

100 テスラ領域における 強磁場スピン科学の構築

(課題番号: 16634006)

平成 16 年度科学研究費補助金(基盤研究(C)(1))研究成果報告書

平成 16 年3月

目次

はじめに：野尻浩之	…3
I 強磁場施設の現状と将来(磁場発生技術、施設、組織の観点から)	
I-1 物質・材料研究機構つくば強磁場センターの現状および世界の現状：木戸義男	…5
I-2 東北大学金研における無冷媒超伝導磁石を基盤とする定常強磁場の現状 ：渡辺和雄	…9
I-3 非破壊パルス磁場の現状：金道浩一	…11
I-4 破壊型メガガウスパルス磁場の現状：嶽山正二郎	…13
I-5 小型パルス磁場の現状：松田康弘	…15
I-6 強磁場国分寺および他分野と連携した強磁場計画：野尻浩之	…19
II 100 テスラ強磁場スピ科学	
II-1 強相関物質系	
1.1 強磁場を用いた四重極転移の研究：榊原俊郎	…23
1.2 ウラン化合物の強磁場物性：網塚浩	…25
1.3 近藤半導体のギャップを強磁場で潰す：高畠敏郎	…27
1.4 超強磁場における希土類系金属間化合物の磁性研究：北澤英明	…31
1.5 フラストレート系物質と強磁場：上田寛	…35
II-2 低次元磁性体、ナノ磁石	
2.1 低温合成法を利用した低次元量子スピン系の開発：蔭山洋	…37
2.2 トリプロンのBEC：吉村一良	…39
2.3 磁場誘起量子相転移：坂井徹	…41
2.4 超強磁場下におけるナノ磁石の動的制御：宮下精二	…43
2.5 超強磁場下における量子トンネル効果の研究：野尻浩之	…47
II-3 超伝導	
3.1 強磁場下における高温超伝導体の磁束状態：小林典男	…51
3.2 強磁場NMRによる強相関電子系の空間変調された超伝導状態の研究 ：熊谷健一	…53
3.3 超伝導体の渦系の微視的研究：町田一成	…57
II-4 有機導体	
4.1 相図、CDW, SDW：宇治進也	…59
4.2 有機導体の磁気光学測定：太田仁	…63

II-5 半導体	
5.1 半導体中伝導電子系の強磁場スピン物性：高増正	…67
5.2 磁性半導体量子構造：嶽山正二郎	…69
II-6 化学、生物、材料化学	
6.1 ナノ細孔に吸着した酸素分子の磁性研究：小林達生	…71
6.2 強磁場下における生体試料の研究：萩原政幸	…73
6.3 マルテンサイト形状記憶合金の磁場誘起歪みの研究：左近拓男	…77
III 強磁場スピン計測	
III-1 中性子、X線	
1.1 強磁場中における中性子散乱—一定常磁場：松田雅昌	…81
1.2 パルス磁場を用いた中性子散乱— J-PARC を中心に：野尻浩之	…83
1.3 X線回折の現状：鳴海康雄	…87
1.4 強磁場 X線分光：稲見俊哉	…91
III-2 NMR/ESR	
2.1 定常磁場 NMR：瀧川仁	…93
2.2 パルス磁場 NMR：鄭国慶	…97
2.3 ハイブリッド磁石による NMR：後藤貴行	…99
2.4 定常磁場高周波 ESR：萩原政幸	…101
2.5 パルス磁場高周波 ESR：太田仁	…105
III-3 輸送現象	
3.1 1100 テスラ近傍における輸送現象測定：長田俊人	…109
3.2 フェルミオロジー：杉山清寛	…111
III-4 STM, AFM, 磁気光学、空間分解	
4.1 STM/AFM：花栗哲郎	…113
4.2 強磁場下における磁気光学イメージング：徳永将史	…117
4.3 強磁場下における顕微分光：三野弘文、音賢一	…121
III-5 分光	
5.1 時間分解分光：日本と世界の現状と今後の方向性：嶽山正二郎	…123
5.2 テラヘルツ分光：今中康貴	…127
5.3 サイクロトロン共鳴：横井裕之	…129
5.4 磁気光学：横井裕之	…133
5.5 強磁場下のラマン散乱：宇田川眞行	…137
III-6 磁気計測、マイクロ計測	
6.1 トルク、マイクロプローブ：大道英二	…139

はじめに ・100 テスラ領域のスピン科学の先導を目指して

強磁場は、電子の軌道運動とスピンに直接結合する制御性の高い外部場であり、磁性、超伝導、半導体はもとよりあらゆる物性研究において今日必要不可欠なものとなっている。日本は強磁場研究で80年代から90年代前半に世界をリードする地位にあったが、90年代後半から欧米では、日本の成果を横目にみながら戦略的にこ入れがなされてきた。その結果、強磁場分野では、次世代強磁場拠点施設のグローバルスタンダードである定常50テスラ、非破壊パルス磁場100テスラの整備を軸に熾烈な競争が展開されている。この間、施設整備に遅れをとるものの、日本の強磁場を用いた物性研究は高いポテンシャルをもち世界の第一線を維持している。最近10年をとっても、各種スピンギャップ物質の発見と探求、磁化の量子化、CMR効果、軌道秩序、磁場誘起超伝導、スピンのボーズアインシュタイン凝縮など数々の日本発の独創的研究を生んできた。

強磁場を用いた研究、特にスピンを扱う科学と言えば磁性が従来その中心であり、磁性学=スピン科学であった。しかしながら高温超伝導体の発見以来、モット絶縁体に代表される強相関物質が未来の機能性材料として極めて有用であることが認識されてきた。強相関性にはスピンが本質的な役割を果たしており、スピンに関する研究は磁性学の枠を越えて飛躍的の広がりを見せている。例えば半導体分野ではスピンと電荷の自由度を組み合わせたスピントロニクスが将来的方向として目指されるなかで、電子状態とスピンの相関あるいはスピン制御による電子制御法の探求が重要な学問的課題となっている。さらに量子計算などの情報科学分野でも、ナノスケールのスピン系を素子として用いる事が目指され、電子スピンを波動関数レベルでマイクロに制御する事が重要な課題となっている。さらに核スピンをプローブとして用いる磁気共鳴診断装置や蛋白質の構造解析などが生命科学・薬学における必須の道具となり、スピンをラベルとする薬剤開発など応用分野でも今後スピン関連の研究の急速な進展が期待される。

このように20世紀に生まれた量子力学に基礎づけられた現代磁性学は、強相関とナノを両輪として、今日より広い課題を含むスピン科学への転換期にあり、そのなかで定常50テスラ、非破壊パルス磁場100テスラ用いた超高精度のマイクロ物性計測の進展がその鍵を握っている。本調査研究では、このような背景を踏まえて、強磁場スピン科学の将来戦略構築を目指して、日本の強磁場研究の現状、強磁場スピン科学の学術的課題およびその推進基盤となる強磁場スピン計測の現状と将来構想に関して1年にわたり議論を続けてきた。本報告書は、この調査研究のまとめであり、日本の強磁場研究の将来方向を指し示す試みである。本報告書により、強磁場研究の進展ならびに将来戦略の構築にむけた関係者の協力や議論が推進され、日本が100テスラ領域における強磁場スピン科学の先導者となることを期待する。

平成17年3月

I 強磁場施設の現状と将来

I-1 物質・材料研究機構つくば強磁場センターの現状および世界の現状

物質・材料研究機構 強磁場センター 木戸義勇

1. はじめに

物質・材料研究機構の強磁場センターは世界有数の規模をもっており、1998年以來ユーザー施設として外来研究者に公開されている。現在年間の共同利用件数は80件程度となっている。強磁場センターでは1976年にNb₃SnおよびV₃Gaを線材とする17.5テスラの超電導磁石の開発に成功した。これは当時の世界記録であり、その後10年にわたってその地位を保持してきた。さらに1986年には18.1テスラの世界記録も達成した。ハイブリッド磁石は1999年に当時世界最高の37.3テスラの磁場を達成した。また現在は920MHzのNMR用超電導磁石も開発し蛋白研究などに利用されている。このように、世界の強磁場開発において、大きな貢献をなしている。

2. 強磁場センターの磁場発生装置

強磁場センターでは以下のハイブリッド磁石、水冷磁石、超伝導磁石およびパルス磁石がユーザーの利用に供されており、以下に表にまとめる。

外部ユーザーに開放されているマグネット一覧

名称	内径 (mm)	発生磁場 (T)
ハイブリッド及び水冷磁石		
ハイブリッド磁石	32-r	35
	52-r	30
	365-r	14
水冷磁石	32-r	25
超電導磁石		
21 T	160-c	18
	50-c	21
20 T-I	52-c	20
20 T-II	52-c	20
18 T	50-c	18
15.5 T	70-c	15.5
伝導冷却型磁石	100-r	12
伝導冷却型磁石	100-r	10
伝導冷却型磁石	100-r	10
Split-Paired Magnet	44-c	15
920 MHz NMR-I	54-r	21.6
920 MHz NMR-II	54-r	21.6
500 MHz NMR	89-r	11.75
パルス磁石		
ロングパルス磁場	15-c	50
水冷パルス磁場	15-c	30

3. 主な研究成果

研究の成果は多方面にわたっているが、最近の成果としては以下の2つがあげられる。

(1) 磁場誘起超伝導体の研究

通常強磁場の印可は超伝導状態を破壊する。しかしながら最近擬2次元系の有機超伝導体 λ -(BETS)FeCl₄ において18テスラ以上で磁場誘起の超伝導相を発見した。この物質は10テスラ以下では絶縁体であるが、伝導面に平行に磁場を加えると超伝導が現れる。この興味深い現象の機構としてはFeイオンによる負の内部磁場が外部磁場によってうち消される事による補償効果であると考えられるが、スピンによる超伝導制御の可能性として興味深い。

(2) 低次元半導体の強磁場光物性

低次元半導体は様々な量子現象が発現することから興味を持たれているが、CdTe/CdMgTe 超格子の強磁場フォトルミネッセンス測定をハイブリッド磁石で35テスラまで行うことにより、量子ホール状態における電子相関に起因する多彩な励起構造を見出すことに成功した。

4. 将来計画

将来計画としては(1)蛋白質研究のための1GHz-NMRの開発、(2)高精度の磁場発生が可能になる15MW電源の改良、(3)4重極NMR測定などが計画されている。また、水冷磁石の改良による40テスラの発生も計画中である。

5. 世界の定常強磁場施設

現在超伝導磁石で発生可能な磁場は20テスラ程度であり、これ以上の磁場は水冷磁石かハイブリッド磁石によって生成される。以下では現在世界で運転されているハイブリッド磁石および水冷磁石を次表に掲げる。定常磁場においては、最高磁場と共に実験の制約となる内径の大きさ、磁場の均一度および安定度の3つが重要である。

運転中のハイブリッド磁石				
Location	Maximum field (T)	Bore diameter (mm)	Homogeneity (ppm/cm dsv)	Power (MW)
Tallahassee	45	32	1500	40
Tsukuba	35	32	1500	15
Sendai	31	32	1500	8

運転中の水冷磁石				
Location	Maximum field (T)	Bore diameter (mm)	Homogeneity (ppm/cm dsv)	Power (MW)
強磁場				
Tallahassee	33	32	1500	19
Grenoble	30	50	1500	22
Grenoble	34	34	1500	22
Nijmegen	33	32	1500	20
Tsukuba	25	32	1500	15
Sendai	20	32	1500	8
高均一				
Tallahassee	25	52	12	19
大口径				
Tallahassee	19.5	195	400	20
Grenoble	20	180	400	20

I-2 東北大学金研における無冷媒超伝導磁石を基盤とする

定常強磁場の現状

東北大学金属材料研究所 渡辺和雄

1. はじめに

東北大学の強磁場超伝導材料研究センターの特徴は、材料研究における COE である東北大学金属材料研究所に設置されていることである。このような材料科学との密接な関係は、強磁場発生 の 基盤となる超伝導材料や関連技術の開発における高い能力の基盤ともなっている。現在8MWの電力で31テスラの発生がハイブリッド磁石によって可能であるが、大学に設置された中規模施設として、電力を現状のままに据え置きながら長時間安定して磁場が発生できるようにハイブリッド磁石のうち超伝導磁石の高磁場化と無冷媒化に力を注いでいる。既に30テスラ級の無冷媒ハイブリッド磁石が完成し試験運転に入っており、労力の大きな液体ヘリウムの注入を必要としないことから、ユーザーにとってアクセスの容易なハイブリッド磁石となることが期待される。

2. 強磁場センターにおけるマグネットおよび可能な計測

- 1)ハイブリッド磁石 31T-HM(32mm 室温ボア、 31.1 T)、28T-HM(52mm 室温ボア、 28 T)、30T-CHM(無冷媒 32mm 室温ボア、 現在 27.5 T まで確認、23T-CHM(無冷媒 52mm 室温ボア、22.7 T)
- 2)超伝導磁石 20T-SM, 18T-SM, 15T-SM
- 3)無冷媒超伝導磁石 19T-CSM(52mm 室温ボア)、15T-CSM(52mm 室温ボア、15.1 T)、11T-CSM1(52mm 室温ボア、10.7 T)、11T-CSM2(52mm 室温ボア、11 T)、10T-CSM(100mm 室温ボア、10 T)、8T-CSM(220mm 室温ボア、7.5 T)、6T-CSM(220mm 室温ボア、5.7 T)、5T-CSSM(52mm 室温ボア、10 mm ギャップ 5 T)、
- 4)磁気浮上、磁場中結晶成長(高温炉)、薄膜成長(CVD、スパッタリング)、X線回折、比熱、熱伝導、超低温測定、超音波、輸送現象、臨界電流測定、可視分光、化学および生物実験、磁化、NMR、ESR

3. 磁場センターの超伝導磁石技術

強磁場センターは 1992 年に高温超伝導リードを利用した無冷媒超伝導磁石の開発に成功し、世界で初めて5テスラ(電流465A)の実用型無冷媒超伝導磁石を開発した。それ以来、独自開発の無冷媒技術により強磁場中低温X線回折が可能である5テスラスプリットマグネット、摂氏1200度までの高温炉と組み合わせて用いる11テスラ無冷媒超伝導磁石などを次々と開発してきた。現在では52mm内径の15テスラ無冷媒超伝導磁石までが実用化されている。さらに、Bi系の高温超伝導体のインサートコイルを用いることにより無冷媒で19テスラの発生が可能になっている。

無冷媒超伝導磁石をハイブリッド磁石に用いるためには大口径化が必要であるが、この点でも化学反応の研究などを行うために220mmの内径をもつ6テスラと8テスラの無冷媒超伝導磁石を完成させている。またこれらの大口径磁石作成のため高強度のNb₃Sn線材を独自開発しており、センター

として超伝導材料および超伝導磁石開発において極めて高い能力を有していることが特徴である。

4. センターにおける共同利用と研究

強磁場センターは全国大学共同利用として、企業および研究法人の共同利用数件を含めて毎年80-90件の共同利用研究を受け入れており、国内における強磁場研究、特に大学関連研究者の拠点となっている。研究の内容としては、超伝導材料およびその基礎研究、磁気浮上を含む材料プロセスなどの磁気科学分野、磁性関連研究などが大きな割合を占めている。また、大学に設置された施設として人材育成に貢献をしており、強磁場関連分野における重要な人材供給源となっている。

5. センターの将来方向

本センターの将来方向としては、世界水準の40テスラ定常磁場をめざす事が将来の方向であるが、材料科学のCOEとしての金属材料研究所に付属した中規模施設であることを踏まえて、20MW超の電源を有する国内外の他の施設とは一線を画し、現状の8MW程度の電力を増やさずに省電力型のハイブリッド磁石を自主開発する事を指向する。このためには20テスラ級の大口徑無冷媒超伝導磁石が必要となるが、既に自主開発による世界初の無冷媒ハイブリッド磁石が完成しており、超伝導材料および超伝導磁石に関してはセンターとして独自の高い技術を有している事から、その基盤は十分である。省電力型のハイブリッド磁石では少ない運転経費で高安定の磁場を発生することが可能であり、長時間の磁場発生が可能になることから研究の質を抜本的に高めることになる。

強磁場センターの水冷磁石に関して言えば、電源の更新により現在100ppm程度の安定度を精密科学研究に対応できるppm級に抜本的に改良することが求められている。このような高安定度の磁場発生が可能な施設は国内に無く、これをベースにして、以下の3つの研究の柱を中心としてユーザーが使いやすい施設の実現を目指す。(1)上記の大口徑無冷媒超伝導磁石技術と連携した、エネルギー貯蔵用マグネット、核融合炉用超伝導マグネットおよび電力輸送など省エネルギーのための超伝導材料開発とマグネット技術の開発およびその基盤としての超伝導研究、(2)磁気浮上を用いた微小重力環境下における半導体等の結晶成長や無容器溶解による新機能材料開発及び新しい強磁場材料プロセスの開発、(3)テラヘルツ ESR等を軸とする半導体、物理化学、生命科学の分野横断型の精密スピント科学研究。

I-3 非破壊パルス磁場の現状

東京大学物性研究所 金道浩一

非破壊パルス磁場は様々な強磁場発生方法の中で、最もコストパフォーマンスに優れているため、定常強磁場がカバー出来る磁場範囲 (Tallahassee で 50T がまもなく実現されるであろうと考えられている) においてさえ有効に利用される例がしばしば見られる。従って、非破壊パルス磁場はさらに二つのカテゴリーに分類されるべきである。すなわち、50T 未満の比較的小規模な設備と 50T を超える大規模施設との分類である。小規模な設備は機動性を活かして特長ある実験設備と組み合わせた装置となっている事が多い。一方、大規模施設はパルス強磁場が持つ様々な限界を打ち破り、強磁場科学を新たなステージへ導く事がミッションとなっている。

日本国内における現状

歴史的に日本における非破壊パルス磁場は、物性研と阪大強磁場の二大拠点がリードしてきた。これに定常強磁場の東北大金研を加えたものを強磁場御三家と呼び、強磁場研究の中核をなしている。物性研には 900kJ、阪大には 1500kJ のコンデンサ電源があり、これを用いた特長ある研究が行われてきた。物性研は全国共同利用研であるため共同利用に特化した 50T 以下の測定を中心に行い、阪大ではマグネット開発を中心に極低温および高圧といった極限条件との複合化を進め、R&D の範囲で測定を行ってきた。阪大での最も重要な成果は、非破壊磁場の世界記録となる 80.8T の発生である。これとは別に、物質材料研究機構の強磁場ステーションにも大規模電源があり、産業的な応用を目指した磁場発生がなされている。上述したように国内における小規模パルス磁場発生装置は数多く存在し、特長ある研究に用いられている。具体的には、放射光やパルス中性子との組み合わせによる回折実験やレーザーなどと組み合わせた高周波 ESR に使われている。それ以外の目的で使われているところも含めて東北大、秋田大、富山県立大、福井大、大阪府立大、神戸大、岡山大、理研(播磨研)などに設置されている。

国外における現状

アメリカにおいて 1990 年代に作られた NHMFL (米国立強磁場研究所) が刺激となり、現在では Toulouse (仏) および Dresden (独) にも巨大な施設が登場した事が最近の重要な変化である。NHMFL は定常磁場の Tallahassee、超低温の Gainesville そしてパルス磁場の Los Alamos の三施設から成り、パルス磁場の特長は超長時間パルス磁場にある。これは、600MJ ものエネルギーを蓄積できるフライホイール発電機を利用する事により可能となったもので、約 1 秒ものパルス幅で 60T の磁場を発生できる。しかしながら、2000 年にマグネットの破壊事故が起きたため現在は再建中である。Los Alamos にはこの他にも 2.4MJ と 1.5MJ のコンデンサ電源があり、電源規模では世界一を誇る。Toulouse には 14MJ のコンデンサがあり、これを用いた長時間パルス磁場の発生を行っている。最近、長時間パルス磁場と短パルス磁場とを組み合わせた二段パルス方式で 70T までの測定を開始した。Dresden は建設中の施設であるが、既に 1MJ 程度のコンデンサを設置して予備的な実験を始め

ている。最終的には電源を 50MJ まで増設する予定であり、予算の獲得には成功している。

将来計画について

国内のパルス強磁場に関する将来計画について述べる。最も重要、かつ大きな計画として、東京大学物性研究所柏キャンパスにフライホイール発電機を導入して 1 秒オーダーの超ロングパルス磁場を作る計画が進行中である。この計画に用いる電源は、日本原子力研究所で核融合試験装置の一部として使われていたもので、現在はその役割を終えている。1 秒オーダーの磁場発生にはそれに見合うエネルギーを蓄積できる電源が不可欠であり、この電源の利用は最適であると考えられる。1 秒オーダーのロングパルス磁場ができれば、これまでのパルス磁場と定常磁場で出来なかった測定領域をカバーする事が可能となる。また、この超ロングパルス磁場とコンデンサ方式による短パルス磁場と組み合わせて作られる 100T 発生も重要な計画である。現状では国外における設備の充実が先行しているが、本電源の導入により世界的な競争に勝ち、100T を実現するためにも本計画の成否に注目が集まっている。

非破壊パルス磁場については、様々な分野に関連した将来計画が進行中である。ひとつは、放射光と組み合わせて行う強磁場下 X 線回折実験の計画である。これは既に SPring-8 において小さなコイルを使った測定では成功を収めており、電源とコイルの大型化が進行中である。ヨーロッパの放射光施設である ESRF においても同様の計画が進行中である。また、東海村に建設中の J-PARK では、パルス中性子と組み合わせた強磁場下中性子回折実験が計画されている。これも原理的には、高エネ研で行われていた測定と同じであるが、中性子の強度が増強されている点などパルス磁場に有利な点が多く、さらにパルスマグネットの新たな開発を含めた計画の策定が急務となっている。

I-4 破壊型メガガウスパルス磁場の現状

日本の破壊パルス磁場の現状、諸外国との比較、今後の方向性

東京大学物性研究所 嶽山正二郎

100テスラ以上の発生磁場をメガガウス磁場と言う。現在のところ発生時間は数 μ 秒が限界である。初期磁場を濃縮する電磁濃縮法（別名クネール法）と簡単な一巻きコイルに高速大電流を流して発生する「一巻きコイル」法が主流となっている。過去に、米国や旧ソ連に於いて爆薬を用いた爆縮法による1000テスラ以上の発生の報告がある。現実的な物性計測には、現在では、ロシアのサロフでこの爆縮電磁濃縮にて1000テスラ以下での実験が限られた測定（サイクロトロン共鳴、ファラデー回転計測）で行われている。ロスアラモス強磁場研究所では、爆縮電磁濃縮による超強磁場発生とその下での物性研究からは撤退している。そのかわり、物性研究所強磁場施設の「一巻きコイル法」による超強磁場発生を参考に計画を進めていた。現在、米国エネルギー省からのファンドを得て建設を進め100テスラの超強磁場発生実験成功にこぎつけている。プルトニウムを用いた超強磁場下での重い電子系の物性解明を目的としている。1990年代に入り、物性研究所より遅れること10年、ドイツベルリンのフンボルト大の強磁場研究室では、物性研究所強磁場の技術移入により「一巻きコイル」超強磁場発生装置を導入し、100 - 200テスラ領域での実験を開始し現在に至っている。しかし、このシステムは数年以内にフランス・トゥルーズの強磁場施設に移設されることになっている。

物性研究所ではコンデンサーに電気的エネルギーを溜め込み（5メガジュール）これを用いた電磁気的な磁束濃縮にて、現在では600テスラの磁場発生が可能となっており、低温環境下での計測は、磁気伝導測定、磁気光学測定など300-500テスラの磁場下での実験は再現良く行われるようになった。ここでは、ラジオ周波数での交流伝導率測定を疑1次元物質である NbSe_3 に適用し、超強磁場量子極限でのハーパードロードニングの観測、高温超伝導物質 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ の高周波電磁透過手法による異方的上部臨界磁場の観測、磁性半導体 $\text{In}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ の超強磁場サイクロトロン共鳴実験による強磁性相での非局在バンド電子の解明など多様で精密かつ信頼性のある測定が進行している。100テスラ以上で信頼度の高いしかも精度の良い実験は物性研究所強磁場研究室のみであるといつて過言ではない。物性測定に必要な磁場は最高磁場だけでなく、磁場発生時間と空間、それから、磁場の時間変化、磁場発生に伴うノイズレベルなどで評価する必要がある。このような意味での磁場の高さや質では、物性研究所は世界のトップを走っている。今後は、1000テスラに向けた超強磁場発生、また、測定精度を上げるための磁場発生時間の拡張、計測精度と信頼度の更なる向上、簡易で安価な磁場発生法の確立が計画されている。日欧米では、それぞれ、1ミリ秒100テスラ非破壊磁場発生に向けた計画が進行しており、50-100テスラ領域の磁場発生と物性計測の拡充とあいまって、ますます、100-1000テスラ領域での超強磁場物性が活性化し、その重要性が増すことが期待される。

I-5 小型パルス磁場の現状

岡山大学大学院自然科学研究所 松田康弘

1. 小型パルス磁場の考え方

科学の発展に伴って生まれる様々な新しい研究分野と強磁場環境技術の融合を計ることは今後ますます重要と考えられる。パルス磁場には元来、“小消費電力のため装置規模を小さくできる”という長所があるが、従来型パルス磁場では、その規模はまだ中規模クラスの実験装置に相当し、専用の実験室に設置されるのが普通である。また、定常強磁場装置はさらに大型であるため、新たな強磁場研究分野の開拓には、磁場装置の導入に伴う技術的困難が往々にして生じる。

小型パルス磁場は、磁場発生コイルを超小型化し、装置を小規模化することで、そのような困難を克服しようとする考え方から生まれている。従来型比で 1/100 程度の磁場発生空間にすれば、必要なコンデンサー電源エネルギーは 0.5~3 kJ 程度となり、容易に持ち運び可能なサイズにすることができる。このような装置を用いて、従来困難とされてきた強磁場中の放射光実験などが比較的容易に実現可能となる。

一方で、小型パルス磁場は超低温や超高压などの他の極限環境との組み合わせや、高い磁場均一度が要求される超精密実験などには不向きである。黎明的強磁場研究に小型パルス磁場技術は有用であるが、そこで生まれた新たな分野の発展には、定常強磁場施設や大型のパルス磁場装置を用いる従来型の成熟した強磁場実験技術が不可欠と考えられる。

2. 現状

現在、小型パルス磁場の応用として最も重要と考えられるのは、放射光 X 線やテラヘルツ自由電子レーザーなどの高輝度先端光源を用いた分光学的研究分野である。この分野での強磁場環境の導入は世界的な関心も高く、日本やフランス、ドイツなどでパルス磁場計画があるが、本格的稼動には至っておらず、これまでは超伝導磁石で発生可能な 15 テスラを超える磁場領域は未踏の領域であった。

最近 3 年間で岡山大学と東北大学が中心となり、30 テスラを超える磁場での放射光 X 線実験を目指して超小型パルス磁場の開発を行い、表1のような装置を完成させている。磁場発生コイルは、X 線回折実験に対応させた内径 3 mm のスプリット型であり、試料冷却は、冷凍機内部にコイル全体を組み込むことで 10 K 程度まで達成できる。^[1]

	1号機	2号機
エネルギー(kJ)	1.92	2.40
充電電圧(V)	2000	2000
コンデンサー容量(μF)	960	1200
供給電圧(V)	200	100
高さ(mm)	1234	827
幅(mm)	658	651
奥行き(mm)	533	564
重量(kg)	350 強	100
製作年月	2002.8	2004.11
制作費(自作)	約 100 万	約 100 万

表1

図1(a)、(b)は SPring-8 の BL22XU で行った価数転移物質 YbInCu_4 の強磁場 X 線回折実験の結果の一例である。図1(a)にはブラッグ反射ピーク強度の磁場依存性を磁場波形と同時に時間の関数でプロットし、同じデータを図1(b)に磁場の関数で示した。これより、約 28 T で磁場誘起価数転移による構造相転移が起こっていることわかる。さらに詳しい解析から、相転移近傍での特異な格子変形も発見されており、小型パルス磁場実験においても、ある程度精密な解析に耐えうる測定データが得られることが確認された。実験結果の詳細は文献^[2,3]を参照されたい。この実験では最高 33 テスラまでの強磁場測定に成功しており、世界に先駆けて 30 テスラ級磁場での放射光 X 線実験に成功した意義は大きいと考えられる。

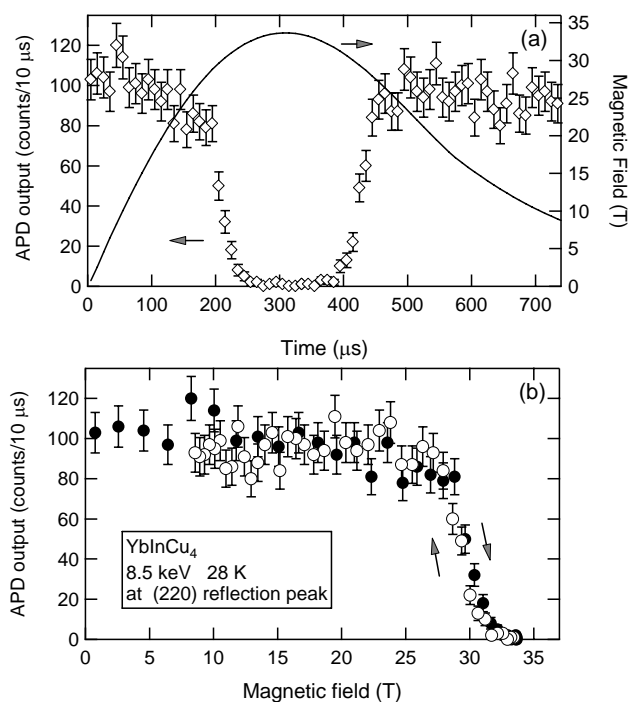


図 1

3. 今後の方向性

放射光実験については、X 線吸収スペクトル (XAS) や X 線磁気円二色性 (XMCD) などの分光研究への応用が近い将来の 1 つの方向性である。これは磁場中での電子状態を調べる画期的な手法として興味深い。また、小型パルス磁場の有用性がさらに確認されれば、PF や現在各地で建設中(または建設計画)の 1 ~ 2.5 GeV クラスの放射光施設のそれぞれに小型パルス磁場を導入し、放射光強磁場研究の裾野を大きく広げることができるかもしれない。

さらに、自由電子レーザーなどの高強度光源と組み合わせたテラヘルツ領域での磁気分光は、電子スピン共鳴を用いたスピン科学の新たな展開を計る興味深いテーマといえる。

また、小型パルス磁場の考え方をさらに進めれば、究極はプリント基板上の非常に小さな領域に磁場をつくるマイクロパルス磁場となる。現状の小型パルス磁場からマイクロパルス磁場までにおいて、必要となる磁場領域や測定内容によって様々なサイズやデザインが可能である。そのような小さなパルス磁場と組み合わせた、例えば顕微分光などの微小領域測定は、今後検討すべき方向性の 1 つであると考えられる。

4. 参考文献

- [1] Y. H. Matsuda *et al.*, *Physica B* **346-347** (2004) 519-523.
- [2] T. Inami *et al.*, *Proc. of the 4th Conference on Synchrotron Radiation in Materials Science*, (Grenoble, France) August 23-25, 2004, *to be published*.
- [3] 松田他、日本物理学会講演概要集 2004 年秋季大会 (青森大学)、第 3 分冊、520、14aRC-2 ; Y.

I-6 強磁場国分寺および他分野と連携した強磁場計画

東北大学金属材料研究所 野尻浩之

1. はじめに

近年、超電導磁石の普及により強磁場を用いた研究はかなり一般的なものとなっている。これまで特殊なものと考えられていたパルス磁場も普及が進み、大学の研究室で30から40テスラの強磁場を用いた研究を行っているグループも少なくない。強磁場研究といった場合に、その水準は単に大型施設における研究だけではなくこれら強磁場関連研究の総体によって計るべきであることは言うまでもない。大型施設がユーザー施設として全国の研究者に門戸を開いている意味もまさに其処にある。日本は物質開発において世界最高であると見なされているが、これらの新物質の評価において小型の強磁場施設：強磁場国分寺を中心とする強磁場研究者の広がり果たしてきた役割は大きい。強磁場研究は手段を軸とする故に、様々な研究領域を含む萌芽的で学際的な研究を生む場でもある。小型の強磁場施設に関しても、新しい研究の芽を生む基盤として全国的な連携を視野に入れておくことが必要である。

さらに、強磁場の発展の方向として他分野との連携も重要である。今日物性研究の有力な手段として放射光X線、中性子線や自由電子レーザーなどが重要な役割を果たしているが、これらの研究と強磁場を組み合わせることにより新しい研究の飛躍が期待される。これは従来の強磁場施設とは異なるあり方であるが、将来にとって重要な戦略的課題である。この点に関して、日本は世界で初めてパルス磁場中の中性子散乱およびX線散乱を行った実績をもち、先進的な役割を果たしているが、近年欧米でも同様の方向が注目されており、これらの分野の強化は急務である。

2. 小型パルス磁場施設

超電導磁石は、非常に多く普及しているのでここでは割愛し、30テスラ以上の磁場発生が可能なパルス磁場施設に関して紹介する。国内では8つのグループが強磁場装置をもっており、この他にSPring8などにもパルス強磁場発生装置がある。このうち神戸大学においては、サブミリ波ESRの設備が充実しており、高圧下での強磁場ESRなど低次元物質を主な研究対象として高い実績を有する。東北大学では定常磁場施設とは別に小型のパルス磁場装置を有しており、希釈冷凍機や³He冷凍機を用いた超低温における分子磁性体の研究などで世界中からユーザーを集めている。岡山大学は持ち運び可能なポータブルパルス磁場を開発し、放射光X線や自由電子レーザーへの応用などを進めている。この他ジャイラトロン光源を有する福井大学も特徴ある研究を進めている。

表1 小型パルス磁場装置の一覧

場所	エネルギー :kJ(電圧:kV)	コイル内径 (mm)	可能な実験	備考
秋田大学工学資源学部	100 (5)	15	M, R, O	E: 電子スピン共鳴
東北大学金属材料研究所	180 (5)	22	E, M, R, C, S	M: 磁化測定
富山県立大学工学部	70 (5)	14	M	R: 磁気抵抗
福井大学遠赤外線領域開発研究センター	30 (5)	13	E, M, R	O: 磁場配向 S: 磁気光分光
大阪府立大学工学研究科	46 (3)	18	M, R,	C: サイクロトロン共鳴
神戸大学理学部	100 (3)	17	E, C	鳴
岡山大学理学部	60 (10)	30	E, M, R, C, S	
広島大学先端物質科学研究科	18 (1.1)	14	R	

3. 他分野との連携

他分野との連携による強磁場科学の開拓に関しては、以下の3つの分野で進行中である。

(1) 放射光強磁場 X線散乱

日本には第三世代の放射光光源として SPring8 があり、多くの先端的研究がなされている。定常磁場としては理研のグループが 15 テスラの超電導磁石を導入して磁性体等の研究を行っている。また岡山大学グループはポータブルパルス磁場を用いて 33 テスラまでの X線回折を世界で初めて成功させて注目されている。また理研のグループは大型の電源を用いて 40 テスラのスプリットパルス磁石の準備を進めており、強磁場 X線散乱実験では世界に先駆けた研究の展開が行われている。今後の動向として、50 テスラ程度までの X線回折実験を行うことに加えて、共鳴散乱や X線吸収と強磁場を組み合わせた強磁場 X線分光を実現し、これを物質の電子状態研究の新しい手段として確立することが重要である。

(2) J-Parc における中性子散乱

パルス磁場と中性子散乱の組み合わせに関しては、既に 1992 年に神戸大と東北大のグループが KEK のパルス中性子施設において世界で初めてのパルス磁場下中性子散乱実験に成功した実績がある。2007 年から開始される J-Parc においては KENS の熱中性子に比べて実効的に磁気散乱の強度が 1 万倍程度になると期待され、単発のパルス磁場で中性子回折が可能になる。このため当面 60 テスラ、将来的には 80-100 テスラの超強磁場も中性子散乱実験の対象となる。このような実験が可能になれば物性研究にとって大きな飛躍となると期待される。一方非弾性散乱に関しては、長期の時間積算が必要になることから、繰り返し型のパルス磁場や定常磁場の使用が必要となる。定常磁場では、無冷媒超電導磁石を最大限活用すると共に、既存の強磁場施設の電源更新などに於いて旧施設の電源の有効活用なども検討する必要がある。J-Parc における強磁場中性子散乱装置の設置に関しては既に強磁場フォーラム中性子部会が窓口となり装置提案を行っており、具体化が図られて

いる。

(3) 自由電子レーザー

自由電子レーザーは高強度で波長可変かつコヒーレントな光源として注目されている。強磁場との組み合わせを考えると特にテラヘルツ領域の自由電子レーザーが注目される。その理由としてこの領域では他に適当な光源がなく未開拓周波数領域として今後の発展が期待されること、スピンのゼーマンエネルギーが40テスラで1テラヘルツとなり、磁場と電磁波のエネルギーの整合性が良いことである。自由電子レーザー光のコヒーレンス性を生かせば、半導体を含む様々なスピン系においてコヒーレントなスピン操作が実現でき、量子計算などに於いて大きなブレークスルーとなりうる。ポータブルパルス磁場と自由電子レーザーを組み合わせに関しては、東京理科大学の自由電子レーザー施設において研究が展開されている。

II 100 テスラ強磁場スピン科学

II—1 強相関物質系

1. 1 強磁場を用いた四重極転移の研究

東京大学物性研究所 榊原俊郎

1. はじめに

f 電子系における軌道の自由度は四重極モーメントで記述される。すなわち、四重極モーメントの自発的整列が f 電子系における軌道秩序であり、四重極転移と呼ばれる。磁気転移と同様、四重極モーメントの様な整列を強四重極転移、交替的な整列を反強四重極転移と呼ぶ。反強四重極転移の研究はまだ歴史が浅く、秩序変数や相図のよく分かっている物質はまだ少ない。反強四重極相は反強磁性相と同様、閉じた磁場温度相図を形成するが、四重極モーメントが直接磁場とは結合しないため、相対的に高磁場まで安定なことが多い。従ってその全貌を探るためにはパルス強磁場を用いた実験が不可欠である。

2. 研究の現状と研究例

これまでに知られている反強四重極秩序物質としては CeB_6 , TmTe , PrPb_3 , DyB_2C_2 , $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ などがある。これらの物質では四重極秩序変数がほぼ特定されている。これには磁場中中性子散乱や共鳴 X 線散乱の実験が有効である。特に前者では反強四重極相における磁場誘起の反強磁性モーメントを観測することによって、四重極秩序の伝搬ベクトルのみならず秩序変数の特定も可能である。一方、転移温度や転移磁場の磁場方向依存性についての詳しい測定からも秩序変数に関する有用な情報が得られる。反強四重極相では磁場下で反強磁性モーメントのみならず磁気八重極など多重極モーメントが誘起され、それらの相互作用によって転移温度の磁場シフト（多くの場合、反強磁性とは異なり高温シフトを示す）が支配される。磁場誘起されるモーメントはまた秩序変数の対称性と磁場方向に依存するので、転移温度の磁場方向依存性が秩序変数を反映することになる。 PrPb_3 においてこのように反強四重極転移温度の磁場方向依存性の測定から秩序変数の特定がなされている。詳細は文献 1, 2) を参照されたい。

3. 将来の方向性と研究課題

四重極転移の研究は反強磁性の研究に比べてはるかに歴史が浅く、物質数もまだ少ない。基礎的

なデータの積み重ねが必要である。また四重極相を探るうえで磁化はあまり良い物理量ではなく、より詳しくは歪み場に対する応答を調べる必要がある。このためにパルス強磁場下での超音波測定技術の開発は不可欠であろう。以下の課題が考えられる。

- (1) 磁場温度相図の決定と秩序変数・磁場誘起多重極モーメントの研究
- (2) 磁場中中性子散乱による秩序変数の同定
- (3) 多重極秩序状態における素励起の研究
- (4) 強磁場下における超音波音速測定技術の開発および四重極秩序研究への応用

4. まとめ

以上のように、四重極転移の研究において強磁場は必須の環境である。特に 100 テスラにおよぶ磁場のもとで超音波音速測定が行えるとこの分野の研究の大きな進展が期待される。このように 100 テスラ領域の強磁場下における精密スピン科学の推進は四重極転移の研究に極めて重要である。

5. 参考文献

- 1) T. Tayama, T. Sakakibara, K. Kitami, M. Yokoyama, K. Tenya, H. Amitsuka, D. Aoki, Y. Onuki and Z. Kletowski: J. Phys. Soc. Jpn. **70** (2001) 248.
- 2) T. Onimaru, T. Sakakibara, A. Harita, T. Tayama, D. Aoki and Y. Onuki: J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 2377.

1.2 ウラン化合物の強磁場物性

北海道大学大学院理学研究科 網塚 浩

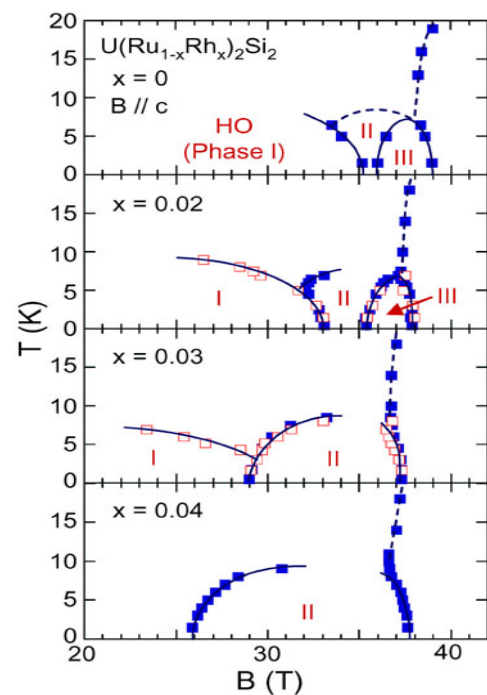
1. はじめに

ウラン化合物を中心とする 5f 電子系の磁性は、磁性研究の流れの中では比較的若い研究対象であり、未知の可能性が期待される分野である。特に 5f 電子が低温で狭いバンドを形成する「強相関 5f 電子系」では、秩序変数が不明の相転移や桁違いに小さな磁気モーメントの磁気秩序、異方的超伝導と磁性の共存、非フェルミ液体といった種々の興味深い現象が見つかっており、精力的な研究が展開されている。5f 軌道はその空間的広がりが 4f と 3d の中間に位置するため、4f 系よりは遍歴性が強く、3d 電子系よりは局在性を強く帯びるという直観的理解の難しい電子状態にある。また電子配置 ($5f^2$ or $5f^3$) が特定し難いことに加え、混成効果と結晶場のエネルギースケールが同程度 (数 100K~1000K) にあるなど、Ce 系に比べてモデル設定も複雑となり、5f 電子を議論する上で基盤となる概念・視点が未だ確立されていない。

このように未知要素の多い 5f 電子系を研究する上で、強磁場を用いて混成効果を抑制し、裸の (あるいは裸に近い) f 電子状態やその状態に至る過程についての情報を得ることは、4f 系で成功しているように非常に有効な研究手法の一つとして期待される。次節に、最近私達が Los Alamos 強磁場実験施設で行った $U(\text{Ru,Rh})_2\text{Si}_2$ に対する強磁場実験の例について紹介する。

2. 研究の現状と研究例

URu_2Si_2 は $T_0 \sim 17.5$ K で何らかの秩序 (隠れた秩序: HO) を示し、 $T_c \sim 1.2$ K で非 BCS 型超伝導転移を示す重い電子系 (正方晶 ThCr_2Si_2 型) である [1]。この系の重い電子状態は、十分低温 (~ 1 K) で c 軸方向に磁場を印加すると、 $B_c \sim 35.8, 36.8, 39.6$ T で 3 段の磁化の鋭い飛びとともに消失することが古くから知られている [2]。しかし強い磁気熱量効果のために、有限温度の振舞い (T_0 がどのように磁場変化し、 B_c とどのように関係するのか等) はよくわかっていなかった。最近、Los Alamos グループによりロングパルスおよびハイブリッドマグネットを用いた有限温度の詳しい研究が行われ、この 3 つの臨界磁場における異常がそれぞれ、HO (I 相) の消滅、および新しい相 (III) の生成と消滅に対応していることがわかった [3-5]。これら 2 相の間にはもう 1 つの相 (II)



が見つかり、さらには準安定的と思われる相 (IV および V) の存在も示唆されている[5]。この複雑な多相構造はまた、高温・常磁性領域で 38 T 付近に観測されるメタ磁性クロスオーバーの $T \rightarrow 0$ 極限に発現しているようにも見えるため、磁場誘起量子臨界点との関連性にも興味を持たれている。各相の特徴をより詳しく調べるため、 $\text{U}(\text{Ru}, \text{Rh})_2\text{Si}_2$ ($x < 0.04$) の単結晶 (厚さ ~ 0.15 mm) に対し、ロングパルスマグネット (緩和時間 ~ 0.25 s) を用いて 45 T までの磁場範囲で磁化・電気抵抗の測定を行った。HO は Rh 濃度 x の増加とともに抑制され、 $x \sim 0.04$ で消失する[6]が、これに伴い III 相も消え、II 相が安定に残るといふ振舞いが観測された (図を参照)。これらの観測結果から、HO が極めて磁場に鈍感な秩序相であること、II 相は基底状態とほぼ無関係に磁場中で安定となる磁気秩序相と思われること、III 相は I 相の起源と絡んだ相である可能性が高いこと等、幾つかの新しく重要な情報を得ることができた。

3. 将来の研究性と研究課題

URu_2Si_2 の B - T 相図の完成は Los Alamos グループにいわば先を越されてしまった形になったが、「超強磁場+有限温度」の実験は、基本的な熱力学相図を決定したり、また、近年トピックスになっている量子臨界点近傍で有限温度領域に現れる異常物性に言及する上で (5f 系に限らず) 今後、益々必要になると予想される。彼らの成功の理由は、相境界をよぎることによって生じる磁気断熱効果をロングパルス (登り 0.02s, 下り 0.3s) で回避したことによる。当然ノイズは増えるが、ピックアップコイルの精密化、充填度の向上などで対処している。超強磁場下における精密温度制御あるいは精密温度測定という実験環境の整備は、日本が今後この分野を主導権を握る上で急務であると考えている。

また、5f 電子系の磁性を遍歴磁性として捉えるとき、磁性-非磁性相転移や混成効果を壊すときのフェルミ面の変化や体積の変化を dHvA 効果で観測することは非常に興味深い。一方、5f を局在描像で見たときには、磁場をパラメータとして磁化や比熱測定から結晶場効果や混成効果を調べる実験は非常に有効な手段となる。ただし 50T 程度の磁場ではメタ磁性を 1 段くらい起こしても磁化が飽和せず、また困難軸にかけたときは何も起こらないケースが多い。100T 領域の磁場を用いれば、飽和に近づくプロセスに関してより詳細な情報が得られ、例えば困難軸でのメタ磁性現象等を通じて結晶場状態が明らかになることも期待される。

4. 参考文献

- 1) T. T. M. Palstra et al., Phys. Rev. Lett. **55**, 2727 (1985).
- 2) K. Sugiyama et al., J. Phys. Soc. Jpn. **59**, 3331 (1990).
- 3) M. J. Aime et al., Phys. Rev. Lett. **89**, 287201 (2002).
- 4) N. Harrison et al., Phys. Rev. Lett. **90**, 096402 (2003).
- 5) K. H. Kim et al., Phys. Rev. Lett. **91**, 256401 (2003).
- 6) H. Amitsuka et al., J. Magn. Magn. Mater. **90&91**, 47 (1990).

1.3 近藤半導体のギャップを強磁場で潰す

広島大学 先端物質科学研究科 高畠敏郎

1. はじめに, 研究の意義と位置付け

希土類化合物のうちで4f軌道に電子(あるいはホール)を1個もつ Ce(Yb)を含む化合物は, 通常, 室温付近では局在磁気モーメントをもつが, 温度の低下とともに近藤効果によって磁気モーメントを失い, 金属的な重い電子状態に落ち着く。例外的に, フェルミ準位に 10-100K 程度の幅のギャップが形成される場合がある。それらは近藤半導体と呼ばれ, ギャップがフェルミ面の一部で閉じているものは, 近藤半金属と呼ばれている[1]。前者の例は YbB_{12} と $\text{Ce}_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$ であり, 後者の例は CeNiSn と CeRhSb である。ギャップ形成のモデルとしては, 4f電子と伝導バンドとの異方的混成(c-f混成)によって生じた準粒子バンドにギャップが形成されるというモデルが有力である[2,3]。我々はギャップ形成機構を解明する目的で, 単結晶試料を用いて「阪大パルスマグネット」で電気抵抗と磁化を測定してきた。 CeNiSn と YbB_{12} では磁場の印加により電気抵抗が著しく減少するとともに磁化が増大するという変化から, ギャップの潰れる様子が捉えられた[4,5]。しかし, 下記で示すように金属化過程は個々の系によって著しく異なるために, ギャップの消失を統一的には理解できていない。従来のパルスマグネットで到達できる 60T ではギャップが完全には潰れていないので, 100T までの測定が強く望まれる。ギャップの潰れ方が判れば, 逆にギャップ形成機構の理解が確実に深まるであろう。

2. 研究の現状と研究例

近藤半金属・半導体のギャップの大きさ E_g/k_B , 近藤温度 T_K 及び磁場 50T での希土類イオンあたりの磁化 $M(\mu_B)$, 電気抵抗が半分に減少する磁場 $B^*(T)$, 磁場効果の特徴 を表にまとめた。

化合物	結晶構造	E_g / k_B (K)	T_K (K)	$M(\mu_B)$ @50T	$B^*(T)$ $\rho(B^*)/\rho(0)=0.5$	磁場効果の特徴
CeNiSn	$\epsilon\text{-TiNiSi}$	28	225	0.63 //a	23 //a	1軸異方性強い 3段メタ磁性 15,45,60T
CeRhSb	$\epsilon\text{-TiNiSi}$	56	360	0.13 //a	25 //a	異方性弱い
CeRhAs	$\epsilon\text{-TiNiSi}$	280	1500	0.068 //b	60 //a	異方性極めて弱い
$\text{Ce}_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$	$\text{Y}_3\text{Sb}_4\text{Au}_3$	180	240	0.22	20	金属へのクロスオーバー
YbB_{12}	UB_{12}	170	240	0.53	10	1次相転移、 臨界磁場に異方性 ギャップ内に鋭い状態

最近, 良質な CeNiSn 単結晶について 65T までの磁化と 60T までの電気抵抗を吉居らが測定した[6]。

磁化の一軸異方性が強く、容易軸である斜方晶の a 軸方向に磁場をかけたときのみ、3段のメタ磁性的な増大が 15, 45, 60T で観測された。池田・三宅[2]が提案した2重ギャップ構造をもつ状態密度のゼーマン分裂を仮定して、2段のメタ磁性の発生を説明することはできるが、3段目の発生は説明できない。状態密度のギャップ構造そのものが磁場変化していることを実験的に評価する必要がある。

Yb 系として唯一の近藤半導体である YbB_{12} では、磁化が一次相転移によって増大する(図1)[5]。立方晶にも拘わらずその転移は異方的で、最も鋭い転移は立方晶の $\langle 111 \rangle$ 方向に磁場を印加したとき $B_c = 55\text{T}$ で起こる。この磁場でのゼーマンエネルギー $2g_{J_z}\mu_B B_c$ は g_{J_z} の値として結晶場基底状態 Γ_8 4重項の値 2.1を代入すると140Kとなり、比熱の解析から求めたギャップの大きさに一致する。さらに高い磁場でギャップが完全に潰れたときに 4f 電子が局在化するのであれば、 $2.1\mu_B$ の磁化が現れるはずである。

立方晶 $\text{Ce}_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$ のギャップの大きさは YbB_{12} と同程度である。しかし、1.5K での等温磁化は 60T まで直線的に増大するだけである(図2)。但し、比熱には 30T で不連続が観測されている。電気抵抗は 60T においても 100K-10K の範囲で半導体的な温度変化を示し、強磁場磁化率の山はゼロ磁場のものと同じである。ギャップを潰すには 100T 以上の磁場が必要であろう。

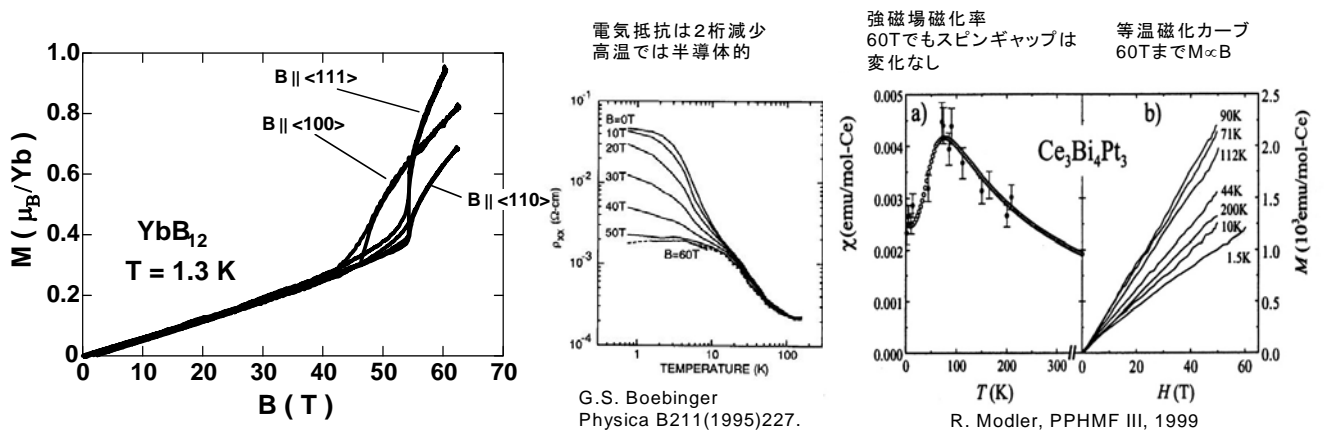


図1 単結晶 YbB_{12} のメタ磁性転移 [5]

図2 $\text{Ce}_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$ の強磁場下での電気抵抗[7]と磁化 [8]

3. 強磁場 100T における研究課題

100T ロングパルス磁場を用いて、近藤半金属・半導体の磁化、電気抵抗、磁歪、比熱の測定を行うことによって以下の課題を明らかにしたい。

- (1) YbB_{12} : 絶縁体-金属 1次相転移の機構とギャップ内の鋭い共鳴状態の起源
- (2) $\text{Ce}_3\text{Bi}_4\text{Pt}_3$: 電気抵抗測定による金属化の直接観測, 30T での不連続な比熱増大の原因
- (3) CeNiSn : 磁化の3段のメタ磁性的増大の原因
- (4) CeRhAs : 電気抵抗測定による金属化の直接観測, 3段の構造相転移に対する強磁場効果

上記の研究は広島大学先端物質科学研究科 伊賀文俊, 笹川哲也, 阪大極限科学研究センター 吉居俊輔, 川崎信太郎, 高本尚起, 藤田睦実, 金道浩一, 理学研究科 杉山清寛の各氏と共同で行われた。

4 . 参考文献

- [1] T. Takabatake et al., J. Magn. Magn. Mater. 177–181 (1998) 277.
- [2] H. Ikeda and K. Miyake, J. Phys. Soc. Jpn. 65 (1996) 1769.
- [3] T. Saso and H. Harima, J. Phys. Soc. Jpn. 72 (2003) 1131.
- [4] K. Sugiyama et al., J. Phys. Soc. Jpn. 67 (1998) 2455.
- [5] F. Iga et al., JJAP Ser. 11 (1999) 88.
- [6] S. Yoshii et al., to be submitted to J. Phys. Soc. Jpn.
- [7] G. Boebinger et al., Physica B211 (1995) 227.
- [8] R. Modler et al., Physical Phenomena at High Magnetic Fields III (1999) 154.

1. 4 超強磁場下における希土類系金属間化合物の磁性研究

物質・材料研究機構 北澤英明

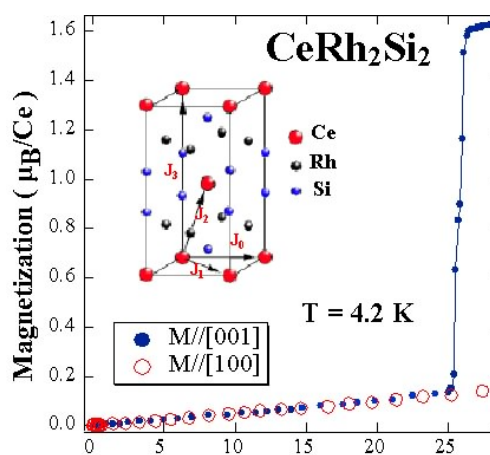
1. はじめに、研究の意義と位置付け

周期律表のランタノイド系列のうち、Ce から Yb までの希土類原子は、固体中で 5d, 6s の外殻の価電子がはがれたイオン状態として存在する。その 4f 電子軌道は、5s, 5p による閉殻構造の内側に位置しているため、希土類金属間化合物の磁性の担い手となる。例えば、SmCo₅、Nd-Fe-B 系、Tb-Fe 系等の希土類金属間化合物を利用した磁石材料や磁気メモリー材料は、現代のエレクトロニクス社会を支える根幹材料の一つとして、非常に重要な位置を占めている。それらの研究開発には、4f 電子の電子状態の理解は必要不可欠となっている。一方、Ce や Yb を含む金属間化合物では、4f 電子がフェルミ準位に近いことから、伝導電子との混成効果が重要となり、しばしば低温で重い衣をまとった伝導電子(重い電子)を形成することがある。例えば、この重い電子による超伝導相の出現や、常磁性金属相から局在状態へと変化するメタ磁性転移、量子臨界点近傍で観測される非フェルミ液体的振る舞い等は、多くの研究者の興味を惹きつけ、「強相関電子系の物理」として現在も活発に研究が続けられている¹⁾。また、最近では、4f 電子の異方的な電荷分布に由来する四極子モーメントと電子系や格子系に及ぼす影響にも興味の対象が広がってきている。このように、4f 電子系の理解は、応用面はもちろんのこと、基礎物理のさらなる発展のためにも重要である。

2. 研究の現状と研究例

希土類金属間化合物の磁性研究は、歴史も長く、非常に多岐にわたっており、短い紙面では研究の現状を網羅することはできない。ここでは超伝導や軌道秩序以外の希土類金属間化合物の磁場効果に関して、我々の研究の一例を示すのみにとどめる。希土類化合物では、大きなスピ

ン軌道相互作用により全角運動量の J が良い量子数となり、室温以下の物性では、おおむね基底 J 多重項が研究の対象となる。その基底 J 多重項は結晶場によってさらに分裂する。希土類イオン間には伝導電子を媒介とした交換相互作用が働き、低温で希土類イオンに張りついた磁気モーメントが秩序化することがある。磁場は、磁気モーメントの方向を変化させるばかりでなく、励起状態との混成をもたらすため、温度、磁場、圧力をパラメータとして変化させると複雑な磁気相図を示すことは珍しくない。例えば、物質・材料研究機構のハイブリッド磁石を用いた 28T までの CeRh₂Si₂ 単結晶の強磁場磁化測定の結果を示す²⁾。CeRh₂Si₂ は、常圧下では、T_N=36K 以下で反強磁性秩序を示し、電子比熱係数 γ も 43mJ/molK² とそれほど大きくなっていないことから、かなり局在に近い系と考えられていた。図1に示すように c 軸方向の大きな磁気異方性を反映して、25.4T と 26.0T の磁場



で鋭い2段階のメタ磁性転移が観測された。この狭い中間磁場領域で飽和磁化の 1/2 プラトーが実現しており、適当なモデルにより、転移磁場から磁性イオン間の交換相互作用の大きさが見積もられた。その後、最近の圧力下の実験によって、圧力の増加とともにネール温度は急激に減少し、反強磁性秩序が消失する圧力で超伝導が出現することが明らかとなっている³⁾。つまり、かなり局在の傾向が強いと思われていた CeRh₂Si₂ でさえも、多くの Ce 化合物で見られているような RKKY 相互作用と近藤効果の競合によって、局在状態から量子臨界点を經由して遍歴状態へと変化している描像が成り立っていることが明らかとなった。この分野の研究の現状に関しては、例えば、毎年開催される強相関電子系の国際会議 (SCES) などの会議録等にまとめられている。

3. 将来の方向性と研究課題、強磁場の役割、100T における研究課題など

希土類金属間化合物の磁性を理解する上で、伝導電子を介した RKKY 型の交換相互作用や、近藤効果、希土類イオンの持つ軌道に起因する多極子効果、結晶場効果等を常に考慮する必要がある。磁場は、これらの複雑な相互作用を1つ1つ解き明かすための大事な外部パラメータでもある。さて、希土類イオンの gJ の値を比較してみると、0.71 (Sm³⁺) ~ 10 (Dy³⁺, Ho³⁺) と分布しており、100T の磁場に対するゼーマンエネルギーの大きさは、Dy³⁺, Ho³⁺ の場合は、1000K 程度にも達することがわかる⁴⁾。この大きさは、物質内の電子系における結合エネルギーに相当し、100T 級の強磁場の出現によって、従来の磁気モーメントの制御ばかりでなく、電子状態自体を大きく変化させることが可能となってくる。DyCu₂ で観測された磁場による結晶軸のスイッチも1つの例である⁵⁾。今後も興味深い物質が続々と発見され、それらの試料の純度が向上するにつれて、強磁場下での様々な精密な物性測定技術が要求されて行くであろう。さらに、微量試料しか得られない場合であっても、精密な測定が可能な環境も整えていかねばならないだろう。将来の研究課題としては、以下のような課題が挙げられる。

- (1) 反強磁性体、フェリ磁性体の磁氣的相互作用の研究及び、磁気相図の研究
- (2) 重い電子状態や価数揺動系の研究
- (3) 結晶場効果や多極子相互作用の研究
- (4) フラストレーション系の研究
- (5) 新しい磁場誘起相の探索

4. まとめ

このように、磁場の役目はゼーマンエネルギーの操作により、複雑な磁気秩序状態や電子状態を解き明かす手段であるばかりでなく、新しい磁場誘起秩序状態を出現させる重要な外部パラメータとして大いに期待されている。この分野のブレークスルーは、興味深い試料と新しい測定技術の開発無しには語れない。そこで、まず、全国の各研究拠点において 10~20T 程度の超伝導磁石や、30T 程度のパルス磁石を用いた基本物性研究技術のさらなる普及が必要であろう。また一方で、様々な大型特殊装置を持った共同利用施設において、30T~100T の磁場下で広い温度範囲や圧力範囲を含めた複合極限環境を整備することが重要と考える。

5 . 参考文献

- 1) 例えば、上田和夫、大貫惇睦、物理学選書 23 「重い電子系の物理」 (裳華房、1998) や、Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths, edited by K. A. Gschneider, Jr. and L. Eyring (Elsevier Sci. Pub.) の各シリーズなど。
- 2) H. Abe et al., J. Phys. Soc. Jpn. 66 (1997) 2525.
- 3) Y. Onuki et al., J. Phys. Soc. Jpn. 73 (2004) 769.
- 4) 伊達宗行、パリティ物理学コース クローズアップ「極限科学ー強磁場の世界」 (丸善、1993)。
- 5) Y. Hashimoto et al., Phys. Rev. Lett. 72 (1994) 1922.

1.5 フラストレート系物質と強磁場

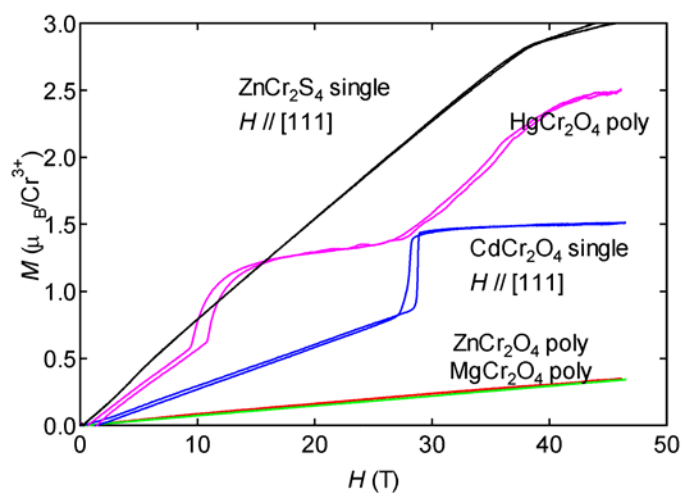
東京大学物性研究所 上田 寛

1. はじめに、研究の意義と位置付け

シャストリー・サザーランド格子（2次元直交ダイマー系）、パイロクロア格子、三角格子、かごめ格子など幾何学的フラストレーションを持つ物質では、磁気長距離秩序や電荷秩序が抑えられ多自由度が低温まで残り、スピン液体状態やスピナイス状態、重い電子状態など新奇な基底状態や量子状態が観測される。また、スピンシングレット状態を磁場により励起した場合、励起トリプレット（マグノン）のボーズ・アインシュタイン凝縮とかウィグナー結晶化と言った新奇な現象も見出されている。このように、強磁場はこれら量子スピン系の研究にとって不可欠である。

2. 研究の現状と研究例

2次元直交ダイマー系物質 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ では、60Tまでの範囲で、磁化曲線に飽和磁化の $1/8$, $1/4$, $1/3$ プラトーが観測されている。これらの磁化プラトー現象は、フラストレーションに起因するマグノンのウィグナー結晶化として理解され、核磁気共鳴では $1/8$ プラトーでの磁気構造が決定されている。100T までの観測が可能となれば、 $1/2$ プラトーの存在や $1/8$ プラトー以上での磁気構造解明が可能となる。一方、3次元フラストレーション系であるパイロクロア格子を持つスピネル酸化物では、低温で格子系との結合による立方晶から正方晶への相転移によりフラストレーションを緩和するという現象が観測されている。軌道自由度を持たない Cr^{3+} スピネル酸化物では構造相転移と同時に反強磁性長距離秩序を起こす。図に示すように、反強磁性状態での磁化曲線において、 CdCr_2O_4 で $1/2$ プラトーが観測され、続いて、最近、 HgCr_2O_4 においても CdCr_2O_4 よりも低磁場で $1/2$ プラトーが観測された。 HgCr_2O_4 においてはさらに高磁場で飽和磁化に達する傾向が観測された。より高磁場である100T 領域までの磁化測定が可能となれば、 CdCr_2O_4 における飽和磁化や ZnCr_2O_4 , MgCr_2O_4 における $1/2$ プラトーが観測できることが期待される。このような磁化プラトーは磁気構造の変化と対応している。強磁場下での構造測定が可能となれば、磁気構造を直接決定できることが期待できる。



3. 将来の方向性と研究課題、強磁場の役割、100Tにおける研究課題など

磁化プラトーと呼ばれる階段状磁化曲線は多くの量子スピン系物質で見出されてきている。しかしながら多様な物質系から見ると、もっと強磁場下での観測が可能であればというのが現状である。100テスラ領域までの強磁場下での磁化測定や磁気共鳴測定、構造測定などが可能となれば、励起ギャップが大きく、研究が未踏であった物質にも日があたり、物質創製—観測—理解のサイクルが一段と加速され、磁性体研究の新境地が開けると期待される。

Ⅱ—2 低次元磁性体、ナノ磁石

2. 1 低温合成法を利用した低次元量子スピン系の開発

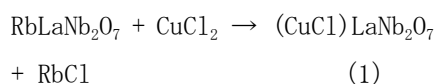
京都大学大学院理学研究科 陰山 洋

1. はじめに、研究の意義と位置付け

低次元量子スピン系は、その低次元性により通状期待される古典的な反強磁性長距離秩序が抑制され、整数スピン一次元鎖系におけるスピングャップ状態などのような面白い相や相転移現象が現れることが知られている。スピンパイエルス物質 CuGeO_3 やシャストリーサーランド物質 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の発見などにみられるようにモデル（無機）物質の発見はこれまでの低次元磁性研究の発展に大きな貢献をしてきた。しかしながら、磁性格子を実験的に設計するのは容易ではない。固相反応法で得られる無機物質の場合は昨世紀における精力的な物質探索の結果、既に非常に多くの物質が合成され、その（低次元）磁性が調べられている。組成、元素数、圧力、温度、酸素分圧など可変なパラメータにより未知物質を探索する方法では、狙った構造（梯子格子、デルタ鎖など）を意のままに設計することは非常に困難である。そのような欠点をもつ固相反応法に対し、本研究で用いる低温合成法は低次元磁性体の創製に極めて有効であることが、最近の我々の研究によってあきらかになってきた。低温合成法は古くから知られている方法であり、インターカレーションに代表されるように電池等の分野では広く使われているが、現在まで低次元磁性体の研究には積極的に用いられることはなかった。

2. 研究の現状と研究例

最近、特に取り組んでいるのが Dion-Jacobson 型ペロブスカイト型酸化物を母体としたイオン交換反応である [1]。その一例として以下の反応式を挙げる（図 1 も参照）。



ここで固相反応法により合成される母体 $\text{RbLaNb}_2\text{O}_7$ は、 NbO_6 八面体が構成するダブルペロブスカイトブロックの間に Rb が挿入された構造をもつ。Nb の価数は +5 であるため非磁性（粉末は白色）である。

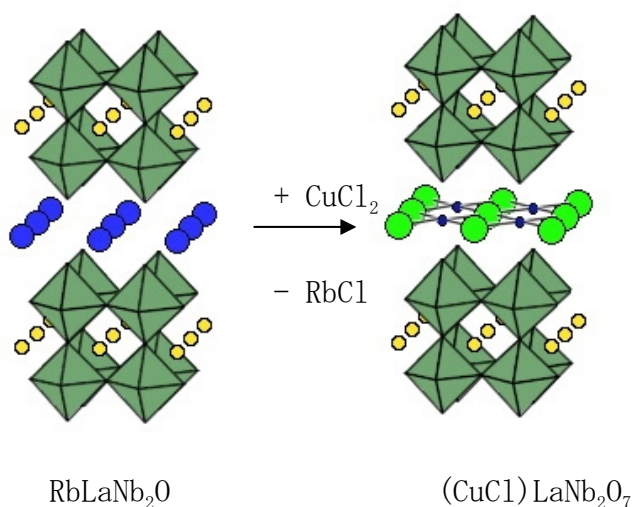


図1 イオン交換反応

この母体と CuCl_2 を混合し、マイルドな温度で熱処理すると母体構造を保ったまま Rb^+ が $(\text{CuCl})^+$ と交換し、黄緑色の $(\text{CuCl})\text{LaNb}_2\text{O}_7$ が得られ、副産物として RbCl が出る。娘体の $(\text{CuCl})\text{LaNb}_2\text{O}_7$ において $S=1/2$ を運ぶ Cu^{2+} イオンは図 1 に示すように二次元正方格子を形成している。 Cl^- イオンは Cu^{2+} イオンが作る正方形のほぼ中心に位置する。この CuCl 層は非磁性のダブルペロブスカイトのブロックにより離れているので良い二次元性が期待できる。実際、磁化率を測定すると図 2 の青丸で示したように 15K 付近でブロードな極大をとる低次元磁性体特有の振舞いを示す。4K 以下のキュリー項を差し引いたのが図 2 の赤丸である。非磁性のスピン一重項状態が基底状態であること、すなわち新しいスピンギャップ系であることが示唆される。

3. 将来の方向性と研究課題、強磁場の役割、100T における研究課題など

上述したように $(\text{CuCl})\text{LaNb}_2\text{O}_7$ の基底状態は古典的な反強磁性状態とは異なるエキゾチックなものであり、新しい低次元量子スピン系とみなすことができる。一般に量子スピン系ではわずかな不純物によりその量子物性がマスクされることが多い。低温合成法はインターカレーションに代表されるように不定比性が長所として全面に押し出されるため、逆に量子スピン系合成の舞台として適さないと見なされてきたようである。しかし、少なくとも本物質において不定比性は殆どない。また、(1)式と同様な方法により一般式 $(MX)A_{n-1}B_nO_{3n+1}$ の化合物を“状態図”を超えて得ることができる。実際、本研究室で $(\text{FeCl})\text{Ca}_2\text{Ta}_3\text{O}_{10}$ などの新物質の合成に成功している。 M, X, A, B, n などのパラメータによりスピン数、次元性、交換相互作用などを制御することが可能であり、これらの磁性を調べることによって正方格子やその関連格子 (J_1 - J_2 格子, Shastry-Sutherland 格子など) の磁性を系統的に理解することができると考えている。さらに、母体として層状ペロブスカイトとは異なるものを選ぶことにより、三角格子、カゴメ格子などの磁性格子を設計することも可能であると考えている。

4. まとめ

低温磁場測定は交換相互作用を評価するのに非常に重要な手段である。そればかりか $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ のように量子化された磁化プラトーや TlCuCl_3 のように磁場誘起反強磁性転移が観測されるなど低次元量子スピン系特有の現象がみえる舞台となる。無機化合物の交換相互作用は数十 K のオーダーであることが多いので必然的に強磁場が必要となる。したがって 100T 級の非破壊磁化測定が可能になるとそれが低次元量子スピン系の研究に与える効果は計り知れない。

5. 参考文献

- 1) H. Kageyama et al., J. Phys.: Condens. Matter 16 (2004) S911.

2.2 トリプルの BEC

京都大学大学院理学研究科 吉村一良

1. はじめに、研究の意義と位置付け

近年、弱く結合したダイマーギャップ系である TlCuCl_3 における磁場誘起反強磁性秩序が、磁場で誘起されたスピン三重項状態をボーズ粒子 (マグノン or トリプル) と見なしたとき、マグノンまたはトリプルのボーズ・アインシュタイン凝縮 (BEC) として理解できることが明らかになった [1].

従来より、スピンギャップを有する物質における磁場誘起反強磁性相転移が盛んに研究されているが、磁場誘起反強磁性秩序の理論は、立木・山田による弱く結合した $S=1/2$ ダイマー・ギャップ系について平均場近似を用いたものがよく知られている [2]. 外部磁場を加えるとスピン三重項状態の一つのエネルギーレベルが低下し、ある磁場で基底状態であったスピン一重項状態と交差する。その際ダイマー間に弱い相互作用があれば磁場誘起反強磁性秩序状態が形成される。立木・山田理論では、秩序相での磁化の温度依存性の増大や、磁場・温度相図における相境界のべき乗則が説明できなかったが、ボーズ・アインシュタイン凝縮とすると実験結果がよく説明される。これは、磁場誘起反強磁性転移の理論の改良というだけでなく、Rb, Na 等原子のボーズ凝縮に次ぐ、新たなボーズ・アインシュタイン凝縮の研究の場が提供されたと考えることが出来る。

理論ではダイマーを基調としたスピン・ギャップ系が想定されているが、磁場誘起反強磁性転移が観測される系としては、スピン・ギャップを有する交替結合鎖、二本脚梯子、プラケット、ハルデンなどが考えられ、これらの系で期待される磁場誘起反強磁性秩序が、マグノンの BEC として解釈出来るか否かに興味を持たれそのような観点からの研究が行われ始めている。

2. 研究の現状と研究例

現在、磁場誘起反強磁性秩序がマグノンの BEC と考えられている物質として、 $A\text{CuCl}_3$, ($A=\text{K}, \text{Tl}$), $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ [3], $\text{BaCuSi}_2\text{O}_6$ [4] 等が挙げられる。我々のグループでは、小さなスピンギャップ $\Delta \sim 7$ K を有する $S=1/2$ 一次元反強磁性結合交替鎖化合物 $\text{Pb}_2\text{V}_3\text{O}_9$ に着目し、高磁場下での磁化測定および比熱測定を行った。その結果磁場誘起反強磁性秩序を観測し、転移温度の磁場変化などから本系における磁場誘起反強磁性秩序が BEC で解釈しうることを示した。また、低温・低磁場領域の相境界のべき乗則が観測された。このべき乗則に関しては、 $\text{Cu}^{2+}-\text{Cu}^{2+}$ ダイマーが二次元正方格子上に並んだ $\text{BaCuSi}_2\text{O}_6$ でも同様の結果が得られている。これら以外の磁場誘起反強磁性秩序を示す物質もマグノンの BEC という用語は用いられていないが、ダイマーを基調とした系では同様な機構によるマグノンの BEC が起こっていると期待できる。また、熱流の測定により、超流動現象を捉えようという試みもなされている [5].

3. 将来の方向性と研究課題, 強磁場の役割, 100T における研究課題など

上述したような例はダイマーを基調としたスピギャップ系であるが, 二本脚梯子系・プラケット系やハルゲン系における磁場誘起反強磁性転移がマグノンの BEC であると示した実験例はあまり知られていないと思われる. このような系での物質探索及び磁場誘起反強磁性の観測が期待される. 特に二本脚梯子系やプラケット系では既存の物質はギャップエネルギーが 100K を超え, 磁場誘起相転移の研究はあまり行われておらず, 100T の強磁場下での実験が必要である. 従って, 一つの方針としては, 新規物質の開拓が考えられるが, それと同時に既存の物質を用い, より高い磁場における測定が求められる. また, 比熱等定常磁場下における測定が必要である. すなわち, 強磁場の役割として 100T パルス・50T 定常磁場を用いることにより

1. 大きなスピギャップを有する物質における磁場誘起相転移の観測
2. 相図上部における定常磁場下での物性測定 (トリプレット状態での励起シングレット (シングロン) のボーズ凝縮の相転移現象)
3. 超流動現象の観測

等が期待される.

4. まとめ

磁場で誘起されたボーズ粒子系が, 新たなボーズ・アインシュタイン凝縮の舞台として提案されている. 磁場がケミカル・ポテンシャルに相当する程度になると, これまでのボーズ粒子系では困難であった, ケミカル・ポテンシャルの制御が可能であると言う点で, 新たな研究の場が提供されつつある. しかしながら更なる実験の展開には更なる高磁場下の実験が必須である. 磁場の制御範囲の拡大により, 多くの物質系の開拓, および, 定常強磁場下における精密実験が行われることにより, 多くの知見が得られることが期待される.

5. 参考文献

- [1] T. Nikuni, *et al.* Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 5868.
- [2] M. Tachiki, T. Yamada, J. Phys. Soc. Jpn. **28** (1970) 1413; M. Tachiki, T. Yamada, Suppl. Prog. Theor. Phys. **46** (1970) 291.
- [3] T. Waki, *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 3435.
- [4] M. Jaime *et al.* Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 087203.
- [5] K. Kudo *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 2358.

2.3 磁場誘起量子相転移

東北大学大学院理学研究科 坂井 徹

1. はじめに、研究の意義と位置付け

近年、低次元磁性体における磁気励起のエネルギーギャップ「スピンギャップ」が注目されている。それは、スピン・パイエルス系、スピンラダー系、ハルデン系、直行ダイマー系などにおいて見られる巨視的な量子現象として、基礎研究上重要なばかりでなく、高温超伝導の発現機構に影響するなど応用面からも重要視されている。最近、このスピンギャップ系に強磁場をかけてギャップを制御し、ギャップレスの状態を作り出す磁場誘起量子相転移が盛んに研究されている。強磁場中で生じるこのギャップレスの状態は、一次元系では朝永・ラッティンジャー流体と呼ばれるスピン液体状態として知られ、また擬一次元系では反強磁性長距離秩序を有する秩序状態に相当する。この擬一次元系における磁場誘起秩序・無秩序転移は、マグノンのボーズ・アインシュタイン凝縮である可能性が示唆され、精力的に研究されている。このように、磁場によってスピンの粒子性を制御し、単なる固体液体転移ばかりでなく、限られた系でしか見つかっていないボーズ・ボーズアインシュタイン凝縮などのエキゾティックな量子相転移を実現しようというのが、現在の低次元磁性の分野における強磁場サイエンスの重要な役割となっている。

2. 研究の現状と研究例

スピンギャップ系において、強磁場によりギャップを潰した後に生じるスピン液体状態は、さまざまな側面を持っている。ひとつは、磁場に垂直な反強磁性的スピン相関で、擬一次元系においてはこれが上記のボーズ・アインシュタイン凝縮を引き起こす。一方、磁場に平行なスピン成分は、一般には非整合スピン相関を持ち、擬一次元系でコヒーレントな鎖間相互作用が働けば、これが磁場誘起非整合秩序をもたらす可能性がある。最近の理論的研究により、容易軸タイプの異方性がある場合や、フラストレーションによって従来の反強磁性が抑えられるような場合には、この非整合長距離秩序が強磁場で誘起される可能性があることが導かれた。また、この磁場誘起非整合長距離秩序も、反強磁性秩序とは異なるボーズ・アインシュタイン凝縮相であり、この相においてはふたつの凝縮相が共存するスーパーソリッド状態が実現している可能性が示唆され、注目されている。

1)

上記の磁場誘起非整合長距離秩序が実現する可能性が、具体的な誘起磁性体 F5PNN に対する磁場中 NMR²⁾や比熱測定³⁾の実験により指摘されている。この物質は磁性を引き出すスピン間の交換相互作用が比較的小さいため、10テスラ程度の磁場中でもこの非整合相が実現すると予測されているが、逆にこの相を明確に観測するためには鎖間相互作用に比べて十分低温で測定する必要があり、現在は極低温における磁場中測定により、この新しい相の探索が進められているが、まだ検証されてはいないのが現状である。

3. 将来の方向性と研究課題、強磁場の役割、100Tにおける研究課題

上記のように、強磁場によってスピンの粒子性を制御し、理論的に予言されている、スピングャップ相、ボーズ・アインシュタイン凝縮相、スーパーソリッド相などの間のエキゾチックな量子相転移を実現しようという試みは、まだ始まったばかりである。これらの磁場誘起量子相転移を実現するためには、交換相互作用と比較して十分強い磁場をかける必要がある。そこで、交換相互作用の弱い物質を合成して観測すればいいかと言うと、それでは温度に対する分解能が悪くなってしまいうために、明確な相転移の観測が困難となる。したがって、ある程度交換相互作用が大きい、すなわちスピングャップが大きい物質に対して、より強い磁場を加えることによって、上記のような新規な磁場誘起量子相転移の観測が可能となる。例えば著名なスピングャップ系のひとつである、銅酸化物高温超伝導体から派生したスピンラダー系においては、 $\sim 1000\text{K}$ 程度の交換相互作用があり、スピングャップを制御して潰すためには、おそらく ~ 100 テスラの強磁場が必要となる。そしてこの系にはフラストレーションと同等の効果をもたらす多体スピン交換相互作用というものが働くことが実験的にも確かめられており、この相互作用により上記の非整合相が実現することが理論的に予言されている。また、NDMAPと呼ばれるハルデンギャップを持つ物質では、この非整合秩序相の兆候とも考えられる新しい磁場誘起相が ~ 10 テスラ領域で観測され、さらに 100 テスラ程度の強磁場での検証が待たれている。

4. まとめ

低次元磁性体の分野においては、強磁場によってスピンの粒子性を制御し、新しいエキゾチックな量子現象としてのマグノンのボーズ・アインシュタイン凝縮、スーパーソリッド相などの実現が、重要な目標となっている。とくに 100 テスラの強磁場サイエンスが現実のものとなれば、まだ発見されていないマグノンのスーパーソリッドが観測される可能性は高い。

参考文献

- 1) N. Maeshima, K. Okunishi, K. Okamoto and T. Sakai: Phys. Rev. Lett. 93 (2004) 127203.
- 2) K. Izumi et al. Physica B 329-333 (2003) 1191.
- 3) Y. Yoshida, N. Tateiwa, M. Mito, T. Kawae, K. Takeda, Y. Hosokoshi and K. Inoue: Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 037203.

2. 4 超強磁場下におけるナノ磁石の動的制御

東京大学理学系研究科 宮下精二

1. はじめに、研究の意義と位置付け

量子状態の時間変化を直接観測することはたいへん興味深く、今後発展するであろう量子状態を用いたいろいろな情報操作にとっても重要である。磁性体、特に絶縁体磁性物においては系が他の自由度と比較的よく分離され、系のハミルトニアンがよくわかっており、量子状態の運動を研究する上で好都合である。その中でも特に最近合成が進んでいる単分子磁石と呼ばれる少数の磁性原子のクラスターからなる磁性体では、エネルギー状態が離散的となり量子状態を具体的に特定することができ、変化する磁場のもとでの量子ダイナミクスの研究の対象として注目されている。

これらの系では異なる磁化をもつエネルギー準位が交差する際に、何らかの相互作用によって磁化の混合が起こり、いわゆる反発擬交差が実現される。その点を磁場が通過する際に磁化は大きく変化しステップ上の磁化変化を示す。この現象は微小磁性体の共鳴トンネル現象として注目されている現象である。

しかし、これまでの観測は主に各磁場での SQUID による静的な観測を徐々に磁場を変えて行うことでなされ、量子ダイナミクス特有の位相情報(量子コヒーレンス)は失われていた。最近、我国での NMR による研究によってより短い時間スケールでの運動が明らかにされてきているが、位相情報を有効に取り出すにはより巧妙な磁場操作が必要となる。また、量子力学的な非断熱遷移を操作することにより、位相情報を用いた新しい量子状態制御が可能になる。

もう一つの重要な問題はデコヒーレンスの微視的研究である。上に述べたように磁性体は比較的其他の系から独立しているが、やはり熱的な擾乱は避けがたい。しかし、逆にそのような状況では、それぞれの温度で主要な外部からの擾乱の原因を特定しその特徴を明らかにできることが期待される。たとえば、比較的高温では格子振動、その後は他の磁気クラスターとの双極子相互作用や核磁子との相互作用などである。これらを明らかにすることはデコヒーレンスの抑制方法の開発など具体的な応用に役立つのみならず、散逸の起源の研究として量子統計力学の研究上も重要な分野である。[3, 4, 8]現状では、反発擬交差のエネルギーギャップと外部からの擾乱のエネルギーがほぼ等しいところでしか非断熱変化を含む積極的な磁場による磁化操作ができていない。磁場のエネルギーは比較的小さく、外界からの影響をできるだけ小さくしてこれらの研究をより精密におこなうには超強磁場のもとでの操作方法の開発が望まれる。

2. 研究の現状と研究例

具体的な対象物質としては、フェリ磁性クラスターである Mn₁₂ や Fe₈ の共鳴トンネル現象や、エネルギーギャップの横磁場依存性など本質的な量子効果に由来する発見がおこなわれ、最近では、

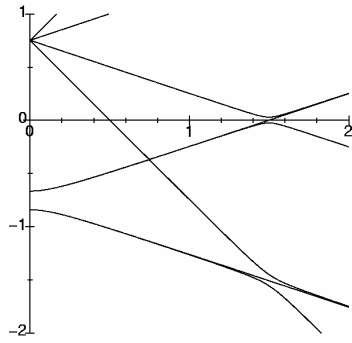


図 1

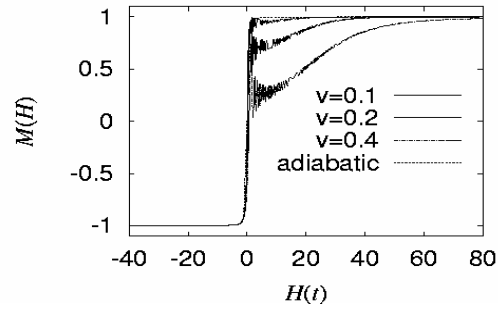


図 2

振動磁場下での状態間遷移などが具体的に調べられている。また、ロースピン物質である V15 での基底状態二重項での擬交差構造(図 1)に起源についてはジャロチンシュキー・守谷相互作用や超微細相互作用などいろいろな可能性が理論的に議論されている。[6, 7] また V15 のみならず多くの三角磁性クラスターの発見により、実験的にもいろいろな相互作用形態を総合的に調べることができるようになってきている。また、二重項と四重項の交差での磁化過程に動的な中間プラトーが現れることがエネルギー構造から予測され、実際に実験的にも観測されている。また、その他多くのクラスターで特徴的な磁化過程が発見されておりそれらの解明が進んでいる。

3. 具体的な磁場制御

- 1) 高速の磁場掃引: 反発擬交差でのエネルギーが熱擾乱より大きなことでランダウ・ゼナー公式で与えられる非断熱遷移を実際に観測。(0.1K で 10000000T/s の磁場掃引: 図 2) [1, 3]
- 2) 磁場のサイクル: エネルギー交差の構造を確認するため交差磁場付近で磁場のサイクルを可能にし、状態間遷移のダイナミクスを観測 (有限磁場での磁場増減制御)
- 3) 振動磁場: トンネル領域での位相干渉効果をみつため ESR の RF 的ではなく、より大きな振幅の磁場発生 [2]
- 4) 量子スイッチ: 磁場の速度による断熱・非断熱変化の切り替えを実現 [6]
- 5) 緩和現象: 磁気フェーン効果に代表される熱環境効果を磁場掃引速度の変化などによる緩和の変化から解明する。 [3]

4. まとめ

実時間量子ダイナミクスを具体的に観測する上で、外界と相互作用が小さくかつ大きなエネルギー変化をもたらす超強磁場を発生、制御は極めて重要である。 10^7 を超える超高速の磁場掃引が実現すれば、非断熱過程により実時間領域での量子干渉効果の観測が期待される。また、エネルギー準位に沿った状態の断熱変化が具体的に観測されることでエネルギー準位構造の磁場方向依存性などの精密な情報が明らかになることが期待される。これらの研究は量子磁性の分野はもとより、量子情報の基礎分野、さらには非平衡統計力学の基礎付けに関する基礎科学分野の推進を促すものとして期待される。

5. 参考文献

- 1) S. Miyashita, “Dynamics of the Magnetization with an Inversion of the Magnetic Field”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 64, (1995) 3207–3214
- 2) S. Miyashita, K. Saito and H. De Raedt, “Nontrivial resonance of nanoscale uniaxial magnets to an alternating field”, *Phys. Rev. Lett.* 80 (1998) 1525–1528.
- 3) K. Saito and S. Miyashita, “Magnetic Foehn Effect in Adiabatic Transition”, *J. Phys. Soc. Jpn.* {¥bf 70} (2001), 3385–3390.
- 4) S. Miyashita and K. Saito, “Nonexponential Relaxation of Magnetization at the Resonant tunneling Point under a Fluctuating Random Noise”, *J. Phys. Soc. Jpn.* {¥bf 70} (2001), 3328–3246.
- 5) S. Miyashita, H. De Raedt, and K. Michielsen, “Directionally Independent Energy Gap Formation Due to the Hyperfine Interaction”, *Prog. Theor. Phys.* 111 (2003) 889.
- 6) S. Miyashita, “Quantum Switching by making Use of Adiabatic Changes: Landau-Zener-Steuckelberg Mechanism and Rosen-Zener Mechanism”, *J. J. A. P.* (43) 126–131 (2004)
- 7) H. De Raedt, S. Miyashita, K. Michielsen and M. Machida, “Dzyaloshinski-Moriya interactions and adiabatic magnetization dynamics in molecular magnets”, *Phys. Rev. B* **70**, 064401 1–12(2004)
- 8) 齊藤圭司、宮下精二、「量子磁性体の非平衡現象を数値計算で解明する」、日本物理学会誌、**59** 760

2.5 超強磁場下における量子トンネル効果の研究

東北大学金属材料研究所 野尻浩之

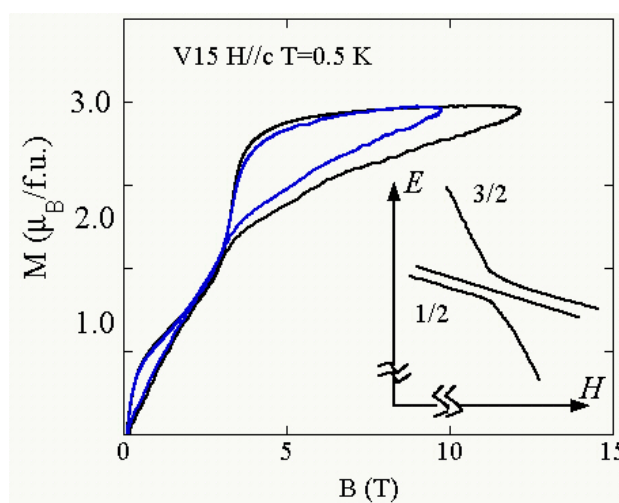
1. はじめに、研究の意義と位置付け

金属錯体に代表される単分子磁石と呼ばれるナノスケールの磁性体においては、エネルギー状態が離散的となり量子トンネル効果による磁化ステップ等が明瞭にみられることから、量子ダイナミックスの研究の対象として注目されている。これらの系は量子力学に従う少数自由度系であって、このようなナノスケールの量子系における実時間依存物理現象の理解は物理における未開拓の分野としてその進展が期待される。また、応用としては、ナノスケールの磁気デバイスや量子計算などの基盤として重要である。これらの研究における強磁場の役割は、ゼーマンエネルギーの操作により異なった量子状態間の遷移をもたらす事であるが、そのさい磁場強度はもとより、履歴や掃引速度等の時間構造の制御が精密に行える事は、強磁場の他の外部場にはない特徴として重要である。

より具体的には、スピンのコヒーレント操作が中心的な課題となる。核スピンのコヒーレント操作に関しては NMR 技術が既に確立しているが、磁気回転比の大きな電子スピンのコヒーレント操作は未開拓の分野である。技術的には NMR では強力なラジオ波が使用できるのに対し、電子スピンではサブミリ波が必要となるが、電子スピンを自在に操作できるような超強力なサブミリ波光源がないことが問題となる。このように電磁波でスピンを操作するのが困難な電子スピン系においては、磁場そのものに時間構造をもたせてスピンのコヒーレント操作を目指すことがひとつの方向である。これまでパルス磁場は定常磁場の補完的なものとして考えられてきたが、このような用途ではむしろパルス磁場の時間変化するという特徴が重要となる。定常磁場と高度な時間構造をもつパルス磁場を組み合わせることで自由自在に磁場を操ることにより電子スピンのコヒーレント操作を実現できれば、量子計算の分野で非常に大きなブレークスルーとなると期待される。

2. 研究の現状と研究例

ナノ磁性体のトンネル効果は、当初超常磁性状態を示す Mn_{12} などの強磁性単分子磁石において報告された。一般的に異なる量子状態間の混成によるトンネルギャップが小さいこれらの系では、核スピンやフォノン系などとの結合により、コヒーレンスが容易に失われ、またトンネル効果の実時間観測も困難である。最近では反強磁性リングや多面体などにおける磁場誘起の磁化ステップにおける量子トンネル効果が、比較的



ギャップが大きい事からより純粋な量子トンネル効果を見るに適しているとして注目され、強磁場研究の重要性が増している。またリング磁性体等において、磁場掃引速度の制御によりカイラリティに関連した量子的断熱磁化過程などが見いだされ注目されている¹⁾。また、これらとは別に、対象となるナノ磁性体のエネルギー準位の決定には高周波高磁場 ESR が²⁾、量子トンネルのダイナミックスに関して強磁場 NMR が重要な役割を果たしている。このような強磁場中の精密スピン分光の発展、なかでも磁場領域の拡大は重要な課題である。図 1 には、三角リングの磁化過程におけるカイラリティによるヒステリシスの例を示す。研究の現状に関しては、国際会議の報告などを参照されたい。³⁾

3. 将来の方向性と研究課題、強磁場の役割、100T における研究課題など

ナノ磁性体の量子トンネル効果のうち、磁場を用いた実時間のダイナミックスの研究は最近始まったばかりであり、様々なトポロジーマットリクスをもつナノ磁性体における磁化過程とそのダイナミックスの研究は引き続き重要である。また将来、 10^7 を超える超高速の磁場のもとでの研究が行えれば、非断熱過程により実時間領域での量子干渉効果の観測が期待される。これは有名なダブルスリットの干渉実験の時間軸バージョンであり、そこでは波動関数の位相が本質的な役割を果たすと期待される。また、純粋な量子効果の研究や室温で準安定性を示すナノ磁石の開発には、交換相互作用やトンネルギャップの大きい系の研究が必要であり、100 テスラ領域の強磁場における精密な磁化や ESR の測定はその基盤として必要不可欠である。また反強磁性多面体クラスターなどでは、分子内の反強磁性的スピン配列そのものを準安定状態として用いることにより超常磁性限界の制約を受けない新しい磁気メモリを得られる可能性がある。⁴⁾ 具体的には以下のような研究課題が考えられる。

- (1) リング磁性体における実時間断熱磁化過程の研究と量子トンネル機構の解明
- (2) スピンカイラリティの磁化過程に及ぼす効果及びカイラリティギャップの研究
- (3) 超高速磁場による非断熱磁化過程の研究、量子磁化振動、位相干渉効果の実験的検証
- (4) 多面体ナノクラスター等における準安定状態の磁場制御の研究
- (5) 超強磁場、強磁場 ESR を駆使した室温で準安定性を示すナノ磁石の探索、室温で量子効果を示す大きなトンネルギャップをもつ系の探索
- (6) 磁場を用いた量子計算や量子情報操作原理の開拓

4. まとめ

以上のように、ナノ磁性体における量子トンネル効果の研究において強磁場は必須の環境である。特に 100 テスラを超えるような強い磁場を用いる事により室温で安定な単分子磁石を見つける事や環境の汚染に強い大きなトンネルギャップを持った系を見いだす事はこの分野の研究のブレークスルーとなると期待される。またパルス磁場の高速な磁場変化を利用する事により通常の方法では困難な純粋な量子ダイナミックスの観測が期待される。これらの研究はナノ量子磁性の分野はもとより、量子情報科学や情報材料学などの学際分野の飛躍的発展につながるものとしてその一層の推進

が期待される。このように 100 テスラ領域の強磁場下における精密スピン科学の推進はナノ磁性体の研究に極めて重要である。

5 . 参考文献

- 1) T. Yamase et al. *Inorg. Chem.* 43 (2004) 8150–8157.
- 2) H. Hachisuka et al. *Phys. Rev. B* 70 (2004) 104427.
- 3) Proceedings of International Conference on Molecule-based Magnets.
- 4) C. Schröder et al. *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005) 017205.

II-3 超伝導

3.1 強磁場下における高温超伝導体の磁束状態

東北大学金属材料研究所 小林 典男

1. はじめに

高温超伝導体の磁束状態は、磁束の相関エネルギー、熱エネルギーおよびピン止めエネルギーの三つの要素の競合によって、温度や磁場を変数として複雑な相転移を起こすことが知られている。相転移の起こる磁場の強さは超伝導体の種類に依存し、2次元性が強いほど低磁場になる。2次元性の強い典型的な高温超伝導体である $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ (Bi2212)ではこの磁場は 10^{-2} T のオーダーであるが、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ (YBCO)では数 T から 10 T のオーダーである。このような複雑な磁束状態の理解は超伝導材料のパワー応用や磁束を利用した超伝導デバイスなどの開発に必要である。また一方、磁束状態におけるナノスケールあるいは原子レベルでの電子状態の理解は、新たに発見されつつある新奇な超伝導体の超伝導機構の解明に役立つに違いない。

2. 研究の現状

磁束状態の研究はこれまで磁氣的性質や輸送現象などのマクロな物性研究を中心に行われてきた。特に磁束系の相転移に関しては精度の高い測定が必要のため、超伝導マグネットやハイブリッドマグネットなどの定常強磁場を使って測定が行われている。磁束相図の一例として YBCO の場合を図1に示す。高温超伝導体の磁束状態は高温における磁束液体状態と低温での固体状態に分けられる。固体状態では低磁場で磁束格子を形成するが、高磁場では液体状態が凍結された磁束ガラス

状態である。液体から格子状態への相転移は1次であるが、ガラス状態へは2次相転移である。1次転移の領域は結晶中の欠陥に強く依存し、酸素欠損や不純物の増加とともに低下する。ほぼ理想に近い $y = 7.0$ では1次転移を示す磁場は 30 T を越える。

マクロな磁束状態はこれまでかなり詳細な研究が行われ、おおよそのことは理解されたと思う。今後はこれらの理解を中性子線や μSR , NMR, ST

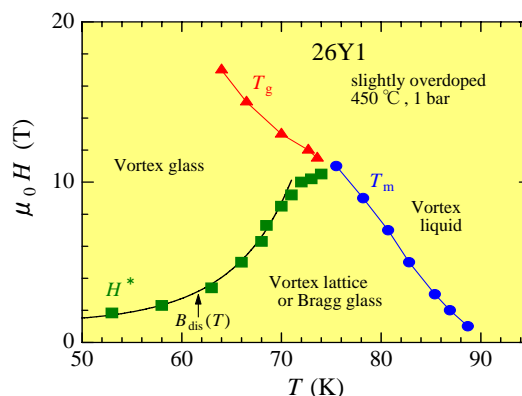


図1 YBCO ($y = 6.96$)単結晶の磁束相図

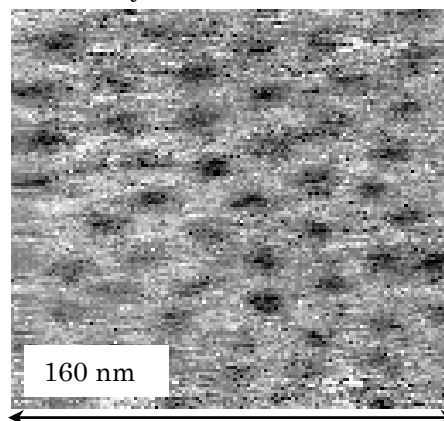


図2 YBCO ($y = 6.96$)における磁束像。 $T = 60$ K, $H = 3$ T.

M などのマイクロな観測とどのように結びつけるか、あるいはダイナミックな性質を含め超伝導デバイスやパワー応用にどのように適用するかが問題とされるだろう。

操作トンネル顕微鏡(STM/STS)による磁束状態の実空間上での直接観察は高温超伝導体の発見以来行われているが、まだそれほど進展はしていない。磁束格子状態における格子の対称性は波動関数や結晶の対称性に左右され、従って磁束構造の直接観察は超伝導の本質を理解するためにきわめて重要である。我々は最近 STM/STS による YBCO の広い磁場・温度領域における磁束観察に成功した。観測例を図 2 に示す。この例では磁束は歪んだ周期格子を構成していることがわかる。このように測定結果はマクロな測定から得られた結果とよく一致した。

3. 今後の研究課題・研究動向

超伝導体の磁束状態における原子スケールでの電子状態の観察は、超伝導機構の解明や超伝導応用に際して重要な要素となる磁束ピン止め機構の解明のために極めて有力な手段になるだろう。特に、1) 強相関超伝導体の対称性、超伝導ギャップ、擬ギャップ、FFLO 状態の観測およびそれらの磁場効果の系統的研究、2) Bi2212 等において観測される電子状態の不均一性の磁場効果などが重要な課題である。さらに、磁束状態ばかりでなく、3) 低次元遷移金属酸化物や有機伝導体における電荷・スピン密度波状態とその磁場依存性の研究、4) モットー転移近傍における相分離とその磁場効果なども強相関系超伝導体の理解と関わる重要な課題である。

3. 2 強磁場 NMR による強相関電子系の空間変調された超伝導状態の研究

北海道大学大学院理学研究科 熊谷健一

1. はじめに

高温超伝導体や重い電子系超伝導体などの強相関電子系においては通常の BCS 超伝導とは全く異なる性質を持ち、これらの超伝導体において超伝導秩序変数が抑制され、あるいは空間変調する非一様な超伝導状態に興味もたれる。ここでは、空間分解 NMR 法により高温超伝導体の渦糸コアの準粒子状態、特に超伝導秩序変数が抑制された渦糸コアでの反強磁性、および重い電子系 CeCoIn_5 において強磁場・低温で現れる新しい超伝導相が超伝導秩序変数の空間変調を伴ういわゆる FFL0 (Fulde-Ferrel-Larkin-Ovchinnikov) 状態を検証した研究について述べる。

2. 反強磁性渦糸コアの研究

酸化物高温超伝導体では反強磁性 Mott 絶縁体へキャリアをドーピングすることにより高温超伝導が発現するので、その発現機構には反強磁性相関が重要な働きをしていると考えられる。従来の超伝導体の渦糸コア内では正常な金属電子状態であるのに対して、高温超伝導体の渦糸コアでは異常な金属準粒子状態が実現していると考えられてきた。渦糸状態では超伝導秩序変数が抑制され、空間的に非一様な超伝導状態が実現している。近年の理論的研究からは高温超伝導体の渦糸コアで反強磁性秩序が実現する可能性が指摘され興味もたれている。例えば LSCO に対する強磁場中における中性子散乱実験では超伝導状態で反強磁性モーメントの増大が観測されたが、中性子散乱実験では空間分解能が十分ではなく磁気モーメントが渦糸コアに起因するものかどうかは分かっていない。

渦糸状態では磁場分布 (Redfield pattern) が生じるので渦糸コアからの NMR 信号は高周波側に現れる。この超伝導磁束状態における磁場の空間分布を利用することで渦糸コアの状態を分離して調べることが可能になる。[1] 最適ドーピングに近い $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ ($T_c=85\text{K}$) の ^{205}Tl 核で NMR 測定をおこなった。Tl サイトは Cu の直上に位置し Cu モーメントの反強磁性揺らぎが打ち消されないサイトである。図 1 に示すように、渦糸コアに近づくにつれて $1/T_1$ が増大し渦糸コア部分では超伝導部分よりも ~ 100 倍以上もの増大が観測された。また、 $T=20\text{K}$ 以下では渦糸状態の磁場分布では説明できない渦糸コア部分でのスペクトラムの広がりを観測した。このことは渦糸コア部分での大きな磁

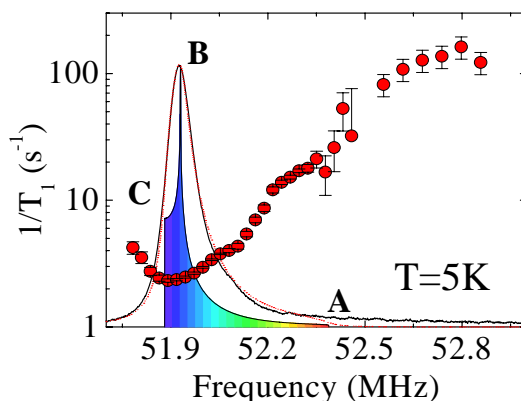


図 1. $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_{6+\delta}$ ^{205}Tl サイトの $1/T_1$ の周波数分布。コア部分 (A 点) で $1/T_1$ の増大が見られる。[2]

気揺らぎの存在を示し、渦糸コア内に静的な内部磁場が発達していることを示している。渦糸コア部分の核スピン-格子緩和率 $1/T_1$ は 20 K にピークを持って低温で減少する。この温度変化は反強磁性揺らぎが温度とともに凍結し低温で静的な磁気モーメントが現れることを示す。これらの NMR の結果は超伝導秩序変数が抑制される高温超伝導体の渦糸コア内に反強磁性モーメントが誘起されることを実験的に示したものであり、高温超伝導の発現機構を理解する上で重要な知見である。[2]

3. FFLO 状態の研究

強磁場下では超伝導に対して常磁性効果が重要になる。常磁性効果の大きな系では FFLO 状態と呼ばれる超伝導秩序変数の空間的周期振動する状態が実現する可能性が 1960 年代の理論的研究から予測されていた。これまで多くの超伝導体において FFLO 状態が実験的に探求されてきたが、今日まで確定的な実験的証拠は得られなかった。

最近発見された最も高い T_c をもつ重い電子系超伝導体、 CeCoIn_5 ($T_c = 2.3\text{K}$) はクリーンな系であり、また常磁性効果が強い系であることなど興味ある物質である。最近の比熱や磁化の測定から強磁場領域 ($H > 10\text{T}$) での超伝導転移が 1 次相転移であることが明らかになり、FFLO 状態が実現する可能性が指摘されていた。実際に CeCoIn_5 の強磁場領域での比熱測定から、 H_{C2} での常伝導-超伝導転移に加え、低温で新たな超伝導状態への相転移に伴う比熱の異常が観測された。この新しい超伝導相は高磁場低温領域で実現していることから FFLO 相ではないかと考えられている。

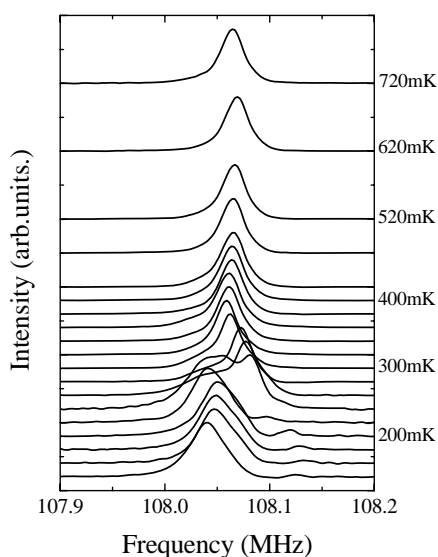


図 2. ^{105}In -NMR スペクトラムの温度変化)。新しい超伝導相に入る 300mK 以下でスペクトラムの変化が観測された。[3]

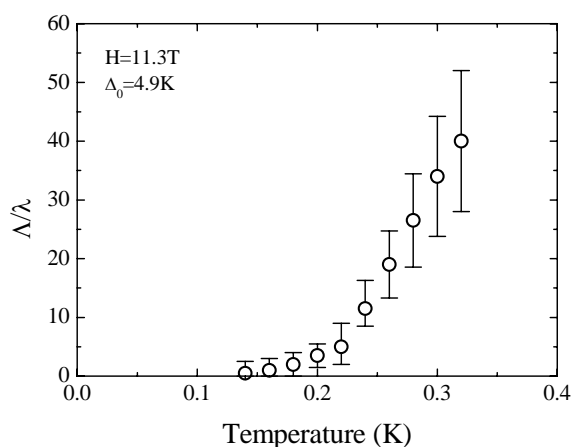


図 3. 超伝導秩序変数の変調周期と磁場侵入長の比 (Δ/λ) の温度変化。温度の低下と共に Δ/λ が小さくなる。[3]

本研究では強磁場 NMR を用いて微視的観点から CeCoIn_5 の新しい超伝導相での電子状態を調べた。FFLO 状態が実現していれば超伝導秩序変数が周期的に変化するので超伝導の消失するノード面が現れることが予測される。ノード面と超伝導領域とは準粒子状態密度が異なるのでナイトシフトに大きな変化が期待され、NMR スペクトラムから超伝導秩序変数の空間分布を微視的に調べることが可能である。In(1)サイ

トのNMR測定の結果は、新しい超伝導相への転移温度直下近傍 (300mK) でスペクトラムの顕著な変化を示している。[図 2] また、Co サイトの測定においても同様なスペクトラムの変化が観測された。FFLO 状態の超伝導秩序変数の空間変調モデルに基づく NMR スペクトラムのシミュレーションでは実験で得られたスペクトラムをほぼ再現できる。このスペクトラムの解析より超伝導秩序変数の変調周期の温度変化を求めたところ、FFLO 状態での空間変調の波数は温度の低下とともに急速に短くなることが示された。[図 3] これらのNMR結果は FFLO 状態に伴う超伝導秩序変数の空間変調を検出したものであり、理論的に示唆されて以来長い間その実験的証拠が見つからなかった FFLO 状態が重い電子系超伝導体 CeCoIn_5 で実現することを微視的に初めて明らかにしたものである。[3]

4. まとめ

このような高温超伝導体の反強磁性渦糸コア状態、重い電子系超伝導体における FFLO 状態に関する研究の進展にみられるように、今後とも強磁場下での空間分解 NMR 測定による強相関超伝導体の秩序変数の空間変調を伴う新奇な電子状態の研究の発展が期待される。

5. 参考文献

- [1] K. Kakuyanagi, K. Kumagai, Y. Matsuda, Quasiparticle excitation in and around the vortex core of underdoped $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ studied by site-selective NMR, **Phys. Rev. B** **65** (2002) 060503R.
- [2] K. Kakuyanagi, K. Kumagai, Y. Matsuda, M. Hasegawa, Antiferromagnetic Vortex Core $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Cu}_{6+\delta}$: Studied by Nuclear Magnetic Resonance, **Phys. Rev. Lett.** **90** (2003) 197003.
- [3] K. Kakuyanagi, M. Saitoh, K. Kumagai, S. Takashima, M. Nohara, H. Takagi, and Y. Matsuda, Texture in the Superconducting Order Parameter of CeCoIn_5 Revealed by Nuclear Magnetic Resonance, **Phys. Rev. Lett.** **94**, (2005) 047602.

3.3 超伝導体中の渦糸の微視的研究

岡山大学大学院自然科学研究科

町田一成

1. はじめに

超伝導現象は基礎物理学の立場からも、又、応用上からも興味深い。とりわけ磁場を印可したとき多くの超伝導体は量子化した磁束が規則的に配列した混合状態になる。超伝導が破壊される上部臨界磁場 H_{c2} は物質によって様々な値をとるが、銅酸化物等の高温超伝導体では100Tを越えることもある。このため高温超伝導体を磁場で壊したときどのような”正常状態”が存在するのかを実験的に探ることが難しい。これが高温超伝導の機構の解明の一つの大きな障害になっている。

高温超伝導体以外にも、新規な超伝導体は重い電子系をはじめとして、スクッテルダイト、パイロクロア一等々続々と発見され、それらの超伝導のクーパー対の対称性の同定が焦眉の問題となっているのは周知の事実である。ここ数年我々は対関数の同定の問題に取り組んでいて、そこではとりわけ磁場をプローブとした実験手段が重要な役割を果たしうることを理論的に実証してきた[1,2,3].

ここではこの幾つかを紹介しつつ、磁場を扱う実験グループへの提案を行いたい。

2. 角度分解電子比熱

対関数の対称性を同定する際、ギャップ構造の特定は対のパリティの決定と並んで最重要な課題である。印加磁場の方向を変えながら混合状態の電子比熱を測定すると、ギャップノード方向とそれ以外とで明確な変化が現れることを理論計算で示した[1]。従って、角度の関数として低温極限で電子比熱の振動パターンを精密に測ればギャップ構造を同定することが可能である。この手段に依って最近 CeCoIn5 の実験が遂行された[2].

3. 角度分解磁化測定

同様な角度分解測定を混合状態の磁化に適用してもギャップ構造を特定すること可能なことを最近、理論的に示すことができた[3]。前の比熱は低温に限られるのに対して、磁化は温度と磁場の二つの軸を走査することが可能であるというギャップスペクトロスコープとしての特徴を持っている。

4. Knight shift と Pauli paramagnetism

対関数のパリティの決定は NMR の Knight shift 実験がほとんど唯一の実験手段である。混合状態で行われるこの実験の微視的理論は現在の所、満足のいく形式でなされた例は無い。これは混合状態の微視的な記述が今まで不十分であったことに起因する。混合状態の Knight shift を記述するには系の Pauli

paramagnetism を正しく考慮することが必要であり、この事自体十分に従来なされていなかった。CeCoIn₅ 等で Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov 状態が取りざたされ、Pauli paramagnetism が重要な課題になっている。現在、これらの問題を準古典近似という微視的理論の枠組みの中で計算することは大きな問題であると考えられる。

5. 将来の課題

以上述べたように磁場というクリーンな手段を用いた実験は今後もその重要性を増すと思われる。一方で、強磁場を追求して高温超伝導の機構の解明等に資するハードな方向と同時に、一方でベクトル磁場等による磁場制御の精密化も図られるべきであろう。後者はソフトな方向ともいえる。例えば、中性子小角散乱装置に横磁場装置を設置できると興味ある実験がデザイン出来る等ちょっとした工夫でまだまだ未開拓の分野を切り開くことは可能である。

参考文献

- [1] P. Miranovic, N. Nakai, M. Ichioka, and K. Machida, Phys. Rev. B 68, 052501 (2003).
- [2] H. Aoki, T. Sakakibara, H. Shishido, R. Settai, Y. Onuki, P. Miranovic, and K. Machida, J. Phys. Condens. Matter 16, L13 (2004).
- [3] H. Adachi, P. Miranovic, M. Ichioka, and K. Machida, Phys. Rev. Lett. 94, 067007 (2005).

II—4 有機導体

4.1 相図、CDW, SDW

物質・材料研究機構 宇治進也

1. はじめに

現在までに開発、合成されているほとんどの有機導体の構造は次の2種類に分類される。

1) 2種類の有機分子の積層構造

2) 有機ドナー分子と無機アクセプター分子の積層構造

積層した有機分子の分子軌道はお互いに重ね合わさり、そこに有限の移動積分をもつことになる(エネルギーバンドを形成する)。積層構造の仕方により、エネルギーバンド(フェルミ面)は1次元または2次元構造をもつ。この低次元性により、多くの有機導体においてフェルミ面は強いネスティング不安定性を持つため、低温でCDW, SDW転移を示す。有機導体はその構造から実に単純なフェルミ面構造をもつが、強磁場中で多彩な物理が見つかっている。

2. 研究の現状と研究例

通常の超伝導体は、磁場中では不安定になり、ある臨界磁場で金属状態に戻ってしまう。ところが2次元有機伝導体 λ -(BETS)₂FeCl₄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明らかとなっている^{1,2)}。図1には磁場を伝導層に並行にかけたときの抵抗の磁場変化を示す。20T以上の強磁場で抵抗がゼロになり(超伝導状態)、その後40T付近で抵抗が戻ってくるのが分かる。この磁場誘起超伝導の原因として、結晶中の局在したFeイオンが大きな常磁性モーメントを持ち、BETS分子の伝導電子と負の交換相互作用が働いていることが本質的な原因となっている。

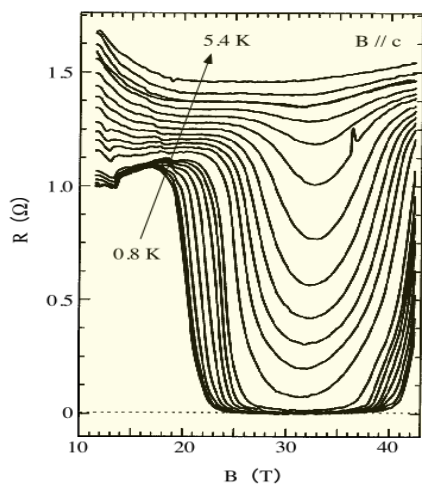


図1 2次元有機伝導体 λ -(BETS)₂FeCl₄の抵抗の磁場変化。温度は0.8Kから5.4Kまで、約0.25K刻みで測定している。高磁場領域で超伝導が観測される様子がわかる。

Feイオンの常磁性モーメントは、外部磁場の方向を常に向くが、伝導電子との交換相互作用が

負であるために、伝導電子スピンにとっては外部磁場とは逆向きの内部磁場を作ることになる。この内部磁場は極めて大きい（この場合は 32T）、内部磁場を打ち消すほどの強磁場中で、伝導電子スピンの感じる磁場は小さくなるので（ゼーマン効果弱くなるので）、十分に低温であれば超伝導が安定化してよい。ただ、定量的な説明はまだ不完全であり、特殊な超伝導状態（FFLO状態）が実現しているとの理論的な示唆もあり、今後の研究が待たれている。

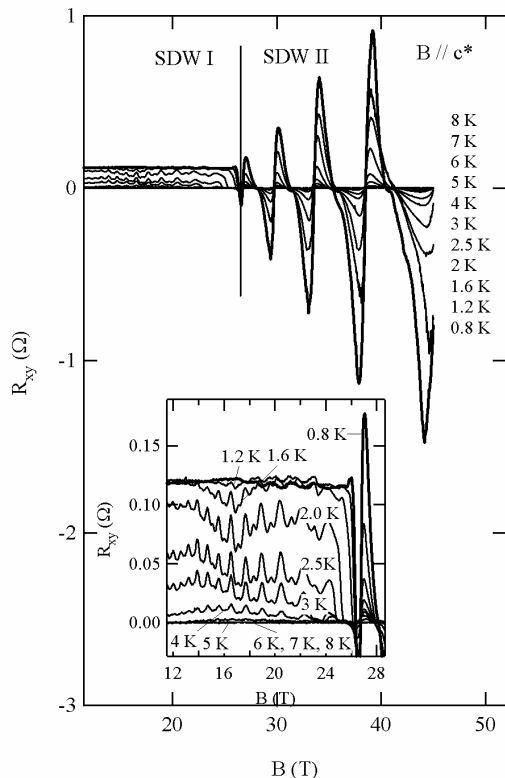


図2 1次元有機伝導体(TMTSF)₂ClO₄低温でのホール抵抗。26T 異常の強磁場で正負を反転しながら振動している様子が分かる。

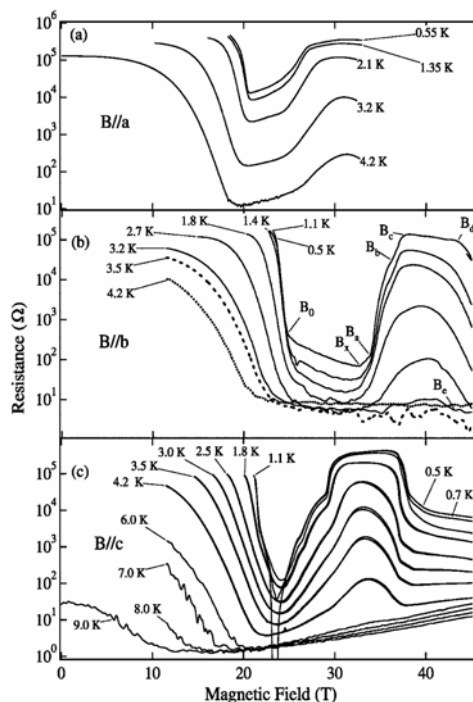


図3 1次元有機伝導体(Per)Pt(mnt)₂の抵抗の磁場依存性。20T付近でCDW状態が壊れた後、さらに高磁場で抵抗が急激に増加する。

2) 1次元有機伝導体(TMTSF)₂ClO₄は低温で ClO₄ イオンが整列し、結果的に2組の一次元フェルミ面を持つ。伝導面(ab面)に垂直に磁場をかけると、磁場誘起逐次SDW転移を起こし、8Tで量子数 n=1 の量子ホール効果状態(SDW I)へ転移することが知られている。さらに強磁場をかけると26T程度で次の強磁場SDW II相へと転移する。このSDW II相で、ホール抵抗(図2)に正負を伴う大きな振動が現れることが見出された³⁾。振動の振幅は磁場の増加、温度の低下とともに大きくなる傾向にある。古典的な輸送論では、ホール抵抗の符号はキャリアの種類(電子、ホール)によって決まるので、この結果はキャリアの種類が磁場とともに変動していることを示唆している。この強磁場状態は、いままでには発見されていない新しい量子状態であることが示唆されているが、解決されていない。量子極限での新しい物理の開拓を期待させるものである。

3) 1次元有機伝導体(Per)Pt(mnt)₂は、8KでCDW状態に転移する。CDW状態は一对の1次元フェルミ面のの上向きスピン(または下向きスピン)がお互いに結合した状態を持つので、一般に磁場に

対して不安定となる。実際にこの系でも、20 T付近で抵抗は急激に減少するため CDW 状態が磁場で不安定となり、ネスティングしていたフェルミ面が復活したと考えられる(図 3)⁴⁾。ところがさらなる強磁場で、抵抗は急激に増加するため、新たな強磁場状態へと転移したと考えられている。この状態がいくつかの理論で予言されているような別の CDW 状態なのかどうか興味もたれている。

3. まとめ

以上のように、有機導体においては強磁場で非常に多彩な物理が発現している。これらの多くは物理の基本的な問題「多体効果が基底状態をどのように決めるのか」を研究する上で格好の話題を提供するものである。

4. 参考文献

- 1) S. Uji, H. Shinagawa, T. Terashima, T. Yakabe, Y. Terai, M. Tokumoto, A. Kobayashi, H. Tanaka and H. Kobayashi, *Nature* **410**, 908 (2001)
- 2) 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**, 067002 (2001)
- 3) S. Uji, S. Yasuzuka, T. Konoike, K. Enomoto, J. Yamada, E. S. Choi, D. Graf, and J. S. Brooks
Phys. Rev. Lett. **94**, 077206 (2005)
- 4) D. Graf, E. S. Choi, J. S. Brooks, M. Matos, R. T. Henriques, and M. Almeida
Phys. Rev. Lett. **93**, 076406 (2004)

4. 2 有機導体の磁気光学測定

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、研究の意義と位置づけ

BEDT-TTF や TMTSF に代表される有機分子とアニオンからなる電荷移動型の低次元有機導体の研究は、新しい超伝導体の開発を目指して歴史的に発展してきた。導体の性質を研究するにはそのフェルミ面を明らかにすることが重要で、決定的である。電解法で小さいながら良質な単結晶がえられる低次元有機導体では、伝導困難軸方向の電気抵抗測定が容易かつ超伝導磁石の磁場でシュブニコフ・ド・ハース振動が観測されることからフェルミ面の研究はシュブニコフ・ド・ハース振動測定主導で進んできて、サイクロtron共鳴に代表される磁気光学測定は補助的な情報として扱われてきた感がある。この一因としては化学系研究者にとって磁気光学測定がなじみの薄い測定であることと、磁気光学測定がもっぱら超伝導磁石の磁場領域に限られ、えられる情報が限定的であったことなどがあげられる。しかし、半導体研究の例からわかるように磁気光学測定から有効質量や緩和時間を直接えることができ、本来ド・ハース効果の測定と相補的な情報を与え、フェルミ面研究では非常に重要であるといえることができる。さらに λ -(BETS)₂FeCl₄のように 17T から 40T の磁場で磁場誘起超伝導を示す系もあらわれ、50T 以上の強磁場下で磁気光学測定をおこなう重要性はたかまっている。

2 国内外の状況

はじめて低次元有機導体のサイクロtron共鳴を報告したのは Singleton らであり、遠赤外レーザーとハイブリッド磁石をもちいた α -(BEDT-TTF)₂KHg(SCN)₄ の測定であった。ここでシュブニコフ・ド・ハース振動による有効質量とサイクロtron共鳴による有効質量の違いからサイクロtron共鳴による有効質量には電子相関が効かないという Kohn の定理が議論された。パルス磁場によるはじめてのサイクロtron共鳴の観測は、 α -(BEDT-TTF)₂RbHg(SCN)₄ について報告された²⁾。これらの測定は、多数の単結晶をモザイク的にならべた測定であったが、有機結晶の小ささと多数の結晶をひとつの測定に使用することの不便さから、1mm 角以下の結晶ひとつでカップリングモードを制御して測定が可能なミリ波ベクターネットワークアナライザーと空洞共振器および超伝導磁石を用いた測定が主流となっていった。現在このような測定がおこなわれているのは、東北大学金属材料研究所強磁場センター、フロリダ大と NHMFL(米国)、オックスフォード大(英国)である。特に東北大学金属材料研究所強磁場センター、フロリダ大とオックスフォード大では回転式空洞共振器が使用され、詳細な角度依存性測定から擬一次元のフェルミ面を periodic orbital resonance (POR) から明らかにすることが可能となっている³⁾。

3 将来の方向性と研究課題

今後の方向性と研究課題として以下のようなものが考えられる。

(1) 現在ベクターネットワークアナライザーは NHMFL の水冷磁石で最大 25T まで使用可能となっている。基本的な現状の制限はクライオの直径と磁石の内径であるので、より広い磁場領域で新しい相転移などの

研究のためハイブリッド磁石の 45T まで拡張されることが予想される。したがって、国内のハイブリッド磁石などの定常磁場の安定度をまして対抗していくことがのぞまれる。

(2) 共振器をパルス磁場で使用する工夫をすすめるとともに、空洞共振器以外のテクニックによる 100T パルス磁場下での高感度測定を実現して磁気光学測定を可能にすることで新現象の発見が期待される。

(3) 100T パルス磁場下の磁気光学測定のひとつの目標として有機導体の単位胞が大きいこと一番下のランダウ準位にすべてのキャリアを入れる量子極限の達成が容易で、その極限での磁気光学測定は大変興味深いものと考えられる。

(4) 擬一次元有機導体に関してはド・ハース効果は無効となるので、POR による磁気光学測定はフェルミ面の再構築に威力を発揮する⁴⁾。より高周波数強磁場での測定は POR の分解能を上げ、より高次の POR の観測を可能にし、より詳細なフェルミ面のたわみを明らかにできる。

(5) これまで低次元有機導体の磁気光学測定がおこなわれてきたが、最近[Ni(tmtd)₂]など3次元の単一分子有機導体のフェルミ面を明らかにすることは重要だと考えられる。このような系は、まだ RRR があまり高くないので、サイクロトロン共鳴の観測には強磁場極低温の測定が必要である。

(6) これまで有機半導体は導体に比べて注目されてこなかったが、最近有機 FET の開発などで非常に注目されるようになってきたので、有機半導体の光励起による磁気光学測定は非常に重要な意味をもってくるものと考えられる。

4 まとめ

以上のように、有機導体および半導体のフェルミ面の磁気光学測定による研究において強磁場はなくてはならない環境である。特に有機導体では 100T をこえる強磁場での磁気光学測定が可能となれば量子極限の新しいパラダイムを切り開くことが期待される。また、有機 FET などとの関係で強磁場下の有機半導体の磁気光学測定によるフェルミ面の研究は極めて重要である。

5 参考文献

- 1) J. Singleton *et al.*: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 2500.
- 2) H. Ohta, Y. Yamamoto, K. Akioka, M. Motokawa and K. Kanoda: Synthetic Metals **86** (1997) 1913.
- 3) Proceedings of ICSM2004, to appear in Synthetic Metals (2005).

4) Y. Oshima et al. : Phys. Rev. B **68** (2003) 54526.

II—5 半導体

5.1 半導体中伝導電子系の強磁場スピン物性

物質・材料研究機構 高増正

1. 半導体伝導電子の強磁場スピン物性

量子計算機をはじめとする量子機能素子研究では、電子の電荷のみならずスピン自由度の有効な利用が求められる。スピントロニクス研究の対象の多くは常温における強磁性発現に着目しているが、強磁場、低温でこうした現象の基礎部分である伝導電子のスピン物性について詳細な研究を行うことは大変重要であると思われる。一方、強磁場下で実現される量子ホール効果においては伝導電子がランダウ量子化され、分数量子ホール効果状態では長距離コヒーレンスを持つことが指摘されている。こうした系においては伝導電子のスピン状態がマクロな空間、時間秩序を持つため伝導電子自体のスピン物性が重要となる。さらに、様々な孤立スピン系との相関は多様性が増すため、より興味深い現象が生じることが考えられる。

2. 半導体中伝導電子スピン物性の現状

これまでも伝導電子スピンの強磁場物性研究は多く行われているが、伝導電子のスピン偏極の空間的な特性に着目した例は少ない。我々は、孤立スピン系と伝導電子との相関研究の端緒として、自己形成量子ドット埋め込み2次元電子系における伝導電子と量子ドット内の孤立電子状態との相関についての研究をおこなっている。2次元電子系近傍の量子ドットはフロントゲートによって伝導電子とのトンネル障壁をコントロールすることが可能であり浮遊ゲートとしての役割を果たす。強磁場量子ホール効果状態における2次元系の電気伝導特性はそのスピン偏極によって易動度が変化するスピン依存散乱効果が見出されている。こうした現象は、孤立電子のスピン状態とともに空間的に広がった伝導電子のスピンコヒーレンスによってもその発現が大きく左右されるため大変興味深い現象であると思われる。また、より強い伝導電子スピンと孤立スピンの相関を持つ系の候補として、希土類原子を不純物として III-V 族化合物半導体に導入した系に対する強磁場基礎物性、特に光学的特性についての研究も行っている。^{1,2)}

3. 将来の方向性と研究課題

伝導電子スピン状態のより詳細な研究のためには、空間的、時間的な状態変化をダイナミックに捉えることが必要となる。時間領域においては光学的に時間分解分光等を用いる方法が一般的になっているが、空間的なスピン状態の変化の研究には、ナノメートルスケールで極めて小さなスピン状態の検知を行うための計測装置の開発が重要となる。現在、こうした装置は一般的には存在しない

ため装置開発を伴う以下のような研究が課題として考えられる。

- (1) 走査型磁気力顕微鏡の強磁場中での高性能化による伝導電子スピン偏極の空間分布の解明
- (2) 少数電子系に対する高感度 ESR 顕微鏡の開発による局所スピン操作
- (3) 上記の量子ドット構造等を空間的に制御した試料による 2 量子ドット間のスピンコヒーレンスを観測することによる伝導電子による量子ドット電子状態の相関の実験的検証

4. まとめ

以上のように、伝導電子スピン状態の物性研究は、まだその端緒についたばかりであり、上記のように強磁場中での計測のための測定系の開発と不可分な点がある。また、計測や孤立スピン系との相関にはスピン状態間のエネルギー準位の調整を広い範囲で行える必要があり、出来るだけ広範囲の磁場を勝用する必要がある。100 テスラ領域の強磁場下では、2つのシステム間の共鳴現象をパルス的に実現できる利点があり、本質的に極めて重要な技術を内包している。

5. 参考文献

- 1) K. Sato et al. J. Appl. Phys. 95, 2924(2004).
- 2) T. Takamasu et al., Physica B, 298, 446(2001).

5.2 磁性半導体量子構造

東京大学物性研究所 嶽山正二郎

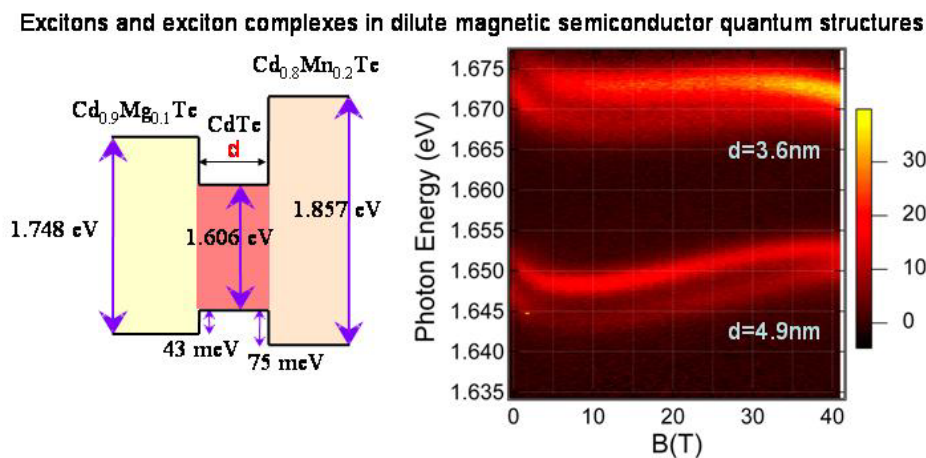
1. はじめに、研究の意義と位置付け

CdTe 等 II-VI 化合物、GaAs、GaN 等 III-V 族半導体をベースにしたものに Mn、Fe などの遷移金属を混合したものなど、近年、多彩な磁性半導体が研究されている。スピントロニクス応用材料としての意図の下、基礎から応用まで研究の幅は広い。電気や光信号で磁性を制御したり、その逆を行うための機能的な探索が行われている。磁性スピンとの交換相互作用に起因する大きなゼーマン効果を利用した磁気光学材料としての応用を目的とした研究、光励起や電子ドーピングによる強磁性相の発現のための物性研究、光や伝導電子の磁性層を通したスピン注入などスピンと電荷の結合を狙った研究がなされている。基礎物性研究としては、光励起して生成した励起子や複合励起子（励起子分子、荷電励起子）などの磁場効果では、直接内部磁場を増大させて内部スピン状態を調べたり、制御することができる点で独自の研究体系ができています。

2. 研究の現状と研究例

In(Ga, As)/AlSb、In(Ga, As)/GaSb ではそのヘテロ界面の特異性をうまく利用した腰原ら¹⁾の光励起蓄積キャリア電子による強磁性発現は、光ファイバーとスクイッド磁束計を組み合わせで行われ、強磁性を示す磁化ヒステリシスを観測することにより見事に示された。

II-VI 化合物希薄磁性半導体での代表格である CdTe/(Cd, Mn)Te では、高密度光励起されて生成される励起子分子が観測され、そのスピンドYNAMIXの詳細とともに、励起子分子状態の強磁場効



果も観測された。フェムト秒コヒーレント光を用いたスピン選択四光波混合の詳細な磁場効果から結合（一重項状態）・反結合状態（三重項状態）の混成が磁場により誘起されることが示され、図にみられるように2つの異なる幅をもつ量子井戸からの励起子分子発光のふるまいから、5-10 テスラで一重項-三重項の交差が起こり、強磁場では三重項状態が安定になる様子として観測された²⁾。

3. 将来の方向性

磁性半導体は外部磁場に対し有効な内部磁場を巨大化することができるので、強磁場、超強磁場実験では、電子系のスピンに直接磁場効果を顕在化して働きかけることができる。例えば、励起子、励起子分子、荷電励起子などの複合励起状態ではその内部構造を調べる上で、内部自由度としてのスピンは重要な働きをする。したがって、s-d, p-d 交換相互作用を通しての巨大磁場効果による 100 テスラ前後の超強磁場でも、電子のスピンにはその 10-100 倍の有効磁場印加に相当する状態を作り出すことができる。すなわち、物質内で 1000 -10000 テスラもの強磁場になるのである。また、最近青色半導体としても知られる GaN とそれをベースにした磁性半導体 (Ga, Mn) N や (Ga, Fe) N は室温での強磁性相が報告されているが^{3,4)}、強磁場領域での磁化過程が未だ解明されておらず、磁化、光、伝導過程を通じた詳細な研究に委ねられている。真の強磁性発現機構解明には、是非ともパルス強磁場領域での精密な研究が要求される。

今後、磁性半導体量子構造で志向される研究としては、

- 1) 励起子分子、荷電励起子などの複合励起状態の強磁場磁気光学研究
- 2) 高密度光励起実現する複合励起状態の発見とその強磁場磁気光学
- 3) 強磁性相が観測されている半導体で構成される量子構造での強磁場磁気構造の解明

などが考えられる。

4. 参考文献

- 1) S. Koshihara, et. al., Phys. Rev. Lett. 78(1997)4617.
- 2) F. Nagai, A. Kobayashi, H. Mino, S. Takeyama, et. al., “Four-wave-mixing transient spectroscopy on exciton complex states in CdTe/Cd_xMn_{1-x}Te quantum wells”, Physica E 22 (2004) 607.
- 3) 園田早紀、応用物理、第 71 巻、第 10 号(2002)1267
- 4) 近藤剛、宗片比呂夫、応用物理、第 71 巻、第 10 号(2002)1272.

Ⅱ—6 化学、生物、材料科学

6.1 ナノ細孔に吸着した酸素分子の磁性研究

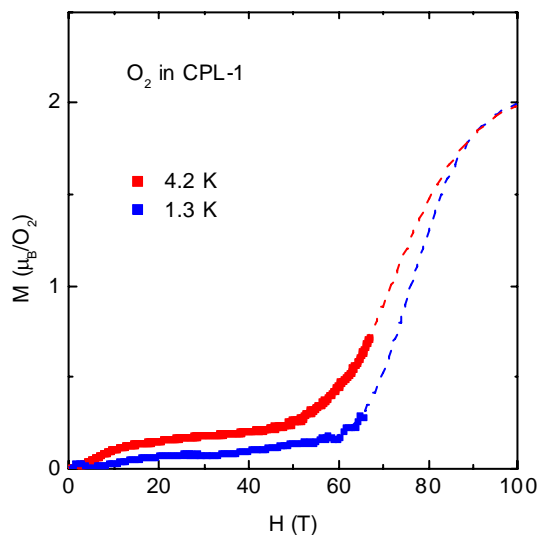
岡山大学大学院自然科学研究所 小林 達生

1. はじめに

酸素分子 O_2 はスピン量子数 $S = 1$ をもつ磁性分子であるが、分子間の結合力（ファンデルワールス力）と磁氣的相互作用が同程度であるため、磁性と構造がカップルした現象が期待できる。実際、固体酸素の α - β 転移は磁氣的に誘起された構造相転移であると考えられている¹⁾。 β -相は二次元三角格子で、反強磁性相互作用のフラストレーションのため常磁性状態であるが、温度を下げていくと α - β 転移が起き、三角格子をわずかに歪ませてフラストレーションを解放し、磁気秩序を起こす。グラファイト上に吸着した二次元 O_2 でも α - β 転移にそっくりの構造転移が存在する²⁾。一次元酸素ではもはや長距離秩序は存在せず、構造と量子効果がカップルした現象が期待される。

2. 研究の現状と研究例

我々は京大・北川研究室、物性研・金道研究室、SPring-8・高田 G と協力して、金属錯体のよく制御されたナノ細孔に吸着した酸素分子の磁性研究を行っている。現在までに、CPL-1 のナノ細孔中に O_2 - O_2 ダイマーを作成することに成功した³⁾。これを含むいくつかの物質について吸着した O_2 の磁化過程を測定したところ、 $S = 1$ Heisenberg 反強磁性体としては説明できないメタマグが観測されている。(右図) これは磁場中で O_2 - O_2 ダイマーの配列が変わるためと考えられ、今後実験的検証を急ぐ必要がある⁴⁾。



3. 将来の方向性と研究課題、強磁場の役割、100Tにおける研究課題など

O_2 分子間の相互作用は 30-45 K 程度であり、上に述べたような磁性と格子がカップルした現象を引き起こすためには、パルス磁場が必須である。上記 CPL-1 の磁化過程でも $S_{total} = 1$ のプラトーは

存在しないと考えているが、より強磁場での実験が必要であることは言うまでもない。100 Tを超える強磁場下では通常の固体酸素も構造を変えると予想している。また、NO も強磁場中で構造転移を起こす候補としてあげられる。

4. まとめ

以上のように、ナノ細孔に吸着した O₂ や NO の磁性研究において強磁場は必須の環境である。このような吸着磁性分子の磁性研究に加えて、金属錯体と吸着分子の相互作用が存在する系の探索も行っている。これらの研究は分子物理化学の学際分野にとどまらず、O₂ と金属錯体の相互作用の理解は生態系にも関連する重要な課題であると考えている。

5. 参考文献

- 1) C. Uyeda, K. Sugiyama and M. Date, J. Phys. Soc. Jpn. **54** (1985) 1107, and references therein.
- 2) Y. Murakami and H. Suematsu, Phys. Rev. B **54** (1996) 4146, and references therein.
- 3) R. Kitaura *et al.*, Science **298** (2002) 2358.
- 4) T. C. Kobayashi *et al.*, to be published in proc. of QSS04.

6.2 強磁場下における生体試料の研究

大阪大学極限科学研究センター 萩原政幸

1. はじめに

生体試料、特に金属タンパク質の一種であるヘムタンパク質での磁気測定は生物物理学という言葉が広く認識されるようになった60年代にすでに行われている。当時は電磁石を用いた帯磁率測定¹⁾やトルク測定²⁾が主なものであった。ヘムタンパク質の電子状態研究では電子スピン共鳴(ESR)はやくも50年代から利用されていた³⁾。対象はクラマース二重項を有する鉄三価のヘムタンパク質であった。鉄二価のいわゆる非クラマース型のヘムタンパク質のシグナルは1980年にFIRを用いた装置での観測例⁴⁾が報告されているがシグナルと言われるものは弱く汚く、より高感度の高周波ESR装置が開発された現在でも報告例がないことからあやしいものだと思っている。鉄二価のヘムタンパク質のESRによる研究はその後X-バンドの装置を用いてシングルイオン異方性のE項によってわずかにスプリットした準位間でのシグナルでの研究⁵⁾が主なものとなっている。また、現在も研究の主流はスピンラベルやスピンプローブした生体試料の低周波ESRである。

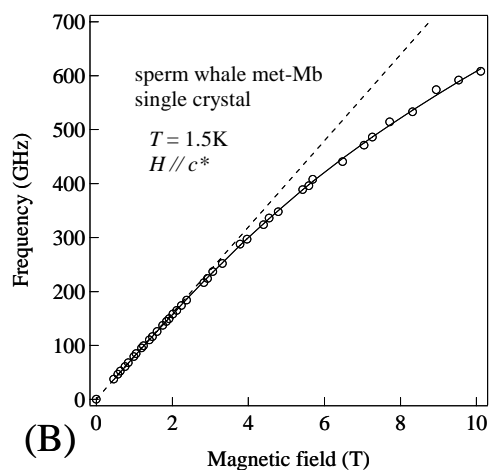
2. 研究の現状と研究例

80年代後半より世界のいくつかのサイト(本報告書のIII-2-3を参照)で超伝導磁石を用いた高周波ESR装置が開発されてきて生体試料の研究例⁶⁾が増えてきているが、多くは安定ラジカルをスピンラベルしたタンパク質の研究やクラマース型の金属タンパク質の研究であり、いわゆる整数スピンを有する非クラマース型の金属タンパク質ではポルフィリン環を有する擬似生体試料での研究例⁷⁾がいくつかあるのみである。

一方、最近こちらのほうが多いと思われるがESRの他の使用例として、パルスESRを用いてスピンラベルしたタンパク質のラベル材であるラジカル間の距離を調べタンパク質の構造、つまりフォールディングに関する情報を得るものや複核金属タンパク質のこれら金属イオンの距離情報を調べる研究がさかんに行われている⁸⁾。

これまでの生体試料の研究例はすべて定常磁場中でのものである。ラジカルをスピンラベルした生体試料でのESRにおいてはことさら高周波や強磁場がいらないことにもよるが、基本的には金属タンパク質などでは磁性サイトが希薄でまた多量の試料を用いることができない場合もあるため、普通の磁性体測定に比べて高感度の装置が必要であるからである。

筆者のところでは16テスラ超伝導磁石と周波数



可変範囲が 30~700 ギガヘルツのベクトルネットワークアナライザーを用いて、大きな単結晶試料のマッコウ鯨のメト型（鉄三価）ミオグロビンの多周波にわたる ESR 測定を行っている⁹⁾。これによりシングルイオン異方性定数を精度よく決めることができ、緩和について新しい知見を得ることができた。右にこの試料の測定で得られた共鳴磁場の周波数—磁場プロットの例を示す。ここで得られた異方性定数などは高スピン状態と低スピン状態の変換が容易なヘムタンパク質における結晶場の強さなどを知るための重要な情報になる。このことは生体関連物質の機能を理解するために、その構造、活性中心の電子状態に関する重要な知見を得ることに通じる。

また、最近放射光 X 線を用いた生体試料の研究が盛んになってきている。特に軟 X 線発光分光装置による生体試料の研究はごく最近始まったばかりである。

3. 将来の方向性と研究課題、強磁場の役割、100T における研究課題など

生体試料の研究は上述した理由により定常磁場での研究がしばらくは主流になると思われる。しかし、パルス強磁場中での高感度測定が可能になれば、一般に線幅が広い、特に非クラマース型ではその傾向が大きいのではないかと考えられる生体試料のシグナルの観測が容易になる可能性がある。また、テラヘルツ領域では ESR のタイムスケールがピコ秒のオーダーになりタンパク質のダイナミックスの研究に利用できる可能性を有する。最後に軟 X 線発光分光装置に強磁場装置を組み合わせたものについての可能性に関しても少しふれる。

以下に強磁場領域での生体（擬似）試料研究の具体的な研究課題と思われるものを記載する。

(1)–(4)は ESR に関係し、(5)は軟 X 線発光分光に関係する。

- (1) スピンラベルしたタンパク質の多周波 ESR によるダイナミックスの研究
- (2) 異方性の大きな非クラマース型の金属タンパク質の電子状態研究
- (3) 複核金属タンパク質における exchange splitting による金属間相互作用の研究
- (4) スピンラベルしたタンパク質のパルス ESR によるアミノ酸残基の長距離情報
- (5) 軟 X 線発光分光装置と強磁場装置を組み合わせでの金属タンパク質の電子状態研究

4. まとめ

以上のように、生体（擬似）試料の研究において強磁場高周波 ESR は電子状態研究において重要なものとなってくる。特に 40 テスラあたりの強い定常強磁場を用いる事により上述したようにスピンラベルしたタンパク質の動きに関する情報がピコ秒のタイムスケールで ESR シグナルに反映される。このことはヘムタンパク質の外来性の基質とタンパク質の相互作用によるアレステリック効果の研究などに新しい知見を与える可能性を有する。またパルス磁場でより高磁場までの測定が可能であればブロードになると思われる高周波領域での ESR シグナルの観測が可能になると考えられる。また、複核金属タンパク質は様々な触媒反応において重要な役割をはたしているが、この系の電子状態研究は多周波強磁場 ESR によって可能になると思われる。さらに強磁場と組み合わせた軟 X 線発光分光装置に関しては価電子帯の情報を直接もたらず計測手法だけに今後生体試料の研究において大きく発展するものと思われる。

5 . 参考文献

- 1) A. Tasaki et al., *Biochim. Biophys. Acta*, **140** (1967) 284.
- 2) H. Uenoyama et al., *Biochim. Biophys. Acta*, **160** (1968) 159.
- 3) J. E. Bennett et al., *Proc. Roy. Soc. (London)* **A240** (1957) 67.
- 4) P. M. Champion and A. J. Sievers, *J. Chem. Phys.* **72** (1980) 1569.
- 5) M. P. Hendrich and P. G. Debrunner, *Biophys. J.* **56** (1989) 489.
- 6) W. R. Hagen, *Coordination Chemistry Reviews* **190-192** (1999) 209.
- 7) M. J. Knapp et al., *Inorg. Chem.* **39** (2000) 281;
J. Krzystek et al., *J. Am. Chem. Soc.* **123** (2001) 7890.
- 8) P. P. Borbat et al., *Science* **291** (2001) 266.
- 9) Y. Miyajima et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **73** (2004) 280.

6.3 マルテンサイト形状記憶合金の磁場誘起歪みの研究

秋田大学工学資源学部 左近拓男

1. はじめに、研究の意義と位置付け

現在、機械や電子機器などの工業材料は極めて多く開発されているが、これらの機器の小型化、省エネルギー化に伴い、より小さく高機能な材料の開発が求められている。マイクロマシンにおいては極めて小さなスイッチ等の電子部品や機械部品が必要となるが、その材料としてはマルテンサイト変態により大きな磁歪を示す形状記憶合金 (Shape Memory Alloy, SMA) が有用であると考えられている。マルテンサイトとは鋼を高温から焼き入れたときに得られる針状の物質である。この物質は僅かな外力や温度変化でマルテンサイト変態と呼ばれる構造相転移を起こす。最近では金属や合金でもマルテンサイト変態を起こす物質が多数見つかり、数%もの巨大な歪みを生じるものが見つかり、これらの物質は温度や圧力によって構造相転移を起こすが、磁場を加えても大きな歪み (磁場誘起歪み, MFIS) を発生する^{1),2)}。この相転移は1次転移であるので瞬間的に転移が起こり、また磁場を戻すと元の状態に戻るために、小型のスイッチの材料として適当と考えられている。さらに、超小型コイルを用いれば瞬間的に微少な空間で強磁場を発生することができ、温度変化や加圧よりも簡便な方法で歪みを発生できる。このシステムを用いれば医療用マイクロマシン用のスイッチや、超小型アクチュエータへの応用が可能と考えられている。本研究ではパルス磁石を用いて形状記憶合金の磁化/磁歪の高速磁場応答性の実験的研究を行い、磁性材料、機械材料として高機能な物質を探索することを目的とする。また、材料を駆動させるための磁場を発生させる駆動用小型パルス磁石の開発を行なう。

2. 研究の現状と研究例

定常磁場においては、大阪大学の掛下グループを中心に磁場誘起歪みの研究が精力的になされている。SMA の中では Ni_2MnGa , Fe_3Pt , Fe-Pd 合金で MFIS が発生することが確認されている。 Fe-Pd 合金である Fe-31.2\%Pd と Ni_2MnGa はマルテンサイト転移温度 T_M が 230K 付近であり、それより低温で Fe-31.2\%Pd は 3%、 Ni_2MnGa は 6% 程度の MFIS を示す。また、 Fe_3Pt はマルテンサイト転移温度は約 60K と他の SMA に比べて低いが、約 3% の MFIS を示す。歪み量は Terfenol-D などの超磁歪合金よりも 1 桁以上大きいことが特徴である。これらの物質は低温のマルテンサイト相で双晶構造 (variant) をしており、例えば Fe-31.2\%Pd ではパンタグラフのようなジグザグ構造をしている。この状態で磁場を加えると、結晶の双晶構造のエネルギーよりも磁気エネルギーの方が大きい場合に、双晶から磁場方向に磁化容易軸が揃うような単一相に変化する。このとき、試料全体の長さが増加することにより巨大な歪みが発生する。ここでは Fe-31.2\%Pd 単結晶の結果を示す。図 1 に示すように、定常磁場下では 3% の歪みが生じている。歪みの発生後に磁場をゼロに戻しても試料の長さは変わらないが、 T_M 以上になると母相の立方晶へと変化する。再び T_M 以下へ冷却すると双晶構造とな

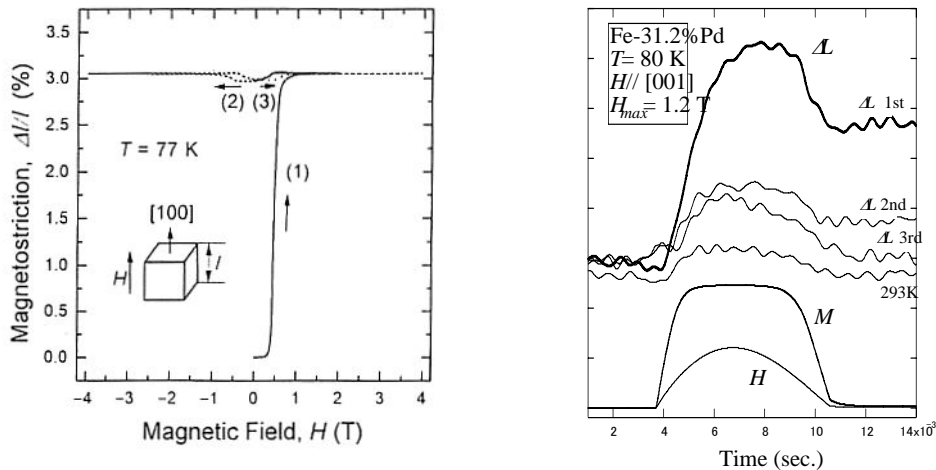


図2 パルス磁場下での Fe-31.2%Pd の 磁場誘起歪み⁴⁾

り磁場により歪みを生じる。低温で何回も磁場サイクルを繰り返して複数回歪みを発生させるには一軸方向に応力を加えれば良い。図2にはパルス磁石による実験結果を示す。ファラデー法による磁化測定装置を作成し実験を行なった。パルス磁場の周波数は80Hzである。最大磁場1.2Tにおいて磁場誘起歪みが発生していることが確認された。室温の磁歪と比較しても巨大な歪みが生じていることが見て取れる。歪み量は0.4%と、定常磁場のときよりも小さい。この原因としては、試料の底部を接着剤で固定したことと、多数回の磁場中実験により磁場方向に磁化容易軸をもつvariantが増加し、変化が小さくなったものと考えられる。この実験により家庭用の交流電流程度の周波数でも歪みが発生することが確認された。

3. 将来の方向性と研究課題、強磁場の役割、100Tにおける研究課題など

このようにパルス磁場での磁場誘起歪みが確認されたが、アクチュエータなどの材料として利用するにはさらに高速での磁場応答性の研究を行なわなければならない。パルス磁場の周波数を高くするにはコイルの巻数を変えてインダクタンスを変化させたり、パルス電源のコンデンサーの数を変化させる方法がある。現在、インダクタンスの異なる複数のパルス磁石を作成して実験を行なっている。これまではFe-31.2%Pdのみであったが、さらに歪み量の大きいNi₂MnGaの実験を行なう予定である。また、磁場誘起歪みの機構の解明には、微視的な物性研究も必須である。現在、大阪大学の掛下グループを中心に定常磁場下での磁性研究がなされている。さらに、磁場誘起歪みによる結晶構造の変化を詳細に観察するために磁場中X線回折も計画されている。今後の課題を以下にまとめる。

- (1) パルス磁石を用いた磁場誘起歪みの高速応答性の研究
- (2) 定常磁場下での磁場誘起歪みの磁性の研究

- (3) 定常磁場下での磁場誘起歪みの力学的特性の研究
- (4) パルス磁石を用いた X 線回折による巨大磁歪の解明
- (5) 形状記憶合金の磁場誘起歪みを用いたアクチュエータの開発

4. まとめ

巨大磁歪物質は工業用のスマート材として脚光を浴びているが、上述の形状記憶合金は磁場中での構造変化と磁性の関連については物理学的にも興味を持たれている現象である。X 線回折などの微視的な研究と合わせて、アクチュエータなどの応用技術に向けた提案を行ないたいと考えている。

5. 参考文献

- 1) K. Ulakko, J. K. Huang, C. Kantner, R. C. O'Handley and V. V. Kokorin: Appl. Phys. Lett. Vol. **69** (1996) 1966.
- 2) T. Kakeshita and K. Ulakko: MRS Bulletin Vol. **27** (2002) 105.
- 3) T. Sakamoto, T. Fukuda, K. Kishino, T. Takeuchi and T. Kakeshita: J. Appl. Phys. Vol. **93** (2003) 8647.
- 4) T. Sakon, A. Takaha, K. Obara, Y. Matsuoka, T. Saito, T. Fukuda, M. Motokawa and M. Motokawa: Jpn. J. Appl. Phys. Vol. **43**, No. 11A (2004) 7467.

Ⅲ 強磁場スピン計測

Ⅲ—1 中性子、X線

1. 1 強磁場中における中性子散乱 — 定常磁場

日本原子力研究所・先端基礎研究センター 松田雅昌

1. 現状

強磁場は中性子散乱実験においても欠かすことの出来ない手段であり、数多くの研究がなされている。しかし、ビーム実験であるためにマグネットをスプリットペア型にする必要があることと、さらに強い散乱強度を得るために出来るだけ大きな試料を使う必要があるため、最大磁場が限られているのが現状である。現在、世界の標準的な中性子散乱施設では、超伝導磁石を用いて、縦磁場~10 テスラ、横磁場~7 テスラの実験が可能である。また、ドイツの Hahn-Meitner Institute (HMI) の中性子散乱施設(原子炉)では、縦磁場最大 17.5 テスラまでの実験が行われている。

一方、イギリスのパルス中性子源 ISIS においても 10 テスラまでの超伝導磁石を用いた研究が行われている。弾性散乱に関しては、定常炉では単色中性子を用いて角度分散の測定を行うために、広い散乱立体角が必要になるが、パルス白色中性子を用いれば、時間分散の測定が可能であり、小さい散乱立体角でも広い逆格子空間での測定が可能になる。しかし、時間平均中性子束の観点からは前者の方が勝っており、適切な使い分けがなされている。

また、中性子光学の分野でも磁場利用に関する進展が見られる。磁場を用いることにより、同時に中性子の集光と偏極化(磁気中性子レンズ)が可能であるが、日本のグループによりその効率的な利用が推進されており、この手法は中性子小角散乱実験に応用され始めている。

2. 将来計画と課題

HMI では数年前は縦磁場 40 テスラ磁石を用いた中性子散乱施設の計画があったが、現在は 25 テスラの超伝導磁石を用いた施設の計画を推進中である。予算面を考えると、中性子散乱の分野では当分の間 25 テスラを超える定常磁場施設の実現は難しいと思われる。

日本では大強度陽子加速器 J-PARC に新しいパルス中性子源が建設中であり 3 年後には稼動し始める予定である。この施設では中性子束が KENS と比べて 1000 倍程度は強くなるため、これまで難しかった磁場中実験も容易になると期待される。パルス磁場と組み合わせた利用も大いに期待出来るが、ISIS で行われているように、定常磁場との組み合わせも有効である。また、磁気中性子レンズに関しては、定常磁場では一定の波長の中性子しか集光出来ないが、パルス中性子とパルス磁場を組み合わせることにより、広い

波長領域の中性子を同時に効率的に集光・偏極化するという計画が進んでおり、J-PARC での実用が期待される。

高磁場の磁石ほど、試料空間が狭くなり、散乱された中性子ビームが通過出来る立体角も小さくなる。そこで第一に、中性子集光技術により、試料位置で入射中性子を効率的に集光させることが重要になる。この場合、モノクロメーターのベント機構やスーパーミラーの利用が有用である。また、上に述べたように、パルス中性子を用いれば小さい散乱立体角でも有効な実験が出来るため、を発生させて、時間定常炉においてもチョッパーを用いてパルス中性子分散の測定を行うことにより克服出来ると考えられる。実際に HMI でもそのような試みが計画中である。

1.2 パルス磁場を用いた中性子散乱ー J-PARC を中心に

東北大学金属材料研究所 野尻浩之

1. 研究の意義と強磁場中性子散乱の重要性

今日の物性研究の深化によって、強磁場により誘起される様々な相転移などを解明するためには、物質の磁気および構造相関を静的あるいは動的に直接観測できる中性子散乱装置と強磁場の組み合わせが重要な課題となっている。2007年度に立ち上げの予定されるJ-PARCの世界最強のパルス中性子源を用いれば、世界に先駆けて60-100テスラの磁場において中性子散乱装置を行う事が可能になる。強磁場は電子のスピンと軌道運動に直接結合する超精密制御の可能な外部場であり、磁性、超伝導、半導体はもとよりあらゆる物性研究において必要不可欠である。中性子散乱装置と強磁場の組み合わせにより、強磁場により誘起される様々な相の起源を解明し、その制御原理を確立する事は、スピントロニクスなどの基礎となる物質の電子状態とスピンの間の相関の解明にとって重要な意義がある。

2. 国内外の現状

国外では、強磁場中性子実験と言えば超伝導磁石の利用に限られており、15 テスラ程度の磁場が用いられて様々な研究が行われている。次期計画としては、ドイツのハーンマイトナー研究所において高温超伝導体ベースの超伝導磁石を利用した 25 テスラの計画が準備されている。アメリカでは日本とほぼ同時期に立ち上がるパルス中性子計画においてパルス磁場の導入が検討されているがまだ具体的な設計等はなされていない状況である。

日本では、既に 1989 年ごろから高エネルギー加速器研究機構において中間子および中性子とみ合わせた繰り返しパルス強磁場の開発が取り組まれ、世界に先駆けて 30 テスラまでの磁場発生が行われて、実際に超強磁場中性子実験が KENS のパルス中性子を用いて行われてきた先駆的実績がある。このように、パルス磁場と中性子散乱の組み合わせを実際の実験に応用して来たのは日本の強磁場グループだけである。一方、磁場発生技術に関して日本は世界最高の 84 テスラの記録を持ち、さらに 100 テスラ領域に向けて開発を行っているので、将来的には 100 テスラ近い領域での中性子散乱を可能にすることも可能であり、技術的基盤は極めて高い。従って、J-PARC によって実現される世界最高レベルのパルス中性子源が可能になれば、超強磁場中性子散乱を実現できるもっとも有利な立場にあるといえる。

3. 装置開発の方向性と課題

今後の方向性として以下の3つの課題があげられる。

- (1) 弾性散乱のための 50-60 テスラ単発パルス磁場

弾性散乱においては、J-PARC の強度であれば単発で一つのブラッグ散乱を計測することが出来ると予想される。50-60 テスラ領域では現在 1000 発程度の磁場発生が可能なパルス磁石が実現されている。この技術を用いることにより、強磁場中の弾性散乱が容易に可能になる。磁場発生に関して現在 100 テスラ領域に向けて開発を行っているので、将来的には 100 テスラ近い領域での中性子散乱を可能にすることも視野に入れている。

(2)非弾性散乱のための 40 テスラ繰り返しパルス磁場装置

非弾性散乱においては、繰り返しによる積算が必要である。KENS においては、これまで繰り返しパルス磁場を用いて 25 テスラまでの弾性散乱を行った実績があり、この技術を基礎に 40 テスラ領域での繰り返しパルス磁場装置を実現し、超強磁場下非弾性散乱を可能にする。

(3)集光素子と組み合わせた小型パルス磁場装置

上記の装置は、いずれも電源が数立方メートルの体積を有し、マグネットも大型である。従ってその利用は特定の分光器においてのみ可能である。最近放射光用に開発された超小型コイルは 30-40 テスラの発生が可能で 4 軸分光器に取り付けた冷凍機のヘッドに取り付けて簡便に実験が出来る。この超小型コイルと中性子集光デバイスの組み合わせにより、特別に強磁場用にデザインされた分光器でなくても、超強磁場実験を行うことが可能になる。ただしこの場合、集光による分解能の低下が問題とならない実験が対象となる。

4. 本装置によって可能になるサイエンスの課題

本装置によって以下のようなサイエンスの展開が期待される。

- (1) 高温超伝導体等におけるスピン相関の役割の解明
- (2) 強い電子相関により生じる電荷及びスピン密度波状態などの解明
- (3) 磁気励起の固化によりマクロな磁化が量子化される磁気プラトー状態の解明
- (4) フラストレート系におけるスピンと格子結合によるスピンヤンテラー効果などの解明
- (5) ナノスケール磁性体の磁気相関や基底状態の解明
- (6) 超強磁場下におけるゼーマンエネルギーと格子エネルギーの混成により生じるスピナーフオンモードなどの複合素励起の探求
- (7) f 電子系等において重要となる多重極子とその秩序およびゆらぎの解明
- (8) マルテンサイト変態など磁場誘起の構造制御法の探求
- (9) 磁場誘起相転移の秩序変数の決定による相転移機構の理解
- (10) カーボンナノチューブなどの反磁性物質の磁場配向と凝集状態の磁場制御法の探求
- (11) 異方的超伝導体などにおいて生じる FFL0 などの秩序変数の空間変調状態の直接観測
- (12) 磁場誘起超伝導体などにおける強磁場中磁気相関の解明

5. 開発のための体制など実現への計画

本研究は、強磁場研究者と中性子研究者の密接な連携がその推進にとって必要であり、また J-PARC のような大型施設においてこれを推進するためには全日本的なチームの結成が必要である。本年度から始まった J-PARC の実験装置提案には強磁場フォーラム中性子部会として、超強磁場中性子散乱装置が提案され、その推進の体制が整っている。

6. まとめ

以上のように、中性子散乱と 100 テスラ級の強磁場の組み合わせは、物質科学の新しいブレークスルーをもたらすものとして注目される。またこのような装置系の構築は世界的にも例がなく、これまで日本で世界に先駆けて取り組まれてきた点でも独創性の極めて高い課題である。このように 100 テスラ領域の強磁場下における中性子散乱は強磁場スピン科学における主導権の確保に極めて重要である。

1.3 X線回折の現状

大阪大学極限科学研究センター 鳴海康雄

1. 強磁場X線回折実験が拓く新しい科学

X線回折実験によって明らかにされる物質の持つ周期性、対称性は、ミクロな電子状態が如何にしてマクロな物理現象となって現れるのか、この物質科学における基本的考え方を構築するうえで必要不可欠な情報である。近年、SPring-8を筆頭とする飛躍的に進歩を遂げた放射光施設の出現により、これまでは不可能とされてきた、また考えも及ばなかった新しい次元でのX線回折実験が可能となり、また実際に可能となりつつある。強磁場中での研究においてもその放射光X線の優位性に疑いはない。磁場によって制御されるスピン構造や誘起される新しい磁気相、又それに伴う結晶構造や電子状態の変化を研究する上で、放射光X線回折の持つ高分解能性、スピンと軌道の分離、磁気X線回折、共鳴X線散乱、といった特性は極めて有効である。その究極は、放射光の高輝度性によって初めて可能となる、時間分割測定が必要不可欠であるパルス強磁場中でのX線回折実験であろう。超伝導マグネットでは到達不可能なパルス磁場領域では、こらまでに多くの興味深い磁場誘起相転移現象が観測されているが未解決な問題も多い。放射光を用いた強磁場X線回折実験を行うことで、その起源・機構が解明され、さらにその原理に基づく磁気デバイス等の機能材料開発まで、基礎研究から産業応用に至る広範囲で飛躍的な研究開発の促進が期待される。

2. 国内外の現状

強磁場中でのX線実験を行うことのできる施設は世界的に見てもそれ程多くはない。ここでは、国内については実験室用光源を使った研究も含めて磁場中X線実験の現状について紹介する。

日本国内におけるこの分野の先駆的な研究として、慶応義塾大学工学部田島研究室では、8テスラの縦磁場マグネットと回転対陰極型X線発生装置を利用して、最低温度 1.5 ケルビンから室温までの単結晶X線回折実験を行っている。最近では、東北大学金属研究所附属強磁場センターで、無冷媒超伝導マグネットと回転対陰極を利用して、5テスラまでの粉末X線回折実験を行うことができる。放射光施設 SPring-8 ではX線専用としては世界最高磁場となる BL19LXU の 15 テスラマグネットに加え、BL11XU では非弾性散乱実験用に8テスラの超伝導マグネットが、そしてBL39XU ではMCD 用に 10 テスラ横磁場マグネットがそれぞれ可動している。一方の国外では、グルノーブルの ESRF では軟X線分光用として ID8 に 7 テスラ、オランダ・ベルギー共同ビームライン BM26 に 10 テスラの超伝導マグネットが導入済みで、2004 年中に ID20 に 10 テスラの超伝導マグネットが導入予定となっている。米国では、APS の 3-ID と 11-ID-C にそれぞれ 7 テスラマグネットが、また NSLS の X22B には 13 テスラの超伝導マグネットが稼働しており、NSLS のマグネットはX線専用としては世界で 2 番目の磁場強度をもっている。

超伝導マグネットをしのぐパルスマグネットを用いた先駆的なX線回折実験も、後ほど述べるよ

うに、SPring-8において既に現実のものとなっている。ESRFなど諸外国のグループにおいても、同様のパルス磁場とX線を組み合わせた回折実験装置の開発が進められており、将来に向けて磁場中X線回折実験の主力装置として世界的にも期待が持たれている。

3. 装置開発の現状と今後の方向性

今後の強磁場開発はパルスマグネットが中心となり、その中でも、岡山大学で開発されたポータブルマグネットと大阪大学で開発が進んでいる大型のロングパルスマグネットに2分化される。

(1) ポータブルパルスマグネット

冷凍機のコールドヘッドに試料とともに直接取り付けて、4軸回折計などの装置と組み合わせることが容易に可能なポータブルパルスマグネットは、ドライブに必要な小型の電源が可搬であることから、様々な光源、回折装置との組み合わせることで、強磁場中でのX線測定が手軽に利用できるため、X線測定における強磁場利用の促進が大きく期待される。岡山大学の松田ら、原研の稲見らのグループにより開発された SPring-8/BL22 の磁場中X線回折装置では、パルス幅1ミリ秒で33テスラまでの磁場発生を実現し、回折ピークを時間分割で測定を行うことにより、パルス磁場中の磁場変化に対応した回折強度の変化の観測に成功している。

(2) ロングパルスマグネット

上記のマグネットと異なり、パルス磁場の掃引時間が数ミリ秒から数10ミリ秒とマグネットのロングパルス化が容易に可能であること、試料空間が大きく磁場の均一度が比較的良いといった利点から、大型の電源施設が必要であるため固定されたビームラインでの利用に限定されるが、大型の回折実験用パルスマグネットの開発は高精度なX線回折を行う上で非常に重要である。装置全体が大型化することに伴い、マグネット・試料の冷却法、X線の光路の確保など技術的に克服すべき点は多く残されているが、将来的には50テスラ級の磁場での回折実験が可能となる。さらに、この技術は J-PARC で計画されているパルス磁場中の中性子散乱実験にも転用出来る技術であることから、より一層開発への期待は高い。

4. 対象となる研究課題と期待される成果

- 1) 遷移金属化合物におけるスピン・軌道・電荷の自由度の解明
- 2) 希土類化合物における多極子秩序の直接観測
- 3) 低次元電子系における電荷密度波の磁場制御
- 4) 量子スピン系における磁気相転移とスピン-格子相互作用の解明
- 5) 固体酸素およびゼオライト吸着下酸素の強磁場磁性と構造解析
- 6) 超伝導機構の解明をめざした磁束格子、FFLO 状態の直接観測
- 7) 磁性機能材料における組織形成の磁場制御

5. まとめ

強磁場下でのX線回折実験はこれからの物性研究の中核となると期待される。その柱であるパルス磁場発生技術と放射光X線の融合に関しては、日本の研究グループが世界的にも一歩リードしている状況であるが、欧州でも同様の研究が立案・推進されようとしている。この地位を確固たるものとするためには、「100 テスラ領域の強磁場下におけるスピン科学」のもと、国内の研究グループが連携してX線回折研究を推進することは極めて重要である。

1.4 強磁場 X 線分光

日本原子力研究所放射光科学研究センター 稲見俊哉

1. 研究の意義と強磁場 X 線分光の重要性

X 線吸収分光法は、元素選択性、軌道選択性という特徴を持ち、物質の電子構造を調べる有用な手法として認識されている。硬 X 線領域では直接遷移の例は少ないものの電子状態の変化の指標として用いることが出来、軟 X 線領域では 3d や 4f といった物性に直結した軌道の情報を直接得ることができる。したがって、磁場誘起による電子相転移や電子構造変化を研究する上で、構造や内部磁場を介してではなく電子状態を直接見るという点で、X 線吸収分光法は極めて有用な情報を提供する。さらに、X 線吸収分光法の一つである磁気円二色性では磁性に関与する電子軌道の情報のみを抽出できる。また、X 線吸収微細構造を測定すれば、磁場誘起の局所構造変化を測定できる可能性もある。

2. 国内外の現状

磁気円二色性の測定において磁場は必須であり、10T 以下の超伝導マグネットとの組合せによる強磁場 X 線吸収実験は国内外で定常的に行われている。しかしながら、これらの磁場は主に強磁性磁化を飽和させるために用いられており、積極的に磁場を印加することにより電子状態を変化させ、それを X 線吸収分光で測定するという例は極めて少ない。このためか、超伝導マグネットを用いた 20 テスラ程度の計画も国内外を通して存在しないようであり、ましてや、パルス磁場を用いた 40–50 テスラといった強磁場計画は全く無いようである。したがって 40 テスラ程度の磁場であっても、現時点で X 線吸収実験用パルス磁場の開発を進めれば、強磁場下での電子構造研究において、世界をリードすることができる。

3. 装置開発の方向性と課題

X 線吸収分光実験では放射光施設が必要である。放射光施設の既存のビームラインの使用を前提とするならば、基本的には可搬型の装置が望ましい。以下に硬 X 線と軟 X 線に分けて方向性を示す。

(1) 硬 X 線吸収分光実験

X 線の透過力が強く、超高真空の必要がない硬 X 線では、任意のビームラインで使用できる小型パルスマグネットの利用が有効である。透過光強度を測定する実験であれば、スプリット型の必要がないので、50 テスラ程度の磁場発生は容易であり、強度的にも数回の積算で十分な統計が期待でき、開発要素は多くない。透過実験の場合は、エネルギー分散型の実験も可能である。時間分解能のある 1 次元検出器の開発が必須であるが、現有の技術の延長で開発可能と見られる。スプリットコイルを用いるため最大磁場は減少するが、エネルギー掃引の必要がないため測定時間の短縮が測れる。一方、蛍光測定を行う場合は、スプリット型のコイルと 100 回程度の積算が必要となる。このため、40 テスラ程度の繰り返しパルス磁場の開発が目標となるだろう。また、硬 X 線領域ではほぼ唯一直接遷移となるウラ

ン化合物の測定も視野にいれる必要がある。この場合、国際規制物資の取扱を考慮して密封試料に対応した測定系等を構築しなければならない。

(2) 軟 x 線吸収分光実験

超高真空が必須となる軟 X 線実験では、小型パルスマグネットを使うにせよ専用の真空容器の設計・製作が必要となる。脱ガスの問題、試料冷却方法、検出法の選択(透過法、全電子収量法、蛍光法)等々、検討・調査しなければならない項目は多い。まずは、方針の決定のために、実現可能性を検討する実験を行わなければならない。中期的にはスプリット型の繰り返しパルス磁場を用い、コイルを真空容器外に設置し、蛍光法で検出する形が順当な方針と思われる。

4. 本装置によって可能になるサイエンスの課題

- (1) ウランや Ce 化合物等の重い電子系におけるメタ磁性転移。または、遍歴磁性体におけるメタ磁性転移。
その転移に伴う電子構造の変化、強磁場相の電子構造の解明。
- (2) マンガン酸化物や価数揺動物質の磁場誘起価数転移に伴う価数変化の直接観測。
- (3) X 線吸収微細構造の測定による非結晶質試料における磁場誘起構造変化の解明。

5. 開発のための体制など実現への計画

硬 x 線に関しては、概ね持ち込み型の装置で対応できるため、放射光施設側の多大の協力は必要としない。強磁場研究者側の体制は整っており、実現へのハードルは高くない。検出器に関しては、検出器開発グループとの密な協力が必要であるが、新規測定法に対する意欲は大きく、協力を得やすい状況にある。軟 X 線に関しては、実現可能性の調査も含め、軟 X 線研究者、及び軟 X 線放射光施設(ビームライン)との関係が必要である。そのための推進体制の整備はこれからである。

6. まとめ

X 線吸収分光法と(パルス)強磁場の融合は全く新しい試みであり、強磁場下電子相転移、強磁場下電子構造変化の研究に新しい知見をもたらすであろうことが期待される。強磁場科学における世界的な主導権を握る上で、この強磁場下 X 線吸収分光実験の実現は是非とも成し遂げなければならない分野のひとつである。

Ⅲ-2 NMR/ESR

2.1 定常強磁場 NMR

東京大学物性研究所 瀧川仁

1. 研究の意義と強磁場 NMR の重要性

核磁気共鳴 (NMR) は60年前の誕生以来常に強磁場化への道を進んできたと言って良い。材料科学・化学・生物・医学など広い分野において、分子や固体の複雑な構造を決定する手段としてNMRが活躍しているが、構造が複雑になるほど高い分解能が要求され、そのためには強磁場化が必須だからである。特に固体においては、強磁場化は化学シフトの分解能を向上すると同時に核四重極相互作用による線幅を減少させるという二重の効果を持っている(文献[1])。現在超伝導磁石を用いた21テスラまでNMR装置が使われており、プロトンの周波数1ギガヘルツに相当する23テスラの装置が開発されつつある。

一方、基礎物理に対して最も強いインパクトがあるのは、強い磁場のもとで初めて現れる量子現象の解明であり。そのなかでもビッター型電磁石やハイブリッド磁石が真に有効なのは、20テスラを超える磁場で初めて出現する現象を対象とする場合である。例えば分数量子ホール効果は今後も新しい展開が予想されるが、磁場は電子密度などの他の物理量と組み合わせられて現象を支配するパラメータとなるため、強磁場は絶対的な必要条件ではない。一方、量子スピン系や遷移金属化合物、f電子系化合物、有機伝導体などの強相関電子系の中には、協力現象によって、磁場中で全く新規な量子基底状態が現れる場合がある。(具体的には4.の項目を参照。)ハイブリッド磁石で到達可能な40或いは45テスラまでの磁場で実現する現象には、数としては多くはないが重要な物理的問題を提起するテーマが含まれている。具体的に項目4に掲げるようなテーマに対して、強磁場NMRは大きな威力を発揮するであろう。

2. 国内外の現状

定常強磁場 NMR で顕著な実績を挙げているのは、アメリカ・フロリダの国立強磁場研究所とフランス・グルノーブルの強磁場施設である。フロリダでは45テスラのハイブリッド磁石が稼動しており磁場強度では他の追随を許さないが、低温に関しては ^3He 温度域に限られ、またNMR測定装置に関する施設内のサポートも充分とは言いがたい。一方グルノーブルは今まで30テスラ電磁石が最高であったが、40テスラハイブリッド磁石が建設を終え、ユーザーへの公開に向けて試運転が進んでいる。グルノーブルには強力な固体NMR研究グループがあり、希釈冷凍機などの低温環境も整備され、質の高い研究課題に対しては十分なサポートが得られる。国内でも30テスラ級のハイブリッド磁石を用いたNMR研究の例はあるが、広くユーザーをサポートする体制が充分整っているとは言い難い。

3. 装置開発の方向性と課題

定常磁場中での NMR の利点をフルに生かした実験を行うには、磁場の均一性・安定度が重要である。均一性は試料の大きさと相対的な問題で、一般に強磁場では信号が強く小さな試料でも測定が可能なことを考えると、2mm の立方体中で 50ppm 以下であれば充分であろう。電源の安定度については短時間で 50ppm 程度が望まれる。磁場の性質と並んで重要なのが、低温・高圧などの他の測定環境との組み合わせである。特に 4. に掲げるテーマは殆どが希釈冷凍温度域での実験を必要としている。

4. 定常強磁場 NMR によって展開される研究課題(文献[2])

I. 量子スピン系における磁場誘起相転移現象:量子スピン系は、その次元性、量子揺らぎの強さ、フラストレーションの有無、などによってエネルギー的に拮抗した様々な基底状態を取り得る。特に、強磁場によって対称性の異なる基底状態が移り変わる量子相転移現象が最近の興味の焦点となっている。シングレット基底状態を持つスピン系に磁場をかけてエネルギーギャップを抑制したときに現れるマグノンのボーズ凝縮、或いは更に高磁場において磁化が飽和値のある分数に量子化される磁化プラトー現象に関しては最近活発な研究がおこなわれている。また擬 I 次元スピン系における磁場誘起非整合秩序、フラストレートしたスピン系と格子が結合した系での磁場誘起構造相転移など、理論的な可能性が指摘されているが、実験的検証が待たれている問題も多く存在する。

II. f 電子系の新規な秩序状態と重い電子状態、非フェルミ液体状態:f電子系においてはスピンと軌道が強く結合しており、4 極子や 8 極子といった多極子の秩序状態が磁場によって制御される例が最近発見されている。NMR は電荷やスピン密度に対する局所的なプローブなので、これらの多極子の状態を微視的に探る有力な手段と成りえる。この分野は、核スピンと多極子との相互作用といった基本的問題について理論的な枠組みが考えられている段階で、将来大きな発展が期待できる。

III. 有機伝導体における磁場誘起超伝導・FFLO 超伝導相:磁性イオンを含む有機伝導体で磁場によって誘起され超伝導常態が発見されており、FFLO 相など磁場中で新しいタイプの超伝導状態が見つかる期待が高まっている。

5. 開発のための体制など実現への計画

量子物性研究の先端的テーマに関わる定常強磁場 NMR で良い成果をあげるには、強磁場を発生する磁石だけでは充分とは言えず、効率が良く使いやすい NMR スペクトロメータ、希釈冷凍機や圧力セルなどの実験環境が整っていることが必要である。このためには強磁場施設内に NMR の実験グループがあって、自らの研究を行うとともにユーザーに対するサポート体制を確立するのが理想であろう。一方強磁場を使う他の実験手段と比較すると、NMR は最高磁場に近い強磁場を常時使い、多

くの場合信号積算を必要とするため測定に長時間を要するという宿命を背負っている。定常強磁場を発生するのに要する多大な費用を考えると、これは重要な問題である。効率よく短時間でデータを取れるシステムの構築が重要になる一方で、実験プロポーザルの十分な吟味、精選された実験テーマに対し十分な実験時間を配分するといった運営方法を確立することが望まれる。

6. 参考文献

- [1] 「強磁場固体 NMR の開発と利用に関する調査報告」 2004 年 3 月、未踏科学技術協会
- [2] “High Magnetic Field: Applications in Condensed Mater Physics and Spectroscopy”, edited by C. Berthier, L. P. Levy, and G. Martinez, Springer, Berlin, 2003.

2.2 パルス磁場 NMR

岡山大学大学院自然科学研究所 鄭 国慶

1. はじめに、研究の意義とパルス磁場 NMR の重要性

固体物性の研究に核磁気共鳴 (NMR) 法は不可欠な手段となっている。この分野では日本の研究者の寄与は目を見張るものがあり、今や完全に世界をリードしている感がある。近年の超伝導磁石の進歩に伴って、研究室レベルで18テスラぐらいまでの磁場下で NMR 実験が恒常的に行われるようになった。さらに、ハイブリッド磁石を利用して、43テスラまでの強磁場下での測定が可能になった¹⁾。

しかし、現在の技術とコストからして、45テスラ以上の定常磁場の生成は困難である。一方、最近の固体物性の研究では50テスラ以上の高磁場の需要が日に高くなっている。例えば、銅酸化物高温超伝導体の上部臨界磁場 H_{c2} は100テスラ程度のもが多く、 H_{c2} 以上の状態を調べることができず超伝導の発現機構の解明に必要な基礎データが得られない。また、量子スピン系やナノ磁性体では50テスラ以上の磁場下で磁化プラトーなどの量子現象が現れ、その発現機構の解明が待たれる。このように、微視的な計測手段である NMR を100テスラ級のパルス磁場下で行うことは物性研究に大きなブレークスルーをもたらすことが期待できる。

2. 国内外の現状

国外では、パルス磁場下の NMR 測定を1995年ごろからフロリダ州立大学の Moulton らが試みたが、成功に至らなかった。2002年ごろに、Moulton の共同研究者ら(米国立強磁場研究所)が再びNSF に対し研究費の申請を行った結果、プロジェクトが認められ60テスラパルス磁場用の NMR 装置開発が始動している。一方、ヨーロッパでもパルス磁場下の NMR の重要性が認められ、ドイツのマクスプランク研究所とフランスのグルノーブル強磁場研究所が共同で取り組んでいる。このグループは初期的な成果として33テスラのパルス磁場下で金属銅中の ^{63}Cu の信号観測に成功しているが、物性研究への応用には至っていない。

日本では、パルス磁場下 NMR への取り組みが欧米に比べやや遅れている。しかし、2004年に NMR 研究者、ESR 研究者及びパルス磁場発生の経験が豊富な研究者からなるグループが研究計画を立ち上げ、研究の推進に向け第一歩が踏み出された。今後、財政的支援が得られるかどうかは鍵となる。

3. パルス磁場下で成果が期待されるサイエンスの課題

- (1)高温超伝導体の異常物性の解明
- (2)ナノ磁性体や量子スピン系の磁性の理解
- (3)金属錯体や希薄磁性半導体膜におけるスピン機能の解明
- (4)二次元希薄電子系での量子現象の発見と機構解明

4. 今後の方向性

我々が目指しているのは未踏の磁場領域(100テスラ級)での NMR 測定であるが、初期の目標としては大阪大学、東北大学及び物性研などが開発した60テスラ級のパルスマグネットを利用して装置の開発を行うことである。より高い磁場下での測定はマグネット開発と歩調を合わせて行うことになる。

5. まとめ

パルス磁場下 NMR は多くの成果が期待されるが、研究の推進は NMR 研究者と強磁場研究者の緊密な連携が重要である。本領域の研究推進は日本がこれまでに築いてきた固体 NMR 分野における優位を維持するのに必要不可欠である。

参考文献

- 1) G.-q. Zheng, P. Kuhns, A. Reyes, B. Liang and C. T. Lin, Phys. Rev. Lett. **94**, 047006 (2005).

2.3 ハイブリッド磁石による NMR

上智大学理工学部 後藤貴行

ハイブリッドマグネットなどによる強磁場で核磁気共鳴の実験を行うことは二つの意味がある。一つは、常磁性シフトの分解能向上、及び、核磁気回転比や自然存在比が小さいいわゆる難 NMR 核種の信号を捕捉できる可能性である。二つ目は磁場誘起相転移・磁化プラトーなど、高磁場で引き起こされる電子状態の劇的な変化の検出である。現在、国内では東北大学金属材料研究所強磁場超伝導センター (31T)、物質材料開発機構 (40T) の二か所にいずれも共同利用可能なハイブリッドマグネットが設置されており、NMR 実験の実績がある[1]。しかしこれらのハイブリッドマグネットは必ずしも核磁気共鳴用に設計されたものではなく、磁場の空間均一度と時間安定度はいずれも極めて低い。例えば東北大学金属材料研究所のハイブリッドマグネットを例に取れば、均一度 (1cm-csv)、安定度ともに 0.01% であり、これは 10T の磁場下において常に 0.01T 程度のゆらぎがあることになり、当初、NMR 信号の観察自体困難と思われたが、トライアルの結果、固体の信号であれば十分測定可能であり実用に耐え得ることがわかった。よって、強磁場 NMR を行なう二つの目的のうち、後者は十分に達成できることになる。ここでは特に金研ハイブリッドマグネットでの NMR について詳しく述べる。

磁場値は最高 31T (HM-1) で、磁場モニタは RS-232C で超伝導・水冷の各コイルの電流データが毎秒数回送られて来る。マグネットの磁場精度を考慮すると、適当なデータ精度である。磁場制御はインターフォン経由で制御室のスタッフに口頭で磁場値と掃引速度を伝えて行なう。温度制御はハイブリッドマグネットの 32mm 室温ボアに、4He あるいは 3He のデューワーを挿入して寒剤の排気によって行なう。よって 4.2K~0.5K の温度域での実験は極めて容易である。通常の超伝導マグネットによる実験方法と大きく異なる点は二つだけである。まず、励磁中はマグネット室へのアクセスが禁止されるため、すべての調整をリモートで行う必要があることと、ハイブリッドマグネットの外槽の超伝導コイルからの漏洩磁場が極めて大きく広範囲に及ぶために、信号検出用のプリアンプを 10m 程度離して設置することや、周波数チューニング用キャパシタンスの制御を非磁性の超音波駆動モータにする必要があることである。磁場の空間均一度の問題は試料の大きさを数 mm 程度に小さくすれば難なくクリアできる。一方、磁場の時間変動は、非磁性体中のプロトン核や金属銅などからのシャープな信号を観察すると、数十 Hz 程度の周波数成分がほとんどであることがわかった。これは信号線幅に僅かな増大をもたらすものの、磁性体など、線幅の広い試料についてはほとんど影響がない。NMR の信号検出に有害な高周波成分はマグネットコイルのインダクタンスによって抑えられているものと考えられる。

これまで、実際、 NH_4CuCl_3 、 KCuCl_3 などのスピングャップ磁性体における、大きな電気四重極相互作用を受けた Cu 核の磁場掃引スペクトルを測定し、 NH_4CuCl_3 では磁場誘起されたマグノンが局在することやシングレットサイトのみ信号が NMR で観察されることなどがあきらかになっている[1]。現状での問題点としては、励磁可能なマシンタイムが昼間に限られているため、周波数スペクトルや緩和時間の測定など長時間を要する測定が困難であることである。よって、磁場掃引スペクトルの測定で磁場誘起相転移を捉えられる系、すなわち、内部磁場 (超微細場) の大きな変化が期待できる場合において、ハイブリッドマグネットを利用した NMR は有効であると考えられる。また、国内の施設であり利用が簡便であること、及びサポートスタッフが充実していることもメリットのひとつである。

[1] S. Hosoya *et al.* : Physica **B329–333**(2003)977.

2. 4 定常磁場高周波 ESR

大阪大学極限科学研究センター 萩原政幸

1. 研究の意義

電子スピン共鳴 (ESR) は磁性サイトの様々な配位環境下での電子状態をミクロスコピックに高感度に測定できる優れた実験手段であり、この手法の開発から半世紀以上経っても実験手段として全く色あせていない。むしろ最近の強磁場高周波数化やパルス技術の開発により重要性を増している。また、磁性体の協同現象として磁気相転移した相での励起状態や多体効果により現れる励起状態の研究には周波数と磁場の広い観測窓が必要になる。磁場発生にはパルス磁場と定常磁場があるが、前者を用いた ESR については神戸大学の太田さんにより説明がなされると思うので後者の定常磁場での ESR の現状と今後の方向性について記載する。

2. 国内外の現状

定常強磁場を用いた高周波 ESR 装置は国内より国外に多くあり、しかもその利用は生物化学よりである。高周波の正確な定義はないが、現在市販の ESR 装置の最も高い周波数が W-バンドの 95 ギガヘルツであることから 100 ギガヘルツ以上を高周波と定義して本報告書には記載する。筆者がバイオ系の高周波 ESR を行っている関係で、定常磁場高周波 ESR サイトも生体 (擬似) 試料の研究サイトから取ってきて表にした。他にもいくつかあってもれているかもしれないがご了承いただきたい。

ACERT は Advanced Center for Electron Spin Resonance Technology の略である。他に主に quasi-optics を用いて高感度に測定しているイギリスの University of St. Andrews にはやはり超伝導磁石を用いた 270 ギガヘルツまでの高周波 ESR 装置が稼動している。アメリカの国立強磁場研究所では水冷磁石を用いた 30 テスラあたりまでの測定が可能となっている。

国内ではバイオ系の高周波 ESR の記述からもれているが、東北大学金属材料研究所に 20 テスラ超伝導磁石を用いた高周波 ESR 装置が稼動しており、測定温度も ^3He - ^4He のダイリューション冷却装置を用いて 0.1 K あたりでの測定が可能となっている。

ACERT(Cornel Univ)	アメリカ	250GHz	CW,Pulse	1, 5, 6
Univ.of Leiden	オランダ	275GHz	CW,Pulse,Double	2, 3, 4
Free Univ, Berlin	ドイツ	360GHz	CW,Pulse,Double	5, 7
MIT	アメリカ	140GHz	CW,Pulse,Double	1, 8
Northeastern Univ	アメリカ	240GHz	CW	4, 7
URA CNRS	フランス	285GHz	CW	1, 2, 3
J.W. Goethe Univ. of Frankfurt	ドイツ	180GHz	CW,Pulse,Double	1
Univ. of Nijmegen	オランダ	285GHz	CW	2
Argonne National Laboratory	アメリカ	130GHz	CW,Pulse,Double	7
KYOKUGEN Osaka Univ.	日本	600GHz (upto THz)	CW	2
Grenoble GNMFL	フランス	345GHz (upto THz)	CW	1, 2, 3
Florida NMFLL	アメリカ	700GHz (upto THz)	CW	1, 9

1;酵素(ラジカル) 2;金属タンパク(半整数) 3;複核金属タンパク(錯体) 4;スピンラベル
5;DNA 6;モデル膜 7;光合成系 8;ペプチド 9;金属タンパクモデル化合物(整数スピン)

3. 装置開発の方向性と課題

今後の方向性として以下の3つの課題があげられる。

(1) 高感度測定

これまでの高周波 ESR 測定では多くが素通しのライトパイプを用いたもので、感度が望めなかった。100 ギガヘルツを超える空洞共振器は実用的ではないため、ファブリペロ型の開放型共振器などがこの周波数領域では使用可能と考えられる。実際、筆者のところでは比較的広い周波数範囲で素通しのライトパイプより2~3桁感度の良い可変型の共振器が開発されており今後これを改良してより広い周波数範囲で高感度測定を計画している。別の試みとしては神戸大と東大物性研の共同研究でカンチレバーを用いた高感度高周波測定装置が開発されてきており、これも今後高感度測定に利用されると考えられる。

(2) スピンエコー法を用いたパルス ESR

すでに低周波領域ではパルス ESR によってスピンラベルしたタンパク質の研究や複核金属タンパク質の研究が行われており、構造生物学の隆盛と相俟って生物系の ESR の世界ではよく利用されている。この手法の高周波パルス ESR が今後開発されればより長距離にあるラベルされたアミノ酸残基間の情報も得ることができると考えられる。

4. 本装置によって可能になるサイエンスの課題

本装置によって以下のようなサイエンスの展開が期待される。

(1) 小さな単結晶しかできない磁性体、分子性導体などの励起状態の解明

- (2) 磁性イオンの希薄な少量の金属タンパク質の活性中心である金属イオンの電子状態の解明
- (3) 磁性薄膜やナノ磁性体などの高周波応答
- (4) 結晶化が困難で X 線構造解析ができない分子量 30000 を超える、したがって高分解能 NMR でも構造決定の難しいタンパク質の構造に関する情報
- (5) テラヘルツ領域ではピコ秒のタイムスケールになることからスピラベルしたタンパク質のダイナミクスに関する情報

5. まとめ

40 テスラクラスの定常強磁場を用いた高周波 ESR はいまだ存在しておらず、この磁場領域で高感度測定が可能になれば上述のように測定対象は大きく広がることが予想される。

6. 参考文献

- 1) G. R. Eaton, S. Eaton and K. M. Salikhov, Foundations of Modern EPR, World Scientific
- 2) Ed. A. Kawamori, J. Yamauchi, H. Ohta, EPR in the 21st Century: Basics and Applications to Material, Life and Earth Sciences
- 3) Ed. A. Kawamori, Advanced EPR applied to Biosciences (Proceedings of APES01 Satellite Symposium)

2.5 パルス磁場高周波 ESR

神戸大学分子フォトサイエンス研究センター 太田仁

1 研究の意義と高周波 ESR の重要性

物性の主役は電子であり、その電子を直接観測する電子スピン共鳴 (ESR) は非常に有効な研究手段であり、材料科学から生物や地球科学まで幅広い応用がある¹⁾。市販の ESR 測定装置は X-band (9.5 GHz) ESR 装置で高々 1T の磁場で十分なため水冷電磁石が一般的に用いられている。ESR の共鳴条件は周波数と磁場が比例関係にあり、高周波数の測定には強磁場が必要となるが、高周波または強磁場 ESR は磁場分解能の向上、幅広い吸収の観測、エネルギーギャップやゼロ磁場分裂をこえた共鳴の観測、磁気相転移相での共鳴の観測など多くの利点があり、測定上の困難さを超えて観測をおこなうメリットと意義は非常に大きく、比較的大きな試料がえられる磁性体の研究ではすでに大きな成果があがっている^{2, 3)}。なお高周波または強磁場 ESR の定義としては、W-band (100 GHz) の周波数以上つまり共鳴磁場 3.5T 以上がひとつの目安として考えられる²⁾。一方、高周波強磁場 ESR をマグノンをはじめとする様々な素励起が存在する THz 領域に拡張しようとする 35T 以上の磁場が必要となり、その線材の限界ゆえに 20T までの磁場しか発生できない超伝導磁石では不十分となり、パルス磁場が測定上必然的に必要となる。したがって、100T 非破壊パルス磁場の開発は 2.8THz までの高周波 ESR を可能にし、その開発意義はパルス磁場高周波 ESR にとって非常に大きい。

2 国内外の状況

1999 年時点の世界における強磁場高周波 ESR 施設については、データがやや古いものの文献にまとめられている²⁾。全体的に超伝導磁石をはじめとする定常磁場をもちいる施設が多く、これまで定常磁場は化学系や生物系試料の測定に、パルス磁場は磁性体や半導体試料の測定に用いられる傾向にある。パルス磁場を用いた高周波 ESR 施設は、フランクフルト(ドイツ)、ツールーズ(フランス)、神戸大、東北大、阪大、福井大、物性研に限られ、ドレスデン(ドイツ)で現在計画が進行中である。したがってパルス磁場高周波 ESR は日本がリードしており、100T 非破壊パルス磁場による高周波 ESR の開発は引き続き日本の優位をゆるぎないものにすると考えられる。また、日本のパルス磁場高周波 ESR は、神戸大が高圧下測定 (0.65GPa)、東北大が極低温測定 (0.2K)、阪大が現状での非破壊最高磁場 (83T)、福井大が高出力ジャイロトロン光源の使用、物性研がシングルターンコイルの使用などそれぞれが特徴あるパルス磁場高周波 ESR 測定を展開している点がユニークである³⁾。

3 装置開発の方向性と課題

今後の装置開発の方向性と課題として以下があげられる。

(1) パルス磁場高周波 ESR の高感度化

これまで磁性体や半導体試料の測定では成果をあげてきたパルス磁場高周波 ESR であるが、より応用範囲をひろげるには高感度化をすすめ、微量な化学系や生物系試料の測定を可能にしていく必要がある。ひとつ

の方向は共振器をパルス磁場中へ入れるというもので阪大で開発がすすめられている。別の方向性としてカンチレバーを検出に使用することが考えられる⁴⁾。すでにミリ波領域ながらパルス磁場中で 10^{11} スピン/G の感度を達成してこれまでの透過法の感度を十分こえておりその発展が期待される。

(2) 複合極限など他パラメーターのパルス磁場高周波 ESR への付与

すでに個々の施設で達成されている極低温や高圧を組み合わせた複合極限下の測定や、これまでボアが小さいためパルス磁場では困難とされていた角度依存性測定を大道らが開発したピエゾ素子によるコンパクトな回転機構⁵⁾をもちいることで達成することなどが考えられる。また、静水圧だけでなく一軸圧力などへの展開も考えられる。

(3) 自由電子レーザー、放射光、量子カスケードレーザーなど新しい光源とのカップリング

現在 THz 領域の光源として光励起遠赤外レーザーが広く用いられているが、この発振周波数は励起 CO₂ レーザーのブランチと遠赤外レーザーガスの組み合わせで選択され、THz 領域では周波数によって発振線が存在しない領域が存在する。これを解消する方法として自由電子レーザーや放射光の利用が考えられる。このような施設では超小型パルス磁場の利用が有効であると考えられる⁶⁾。THz 領域の量子カスケードレーザーは発展途上であるが、半導体ベースのコンパクトさゆえにその将来性が期待される。

(4) 時間分解測定の追求

固体のチタンサファイアレーザーのフェムト秒超短パルス光をつかった THz 時間領域分光法⁷⁾をパルス磁場下でおこなう時間分解測定が考えられる。フェムト秒に対してミリ秒のパルス磁場の最高磁場領域は十分長く一定と考えられる。また超短パルス光励起による時間分解パルス磁場高周波 ESR 測定も考えられる。

4 本装置により可能になるサイエンスの課題

- (1) 強い電子相関係の相互作用とスピン相関の解明
- (2) 磁気励起の固化によりマクロな磁化が量子化される磁化プラトー状態の解明
- (3) 磁気相転移相のスピン状態と、スピニングギャップの抑制とそれともなう磁場誘起秩序相の解明
- (4) スピンフラストレーション系のスピンドYNAMIKSの解明
- (5) ナノ磁石のエネルギー準位と結晶場パラメーターの決定
- (6) 化学反応過程と磁場効果の解明
- (7) 生体機能分子をはじめとする金属錯体のゼロ磁場分裂とエネルギー準位の解明

5 まとめ

以上のように 100T 領域におけるパルス磁場高周波 ESR は、その高感度化がともなえば物理だけにとどまらず、化学や生物など幅広い応用が期待され、それを開発する意義は大きいといえる。

6 参考文献

- 1) *EPR in the 21st Century: Basics and Applications to Material, Life and Earth Sciences*, A. Kawamori, J. Yamauchi and H. Ohta eds., (Elsevier, Amsterdam, 2002) 830 pages.
- 2) S.S. Eaton and G. R. Eaton, in *Handbook of Electron Spin Resonance* Vol. 2, C.P. Poole, Jr. and H.A. Farach (Springer-Verlag, New York, 1999) p.345
- 3) *Application of Submillimeter Wave Electron Spin Resonance for Novel Magnetic Systems*, H. Ohta, H. Nojiri, M. Motokawa eds., J. Phys. Soc. Jpn. 72 (2003) Supplement B 183 pages. (The papers are available through the web of the Physical Society of Japan: <http://wwwsoc.nii.ac.jp/jps/jpsj/2003sb/sup-B.html>)
- 4) カンチレバーによる磁化検出を応用したパルス磁場による高磁場・高周波電子スピン共鳴 (ESR) 測定装置, 太田仁, 大道英二, 出願番号: 特願 2004-215203, 出願日: 平成 16 年 7 月 23 日
- 5) E. Ohmichi *et al.*: Rev. Sci. Inst. **72** (2001) 1914.
- 6) Y. H. Matsuda *et al.*: Physica B **346-347** (2004) 519.
- 7) 阪井清美, 廣本宣久: 分光研究 **54** (2005) 43.

Ⅲ—3 輸送現象

3.1 100テスラ近傍における輸送現象測定

東京大学物性研究所 長田俊人

1. 研究の意義と強磁場下電気伝導測定の重要性

輸送現象、特に電気伝導の測定は最も基本的な物性実験の一つである。伝導測定は、金属性・絶縁体性の判定、相転移に伴う異常の確認、フェルミ面構造の類推などのツールとして用いられ、新現象の発見や新物質の評価に適した「探索型」の研究手法となっている。スペクトロスコピー実験のように既知現象の機構解明やモデルの定量的検討を行う「解明型」の手法ではない。物性研究を100T近傍の強磁場まで拡張する主な目的は、低磁場領域の物性実験の延長や精密化ではなく、強磁場で初めて発現する新現象の探索と、それによる新しい物理概念の形成であると思われる。この意味で、代表的な電子物性探索手法である伝導測定を100T近傍で行う意義と重要性は明白である。

2. 国内外の現状

100T近傍あるいは100T以上の超強磁場は、現状では磁束濃縮法や一巻きコイル放電法のような破壊的方法により単発パルスとして発生されており、その有効な磁場掃引時間(測定時間)は僅か数マイクロ秒程度である。物性研究所(日本)、サロフ(ロシア)、ベルリン(ドイツ)など世界で数箇所がこれらの装置を保有している。こうした装置で実験を行う場合、①電磁誘導により測定系に発生する巨大な誘導電圧、②高圧大電流の放電に伴う放電雑音、③導電性試料内部に誘導される渦電流による電子温度の上昇、などが大きな障害となる。このため従来行われてきた実験は、上の影響を受けにくい光学的手法(サイクロトン共鳴、ESR、ファラデー回転など)に限られ、伝導測定は殆ど試みられてこなかった。

物性研究所では①～③の障害を克服して超強磁場下伝導測定を行うために、高周波検波技術と微細加工技術を柱とした技術開発を進めている。すなわち①および②の対策としては、高周波バイアスを用いて測定周波数帯を①と②の周波数帯から外し、フィルタと位相検波によりこれらの成分を除去する。また③は、発熱量が試料サイズの4乗に比例する(温度上昇は2乗に比例する)事実から、試料を微細化することにより局限する。これらの技術を用いて、幾つかの低次元導体試料の超強磁場伝導測定に成功している。

3. 装置開発の方向性と課題

(1) 試料加工と電極形成

伝導測定作業の流れの中で、もっとも重要なものが試料(プローブ)の調整である。特に、50 Ω 付近のインピーダンスを持ち発熱を局限した微小形状に試料を加工する技術と、接触抵抗が低くかつ機械的に堅固な電極を形成する技術については汎用性の高い標準手法の確立が望まれる。

(2) 高周波技術と数値的信号処理技術

信頼性の高い高周波測定系の構築のため、回路部品を保護用フィルタや減衰器などに絞り、高速デジタルタイザに記録した全高周波応答波形を数値的に信号処理するシステムも検討している。

(3) 100T 級非破壊パルス磁場下の伝導測定

物性研究所(日本)、ロスアラモス(米国)、ドレスデン(ドイツ)などで計画あるいは開発中の時間幅がミリ秒程度の 100T 非破壊パルス強磁場が実現すれば、伝導測定は格段に容易となり、現在の非破壊パルス磁場下の伝導測定技術がそのまま利用できるであろう。

3.2 フェルミオロジー

大阪大学大学院理学研究科 杉山清寛

1. パルス強磁場によるドハース・ファンアルフェン効果の重要性

ドハース・ファンアルフェン (dHvA) 効果やシェブニコフ・ドハース (SdH) 効果等の量子振動の測定は、金属の電子状態を調べる実験手段として、最も強力な方法である。これらの測定かによって、フェルミ面の極値断面積 (フェルミ面の形状)、サイクロトロン有効質量、ディングル温度 (電子の散乱時間) を直接決定することが可能であり、輸送現象を担う電子状態を解明する有効な実験手段である。近年、電子間の相関が強い強相関電子系に興味が集まり、局在性の強い電子が近藤効果などによって遍歴することによって重い電子状態を形成し、超伝導などの量子状態を取ることがわかるにつれ、これらの実験手段の重要性も高まってきた。この量子振動は磁場によるランダウ量子化にその本質があり、強磁場が、十分な低温や純良単結晶とともに実験の必要条件である。したがって、定常磁場で強い磁場を発生出来なかった初期の頃の実験では、パルス磁場が実験に使われていた。しかし、測定の精密化、希釈冷凍機と組み合わせた重い電子状態の観測には、ノイズや渦電流による発熱を伴うパルス磁場を用いるのは不利ということもあり、超伝導マグネットの発達に伴って、ドハース・ファンアルフェン効果測定にパルス磁場が使われなくなってきた。

しかし、電子相関の強い物性を調べるためには、それらの相関を壊すような外的なパラメーターが必要であり、量子状態を調べるために低温での強磁場の測定が重要になってきている。事実、強磁場により誘起される様々な相転移現象が見つかってきている。これらの金属間化合物で見つかった強磁場中の電子状態の解明には、磁化や磁気抵抗などのマクロな物理量の測定だけでは、詳細な事が分からず、ドハース・ファンアルフェン効果のような電子状態を直接観測する手段が重要となってきた。

2. 国内外の現状

パルス磁場を用いたこれらの測定は、最近、内外で行われるようになってきている。特に、海外では ^3He システムと組み合わせたシステムが以前から開発されており、 CeAl_2 の $6 \times 10^3 \text{ T}$ や CeRu_2Si_2 の $1 \times 10^3 \text{ T}$ の極値断面積を持つフェルミ面が 50 テスラの磁場まで観測されている⁽¹⁾。日本としてもこれらの分野に乗り遅れないようにすることが重要と考えられるが、東大物性研では、カンチレバーを用いたパルス磁場中でのドハース・ファンアルフェン効果の測定システムを開発して、明快な測定データを出している⁽²⁾。我々、阪大強磁場に置いても、一昨年よりシステムの開発に努め、 1.3 K の ^4He 温度で Pb において 10^3 T の電子フェルミ面はもちろんのこと、 $2 \times 10^4 \text{ T}$ のホールの大いなるフェルミ面の観測に成功した。これらのフェルミ面の大きさは、銅のフェルミ面のベリー軌道にほぼ対応する。さらに、重い電子系 CeIn_3 で 1.3 K の温度で $5m_0$ の有効質量の測定にも成功した。これらのブランチの極値断面積の大きさは、金属の主要フェルミ面の大きさを

十分にカバーしており、 $5m_0$ の有効質量は、1.3Kでのドハース・ファンアルフェン効果の測定感度の一般的な大きさである。したがって、技術的には定常磁場でのドハース・ファンアルフェン効果の測定技術に近づいたと考えられる。

3. 方向性と課題

重要性の部分でも述べたように、主な対象は重い電子状態と考えられる。したがって、重い有効質量を観測するために、パルス磁場と希釈冷凍機や ^3He 冷凍機などの冷却システムと組み合わせる必要がある。本来、希釈冷凍機との組み合わせが到達温度が低く当然有利と考えがちであるが、重い電子状態を示す金属試料で、ドハース・ファンアルフェン効果を示す純良単結晶の残留抵抗は $1\ \mu\ \Omega\ \text{cm}$ 以下とかなり低く、現在、使われているようなパルス幅が100msec以下のパルス磁場との組み合わせは、磁場中での温度変化が大きいことが考えられる。比熱の小さな、0.1K以下の測定が実際に有用に働くかという、難しい問題が大きく、実用的には小回りのきく、 ^3He 冷凍機が有利であると考えられる。

フェルミオロジーの研究は本来、スモールサイエンスであり、大きな実験装置を必要とはしない。しかし、今回目指しているような強磁場中での電子状態の解明のためには、パルスマグネットが必要であり、1研究室で対応出来る物ではないと思える。そこで、これからの方向性として2つあげられる。

1つは、マグネットセンターといわれるような大きな施設に、世界最大級のマグネットを設置し、そのマグネットを用いて ^3He 若しくは希釈冷凍機を用いた実験装置を使った測定である。世界最大級という意味は到達磁場とパルス幅である。パルス幅が長くなれば、当然、今まで培われてきた定常磁場で用いた技術が応用できる。日本の定常磁場でのフェルミオロジーの技術は世界でトップクラスであり、これを組み合わせることによって、世界をリードできる実験が可能となる。

もう1つは、40テスラ（50テスラも可能か）までの磁場でよいので、1研究室での測定の可能性である。日本での定常磁場を用いたドハース・ファンアルフェン効果の測定は、いくつかの研究室の連携の上で今日の発展があると考えられる。これらと同様に、 ^3He 冷凍機と小さなパルス磁場を用いた測定システムの可能性もある。現在、大阪大学以外に富山県立大学でこの取り組みが行われているが、マグネットの供給さえ行われれば、いくつかのグループで、パルス磁場を用いたドハース・ファンアルフェン効果の測定が行える可能性を持っていると思われる。このような研究が日本の研究全体の底上げを可能として、全体としてのレベルアップが図られる。そのために、マグネットセンターのようなマグネット開発のノウハウを持っている研究施設は、協力体制のシステムを築く必要があると考える。

参考文献

- (1)L. Pricopi, E.G. Haanappel, S. Askenazy, N. Harrison, M. Bennett, P. Lejay, A. Demuer and G. Lapertot: *Physica B* **294-295** (2001) 276.
- (2)E. Ohmichi and T. Osaka : *Rev. Sci. Inst.* **73** (1999) 3022.

Ⅲ—4 STM, AFM, 磁気光学、空間分解

4. 1 STM/AFM

理化学研究所高木磁性研究室 花栗哲郎

1. 研究の意義と強磁場中 STM/AFM の重要性

走査型トンネル顕微鏡 (STM) や原子間力顕微鏡 (AFM) を始めとする、いわゆる走査型プローブ顕微鏡は、プローブの制御に用いる物理量の空間分布を高い空間分解能で調べることでできる強力な手法である。特に、STMを用いてトンネル分光測定を行う走査型トンネル分光法 (STS) では、試料の局所状態密度を0.1 meV以下のエネルギー分解能と1 Å以下の空間分解能でマップすることが可能であり、電子状態や物性の解析ツールとして有用なポテンシャルを持っている。また、AFMそのものは基本的に形状に関する情報のみしか与えないが、プローブに磁性体を用いたり静電気力を利用することで、「力顕微鏡」として様々な物性に関する情報を得ることが出来る。

しかしながら、最近までこれらの手法はいわゆる表面科学の分野でのみ使用されており、物性解析に積極的に用いられた例はほとんど無かった。数年前よりSTSを用いて高温超伝導体の低エネルギー励起の空間分布を研究する試みが実を結ぶようになり、現在では高温超伝導以外にも特異な物性を示す物質群への応用が期待されている。特にスピン自由度が物性発現に関わる系、磁気転移を示す系に対して数10 T級の強磁場を印加してSTM/AFMを行うことは、電子状態とスピンに関わる微視的情報を引き出すことができるため極めて意義深い。

2. 国内外の現状

物性解析ツールとして STM を用いる試みは世界的にもまだ少数である。現在最も成功している STM による物性研究は米国のカリフォルニア大学バークレー校 (現在はコーネル大学) のデイビス等のグループによるものである。彼らは超高安定な低温 STM を製作し¹⁾、高温超伝導体の電子状態解析に多くの成果を挙げている²⁾。また、STM と強磁場を組み合わせた研究としては、IBM グループが表面に吸着した磁性原子上で、トンネルスペクトルに現れるゼーマン分裂の効果を直接観測した例があり³⁾、今後、物性方面への応用が期待できる。

国内では、北海道大学、東北大学、東京大学、東京工業大学、早稲田大学、理化学研究所等で物性研究を志向した STM の研究が行われている。しかし、国内外を問わず、10 T 以上の磁場中での研究は緒についたばかりであり、通常の超伝導磁石で得られる 15 T 以上の磁場下での実験は未だ例が無い。

3. 装置開発の方向性と課題

STM/AFM は走査に数分程度の時間を要するため、定常磁場の利用が不可欠である。超伝導磁石が使用できる磁場範囲での実験は、STM ユニットが磁石のボアに入りさえすれば、特に技術的困難はなく、これまでも実験が行われてきた。しかし、10 T 以上の強磁場下では、スペースの制約から磁場は試料表面に垂直にしか印加できていない問題がある。より STM ユニットの小型化し、磁場印加方向を変化させた実験を可能にすることは重要である。また、ユニットを小型化すると耐振動性能が向上するので、振動が大きなハイブリッド磁石の利用も可能になり、30 T 以上の強磁場下での実験も視野に入ってくると考えられる。

一方、磁場による効果を分光によって検出するためには、高いエネルギー分解能が要求される。磁場によるゼーマンエネルギーは 1 T あたり高々 0.06 meV である。したがって、試料を 1 K 以下の低温に冷却し、熱揺らぎを減少させることが必要不可欠である。

4. 本装置によって可能になるサイエンスの課題

強磁場 STM/AFM によって以下のようなサイエンスの展開が期待される。

- (1) 高温超伝導体の常伝導状態の実現と新しい電子秩序探索
- (2) 超巨大磁気抵抗効果の解明
- (3) 強相関電子系におけるスピン自由度の役割の解明
- (4) 遍歴電子メタ磁性転移に伴う量子臨界状態の解明
- (5) 単一スピン検出／操作
- (6) 各種磁場誘起相転移の微視的機構解明

5. 開発のための体制など実現への計画

超伝導磁石を用いた装置開発は、STM や低温を主として取り扱う研究室レベルでの実現が可能であるが、ハイブリッド磁石の利用を視野に入れた場合、防振対策や安定した磁場の発生など、強磁場研究者、技術者との連携が不可欠である。

6. まとめ

STM と強磁場の組み合わせは、1 meV 以下のエネルギー分解能と 1 Å 以下の空間分解能で磁場効果を研究するユニークな舞台を提供し、今後の物性研究にとって意義深い。特にハイブリッド磁石と STM の組み合わせが可能になれば、全く新しい物理を展開できる可能性が高い。この強力な実験手法の確立のためには STM ユニットの小型化と 1 K 以下の極低温環境の実現が課題である。

7 . 参考文献

- 1) S. H. Pan, E. W. Hudson, and J. C. Davis, *Rev. Sci. Instrum.*, **70**, 1459 (1999).
- 2) K. M. Lang, V. Madhavan, J. E. Hoffman, E. W. Hudson, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis, *Nature*, **415**, 412 (2002). K. McElroy, R. W. Simmonds, J. E. Hoffman, D.-H. Lee, J. Orenstein, H. Eisaki, S. Uchida, and J. C. Davis *Nature*, **422**, 592 (2003). T. Hanaguri, C. Lupien, Y. Kohsaka, D. -H. Lee, M. Azuma, M. Takano, H. Takagi, and J. C. Davis, *Nature*, **430**, 1001 (2004).
- 3) A. J. Heinrich, J. A. Gupta, C. P. Lutz, and D. M. Eigler, *Science*, **306**, 466 (2004).

4.2 強磁場下における磁気光学イメージング

東京大学大学院工学系研究科 徳永将史

1. 磁気光学イメージング法の強磁場応用の意義

強磁場下における物性研究において、熱力学量である磁化の測定は必要不可欠である。磁化測定技術としてこれまで様々な手法が使用されてきたが、ここでは磁気光学イメージング法(MOI)の強磁場応用の意義を記述する。空間分解型の磁気光学測定によって期待できる利点として以下の3点が挙げられる。

- ①粉末試料の一粒に対して単結晶と同様の磁化測定が可能
- ②多数試料を同時に測定できる
- ③バックグラウンド信号の除去が可能

磁気光学効果を用いた強磁場下の磁化測定では現在 10^{-9} emu程度の測定感度が報告されている [1]。感度が試料の体積に比例する他の測定手段に対して、試料の厚みに比例する磁気光学効果を用いる利点は微小試料において顕著になる。①で挙げた粉末試料に対する測定以外にもナノ磁性体への応用も期待できる。またハイブリッド方式による定常強磁場では、最高磁場までの磁場挿引は一日あたり一回程度が限界である事を考えると、利点②による時間的・経済的コストの削減も重要である。さらに強磁場下の磁気光学測定でしばしば問題になる光学系の磁場効果に起因するノイズは、試料外部の信号を差し引く事で補償可能である。

2. 国内外の現状

ここで述べるMOI法とは、試料のファラデー効果(またはカー効果)を偏光顕微鏡を用いて空間分解する実験手法である。試料自体の磁気光学効果が小さい場合には、ヴェルデ定数の大きい磁性体の面内磁化膜をインジケータとして試料上に配置する(添付図右下)事で、信号を増幅して測定する [2]。またインジケータの使用により試料中の電流分布の観察も可能になる[3]。MOI法は試料全体にわたる磁化・電流分布をリアルタイムで観測できる手法としてこれまで強磁性体の磁区構造や超伝導体の磁束配列の研究に利用されてきたが[2]、強磁場への応用に関してはほとんど行われて来なかった。

空間分解を行わない磁気光学効果の測定としては700テスラまでのパルス磁場下における報告[4]がある。この結果は磁気光学測定の強磁場応用の可能性を実証しており、高速の検出器を使えばパルス磁場下での測定も可能である事を示している。高精度測定という観点ではフロリダ州立大学において25Tまでの定常強磁場下での 10^{-9} emuの精度での測定が報告されている[1]。

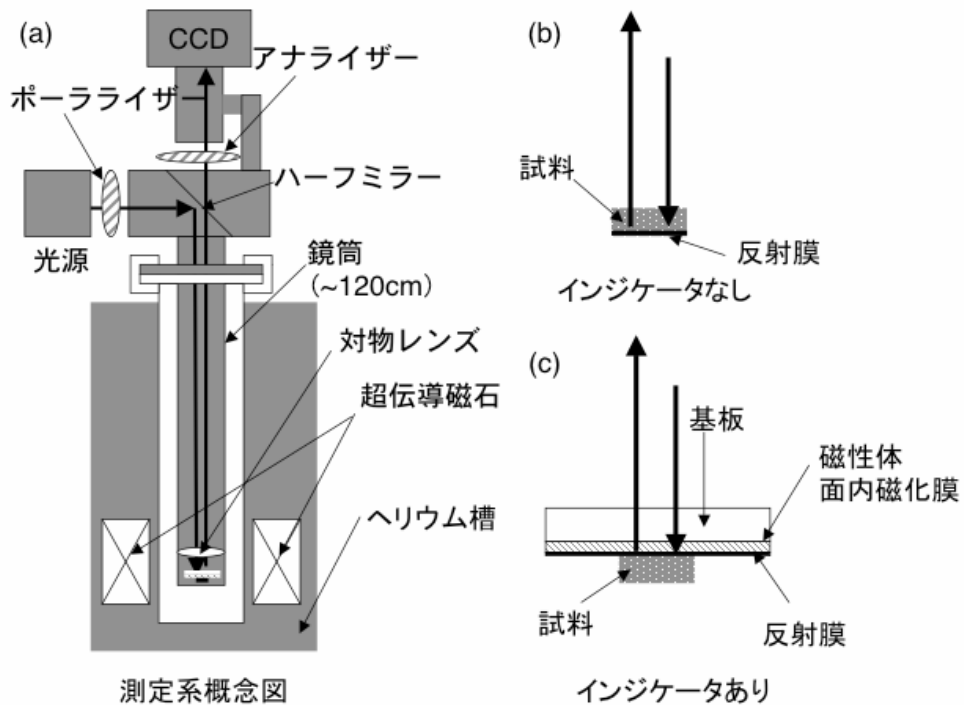
3. 準備状況と将来展望

強磁場下でのMOI測定系として、我々は無限系の対物レンズを超伝導磁石内においたシステムを

作成（図左）し、マンガン酸化物の相分離状態における強磁性ドメイン観察などを行っている[5]。現有装置では超伝導磁石・クライオスタットの制約により最高磁場9T、最低温度1.5Kであるが、より強磁場・低温への応用に光学系自体の支障はない。測定系が反射型顕微鏡になっているため、試料自身のファラデー効果を測定する場合には試料の片側に反射膜を蒸着する（図右上）。インジケータを使用する場合（図右下）には強磁場用のインジケータの開発が必要になる。30Tまでファラデー効果の線形性が確認されているNdF₃で厚さ100 μ mのインジケータを作成したとすると、インジケータを用いた磁気光学法による15Kでの磁化測定感度は1G程度になる[6]。よりヴェルデ定数が大きく線形性の良い磁性体を用いる事でさらなる感度向上が期待できる。

4. まとめ

以上のように、磁気光学イメージング法と50テスラ級の定常強磁場の組み合わせによって、微小試料に対してこれまでにない高感度磁化測定が期待できる。この測定系を用いて新規磁性体・超伝導体に対して世界に先駆けた単結晶磁化測定が可能になる他、ナノ磁性体・半導体の強磁場下における相転移の議論も可能になる。またコンビナトリアル的手法で組成勾配を持つ試料を作成すると、一度の磁場挿引で相図の組成依存性を得られるなどの利点もある。強磁場発生技術が新時代を迎えようとする今、その磁場を最大限に活用する実験手法の一つとして、磁気光学イメージング法の今後の発展が重要な役割を担う事を期待している。



5 . 参考文献

- [1] W. J. Geerts *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **73**, 2086 (2002).
- [2] M. R. Koblischka and R. J. Wijngaarden, Supercond. Sci. Technol. **8**, 199 (1995).
- [3] M. Tokunaga *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 037203 (2004).
- [4] O. M. Tatsenko *et al.*, Physica B **246**, 315 (1998).
- [5] Y. Tokunaga *et al.*, Phys. Rev. B **71**, 012408 (2005).
- [6] M. Guillot *et al.*, J. Appl. Phys. **85**, 5097 (1999).

4.3 強磁場下における顕微分光

千葉大学理学部 三野弘文、音賢一

1. 研究の意義

近年の結晶成長技術の飛躍的進歩によって良質な半導体ナノ構造（量子井戸、超格子、ヘテロ界面、量子細線等）が作製されるようになり、これまで界面での揺らぎポテンシャルによって見られなかったキャリアのマクロな実空間応答が観測可能となってきた。温度、キャリア密度、磁場などにより誘起される様々な相転移現象を巨視的量子効果の観点から捉える手段として顕微分光的手法が注目されている。中でも、磁気分光を組み合わせた実空間におけるスピン緩和過程の直接観測は、スピントロニクスの研究領域にも重要な情報を与える研究である。

2. 国内外の現状

強磁場下の顕微分光の研究は、主に量子ドット系において盛んに行われており、励起子複合状態（荷電励起子、励起子分子）などのスピン状態の研究が展開され、励起子に複数の電子（正孔）が結合する新たな荷電励起子の存在などが明らかにされている。

一方、量子井戸系では可視光源を用いた「荷電励起子のローレンツ力の影響」^[1] や、テラヘルツ領域の光を用いた、「量子ホール系のマクロな実空間応答」^[2,3] に関して研究が進められているが、これらの実験的手法は今後さらなる発展が期待され、研究対象も様々な試料に広げられていくであろう。特に、近年顕微分光によって捉えられた巨視的量子現象として「ゲート電圧印加型の二層量子井戸におけるリング発光」^[4,5] が注目されており励起子系のボーズ凝縮との関連からたいへん興味深い。この系での凝縮は磁場印加により増強される可能性もあるので、強磁場での顕微分光手法による研究の展開が期待される。

3. 装置開発の方向性とそれを用いた研究課題

磁気輸送による電気伝導と顕微分光の複合測定系の構築

(1) 半導体ヘテロ接合における二次元電子系を対象に、電場・磁場印加の下での顕微分光測定を行なう。低温・強磁場での整数および分数量子ホール状態や、そこでの複合フェルミオンといった特異な状態の二次元電子系に、光励起で生成される電子、正孔を導入することで、その輻射過程から電子相関の多体効果に関する情報や、実空間での応答として、エッジ状態の空間分布などの情報が得られる。また、希薄磁性半導体における二次元電子系を対象とした測定ではスピン偏極電子の実空間応答を詳細に調べることにより、その制御を目指した研究を行うことができる。

(2) タイプII半導体量子構造では、電子・正孔の再結合寿命がマイクロ秒以上と長いことから、

単なるキャリアの拡散過程と考えると、マクロなスケールでのキャリア伝播観測が十分期待できる。さらに、極低温・高キャリア密度下において磁場を印加することで、十分冷却された「熱平衡状態の励起子系」が引き起こすボーズ凝縮に関連して、超伝導や超流動現象などの著しい巨視的量子現象が観測される可能性が有る。この他、まだ明瞭な実験結果の報告がない、半導体量子構造中の「電子正孔液滴現象」を顕微分光による局所的発光観測で捉えたり、この液滴がマクロに拡がる様子を発光の時間・(顕微)空間分解測定により詳細に調べることも期待される。

現在、我々のグループでも上記の予備実験として、二次元電子系試料を用いた微細加工、電気伝導測定、室温における顕微分光計測等を行っている。さらに、12 Tまでの低温・磁場下の顕微分光のための、偏波保存ファイバーによる光励起・発光測定の実験も進め、さらに極低温・強磁場下での実験を進めている。

4. 参考文献

- [1] F. Takano et al., Phys. Rev. B **71**, 125326 (2005).
- [2] K. Ikushima et al., Review of Scientific Instruments **74**, 4209-4211 (2003).
- [3] 河野行雄、固体物理 Vol. **39**, 919-931 (2004).
- [4] L. V. Butov et al., Nature **417**, 47 (2002).
- [5] L. V. Butov et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 117404 (2004).

III—5. 分光

5. 1 時間分解分光: 日本と世界の現状と今後の方向性

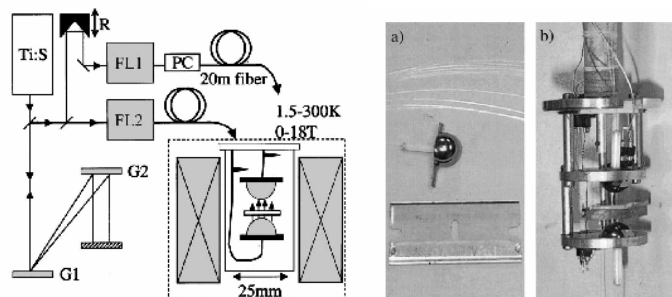
東京大学物性研究所 嶽山正二郎

1. 研究の意義と強磁場時間分解分光の重要性

強磁場中においては電子の運動が制限されるため、クーロンの遮蔽効果が緩和され、電子相関が顕著になる。また、同時に磁場は電子の持つもう1つの自由度であるスピンに直接働きかけ、軌道に対する効果とあいまって系の状態を強く変調する。このような影響は、物質の光学応答すなわち光励起された電子の振る舞いにも顕著に現れることが予想される。例えば、強磁場下で電子相関が顕著になると、系の非調和性が増大し、非線形光学応答が大きく変調され、対称性なども変化することが期待される。元来、電子の光励起状態は本質的に非平衡な状態であり、これを詳しく調べるためには時間領域での測定が必須である。よって、強磁場中での電子の光励起状態を研究する上では、時間分解分光法と強磁場発生技術を組み合わせることが必要不可欠である。このような強磁場下での光励起ダイナミクスの研究は、スピントロニクス、量子情報処理などといった応用の基礎を与える意味でも意義があると考えられる。

2. 国内外の現状

強磁場下時間分解分光の研究は国内、国外を問わず超伝導磁石を用いた研究が主であり、磁場も 10T 程度の範囲で行われている。これを用いて強磁場下四光波混合 1), 2) などの測定が行われている。より高い磁場下での測定ではパルスマグネットを用いる必要があるが、そのような研究はこれまでのところほとんど例がない。現在、アメリカの NHMFL で 60T 級パルスマグネットと組み合わせることが可能な時間領域テラヘルツ分光装置が開発されており、パルス磁場下での時間領域計測の計画がすすめられている 3)。



パルス磁場下における時間領域テラヘルツ分光装置(文献 3)より引用)

3. 装置開発の方向性と課題

より強磁場での測定を考慮してパルスマグネットを用いた時間分解分光法の開発を行う。ポンププ

ローブ分光や四光波混合などの代表的な時間分解分光はパルスレーザーの周期ごとに繰り返し起きる現象を観測時刻を変えながら繰り返し測定を行い、光励起現象の時間プロファイルを観測するという方式である。当然の事ながら、そのままこの方式をパルスマグネットに適用すると超伝導磁石を用いた場合などと比較して積算時間が十分に取れないという問題が生じる。また、通常、パルスマグネットはショット中に大量の発熱を伴い、次の磁場発生が可能な程度に冷却するまで数十分程度の時間がかかる。よって短時間で繰り返し磁場発生を行うことが困難であるので、十分な測定点の数を得るまで膨大な時間がかかるという問題もある。

そこで、これらを解決するためにマグネット、分光法それぞれを最適化する必要がある。

(1) マイクロコイルを用いた高繰り返し磁場発生

フランスのグルノーブルでは 1Hz の周波数での繰り返しでパルス磁場発生が可能なマイクロコイルが開発されている。この手法を用いることで測定時間の効率化および積算時間の増加を図る 4)。

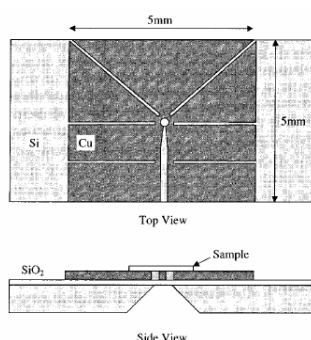


FIG. 1. Schematic view of a 50 μm microcoil.

マイクロコイルの概略図(文献 2)より引用)

(2) シングルショット測定法

パルス磁場 1 ショットでの時間軸情報がすべて測定できれば格段に測定時間は短縮できる。1つの手法として時間情報を空間情報にマッピングして観測するという手法を用いる手段がある。このようなことは低繰り返しの短パルスレーザーのパルス幅計測などで用いられているシングルショット自己相関計測を応用すれば可能である。近年、生体物質の超高速分光測定の実現性などからこのような手法がいくつか開発されており 5)、パルス磁場下での計測へ適用することも可能である。また、この手法は周期的磁場発生が不可能な 100T を超える破壊型マグネットとも組み合わせることが可能である点も利点といえる。

4. 本装置によって可能になるサイエンスの課題

本装置によって以下のようなサイエンスの展開が期待される。

- (1) 半導体における励起子-励起子間相互作用の磁場制御とその非線形光学効果に与える役割の解明
- (2) 半導体の高密度励起現象の磁場効果の研究
- (3) 強相関電子系の非線形光学効果におけるスピンの役割の解明
- (4) 強相関電子系における励起子の緩和ダイナミクスにおけるスピンの役割の解明
- (5) 半導体中の電子スピン緩和ダイナミクスの磁場による変調効果の観測
- (6) 2次元電子系の量子ホール状態における非線形光学効果
- (7) 強磁場下における高スピン励起子分子の存在の検証

5. 開発のための体制など実現への計画

本研究推進のためには、強磁場発生技術と時間分解測定技術の双方において高い技術力が必要とされる。現在、これを行う上で必要とされる技術的な連携体制も整いつつある。

6. まとめ

強磁場下での超高速時間分解分光、特にパルス磁場下での測定は世界的にも例がなく、強磁場下において電子相関などの効果が顕著となる極限領域での新しい光科学の発展が期待される。

7. 参考文献

- 1) P. Kner et al., Phys. Rev. Lett. 78, 1319 (1997)
- 2) H. Mino et al., Physica B 298, 421 (2001)
- 3) S. A. Crooker, Rev. Sci. Ins. 73, 3258 (2002)
- 4) K. Mackey et al., J. Appl. Phys. 87, 1996 (2000)
- 5) T. Konishi and Y. Ichioka Opt. Rev. 6, 507 (1999)

5.2 テラヘルツ分光

物質・材料研究機構 今中 康貴

1. 研究の意義と重要性

テラヘルツ (THz) 領域の周波数帯は、実用上これまで主に開発が行われてきた赤外、可視の周波数帯やミリ波や電波などの周波数帯と比べてその開発が遅れており、未開拓周波数帯と言われ続けてきた。その一方固体物理の分野では、遠赤外レーザーやガンダイオード、後進行波管、フーリエ分光器、ラメラ分光器などサブテラヘルツからテラヘルツ領域の光により磁性体の電子スピン共鳴や半導体のサイクロトロン共鳴などの様々な実験が、強磁場、極低温、超高压といった極限環境発生装置の開発、進展に伴い、世界に先駆けて日本で精力的に行われてきたという実績もある。しかしながらテラヘルツ領域のこれまでの光源が準連続的にしか波長を取り出せない点や連続的に取り出せても非常に強度が弱いなど制約が多く、発生方法のみならず検出方法、伝送手段も含めて開拓すべき余地は多分に残っているのが現状である。

ここ10年ほどでいわゆるフェムト秒パルス可視光レーザー技術の進展が著しくあり、素人でも容易に100フェムト秒程度のパルス幅を持つ光を扱えるようになった。これにより今まで難しかった光伝導スイッチや半導体結晶表面による3THz程度までのパルステラヘルツ光発生が容易に行えるようになり、固体物理の分野ではフォトニック結晶などに応用され始めている¹⁾。特に時間領域での測定が可能となるため、誘電率の実部と虚部を同時に測定できるなど従来の分光法には無い利点がある。この方法によるテラヘルツ光発生技術を強磁場のような極限環境と組み合わせることは強磁場固体物性研究のみならず、磁気イメージングなどの応用面でのイニシアチブを握る意味合いでも非常に重要になると考えられる。

2. 国内外の現状

パルステラヘルツ光の開発に関しては、日本において東北大学、筑波大学、理研、大阪大学、情報通信研究機構、信州大学などで主にイメージングやフォトニック結晶などの研究に使われている。世界的に見ても欧米各国で同様な研究が行われているが、例えばイギリスケンブリッジ大学キャベンディッシュ研究所ではテラヘルツ光の生体膜の分光やイメージング等に特化した研究が行われており、マーケットをして大きな医療、バイオ系に狙いを据えているのが特徴である。また東芝欧州ケンブリッジ研究所では、テラヘルツ光の研究部門が数年前より独立して Teraview というベンチャー企業を立ち上げており、テラヘルツ分光システムの販売なども手がけている。

技術的には4K程度の低温との組み合わせは既に行われているものの、強磁場といった外場との組み合わせによる研究は少なく、またそうした環境を必要とする固体への応用例も少ない。これは実際テラヘルツ光を極限場が生成する非常に小さな空間に導く手段が限られていることに起因している。パルステラヘルツ光の極限固体物性研究においては、唯一米国国立強磁場研究所のグループ

により半導体 2 次元電子系のサイクロトロン共鳴などの測定がなされているが、上述の遠赤外レーザーやフーリエ分光器などの既存システムと同程度の研究を行うためにはまだ多分に開発の余地があると考えられる。またパルス光であるという特色を生かした物質のダイナミクスを調べる研究に応用した例はこれまで見あたらない。

3. 装置開発の方向性と課題

現在主に使用されているパルステラヘルツ光装置は、一般的には光学系を組んでテラヘルツ光を空間に飛ばすものであり、特に長距離伝送や局所的にテラヘルツ光を導入することが非常に難しい状況にある。分光及びイメージングにおいて長距離または特定の局所空間にテラヘルツ光を導入可能にする手段の開発及び高出力化が今後の課題になると考えられる。

4. 本装置によって可能になるサイエンスの課題

本装置によって以下のようなサイエンスの展開が期待される。

- (ア) 強磁場磁気共鳴、サイクロトロン共鳴、強磁場遠赤外分光
- (イ) 自由度の高い透過撮影、イメージング
- (ウ) 量子コンピューティング
- (エ) 磁気イメージング

5. まとめ

以上のようにパルステラヘルツ分光と極限場との組み合わせは、これまでは不可能であった時間領域の分光が極限環境下で可能となり、更に磁気イメージングや電子スピン共鳴などの分野にもブレークスルーをもたらすものとして注目される。またこのような装置系の構築は世界的にも例が少なく、日本で世界に先駆けて取り組み主導権の確保するために極めて重要である。

6. 参考文献

- 1) T. Kobayashi, The Review of Laser Engineering Vol 26, No.7 (1998)

5.3 サイクロトロン共鳴

熊本大学工学部 横井裕之

1. 研究の意義と強磁場下サイクロトロン共鳴法の重要性

電子・光産業発展のブレイクスルーが新物質・材料開発によりもたらされる例は多く知られている。実用化のためにはまず結晶性を高めることに大きな努力が払われるが、新しく作製された結晶の特性や品質の評価を、非破壊で研究する有力な手段としてサイクロトロン共鳴法が活躍してきた。自由キャリアの有効質量は、基本的物性パラメーターであるばかりでなくデバイスの性能に関わるパラメーターなので、開発途上の結晶でサイクロトロン共鳴が観測できれば、基礎科学ばかりでなく産業応用上の意義は大きい。強磁場、特に 100 テスラ域の超強磁場を用いれば、サイクロトロン周波数が高まるので、その分、結晶性が悪い試料でもサイクロトロン共鳴の観測が可能となり、新物質・材料のキャリア有効質量の決定ならびにバンド構造の詳細な解明に大いに貢献できる。

サイクロトロン共鳴法は、キャリアの有効質量ばかりでなく、結晶内の不純物や欠陥の性質も探ることのできる守備範囲の広い手段として発展してきたが、100 テスラ域の強磁場では、サイクロトロン半径が 2.6nm 以下となり、ナノテクノロジーの今後を担っていくであろうカーボンナノチューブや半導体量子細線や量子ドットといったナノ材料をターゲットとして、その物性解明に力を発揮するものと期待される。さらに強磁場域へ展開して有効質量近似が成立しない領域に入れば、バンド理論を柱とする半導体電子物性理論では予測されない物性を見いだす可能性もある。他節で紹介されている時間分解分光やテラヘルツ分光をサイクロトロン共鳴法へ応用する試みもすでに始まっており[1]、100 テスラ域強磁場との組み合わせは、ナノ材料あるいは強磁場極限におけるキャリアのダイナミクスを探る強力な手段となるであろう。

2. 国内外の現況

100 テスラ域以上でのサイクロトロン共鳴法は、世界的に見ても東京大学物性研究所が一巻きコイル法や電磁濃縮法によるパルス超強磁場を活用して、1970 年代から先駆的に研究を進めてきており、これまでに、p 型ダイヤモンドなどの低移動度半導体のバンド構造決定や、GaAs の精密なバンドモデルの構築、CdS におけるポーラロン効果の解明、InAs/AlSb のスピン分裂サイクロトロン共鳴に対するクーロン効果とスピン緩和の解明、希薄磁性半導体の有効質量に対するスピン結合効果の解明といった業績をあげてきた[2]。そのため、海外の研究者との共同研究例も多い[3,4]。国外では、Humboldt 大学(ドイツ)で 1990 年代後半から、一巻きコイル法を用いた例が見られるのみである[5]。

ドイツのドレスデンにおいて、パルス幅 10ms の 100T パルス超強磁場施設を建設して、自由電子レーザー施設と組み合わせるプロジェクトが進行していることは、留意すべき動きである[6]。自由電子レーザーは、およそ 5~150 μm にわたって波長可変であり、ピコ秒オーダーのパルス光を発振できる。サイクロトロン共鳴法に活用する計画があるので、従来から活用されてきたガスレーザーではカバーできなかった励起エネルギー領域における物性調査や過渡現象の解明が進められるものと予想される。

3. 今後の方向性

(1) 測定の精密化

最近になって、GaAs 量子井戸のサイクロtron共鳴にポーラロン効果が現れないという、従来の常識を覆す研究結果が仏グルノーブルのグループから報告された[7]。彼らの研究は、定常磁場としては強磁場である25T強まで、1.8Kの極低温で試料角度をコントロールした精密な測定を通じて進められた。今後は、100T域の超強磁場においても精度の高い測定を実現することが新奇な物性を探索する上で重要な課題となるであろう。そのためには、一卷きコイル法のように、コイルが一回の測定ごとに破壊する方式では限界があり、非破壊型の超強磁場発生システムが望まれる。

(2) 新しい測定法の開発

上述したように、自由電子レーザーや光パラメトリック増幅器による極短パルス・強電場光源との組み合わせはサイクロtron共鳴法の新たな可能性を拓くと期待される。それ以外にも、サイクロtron共鳴法とフォトルミネッセンス法を組み合わせた光検知式サイクロtron共鳴法が開発されて、キャリアの非平衡状態を探る有力な測定手段として活用されている[8]。100テスラ域長時間パルス強磁場が開発されれば、既存のサイクロtron共鳴測定システムとフォトルミネッセンス測定システムを組み合わせることにより、この手法を100テスラ域まで適用することが十分可能であるので、最初に100テスラ域のキャリアダイナミクスを探る突破口として、活用が期待される。

(3) まとめ

100テスラ域でのサイクロtron共鳴法による物性研究は、これまで日本の独壇場といっても過言ではなかった。しかしながら、ドレスデンにおいて建設されている強磁場施設は、新たな研究領域を広げることにより、そのステータスを確立するものと考えられる。100テスラ域でのサイクロtron共鳴法における日本の主導権を確保するためには、既存の超強磁場施設へのテラヘルツ分光設備の導入や100テスラ非破壊ロングパルス磁石の開発が急務となっている。

4. 参考文献

- [1] 河野淳一郎：「半導体のマグネトスペクトロスコピー」、『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）pp. 86-96.
- [2] N. Miura et al., “Research in Super-High Pulsed Magnetic Fields at the Megagauss Laboratory of the University of Tokyo”, *J. Low Temp. Phys.* **133**, 139-158 (2003).
- [3] R. J. Nicholas et al., “Interface and layer thickness dependence of the effective mass in InAs/GaSb superlattices studies by high field cyclotron resonance”, *Solid-State Electronics*, **40**, 181-184 (1996).
- [4] M. A. Zudov et al., “Ultrahigh field electron cyclotron resonance absorption in $\text{In}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ films”, *Phys. Rev. B* **66**, 161307 (2002).
- [5] O. Portugall et al., “The generation and application of megagauss fields at the Humboldt High Magnetic Field Center”, *Physica B* **246-247**, 54-60 (1998).
- [6] T. Herrmannsdörfer et al., “The High Field Project at Dresden/Rossendorf: Appulsed 100

- T/10 ms Laboratory at an Infrared Free-Electron-Laser Facility” , J. Low Temp. Phys. **133**, 41-59 (2003).
- [7] C. Faugeras et al., “Fröhlich Mass in GaAs-Based Structures” , Phys. Rev. Lett. **92**, 107403 (2004).
- [8] T. Tomaru et al., Phys. Rev. B **44**, 10622 (1991).

5.4 磁気光学

熊本大学工学部 横井裕之

1. 研究の意義と強磁場磁気光学測定的重要性[1]

磁気光学現象では、半導体の価電子帯から伝導帯への電子励起が起こっており、おのずと正孔と電子の二体問題を含む多体効果が関与してくる。半導体中で励起された電子と正孔が形成する励起子は水素原子に類似した状態を形成している。励起子はボーズ粒子であるので、高密度励起によりボーズ凝縮が観測される可能性がある。二次元電子系では励起子よりも荷電励起子(トリオン)の方が安定に存在するようになる。このような励起状態が磁場下でみせるスペクトル変化は実に多彩であり、解析を進めることにより、そのスピン状態や安定性が明らかになってきている。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り、励起状態はスピン三重項となる。水素分子をスピン三重項に励起するには、 $10^4\sim 10^5$ テスラという地上では発生しようなない超強磁場が必要となるが、希薄磁性半導体中の励起子分子では一桁程度低い磁場域で観測される可能性がある。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や超伝導の可能性を秘める荷電励起子高密度凝縮相の研究なども今後大いに発展していくことが予想される。強磁場磁気光学はこういった物性を解明するための有力な研究手段となり、今後も大いに活用されて行くであろう。

2. 国内外の現状

国内外における 100 テスラ域の磁気光学測定実施機関は、東京大学物性研究所とロシアの VNIIEF、アメリカ合衆国のロスアラモス国立研究所に限られている。このうち後者二箇所は磁場の発生に爆縮法を用いており、それぞれ磁気吸収測定[2]、ファラデー回転[3]を中心とした磁気光学測定が行われてきた。それに対して、東京大学物性研究所では、磁気吸収、磁気ルミネッセンス、ファラデー回転といった多様な手法を用いた研究が展開されてきた[4]。最近では、CCD 方式のストリークカメラを用いた磁気吸収、ルミネッセンス測定システムが開発されて、超高速パルス磁場によるスペクトル変化を連続的に追跡できるようになっている[5]。

非破壊パルス磁場施設の中では、米国立強磁場研究所(ロスアラモス)のパルス長が 2 秒もある 60T ロングパルス磁石を用いた高速フォトルミネッセンス計測システムが特筆に値する[6]。30~60 テスラの領域でも 0.3 テスラごとにマルチチャンネルでスペクトルが計測できる上に、S/N が定常磁場下の測定に匹敵するほど良いので、シグナルのわずかな変化も物理的な議論の対象にできる[7]。100 テスラ域のロングパルス磁石が開発されれば、その恩恵は計り知れないものとなる。

磁気光学測定では、パルス強磁場と高圧力、極低温を組み合わせた複合極限場の開発も盛んであり、東京大学物性研究所と米国立強磁場研究所(ロスアラモス)において、磁場 40~60 テスラ、圧力 1~2GPa、温度 ~1.5K におけるフォトルミネッセンス測定が実施されている[8,9]。

3. 今後の方向性

(1) 高磁場分解能・高 S/N 化

現状で、100 テスラ域まで連続的にスペクトル計測が可能となっているものの、有意な S/N の得られる試料品質の条件は、定常磁場に比べて格段に厳しい。そのため、測定システムの高感度・高速化と最適化、磁場のロングパルス化が今後の課題となる。特に、システム最適化のノウハウを開発・蓄積・集約するネットワークづくりが望まれる。

(2) 複合極限場の極限化と物性探索

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。それらを複合させた複合場を利用することにより物性解明が進むことが期待されている。圧力セルに用いられるダイヤモンドアンビルやモアッサナイトアンビル、サファイアは、光学的に透明なので磁気光学測定と相性がよい。今後さらに複合極限場の極限化を進めるとともに、それによる物性探索と解明には、今後も磁気光学測定が最有力の手段として活躍していくであろう。

(3) 新しい磁気光学測定法の開発

秒オーダーのパルス磁場が可能となれば、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tron共鳴、ラマン分光などが有望である。これらのうち、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小試料や粉末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。

4. まとめ

磁気光学は、固体中の多体効果を探る有力な手段であり、複合極限場との相性もよい。現在、100 テスラ域における磁気光学は日本のアクティビティが最も高いといえる。今後、100 テスラ域ロングパルス磁場と組み合わせ高磁場分解能化と高 S/N 化が図ることにより、理論的に可能性のある多くの新現象の検証においてリーダーシップを取り、その優位性を確保していくことが重要である。

5. 参考文献

- [1] 横井、嶽山、「磁気光学」、『強磁場物性の現状と将来展望』（平成 14 年 7 月、強磁場フォーラム）、pp. 70-80.
- [2] C. M. Fowler, Science **180**, 261 (1973).
- [3] O. M. Tatsenko et al., Physica B **246-247**, 315-318 (1998).
- [4] N. Miura et al., J. Low Temp. Phys. **133**, 139-158 (2003).
- [5] N. Miura et al., Physica B **256-258**, 308 (1998).
- [6] S. A. Crooker et al., Phys. Rev. B **61**, R16307-16310 (2000).
- [7] Yu. G. Semenov et al., Physica E **10**, 340-343 (2001).
- [8] 内田和人、他、「パルス強磁場下における光学測定用高圧クランプセルの開発」、固体物理（ア

グネ技術センター、東京) 32(2), (1997).

[9] H. Yokoi et al., Physica B **298** 426-430 (2001).

5.5 強磁場下のラマン散乱

広島大学総合科学部 宇田川眞行

1. 研究の意義と強磁場下のラマン散乱の重要性

不対電子を含む物質群では、強磁場によって誘起される様々な状態や相転移などが出現する。この起源を理解するためには、原子レベルにおける微視的立場からの原子間相互作用、磁気相互作用、電子-格子相互作用等の知見や動的性質を解明することが必要不可欠となる。このための実験手段としては、電磁波・粒子による非弾性散乱しかない。可視光を用いるレーザーラマン散乱は他の測定手段に比べて小さなシステムで、かつ高分解・高精度のスペクトルが得られることが特徴である。従って、高磁場下における本実験が可能になれば、磁性、超伝導、半導体はもとよりあらゆる物性研究において新たな知見を開拓しうる手段となりうる。得られる知見はスピントロニクスなどへの基礎となる。

2. 国内外の現状

磁場中におけるラマン散乱実験は超伝導磁石の利用に限られており、15テスラ程度の磁場が用いられている。しかし、15テスラの磁場での測定でも、世界的にもドイツや米国の数グループからの磁場依存性の報告しかない。また、日本においても10テスラ程度での測定結果が広島大学のグループから報告されているだけである。従って、20テスラ以上での磁場依存ラマン散乱測定が可能となれば、世界をリードできる状況にあるので、30テスラの磁場でのラマン散乱実験システムの構築が望まれる。

3. 高磁場ラマン散乱システムによって可能になる研究課題

ラマン散乱では、中性子散乱非弾性散乱等とは違って、ほとんどの励起（フォノン、磁気励起、電子励起など）が観測される。そのために、観測した励起の帰属が問題となるが、ほとんどの励起が観測できることから、物質群として、絶縁体から金属、磁性体、誘電体、半導体を問わない。従って、現時点で、重要でしかも大きな展開が期待される課題を以下にまとめる。

- (1) 強相関電子系（高温超伝導体、f電子系化合物等）におけるスピン相関の微視的特徴の解明
- (2) 構造異常を伴う現象（スピンヤンテラー効果、マルテンサイト変態、スピンパイエルス等）におけるスピン-フォノンモードなどの複合素励起の解明
- (3) 超強磁場下におけるゼーマンエネルギーと格子エネルギーの混成により生じるスピン-フォノンモードなどの複合素励起の探求
- (4) f電子系等において重要となる多重極子とその秩序および磁気ゆらぎの解明
- (5) 磁場誘起相転移の秩序変数の決定による相転移機構の理解
- (6) メタ磁性物質における構造異常の解明

(7) 磁場誘起超伝導体などにおける磁気相関の解明

4. 高磁場ラマン散乱を可能とするための全国組織の構築計画

ラマン散乱で検出する光の強度は微弱なために長時間にわたる連続測定が必要となる。従って、パルス磁場では不可能で、定常磁場が必要となる。少なくとも世界をリードするためには 30 テスラの磁場が必要となるが、消費電力が問題となる。この解決には消費電力抑制型高磁場発生装置の開発が必要で、これを行いうる施設は東北大学だけである。従って、東北大学に主センターを設置し、30 テスラでのラマン散乱測定システムを構築する必要がある。しかし、すべての測定を 30 テスラ磁場システムで行うことは、消費電力の観点から考えると効率が悪い。従って、東北大学以外にも、全国に 2~3 カ所の大学を選択し、15 テスラ程度までの磁場中測定を可能とするサブセンター的施設を設置し、ここで予備実験を修了させた後に、東北大学の主センターでの測定に移行する方式をとるのが現実的である。可能ならば、サブセンターまで含めた高磁場ラマン散乱施設を全国共同利用施設とすることが望ましい。設置大学としては、地理的条件と研究者を考慮すると、サブセンターを東北大学、東大物性研究所、広島大学に設置することが機能的と考えられる。

5. 将来

将来的には、100 テスラ級の強磁場とラマン散乱の組み合わせへ移行が必要であるが、30 テスラでの研究でも世界的には存在しないことから、日本が物質科学の微視的理解の促進に大きな貢献ができる。従って、本計画は世界に先駆けて取り組む点でも独創性が極めて高いと言え、必ずや強磁場スピン科学における主導権を確保すると考えられる。

Ⅲ-6 磁気計測、マイクロ計測

6.1 トルク、マイクロプローブ

東京大学物性研究所 大道英二

1. マイクロプローブの必要性と意義

高強度パルス磁石用線材の開発によりパルス磁石の性能は大幅に向上し、最近では60 T程度の強磁場まで抵抗、磁化、磁気光学といった様々な測定が可能になってきている。しかしながら、発生磁場が単パルスであるため、微小な単結晶試料の磁気測定では十分な測定感度を得ることが難しい、などといった欠点がある。この点はパルス磁場の利便性を考える上で大きな障害となっている。従って、パルス強磁場実験において、測定感度向上は強磁場発生と並んで重要な問題として位置づけることができる。

この問題を解決する方法として最も有効と考えられているのがマイクロプローブを用いた精密測定である。すなわち、計測装置そのものを微小化したマイクロプローブでは微小試料に対する有効体積が大きくなり、高い信号雑音比が期待できる。加えて、試料サイズが小さくなることで渦電流による発熱効果などを抑えることができる。国外では測定感度を上げるために超長時間パルス磁石を備えている施設も見受けられるが、このような大型パルス磁石では発生できる磁場の値には上限がある。そのため、将来的に100 T領域での高感度計測を考える場合、それを実現する方法としてはマイクロプローブ測定が唯一の解と考えられる。

マイクロプローブは新奇な物性を示す新物質の研究を行う上で最もその威力を発揮すると期待される。すなわち、新物質の研究においては、測定に十分な大型試料を育成できるか否かが研究全体の律速条件になっていることが多い。マイクロプローブによる精密測定が可能になれば、従来測定が不可能であった微小単結晶試料についても様々な測定が可能になり、パルス強磁場物性における新展開が期待できる。また、物質開発サイドとのフィードバックサイクルが大幅に短縮されるため、短期間における研究の大きな進展が可能になる。

2. 国内外の現状

マイクロプローブを用いたパルス磁場中測定としては、Naughton [1], Aksyuk [2]らによる先駆的な研究が挙げられる。彼らは、シリコンマイクロマシーニングを用いてマイクロプローブを作製し、実際にパルス強磁場の測定における有用性を明らかにした。しかしながら、実際には固有振動数が低く、超長時間パルス磁石(パルス幅~500-1000 ms)が必要であるため、実際の測定に用いられた例はほとんどない。

国内では、Ohmichi [3]らがこれらの研究をさらに発展させ、1 μg 程度の試料に対して磁気測定が可能なカンチレバー式トルク測定法を開発した。この方法では市販の原子間力顕微鏡のカンチレバーを採用しており、再現性よく安価に高感度の磁気測定が50 Tまでのパルス磁場中で可能になっている。また、マイクロキャパシタンスを用いたパルス磁場用磁化測定装置[4]なども報告されている。

3. 装置開発の現状と課題

マイクロプローブは近年、物性物理の分野にも導入されるようになった新しい技術である。これまでに実際に作製されたパルス磁場用マイクロプローブの例としてはカンチレバー式トルク計、ファラデー式磁力計、マイクロコイル磁力計などが挙げられる。しかしながら、パルス強磁場実験において広く浸透するには至っていないのが現状で、今後の更なる技術的進歩、マイクロプローブ導入に向けた基盤整備が望まれる。

将来的には、磁化、比熱といった様々な測定に対応したマイクロプローブの作製が望まれるが、コスト、技術など点からまだ課題は多い。Ohmichiらは市販の製品を用いることでこの問題を回避し短期間に実用化までこぎつけたが、この場合構造の最適化を行うことは難しい。一方、Naughton, Aksyukらの場合では自らマイクロプローブを製作したが、パルス強磁場施設所属の研究者ではないためパルス磁場測定に特化した技術開発が継続的に行われていない。従って、将来的にはパルス強磁場施設の in-house activity の一つとして、このような技術開発を継続的に行っていく必要があると思われる。

4. まとめ

100 T 領域にいたるパルス磁場中での高感度測定を行う上で、マイクロプローブは欠かすことのできない基幹技術として位置づけることができる。スピン科学を進めていく上で磁気測定は最も基本的な測定であり、マイクロプローブを用いた精密磁気測定技術の開発がいち早く望まれる。すでに実用段階に入っている装置としてはカンチレバーによるトルク測定装置が挙げられるが、将来的には比熱など様々な測定のバラエティを増やしていく必要がある。

5. 参考文献

- 1) M. J. Naughton et al., Rev. Sci. Instrum. **68** (1997) 4061.
- 2) V. Aksyuk et al., Science **280** (1998) 720.
- 3) E. Ohmichi and T. Osada, Rev. Sci. Instrum. **73** (2002) 3022.
- 4) E. Ohmichi and T. Osada, Physica B **346-347** (2004) 509.

