

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25610088

研究課題名(和文) 極限磁場による量子スピン系の全磁化過程の解明

研究課題名(英文) Magnetization process of quantum spin systems in extremely high magnetic fields

研究代表者

松田 康弘 (Matsuda, Yasuhiro)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：10292757

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：破壊型パルス強磁場において精密磁化測定を可能にするため、100 MHz程度の高周波を用いた交流変調技術の開発を行った。様々なノイズ成分の除去には効果があったが、投入できる電力が励起コイルサイズによって制限され、信号の絶対値を十分大きくすることは難しかった。100 T超強磁場においてフラストレーションスピン系のメタ磁性の観測には成功したが、従来法に比べて精度の向上を得ることはできなかった。しかしながら、開発した手法の励起AC磁場の周波数依存性から、相転移の特性時間を見積もることが可能であることを新たに見いだした。これは極限磁場中で起こる現象のダイナミクスを探る新たな手法として興味深い。

研究成果の概要(英文)： We developed the experimental technique for high-frequency AC magnetization measurements to obtain a full magnetization process of quantum spin systems at very high magnetic fields. The frequency range is as high as 100 MHz. The developed technique was found to be useful to suppress several kinds of noise. However, it was also found that the absolute value of the signal of the AC method is much smaller than that obtained with standard DC method. Actually, we succeeded in observing metamagnetic transitions in a spin frustrated compound in very high magnetic fields over 100 T, but the signal to noise ratio is not better than that of the DC method. However, an very important finding was obtained as the by-product; the frequency dependence of the AC signal of the phase transition gives us the characteristic time of the phase transition. This finding is very important because we can investigate the dynamical nature of phase transitions at very high magnetic fields with this technique.

研究分野：磁性

キーワード：強磁場 磁化 量子スピン 高周波 磁場誘起相転移

1. 研究開始当初の背景

反強磁性相互作用を持つ低次元磁性体は量子スピン系と呼ばれ、多段の磁化プラトーや磁化ジャンプなど量子効果を強く反映した非自明な構造が現れるため多大な関心が寄せられている。一般に磁気励起には強い磁場が必要であり、例えば2次元直交ダイマー系  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  の磁化の飽和には 200 T 程度が必要であると予想される。さらに、2次元磁性体のカゴメ格子については、最近、ボルボサイト ( $\text{Cu}_3\text{V}_2\text{O}_7(\text{OH})_{2.2}\text{H}_2\text{O}$ ) やベシニエイト ( $\text{BaCu}_3\text{V}_2\text{O}_8(\text{OH})_2$ ) と呼ばれる Cu を磁性元素としたカゴメ格子物質が人工合成され、80 T で起源が不明の 2/5 プラトーが見ついている。さらに同じくカゴメ格子のハーバースミサイト ( $\text{ZnCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2$ ) では同じプラトーが存在するならばその磁場は 100 T 以上になると予想されている。これらの物質の全磁化過程の解明は量子スピン系の理解に極めて重要であり、大変興味深い。しかしながら現在のところ、低温下で精密な磁化測定が可能なのは 70 T 程度までであり、多くの量子スピン系物質で磁化は飽和まで到達していない。

2. 研究の目的

本研究の目的は、100 T を超え、最大 400 T 程度までの超強磁場下で精密な磁化過程を測定するための実験技術を新しく開発し、量子スピン系における未解明の強磁場磁化過程を明らかにすることである。

3. 研究の方法

強磁場発生にはパルス磁場を用いるが、磁化を直接測定するにはピックアップコイルを使用する必要がある。また、磁化の時間依存性を精度良く検出するためには、磁場の時間依存性に起因する信号をバックグラウンドとして差し引かなくてはならない。これは、従来法では、自己補償型の同軸または並列タイプのピックアップによって 99% 以上を補償し、差し引きができない残留成分を、2 回の測定で引き算して実現している。このとき、磁場や温度、試料位置などが 2 回の測定でどの程度同一であるかが精度を決定している。ところが、200 T を超える磁場では、マグネットだけでなく試料も破壊される方法でしか実現できないため、測定を 1 回のパルス磁場発生で終える必要がある。そこで、本研究では、パルス磁場掃引周波数よりも  $10^3$  倍程度高速の、100 MHz 帯の高周波変調磁場を用いる交流磁化測定法により、1 回の磁場掃引で、磁場成分バックグラウンドを除去する方式を開発する。開発した測定手法を、一巻きコイル法、及び電磁濃縮法による超強磁場発生装置と合わせることで、400 T 程度までの量子スピン系の高精度磁化測定を実現する。

4. 研究成果

(1) 高周波交流磁化測定手法の開発

100 MHz 帯の AC 磁化測定手法開発は、図 1 に示した様な並列型ピックアップコイルを同軸状に 2 組配置したコイルを用いた。外側の 1 組のコイルが高周波入力 (励起) 用、内側の 1 組のコイルが磁化検出用コイルである。それぞれが、2 つで 1 つの組になっているのは、パルス磁場による誘導電圧成分を互いに打ち消すためである。一巻きコイル法や電磁濃縮法は磁場掃引速度がマイクロ秒の領域であるために 1000 V 程度の電圧がピックアップコイルに誘導され、補償型コイルにすることは必須である。

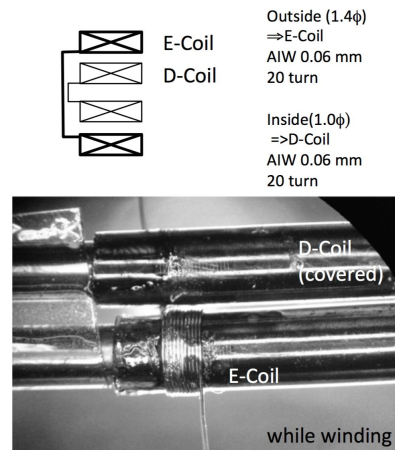


図 1 本研究で作製した高周波 AC 磁化測定用コイルの概略図と作製時の写真

図 2 には、開発した測定システムのブロックダイアグラムを示した。励起コイルには任意波形発生器から正弦波を発生させ、入力する。交流磁化測定では、励起磁場の強さが信号強さを決定するため、高速のパワーアンプを用いて 100 倍程度に振幅を増大している。このとき、電力は 30 W 程度であり、図 1 のような小型コイルの許容平均電力を超えるため、入力はパルス状にする。高周波スイッチを用いておよそ 30  $\mu\text{s}$  の持続時間とした。これによって励起コイルの発熱は抑制され、安定した測定が可能となる。

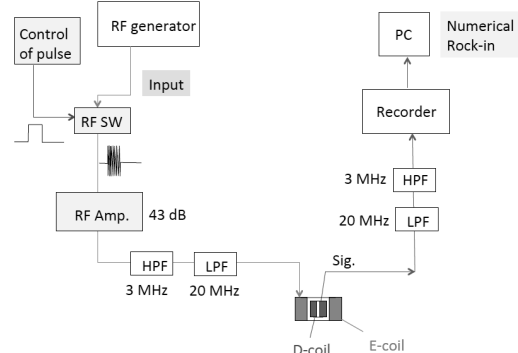


図 2 製作した高周波 AC 磁化測定のプロックダイアグラム

検出コイルは、外部磁場  $B_e$  による磁化  $M_0$  の周辺で高速交流磁場  $\Delta B_m$  によって変調され、磁化変化  $\Delta M_m$  が磁化率に比例した信号とし

て検出される。AC法の長所は、AC変調周波数( $f > 10$  MHz)でロックイン検波することで、外部磁場  $B_0$  による誘導電圧成分 (~100 kHz) を、有効に除去可能となる点である。これによって、ノイズとなる誘導電圧のバックグラウンド成分を2回測定することなく、1回だけで測定を完了させることができる

## (2) 100 T 磁化測定への応用

研究計画時に想定した最高磁場は 400 T であり、電磁濃縮法により得ることが可能である。しかしながら、予期せぬ磁場発生装置の不具合などの理由により、研究期間中に修復は困難と判明したため、磁場発生法を一巻きコイル法にのみに変更した。それに伴って、最高磁場も 100 T 程度を第1段階での技術目標とした。電磁濃縮法と一巻きコイル法での発生磁場パルスはともにマイクロ秒の時間領域にあるため、一巻きコイル法で 100 T 磁場での計測技術が確立できれば、400 T 磁場への応用にも、電磁シールド対策などの細部の改良点で対応できると予想されるため、研究計画全体に大きな影響は無い。

図3はフラストレート磁性体  $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  において 4.2 K で行った実験結果である。左縦軸は変調信号の振幅変化分、右縦軸は位相変化分である。

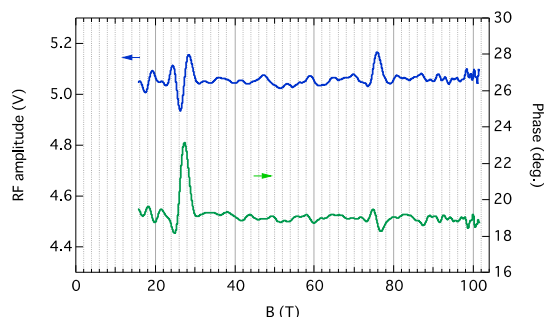


図3 高周波 AC 法で測定したフラストレート磁性体  $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の 4.2 K での測定結果

このとき、変調磁場周波数は 15 MHz である。一巻きコイル法発生させた磁場値についてプロットしており、横軸は磁場で、最大値は 101 T である。振幅と位相の両方に約 26 T と 76 T にピーク信号が観測されているが、これは、この系の 1/2 プラトール相への転移と、飽和直前の新規相への転移にそれぞれ対応する。よって、高周波法によってスピン系の磁化過程をマイクロ秒の破壊型パルス磁場中で捉えることが可能であることが確かめられた。図4には、これまでの DC 法で2回の磁場発生時の差し引きから得た、磁化の時間微分信号を示した。図3の結果との比較から、確かに高周波法でも磁化の特徴を捉えていることが確認できる。

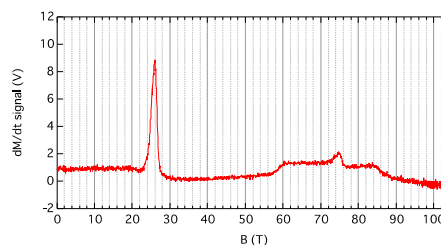


図4 DC 法による  $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の 4.2 K での磁化測定信号の磁場依存性

しかし、図3と図4の比較から、従来の DC 法と比べて高周波法の信号は微弱であり、信号のノイズに対しての強度比 (SN) の観点から、DC 法に比べて優れているとは言えない。この点の改善のためには、15 MHz が電磁ノイズ帯域から十分に離れていないことを考慮して、さらに高い周波数での測定も行った。図5は、100 MHz での実験結果を横軸を時間として、検出信号と発生磁場波形を同時にプロットした図である。

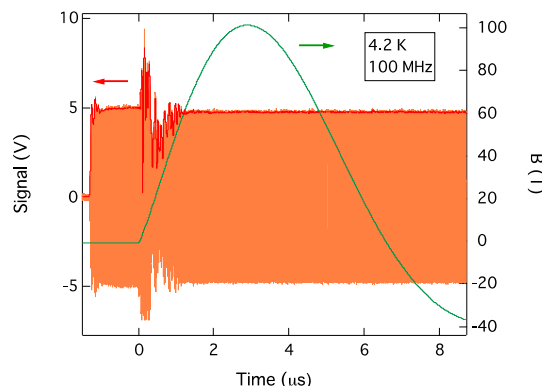


図5 100 MHz での測定結果を発生磁場波形とともに時間についてプロットした結果

磁場発生時には、スイッチングの大きなノイズが誘起されているが、約  $1\mu\text{s}$  でノイズ成分は減衰し、良い SN で測定出来ていることがわかる。ところが、信号はほぼ平らであり、図3に示した様な信号は観測されていない。これは、次に示すように、この物質の相転移のダイナミクスを反映した本質的な理由によるものであることが本研究によって分かってきた。技術的観点からは、電磁ノイズ成分を有効に減衰できる程度の高周波にすると、スピン系のダイナミクスと相關する領域に入るために、あまり高い周波数を用いることができないことが明らかとなった。

## (3) 相転移ダイナミクスの評価

開発した高周波交流磁化測定技術を実際の系に応用した初期段階の実験において、この技術における周波数がスピン系の磁気相転移の特性時間スケールに近い場合があることが分かってきた。これは、研究当初の磁化過程の高精度計測という目的とは方向性が異なるが、物理的には大変興味深い計測で

ある。図6は26 Tのピーク信号について、様々な周波数で実験を行った結果を示している。

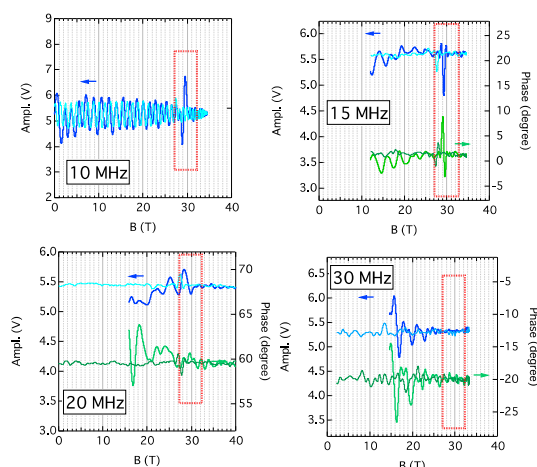


図6 様々な周波数における高周波磁化測定信号

これから明らかな様に、信号は30 MHzでは観測されておらず、図5で示した様に、100 MHzで信号が現れなかった事実とも整合する。20 MHzでは僅かに信号が観測されていることから、この系の相転移の特性時間が33~50 ns程度であり、スピン系の動的挙動がこれ以上短い時間では追従できないことが明らかとなった。これは、この相転移のメカニズムがスピン-格子結合と深く関わっているために、比較的遅いダイナミクスになっているとの予想と整合する。

以上から、本研究によって100 T以上の極限磁場中において、磁気相転移のダイナミクス計測における要素技術を開発することに成功した。これは、励起、検出コイルを、外部パルス磁場と直交する配置に置くことで磁場方向と直交する横磁化成分の情報を得ることもできると考えられるため、様々な磁気構造の確認にも有用であると期待される。

一方、高精度磁化計測においては、変調周波数のスピンダイナミクスとの兼ね合いによる制限から、SNを十分良くすることがそれほど容易でないことが判明した。10 MHz程度の周波数において、励起コイルの磁場の高磁場化が解決策であり、今後の研究展開の方向であると位置づけた。この観点から、スピン格子結合による磁化過程が期待される有機のスピンラダー物質であるBIP-TENOについて100 Tまでの磁化過程を調べ、研究対象としての評価を行った。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表](計3件)

野村和哉、松田康弘、嶽山正二郎、天谷直樹、小野俊雄、細越裕子、100 Tを超え

る強磁場下でのS=1 スピンラダー系物質BIP-TENOの磁化過程、日本物理学会第70回年次大会、2015年3月21日-24日、早稲田大学(東京都新宿区)

松田康弘、破壊型パルス磁場における高周波AC磁化測定技術の開発II、日本物理学会2014年秋季大会、2014年9月7日-10日、中部大学(愛知県春日井市)

松田康弘、破壊型パルス磁場における高周波AC磁化測定技術の開発、日本物理学会第69回年次大会、2014年3月27日-30日、東海大学(神奈川県平塚市)

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

松田 康弘 (MATSUDA, Yasuhiro)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：10292757