集合系に内在する相互作用が「温度ゆらぎ」による熱擾乱に打ち勝って生じる。したがって、古典系では物質内部の相互作用エネルギーの利得と熱エントロピーの損失とのせめぎ合いの結果、熱擾乱が消失する絶対零度ではゆらぎのない基底状態に凍結する。ところが量子系では不確定性原理に起因する「量子ゆらぎ」による擾乱が存在するので絶対零度において、相互作用、担体濃度、格子定

数などの物質パラメータや磁場、圧力などの外部パラメータの制御によって相転移が現われる。これらは量子相転移と呼ばれているが、その臨界点近傍の低温では「量子ゆらぎ」と「熱ゆらぎ」の興味ある相互関係によるクロスオーバーが観測される。

以下では、量子スピン系に関する多彩な研究の内から、特に「スピン系における磁場が誘起する量子現象」に関して我々の研究から最近の話題を列挙する。

4. 1 量子スピンギャップ系の磁化プラトローと磁場中相転移

二量体一重項磁性体 $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Cl}_9$ について、当時(1989)の最大磁場 40 テスラを目一杯に活用して3段階ステップ磁化を観測したことを前節で述べた。その後、およそ10年後に実験環境の整備に伴って後藤グループと共同で ^3He 温度で再測定し、図1に示す結果を得た[14]。低温環境の整備が質的に新しい結果を観測するために不可欠な重要性を持つ例を示している。 $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{X}_9$ ($\text{X}=\text{Cl}, \text{Br}$)は一連の $\text{A}_3\text{M}_2\text{X}_9$ 型六方晶化合物に属する反強磁性ダイマー化合物である。孤立ダイマー極限では基底状態はスピン一重項で、スピンギャップを伴って励起三重項、五重項、七重項がある。パルス磁場と ^3He を併用して 40T、0.5K で測定した低温強磁場磁化曲線は Cl 塩、Br 塩で対比的な特徴ある挙動を示す。その結果は両塩のダイマー間相互作用の大きさの違いを考慮したスピンギャップ系における磁場誘起量子相転移として理解することができる。この物質については、量子相転移に関係する磁場中相転移が低温、強磁場の複合極限下における磁化測定(後藤グループの三田村氏との共同研究)、NMR 測定(滝川グループの樹神氏との共同研究)によって詳細に研究されている。

一般的に言って、量子スピンギャップ系ではギャップエネルギーに対応する温度以下の十分低温では基底一重項状態が実現し磁氣的に不活性な非磁性体として振る舞う。しかし、こ

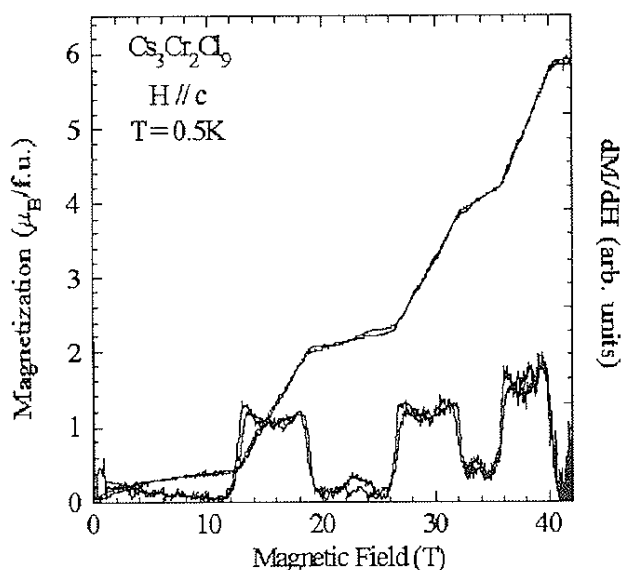


Fig. 1 $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Cl}_9$ の $T=0.5\text{K}$ における磁化過程

の非磁性一重項状態は量子効果によってもたらされた量子的非磁性相であって、系を構成する原子は有限の大きさのスピンのもつ磁性原子であり、かつ磁性原子間には相互作用が働いている。この意味で、本来的にスピンを持たない非磁性原子の集合体としての古典的な非磁性体とは異質であり、量子スピン効果によって系のスピンの死滅した状態に見えるに過ぎない。潜在的には高い磁気活性能力を有しているために、何らかの手段によってスピングャップを抑制して新しい磁気相を実現することができる。

基底一重項磁性体では有限のスピングャップを隔てた上部エネルギー準位に磁気励起状態がある。したがって、強磁場印加による Zeeman エネルギーの利得によって上位にある磁気準位を下げてスピングャップを破壊すれば磁性が復活するから磁気相を磁場誘起することが可能である。より一般的には、離散的なエネルギー準位を持つ系において磁場中でエネルギー準位の交差が生じる場合、基底状態の逐次的な転移が期待される。

このような量子非磁性相に対する磁化過程ではどのような特徴が観測されるのであろうか。相互作用の空間構造を反映した各種の量子非磁性相が理論的に予想されているが、それらの状態は VBS 描像、すなわち一重項対の敷き詰め方の違いによって理解することが出来る。交替鎖や梯子鎖などの量子スピン鎖の磁化過程において磁化が特定の値に量子化された、いわゆる磁化プラトーが出現するが、VBS 状態を構成する各一重項対が磁場によって順次三重項対に移り変わることで理解される。特に、両方の対の存在比が簡単な整数比である状態では、両方の対が規則的に配列することによって励起状態との間にエネルギーギャップを生じさせ、磁化曲線にプラトーが出現する原因となる。

$S=1$ 交替ボンド鎖や $S=1/2$ 交替ボンド競合鎖、最近では $S=1$ 、 1 、 $1/2$ 、 $1/2$ 混合スピン鎖など多様な空間構造を持つ系において新しいタイプの磁化プラトーの出現が予想されており、一部実験的にも萩原氏等によって検証されている。重要なことは、これらの系では系のハミルトニアンがもつ並進周期性和一致しない周期性が現われることで、スピン対の配位形態に応じて結晶の周期性からだけでは予測のつかないプラトーが出現する。押川氏等によって磁化プラトーが出現する(必要)条件 $n(S-m)=\text{整数}$ が与えられている。ここで n :基底状態での 1 周期当たりのスピン数、 S :スピン量子数、 m :サイトあたりの磁化である。量子ホール効果との類似性が議論されている。

現実の低次元磁性体では多少とも三次元的な弱い相互作用が存在するが、スピン・ギャップがある基底一重項磁性体では臨界値以下の三次元相互作用が存在しても零磁場では絶対零度においても自発的な磁気秩序を示さない。しかし十分低温において、上位エネルギー準位にある励起三重項状態が磁場中で獲得するエネルギー利得を利用してスピン・ギャップを消失させれば弱い相互作用による磁気秩序が現れる。粒子描像に立てばこの秩序状態がトリプレット粒子のボーズ凝縮状態に対応することが近年田中氏らの TlCuCl_3 の実験に基づいて二国氏らによって理論的に提唱されている。磁場中秩序に関しては勝又氏等によるハルデン系

NDMAP 及び関連物質での研究や Chaboussant 等による梯子系 $\text{Cu}_2\text{Cl}_4(\text{C}_2\text{N}_2\text{H}_{12})_2$ の研究がある。

磁化プラトーならびにトリプレット準粒子の運動に関して現在広く興味が持たれているのは陰山氏によって発見された二量体系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ である。フラストレートした直交二量体で構成されるこの物質は Shastry-Sutherland 格子のモデル物質と考えられ、実験的、理論的に活発に研究されている。この研究において物性研後藤グループの強磁場磁化測定が端緒を拓き、阪大極限センターの金道グループが開発した最大 60 テスラ、希釈冷凍機を利用した 100mK での測定が新局面を拓いた。理論的には、物性研上田グループの宮原氏や戸塚氏等の研究等数多くあるが、最近では Chern-Simons の場の理論を手法として、一般化された Hofstadter 問題としての議論が展開される等、磁場中挙動に関して益々の発展が期待される。

スピニングギャップを制御する手段としては磁場印加が直接的であるが、圧力印加やドーピングの方法がある。圧力を加えて磁気パラメータを連続変化させてスピニングギャップ相の発生過程を追及する研究や量子相の間の相転移を実現する研究、不純物原子を投入して系の量子干渉性を破壊し量子相と古典相との移行過程を究明する研究は重要である。後者の例としてスピニパイエルス系 CuGeO_3 に関する内野倉グループによる一連の研究や福山氏等による理論的研究を挙げることが出来る。ハルデン系においても鎖間相互作用が適当に大きく非磁性イオンの導入によって磁気秩序が誘起される事を明らかにしている。一次元鎖を不純物で切断すると両側の量子的コヒーレンスが破壊されると同時に古典的な相関が強められ、弱い鎖間相互作用によって古典的な秩序が出現する。これらの研究を通じて量子効果と相転移に関する理論的予言を検証し、同時に従来のはずみでは理解出来ない新規な現象を発見して、理論的研究にインパクトを与えることをめざす努力がなされている。

4. 2 Cu-benzoate における磁場誘起ギャップの直接観測

$S=1/2$ 反強磁性ハイゼンベルグ鎖は、量子臨界現象を示す最も単純な系として、これまで多くの研究がなされているが、磁場中挙動も非常に特異である。即ち、古典系、量子系ともにスピニングギャップがないことを直接反映して磁場中で磁化が連続的に誘起されるが、古典系では磁化ベクトルが磁場方向に一樣にキャントすることによって磁化が発生するのに対して、量子系では一重項基底状態に生成される磁氣的欠陥に伴って磁化が発生する。長距離秩序を持たない量子系の磁気励起が、通常の古典的な秩序化磁性体におけるスピン波とは異質の「スピノン対の励起」であることは先に述べたが、量子系では磁気欠陥の平均距離に対応して誘起磁化に比例した波数、したがって一般的には非整合波数をもつギャップのない励起モードが現われる。70 年代に伊達グループが発見した典型的な $S=1/2$ 反強磁性ハイゼンベルグ鎖 Cu-benzoate[15]において最近、磁化率、比熱、中性子散乱実験が、極端条件下で詳細に行われ、磁場中挙動が明かにされた[16]。その結果によると、期待される非整合波数励起モード

が観測されるが、以外なことに完全にギャップが消失せずに磁場によって誘起されるギャップが現われることが明かにされた。押川氏等によって場の理論に基づいてそれらを統一的に理解する試みが行われた結果、磁場誘起ギャップの原因は Cu-benzoate における外部磁場に垂直な成分を持つスタガード磁場の存在であることが結論付けられ、この系が磁場中において量子 sine-Gordon 系の格好のモデルを実現することが指摘された[17]。

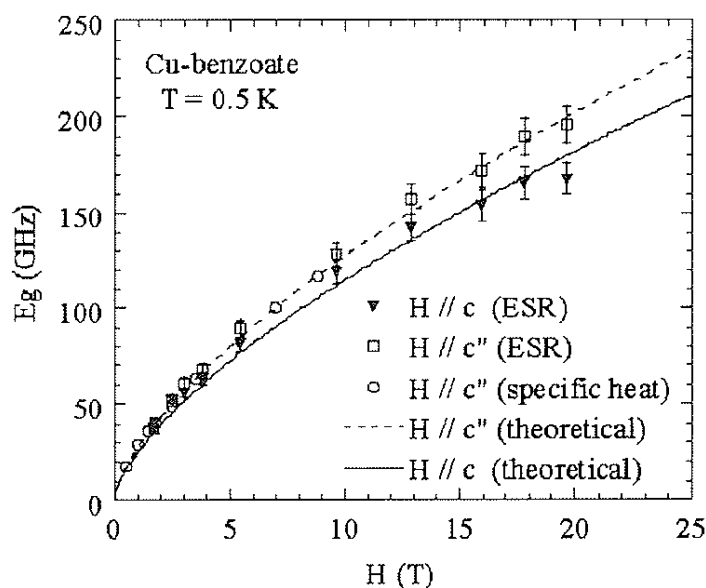


Fig. 2 Cu benzoate の $T=0.5\text{ K}$ における磁場誘起ギャップの磁場依存性

我々は、金研本河グループの野尻氏、左近氏と共同で、Cu-benzoate の単結晶試料について広範な温度、磁場(周波数)領域で電子スピン共鳴(ESR)実験を行い、磁場誘起ギャップと特徴的なブリーザ励起の直接観測に成功した。図 2 に示した $T=0.5\text{ K}$ における強磁場高周波 ESR 測定結果から磁場誘起エネルギーギャップの非線形的な磁場依存性が明確に示され、この励起が sine-Gordon 模型の解の一つのブリーザに対応する素励起として解釈することができる事を示した[18]。また、様々な周波数における広範な温度変化の測定から、温度の低下に伴い共鳴磁場が低磁場側にシフトし、スペクトルの線幅がブロードに変化していることが観測された。さらに低温では、ギャップのないスピノン励起とギャップをもつブリーザ励起に起因するスペクトルが共存し、最低温度では、ブリーザ励起からのスペクトルのみが観測された。スピノン励起とブリーザ励起の共存が零温度、零磁場の量子臨界点近傍におけるクロスオーバー現象と考えられることが示された。同じようにスタガード磁場の存在による磁場誘起ギャップの観測が最近 Yb₄As₃[19]や Cu-pyrimidine[20]で行われている。

Cu-benzoate の研究で果たした強磁場、高周波 ESR 実験の重要性の観点から野尻氏や太田氏、金道氏によって活発に研究されている磁気共鳴手段の有効性を指摘せねばならない。彼等の技術開発によって今や希釈冷凍温度領域、最大 60 テスラ、高圧力下において 1THz 領域

の高周波 ESR 測定を視野に入れた数多くの成果が、量子スピンギャップ系を含む低次元磁性体で得られている。磁気共鳴手段からは中性子散乱が得意とする波数空間の情報は直接的に得難いものの、広範な磁場領域で高いエネルギー分解能を活かした磁気励起状態の研究が可能である事が示されている。

4. 3 分子磁性体の量子現象

近年、飛躍的な物質合成技術の進展にともない、系統的な分子設計に基づいて多様かつ柔軟性に富む分子複合系磁性体が構築されるようになり、その量子物性が基礎的にも応用的にも注目されている。こうした状況において、物理と化学との十分な連携の下で本格的かつ系統的に分子磁性を研究し、精密物性実験、さらには新しい固体物性の舞台として分子磁性研究の新展開をめざす意欲的な研究が行われている。有限個の磁性金属イオンからなる分子磁性クラスターは、理論的アプローチの点からも、格好の対象であり、実験と併せて活発な研究活動が行われている分野である。

分子複合系磁性体の顕著な特徴はその階層構造にある。基本的なスピン源は金属イオンと有機分子であるがそれ等を構成要素として少数スピンからなるナノサイズ分子磁石が形成される。通常のナノサイズ系は粒子寸法が分布した複雑な磁石集合体(多分散系)であるのに対して、巨視的結晶を構成する分子磁性体は同一分子の集合体であり、それ故に同一寸法のナノサイズ磁石からなる分子磁石集合体(単一分散系)とみなすことが出来る。ナノサイズ粒子に代表される少数粒子系の特徴は離散的な量子エネルギー準位の存在である。系のサイズが十分に小さくなると系のエネルギー準位が離散的になり、巨視的な古典系に対応状態がない新しい量子物性が期待される。つまり、系のエネルギー準位の構造を直接反映した量子的振る舞いがみられるようになる。したがって系の量子エネルギー準位の確定が重要になると同時に量子ダイナミクスによる緩和機構すなわち量子トンネリングによる磁気緩和の解明が重要になる。理論的には宮下グループが活発に研究している。

量子トンネリングに関してこれまで最も活発に研究されているのは高スピン Mn_{12} 分子である。この分子は4個の $\text{Mn}^{4+}(S=3/2)$ から成る正四面体がリング状に結合した8個の $\text{Mn}^{3+}(S=2)$ に囲まれた構造を持ち、基底状態が $S=10$ 状態にある。2K までの磁気緩和は熱活性型であり超常磁性体のブロッキング挙動が観測されるが、更に低温では緩和時間が温度によらず一定になることから量子トンネリング機構が示唆され、磁化過程の測定から量子トンネリングの直接的な証拠が得られた。磁化曲線が等間隔の特定磁場で階段状の変化を示すことから、離散的なエネルギー準位構造を反映して磁場誘起の共鳴トンネリングによって逐次的に特定の磁場において磁化の反転が生じていることが明かにされている。

ここでは、一例として磁気リング Fe_{12} 分子磁性体の強磁場磁化測定の結果を示す。イタリ

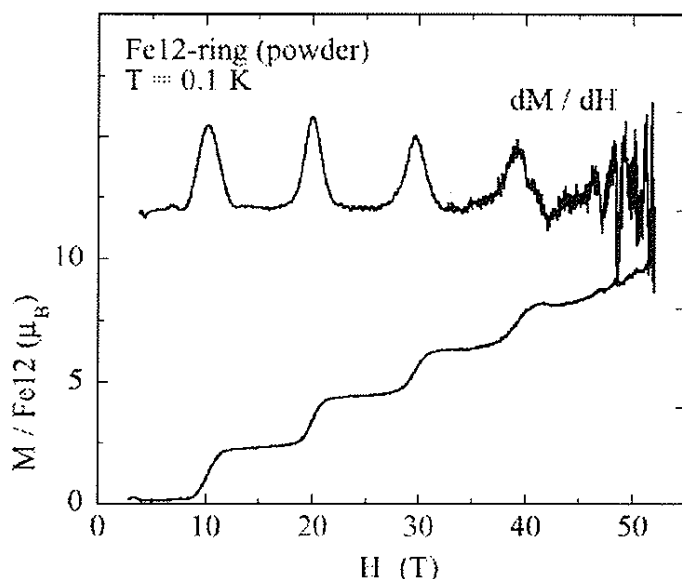


Fig. 3 Fe12 リング分子磁性体の $T=0.1\text{ K}$ における磁化過程

アの Gatteschi グループによって合成された 12 個の $\text{Fe}^{3+}(S=5/2)$ イオンがリング状に反強磁性的な相互作用で結合している物質である。阪大極限センター金道グループの鳴海氏と共同で、0.1 K までの低温、54 T に至るパルス強磁場中で磁化測定を行い、図 3 に示すように有限個数クラスタ磁性に特徴的である離散的な量子エネルギー準位の交差に由来する明確な磁化過程の逐次転移や緩和現象の異常を観測した[21]。系のエネルギー準位構造を反映して、磁場の関数として等間隔の 5 段階磁化ステップが観測され、離散的な量子エネルギー準位構造を直接的に決定することができた。通常は磁化率温度依存性の解析から準位構造が議論されるが、強調すべき事は磁化率からはそれら準位の熱平均的な寄与が与えられるに過ぎないが、低温、強磁場磁化測定からは直接的に準位構造が明らかにされる。従って、上位エネルギー準位の決定に関しては、中性子散乱や磁気共鳴等による分光学的手段に勝るとも劣らない強力な手段を提供する。

パルス強磁場磁化測定の特徴は動的磁化 dM/dt の測定を行う事であり、transient な磁場応答として本質的に系の非平衡現象に関わっている。近年になって量子磁化トンネリングの観点から主として分子磁性体を中心として磁場掃引速度に依存した磁化過程の異常が報告されている。一言で言えば離散的なエネルギー状態間の量子力学的な遷移に関する量子ダイナミクスの問題である。上述の分子磁性体 Fe12 においてもここでは示さないが量子エネルギー準位の交差に関連する量子ダイナミクスによる準安定状態の緩和機構を反映する異常磁化過程が、磁化ステップ領域において観測された。静的な磁化測定では観測されないこれらの異常はパルス磁場測定に固有な高速磁場掃引に由来する動的なものである。我々にとっては、非平衡動的磁化過程の異常現象の観測はこれが最初ではない。希釈反強磁性体 $\text{RbMn}_x\text{Mg}_{1-x}\text{F}_3$ に

において $\text{Mn}^{2+}(S=5/2)$ のスピン対が示す磁場中量子準位構造を反映すると考えられる驚異的な微細構造を持つ磁化過程を物性研強磁場を利用して後藤グループと共同で観測している[22]。パルス磁場、特に short pulse 磁場は熱平衡磁化の測定において磁化過程でのスピン系の加熱・冷却に関係する厄介な問題を抱えている事は良く知られているが、この欠点を積極的に利用して非平衡磁化過程の研究に活用する事が出来る大きな可能性を持っている。

5. 将来の展望

これまで強磁場磁性の観点から現状を述べた。スピンプラストレーション効果(相互作用の競合効果)については特に述べなかったが、量子スピン効果とスピンプラストレーション効果を相乗的に組み合わせることによって構築される新規な低次元量子スピン系において磁場中秩序や磁化プラトの研究、分子磁性体や人工的ナノスケール磁性体においてバルク多体現象と少数粒子集団の移行、ナノスケール量子位相効果の研究等が発展的に行われるであろう。しかし、強磁場物性の真の魅力は、超低温、超高压等の他の極限手段と同様に、物質が非日常的な環境下において示すであろう予測を超えた未開の物理現象を発見し、我々の物質観ひいては自然認識を豊かなものにすることにあるだろう。

実際、これまで例えば量子ホール効果の研究が示すように、強磁場物性研究は常に新しい物理の開拓に貢献して来た。この分野における伝統的な強磁場磁化測定と磁気共鳴の二大潮流を発展的に超えてレーザパルスや放射光利用を積極的に取り入れた研究が胎動しつつある。強磁場は、スピン、軌道、格子を介して直接、間接的に電子相関の発現に対して多大な影響を与える。パルス磁場応答は本質的に系の非平衡現象に関わっている。それ故に、強磁場物性には未踏領域の開拓の可能性が期待されるのである。

参考文献：

- [1] S. Takeyama *et al.*, J. Phys. **E21**, 1025 (1988).
- [2] K. Amaya *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **57**, 38 (1988).
- [3] T. Inami *et al.*, Physica **B201**, 204 (1994).
- [4] Y. Ajiro *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **58**, 1021 (1989).
- [5] Y. Ajiro *et al.*, Phys. Rev. Lett. **63**, 1424 (1989).
- [6] K. Katsumata *et al.*, Phys. Rev. Lett. **63**, 86 (1989).
- [7] M. Hase *et al.*, Phys. Rev. **B48**, 9616 (1993).
- [8] Y. Ajiro *et al.*, Phys. Rev. **B51**, 9399 (1995).
- [9] Y. Ajiro *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **63**, 859 (1994).

- [10] K.Hida, J. Phys. Soc. Jpn. **63**, 2359 (1994).
- [11] Y.Ajiro *et al.*, Physica **B201**, 71 (1994).
- [12] H.Aruga Katori *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **64**, 3038 (1997).
- [13] H.Nojiri *et al.*, J. Phys. Condens Matter **7**, 5881 (1995).
- [14] Y. Inagaki *et al.*, Proc. 4th internal Symposium on Advanced Physical Fields, 239 (1999).
- [15] M.Date *et al.*, Prog. Theor. Phys. Suppl. **46**, 194 (1970).
- [16] D.C.Dender *et al.*, Phys. Rev. Lett. **79**, 1750 (1997).
- [17] M.Oshikawa and I.Affleck, Phys. Rev. Lett. **79**, 2883 (1997).
- [18] T.Asano *et al.*, Phys. Rev. Lett., **84**, 5880 (2000).
- [19] M.Kohgi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 2439 (2001).
- [20] R.Feyerherm *et al.*, J. Phys. Condens Matter **12**, 1 (2000).
- [21] Y. Inagaki *et al.*, to be published.
- [22] Y.Ajiro *et al.*, Physica **B246-247**, 222 (1998).

III 有機伝導体と有機磁性体

物質材料研究機構

宇治進也

神戸大学分子フォトサイエンス研究センター

太田 仁

1. はじめに

最近の有機合成技術の発展により、さまざまな有機分子を組み合わせることで、非常に多種多様な構造をもつ有機物が合成できるようになった。中でも、平面状の有機分子とカウンターアニオンを組み合わせた電荷移動型の有機物は、その種類が非常に多く、低温まで通常の金属のように非常によく電気を流す有機伝導体、超伝導転移を示す有機超伝導体、半導体的な電気伝導を示す有機半導体、また、絶縁体ではあるが磁気的な秩序を示す有機磁性体などに分類できる。その一方で、低温で金属から絶縁体に転移するもの、磁性と超伝導が競合や共存しているもの等、上記のように単純には分類できず、複雑な興味深い物性を示すものも数多く合成されている。有機物の基底状態は温度、圧力、磁場にとくに敏感なものが多く、新奇の磁場誘起転移なども有機物で発見されている。この様な有機物は、合金や酸化物などと比較して単純な電子構造をもっているため、電子の基底状態に関する固体物性の基本的な重要問題に解決を与えるための最適の対象物質と考えられている。

2. 有機伝導体

低温まで非常に良い電気伝導特性をもつ有機伝導体の物性は一般に磁場により大きく変化する。これは、有機伝導体では一般にキャリア密度が通常の金属と比較して非常に小さいため、強磁場中ではゼーマンエネルギーやランダウ準位のエネルギー間隔をフェルミエネルギーと同程度にまで大きくすることが可能になるためである。特に低温領域では温度の揺らぎが抑えられるため、ランダウ量子化に起因する新奇物性の発現が期待されている。

例えば、TMTSF 系有機伝導体はたった一組のシート状（1次元的）のフェルミ面しか持たないにも関わらず、多くの新奇現象が強磁場中で見つかって来ている[1]。これは、もともとのフェルミ面の形状がネスティング不安定性を強く持つために、磁場で

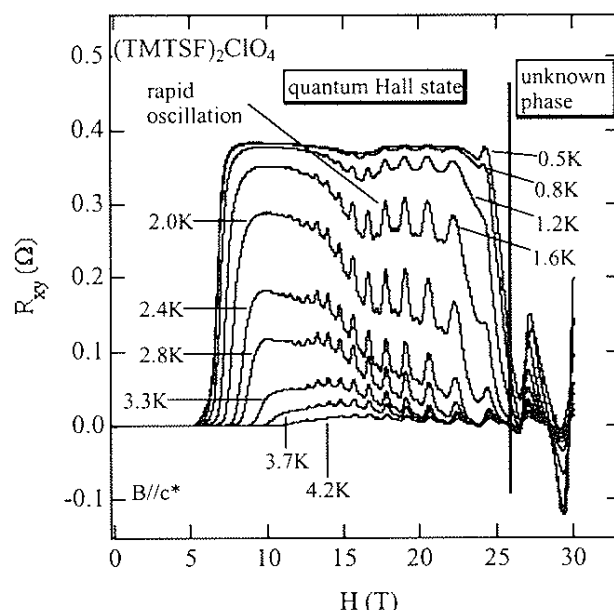


図-1 有機伝導体(TMTSF)₂ClO₄のホール抵抗。26Tまでの磁場誘起SDW状態では量子ホール効果が観測されるが、それ以上の磁場領域では未解明の相が存在する。この領域ではホール抵抗が振動する。

スピン密度波 (SDW) が誘起されることで引き起こされる現象である。図1には有機伝導体(TMTSF)₂ClO₄のホール抵抗を示している[2]。この物質のb軸方向(伝導とのもっとも悪い方向)に磁場を印可すると、極低温では約4TでSDW状態が誘起され、その後逐次相転移を起こしていく。各SDW状態では量子ホール効果が観測される。TMTSF系はバルクの系で量子ホール効果が測定された初めての物質として知られている。実際に図1に示してある様に、8Tから26Tの幅広いSDW相領域で、ホール抵抗が量子化される。26T付近で別の相転移が有り、その高磁場領域で量子ホール抵抗は観測されず、振動するホール抵抗が観測される。正負の反転をとまなうホール抵抗は極めて珍しい現象であるが、そのメカニズムは解明されていない。また、8Tから26Tの領域でも、磁場の逆数で周期的になる振動現象が観測されるが、低温で見えなくなるという不思議な温度変化を示すことから、閉軌道に起因する単純な量子振動現象とは考えられない。この振動現象も未解決のままとなっている。このような新奇現象に解明のためには、より精密な測定やさらなる高磁場での測定が強く望まれている。特に50-100T以上の高磁場では、ゼーマンエネルギーがこの物質のフェルミエネルギー程度にまで上がるため、さらなる新奇電子状態発見への期待が高い。

一方、磁場中でのみ初めて超伝導が安定化する物質が有機物で発見されている。一般に、磁場中では超伝導状態はエネルギー的に不安定になり、磁場の増加とともについには破壊され金属状態に戻ってしまう。この不安定化の原因は主には2つの効果に分けられる。一つ目の効果は、超伝導状態を作っているクーバーペアが非磁性であるスピン一重項である限り、磁場中ではゼーマン効果のために不安定になること、二つ目の効果は、超伝導体に磁場が進入しボルテックス状態を形成すると、その場所では超伝導状態が部分的に破壊され、そこでボーズ凝縮のエネルギー利得を失ってしまうこと（軌道効果）によるものである。従って、強磁場で超伝導状態が生き残るためには、ゼーマン効果が寄与しない状況、つまりスピン三重項（特に平行スピンの状態）のクーバーペアが形成されること、及び軌道効果が起きない状況が生じればよい。軌道効果が起きない状況とは、2次元超伝導の場合に磁場を超伝導面に平行にかけた時の状況である。磁場が超伝導面に正確に平行であれば、磁場は超伝導面に侵入することなしに反対側に突き抜けられるため、ボルテックス状態が形成されない。以上の状況は超伝導臨界磁場が非常に大きくなる可能性を指摘するものであって、もともとゼロ磁場では超伝導が安定であるという仮定での議論である。しかし2次元有機伝導体

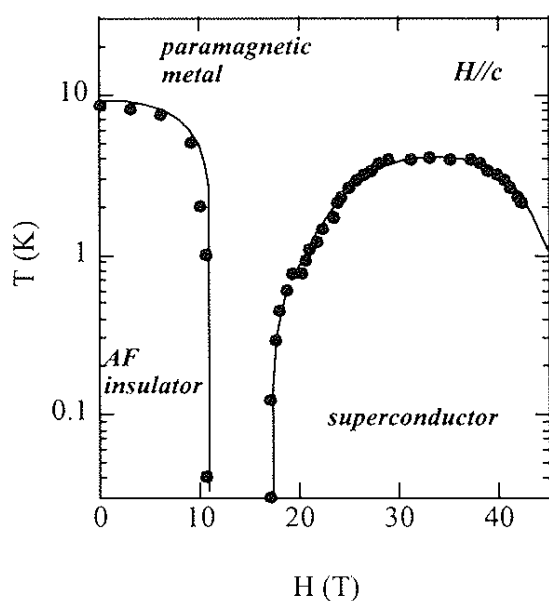


図-2 有機伝導体 λ -(BETS) $_2$ FeCl $_4$ の磁場が伝導面内方向の時の温度- 磁場相図。強磁場領域に磁場誘起超伝導相が観測される。

λ -(BETS) $_2$ FeCl $_4$ では高磁場中でのみ超伝導が発現するという極めて不思議な温度-磁場相図をもつことが最近明らかとなっている。

λ -(BETS) $_2$ FeCl $_4$ の伝導面内に強磁場を加えると、抵抗に劇的な変化が見られる。まず、10.5T 付近で絶縁体状態から金属状態へと転移を示した後、抵抗はなだらかに増加するが、14T 付近で極大を示したあと急激に減少し、19T 以上の領域では超伝導状態へと転移する。さらに 42T 以上の高磁場ではまた金属状態に戻る。この磁場誘起の超伝導状態は、磁場を伝導面に垂直に印可すると観測されない。図- 2 には抵抗測定から決定された磁気相図を示してある[3, 4]。伝導面内に正確に磁場が入る時のみ、強磁場で超伝導状態が誘起されることを示している。本来、超伝導状態は磁場中で不安定となるが、この例は磁場中でのみ超伝導が発現するという極めて不思議な現象である。

この物質では局在した Fe の 3d 電子が重要な働きをしている。この磁気モーメントと BETS 分子上の伝導電子との間に強い負の交換相互作用があるため、BETS 分子上の伝導電子のスピンにとっては逆向きの内部磁場が作られることになる。したがって、外部磁場が小さい時には、伝導電子は強い内部磁場を感じるために超伝導は安定しないが、外部磁場を上げていくと、この外部磁場と内部磁場がお互いに打ち消し合って、伝導電子スピンの感じる磁場は十分小さくなっている可能性がある。このような磁場の打ち消し合いはジャッカリーノ-ペーター機構として知られている。この機構により、ある値より大きな外部磁場では、超伝導クーパーペアが安定化し超伝導が出現可能性である。また、 λ -(BETS) $_2$ GaCl $_4$ は本来擬 2 次元電子系であるので、伝導面に平行に磁場を印可すると、磁場は超伝導層を貫かず、絶縁層を貫くために軌道効果が抑制され、超伝導が発現してよいことになる。この磁場誘起超伝導相図は完全には理解されていないが、完全に解明されれば、このメカニズムを利用して、非常に強い磁場中でも超伝導状態が安定する物質が合成されるかもしれない。また、その研究においてはさらなる強磁場が必要となる。

3. 有機磁性体

ラジカル（遊離基）を持つ有機磁性体は、無機物イオンを持つ磁性体に比べ、異方性が小さいという特徴をもっており、モデル物質として扱う場合にはその理論的扱いが簡単になるという利点がある。たとえばハルデン物質の代表的モデル物質である NENP は、 $S=1$ イオンとして Ni^{2+} を持つため磁化過程を理論と比べる場合、必然的に結晶場からくる単イオン異方性である D 項を考慮して実験と比べる必要がある。一方、ラジカルを持つ有機磁性体では結晶場の効果が小さいために、ほぼ理想的なハイゼンベルグ系として

理論的に扱える利点がある。有機磁性体の合成方法は進歩してきており、現在では「磁性体のデザイン・設計」ということをにらんで合成を行うという手法が可能となって来ている。

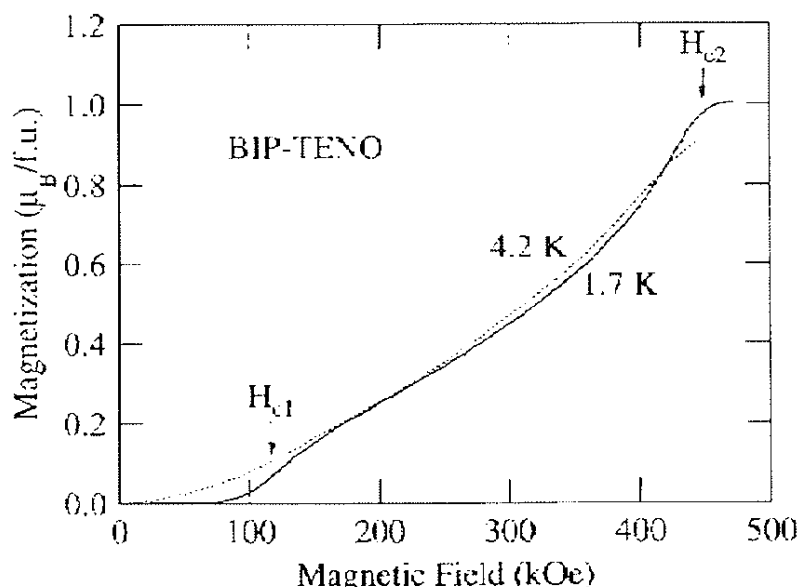


図-3 BIP-TENO の磁化過程。

ラジカルを持つ有機磁性体の新しい例としては、分子研の井上グループで合成された BIP-TENO[5]がある。この物質は $\text{NO}^\cdot$ ラジカルをもち、その構造から非常に強い強磁性的相互作用と、その他の反強磁性相互作用が期待され、有機および無機物を含めて初めての $S=1$ スピンラダーのモデル物質ではないかと考えられて、実験的理論的研究がすすめられている。特に物性研で測定された磁化測定では 45T 付近で 1/4 プラトーが観測されており、これを説明するための理論的モデルが発展してきた。量子スピン系における磁化プラトーの問題は、その出現がその系の量子性を強く反映した現象であるという認識が押川-山中-Affleck の研究以来強くなっており、実験理論両面から強い関心をもたれており、平成 13 年度から 16 年度までの特定領域研究(B)(代表 田中秀数)が走るきっかけになったといえる。交換相互作用が強いために BIP-TENO において 1/2 プラトーやその他の磁化プラトーの観測のためには 50-100T 以上のメガガウス領域強磁場が必要となってくる。したがって、メガガウス領域の磁場の発生と磁化の精密測定にはパルス幅として 1 秒のオーダーを持つロングパルスマグネットを用いた実験が望まれている。

一方、spin-Peierls 系として知られる MEM(TCNQ)₂ は、T=18K 以下で 30T 付近に基底一重項である SP (Spin-Peierls) 相から M (magnetic) 相への磁気相転移がある。Spin-Peierls 転移は電子と格子系とが強く結合しているためショートパルス磁場の磁化測定では大きなヒステリシスが観測されることが知られている。一方、無機物の spin-Peierls 系 CuGeO₃ の磁化のヒステリシスはそれほど大きくなく、この違いの原因は明らかにはなっていない。これらの実験事実は様々なパルス幅の磁化測定が電子-格子系の結合に関する研究に重要となっていることを示している。

さらに榎研 (東工大) が最近開発した (DMET)₂FeBr₄ では、DMET 分子上の電子 (π 電子) と局在した Fe イオンの d 電子との間の π -d 相互作用が特に大きく、磁性半導体で GaAs:Mn が注目されているように、光制御による新規デバイスの材料開発という応用へ発展するポテンシャルを秘めている。また、純粋な有機磁性体ではないが、最近磁化過程のトンネル効果などが観測されている Mn₁₂ や V₁₅ などの金属錯体は、ナノ磁石として応用的にも注目されており、その磁化過程の強磁場精密測定が求められている。

4. まとめ

以上の例のように、有機物において強磁場で極めて興味深い現象が発見されており、強磁場実験の必要性が高まっている。

1) 磁気相転移を議論する場合には、磁化以外の熱力学的量 (例えば比熱) の測定も重要となっており、ロングパルス磁場での測定技術の開発が望まれる。アメリカのフロリダにある国立強磁場研究所の 45T ハイブリット磁石が運転している状況を考えるとロングパルス磁場は 60T 級以上でないとその独自性を発揮できないものと考えられる。

2) 有機物の場合、無機物に比べ格子が柔らかいという特徴があり、圧力下の磁化、抵抗測定等とは新奇物理開拓への重要な手段である。現在、ロスアラモス国立研究所や東大物性研でプラスチック圧力セルが開発されているが、より高圧での測定をめざす場合には、金属セルを用いる必要性が指摘されている。そのためには、ロングパルス磁場はショートパルス磁場に比べ、格段優位になると考えられる。

3) 最近、特に日本では強磁場 ESR が、量子スピン系の磁気相転移研究に成果をあげている。ところが有機物は一般的に無機物に比べ、単結晶が mm 以下と小さく、さらに構成分子が大きいため単位体積あたりのスピン数が小さい。そのため、msec オーダーのショートパルスの磁場では ESR 測定の感度が十分ではないというのが現状である。ロングパルス磁場は高周波ロックインなどの導入が容易で、より感度向上が期待され新しい強磁場 ESR 測定を切り開く可能性がある。ただ、ロングパルスになった場合その S/N 向

上の優位をいかすためには、光源など測定系の安定度が要求されるようになるという点を指摘しておきたい。

4) ESR 線幅は一般的に無機物より有機磁性体においてずっと狭いので、磁場の均一度が十分に高く、長いパルス幅が得られれば、さらなる分解能の向上が見込まれる。分解能が向上すると、有機磁性体においてスピンの広がりをもって分子上に分布していることを決定づける証拠を得られる可能性がある。さらに分解能の向上は、測定を有機物から生体物質に拡張する可能性を提供する。

5) 各種物理量の同時測定方法（例えば磁化測定と抵抗測定等）の開発も重要であり、そのためにはロングパルス磁場の特徴をいかせると考えられる。

6) また、量子効果が顕著になる極低温領域の実験も重要となっており、パルス磁場と希釈冷凍機と組みあわせた測定においては、ショートパルスよりロングパルスがより有利となっている。

参考文献

- [1] For a review, see T. Ishiguro and K. Yamaji, *Organic Superconductors* (Springer-Verlag, Berlin, 1990)
- [2] S. Uji, C. Terakura, T. Terashima, J. S. Brooks, S. Tanaka, S. Maki, and S. Nakatsuji, and J. Yamada, *Current Applied Physics*, **1** (2001) 77
- [3] S. Uji, H. Shinagawa, T. Terashima, T. Yakabe, Y. Terai, M. Tokumoto, A. Kobayashi, H. Tanaka, and H. Kobayashi, *Nature* **410** (2001) 908-910
- [4] L. Balicas, J. S. Brooks, K. Storr, S. Uji, M. Tokumoto, H. Kobayashi, A. Kobayashi, H. Akutsu, V. Barzykin, and L. P. Gor'kov, *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001) 067002
- [5] K. Katoh, Y. Hosokoshi, K. Inoue and T. Goto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **69** (2000) 1008.

IV 伝導電子系の強磁場物性

A メソスコピック系の超強磁場下電子状態

東京大学物性研究所

勝本信吾

メソスコピック系は、「無限の長さ」を持つ固体中に有限長を持ち込む点に特徴がある。固体中に磁気長などの有限長を持ち込む強磁場とは共通点があり、磁気長との競合により様々な興味深い現象が現れる。しかし、超強磁場となると、磁気長が非常に短くなるためメソスコピック系の特徴が出にくくなってしまう。メソスコピック系独特の効果を超強磁場下においても観測するためには、それこそナノスケールの系を用意する必要がある。本稿では、これまで強磁場領域でメソスコピック系にどのような興味深い物理現象が現れるかを眺め、ナノスケールの系、超強磁場の領域でどのような現象が期待されるかについて考えてみる。なお、実際問題として超強磁場の実験はまだほとんど行われておらず、勢い現状の話は中低磁場の実験が中心となるが、ご寛恕願いたい。また、メソスコピック系と言っても、超強磁場といえばやはり量子 Hall 効果がクローズアップされてしまう。本稿でももちろん中心となってしまいが、極力現象的な話にして、そちらについての実質的内容と興味のある話は、青木・高増両氏の記事に譲る。

1. はじめに

固体物理学は、元来は無限の原子数、電子数、広がりを持つ（熱力学極限）系の物理学である。これが、自発的対称性の破れとしての相転移など、多体問題独特の概念をもたらしている。これに対して、メソスコピック系の特徴は有限系であること、従って示量変数が有限であることにある。だからといって熱統計力学が適用不可能というわけではなく、それからのゆらぎが問題となる、また、様々な固体中の現象には特徴的な長さが現れるが、相転移などでマクロな長さに渡って秩序が発生する場合を除けば、通常それらの長さは試料のサイズよりも十分小さいとして良く、またそのようなマクロな長さが発生する場合でも、それらと試料長が関係する現象は、通常相転移そのものとは区別して扱われる¹。メソスコピック系の場合、現象に特徴的な長さと試料サイズがしばしば同程度となり、むしろその2つの長さがクロスオーバーする際に現れることから、物理の本質に迫ろうとする点に特徴がある。

一方、磁場を使った物性研究には様々な面があり、例えば時間反転対称性を破るという重要な変化をもたらすが、磁場の特徴の一つは、磁気長 $\ell = \sqrt{\hbar/eB}$ を固体中に持ち込むことである。ここで B は磁場であるから、磁気長は磁場によってユニバーサルに決定され、1 Tですでに 26 nm にまで縮み、100 T では 2.6 nm に達する。従って大抵の現象に対して、強い磁場を与えることで磁気長と特徴的な長さとをクロスオーバーさせることができる。これは磁場による物性研究の大きな強みである。

ところが、この共通性は、メソスコピック系と強磁場の組み合わせを考える上で、障害と

¹ 例えば、強磁性体の磁区と試料サイズの問題は、「技術磁化」などと呼ばれ、強磁性の本質とは別の問題とされる。

もなりうる。すなわち、「長さの比較」は2つの長さの間で行われるものであり、3つの長さが絡む現象は複雑なだけで本質を明確にする上で有効ではない。言い方を変えると、同じような役割を果たす2つの手法は2つを同時に使用する必要はない。

したがって、強磁場とメゾスコピック系の組み合わせが有効な場合として、次のようなケースが考えられる。

1. 磁気長と試料長のクロスオーバー自身が興味の対象となる場合。
2. 試料長が非常に小さく、強磁場～超強磁場でようやく磁気長が試料長まで短くなる場合。
3. 磁気長と試料長が質的に異なる役割を果たす場合。
4. 「磁気長を持ち込む」以外の点で磁場が重要になる場合。
5. 上とオーバーラップするが、スピン Zeeman 分裂が重要になる場合。

以下、以上のような場合について、現状と課題を考えてみたい。説明の都合により、他の強磁場物性物理学に比べると比較的弱いと考えられる磁場領域の話から始め、超強磁場での話に進むことにする。

2. 弱～強磁場でのメゾスコピック系

2.1 Aharonov-Bohm 効果と強磁場

まずは、磁気長と試料長の競合により強磁場でメゾスコピック効果が消えてしまう例、逆に磁場によってメゾスコピック効果が明瞭に見えてくる例を見てみよう。図1は、GaAlAs/GaAs ヘテロ接合 2次元電子系 (2-dimensional electron system、2DES)で作った微小リングの磁気抵抗に現れた Aharonov-Bohm(AB)効果による抵抗振動の様子を様々な中心磁場に対して示したものである。低磁場ではかなり大きな振幅の AB 振動が現れているが、高磁場になると、AB 振幅は急激に減衰して消滅してしまう。この現象は、以下に説明するように強磁場中の 2DES のエッジ状態の形成によっている。強磁場中の 2DES では、Landau 量子化の

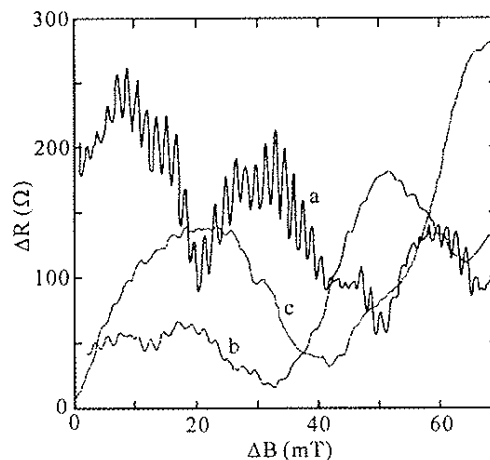


図 1. 2DES で作製した $2\ \mu\text{m}$ 径のリングの磁気抵抗。基準磁場は、a: 0 T、b: 0.29 T、c: 2.47 T。エッジ状態の形成と共に AB 振幅が急激に減衰する様子が見られる。文献[1]より。

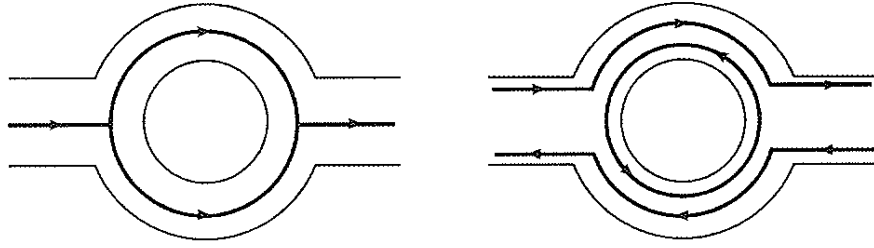


図 2 左：弱磁場の場合。電子波の干渉によって AB 振動が現れる。右：強磁場によってエッジ状態が形成されると AB 位相を感じるリング部分と伝導に寄与する部分が分離して、AB 振動が失われる。

ためにほとんどの磁場ではバルクの状態は非圧縮性となるが、試料の端では閉じ込めポテンシャルのために端に圧縮性のストライプ状態が現れ、エッジ状態と呼ばれている。エッジ状態の幅は ℓ 程度である一方、試料端からどの程度のところに行けるかは閉じ込めポテンシャルの形状に依存する。磁場が強くなって、AB リングの腕の幅 L_w よりも ℓ がずっと小さくなったとすると、図 2 のように、外部とつながったエッジ状態とリングの穴に巻きついたエッジ状態が分離してしまい、AB 効果が消失する [1]。

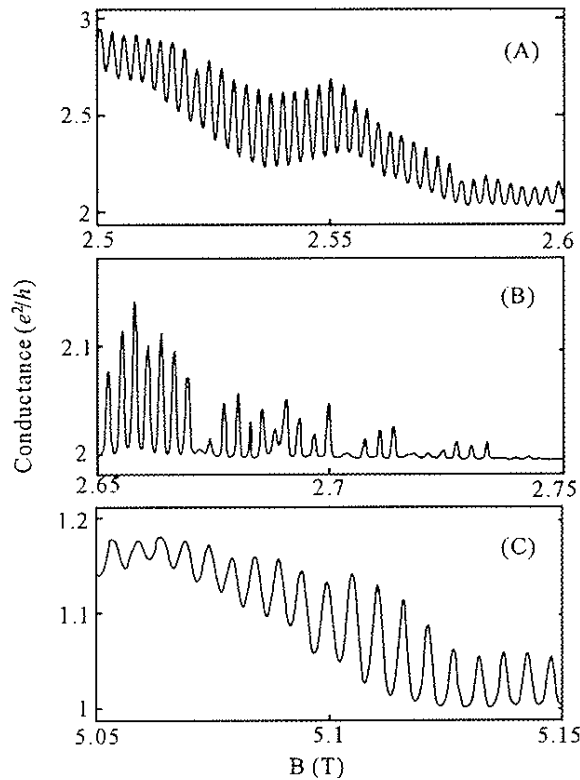


図 3 ドット状に閉じ込められた 2DES に強磁場をかけた系に現れた AB 振動。(A)～(C)はそれぞれ、出入り口のチャンネル数を変えたもの。特に(A)の場合、量子化伝導度の 5 割を超える振動がみられている。文献[2]より。

一方、エッジ状態はカイラリティのために後方散乱を受けにくく、量子コヒーレンスが長距離に亘って保たれる。これを用いると、コヒーレントな伝導を明瞭な形で見る事ができる。図 2 で言えば、中央のリング状のエッジ状態と外部電極部分のエッジ状態の間に、例えばトンネル伝導などを通して混じりが生じるように、ゲート電極を用いて出入り口を絞ってやれば良い。このようにして、明瞭な AB 効果を見た例が図 3 である。この実験の場合、中央のドットに穴を空けてさえいないが、円形の境界に張り付いたエッジ状態 (whispering gallery mode) によって量子化伝導度(e^2/h)の 50 %を超える大きな AB 振動が観測されている。

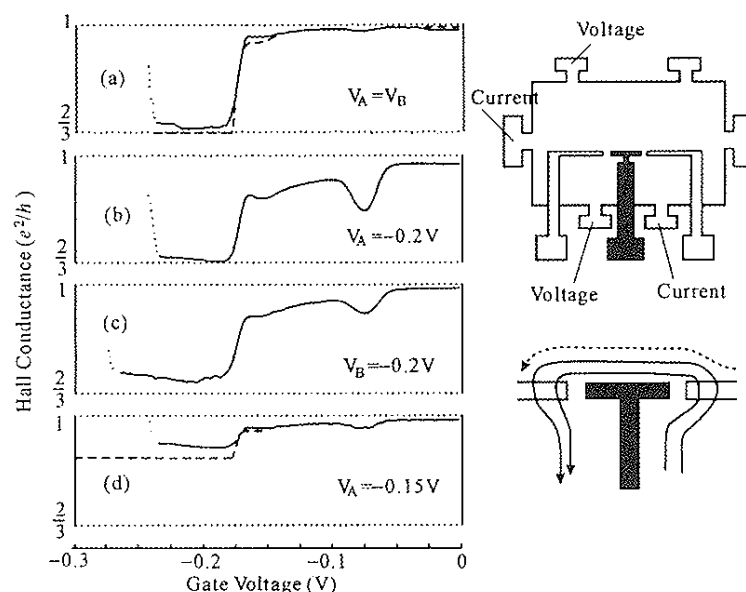


図 4 右上：試料の模式図。ホールバー型の試料に 2 つの QPC で仕切られた 2 つのホール電極が用意されている。右下：量子ホール状態でのエッジ状態の模式図。1/3 の分数量子エッジ状態があるとし、ゲートによってそのうち 2 つが選別されるため、2/3 のプラトーが現れる状態を示す。左側：それぞれ図中に記された条件でのホール伝導度のゲート電圧依存性。磁場は 7.8 T。文献[3]より。

2.2 量子ポイントコンタクトと強磁場

量子ポイントコンタクト (quantum point contact、QPC) は、メゾスコピック系の量子輸送の基礎となる Landauer 公式、伝導チャンネルといったものを明瞭に目に見える形で示した点で画期的なものであった。また、特に 2DES を使った QPC は、2 つの 2DES を結ぶ形をしているために、強磁場中の 2DES の特にエッジ状態を調べるのに有効である。特に、分数量子ホール状態でのエッジ状態については十分明確でないことも多く、今後も重要な研究手段である。ただし、エッジ付近では閉じ込めポテンシャルの形状により充填率そのものも空間変化してしまうことが様々な意味で問題である。例を図 4 に挙げる。この試料では、隣り合う電極を 2 個、本体と QPC で接続しておいている。充填率 $\nu = 1$ のプラトーにおいて、図 4 右上の図のような電極配置で Hall 伝導度を測定しながら QPC をピンチオフしていくと、図 4 左図のように、伝導度が 2/3 に落ちる様子が見られる。これは、図 4 右下図のように、エッジ状

態が $1/3$ の分数エッジ状態 3 つで形成されているとすると説明することができる [3]。ただし、この解釈も十分な決着がついているわけではない。分数量子 Hall エッジ状態は、電子間相互作用が重要な 1 次元的状态で、カイラリティのある朝永 Luttinger 流体であると言われている。その証左のひとつとして、QPC を介した $\nu = 1/3$ のエッジ状態間のトンネル伝導度の温度依存性が報告されたが、現在では否定的見解が強い。メゾスコピック系とは言えないが、2 次元電子基板のへき開面にトンネル障壁を再成長した構造で同様の実験が行われたが、これにも否定的な見方がでていようである。

2.3 中程度の磁場と量子コヒーレンス

やや弱い磁場(1~2 T)によって、試料中の電子のコヒーレンスが飛躍的に上昇することがしばしば起こる。これは先にも述べたように、エッジ状態がそれに近いカイラリティを持った状態が形成され、後方散乱が禁止されるためと考えられているが、十分理解されているわけではない。図 5 にその例を示す。ここでは、ゲートによる閉じ込めを使って、2DES から擬 1 次元的な伝導系をつくりだしているが、ゲートに微細加工を施すことでポテンシャルに空間変調を与えている。電子が理想的にコヒーレントに伝播すれば、それぞれのポテンシャル変調で散乱された波との干渉効果によって、ミニバンドが形成される。実際には超格子の「格子数」は有限なので、この超格子を通過する電子の透過率にはミニバンド中にも格子数に相当する振動が現れる $\nu_{\text{kcite}}[1e2]$ 。実際にこのような構造を作ってみると、零磁場ではほとんどの場合、期待するような実験結果を得る事ができない。ところが、1~2 T の磁場を与えるだけで図 5 のように期待通りの結果が得られる。文献 [5]において、Fibonacci 格子中の電子の伝播を調べた際にも、やはり 2T 程度の磁場を与えて初めてそれらしい結果を得る事ができた。

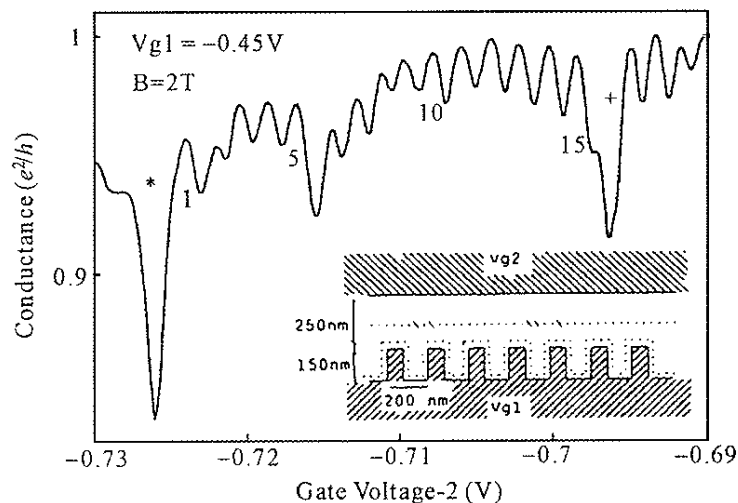


図 5 2DES に内挿図のような横方向超格子を形成する微細加工ゲートを乗せ、ポテンシャル変調のついた擬 1 次元電子系を作製してゲート電圧 (Fermi 準位) に対する電気伝導度を測定したもの。2T 程度の磁場がかかっている。伝導度の振動は、超格子による干渉、その結果としてのミニバンドの形成のため (図中に打たれた数字は振動の個数で、変調の個数とほぼ対応している)。磁場がない場合はこのような振動は現れない。文献[4]より。

2.4 量子ドット

磁場中の量子ドットの電子状態は、様々なレベルで興味深い多体問題の舞台を提供している。量子ドットの多体状態がバルクと異なる点はいろいろとあるが、1つは単電子のエネルギースペクトルが量子閉じ込めにより離散化すること、もう1つは、離散的な電荷の帯電効果によって電子数が固定されるということである。いずれも、はるか以前に久保が指摘していたことである。

後者は、クーロン閉塞、伝導度のクーロン振動という大きな効果として現れるが、まずは最も単純なキャパシタ近似によって大まかな説明ができる。したがって、キャパシタ近似による等間隔クーロン振動からのずれが量子ドット内の量子閉じ込めと電子間相互作用の効果を表すことになる。

量子ドット内の電子数が十分に多い場合は、バルクで開発された様々な手法に量子ドット特有の変更を加えて適用することができる。図6は、量子ドットのクーロン振動ピーク位置の磁場による変化を調べたもので、充填率の変化によりドット内のエッジ状態ストライプ数に変化して、ピーク位置が磁場に対して振動する様子が見られる(Fock-Darwin ダイアグラム)。最も簡単な取り扱いは平均場近似であるが、有限系であることを取り入れる必要がある。これも最も簡単に行うには、ストライプ間の相互作用をキャパシタンス近似で取り入れ、ドット全体の粒子数が自己無撞着になるように状態を決定する。このようにして実験と計算を比較したのが図6の下の方であり、ドット内の電子数が数10個以上のオーダーであれば、このように荒い近似でもかなり良く実験を説明できている[6]。

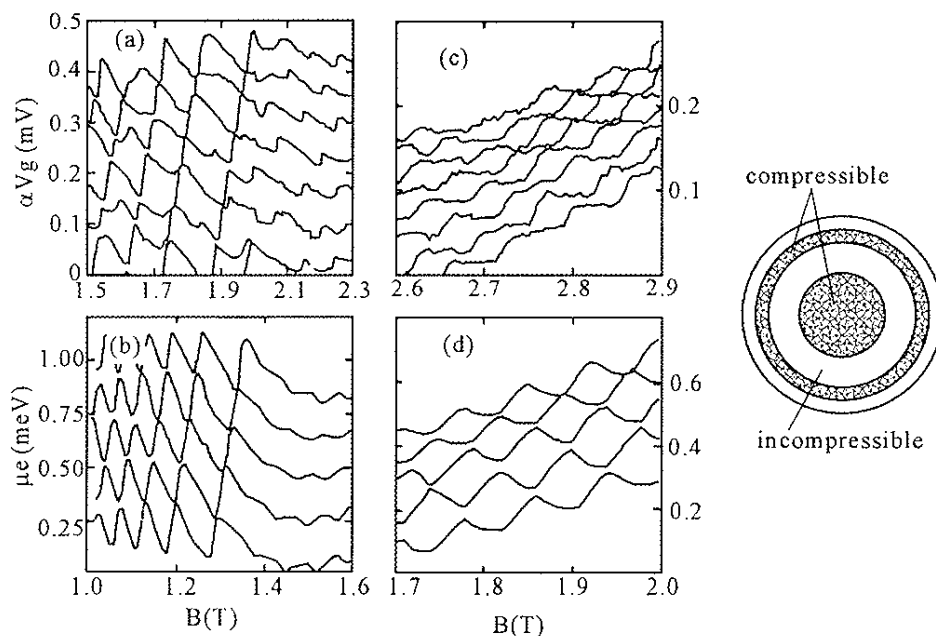


図6 磁場による2DESを使った量子ドットのクーロン振動ピークの変位。(a)、(c)は2つの磁場での実験結果。(b)、(d)は平均場近似(右図のように、圧縮・非圧縮ストライプ状態が現れる。)による計算結果。ストライプ間の相互作用はキャパシタンス近似を用いている。文献[6]より。

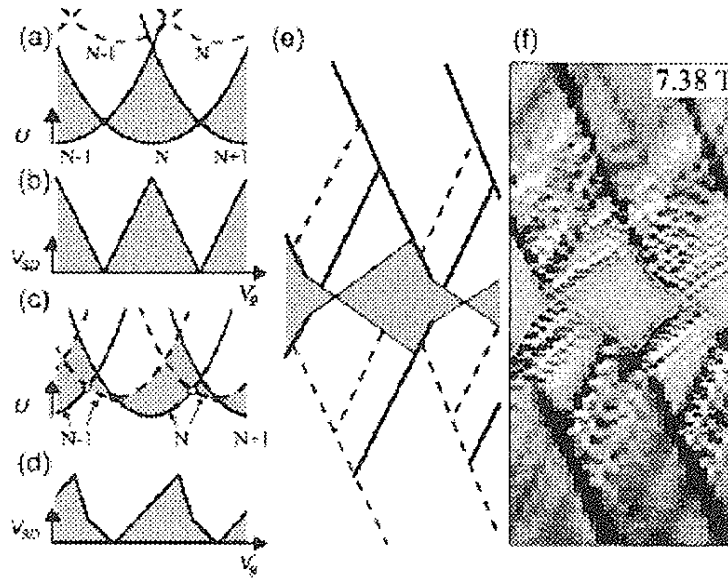


図 7 強磁場中の量子ドットのクーロンダイヤモンドに現れた、MDD のサイン。文献[8]より。実験結果(f)のようにクーロンダイヤモンドが変形する理由は、左の現象論的モデルで説明できる。通常の量子ドット系では、電子数 N の異なる状態に属するエネルギーがゲート電圧に対して(a)のようにパラボラとなるが、今の場合、MDD 状態が基底状態で、電荷分布の異なる破線で示したパラボラが存在している。磁場の変化により、破線のパラボラが(c)のように降りてくると、(d)あるいは(e)のようにクーロンダイヤモンドが変形する。

一方、電子数が 1~数個と非常に小さくなると、量子閉じ込めによる離散準位間隔が大きくなり、1 電子準位に電子を詰めていく、という原子状態アプローチが良い近似となる[7]。多体効果の影響はこの近似からのずれとして現れてくる。磁場によるスペクトル変化の Fock-Darwin ダイアグラムからのずれを用いて、直接相互作用、交換相互作用の影響を分離して求めることが行われている。更に、電子数がもう少し増えて 10 個 - 数 10 個程度になったとき、量子ドット内は電子相関が強い系であり、かつ磁場によりその相関の仕方が劇的に変化する。例えば、量子ドットを強磁場中に置くと量子 Hall 状態の出現に伴い、スピン Zeeman 分裂と電子相関の効果によって Maximum density droplet (MDD) と呼ばれる特異な状態が現れることがある。これはバルク 2DES では $\nu = 1$ にあたる状態であり、すべての電子がスピンを揃えて最低 Landau 準位に落ち込み、1 つの状態内では最も密に分布している。磁場により、電子間隔が詰まってクーロン反発の効果が大きくなると、電荷分布の異なる状態に移移する。これにより、図 7 のようなクーロンダイヤモンドの変形のような明瞭な効果が現れる [8]。

以上のように、量子ドット+強磁場の組み合わせは、多体効果を分析的にそして紛れなく明瞭にかつある程度までは人間がデザインした形で調べることができる、誠に理想的な実験場である。一部の分数量子 Hall 状態では BCS 状態が出現しているということも言われており、中性原子 BEC などでも調べられている有限個数のコヒーレント状態なども研究の視野に入ってきている。

2.5 量子ドット-AB(量子)リング複合系

多電子系の電子数が良い量子数となっていると考えられる量子ドットと、やはり多電子の波としての振舞いが重要である量子リングを組み合わせた系は、「量子」としての電子の状態を際立たせる点で非常に興味深い。ここでは、すでに見たように磁場によってコヒーレンスを高め、ABリングの腕の片方に量子ドットを埋め込んだ系の伝導を調べている。

量子ドットの反対側の腕をピンチオフすると、普通の量子ドット伝導と同じであるから、図8の下に見られるように普通のクーロン振動が現れる。ところが、反対側の腕を開けて伝導できるようにすると、上の図にあるように、クーロンピークが非対称になり、場所によってはディップに変化する。これは、離散準位を連続準位の中に埋め込んだ場合に見られる Fano 共鳴効果が現れたものである。この系の特徴は、前節の量子ドットと同じく、明瞭な情報が得られ、かつ磁場などの外部パラメーターによって詳細な制御が可能であることである。これにより、Fano 効果に対する新しい知見が得られつつある[10]。

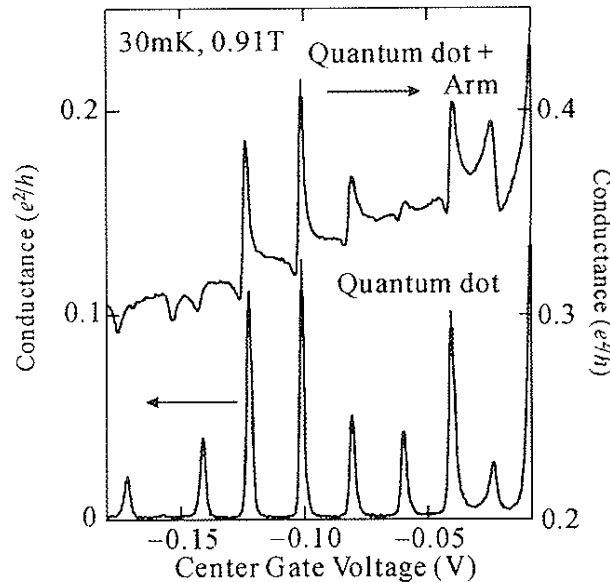


図8 ABリングに量子ドットを埋め込んだ系に現れた Fano 効果。下：量子ドットの反対側を回る腕をゲートでピンチオフした場合。通常のクーロン振動が観測される。上：両方の腕が伝導可能な場合。クーロンピークが非対称に変形し、ピーク位置によってはディップに変化している。文献[10]より。

3. 超強磁場下でのナノスケール系

冒頭に、超強磁場下でメゾスコピック系の研究をする上でのモチベーションを幾つか挙げたが、やはり最も自然なものは2番目のものであろう。すなわち、数 nm 程度の閉じ込めを行える系を作り出せば、このような系に対して大きな影響を持ちうる磁場は必然的に超強磁場にならざるを得ない。このようなナノスケールの系においては、これまでのメゾスコピック系と比べて圧倒的に量子コヒーレンスが高く、コヒーレンス・デコヒーレンスの狭間で

独特の物理を創り出してきたこれまでの研究に比べて、全くの量子論の世界に踏み込むことになる。もちろんそこでも Landauer 公式など、これまでに得られた概念の多くが有用であることはすでに STM の実験などから明らかにされている。

3.1 ナノスケール系

これまでに得られている実験可能なナノスケールの系はかなりの数に上っているが、やはり代表格はカーボンナノチューブであろう。単壁で真っ直ぐなナノチューブに電極をとって伝導が測定できれば、例えば、チューブに沿った磁場で金属絶縁体転移を周期的に起こすなどの劇的な効果が期待されている。ゼオライトへの埋め込みなどの手法が得られつつある[11]ことから、これも決して実現不可能なことではない。

このように、半ばは天然にあるナノスケール系を使い、電流端子やゲートなどを人工的なもので作るという手法は、 C_{60} でも試みられている。 C_{60} は天然の非常に綺麗な量子ドットであり、Schön らの実験のように単分子に巨大な電場をかけることができるとするならば、単電子トランジスタ構造を作れば非常に自由度が大きくクリーンな量子系が作れる。実際にこのような構造は作られており[12]、 C_{60} の分子振動を反映したクーロンダイヤモンドなどが観測されている。当然磁場の影響も調べたいところであるが、もちろん、超強磁場を必要とするであろう。

3.2 量子ドット・量子リング

物質の堆積には分子線エピタキシーなどを用いるが、その後の微小構造の形成は自然に任せる、というのが自己形成構造であり、現在のリソグラフィの限界を超えて nm オーダーの量子ドットなどを形成することが可能である。さらに、成長条件の工夫により、リング形状のドットを作製することもでき、量子リングと呼ばれている。量子リングはメゾスコピック AB リングと、ナノチューブあるいは本物の原子の間に位置するもので、離散準位（原子では原子スペクトル、AB リングで言えば永久電流）がリング直径によって定まる特別な構造を持つが、磁場に対する応答は本質的には Fock-Darwin のものとは変わらない。しかし、コヒーレンスはメゾスコピック AB リングとは比べ物にならず高いので詳細な実験が可能になれば明瞭な実験結果を得る事ができるはずである。

図 9 は GaAs 上に自己形成により作った InAs 量子リングの遠赤外分光の結果である[13]。状態の最初のクロスオーバーで 8T 近くになっている。したがって、現在 AB リングで行われているようなより高次の状態での実験を行うためにはやはり超強磁場を必要とする。

以上のようなナノスケール系+強磁場で期待されていることは、エネルギー準位の離散性とカイラリティの発生によって量子コヒーレンスが非常に高くなることで、これは量子計算機の候補としても有望ではないかとさえ言われている²。上に挙げたアイデアはいずれも非常

² 詳しく調べたわけではないが、これに関する試算は今のところ出版されていないようである。現在提案されている量子 Hall 量子計算機は基本的には核スピンを qubit に使用する。

に精密な測定を必要とするものであり、実験技術としては超強磁場下での測定の精密化が絶対の前提条件である。この方向の実験技術の進展を望みたい。

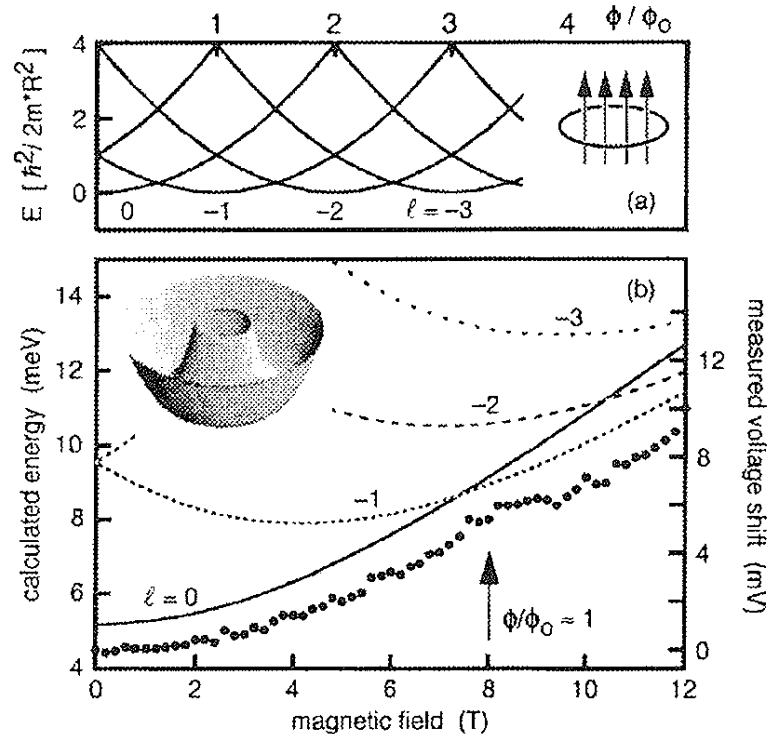


図 9 遠赤外分光と容量測定により得られた、自己形成 InAs 量子リングのエネルギースペクトル。計算曲線は、Fock-Darwin 曲線と実質的に同じである（数学的にはもちろん異なっている）が、図 6 などと比べて、磁場のスケールが全く異なっていることに注意。文献 13 より。

参考文献

1. G. Timp, in *Mesoscopic Phenomena in Solids*, Eds. B. L. Altshuler, P. A. Lee and R. A. Webb, p.273 (North Holland, 1991).
2. B. J. van Wees, L. P. Kouwenhoven, C. J. P. M. Harmans, J. G. Williamson, C. E. Timmering, M. E. I. Broekaart, C. T. Foxon and J. J. Harris, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2523 (1989).
3. L. P. Kouwenhoven, B. J. van Wees, N. C. van der Vaart, C. J. P. M. Harmans, C. E. Timmering and C. T. Foxon, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 685 (1990).
4. L. P. Kouwenhoven, F. W. J. Hekking, B. J. van Wees, C. J. P. M. Harmans, C. E. Timmering and C. T. Foxon, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 361 (1990).
5. S. Katsumoto, N. Sano and S. Kobayashi, *Solid State Commun.* **85**, 223 (1993).
6. P. L. McEuen, E. B. Foxman, J. Kinaret, U. Meirav, M. A. Kastner, N. S. Wingreen and S. J. Wind, *Phys. Rev. B* **45**, 11419 (1992).
7. S. Tarucha, D. G. Austing, T. Honda, R. J. van der Hage and L. P. Kouwenhoven, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3613 (1996).

8. T. H. Oosterkamp,¹ J. W. Janssen,¹ L. P. Kouwenhoven,¹ D. G. Austing, T. Honda and S. Tarucha, Phys. Rev. Lett. **82**, 2931 (1999).
9. A. Lorke, R. J. Luyken, A. O. Govorov, J. P. Kotthaus, J. M. Garcia and P. M. Petroff, Phys. Rev. Lett. **84**, 2223.
10. K. Kobayashi, H. Aikawa, S. Katsumoto and Y. Iye, submitted to Phys. Rev. Lett.
11. Z. K. Tang et al., Science **292**, 2462 (2001).
12. N. Park et al., Nature **407**, 57 (2000).
13. A. Lorke et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 2223 (2001).

B 強磁場下のブロッホ電子系

東京大学物性研究所
長田俊人

1. ブロッホ電子系（格子系）の強磁場物性における課題

ブロッホ電子系とは、結晶中の伝導電子など、周期ポテンシャル中でブロッホ状態を形成している電子系のことである。固体結晶の研究を強磁場下で行えば、全て強磁場中ブロッホ電子の問題になってしまうため、この問題は強磁場物性の最も基礎的な問題の1つであると言える。ここでは特に周期ポテンシャルの効果が強調された現象に限って議論する。

ブロッホ電子系として特に興味深いのは周期ポテンシャルの振幅が特定方向に著しく大きい低次元（異方的）ブロッホ電子系である。具体的には周期ポテンシャルの壁で平行な伝導鎖に仕切られた擬1次元電子系（針状結晶）や、平行な伝導層に仕切られた擬2次元電子系（層状結晶）などで、分子性結晶などの「天然の」低次元導体、周期ポテンシャルを人工的に導入した半導体超構造などが現実の対象となる。

一様磁場は電子系に基本的に一軸的な対称性を導入しようとするが、これと電子系の周期性との相性は良くなく、ある種のフラストレートした状態を作る。従ってブロッホ電子系に磁場を加えると、電子系と周期的空間構造のトポロジ的整合性の結果、有名な Hofstadter バタフライ等、通常の電子系では見られない現象が現れる。十分な強磁場極限では、電子系のランダウ量子化の占有率（フィリング）に加え、電子軌道サイズと格子面間隔の比や、単位胞を貫く磁束の磁束量子に対する比などが、強磁場中の電子物性を決めるパラメータとなる。

強磁場下のブロッホ電子系の研究主題として、以下のものが考えられるだろう。

①磁気貫通

強磁場下で電子が軌道運動すると、周期ポテンシャルによるブラッグ反射が不完全になり磁気貫通が生ずる。概念的に新しいものではないが、近年、磁気貫通の研究に理想的なバンド構造を持つ BEDT-TTF 系擬2次元有機導体が合成され、精力的に研究がなされている。磁気抵抗の Stark 干渉のように磁気貫通に現れる量子干渉効果については未だ理解されていない点も多い。実験技術的には、強磁場・極低温における精密磁化／電気伝導測定が必要である。

②磁気整合振動

磁場挿引時に磁気抵抗に現れる振動構造で、周期ポテンシャルと強磁場下でその上を動く電子の（磁気貫通）軌道との幾何学的整合性の結果生ずるものである。2次元電子系に人工的な1次元周期ポテンシャルを導入したラテラル超格子の Weiss 振動や、電子が存在しない「穴」領域（アンチドット）を人工的に周期配列した2次元アンチドット格子系の整合振動などがその例である。半導体超構造の場合、電子のサイクロトロン軌道がサブミクロン程度の人工周期と整合するために必要な磁場は1 T 以下のオーダーであるため、これらの現象は通常パルス強磁場実験の対象とはならな

い。しかし後述するように複合フェルミオンの整合振動の観測には強磁場が必要になる。

③角度依存磁気抵抗振動

磁場方位を変えたときに磁気抵抗に現れる振動構造で、擬 1 次元導体でみられる Lebed 共鳴・Danner 振動・第 3 角度効果、擬 2 次元導体でみられる Yamaji 振動など多様である。これらは通常フェルミ面の半古典的形狀効果として説明されているが、本質的には隣接格子面間のトンネル強度が干渉効果で変動することに起因する。強磁場下では量子効果が顕著となり、ある方向で電子軌道が格子面間隔以下になったり、周期ポテンシャルの単位胞を貫く磁束が磁束量子の整数倍になるような状況になると、半古典論から外れた振舞いを示すようになると理論的に予想されている。これを実験的に観測しようとする場合、低次元有機導体を対象とすると 1000T もの超強磁場が必要となるため現実的ではない。パルス強磁場領域で観測するためには、半導体超格子のような人工低次元系で実験を行う必要がある。

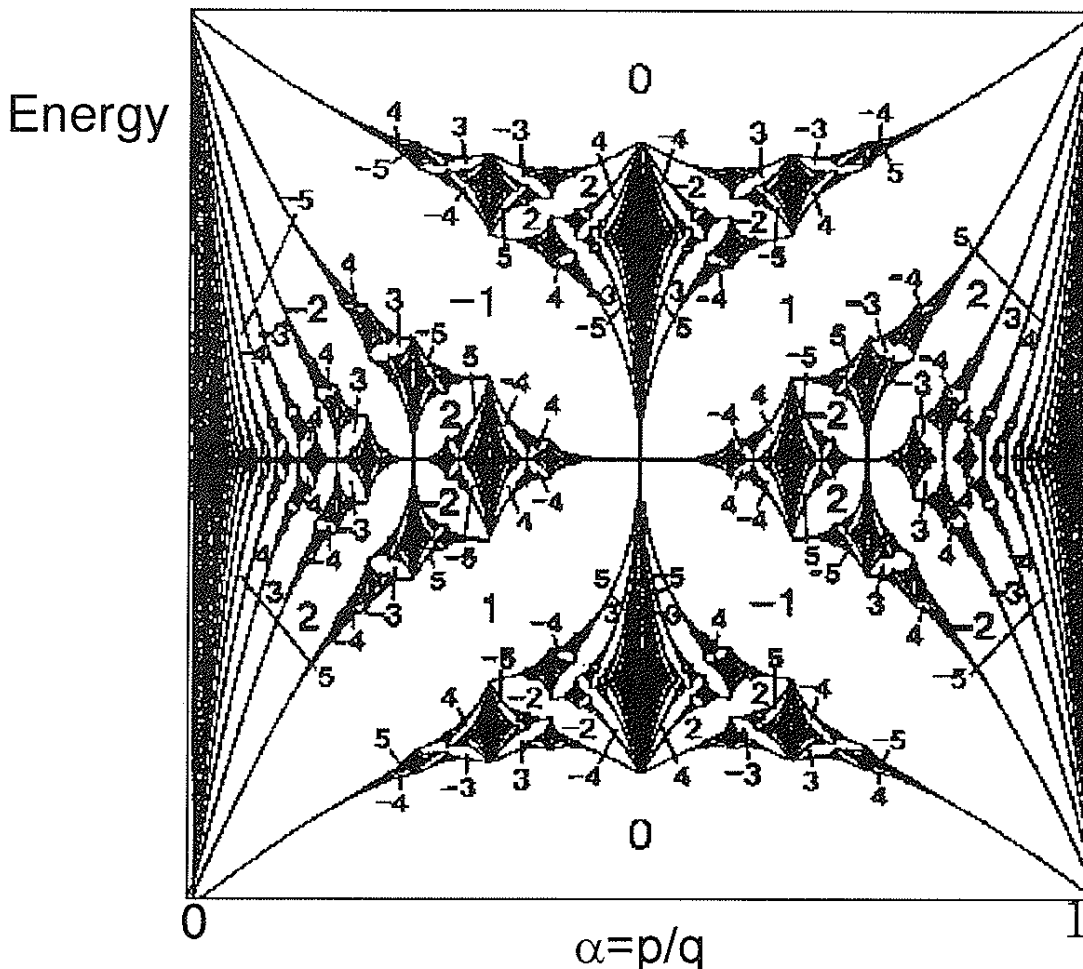


図 1 Hofstadter のバタフライ・ダイアグラム。2 次元タイトバインディングバンド上のプロット電子のエネルギー準位の磁場依存性。横軸は磁場で、単位胞を貫く磁束を磁束量子を単位に測ったもの。縦軸はエネルギー。挿入した数字は各ギャップにおけるホール伝導度の量子化値。

④Hofstadter 準位構造と量子ホール効果

正方格子上の 2 次元ブロッホ電子系に垂直に強磁場を印加した場合のエネルギー準位は、磁場によるランダウ量子化と周期ポテンシャルによるバンド量子化の競合の結果、単位胞を貫く磁束と磁束量子の整合性に依存して複雑なスペクトルとなる。バンド間結合を無視したタイト・バインディング近似で 2 次元ブロッホ電子系を表現した場合、このエネルギー準位の磁場依存性が、Hofstadter のバタフライ・ダイアグラムと呼ばれるフラクタル図形となることは良く知られている。これは磁場に対し周期的であり、その周期は単位胞を貫く磁束が磁束量子に一致する磁場となる。この図の各エネルギーギャップが（接する局在領域に）フェルミ準位があるときの量子ホール伝導度の値で指数づけできることも Thouless・甲元らにより調べられている。

現実の 2 次元ブロッホ電子系はタイト・バインディング近似で表現できるとは限らないが、磁気抵抗は微細構造を持った複雑な Shubnikov-de Haas 振動を示し、対応するホール効果も単調な階段的变化とは異なる複雑な量子ホール効果を示すはずである。

近年、Max-Planck 研究所の Albrecht らは、半導体 2 次元電子系に弱い周期ポテンシャル（周期 100nm）を人工的に導入したラテラル超格子を用いて、これを探索する一連の実験を行った。ポテンシャル周期が大きい磁場としては 1 T 以下、またエネルギー分離が小さいため温度は極低温(50mK)で実験を行っている。これに対し強磁場での実験は、第 1 周期内の実験ではなくなる反面、周期ポテンシャルを強くして、エネルギー分離を大きくし、最低ランダウ準位（Hofstadter 準位の集合体）のみが占有される量子極限状態に持ちこめるという利点を持つ。ただしこの場合、強磁場において僅かな磁場変化に伴う変化（例えば 4.0 T から 4.01 T までの磁場領域での変化）を高精度に測定できることが必要である。

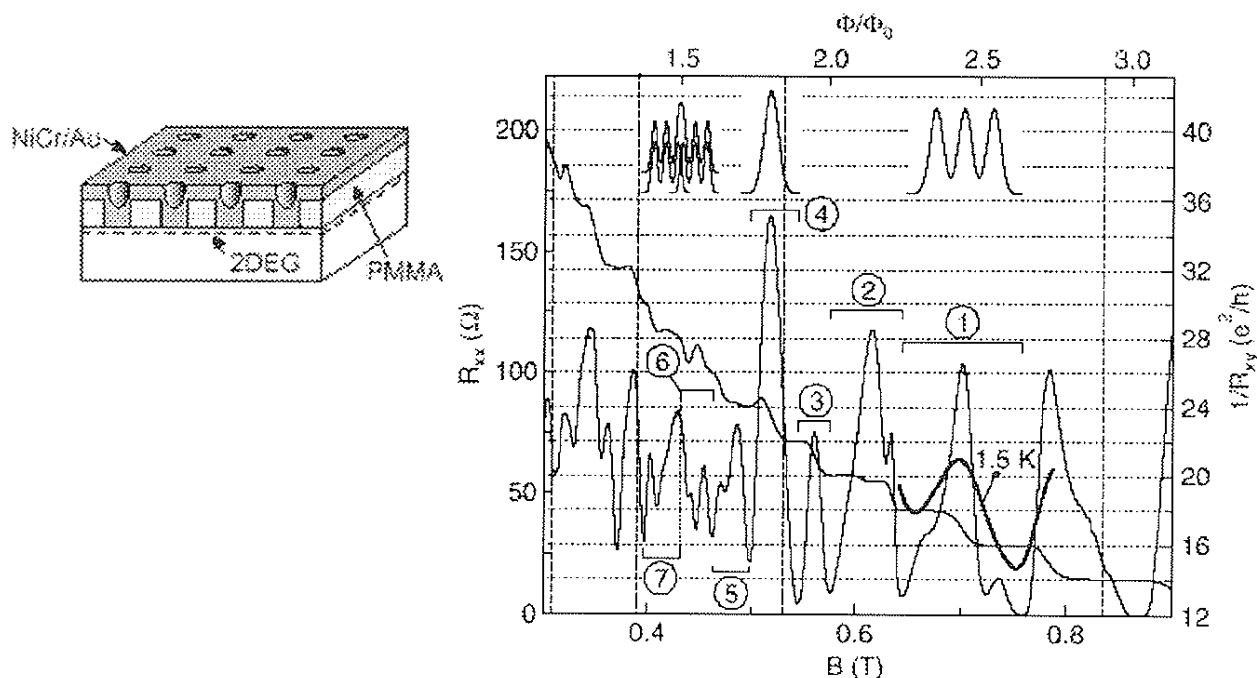


図 2 半導体ラテラル超格子と Hofstadter 準位に対応する Shubnikov-de Haas 効果の微細構造と量子ホール効果。[C. Albrecht et al., Phys. Rev. Lett. 86, 147 (2001).]

⑥3次元量子ホール効果

2次元ブロッホ電子系の Hofstadter 問題は3次元に拡張することもできる。適当な条件の3次元ブロッホ電子系でも、強磁場下で2次元系と同様な複雑なギャップ配列を持ったスペクトルを示すことがある。例えば擬1次元導体において十分な強磁場を1次元軸に直交する平面内で回転させた場合、バンド端のスペクトルの角度依存性は、Hofstadter バタフライと酷似したものとなる。こうした磁場中3次元ブロッホ電子系においてフェルミ準位がギャップ（近傍の局在領域）にある場合に伝導度テンソルの各要素が量子化されることは Halperin によって指摘された。具体的な傾斜磁場下3次元ブロッホ電子系について、Hofstadter 準位間の各ギャップにおける伝導度要素の量子化値を求めることもなされている。関連する現実の問題の例としては、(TMTSF)₂X 系擬1次元有機導体の磁場誘起スピン密度波状態があげられる。

3次元系で量子ホール効果を示す系としては、半導体超格子や層状物質など多層系も考えられる。こちらは量子ホール効果としては本質的には2次元であるが、各層のエッジ状態が結合して試料をリボン状に取り巻く特異な2次元電子系であるカイラル表面状態が形成される点が特徴的である。

⑦分数量子ホール効果・複合粒子など

分数量子ホール領域において周期ポテンシャルの影響を調べた実験としては、フィリング 1/2 近傍での複合粒子（コンポジットフェルミオン）の磁気整合効果を見た例がある。複合粒子にとってのゼロ磁場（例えばフィリング 1/2 の磁場）はかなりの強磁場になるため、強磁場において僅かな磁場変化に伴う変化を高精度に測定できるならばパルス磁場は有用である。

分数量子ホール状態自体も磁束量子化と密接に関係した状態であるため、格子と磁束との整合性が重要となるブロッホ電子系では大幅に変調される可能性がある。しかし周期ポテンシャルが導入された系の分数量子ホール状態に関する実験的研究は殆ど行われていない。

多層系の分数量子ホール状態のカイラル表面状態は非フェルミ流体になると議論されており、その層間伝導への寄与は冪乗的温度依存性になると予想されているが、実験的研究はなされていないようである。これは分数量子ホール効果を示す良質な半導体超格子が作製できていないためであると思われる。

2. 長時間パルス強磁場との整合性

一般論として、より長時間のパルス強磁場が実現すれば、より定常磁場に近い計測環境で実験が行えるようになるため、実験の多様化、信頼性・精度の向上につながることは言うまでもない。パルス磁場下の実験の最大の障害である誘導起電力と電磁雑音、それに誘起される試料や周辺部の温度上昇の問題、パルス磁場下の実験を制限する測定時間の問題等、パルスの長時間化によって緩和される。その結果、極低温での実験・高圧での実験・低雑音実験・高信頼性実験が可能になるであろう。その意味で新しい長時間パルス強磁場施設が物性物理学の進歩に貢献できることは間違いない。

実験のバラエティについては、現状の 60~80T 級の非破壊パルス強磁場（パルス幅：数~100 ミリ秒）で実行不可能な実験で、これを 1 秒に伸ばした結果はじめて可能になる実験というものは、なかなか見

当たらない。例えば、ブロッホ電子系の研究には磁場方位依存性の実験が重要であるが、磁場の頂上のフラット部を利用して試料を高速回転させるには、パルス幅 1 秒（平坦部 10 ミリ秒程度）ではまだ短すぎる。従って、現状の非破壊パルス強磁場実験を洗練して高精度化・高信頼性化を図ることが主眼となると思われる。

今回想定しているメインの長時間パルス強磁場装置は、ピーク値 60 T、パルス幅 1 秒程度のもので、米国ロスアラモス研究所の世界最大の長時間パルス強磁場に準ずるものであり、技術的・経済的に多大の投資を必要とする。問題はこの投資に見合う成果が得られるかどうかであり、これを良く検討した上で新しい長時間パルス磁場の仕様を決めていかねばならないであろう。

V. 量子ホール効果

A 量子ホール効果の実験

物質材料研究機構 ナノマテリアル研究所
高増 正

1. 量子ホール効果実験と強磁場

量子ホール効果研究は、強磁場の発展とともに進んできた。整数量子ホール効果が発見された当時、一般に利用可能な磁場は数 T 以下の NbTi 超伝導磁石であった。整数量子ホール効果実現には、電子の作るランダウ準位間の間隔がランダウ準位の幅や電子の熱エネルギーより十分大きい必要がある。当時の半導体中で実現されていた電子系の易動度では、この条件を満たすには 10T 以上の大きな磁場が必要とされた。半導体製造技術の発達と共に、ヘテロ界面電子の易動度は短期間に飛躍的に向上し、その結果数 T の磁場と希釈冷凍機の組み合わせで多くの量子ホール効果に関する現象が研究できるようになった。現在、ヘテロ構造系の試料における量子ホール効果では、電子密度を小さくした方が易動度が高くなるため、低磁場、低温での実験が主流となっている。しかし、分数量子ホール効果におけるラフリン状態が、ランダウ準位フィリングが十分小さくなるとウィグナーの電子固体等の別の相に崩壊するか、といった研究は重要でありながら、同一試料で量子極限を含む幅広いフィリングに対しては普通の超伝導磁石では実現できない高磁場が必要であるために十分に行われていないのが現状である。また、最近 GaAs 系の試料以外に対してもきれいな量子ホール効果が観測されるようになってきているが、こうした試料ではいまだに低磁場での研究に十分な高易動度が得られていないため、強磁場施設が必須となる。

こうした現状を踏まえると、定常的に利用できる超強磁場施設が整備されることが量子ホール効果研究の分野においても焦眉の急務と考えられる。

2. パルス磁場を用いた量子ホール効果研究

パルス強磁場を用いた量子ホール効果研究について考えてみると、これまで数えるほどしか研究が行われていない。大型超伝導磁石やハイブリッド磁石等によっては多くの研究成果が生まれているこの分野で手軽に強い磁場を得られるパルスマグネットの使用がないのは驚くべき事実である。また、パルス磁石を用いた研究を行っている 4 つのグループがいずれもパルスマグネット施設に属するグループであることも特筆すべき特徴である。これは、量子ホール効果研究においては、以下のような技術的な問題が存在するため測定技術開発なしには容易に測定が行えないという事実に起因すると思われる。

2.1 パルス磁場計測の問題点(1) — 時定数

量子ホール効果を示す 2 次元電子系では、電流源からみた試料の抵抗は、ほぼホール抵抗を示す。量子ホール効果ではこのホール抵抗は試料の形状等によらずフィリングの逆数 ($1/\nu$) 量子化抵抗値 (h/e^2) で表わされ、分数量子ホール領域では $100\text{k}\Omega$ のオーダーになる。一方、電気伝導度計測には、有限の浮遊容量を持つ測定系が必要になる。この容量は、場合により異なるが、 100 から 1000pF 程度と見積もられる。一般的な 50Ω 同軸ケーブルの場合、 100pF/m が典型的な値となる。試料とこの浮遊容量から見積もられる時定数は、 10 から $100\mu\text{sec}$ となり、これは典型的な小型パルスマグネットの時定数と 2 桁程度しか変わらない。量子ホール効果のように、磁場に対して速い振動を示す現象を精密に測定するためには、測定系の時定数は、磁場パルスに比べて十分に小さい必要があるが通常のパルスマグネットではこの条件が満たされていないので、浮遊容量に電流が流入、放出する過渡電流の効果が邪魔をすることが明らかである。このため、パルスマグネットによる量子ホール効果研究に用いるには、この時定数の問題を避けるための工夫が必要である。ベルギーのグループでは、測定系の時定数を加味して測定データを解析することによりシュブニコフ・ドハース振動の解析を行う方法で量子ホール効果の測定を行っている [1]。

しかし、より精密な測定に対しては、こうした方法は多くの誤差を生むため比較的大雑把な振動構造の把握等にのみ有効だと考えられる。物性研究所強磁場施設では、アクティブ・フィードバック回路を用いて動的に浮遊容量をキャンセルすることで、計測に含まれる時定数の影響を除くことを試みている [2]。同様の方法はより高速のフィードバック回路を用いることで破壊型パルス磁石 (パルス幅約 $10\mu\text{sec}$) に対しても有効であったから、この手法を一般化・精密化することでパルス磁場における時定数の問題は解決できるはずだと考えられる。

2.2 パルス磁場計測の問題点(2) — 誘導起電力

一方、パルス磁場のような変動磁場では、原理的に避けられない問題もある。磁場変動に伴う渦電流の発生である。一般的な超伝導磁石では、磁場掃引は 1T あたり数分をかける。この場合、*は 1 平方mmあたり $1\mu\text{V}$ 程度になる。一方、通常的小型パルスマグネットでは、この値は mV のオーダーになるため、電子エネルギーとしてランダウ準位間エネルギーに相当し、多くの量子ホール効果関連の現象を隠蔽する可能性がある。この点が量子ホール系が他の系と決定的に異なる点である。量子ホール効果は $\sigma_{xx}=0$ が成り立つ点であるが、コルビノ (円板) 型の試料を考えて見よう。このジオメトリで $\sigma_{xx}=0$ の場合、径方向には電流が流れず、抵抗は無限大に見える。ところが、磁場が変動すると試料の円周方向に誘導起電力が生じるため、試料内の電場方向は径方向からずれる。このずれを θ とすると、試料の内径-外径間には、合成電場の絶対値を E として $(E/R_H \sin \theta)$ の電流が流れるため σ_{xx} が有限になったように見える。試料がコルビノ型ではなく、ホールバー型の場合には、電場の変化はより複雑になり、何を測定しているかを見極めるのはさらに難しくなる。我々は、パルス磁場下でのブレークダウン測定を行っていたが、この際には、電流変化をパルス磁場頂点のもっとも磁場変化の少ない位置に限定することによって測定結果の正当性を確かめる必要があった。現実には、 100T/sec 程度が磁場変化の上限値でこれ以上になると正しい伝導度の測定が難しくなる。

2.3 パルス磁場計測の問題点(3) — 低温条件

量子ホール効果のような電子相関が支配する系では、磁場が強くさえあればよいのではない。 B/T （正確には $\hbar \omega_c / k_B T$ ）が大きくなければならない。一般に、分数量子ホール効果研究では、10mK 程度の低温を希釈冷凍機によって実現し、これを 10T 程度の磁場と組み合わせで用いる。この場合、 B/T は 1000T/K になる。一方、100T の磁場をパルスで生み出すと、これに伴い温度を 100mK 以下にしない限り同等の条件は得られないことになる。現在、パルス磁場中で希釈冷凍機が使用可能な施設は、我々の知る限り 4 箇所程度に過ぎない。しかも、短時間パルス磁場では、磁場発生中に 100mK 以下の温度が保たれる保障がない。こうした状況を考えると半導体成長技術によってなるべく小さな電子密度の試料を使用し、超伝導磁石による実験を試みるのが現在の状況では研究への近道となる。

3. 共同利用パルス強磁場に期待されるもの

前項までに述べたように、量子ホール効果研究をパルス磁場下で行うには、多くの技術的問題点を解決する必要がある。そのためには、電気伝導度測定の高度化、標準化、パルス磁場中での極低温技術の標準化等が必要である。こうした個別技術は、既に日本の強磁場施設で実現されているものがほとんどであるが、一般ユーザーに使い勝手のよいものとはなっていない。例えば、パルス磁場中での試料温度の上昇には試料の大きさ、形状、試料まわりの熱環境、パルス磁場形状等の多くの要素によって決まる。こうした事をデータベース化し、適切な標準化が行われなければ、パルス磁場下の測定は一部の専門家のみのものに留まる。こうした計測技術の高度化、標準化は地道な仕事であるから、ユーザー組織により強くバックアップされた共同利用施設でのみ実現可能なものだと考えられる。現在おもに使用されている 10msec 程度のパルス幅を持つ磁石に対して、こうした計測技術の高度化を行うのはたやすい事ではない。その点、磁場パルスが 1 秒程度になれば、すべての条件が緩和される。こうした意味で、1 秒程度のロングパルス磁石の実現には、量子ホール効果研究の観点からも大いに期待したい。

B 量子ホール効果の理論

東京大学大学院理学系研究科
青木秀夫

1. はじめに

量子ホール効果[3-7]は、強磁場物性物理の最も顕著なものであるとともに、物性物理学全体の中でも、磁性や超伝導に並ぶ程の分野とってよかろう。発見から 20 年もたつが、面白いことが出尽くすどころか、毎年のように思いがけないことが輩出している。半導体物理学国際会議や半導体における強磁場国際会議においても、量子ホール効果は最大のテーマの一つであり続けている。

このような状況に対して、翻って我国をみると、量子ホール効果の実験分野では外国、特にアメリカにかなりの遅れをとっていることは否めない。一つの大きな原因としては、良質の試料が我国ではあまり作成されていないことが挙げられるが、ここで長時間パルス磁場が得られれば大きな動機付けとなろう。このときに、理論的にどのようなことが期待できるであろうか。実験の部をうけて、ここでは理論的な従来の発展と、将来の課題について述べるが、特に長時間パルスで初めて実現できるものが多々出現することが予想される。

2. 現在の発展

2.1 電子相関の強磁場による制御

先ず、聞き慣れないキーワードから出発するならば、強磁場をかけた 2 次元電子系である量子ホール系、およびその周辺の量子多体相では、磁場を強くすることにより、「電子相関」の発現の仕方を操作することができる、と捉えられる。相関電子系としてすぐに思い浮かぶのは、酸化物高温超伝導体であるが、分数量子ホール系はそれに勝るとも劣らない、というか「究極の」相関電子系である。理由は明らかで、普通の相関電子系では、相関の強さの指標は（電子間相互作用/バンド幅）という無次元量であるのに対して、強磁場中の量子ホール系では、ランダウ量子化のためにバンド幅は言わばゼロであり、荒い言い方をすれば（電子間相互作用/バンド幅） $= \infty$ である（図 1）。唯一のパラメータはランダウ準位占有率であり、これを動かすと、ラフリンの量子液体、電子結晶、金属状態、縞(stripe)など、多彩な状態が出現する。勿論、磁場の大きさは有限であるから、現実には隣り合うランダウ準位の効果等があるが、この混成の仕方もサイクロトロン・エネルギー($\hbar \omega_c \propto$ 磁場)で制御される。相関電子系におけるごく最近の流れは、「相関設計」、つまり強相関物質において物質設計をすることにより、面白い物性を発現させる、というものである。分数量子ホール系もこの意味で、様々な物質に超強磁場をかけることにより、それぞれの物質に応じた相関を発現させられる格好の舞台となろう。事実、最近ではスピン自由度、高いランダウ準位、2 層系、多層

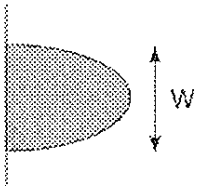
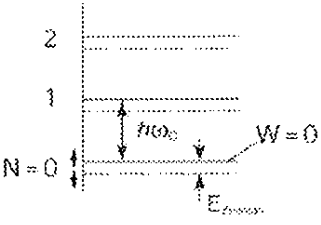
Usual electron correlation	band filling
 $\frac{U}{W} = \text{large}$ $\rightarrow$ strong correlation	$n=1$ Mott transition $n \neq 1$ Superconductivity Stripe ...
FQH system	
 $\frac{U}{W} = \infty$ $\frac{U}{\hbar\omega_c}, \frac{U}{E_{\text{Landau}}}$: controllable	$\nu = \frac{1}{\text{odd}}$ Laughlin's QL $\nu = \frac{*}{\text{even}}$ (marginal?) FL BCS state? stripe ...

図 1

系、などの多彩な自由度を用いて、相関設計といえる現象が続々と実現している状況である。

強磁場が興奮を呼ぶ一つの理由は、磁性体内の交換磁場と同程度の磁場を発生させ得るか、という問題があるが、量子ホール系では、上の意味で交換磁場を制御できている。さらにいえば、図 2 [3]に示したように、磁場 B を強くすると相互作用のエネルギー・スケール ($e^2/\epsilon l \propto \sqrt{B}$) も大きくなり、また反対向きのスピンの間のゼーマン・エネルギー分裂 ($g \mu_B B \propto B$) も増えるので、超強磁場施設でさらに多彩な現象が発見されることが期待できる。

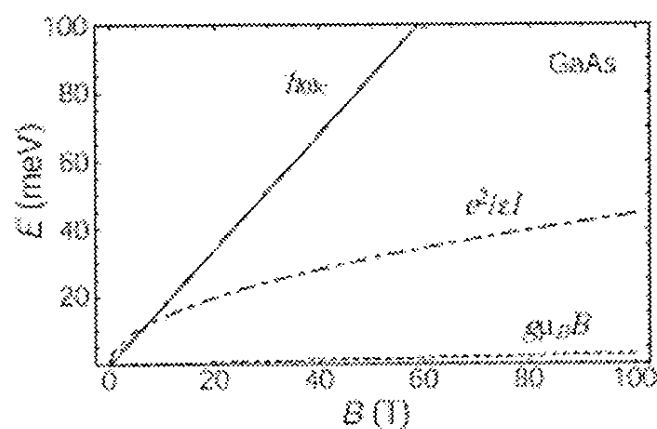


図 2

2.2 量子ホール強磁性

分数量子ホール系が強相関系である顕著な表れとして、スピン状態（強磁性、非偏極、部分偏極）が多彩である。つまり、量子ホール系において電子のスピンは、磁場によるゼーマン・エネルギーで支配されるのではなく、主に電子間斥力による電子相関効果で決まる。つまり、低くなる分は（ランダウの波動関数の間の）交換相互作用エネルギーである。最近では、高いランダウ準位や、2 層量子ホール系も含めた一般論が出始めており、実験的にも履歴現象や双安定性などが観測にかかるようになってきた。

2.2 複合粒子描像

量子ホール系では、2 次元系という特殊性のために複合粒子描像という面白いゲージ場描像が有効となる[3, 5, 8]。普通は、強相関効果を記述するには、非摂動効果をどう扱うかなど、大騒ぎを強いられるのに、この複合粒子描像は、ゲージ変換という巧妙な（非摂動、非局所）変換により、多体効果をうまく取り入れることができ、分かりやすい出発点が準備できることが味噌である。強相関系をゲージ理論で扱うことは多々行われているが、この意味で最も明快なプロトタイプといってよいであろう。

但し理論的には色々と解明が必要な問題が多く、複合粒子が励起にも適用できるか、複合粒子の有効質量(純粋に相互作用起源)の値は如何[9]、複合フェルミオン間の相互作用は強いのか、ランダウのフェルミ液体論は成り立つか、等が理論建設途上にある。これらの理論と、実験との比較には、今の磁場の大きさでは隔靴搔痒のところもあるので、より強い磁場が望まれる。ちなみに、文献[9]は原子核物理学者と物性物理学者との共同研究であり、量子多体系という観点から量子ホール効果が他の分野の興味もひく例となっている。

ちなみに、最近では、レーザークーリングされた原子のボース・アインシュタイン凝縮において複合ボソン描像が成り立つという提案もされており、意外な波及効果となっている。

2.3 偶数分母状態—フェルミ液体、BCS 状態、ストライプ

分数量子ホール効果は普通はランダウ準位占有率が奇数分の一で起きるが、最近の発展の一つは、偶数分母状態において、 $\nu = 1/2 \rightarrow 5/2 \rightarrow 9/2$ とするにつれて、状態はフェルミ液体 $\rightarrow$ BCS 状態 $\rightarrow$ 縞という風に変わる、という驚くべきリッチなことが示唆されている。電子間の相互作用はランダウ準位依存性をもつから、結局相互作用の微妙な違いで、かくも多彩ということになる。縞というのは一種の電荷密度波であり、実験的に極めて非線形・異方的な伝導として観測された。電荷密度波といっても、普通の結晶における電荷密度波がフェルミ面のネスティングによるものであるのに対して、分数量子ホール系にはフェルミ面がないから、これは純粋に電子間クーロン相互作用だけのために生じた並進対称性の自発的破れである。

2. 4 2層分数量子ホール系

2層分数量子ホール系もリッチな物理を宿している。鍵は、層間の電子相関により、層間に一種の量子力学的コヒーレンスが発現する。但し、この系では層間のトンネリングが本質的な役割を演じる。層間コヒーレンスというのは、層間の電子相関により、基底状態は上下層の電子数を不確定にして、層間の位相を確定させた(ゲージ対称性が破れた)状態となり得る。波動関数でいうと、BCS 波動関数と(適当な電子・正孔変換後)同じになる。あるいは、励起子超流動状態といっても良い。

2層系は、NTTにより良質な試料が作成されていることから、世界をリードしている。様々な実験・理論的研究が東北大-NTTにより調べられている。このような2層系において、最近では実験的に各層に電極をつけることができ、ゼロ・バイアス・ピークなどが観測され、その理論的説明としては、近藤問題で有名なアンダーソンの直交定理が、層間の相関が発達した状態では回避されてトンネルするという提案がなされている。但し、独立電極系(ゼロ・バイアス・ピークなど輸送の実験)では欧米に先行されている。

2層構造でなくとも、江崎により type II と名づけられた半導体界面(一方の伝導帯の底が他方の価電子帯のトップより低いもの、例えば InSb/GaSb)では電子と正孔が共存し、これに垂直に磁場をかけると、電子のランダウ準位と正孔のランダウ準位が共存することになる。このような系で、励起子相などの新奇な相の探索も行われている。

また、2層量子ホール系は BCS 状態というより、正確に言えば、量子光学で研究されているスクイズド状態であり[10]、このアナロジーも何かの発展を生むかもしれない。

2.5 強磁場中の量子ドット

相関電子系を量子ドットや量子細線に閉じこめると、多体効果が低次元性のために際だつことが多い。分数量子ホール系でもこの問題が精力的に研究されているが、さらに詰めるべき問題であろう。量子ドットについては、最近では少数個の電子が詰まったものも作れるようになっており、「人工原子」と呼ばれる場合もあり、樽茶らにより詳しく解説されている。実際、電子相関により Hund 則が成り立つなど、原子の周期律を思わせるような系統的な解析にも耐えられるようになってきている。

ドットに磁場をかけると、波動関数がサイクロトロン半径(10 T の磁場中で約 8.0 nm、100 T なら 2.5 nm)まで縮むので、さらに強相関となる[11]。つまり、強磁場では小さなドットでも既に強相関、という訳である。状態は「電子分子」とよばれるものになり、一定の電子配位(3 電子系なら正三角形的相関、4 電子系なら正方形的、等)をもつ。つまり、原子核もないのに、斥力のために自発的にこうなり、全角運動量が特定の「魔法数」でエネルギーが安定化する、という原子核の殻(shell)構造のような現象が起きる。魔法数は、電子がパウリの排他律を満たしながら分子的配置をとり、この周りに量子零点振動をしながら回転する分子という量子効果である。

その他、スピン自由度、量子ドットを二枚重ねた二重ドットにおける立体分子[11]や、ドットを並べて人工原子分子の“重合”も制御できるようになってきており、面白い一つの方角と思われる。

2.6 その他

その他、重要なテーマとして、大電流における量子ホール効果の崩壊、電子結晶状態があり、これも我国が強いテーマである。

光に関して一つのチャレンジングな提案としては、ランダウ準位の離散性を用いたランダウ準位レーザー、が、青木により 1986 年に提案されている[12]が、未だに実現はされていない。

3. 新しい方向

3.1 2次元から3次元へ

量子ホール効果が起きる面を積層させたものは、半導体超格子等において実現するが、ここでは、一層での端状態(朝永・ラッティンジャー液体)が積層されることになり、sheath 電流と呼ばれる。半導体の人工構造ではなく、天然の結晶(層状の結晶構造をもつ酸化物)でこれを観測したという主張もされている[15]]。

量子ホール効果は普通は2次元に特有な現象であるが、「3次元における量子ホール効果」は可能であろうか？ バルクの3次元系ではランダウ量子化後も一般にはエネルギー・スペクトルは離散的でなくなるが、異方的3次元結晶に磁場をかけた場合には、磁場を傾けるに従

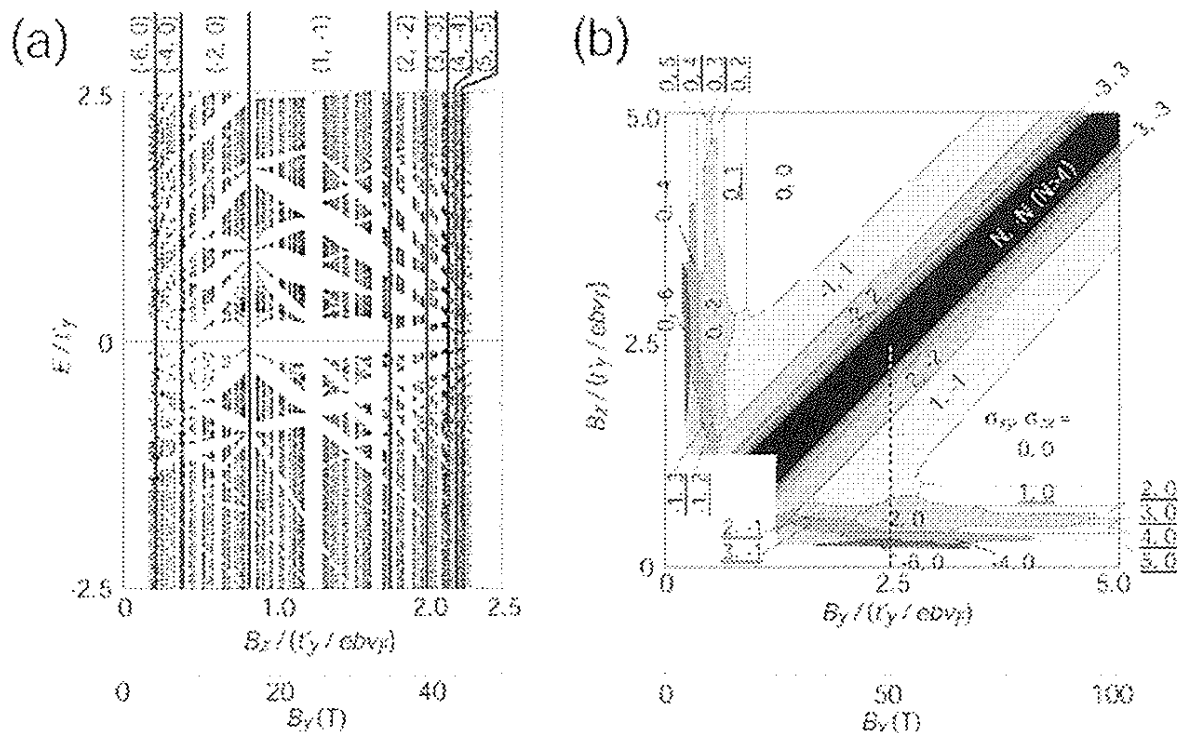


図 3

い、ホーフシュタッターの蝶と呼ばれるものに似た、ギャップがフラクタルに入ったスペクトルになり得ることが最近、越野らにより理論的に示された（図 3 (a)）；磁場の y 成分に対するエネルギー・スペクトルを示す）[17]。2次元で butterfly を実現するには、人工ナノ構造でも作らない限りは非現実的に大きい磁場が必要となり、原子スケールの結晶では夢であるが、この3次元結晶における蝶では、高いランダウ準位内の蝶を用いる等条件を整えれば 40T のオーダーの磁場で十分観測できることが提案されている。

3次元ではホール伝導度は σ_{xy} , σ_{zx} の二種類があり、この各々が量子化される。

また、磁場が新しい量子相を誘起すれば面白いが、2次元においては「磁場誘起スピン密度波(FISDW)」が2次元的有機物に対して考えられてきた[13, 14]。これは3次元でも、100 T 程度の磁場中で起き得ることが越野らにより示された（図 3 (b)；磁場の y, z 成分に対する様々な FISDW 相を濃淡で示す）[17]。その物理は不完全にネストしたフェルミ面において、SDW ギャップが開いた後に残るポケットにランダウ量子化が起きるためであるが、3次元 FISDW においても、エネルギー・スペクトルが蝶的になる。ランダウ準位が整数個詰まったときに起きる、という意味で整数量子ホール効果を思い出させ、実際ホール伝導度も量子化される。

さらに、ラフリン状態そのものの3次元版としての分数量子ホール効果も理論的には探られている。これは、いわば2層量子ホール系の N 層版であり、理論的提案にとどまっている[19]。

3.2 無機物から有機物へ

物質としても、半導体だけでなく、有機物において量子ホール効果またはそれに類似の効果を見ようという試みは古い。もっとも成功しているのは、超伝導にもなる異方的有機金属である $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ であるが、その内容は上述のような磁場誘起 SDW である。この3次元版[17]の実現が期待される。3次元 FISDW に要する磁場も、パルス磁場で十分カバーできる範囲である（図 3）と評価されている。

最近の衝撃は、有機物で分数量子ホール効果そのものが出たことであろう[19]。これは、電界効果トランジスターにより電荷ドーピングをしたものである。つまり、シェーン等が、FET を用いて、テトラセン、ペンタセンという、ベンゼン環が4個、5個並んだ分子の結晶に電荷注入し、強磁場中ではっきりとした分数量子ホール効果を観測した。FET の追試は今のところ報告例がなく、これを克服する必要があるが、もし FET と超強磁場を組合すことができるなら、ここも宝の山となろう。

3.3 他の強相関係への波及効果 — 量子相転移の舞台として

メガガウス領域に入った超強磁場においては、普通の電子相関効果（ゼロ磁場において、酸化物等において発現する）が強磁場中でどうなるかを実験することができる。実際、酸化物高温超伝導体に 100 T のオーダーの磁場をかける実験は既に行われていて、超伝導上部臨界磁場の決定などに用いられている[20]。分数量子ホール効果も電子相関効果であるが、この現象と、高温超伝導が、似ている点と本質的に違う点を、超強磁場を用いて詰めることがで

できれば、電子相関の物理に益することは疑いない。

実際、すでに分数量子ホール系の或る種の状態と異方的ペアリングをもつ（スピン・トリプレット）超伝導との形式的類似は議論されている。ちなみに、形式的ではなく、「強磁場中超伝導」というのも以前から提案はされているが、（最近の宇治等による磁性有機化合物における磁場誘起超伝導を除いては）実現しておらず、これも面白い。最近では、複数の重いフェルミオン化合物において強磁性と超伝導が共存することが発見されているが、もし強磁性が超伝導を助ける機構があるなら、強磁場が超伝導を助ける可能性も十分考えられる。これは物性の基本的な問題である。

量子ホール系は元々ゲージ対称性破れ状態であるが[3, 21]、上述のように、BCS 状態や電荷密度波への「量子相転移」や、他の相関電子系とのアナロジーといった多彩な方向で量子相転移のユニークな舞台を開きつつある。

4. おわりに

以上ですぐ気が付かれるように、量子ホール効果は本報告書の他の章とも密接な関連があり、強磁場物性物理の integrity を表している。また、本章の実験の部で強調したように、理論的提案の実現に先ず望まれることは、過渡現象や渦電流に乱されることなく新現象を追いたいので、長時間パルス強磁場が適することはいうまでもない。

参考文献

1. M. van der Burgt et al., *Physica B* **177**, 409 (1992).
2. T. Takamasu, H. Dodo, and N. Miura, *Solid State Commun.* **96**, 121 (1995).
3. 中島龍也、青木秀夫：「分数量子ホール効果」（青木秀夫監修：多体電子論、第 III 巻；東京大学出版会、1999）。
4. 安藤恒也（編）「量子効果と磁場」（丸善、1995）。
5. 中島龍也、青木秀夫：固体物理 **34**「量子輸送現象における新展開」特集号、339 (1999).
6. 量子ホール系に関する文献には、以下のようなものがある：
「電子相関からの物質設計」という観点からの解説および最近の文献の詳細は、青木秀夫、電子相関と物質設計 — 総論、固体物理「相関電子系の物質設計」特集号 **36** (2001) 607。
「2次元電子系の電子物性(EP2DS)」国際会議録は H. Aoki and S. Komiyama (editors): *Proc. 12th Int. Conf. on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems*, special volumes of *Physica B* **249-251** (1998)。
最近の EP2DS については、青木秀夫：固体物理 **37** 110 (2002)。
7. 吉岡大二郎：量子ホール効果（岩波、1998）
8. H. Aoki *Dynamics of Gauge Fields*, ed. by A. Chodos et al. (Universal Academy Press, 2000), p. 371.
9. M. Onoda, T. Mizusaki, T. Otsuka, and H. Aoki, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3942 (2000);
M. Onoda, T. Mizusaki and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **64**, 235315 (2001).

10. T. Nakajima and H. Aoki, Phys. Rev. B **56**, R15549 (1997).
11. 今村裕志、青木秀夫、Peter A. Maksym : 日本物理学会誌、**53**, 36 (1998);
12. P. A. Maksym, H. Imamura, G. Mallon and H. Aoki: *J. Phys. Condensed Matter* **12**, R299 (2000).
13. H. Aoki, Appl. Phys. Lett. **48**, 559 (1986).
14. T. Ishiguro, K. Yamaji and G. Saito: *Organic Superconductors*, 2nd ed. (Springer, Berlin, 1998).
15. 鹿兒島誠一 : 低次元導体 (裳華房、2000)。
16. S. Hill, S. Uji, M. Takashita, C. Terakura, T. Terashima, H. Aoki, J. S. Brooks, Z. Fisk and J. Sarrao, Phys. Rev. B **58**, 10778 (1998);
- M. Sasaki et al., Solid State Commun **109**, (1999) 357.
17. M. Koshino, H. Aoki, K. Kuroki, S. Kagoshima, and T. Osada:, Phys. Rev. Lett. **86**, 1062 (2001).
19. M. Koshino, Osada and H. Aoki, Phys. Rev. B **65**, (2002), in press.
20. J.D. Naud et al., Phys. Rev. Lett. **85**, 5408 (2000);
- S. Suzuki and Y. Kuramoto, Phys. Rev. B **62**, 1921 (2000).
21. J.H. Schoen *et al.*, Science **288**, 2338 (2000).
22. 三浦登、固体物理 **35**, 151 (2000).
23. 青木秀夫、川上則雄、永長直人 (編) : 物理学論文選集「物性物理における場の理論 的方法」(日本物理学会、1995)。

VI. 磁気光学

産業技術総合研究所
横井裕之
千葉大学理学部
嶽山正二郎

強磁場域での磁気光学測定技術の歩みは、超伝導磁石またはハイブリッド磁石の強力化による定常磁場下測定の強磁場化と、パルス磁石の開発と測定手法の開発による強磁場化と高品質化の流れと見ることができる。現在パルス磁場下で実施されている磁気光学測定として、フォトルミネッセンス、吸収、反射が上げられる。定常磁場下では、そのほかに、時間分解発光スペクトル分光や顕微分光が実施されている。このような手法を駆使した研究の現状と将来の展望を次のような観点からまとめる。

- (1) 強磁場下での磁気発光、吸収、反射測定の高感度及び高精度化
- (2) 強磁場下での超短時間分光測定とダイナミクス（エネルギー、スピン緩和過程）及び高密度光励起状態での新しい物質相の磁気分光解明
- (3) ナノ構造解明に役立つ強磁場磁気分光計測
- (4) 他の極限状態、極低温、超高圧と結合した磁気光学測定と研究展開
- (5) 新しい磁気光学測定法

1. 強磁場下での磁気発光、吸収、反射測定の高感度及び高精度化

磁気光学測定は、電氣的測定と異なって、パルス磁場発生に伴う電氣的ノイズや誘導起電力に影響されにくいため、パルス磁石を用いた強磁場研究がかなり進展している。例えば、東京大学物性研究所では、最高磁場 60T パルス幅 10 ミリ秒の非破壊パルス磁石、最高磁場 300T 持続時間 μ 秒オーダーの一巻きコイル装置、最高磁場 600T 持続時間 μ 秒オーダーの電磁濃縮装置を用いた磁気光学研究が展開されている。前者 2 つの超強磁場発生装置では、ストリークカメラを用いて磁気吸収スペクトルの測定が行われて、GaAs/AlAs 量子井戸において励起子準位からランダウ準位への移行や 2 次元励起子の磁場による 3 次元的収縮に起因すると思われるランダウ準位の半値幅増大現象などを観測した[1]。また、CdTe/CdMnTe 多重量子井戸構造において、90~120T 域で磁場誘起 type I-type II 転移をとらえた[2]。40T 強の非破壊パルス磁場測定では、Optical Multichannel Analyzer を用いて、40T を越える強磁場下発光スペクトルの測定を行っている。その特徴は、分光された光を CCD の数ラインのみに照射しながら CCD の電荷を掃引して、一回のパルス放電で 0 ~ 最高磁場までのスペクトルデータを連続的に取得できることである。磁場パルスのピーク近傍でだけスペクトルを計測していた従来方式に比べて、格段の効率で強磁場域のデータを得ることができるようになった。この手法により、反磁性シフトの大きさから InGaAs/GaAs 自己組織化量子ドットにおいてドットサイズに依存した強い 0 次元量子閉じこめ状態が実現していることを明らかにし[3]、また、InAlAs/GaAs 自己組織化量子ドットでは、ドット内局在電子状態の縮重度が磁場により増大することに伴い、電子・正孔の相関が変化する様子をとらえた[4]。これらは、電子サイクロトロン運動の大きさを、パルス磁石による強磁場によって量子構造の大きさ程度にまで小さくすることによって顕わになってきた現象である。

一方、定常磁場においても、物質・材料研究機構において 35T の定常磁場を発生できる国内で最大のハイブリッド磁石が開発され、300~900nm の波長域と 0.4K までの温度域でフォトルミネッセンスと吸収、反射測定などが可能である。フォトルミネッセンス測定では、(Cd, Mn)Te/(Cd, Mg)Te 量子井戸中あるいは GaAs/(Al, Ga)As 量子井戸中 2 次元電子ガスの発光特性に関する研究例があり、ランダウ・フィリング因子 $\nu < 1$ に相当する強磁場域まで、整数・分数量子ホール効果に対応するスペクトル構造を観測することに成功した[5, 6]。また、18T 超伝導磁石を用いた近赤外ルミネッセンス測定が $15 \sim 300 \text{ cm}^{-1}$ の領域で行われて、spin-Peierls 転移を起こす CuGeO_3 についてスピン・フォノン結合モードの特性を明らかにするなどの研究がなされている[7]。さらに、アメリカ合衆国では、2000 年に国立強磁場研究所において、45T のハイブリッド磁石が開発され、さらに 50T 近くまで性能を上げる可能性がある。このように、定常磁石の性能は近年飛躍的に向上してきており、パルス磁石の磁場域と競合するまでになっている。

パルス磁石は、設備投資や運転コストの面でハイブリッド磁石と比べて格段のメリットがあるものの、測定感度や精度の面で水をあけられている。しかしながら、そのパルス持続時間を 1 秒オーダーまで延ばすことができれば、定常磁場下測定に匹敵する品質のデータが得られると期待される。そのようなロングパルス磁石の例として、アメリカ合衆国ロスアラモス国立研究所パルス強磁場センター(NHMFL)で開発された 1430MW、600MJ モーター発電機駆動で最高磁場 60T パルス持続時間 2 秒のロングパルス磁石がある。この磁石と 2.1 ミリ秒ごとにマルチ・チャンネルでスペクトルが収集できる高感度・高速分光システムを組み合わせ、一回の磁場パルスの間に連続的にスペクトルを収集し、30T から 60T の領域でも 0.3T 間隔でスペクトル・データが得られる。物性研で行われている CCD のストリーク方式に比べて、1 スペクトルあたりの露光時間が 2 桁ほど長くできるので、S/N 比の高いデータが得られる。これを用いて、II-VI 系や III-V 系 2 次元電子ガスの発光スペクトルを測定し、分数量子ホール効果領域における励起子発光強度の振動や荷電励起子発光スペクトルの構造が明らかにされている[8-11]。また、ガasket をのぞけば全て非金属でできたプラスチック製のダイヤモンド・アンビル・セルを組み合わせ、3GPa 程度の超高压下でのフォトルミネッセンス測定が可能となっている。そこでは、CdTe/CdMnTe 量子井戸の界面磁化の圧力依存性が明らかとなり[12]、また、励起子発光の圧力誘起消光と磁場誘起発光が観測された[13]。特に前者の研究では、定常磁場では容易には発生できない 30~40T の領域で励起子発光エネルギーのゼーマン・シフトのわずかな曲折が精度良く観測できた(図 1 矢印)ことにより、界面磁化について非常に精密な議論が可能となった。

この 60T 超ロングパルス磁石は、2000 年 7 月に壊れたため、現在新しく作製中であり、2003 年に復帰する予定である。他に、1.6MJ キャパシターバンクによるパルス幅 500 ミリ秒の 50T ミッド・パルス磁石を有しており、それを用いて 1.4K~4K の測定温度で 60T ロングパルス磁石に近い品質の発光スペクトルデータを得ることが可能である。

このように、パルス持続時間をサブ秒ないし秒オーダーまで長くできれば、パルス磁場でも定常磁場に匹敵する高感度・高精度の測定が可能となる。ただ、ロスアラモスのようなモーター発電機駆動方式では、発電機等の施設にコストがかかりすぎてしまう。従って、より低コストでキャパシターバンク駆動のロングパルス磁石を開発する意義があり、また、ハイブリッド磁石に対するアドバンテージを保つためにも 70~80T のロングパルス磁石が求められる。

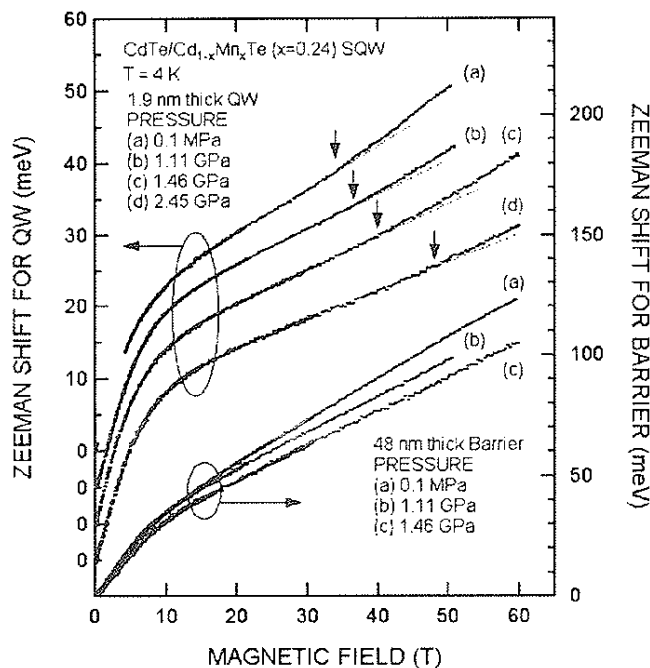


図1 60T ロングパルス磁石を用いて測定した励起子発光エネルギーの磁場変化。一つ一つの点が測定点を表す。矢印で示したキंकは、障壁層の場合には見られず、量子井戸についてのみ観測された。磁場により価電子帯の障壁が低くなるに伴って、量子井戸内に閉じこめられた励起子波動関数が障壁層に急速に侵入し始める現象に起因している。

2. 強磁場下での超短時間分光測定とダイナミクス（エネルギー、スピン緩和過程）及び高密度光励起状態での新しい物質相の磁気分光学解明

1980年代に入って、レーザー技術の発展に伴い、時間分解光学測定や非線型分光測定手段による電荷及びスピンの動的過程（ダイナミクス）に関する研究は、半導体、イオン結晶、磁性体等を対象に盛んに行われるようになった。もちろん、化学分野でも、不斉反応などの化学反応の理解や生体物質の電荷やエネルギーの流れの研究分野でも大きな役割と展開を果たしてきた。このようなダイナミクスの研究は強磁場や高圧、極低温領域での展開が必要になってきている。以下、固体物性での国内外での状況を述べる。半導体結晶中に光励起で生成される励起子は2つのフェルミ粒子（電子と正孔）の結合によって形成されるボーズ粒子であることから、光強励起下で多彩な高密度状態（励起子分子、電子・正孔プラズマ、電子・正孔液滴）をとる。励起子は、水素原子に類似した状態を形成していて、その分子状態である励起子分子の基底状態は、水素分子と同様にスピン一重項状態である。水素分子をスピン三重項状態に励起するには $10^4 \sim 10^5 \text{ T}$ というとても強い超強磁場を必要とするが、半導体、特に希薄磁性半導体中では電子の感じる実効的な磁場を外部磁場の10倍程度に増幅できることから、スピン三重項励起子分子のより安定な状態を実現できる可能性がある。

希薄磁性半導体では、励起子の電荷状態（励起子内部構造）に大きな磁場効果を与えずにそのスピン自由度にのみ大きな磁場効果（巨大ゼーマン効果）が作用し、スピン三重項励起子分子の安定な存在が示唆される。図2は励起子と励起子分子発光の磁場依存性であるが、これからスピン三重項励起子分子の挙動が示され[14]、フェムト秒領域の極短時間分解分光実験や四光波混合などの非線形分光と合わせて、スピン自由度を含めた内部構造の解明が進んでいる[15]。欧米でも強磁場下での励起子分子に関して、GaAs に代表される III-V や II-VI 化合物半導体をベースにした量子井戸を用いた非線形分光手段による研究は盛んであり[16-18]、より強磁場で精密な測定手段の構築と物性理解が期待されている。

また、近年の原子レベルでの制御可能な結晶成長技術の格段の進歩により、理想的2次元電子系が量子井戸内に実現できるようになった。このような系で光励起すると、電子（または、正孔）と励起子が結合した荷電励起子（トリオン）と呼ばれる複合体励起が実現する。これも、スピン配向が重要な決め手となるので、磁場下での光磁気物性は多彩な様相を示すことになる。いわば、水素原子の H^+ や H^- 状態に対応しており、また、半導体中では、1960 年後半から盛んに研究されたドナーやアクセプターでの D^- や A^+ 状態に類似であるが、これらとは、並進対称性の自由度が付加されているところが異なる。近年、半導体量子井戸に存在する残留電子（正孔）や変調ドーピングによって制御された2次元電子系と光励起によって生成した電子・正孔対との複合体の報告が多くなってきた。いわば、励起子が電気的中性でエネルギーのみを伝達したのに対し、荷電励起子は両者を担う新たな素励起と考えることができる。特に希薄磁性半導体の系ではやはり磁場によるスピン配向やゼーマン分裂が大きいため荷電励起子も特異な振る舞いをする。2次元電子濃度が高いと電子遮蔽効果が大きくなり励起子生成が抑制され、むしろ3体の荷電励起子が安定に存在し、磁場下での磁気発光、磁気反射、磁気光吸収で多彩なスペクトル観測とその解析が進んでいる[19]。図3は高濃度2次元電子系で形成された励起子と荷電励起子の吸収及び発光測定で観測された磁場下で

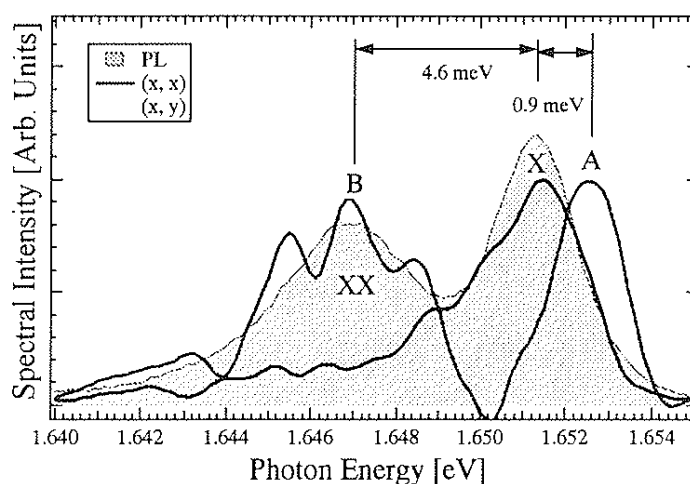


図2 スペクトル分解四光波混合測定から得られた励起子と励起子分子(B)スペクトル ($t=250$ fs)、斜線は定常分光で得られた発光スペクトル。A は、過渡的に観測できたスピン三重項励起子分子（反結合状態）。(xx)及び(xy)は2つの入射光の偏光を示す。

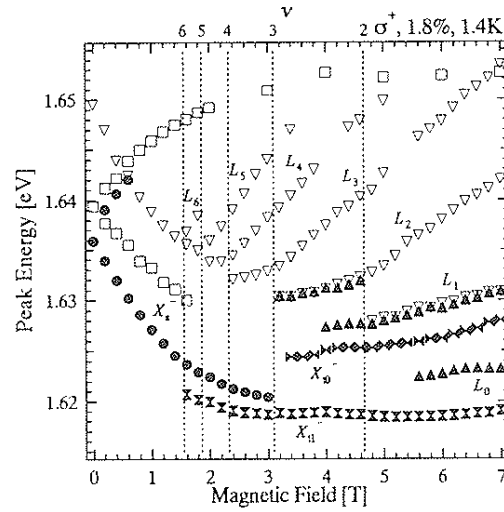


図3 CdMnTe 量子井戸内2次元電子系で励起された荷電励起子吸収エネルギーと発光エネルギーの磁場依存性. 荷電励起子の一重項、三重項状態、また、ランダウ準位への解離発光が観測された.

のエネルギー変化を示すが、スピン一重項、三重項荷電励起子やそのランダウ準位への電子放出による解離などを示す興味ある結果が得られている。荷電励起は量子ドット中でも観測されており[20]、荷電励起子と系の次元性やスピンと関連した磁場下での挙動はこれからの研究課題である。特に、強磁場で実現されるフラクタルな分数量子ホール状態（分数電荷）での荷電励起子状態形成の可能性はあってもほとんど未開拓な領域で、その物性は興味を持たれる。また、荷電励起子の高密度状態凝縮相は励起子が関与する超伝導の可能性も秘めており、今後の研究発展は果てしなく続くことが予測される。

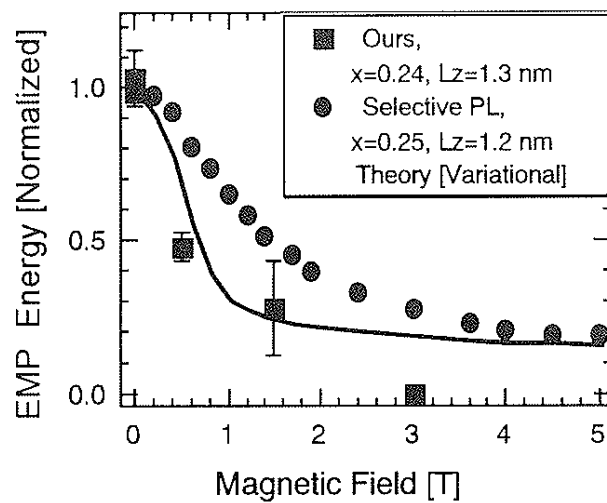


図4 CdTe/CdMnTe 量子井戸で実現する励起子磁気ポーロンエネルギーの磁場変化.

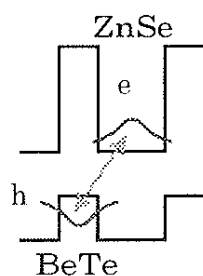


図5 タイプII超格子バンド図

希薄磁性半導体で不可避の問題は、電子・正孔あるいは励起子スピンの周りの局在磁気スピンを強磁性配向し、エネルギー安定化をはかる「磁気ポーラロン」の問題である。槽谷らによるユーロチウムカルコゲナイドの研究に端を発した「磁気ポーラロン」の問題は、不純物周りに生じる「局在磁気ポーラロン」が本格的な研究対象となり大きな発展を遂げた。近年、新たな希薄磁性半導体の発展とともに、自己束縛的自由磁気ポーロンの観測に向けた研究の展開がなされた。特に、光励起で実現できる励起子磁気ポーロンは希薄磁性半導体で欧米及び日本で多数の研究報告がなされることになった[21, 22]。特に、外部磁場はスピンプーラロン効果に強い抑圧効果をもたらすので、盛んに磁気発光の研究報告がなされた[21, 22]。図4は嶽山等が主張する励起子磁気ポーロンの磁場変化スペクトルの一例である[23]。ここでも、自己束縛的励起子磁気ポーロンの安定解は理論的には未解決であり、系の次元性と密接な関係も議論されている。特に、高密度励起子磁気ポーロンの実現とその観測に向けた研究は、光誘起強磁性の実現とあいまって、研究者の熱い眼差しが向けられている。すなわち、光で直接に、しかも高速に磁気秩序を制御したいという夢が込められている。磁気ポーロンは外部磁場に敏感な系であるから、高密度磁気ポーロンの問題には、その生成機構を理解する上でも強磁場下での超高速分光を含めた光磁気測定による物性展開が不可避である[3, 22, 23]。

半導体結晶中に光励起で生成される励起子は2つのフェルミ粒子（電子と正孔）の結合によって形成されるボーズ粒子であることから、光強励起下で多彩な高密度状態（励起子分子、電子・正孔プラズマ、電子・正孔液滴）をとる。しかし、ボーズ凝縮状態（BEC）に至っては、その存在が長年にわたって期待されつつも、未だ完全な実験的検証がなされていない。その要因の1つに有限な寿命が上げられる。ところが、図5に示されるようなタイプII励起子（GaAs/AlAs, ZnSe/BeTe超格子で実現できる）では長い励起子寿命が期待できる。この励起子は、電子と正孔が空間的に隔たって存在することから、実空間において間接遷移型であるため、寿命は μ 秒と非常に長く、熱平衡状態の高密度励起子状態が容易に形成される。また、波数空間では直接遷移型であるため、ひとたび光結合が起これば強い発光検出が可能となる。強磁場下での磁気分光やダイナミクスの観測は、励起子あるいは励起子分子の高密度相の理解とBECの実証のためにも新しい分野を切り開く意味でも重要な分野である[22]。

3. ナノ構造解明に役立つ強磁場磁気分光計測

ナノテクノロジーは益々その究極に向かって進展するであろう。そのような状況の中で、これまで、半導体ナノ構造で展開されてきた強磁場磁気分光測定を紹介し、その有用性を示す。まず、半

導体で量子井戸構造を作成したとき重要なのは、電子や正孔を閉じ込めるポテンシャルの問題である。希薄磁性半導体で構成された $\text{CdTe}/\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$ 多重量子井戸構造を用いて、150 T までの強磁場中での吸収スペクトル、および 40 T までの発光スペクトルの測定が行われ、Mn 組成が 10% 及び 30% の超格子について、磁場誘起タイプ I-タイプ II 転移が観測された。これは、価電子帯の巨大ゼーマン分裂が障壁ポテンシャルと等しくなることに起因し、転移磁場よりバンドオフセットが始めてが 30-40% であると明らかにされた[2]。また、 GaAs/AlAs 短周期超格子では、磁場や圧力を加えることによって、電子・正孔が同一空間上に存在するタイプ I 状態から、それぞれ空間的に分離したタイプ II 状態に転移することが知られている。そこで、周期の異なるいくつかの超格子について、磁場誘起タイプ I-タイプ II 転移、圧力誘起タイプ I-タイプ II 転移の観測が行われ、バンド端の電子状態の変化と、それに伴って急激に変化する光学スペクトルを定性的、定量的に評価し、周期構造の違いによる Γ -X 混成効果を明らかにされるなど、新しい量子構造の電子状態とその性質の解明に役立った。

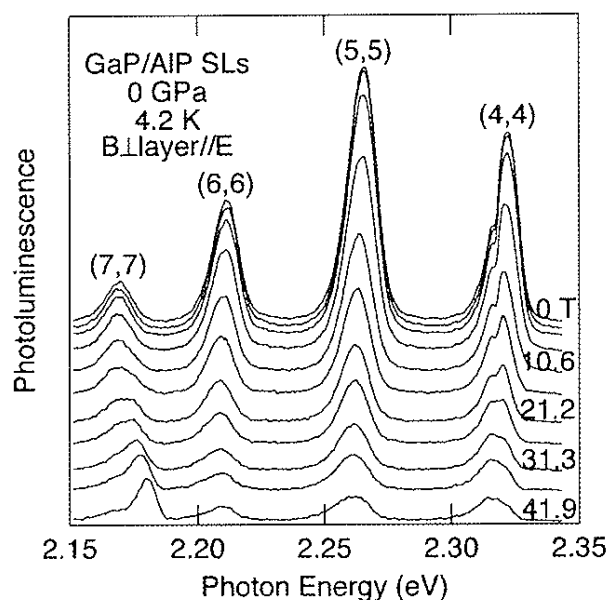


図6 強磁場下における GaP/AlP 超格子からの発光スペクトル。

GaP/AlP ヘテロ構造は、実空間、波数空間ともに電子と正孔が空間分離した間接遷移型の半導体である。GaP/AlP 超格子から、通常の間接型半導体では考えられないような強い発光が観測されたことから、この発光のメカニズムに大きな関心が寄せられていた[24]。そこで、これらの超格子と、量子井戸、隣接閉じこめ構造について、強磁場中での発光スペクトルの測定が行われ、ヘテロ界面が関与した異常な振る舞いが解明された(図6)。これは、ヘテロ界面の揺らぎに伴うポテンシャル揺動の中の間接型励起子が引き起こす磁場誘起キャリア局在と、それに伴う励起子再結合のダイナミクスの変化で説明された[25]。さらに、発光スペクトルの圧力依存性から、バンド端の電子状態が明らかにされ、強い発光の起源が波数空間での直接遷移型への変換によるものではなく、界面付近での励起子局在効果によるものであることも明らかにされた[26]。また最近、GaAs/AlAs 系タイプ II 超格子、II-VI 族量子ドットについても、間接型励起子と界面状態に起因する同様の磁場効

果が確認されている[4]。

強磁場磁気分光は量子構造での系の次元性を明確に示すためにも有用である。量子細線で実現であろう電子状態の「一次元閉じ込め」を励起子反磁性シフトの異方性から明確にしめした永宗等の仕事はその後多くの量子細線の作製結果を評価するのに参照された[27]。内田等は、自己組織的に形成された InGaAs/GaAs 量子ドットで、パルス強磁場と Optical Multichannel Analyzer (OMA) を用いて、40 T を越える強磁場下発光スペクトルの測定を行い、反磁性シフトの大きさから、ドットの大きさに依存した強い 0 次元量子閉じこめ状態が実現していることを確かめている[3]。

このように、強磁場磁気分光はナノ構造での電子系閉じ込め状態にたいして極めて重要な情報を与えてくれるのである。今後、ピラミッド構造、カゴメ格子構造などの原子オーダーでの多様な量子構造構築が盛んになることが予測される。対象とする系のディメンジョンはますます微小化、複雑化する方向にある。ますます、より強磁場での精度の良い高度な分光実験、例えば、顕微分光、時間分解分光測定などの必要性が高まることが予測される。

4. 他の極限状態、極低温、超高压と結合した磁気光学測定と研究展開

物質のさまざまな物性発現に関与している各種相互作用を研究する上で、温度、圧力、磁場は重要なパラメータである。それら二つないし三つを複合させた複合場を利用することにより、物性解明や新物性発現が進むことが期待されている。特に、それぞれの場を極限領域まで高めた複合極限場における新物性探索が注目されている。

極低温・超高压の複合極限場では、 ^3He - ^4He 希釈冷凍機とダイヤモンドアンビルセルを組み合わせ、 $<100\text{mK}$ 、 $>100\text{GPa}$ (~ 100 万気圧) が実現されている[28]。これをそのままパルス強磁場下で実現するのは困難である。その理由は、希釈冷凍機の混合器やダイヤモンドアンビルセルの筐体、そしてその連結部分の金属が誘導電流により加熱されてしまうからである。現状では、60T 級のパルス磁場と低温・高压を組み合わせで実施された磁気光学測定の例として、ロスアラモス国立研究所パルス強磁場センターにおいて、60T ロングパルス磁石 (パルス持続時間 2 秒) と ^4He クライオスタット、プラスチック製ダイヤモンドアンビルセルを組み合わせたフォトルミネッセンス測定や、東京大学物性研究所において 40T パルス磁石 (パルス持続時間) と ^4He クライオスタット、セラミック製クランプセルを用いたフォトルミネッセンス測定がある。どちらも温度は 1.5K 前後まで冷却することが可能であり、圧力は前者が $\sim 8\text{GPa}$ 、後者が $\sim 1\text{GPa}$ である。このような複合極限場により、希薄磁性半導体量子井戸構造における界面磁化の圧力依存性が明らかとなり[12]、希薄磁性半導体における励起子発光の圧力誘起消光と磁場誘起再発光という新現象が観測され[13]、非磁性半導体ヘテロ構造では圧力誘起タイプ I・タイプ II 転移を調べることが可能となった[2]。

今後は、荷電励起子や励起子分子の高密度状態におけるボーズ・アインシュタイン凝集や超伝導など興味深い物性の探求のため、さらに低温あるいは高压への要請が高まってくるであろう。ところが、特に極低温になるほど、試料温度を上げないために励起光やプローブ光の強度を弱くする必要が生じ、シグナル光も弱くなってしまう。S/N 比が高くて磁場分解能の高いデータを得るためには、1 節で述べたようにパルス幅を長くして積算時間を稼げるようにロングパルス磁石を開発することが必須である。

5. 新しい磁気光学測定法

秒オーダーのパルス磁場下では、信号が微弱であるなどの理由により従来定常磁場でしか行えなかった測定手法が適用可能になってくる。例えば、顕微分光や光カロリメトリー分光、光検知サイクロトロン共鳴、ラマン分光などが有望である。

近接場分光法により顕微分光の位置分解能が光の波長以下にまで小さくできるようになったが、磁場下での近接場分光はまだ開拓途上にある。物質・材料研究機構では、走査プローブ顕微鏡を 7.5T の無冷媒型超伝導磁石と組み合わせて、10K から 600K の温度範囲でミクロな磁気構造の磁場・温度変化を観察する磁気力顕微鏡を開発し、さらに、金属コートした光ファイバーを Cantilever として用いて、近接場光学顕微鏡として活用するという試みが始まったところである [29]。磁場で顕微分光は、量子細線や量子ドットの電子状態を調べるのに強力な手段となる。また、次のようなケースに適用が期待される。量子ホール効果リジームにおける電子状態に対して光ルミネッセンスが非常に敏感であることが知られており、電気伝導度測定と組み合わせて、エッジ電流の流れている領域とそうでない領域での光ルミネッセンスの違いを顕微分光で調べれば、エッジ状態の理解に大いに貢献できる。まずは、超伝導磁石の磁場領域で研究が進むであろうが、II-VI 族系のようにキャリア密度の高い方が良質の試料が得られるものがあり、そのような場合にロングパルス磁場下で近接場分光測定技術を開発する意義が生じてくる。

光カロリメトリー分光・光音響分光は、非輻射のプロセスを伴う光吸収を観測できる手法であり、透過光測定が困難な微量試料でも適用可能であり、ルミネッセンス測定では隠れてしまう電子状態の情報が得られる。しかしながら、これまでのところ磁場と組み合わせた研究例はほとんどない。一つの要因として、強磁場環境下での装置のセットアップが困難であることが考えられるが、今後その点が克服されれば、新しい磁気光学測定法として発展する可能性がある。ロングパルス磁石と組み合わせれば、一挙にパルス磁場の領域までこの手法が適用できると期待される。

光検知サイクロトロン共鳴は、サイクロトロン共鳴を光ルミネッセンス信号から検知する手法であり、正孔の高調波信号が増強される[30]、あるいは、電子系のダイナミクスを探る手段への応用が可能[31]、などの特徴が報告されている。この手法は今のところ DC 磁場でしか適用されていないが、ロングパルス磁場と組み合わせて開拓すべき分野である。

ラマン分光は、偏光測定から物質の対称性や配向に関して、他の分光手法では得難い情報が得られる。それは、ラマン散乱が励起光と散乱光の異なる 2 つの光子を含む 2 光子過程であることに由来する。定常磁場下でのラマン分光はかなり以前から行われており、最近では、Rupprecht らが CdTe/MnTe 短周期超格子における Mn^{2+} -d 電子のスピン結合や CdTe/MnTe 界面近傍の電子分布を調べており[31]、また、Rho らが、 $Eu_{1-x}Gd_xO$ における金属絶縁体転移の前後で磁気ポーラロンやスピン・キャリア相互作用が変化する様子を調べている[32]。これらはいずれもスピンが飽和していない 7~8T の磁場領域で測定が行われており、さらに強い磁場領域での特性に興味を持たれる。また、Wysmolek らが、n-GaAs における結合プラズモン・LO フォノンモードについて非弾性散乱を水冷式定常磁石により 28T まで測定しているが[33]、サイクロトロン周波数がフォノン振動数を上回るところまで達していないので、興味深いスペクトル変化はさらに強磁場で観測されると期待される。ロングパルス磁石が実現すれば、そのようなさらに強磁場領域でのラマン分光が可能となる。上記以外にも、磁場誘起構造相転移やマグノンのボース・アインシュタイン凝縮といった現象

を探索するのにも力を発揮すると期待される。

まとめ

以上様々な観点から、強磁場下での光磁気分光の必要性和今後の発展の可能性を述べた。強磁場下での磁気分光では、如何に光量を獲得できるかで、空間、時間、スペクトル分解精度が決定される。また、サイクロトロン運動閉じ込めによる量子空間分解能もサイクロトロン半径で決定される。また、電子数と同等程度の磁束量子は新たな複合粒子を形成するより多くのチャンスを与える。そこで、少しでも長く（時間積算効果）強力なマグネット（より小さなサイクロトロン半径、より多くの磁束量子）があれば有利になることは言うまでもない。光測定に適合した形状の使い勝手の良いマグネットシステムの構築は、今後の物性研究、量子材料開発に不可欠であろう。

【参考文献】

- [1] Y.H. Matsuda et al., Proceedings of the 4th Int. Symp. on Advanced Physical Fields: Quantum Phenomena in Advanced Materials at High Magnetic Fields (Tsukuba, 1999, ed. G. Kido) p. 17-20.
- [2] Shinji Kuroda, Kazutoshi Kojima, Kôki Takita, Kazuhiro Uchida, Noboru Miura, "Magnetic-field induced type I-type II transition in CdTe/Cd_{1-x}Mn_xTe multiple quantum wells", J. Crys. Growth, 159, 967-971 (1996).
- [3] K. Uchida et al., Physica B 249-251, 247 (1998).
- [4] R. Cingolani et al., Phys. Rev. Lett. 83, 4832 (1999).
- [5] Y. Imanaka, T. Takamasu, G. Kido, G. Karczewski, T. Wojtowicz, and J. Kossut, "Luminescence Spectra in II-VI Quantum Hall Systems at High Magnetic Fields up to 35 T", phys. stat. sol. (b), 229, 745-749 (2002).
- [6] T. Takamasu, Y. Imanaka, K. Kido, "Optical detection of the breakdown phenomena of integer and fractional quantum Hall effects in GaAs/AlGaAs heterostructures", Physica E, 6, 144-147 (2000)
- [7] K. Takehana, T. Takamasu, M. Hase, G. Kido, T. Masuda, and K. Uchinokura, "Spin-phonon coupled modes in the incommensurate phases of doped CuGeO₃", Phys. Rev. B, 63, 245413 (2001).
- [8] S.A. Crooker, E. Johnston-Halperin, D.D. Awschalom, R. Knobel, and N. Samarth, "Stability of trions in strongly spin-polarized 2D electron gases", Phys. Rev. B, 61, R16307-16310 (2000).
- [9] Yongmin Kim, "Magnetic field induced charged exciton studies in GaAs/Ga_{0.3}Al_{0.7}As single heterojunction", Phys. Rev. B, 61, 4492-4495 (2000).
- [10] F.M. Munteanu, Yongmin Kim, C.H. Perry, D.G. Rickel, J.A. Simmons and J.L. Reno, "Crossing behavior of the singlet and triplet state of the negatively charged magnetoexciton in a GaAs/Al_{0.55}Ga_{0.45}As quantum well", Phys. Rev. B, 61, 4731-4738 (2000).

- [11] H. Yokoi, Y. Kakudate, S. Fujiwara, Y. Kim, S. Takeyama, G. Karczewski, T. Wojtowicz, and J. Kossut, "Spectral Anomalies of Exciton Photoluminescence at $\nu=1$ and $2/3$ in a Modulation-Doped n-Type CdTe/(Cd, Mg, Mn)Te Single Quantum Well", *phys. stat. sol. (b)*, 229, 681-684 (2002).
- [12] Yu. G. Semenov, H. Yokoi, Y. Kakudate, S. Takeyama, S.W. Tozer, Y. Kim, T. Wojtowicz, G. Karczewski, J. Kossut, "Interface local spin states in a CdTe/(Cd, Mn)Te quantum well", *Physica E*, 10, 340-343 (2001).
- [13] H. Yokoi, S.W. Tozer, Y. Kim, Y. Kakudate, T. Wojtowicz, G. Karczewski, J. Kossut, "Magnetic field induced recovery of exciton photoluminescence extinguished by pressure in a CdTe/CdMnTe single quantum well", *Physica B*, 298, 426-430 (2001).
- [14] S. Adachi, Y. Takagi, and S. Takeyama, *J. Cryst. Growth* 214-215, (2000) 819.
- [15] H. Mino, et al., *Physica B* 298 (2001) 421.
- [16] S. Bar-Ad, et al. *Phys. Rev. B* 50 (1994) 18375.
- [17] L. Besombes, et al. *Phys. Rev. B* 65 (2002) 121314(R)
- [18] T. Baars, et al. *Phys. Rev. B* 63 (2001) 153312.
- [19] A. Lemaitre, et al. *Phys. Rev. B* 62 (2000) 5059
- [20] D. Sanvitto, et al. *Phys. Rev. B* 62 (2000) R13294
- [21] S. Takeyama, in "Magneto-Optics" ed. by S. Sugano and N. Kojima, Springer, p.179
- [22] S. Takeyama, "Spin-Induced Optical Phenomena in Diluted Magnetic Semiconductors", Chap.4, in *Optical Properties of Low-Dimensional Materials II*, Ed. by T. Ogawa and Y. Kanemitsu, (World Scientific, 1998) pp.178-230.
- [23] S. Takeyama, et al., *Nonlinear Optics*, 18(2-4) (1997) 199-206.
- [24] K. Uchida et al., *Physica B* 227 (1996) 352.
- [25] K. Uchida et al., *Physica B* 298 (2001) 310.
- [26] K. Uchida et al., *The 25th International Conference on the Physics of Semiconductors* Osaka, Japan, 17-22 September, 2000 Proceedings (World Scientific co. Singapore).
- [27] Y. Nagamune et al. *Phys. Rev. Lett.* 69 (1992) 2963.
- [28] 清水克哉、高圧力の科学と技術 Vol.8, No.1, 41 (1998).
- [29] H. Shinagawa, T. Takamasu, G. Kido, "Development of variable-temperature scanning probe microscope for high magnetic fields", *Physica B*, 298, 580-584 (2001).
- [30] T. Tomaru, T. Ohyama, E. Otsuka, *Phys. Rev. B*, 44, 10622 (1991).
- [31] M. Godlewski, W.M. chen, B. Monemar, *Critical Reviews in Solid State and Materials Science* 19(4), 241 (1994).
- [32] R. Rupprecht, H. Pascher, H. Krenn, W. Faschinger, G. Bauer, *Phys. Rev. B*, 63, 115325 (2001).
- [33] H. Rho, C.S. Snow, S.L. Cooper, Z. Fisk, A. Comment, J-Ph Ansermet, *Phys. Rev. Lett.*, 88, 127401 (2002).
- [34] A. Wysmolek, M. Potemski, T. Slupinski, *Physica B*, 298, 216 (2001).

VII. テラヘルツスペクトロスコピー

A 磁気共鳴

岡山大学理学部
野尻浩之

1. テラヘルツ光の可能性

テラヘルツ領域は光と電磁波の境界領域であり、スペクトロスコピーにおいて磁気励起に代表される低エネルギー励起とフォノン吸収帯など結晶格子系の動的振る舞いにかかわるエネルギーを含んでいる。サブテラヘルツ域も含めてサブミリ波、ミリ波として考えると、この領域は物理、化学のみならず天文やプラズマ研究など様々な研究がなされてきたが、可視、赤外、マイクロ波などの周辺の領域に比べて良い光源がなかったために、分光学において遅れた領域とされてきた時期もあった。しかしながら、近年では放射光を用いた強力なビームライン、ライナックを利用したコヒーレント放射光、自由電子レーザー、短パルスレーザー励起のテラヘルツ放射、光パラメトリック発振器などの光源の飛躍的進歩を背景に新しい発展がなされつつある活発な発展領域である。

物質科学の立場からは、非線形性や量子効果の顕著な様々な磁気励起、電荷の低エネルギー励起等の研究は、それらが本質的に多体効果と量子効果を含んでいるゆえに、今後も大きな発展が期待される分野である。また、磁場を用いる点では電子スピンにかかわる磁気吸収共鳴である ESR(電子スピン共鳴)のテラヘルツ化は、生命科学への応用も含めて大きな可能性を秘めている。主に電子スピン系の基底状態を観測する NMR と比較して、ESR は励起状態を見ることに特色があり、生命活動を含む化学反応などを研究したり、活性酸素などのように活性化された物質を捉えることにすぐれている。その意味では ESR は、物質の構造のみならず機能を調べることにより適しており、生命科学の分野では今後重要な役割を果たすことが期待される。分解能の向上や、観測可能なスピン状態の多様性は、周波数を上げることにより格段の進歩が期待できるので、テラヘルツ波への ESR の共鳴周波数の高周波化が強く望まれる。この高周波化は、共鳴磁場の高磁場化と不可分に結びついており、最高磁場という制約は、ESR において、もっとも基本的な制約要因の一つである。

電子工学の立場からは、テラヘルツ領域は今後もっとも進展が期待される分野の一つである。現在ギガヘルツ帯に到達したマイクロプロセッサの周波数がテラヘルツ帯に到達することは単に、演算能力の飛躍的向上にとどまらず、テラヘルツ帯が光と電磁波の境界領域であるがゆえに、電子工学と光工学の融合を不可欠のものとする。。また、モバイル情報通信の発展を考えると、テラヘルツ光は重要なキーテクノロジーの一つである。

しかしながら、テラヘルツ領域の電子工学実現を考えると、これがフォノン吸収帯の近傍にあることから、フォノン制御を視野に入れた新しい展開が必要とされる。例えば現在シリコンを中心とする半導体材料で制作されている、導波路や基板を含む素子の低誘電率化はテラヘルツ動作デバイス実現の重要な要素であるが、これはシリコンからカーボンへの電

子技術のシフトと深く関わっている。このような強い電子-格子相互作用に起因する困難は、一方では誘電性と磁性を兼ね備えた新しいデバイス実現の可能性を示している。このことは、電子の電荷、スピン、格子、軌道といった異なる量子自由度が強く結びついた系における強相関物理学の展開を背景としており、スピントロニクスとも密接不可分の関係にある。

以上見てきたように、電子の異なる自由度のエネルギーが互いに接近し、かつ光と電磁波の境界であるテラヘルツ領域は、多自由度の結合を基礎とした新しい物理概念の発展が期待されるとともに、電子工学におけるフロンティアとなっている。ESR を含む広い意味での磁気光スペクトロスコピーは、スピンをプローブとしながら、このエネルギー域における強い電子-格子相互作用やスピン軌道相互作用、結晶場などを通じて、結晶格子やスピン依存性（分裂）を含む電子構造に関する情報を得ることができる実験手段として発展が期待される。

2. ESR による非線形低エネルギー励起の研究

非線形現象の研究は物理のみならず、生命現象や工学的応用までふくめて、学際的で普遍的なひろがりをもつ分野であり、ソリトン、カオス、フラクタルなどの新しい概念を生んできた。自由度の大きな系や量子系における非線形現象は今後も大きな進展が期待される分野である。そのなかで、低次元量子磁性体における磁気励起の研究はその強い量子性とモデル化の容易さからソリトンや多粒子励起束縛状態などの研究において重要な役割を果たしている。磁気励起研究において、磁場はスピングャップの制御、新しい基底状態の出現、縮退した準位の分離などの作用を持ち、もっとも重要な制御パラメータといえる。また、高圧力などと異なり、その大きさを精密に制御できかつ試料を損傷しないので大変使い易い。磁気励起研究において ESR は、その分解能の高さから波数が 0 だけしか見られないという限界はあるものの大変有用な手段となっている。さらに極めて高感度であること、中性子散乱などでは困難な超強磁場での測定が可能であることなど多くの特長をもっている。非線形励起の研究においては、微弱な高次の動的帯磁率を観測する事が必要であるが、ESR の高感度性はそ

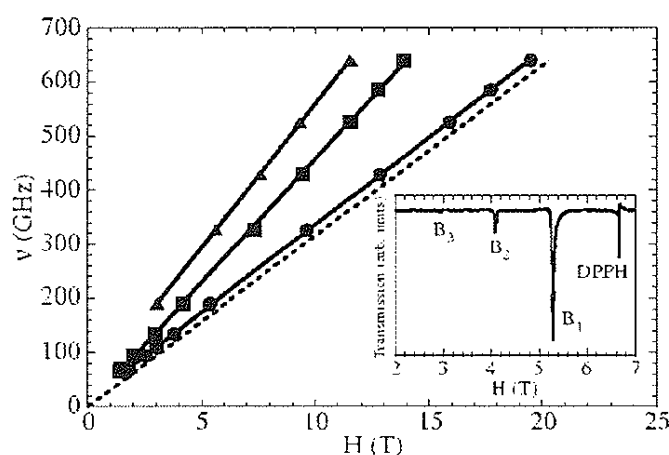


図1 3次までのブレッザー励起の観測

の際に大変威力を発揮する。このように、ESR は低エネルギーの磁気励起研究において今日では必要不可欠な手段となっており、今後も重要な役割を果たすことが期待される。図 1 には最近浅野らによって行われた、量子 1 次元鎖物質 CuBenzoate におけるプレザー励起の観測例を示す(文献[1]より転載)。3 次までの非線形励起が観測されている。このような高次の励起に関しては、これまで実験的にも理論的にもあまり研究されておらず、量子サインゴルドン模型研究の発展の新しい契機として期待される。その他の最近の研究成果に関しては以下の文献などにまとめられているので、それを参照されたい。[2-3]電子スピン($g=2$)の ESR において、周波数が 1 テラヘルツは共鳴磁場にすれば 40 テスラに相当する。従って、テラヘルツ領域の ESR を本格的に研究するために 60-80 テスラの磁場が容易に使用できるようになれば、飛躍的な発展が期待できる。

3. 量子系のダイナミクス

ナノスケールのデバイスや、量子素子、量子計算などへの興味の増大にともない、スピン状態の量子コヒーレンスや、量子緩和、量子トンネルなどのナノ量子系の動的振る舞いに注目が寄せられている。例えば従来の磁気記録デバイスはサイズは小さくなったとしても本質的にはバルクの強磁性体であり、その緩和はエネルギーが連続的な古典的ベクトルの歳差運動の減衰として理解できた。これに対してエネルギー準位が離散的な量子系では、波動関数の位相のコヒーレンスが本質的に寄与する全く異なった振る舞いが期待される。このような量子系のダイナミクスを研究する上で、スピンの多重項内の遷移をみる ESR は最も直接的な手段である。一般的に ESR は、スピン系の時空相関に関する 4 体の相関関数を観測するので、2 体の相関関数をみる NMR に比してより多くの情報を含んでいるが、このために理論的には ESR 吸収の計算は非自明なものとなり困難が伴う。このような量子系のダイナミクスの理解は、発展の期待されるナノスケールの物理において重要な基盤であり、ESR の寄与が期待される。具体的には、強相関系における量子ダイナミクスやナノスケール磁性体における量子トンネルや量子振動などの観測は今後の進展が期待される分野である。最近の進展に関しては、文献[4, 5]などにまとめられている。

4. ESR による生体物質の研究

生体起源の物質の研究は生命活動に理解にとって重要であるだけでなく、生体物質を利用した電子工学の新展開にとっても不可欠のものとなっている。生体中において酸化還元をはじめとする活性中心性質には遷移金属などが含まれていることが多く、これらの状態を研究するのに ESR はこれまでも大きな役割を果たしてきた。しかしながら、例えばヘム蛋白などで重要な Fe イオンをとってみると、 Fe^{3+} が比較的に見やすいのに対して、酸化状態の異なる Fe^{2+} や Fe^{4+} は緩和時間や大きな異方性のために観測が一般に困難である。テラヘルツ ESR を用いれば、これらのイオンの電子スピン共鳴を観測できることが期待される。生体への応用では NMR は重要であるが、ESR は化学反応などの機能に関わる性質を明らかにする点にその特長がある。このように ESR は生体物質起源の新物質や機能物質研究に有用である。最近の進

展に関しては、文献[6]を参照されたい。

5. フォノンを含む中間エネルギー励起の研究

テラヘルツ領域では、低エネルギーの磁気励起やゼーマンエネルギーとフォノンのエネルギーが接近する。そのために、スピナー格子相互作用によって磁気励起と電荷励起が結合した複合的な励起の観測が期待される。このような励起を研究することにより、強相関系にとって本質的なスピン格子相互作用の強さやその対称性に関して知ることが出来る。例えば、フォノンブランチと電子スピン共鳴のブランチの交差付近において、結合モードを見出し、偏光依存性などの選択則に着目して測定を行うことにより、スピナー格子相互作用を生み出しているフォノンモードの対称性や、結合の起源に関して知ることが出来る。このような実験手法は、ラマン散乱や、遠赤外分光と相補的な手段よりスピナー格子相互作用を見る上では直接的である。また、従来の低周波の ESR においては、通常、軌道モーメントの凍結した系においてのみ信号が観測されたが、テラヘルツ領域では、ゆらぎの大きい軌道モーメントが完全に凍結していない系においても信号が観測されることが期待できる。軌道励起や軌道ゆらぎの観測は一般に極めて困難であるが、テラヘルツ ESR を用いればスピナー軌道相互作用を通して、スピンのゆらぎとしてこれらの量を捉えることが出来る。これは NMR が核スピンを用いて電子スピンを見ることのアナロジーと考えることが出来る。

テラヘルツ領域に相当するゼーマン相互作用は、結晶場分裂とも同程度になる。このような場合、異なる結晶場状態へ移る価数転移のような現象が期待される。電子相関が強い場合においては、相関を考慮しない点電荷モデルの予想と異なる結晶場基底状態を取ることがたびたび起こるが、このようなエキゾチックな状態においては、従来の電子スピン共鳴では見られなかった新しい磁気共鳴吸収が起こることが期待される。また、そのような現象を通じて、結晶場の準位に関して詳細な情報を得ることが可能になると期待される。様々な結晶場状態を制御する事が可能になれば、光誘起相転移などに見られるように、新しい準安定な励起相を安定化する事が可能になる。このような励起相の性質を研究する上では、テラヘルツ ESR は重要な役割を果たすと考えられる。

6. スピントロニクス、テラヘルツフォトニクス研究

スピントロニクス実現のためには、スピン分裂したバンド構造をもつ物質を見出すことが必要である。さらに進んで、結晶の動的性質を利用して、機能性をもった磁性-誘電複合物質を見出す事も考えられる。そのような材料においては、電子のサイクロトロン共鳴のスピン依存性を測定することはバンド構造やキャリアの性質を調べる上で有用である。テラヘルツ帯で使用可能な機能性磁性-誘電複合材料を評価するためには、材料のテラヘルツ波に対する応答のスピン依存性を知ることが必要であるが、テラヘルツ磁気光分光はそのような手段を提供する。さらに、テラヘルツ波をパルスレーザーなどにより生成する場合、強相関系はその非線形性の大きさから、ターゲット物質の有力候補注目されているが、強磁場によってテラヘルツ波の生成がどのように変化するかを研究することは、効率よいテラヘルツ波発

生を実現する上で重要である。また、共鳴現象自体を利用した能動的デバイス開発も期待される。一般的に共鳴状態においては、系のマクロな透磁率や誘電率は極めて大きな変化を受ける。従って、テラヘルツ波に共鳴する状態では、極めて小さな摂動で透磁率や誘電率を任意の大きさに制御することが期待できる。このように、強磁場・テラヘルツ波は、スピントロニクス、テラヘルツフォトンクス研究にとって有用である。

7. 研究のために必要な光源インフラ、その他

光源としては、パルス磁場のように単発で測定を行う場合は強度の強い単色光源が望まれる。また、長時間パルス磁場の場合は、CW 光の磁場変化の測定だけでなく、パルス光源を用いて時間分解も含めた測定を行うことが、限られたマシンタイムを有効に使う上でも重要であると考えられる。さらに、破壊磁場によってもたらされる 100 T 超領域との連携も視野に入れるときに、光源として小型自由電子レーザーの導入が強く望まれる。既存のライナックあるいは今後建設予定のストレージリング型の放射光の入射系としてのライナックが近接してある場合は、それらを活用することによって、比較的安いコストで導入が可能であり、また放射光施設と強磁場施設を近接して設置することにより、放射光などの高輝度光源における研究の新しい可能性も期待される。自由電子レーザーは、周波数を可変出来る一方で、周波数幅が比較的広いために、高分解能テラヘルツ ESR にはむかない。このような、周波数幅が重要と場合は、遠赤外気体レーザーや光パラメトリック増幅器の利用が必要であろう。

8. まとめ

以上みてきたように、テラヘルツ波を用いた電子スピン共鳴をはじめとする磁気光分光は、今後重要になるテラヘルツ応答する機能性材料やそれを用いた電子- フォトンクスなどの応用面においても、低エネルギー励起や量子ダイナミクス、生体物質の機能解明などの基礎科学にとっても重要な役割を果たすことが期待される。そのためには、先端的光源と非破壊-破壊磁場をシームレスにつないだ研究拠点形成がぜひとも必要である。

参考文献

- [1] T. Asano *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000) 5880-5883
- [2] *Suppl. A. J. Phys. Soc. Jpn.* **69** (2000)
- [3] Proceeding of Japan-French seminar (2001, November, Fukuoka), Kyushu University press.
- [4] *Suppl. B. J. Phys. Soc. Jpn.* **69** (2000)
- [5] H. Kobayashi, N. Hatano and S. Miyashita, *Physica A* 265(1999)565-583.
- [6] Proceeding of 3 rd. Asia-Pacific International Symposium (2001, November, Kobe), *Physica B*, in press.

B 半導体のマグネトスペクトロスコピー

Department of Electrical and Computer Engineering, Rice University, Houston, Texas, U.S.A.

河野 淳一郎

テラヘルツ周波数領域は、固体におけるダイナミクス・共鳴現象の宝庫である。特に強磁場下半導体においては、サイクロトロン周波数、ゼーマン周波数、プラズマ周波数、フォノン周波数、および励起子束縛周波数がすべてテラヘルツ帯に起きる。最高80テスラ、持続時間1秒の超ロングパルス非破壊強磁場施設が実現すれば、全く新しいタイプの時間分解・非線型分光が強磁場下で可能になり、ユニークでエキサイティングなテラヘルツサイエンスの探索・発見につながる。本稿では、主として米国の最近の研究を中心にこの分野での現状を概観しつつこのような新実験手法・物理現象について解説する。

1. テラヘルツ周波数領域：サイエンスとテクノロジー

テラヘルツ周波数帯（0.1 – 10 THz または 3 mm – 30 μm ）は固体物理学において最もバラエティに富みかつ挑戦的な領域である。固体中の様々な低エネルギー素励起・集団励起がここに集中し、また様々なキャリアの動的過程（散乱、再結合、トンネリング）がこの周波数帯で起きる。さらに、電気輸送現象と光学現象という一見すると全く異なった固体物理現象がこの領域では区別を曖昧にし、両者を融合・統一した理論的見方が必要になる。この周波数領域の電磁波は、古典的な「高周波電場」と量子的な「光子」という二つの顔を併せ持つ。

テクノロジー的にはテラヘルツ基礎研究は非常に未発達であるために、将来の技術開発へ向けての非常に強い社会的要請がある。この周波数領域では通信、コンピューター、センシングに使える固体テクノロジーが完全に欠如している。例えば、信号発生と検知という二つの基礎過程の周波数依存性を見てみれば、従来技術のエレクトロニクスとフォトリクスの両方の限界（つまりその中間）にテラヘルツが位置することが容易に分かる（図1参照）。より広いバンド幅での通信技術開発の必要性が強まる中で、このテラヘルツ・バンドでの半導体微細構造中での物理現象を根本から理解することは不可欠である。

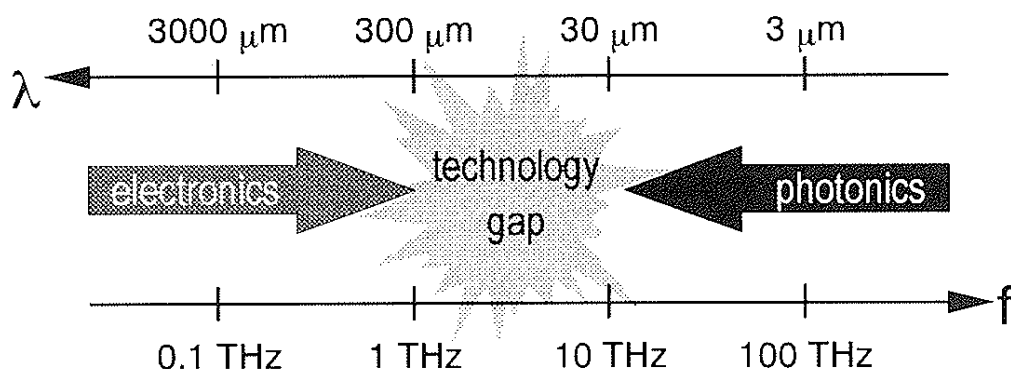


図1 テラヘルツ周波数帯

さて、本章においては、我々は極めて強い磁場中に置かれた固体（特にバルクおよび微細構造半導体）中の電荷・スピンキャリアの線型および非線型テラヘルツダイナミクスについて考察してみる。このような研究の基本目的は量子閉じ込めされた相関電子系の複雑な運動学に新しい知見を提供することにあるが、さらには新しいテラヘルツ素子の概念を発展させることにもつながる。高強度テラヘルツ電磁波と半導体中キャリアの相互作用を調べることに特に興味を持たれる。テラヘルツ強電場あるいはテラヘルツ光子はキャリアの量子状態と強く混成し、コヒーレントな重ね合わせ状態を作る。このような状態のコントロールは、固体での量子情報操作への第一歩である。本章で対象とするテラヘルツ共鳴は、サイクロトロン共鳴、電子スピン共鳴、励起子内部遷移、サブバンド間遷移、およびバンド間遷移である。

2. 超ロングパルス強磁場施設の与えるインパクト

2-1. 可能になる実験技術

超ロングパルス強磁場施設の実現は、強磁場下半導体テラヘルツスペクトロスコピーに技術的な革命をもたらすであろう。従来使われてきた二つの基本技術であるフーリエ変換赤外分光（FTIR）と遠赤外（FIR）レーザー磁気分光は、多くの面で相補的であり、それぞれに一長一短がある。FTIR は連続スペクトルが取れ、定常磁場下（つまりランダウ準位占有度一定）での測定が可能である等の優れた点があるものの、微弱でインコヒーレントな光源を用い長時間のデータ積算時間を必要とすることから、パルス磁場との組み合わせはほぼ不可能である。従って、最高使用可能磁場はおのずと限られてしまう。一方で、レーザー磁気分光（通常 CW 遠赤外分子ガスレーザーが用いられる）は、狭いスペクトル線幅、高強度、偏光分光のし易さ、パルス磁場との相性のよさ等の利点があるが、レーザーの発振線は離散的であるために連続スペクトルを取ることができない。従って、磁気共鳴現象の詳細なエネルギー・磁場依存性についての情報が得られない。以下に解説する二つの方法は、これら従来技術の持つ利点全てを有し、両欠点を完全に除去した上で、全く新しいタイプのテラヘルツ実験を可能にする。

2-1.1 フェムト秒パルスによる時間領域テラヘルツ分光

時間領域テラヘルツスペクトロスコピー（Time-Domain Terahertz Spectroscopy: TDTS）は、過去十年余の間主に超高速分光の分野で開発・発展され、ゼロ磁場に限ればほぼ確立された実験技術であると言ってよい [see, e.g., Nuss & Orenstein 1998]。FTIR と同様にテラヘルツ周波数領域で連続スペクトルを取れるが、特に FTIR の光源が暗くなり測定が困難になる低周波数領域（数百 GHz

から数 THz) で非常に高い照度を持つために極低エネルギーの動的現象の研究に威力を発揮する。テラヘルツ検知器として使われるフォトコンダクティブスイッチは FTIR で使われるボロメーター等に比べて数桁感度が高いのに加え、フェムト秒領域の時間分解能でコヒーレントテラヘルツ電場の振幅と位相を時間の関数として同時に記録する。このことは、Kramers-Kronig 変換無しで誘電関数（あるいは伝導度）の実部と虚部を同時に得ることを可能にする。さらに、FTIR では不可能なフェムト秒からピコ秒の時間分解スペクトロスコピーを可能にすることは言うまでも無い。

図 2 は典型的な TDDS 実験系の概念図である。チタン酸サファイアレーザーのパルス幅 ~ 100 fs の近赤外光 (~ 800 nm) ビームはスプリッターで励起光とゲート光の二つに分けられ、前者はテラヘルツ発生器（エミッター）へ後者はテラヘルツ検知器（レシーバー）へと送られる。発生器・検知器にはいくつか異なったタイプ・材料があるが、最も典型的なのは低温成長した GaAs を用いたフォトコンダクティブスイッチである。近赤外励起パルスはスイッチ内に急激に（ピコ秒オーダーで）変化する電流 $J(t)$ を生み出し、これが $E(t) \propto dJ(t)/dt$ に従ってテラヘルツ周波数領域の電磁波を放射する。放射されたテラヘルツ光は集光され試料を透過した後にレシーバーにフォーカスされる。ゲートパルスは光ディレイラインを通った後にレシーバーにフォーカスされ、検知器ゲートとして働き、励起パルスとゲートパルスの間の時間ディレイを掃引することによってテラヘルツ電場の時間変化を描くことができる。図 3 はこのようにして測定された Nb 超伝導薄膜のテラヘルツ透過電場波形の例である [Nuss *et al.* 1991]。超伝導転移温度の上下における二つの波形が示されている。この波形をフーリエ変換することによって伝導度の実部と虚部が周波数の関数として描かれる（図 4）。

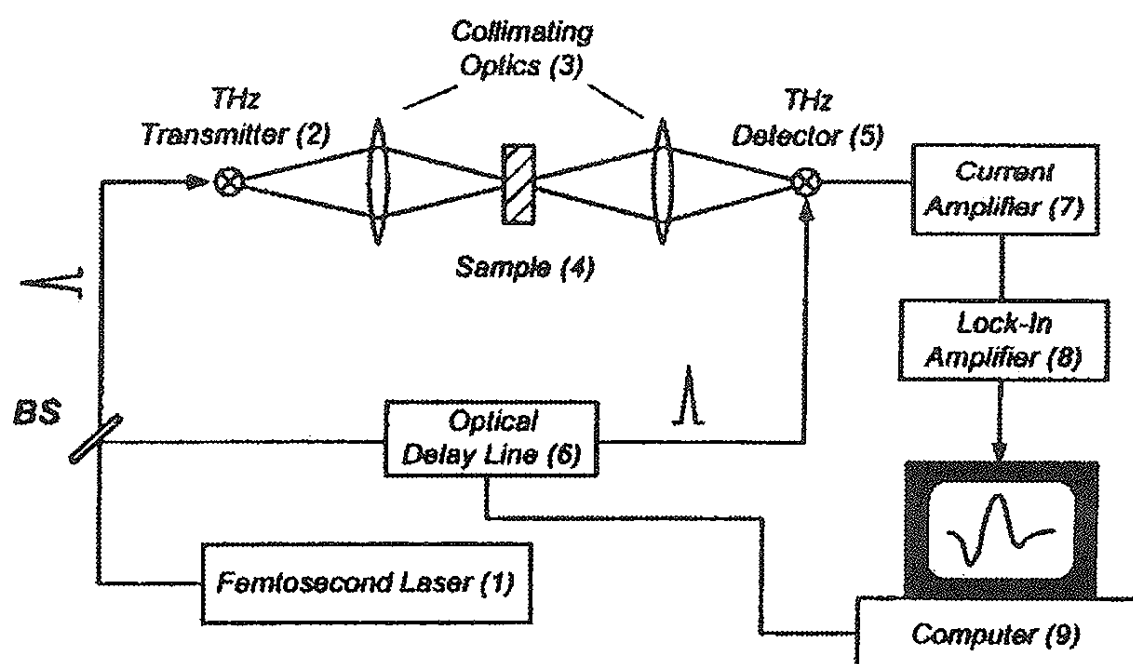


図 2 時間領域テラヘルツスペクトロスコピーに使われる典型的な実験系を示す

概念図 [Nuss & Orenstein 1998]。

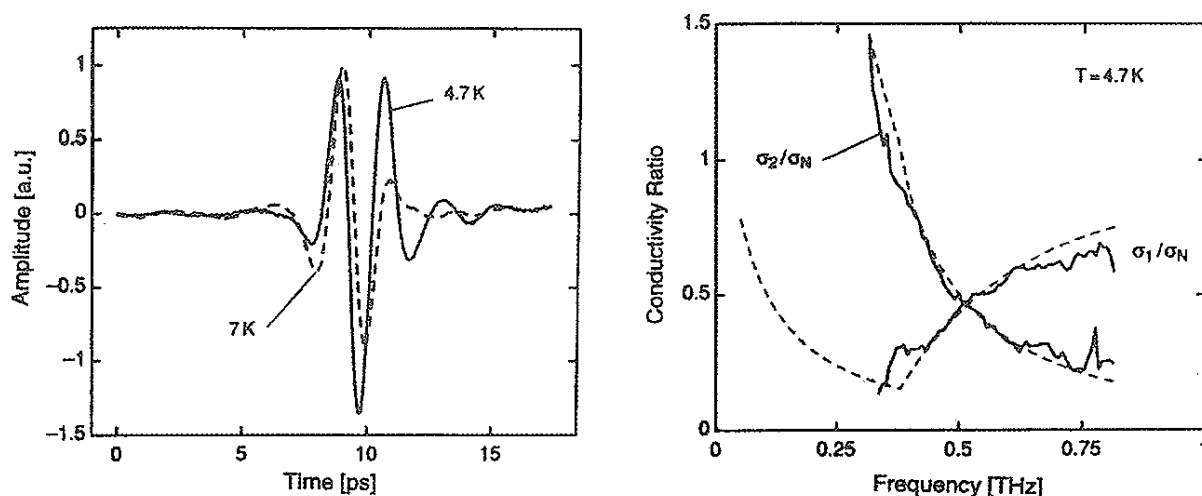


図 3 (左) : ニオブ超伝導膜を透過したテラヘルツ電場の時間波形。図 4 (右) : 図 3 のテラヘルツ電場の振幅と位相を解析することによって得られた伝導度の実部と虚部の周波数依存性 [Nuss *et al.* 1991]。

TDS をパルス強磁場下テラヘルツスペクトロスコピーへ応用するためには、いくつかの技術的ハードルを超えなければならない。これらには、(1) 磁石内の限られた空間にどのようにエミッター・試料・レシーバーを配置するか、(2) 強磁場・低温のエミッター・レシーバーへの影響をどのようにしてデータから取り除くか、(3) 光ファイバー内伝播中の分散によるフェムト秒近赤外パルスの幅増大をどのように防ぐか、そして(4) 限られたデータ積算時間内でどれだけ信号・ノイズ比のよいデータを取れるのか、等の問題が含まれる。これらのうち(1)～(3)の問題は、最近の Los Alamos の Crooker の定常強磁場での光ファイバーを用いた仕事によって本質的にクリアされたといってよい [Crooker 2002]。図 5・図 6 に示すように、低温・強磁場できれいなデータが取れている。また(4)に関しても、Crooker のシステムではディレイを二往復スキャンもすれば十分高品質のデータが取得できることに成功している。つまり、20 Hz のラピッドスキャンディレイシステムを利用したと仮定して、持続時間一秒のパルス磁場がフラットトップのデータ積算時間 100 ms を提供できれば十分である見積もりになる。

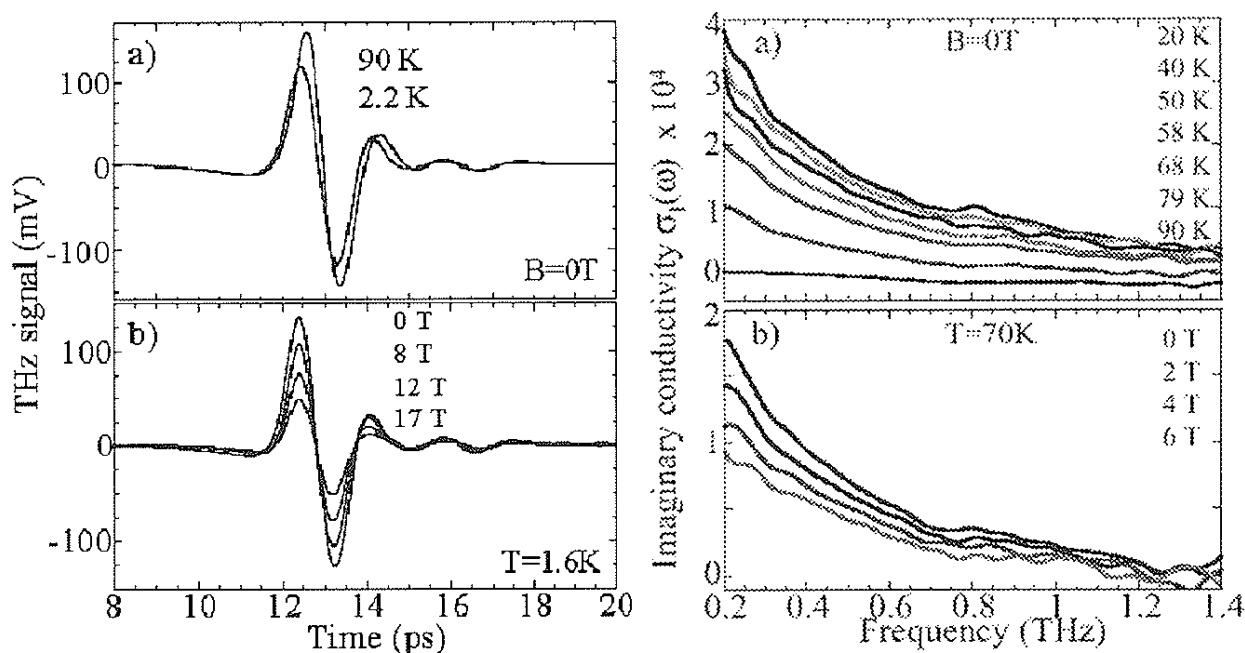


図 5 (左) : Crooker による低温・強磁場用時間領域テラヘルツエミッター・レーザによって得られた典型的なテラヘルツ波形。図 6 (右) : YBCO 膜の伝導度の温度依存性と磁場依存性。[Crooker 2002]。

2-1.2 テラヘルツ自由電子レーザーによる時間分解・非線型分光

自由電子レーザー (Free Electron Laser: FEL) [see, e.g., Brau 1990] は周期磁場中を運動する高速電子ビームを利得媒質とするユニークな高出力レーザーである。その波長域はマイクロ波領域から紫外領域にまで至り、しかも連続的に可変である。特に、テラヘルツ領域においては、FEL が現在のところ唯一の波長可変・高出力レーザーである。1977年にスタンフォード大学のグループによって最初の FEL の発振が報告されて以来 [Deacon *et al.* 1977]、世界中の多くの研究所で FEL の開発・改善がなされ、現在ではいくつかの利用者施設が存在する。過去十年弱の間に、テラヘルツ FEL を用いた半導体中の電気輸送・光学実験において様々な新現象が報告され [see, e.g., Keay *et al.* 1995; Unterrainer *et al.* 1996; Kono *et al.* 1997]、半導体物理学および非線型光学におけるエキサイティングな分野の一つに成長した。

FEL の基本構造は電子銃、加速器、共振器ミラー、および共振器中に置かれた周期磁場 (ウィグラーまたはアンジュレイターとよばれる) から成る。相対論的速度まで加速された電子ビームはウィグラーの中で蛇行運動し、電磁波を制動放射する。共振器方向に放射された光はミラーで反射され、後から来る電子と相互作用して増幅される。レーザー発振波長は、(1) ウィグラーに入射する電子の速度、(2) ウィグラーの空間的周期、および (3) ウィグラーを構成する磁石の強さによって決定される。これら三つのパラメーター全て連続可変であるゆえ、波長も連続

可変となる。テラヘルツレーザー磁気光学に通常使われる CW 分子ガスレーザーに比べ、その波長連続可変性、高強度、超短パルス幅、とその長所は計り知れない。

図7および図8は、テラヘルツサイドバンド発生という非線型光学過程を用いた、GaAs 量子井戸中磁気励起子の内部遷移共鳴の例である [Kono *et al.* 1997]。励起子の内部遷移エネルギーの一つとテラヘルツ光子エネルギーが一致するたびに（第3次）非線型光学係数 $\chi(3)$ が共鳴的に大きくなるため、近赤外光とテラヘルツ光の混成信号が共鳴を示す。これはテラヘルツ自由電子レーザーの高強度と波長可変性をうまく利用した実験例である。また、図9および図10には、ピコ秒のテラヘルツ自由電子レーザーを用いた時間分解スペクトロスコピーの例として、時間分解サイクロトロン共鳴の測定例を示す [Kono *et al.* 1999]。ここでは、FEL と同期した近赤外チタン酸サファイアレーザーのフェムト秒パルスによって生成された非平衡キャリアの緩和過程が非放物線性を通したサイクロトロン質量の時間変化としてうまく捕らえられている。

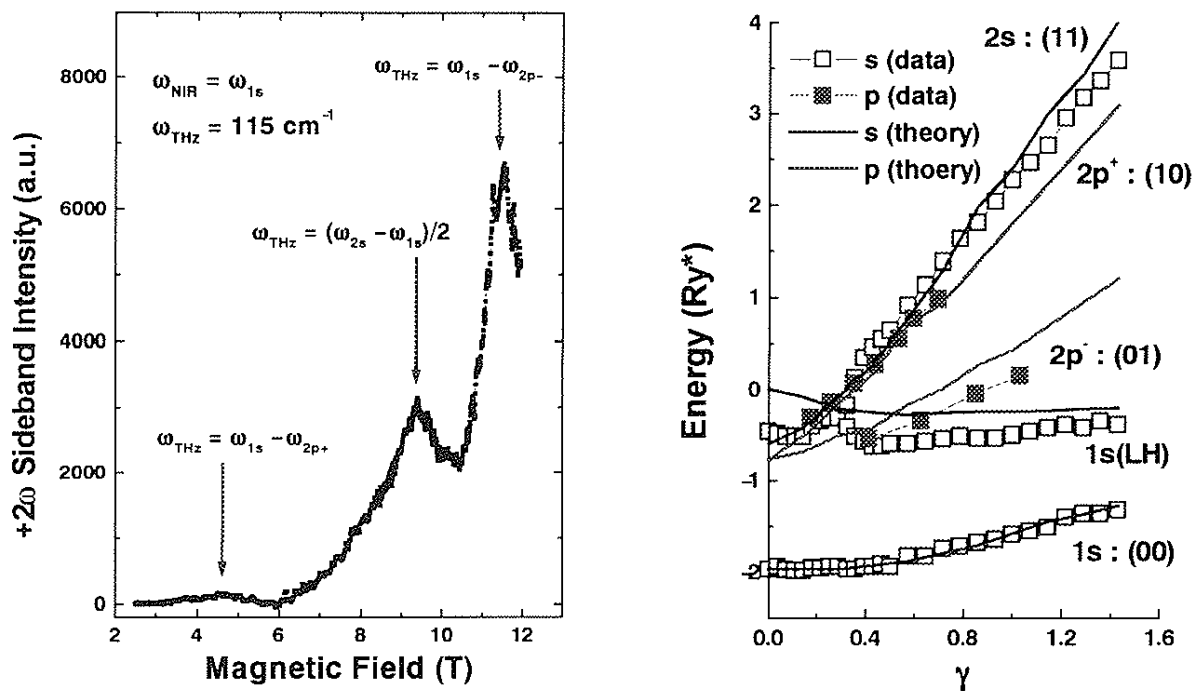


図7（左）：テラヘルツ FEL を用いた GaAs 量子井戸における非線型励起子内部遷移の典型的なデータ。図8（右）：実験から得られた励起子エネルギー準位の磁場依存性。[Kono *et al.* 1997]。

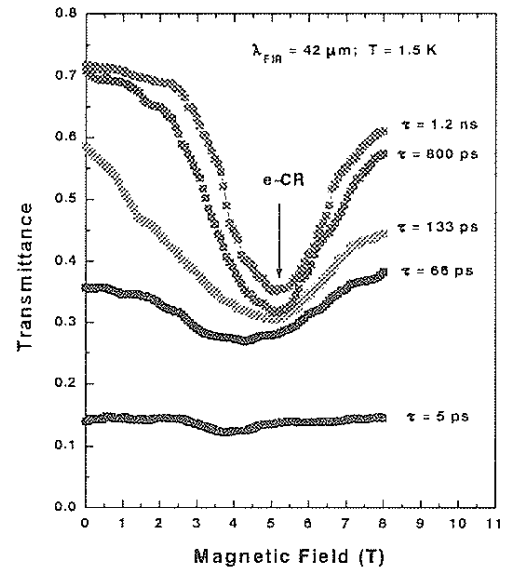
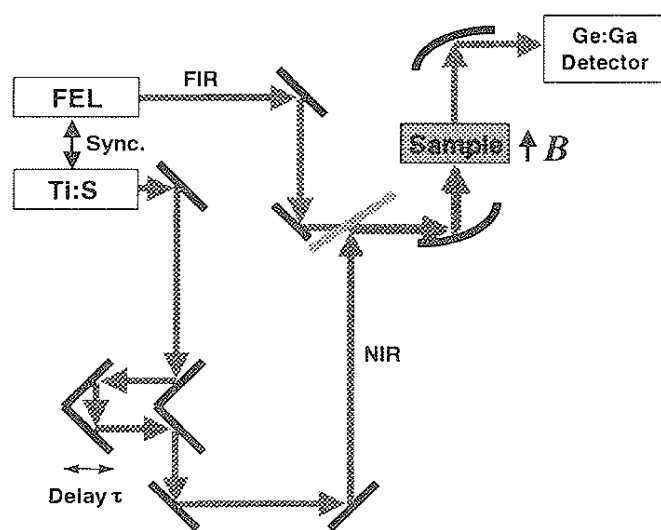


図 9（左）：テラヘルツ自由電子レーザーを用いた、ピコ秒時間分解サイクロトロン共鳴の実験系。図 10（右）：ピコ秒時間分解サイクロトロン共鳴の典型的な実験データ。試料は InSb。[Kono *et al.* 1999]。

上記の二つの例は超伝導磁石による定常低磁場を用いているが、このようなユニークな非線型・時間分解実験をパルス強磁場へ応用することは十分に可能である。特に、フェムト秒チタン酸サファイアレーザーと同期したメガヘルツ領域の繰り返し周波数を持つ FEL と超ロングパルス非破壊パルス磁場との組み合わせは最も理想的であろう。さらに付言すべきことは、テラヘルツではなく中赤外領域に話を限れば、テーブルトップの光パラメトリック増幅器（Optical Parametric Amplifier: OPA）による中赤外超短パルス（3-20 μm ）がこのような実験に使え、FEL にはどうしても必要な巨大な加速器建設を避けることができる。

2-2. 可能になるサイエンス

2-2.1. 量子井戸励起子の量子光学

強磁場中励起子の超高速・非線型スペクトロスコピーは、固体における非線型光学・量子光学上の基本的かつ未解決の問題を取り扱う絶好の舞台を作り出す。特に、強レーザー電場と強磁場の同時存在下に置かれた量子井戸励起子の量子状態をまたさらに別の超短パルスレーザーでプローブすることには特に興味を持たれる。強レーザー電場は励起子の内部準位をドライブして衣を着せコヒーレントな重ね合わせ状態を形成する。井戸面に垂直にかけられた強磁場は系の運動の自由度を凍結するのみならず、励起子内部準位エネルギーを自由にコントロールする。通常の原子に比べて1000倍から10000倍大きなボーア半径を持つ励起子はレーザー光と非常に強

く相互作用するため、このような研究は原子スペクトロスコピーでは想像できないような超非摂動非線型光学現象の発見につながる可能性がある。また、光と原子の相互作用の研究で培われてきた量子光学の諸概念がどこまで光と励起子の相互作用に適用できるのかということは非常に興味を持たれる物理的な問題であると同時に、固体中での光による量子情報処理・量子計算という最先端のテクノロジーの問題にも関連する。

井下は、最近の計算で、ランダウ量子化された2次元系とテラヘルツ強電場の非摂動相互作用は、2準位原子におけるような単純な描像は当てはまらないことを示した [Inoshita 2002]。特に、図 11 に示すように、サイクロトロン共鳴の条件を満たした場合あるいはテラヘルツ強度がある程度以上に大きい場合にテラヘルツサイドバンドが消滅するという非常に非直感的でエキサイティングな予言をした。また、Johnsen は、テラヘルツ強電場にドライブされた2次元励起子の問題はカオス的な不安定性を含むことを理論的に示唆した。図 12 に示すように、テラヘルツの強度を上げていくと、磁気励起子吸収スペクトルは非常に複雑な振る舞いを示す。このような理論的予言はまだ実験的に検証されていない。

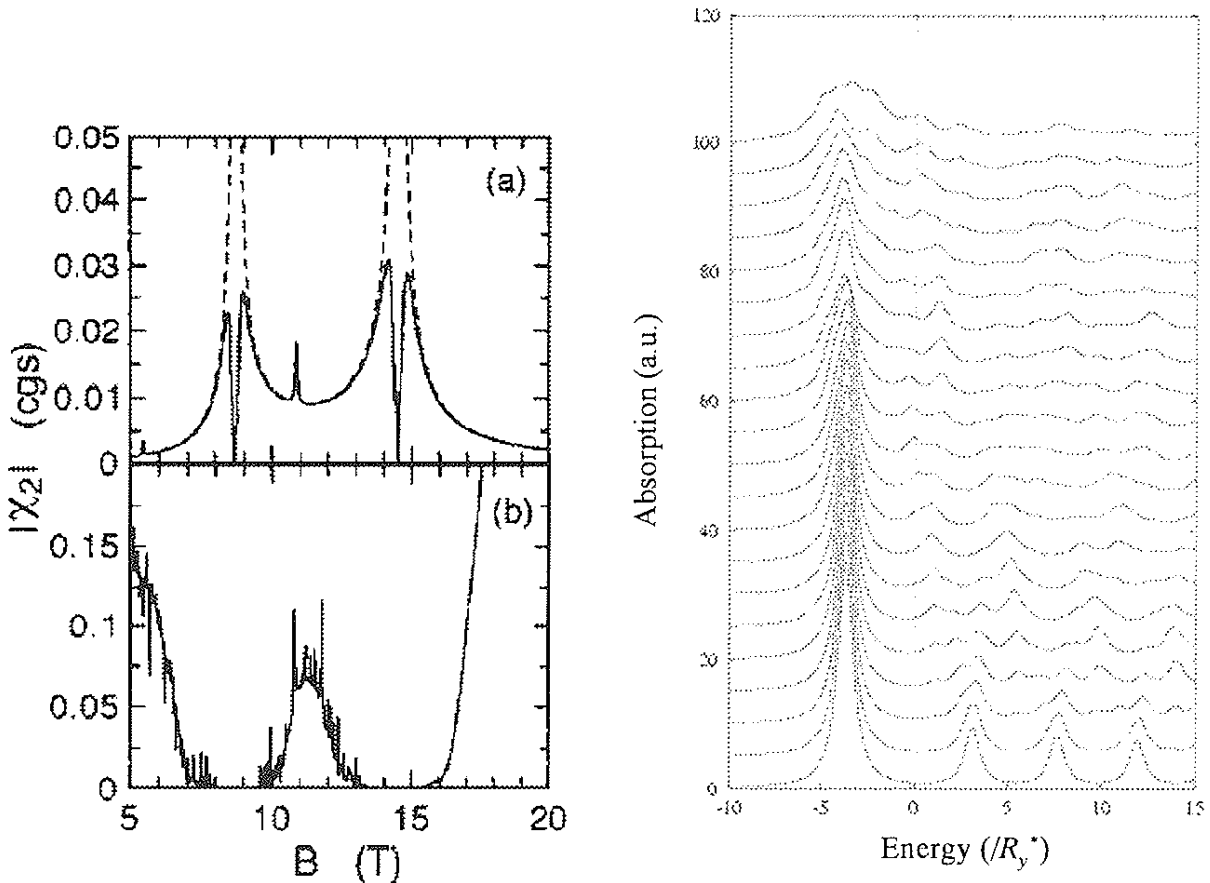


図 11 (左) : 磁場中 GaAs 量子井戸中の電子・正孔対と高強度テラヘルツ電場との相互作用を表す第二次非線型光学係数の磁場依存性 [Inoshita 2000]。図 12 (右) : 強テラヘルツ存在下における磁場中2次元励起子の帯間吸収スペクトルのテラヘルツ強度依存性 [K. Johnsen, private communication]。

このような研究を行うためには、励起子の内部遷移エネルギーと同程度のフォトンエネルギーを持ち、かつ高強度でコヒーレントな光源が必要である。InSb, InAs, GaAs 等の量子井戸であればテラヘルツ、GaN, ZnSe, ZnO 等の物質であれば中赤外の波長領域に対応する。また、上記のような理想的な強磁場励起子状態に達するためには、サイクロトロン周波数が励起子の束縛エネルギーの数倍から数十倍以上になることが必要である。最高磁場 80 テスラ、持続時間 1 秒のパルスマグネットと FEL あるいは OPA を組み合わせればこのような条件は満たされるであろう。

2-2.2. カーボンナノチューブの磁場誘起電子相転移

1991 年の飯島による発見以来 [Iijima 1991]、カーボンナノチューブの性質は多くの研究者を魅了してきた。一見非常に単純な一次元構造に見えながら、その機械的・電氣的・磁氣的・光学的性質は存在するどの物質と比べても特異である。ここでは、あまりまだ考えられていない磁気光学効果について触れてみる。カーボンナノチューブのバンド構造と光学的性質は多くの研究者によって計算されているが、その擬一次元性を反映したサブバンド構造とヴァン・ホッフ特異点は実にユニークである。さらに、二つの整数 (n, m) によって指定される構造の幾何学的な特徴（カイラリティ）の違いによって半導体にも金属にもなりうる。図 13 にいくつかの (n, m) を持ったカーボンナノチューブの状態密度を示す。

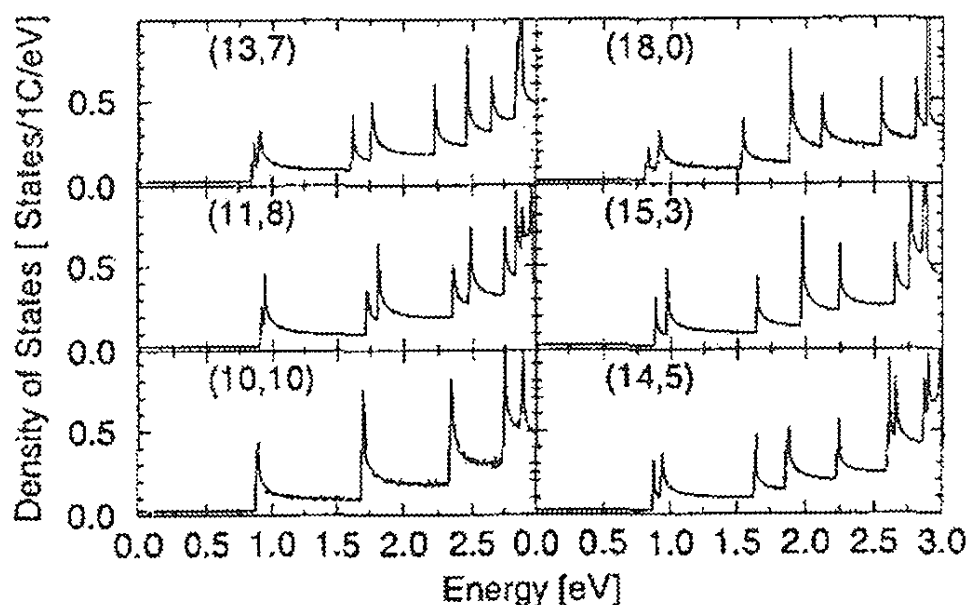


図 13 いくつかの異なったカイラリティを持ったカーボンナノチューブに対して計算された状態密度 [Saito and Kataura 2001]。

Ando と Ajiki は磁場がチューブ方向に存在する場合のバンド構造の変化を計算したが、金属および半導体ナノチューブのバンドギャップと磁場の関係を図 14 に示す [Ando and Ajiki 1997]。ここで、 $v = 0$ が金属、 $v = \pm 1$ が半導体であり、横軸はチューブの断面を貫く磁束の大きさを量子磁束を単位として表している。電子の波動関数に対する円周方向の境界条件は Aharonov-Bohm 磁束

によって周期的に変化するが、このことがバンドギャップの大きさに直接現れる。すなわち、バンドギャップは磁場の関数としてゼロと半径で決まる有限値の間を振動する。このような exotic な現象はまだ実験的には観測されていないが、超ロングパルス強磁場と前節で解説した新しい実験技術の組み合わせは非常に有望である。特に、時間領域テラヘルツスペクトロスコピーは低周波においても大きな信号・ノイズ比を持つため、金属ナノチューブにおいて磁場によって誘起された小さなギャップを観測するにはもってこいである。参考までに、半径が 1 nm 程度の半導体ナノチューブのバンドギャップを磁場によって完全にゼロ（つまり金属）にするためには約 1 0 0 0 テスラの磁場が必要である。

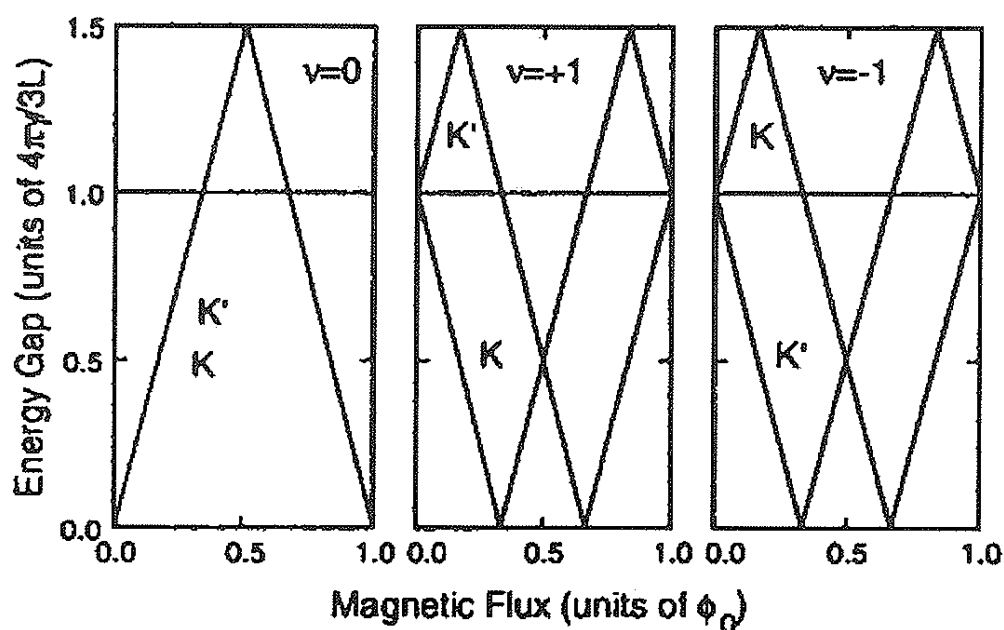


図 14 Ando と Ajiki によって計算された金属 ($\nu = 0$) および半導体 ($\nu = \pm 1$) カーボンナノチューブのバンドギャップの磁場依存性。横軸はチューブの断面を貫く磁束である。[Ando and Ajiki 1997]。

参考文献

- Ando, T. and H. Ajiki, Carbon nanotubes in magnetic fields, *Proc. of 12th Int. Conf. on High Magnetic Fields in the Physics of Semiconductors*, eds. G. Landwehr and W. Ossau (World Scientific, Singapore, 1997), pp. 915-926.
- Brau, C. A., *Free-Electron Lasers* (Academic Press, San Diego, 1990).
- Crooker, S. A., Fiber-coupled antennas for ultrafast coherent terahertz spectroscopy in low temperatures and high magnetic fields, arXiv:physics/0204016, 4 Apr 2002.
- Iijima, S., Helical microtubules of graphitic carbon, *Nature* **354**, 56 (1991).
- Inoshita, T., Light scattering by Landau levels driven by intense terahertz radiation, *Phys. Rev. B* **61**, 15610 (2000).

- Keay, B. J., S. Zeuner, S. J. Allen, Jr., K. D. Maranowski, A. C. Gossard, U. Bhattacharya, and M. J. W. Rodwell, Dynamic localization, absolute negative conductance, and stimulated, multiphoton emission in sequential resonant tunneling semiconductor superlattices, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4102 (1995).
- Kono, J., M. Y. Su, T. Inoshita, T. Noda, M. S. Sherwin, S. J. Allen, Jr., and H. Sakaki, Resonant terahertz optical sideband generation from confined magnetoexcitons, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1758 (1997).
- Kono, J., A. H. Chin, A. P. Mitchell, T. Takahashi, and H. Akiyama, Picosecond time-resolved cyclotron resonance in semiconductors, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1119 (1999).
- Nuss, M. C. and J. Orenstein, Terahertz time-domain spectroscopy, in *Millimeter and Submillimeter Wave Spectroscopy of Solids*, ed. G. Grüner (Springer, Berlin, 1998), pp. 7-50.
- Nuss, M. C., K. W. Goosen, J. P. Gordon, P. M. Mankiewich, M. L. O Malley, and M. Bhushan, Terahertz time-domain measurement of the conductivity and superconducting band gap in niobium, *J. Appl. Phys.* **70**, 2238 (1991).
- Saito, R. and H. Kataura, Optical Properties and Raman Spectroscopy of Carbon Nanotubes, in *Carbon Nanotubes*, eds. M. S. Dresselhaus, G. Dresselhaus, and P. Avouris (Springer, Berlin, 2001), pp. 216-250.
- Unterrainer, K., B. J. Keay, M. C. Wanke, S. J. Allen, D. Leonard, G. Medeiros-Ribeiro, U. Bhattacharya, and M. J. W. Rodwell, Inverse Bloch oscillator: strong terahertz-photocurrent resonances at the Bloch frequency, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2973 (1996).

VIII. 表面研究・化学反応

東京大学物性研究所

小森文夫

1. 強磁場と表面研究

強磁場と組み合わせた表面物性の研究は、十年ほど前よりようやく始められるようになってきた。強磁場を用いた研究が困難であった理由は、試料作製や評価に欠かせない多くの基礎的な表面分析手法と強磁場が両立しなかったからである。例えば、清浄表面の規則原子配列は、日常的に電子回折と電子分光によって確認され、そのどちらも低速の電子を利用しているために地球磁場を防ぐ磁気シールド中で行なわれている。したがって、清浄化された表面を無磁場下で評価確認した後に、その物性を強磁場中で調べようとする、もれ磁場が問題とならない程度となる離れた場所への超高真空中での試料搬送が不可欠となる。最近になって超高真空技術が普及してきたおかげで、この試料搬送が比較的容易となり、定常高磁場中での実験が行なわれるようになった。表面物性研究においても主な磁場中での興味の対象は磁性であり、磁気光学カー効果[1]、常磁性共鳴、強磁性共鳴[2]、超伝導量子干渉計（SQUID）および走査トンネル顕微鏡（STM）などが定常磁場中で用いられている。このうちの磁気光学カー効果と磁気共鳴は、将来パルス強磁場とも組み合わせて研究が可能と考えられるので、以下に紹介する。

1.1 磁気光学カー効果

磁気光学カー効果はバルクな物質や薄膜では古くから観測されているが、これが最初に超高真空中で観測されたのは1980年代である。Baderら[3]は、ヘリウムネオンレーザーを用いて、金（100）清浄表面上に作製した数原子層厚の鉄薄膜のヒステリシス曲線を測定した。研究初期には、簡単なヘルムホルツコイルによる低磁場での測定のみが行なわれていたが、その後、大きな電磁石や超伝導磁石と組み合わせた装置も用いられるようになった。図1には、超伝導磁石付きの超高真空装置の例を示した。これらを使った強磁場中では、ヒステリシス曲線だけでなく超常磁性の磁化過程も観察されている。数原子層程度の超薄膜や表面吸着による磁化曲線や磁気異方性の変化などの測定では、光カー回転角の変化も小さいので、高感度測定が要求される。そこで、通常は光を変調しロックインアンプを用いた検出により感度をあげている。したがって、この方法をパルス磁場との組み合わせるためには、高速かつ高感度な光学測定が必要となってくる。表面研究における磁気光学カー効果測定では連続レーザー光を使うことが一般的であるが、パルスレーザを用いた測定も可能である。後者

をパルス磁場と同期させる方法も考えられる。

1990年代に入って、パルスレーザを使った新しい手法として磁気誘起表面第二高調波発生や第二高調波の偏光回転効果である非線形磁気カー効果を用いる方法が開発された。[4] 空間反転対称性のある結晶においても、その表面ではパルスレーザ光の反射によって高調波が発生することが知られており、これまで表面物性の研究に用いられてきた。磁性体表面においては、発生する第二高調波の強度や偏光が表面磁化の方向に依存することを利用して研究が行なわれている。この方法は、表面や界面第1層の磁気モーメントのみに敏感なので、数十 nm の深さのバルクの磁気情報も検出してしまう線形磁気カー効果と比べて表面感度が高い。また、パルスレーザを用いていることの利点を生かして、ポンプ-プローブ法による磁気緩和測定も行なうことができる。[4] 一方、実用的な測定を行なおうとするとパルスレーザ光密度を平均 100 mW/cm^2 以上にする必要があり、表面からの光刺激脱離などレーザ光による表面変化を考慮しなければならない場合があるので注意が必要である。

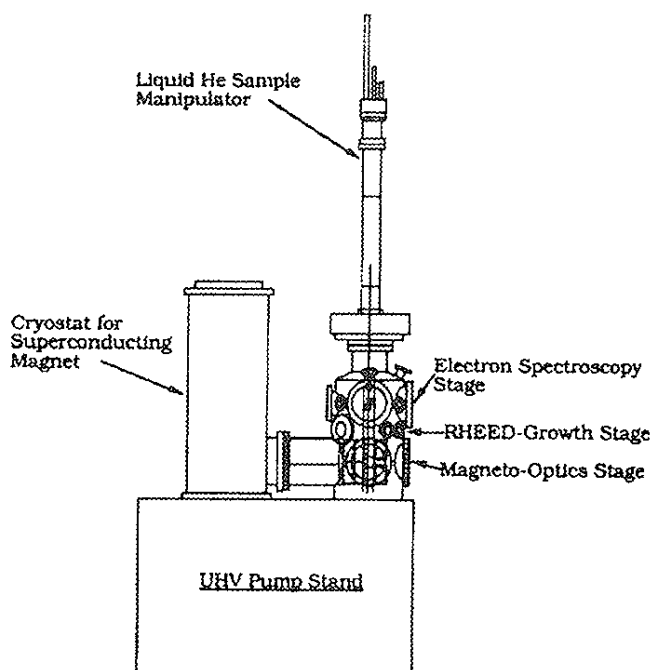


図1 超伝導磁石を用いた超高真空磁気カー効果測定装置の概念図[1]

1. 2 磁気共鳴

マイクロ波を用いた磁気共鳴は、表面単原子層以下のスピン密度に対しても室温で十分な感度があるので、超高真空中で表面吸着分子運動や表面磁性体の研究に用いられている。常

磁性共鳴信号は単結晶アルミナ表面に吸着した NO_2 分子で始めて観測され[5]、その信号解析から NO_2 分子の表面熱拡散が議論された。実験では、電磁石のポールピース中に石英ガラスで作成した超高真空容器を配置し、市販の X バンドの電子スピン共鳴装置を組み合わせ使用している。試料は磁場外の超高真空容器中で作成され、その後磁場中央まで搬送される。図 2 には、融合研で用いられている装置[6]の該略図を示した。この装置を用いて、シリコン表面の水素化過程[6]や酸化過程[7]が研究されている。固体表面上の強磁性体超薄膜や微粒子については、強磁性共鳴[2]が行われ、薄膜の磁気異方性[8]や微粒子の酸化過程[9]が研究されている。今後、バルクな物質用に開発されているパルス強磁場中での磁気共鳴法もこのような系にも応用できるようになると期待される。

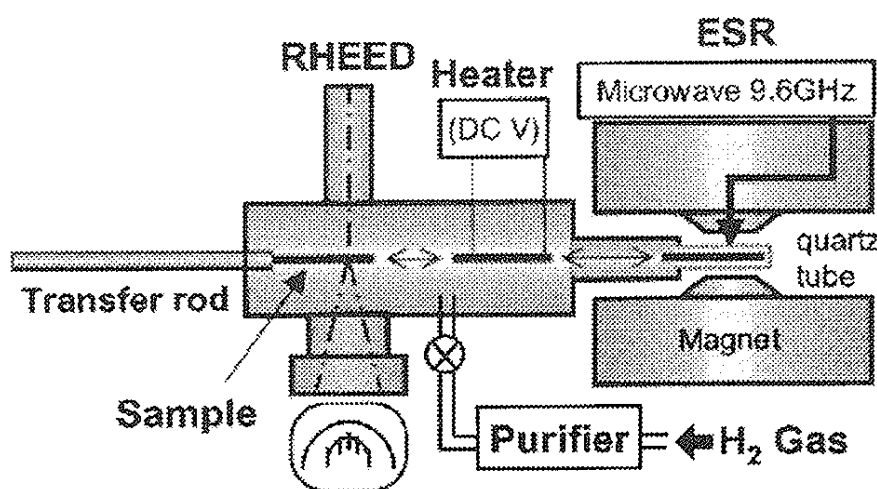


図 2 超高真空電子スピン共鳴装置の概念図[6]。電子回折装置付きの準備室で清浄な表面を作製し、その試料を磁場中心に搬送してから ESR 測定を行う。

2. 強磁場と化学反応

鏡像異性配置な分子の選択的合成などの非対称な化学反応を強磁場によって引き起こすことができるかどうかについては、古くから興味を持たれ、さまざまな反応について研究が行われてきた。定常磁場による電子のゼーマンエネルギーは化学反応のエネルギーに比べて一般に小さいが、不対電子をもつラジカルの対反応では、磁場によってスピントリプレット状態が実現して、大きな反応非対称が現れる場合があることが理論的に予想されている。[10] 一方、磁場効果に肯定的な研究結果の中にはその再現性について疑問がもたれる場合があることも指摘されている。[11]

明確な磁場効果が観測されている化学反応としては、電解液中でおこる電気化学反応がある。多くの電気化学反応では、金属電極表面における化学反応に磁場が直接影響を与えるの

はなく、電解液中のイオンの移動が磁場によって影響を受ける電磁流体力学効果によって反応が変化する。[12] その結果として、電極表面に形成される金属やポリマーのミクロな構造が外部磁場に依存することになる。強磁場中での溶液化学反応においては、この電磁流体力学効果以外にも、形成される分子の反磁性による反応変化[13]やパルスレーザー光によって生成したラジカル対反応の機構[14]が考えられ、磁場効果が確認されている。磁場中でさらに広範な化学反応を調べることにより、磁場効果のメカニズム解明が進むとともに、その結果作製された物質の様々な応用も広がるであろう。

参考文献

- [1] 総説として、S. D. Bader and J. L. Erskine, "Magnetooptical Effects in Ultrathin Magnetic Structures", in *Ultrathin Magnetic structures II*, ed. by B. Heinrich and J. A. C. Bland (Springer, Berlin, 1994)
- [2] 総説として、M. Farle, *Rep. Prog. Phys.* 61 (1998) 755.
- [3] S. D. Bader, E. R. Moog and P. Grunberg, *J. Magn. Magn. Mat.* 53 (1986) L295.
- [4] 総説として、Th. Rasing, *J. Magn. Magn. Mat.* 175 (1997) 35.
- [5] H. Schlienz, M. Beckenforf, U. J. Katter, T. Risse and H. J. Freund, *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995) 761.
- [6] W. Futako, M. Nishizawa, T. Yasuda, J. Isoya and S. Yamasaki, *J. Vac. Sci. & Tech. B* 19 (2001) 1898.
- [7] T. Umeda, M. Nishizawa, T. Yasuda, J. Isoya and S. Yamasaki and K Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* 86 (2001) 1054.
- [8] W. Platow, A. N. Anisimov, M. Farle and K. Baberschke, *Phys. Stat. Solidi A* 173 (1999) 145.
- [9] T. Hill, M. Mozaffari-Afshar, J. Schmidt, T. Risse and H. J. Freund, *Surf. Sci.* 429 (1999) 246.
- [10] R. A. Hegstrom and D. K. Kondepudi, *Chem. Phys. Lett.* 253 (1996) 322.
- [11] 総説として、M. Avalos, R. Babiano, P. Cintas, J. L. Jimenez and J. C. Palacios, *Chem. Rev.* 98 (1998) 2391.
- [12] 総説として、T. Z. Fahidy, *Prog. Surf. Sci.* 68 (2001) 155.
- [13] I. Mogi, K. Watanabe and M. Motokawa, *Synth. Met.* 98 (1998) 41.
- [14] H. Hayashi, Y. Sakaguchi, M. Wakasa, *B. Chem. Soc. Jpn.* 74 (2001) 773.

IX. 非破壊パルスマグネットの技術的可能性

レーベン大学（ベルギー）
フリッツ ヘルラッハ
大阪大学 極限科学研究センター
金道浩一

1. 強磁場の現状

現代科学における強磁場の必要性は、様々な分野で増加している[1,2]。世界各地ではその必要性に対応した様々な強磁場が開発されており、定常磁場では水冷式で33Tまでが、そしてハイブリッド方式で45Tまでが利用可能となっている [3]。次の10年間で50Tまでを目指した計画が進行中であるが、現段階において定常強磁場の発生限界は45Tであり、これ以上の磁場はパルスマグネットでなければ発生不可能である。現在では、非破壊パルスマグネットにより約80Tまでの最高磁場が発生され、70Tまでの実用磁場が使用可能となっている。ここで実用磁場とは、マグネットが金属疲労などにより壊れるまでの磁場発生回数が十分大きく（100～1000回が目安）数多くの実験ができる磁場のことである。パルス磁場に関しては、実用磁場を80Tまでのばし[4]、最終的には100Tを目指す試みが進行中である。

非破壊パルスマグネットは、その実用的なコンパクトさゆえに設備投資およびその維持運営が低コストで済むすぐれた実験装置である。そのために、定常磁場がカバーしうる45T以下の磁場領域においてでさえパルスマグネットが広く使われている場合も多い。多くの研究室で用いられている典型的なパルスマグネットはコイル部にあたる導体の質量が2～3キログラム(kg)、必要となる電源のエネルギーが0.1～2メガジュール(MJ)、内径が10～20mm ϕ 、パルス幅が10ミリ秒(ms)前後で60Tまでを実用的な磁場範囲として用いられている。最新の測定装置と組み合わせることによってたいいていの実験を10msのパルス幅で行うことが可能である。10ms以下では、渦電流や振動などに起因する様々な問題が生じる。10msでは困難な実験（熱的な測定、超低温、金属試料など）にはもっと長いパルス幅を持ったロングパルスマグネットが必要であるが、無限に長くできるわけではなく、パルス幅の長さの現実的な限界は秒オーダーである。その理由は、電源として100MJものエネルギーが必要となるからであり、またコイルはこのエネルギーを熱として断熱的に吸収するため、きわめて巨大とならざるを得ないからである。この大きさのマグネットおよび電源の規模となると一大学での運営は困難であり、国立の強磁場施設といった形態以外での設置は不可能である。世界全体を見ても、ロスアラモス（米）の国立強磁場研究所に設置された巨大なマグネット以外にこの規模のマグネットの例はない。

2. エネルギーとパルス幅

パルス幅 Δt は第一にはエネルギー W によって決定される。またエネルギー W はマグネットの質量に関係付けられる量である。もちろんこれはピーク磁場 B 、コイル線材の電気的性質（電気抵抗率 ρ ）および熱的性質（比熱 c_p ）の関数でもある。これらの諸量は(1)式で表される作用積分 J と呼ばれる一つの関数にまとめることができる。作用積分 J は初期温度 (T) と終温度 (T_0) の関数となっている。

$$J = \int_{T_0}^T \frac{c_p}{\rho} dt \quad (1)$$

磁場と電流の関係を代入して積分を実行することにより、以下のような内半径 a を含んだ簡単なスケールリング則が得られる。

$$\Delta t = f^2 K_1 a^2 B^{-2} \quad (\text{エネルギー一定の場合}) \quad (2)$$

$$\Delta t = f^2 K_2 W_m^{2/3} B^{-10/3} \quad (\text{内径一定の場合}) \quad (3)$$

これらの二つの式は、磁気エネルギーの表式(4)によって関係付けられる。

$$W_m = \frac{1}{2} L I^2 = K_3 a^3 B^2 \quad (4)$$

電源が供給するべき全エネルギーは磁気的なエネルギー W_m とピーク磁場までのジュール熱 W_J との和である。磁場波形がプラトーを作る場合は、プラトーの間のジュール熱も加えなければならない。ジュール熱は(5)式で与えられる。

$$W_J = \int_0^{peak} R I^2 dt \approx K_4 \frac{\Delta t}{\tau} W_m. \quad (5)$$

K_1 、 K_2 そして K_3 は定数であり、コイルの形状、材料、初期温度、終温度、磁場波形などに依存する量である。 K_4 は磁場波形にのみ依存する定数である。これらの定数は、同じように製作された同じ形状のコイルではすべて同じになる。これらの定数の関連した様々なパラメータに対する依存性は文献 [5]に詳述されている。これらのスケーリングの関係は荒っぽい評価を与えることはできるが、個々のデザインに対してはもっと複雑なコンピュータによる計算が必要であることを付け加えておく。

これらの式中で用いられた他の変数は以下の通りである。

表 1 レーベン大学のコイル

55	70	[T]	ピーク磁場
18	10	[mm]	内径
80	73	[mm]	外形
85	105	[mm]	コイル長
30	8	[ms]	パルス幅
7	2.3	[ms]	ピークまでの時間
300	275	[kJ]	エネルギー

表2 大阪大学のコイル

55	70	[T]	ピーク磁場
18	11	[mm]	内径
60	60	[mm]	外形
120	120	[mm]	コイル長
7	8	[ms]	パルス幅
3	3	[ms]	ピークまでの時間
185	260	[kJ]	エネルギー

f 充填率（導体/絶縁体の比）
 L コイルのインダクタンス
 R コイルの抵抗
 I ピーク電流
 $\tau = L/R$ コイルの時定数

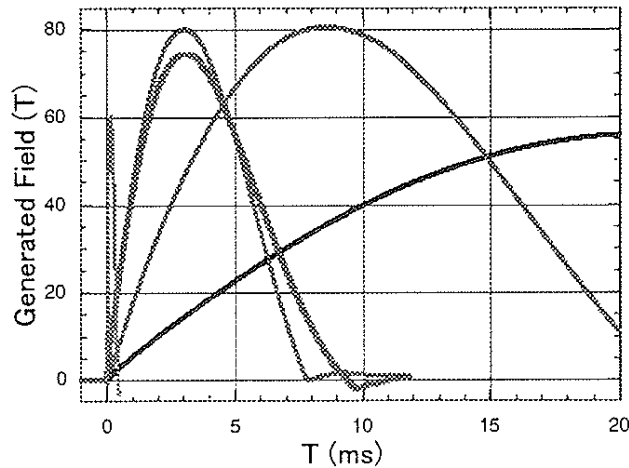


図 1 大阪大学で開発された様々なマグネットにより発生された磁場波形

スケーリングを行う際に、既に実績のあるコイルを基準にして考えることが出来る。ここでは、世界で最も実績のあるリュウベン大学と大阪大学のコイルの例を示す。これ以外にも様々な強磁場コイルが世界各地の研究室で使われており、それらの多くについては最近のレビュー [6]にまとめている。

次に、大阪大学において実際に発生された磁場波形を図1に示す。この図中で最も長いパルス幅の磁場波形をもとにして、秒オーダーのパルス幅を得るために要するエネルギーの評価を試みよう。図中の磁場波形は、ピークまでの時間が約20msである。秒オーダーの磁場波形ではこれを500msまでのばすことになり、それにかかるエネルギーは $500/20=25$ 倍である。いま、20msの磁場で約1MJを投入しているため500msには最低でも25MJが必要となる。現実には(4)式で表される磁気的なエネルギーが加わることや、コイルの巨大化に伴う L の増加が起きるため、25MJは最低限のエネルギーの見積もりであり、むしろ25MJのエネルギーでは不十分であることを示している。この事は、後述するトゥールーズ（仏）でのケースを考えると妥当な結論であると思われる。逆に、コイルのパラメータから考えると、 L と C をともに25倍となるように設計することにより、パルス幅を25倍にすることができる。この場合、電圧を常識的に20kVと設定すると56MJの電源が必要となる。このことから、エネルギーとしては50MJがひとつの基準と考えられる。

3. 応力とピーク磁場の関係

ジュール熱の問題は深刻ではあるけれど、ピーク磁場に対し本質的な影響を与えるわけではない。むしろこの事に深く関わってくるのは、磁気的な応力 $B^2/(2\mu_0)$ である。解析的な計算から磁場と応力の間にスケーリングの関係が各層のコイルに対して得られる。コイルを同じ密度、同じ間隔で巻いた場合にこの関係は、

$$B = \sqrt{2(1-1/\alpha)}\sqrt{2\mu_0\sigma} \quad (\alpha \geq 2) \quad (6)$$

となり、またコイル全体にわたり半径方向の応力が一定となるように設計された場合には次のような関係式となる。

$$B = \sqrt{\ln \alpha} \sqrt{2\mu_0 \sigma} . \quad (7)$$

ここで σ はコイル線材中のフープ応力である。内部補強されたコイルでは、補強材中の応力に置き換えられる。(6)式から計算される磁場は材料による応力限界があるが、伊達が指摘したように、(7)式によれば無限の磁場を発生することができる。しかしながら、対数関数での増加は大変遅く、例えば実用上の限界と思われる $\alpha = 50$ の場合（もし、内径を20mmとすればコイルの外径は1mにも達する）、(7)式から得られる限界磁場は(6)式から得られるその1.43倍にしかならないし、 $\alpha = 100$ にしても1.53倍である。従って、コイルを応力に対して最適化するべきではあろうが、それによる利得は高々50 % 程度にしかならない点は注意しなければならない。

実際のコイルには、フープ応力の他に径方向の応力(σ_r)と軸方向の応力(σ_z)が加わる。塑

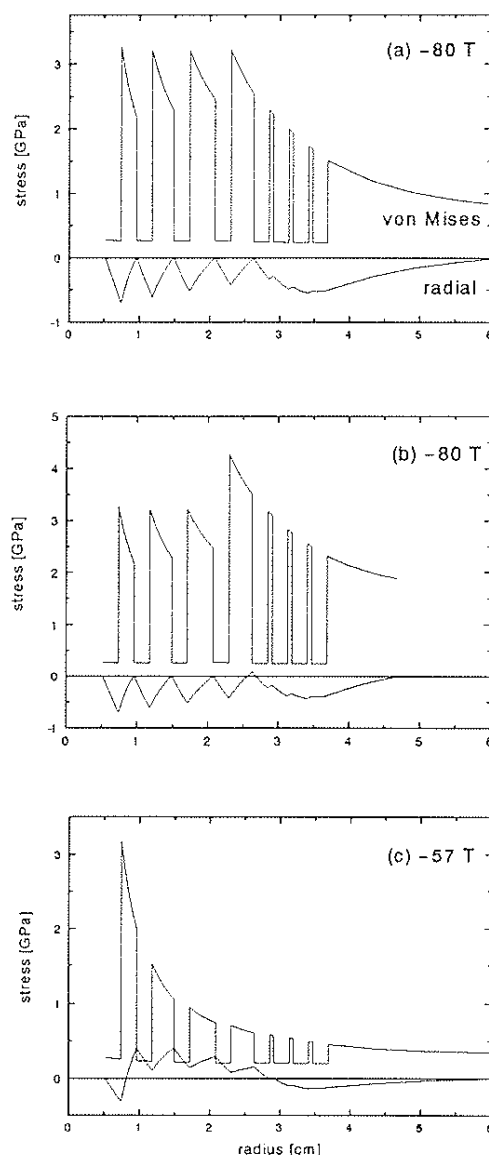


図 2 リューベン方式コイルに対する応力計算。(a)層間分離型 (b)層間分離型で外部補強層を25mmから10mmにしたもの (c)層間密着型

性変形の範囲で起きる材料破壊の基準はフォンミゼス(von Mises)応力と呼ばれ、次式で与えられる。

$$\sigma_{vM} = \sqrt{\sigma_h + \sigma_r + \sigma_z} / 2. \quad (8)$$

普通は、これはフープ応力よりかなり大きくなることはないので、磁場と応力の関係式(6)と(7)は成り立つ。もし、径方向の応力が正になるならば内径に向かうフープ応力が突然増加することになる。これは危なそうな層間に薄いテフロンシートなどを挟み込むことなどによって回避できる。この応力の突然の増加は径方向の弾性率がフープ方向のそれよりも小さければ減少させることができる[7]。繊維補強型はこれに当てはまる。

実際のコイル設計は数値計算に頼らなければならない [8,9]。図2には様々な設計のコイルに対する応力分布の計算例を示している。これは、銅線を巻いたコイルの層間に高強度繊維ザイロンによる最適化された補強を行った場合の応力計算で、実際にこのコイルは77 Tを発生した。図2aは完全に最適化されたコイルの場合の応力分布の計算結果である。ピークの応力値はザイロン補強の限界である3.3 GPaに近くなっている。ザイロン層はこれ以上薄くすることができないので外側の層は最適化不可能である。銅線部分は完全に塑性変形の領域である。銅線を用いることの利点は、銅はほとんど無限の延性を持つことである。他の線材（例えば1 GPa程度の強度を持った複合型線材など）は補強材と弾性率のマッチングをとる必要がある。図2bはさらに外部補強を加えたときの効果について示している。ここでは補強層を25mmから15mmに減らしたことにより第4層の応力が増加している。またこの層の外側との境界における動径応力が少し正になっているが、これは間を少し開けてやることによって応力値を4.2から3.7 GPaに減らすことができる。図2cは各層を隙間無く巻くことによって正の動径応力が生じることを示したものである。これは、同じ応力レベルで考えるとピーク磁場を下げてしまうことになる。内側の各層で内径方向への応力が増加している様子が分かる。

4. コイルの設計

高いパフォーマンスが得られるコンパクトなコイルの作り方にはいくつかの異なった方法があるが、すべて巻き線方式であることは共通している。筆者の一人(KK)の方法は、銅銀合金線で作るコイルを、内部のコイルをマルエージング鋼のパイプで、また最外層をマルエージング鋼のリングで補強する方法である。これは世界で唯一80 Tの発生に成功しているすぐれた方法である[10]。リューベン（ベルギー）においては、筆者の一人(FH)によって図1のような繊維補強型マグネットの最適化システムが開発された。この最適化を行うために開発された特殊な巻き線機を用いてコイルの製作を行っている。Boebingerは軸方向に圧力を加えてクランプする事がコイルのパフォーマンスを上げることを見出し、三種類の異なる線材でコイルを作り、外部補強を施したマグネットを製作した[11]。これから作られるコイルは、これら三種類の作り方の特徴を組み合わせた方法で作られるであろう。

一人がコンパクトなコイルを作るのに要する時間は約一週間である。従って、コイルに何かトラブルが起きてもすぐに新しいものと交換することができる。実際、実験中はコイルがトラブルの前兆を示さないか注意深くモニターしている。そうすることでコイルと組み合わせて使用している大事な実験装置が破損を受けることを回避するのである。また、このようにしてコイルの寿命ぎりぎりまで実験使用することができるのである。

5. 長時間パルスマグネットとデュアルコイル

ロングパルスマグネットは大変大きく、高価なものとなる。投入されるエネルギーが大きいため、トラブル発生は大きな爆発を伴う。コイルのトラブルを避けるために注意深く製作しなければならないし、その設計もより保守的に行わなければならない。このカテゴリーに属するコイルがこれまでに使われた例は少なく、たった二カ所—アムステルダム大学の40 T

マグネットとロスアラモスの60 Tマグネットだけである。どちらのマグネットも巻き線方式であり、アムステルダムマグネットは内部補強用パイプを一つだけ入れたコンパクトなもので、ロスアラモスのものは独立したコイルをそれぞれ鋼鉄製のパイプで補強し、それらを独立に組み合わせたものである。ロスアラモスタイプが独立したコイルを組み合わせているのは、あるコイルに偶発的にトラブルが起きたとしても、他のコイルに被害を及ぼさないことをねらったからであるが、実際にはすべてのコイルが壊れてしまった[13]。このコイルシステムの再開には約一億円程度のコストがかかりそうである。アムステルダムの装置も近いうちに閉鎖することが決まっており、世界的に見てもう一カ所か二カ所でこのカテゴリーのマグネット（できれば、もっと改良された形で）が必要である。

EU主催による“100 Tマグネットの利用とその原型に関する研究”から得られた結論は、非破壊で最も強い磁場を発生するためにはデュアルコイルシステムが必要であるというものであった。このコイルシステムは、内、外の二種類のコイルを組み合わせて作られるもの

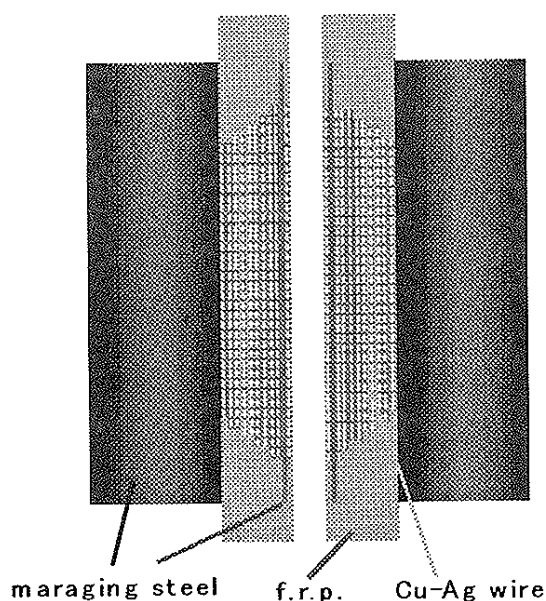


図 3 大阪大学で開発された80Tマグネット。世界で唯一80Tの発生に成功している。

で、外側の大きなコイルは通常の方法で作られたもので“背景磁場”として50 Tを発生する。内側のコイルは外側のコイルより短いパルス幅で50 Tを発生し、合わせて100 Tとなるようにする。コイルを分割する理由は純粋に電源との関係による。同じ大きさのコイルを分割せずに作ったとしても少なくとも力学的に同じパフォーマンスを得られるはずである。しかしながら、最も強い磁場を得るためには内部のコイルに強度の高い材料を用いることが必要となり、これは全電気抵抗の上昇へとつながり、ひいてはパルス幅の減少へとつながる。大きなコイルに大きなエネルギーを短時間に供給するには大変大きなエネルギーが必要となり、それが技術的に可能であっても極めて高額なものになってしまう。全体として巨大なサイズのマグネットは、実用的な内径を持ちかつ大きな内外径比 α を実現するためにこそ必要なのである。

6. 国立パルス強磁場研究所設立への提言

ロングパルスマグネットの開発、設置のための人材、予算は極めて巨大であり、国立の施設が必要となる資源を持つべきである。またロングパルスマグネットは100 Tを目指した強磁場開発にも必要である。これまでに用いられた電源は、電力幹線からの直接入力（アムステルダム）とフライホイール発電機（ロスアラモス）の二種類である。電力幹線への直接接

続は研究所のそばに利用できる電力網が存在するなどの好条件でのみ可能である。フライホイール発電機は高価である。もう使われなくなった発電機をただでもらってくることは可能なようであるが、その時でさえ、輸送と設置は高くつく。さらに、フライホイール発電機の操作はそれ程簡単ではないし、維持に手間がかかるようである。それゆえに、次世代ロングパルスマグネット施設には高密度のコンデンサバンクの導入を検討することを勧める。ヨーロッパのARMS計画ではデュアルコイルによる80 T実用磁場の開発を目指して50MJのエネルギーを持つコンデンサバンクの導入を計画しているが、エネルギーの大きさとしては50 MJが適当だと思われる。なぜなら、トゥールーズ（仏）の14 MJの電源では、内径が狭くなり、パルス幅がやや短くなってしまったからである。電源のエネルギーが不足してしまうと、外コイルの内径が狭くなり、これが内コイルの内径を狭めてしまうだけでなく、パルス幅を短くしてしまうことが問題となるのである。

施設に設置するべきものは、ロングパルスや100 T用の巨大なマグネットだけでなくそれとは別の十分な数のコンパクトなマグネットとその電源も必要である。これらは2 MJ程度のエネルギーのコンデンサ電源が一台あれば約六ヶ所の独立したマグネットステーションに設置されたコンパクトなマグネットを稼働させることができる。それぞれのステーションが順番に電源を使用して、自分の番になったときにそれぞれが必要なエネルギーおよび容量を遠隔操作によって制御する事によって独立した実験が同時に行えるのである。この方法は限られたすぐれた測定装置類を複数の異なった実験間で分かち合うことができる点で費用を抑える効果がある。

最後に、低磁場用の実験に複数の超伝導マグネットと非破壊強磁場を超える実験のためにメガガウスを発生できる設備を備えることが望ましい。

参考文献

- [1] S. Keller (chair) *High Magnetic Fields Research and Facilities* (National Research Council, Washington, D.C. 1979); F. Seitz and R.C. Richardson (chairs) *NSF panel report on Large Magnetic Fields* (NSF, Washington, D.C. 1988)
- [2] M. Springford *et al* eds., *The Scientific Case for a European Laboratory for 100 Tesla Science*, ESF study report (European Science Foundation, Strasbourg 1998): available on the internet at <http://www.esf.org/ftp/pdf/Pesc/100T.pdf>.
- [3] B.L. Brandt *et al*, *Physica B* 294-295 (2001) 505-11
- [4] EU project *Advanced Research Magnet Systems*, website <http://www-arms.physics.ox.ac.uk/>
- [5] Fritz Herlach, *Rep. Prog. Phys.* 62 (1999) 859-920
- [6] F. Herlach, *Physica B* 294-295 (2001) 500-4
- [7] J. Witters and F. Herlach, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 16 (1983) 255-60
- [8] L. Li and F. Herlach, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 31 (1998) 1320-8
- [9] L. Li and F. Herlach, *Meas. Sci. Technol.* 6 (1995) 1035-42
- [10] K. Kindo, *Physica B* 294-295 (2001) 585-90
- [11] K. Rosseel *et al*, *Physica B* 294-295 (2001) 657-60
- [12] G.S. Boebinger, A. Passner and J. Bevk, *Physica B* 201 (1994) 560-4
- [13] J. Sims *et al*, *Proc. 17th International Conf. on Magnet Technology*, Geneva, Sept. 24-28 (2001), to be published in *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*

非売品

平成 14 年 7 月 発行

発行者 強磁場フォーラム

事務局 〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

東京大学物性研究所・三浦研究室内

電話 (04)-7136-3335

印刷所

〒162-0818 東京都新宿区築地町 20-2

竹印刷(株)

電話 (03)3269-6388