

2004年度

## 卒業研究発表会予稿集

2005年1月31日(月)・2月1日(火)

口頭発表会 於:9 - 349・9 - 353 教室

2005年2月1日(火)

ポスター発表会 於:上智会館第6会議室(5階)

上智大学 理工学部  
物理学科

# 卒研発表会タイムスケジュール

| 1月31日(月)      |                              |               |              |
|---------------|------------------------------|---------------|--------------|
| 時間            | 9 - 3 4 9 会場                 | 時間            | 9 - 3 5 3 会場 |
| 10:00 ~ 10:10 | 開会の挨拶                        | ---           | ---          |
| 10:10 ~ 11:20 | 関根研(7名)                      | 10:40 ~ 11:10 | 水谷研(3名)      |
| 11:20 ~ 12:00 | 桑原研(4名)                      | 11:10 ~ 12:00 | 高柳(和雄)研(5名)  |
| 12:00 ~ 13:30 | 昼食                           |               |              |
| 13:30 ~ 14:40 | 後藤研(7名)                      | 13:30 ~ 14:40 | 伊藤研(7名)      |
| 14:40 ~ 15:50 | 江馬研(7名)                      | 14:40 ~ 15:50 | 清水研(7名)      |
| 2月1日(火)       |                              |               |              |
| 時間            | 9 - 3 4 9 会場                 | 時間            | 9 - 3 5 3 会場 |
| 10:00 ~ 11:00 | 大槻研(6名)                      | 10:00 ~ 11:10 | 高柳(俊暢)研(7名)  |
| 11:00 ~ 12:20 | 田中研(8名)                      | 11:10 ~ 12:20 | 坂間研(7名)      |
| 12:20 ~ 13:30 | 昼食                           |               |              |
| 13:30 ~ 14:00 | ポスターセッション準備                  |               |              |
| 14:00 ~ 14:50 | 第一回ポスター(関根研、桑原研、水谷研、高柳(和雄)研) |               |              |
| 15:00 ~ 15:50 | 第二回ポスター(江馬研、後藤研、伊藤研、清水研)     |               |              |
| 16:00 ~ 16:50 | 第三回ポスター(大槻研、田中研、高柳(俊暢)研、坂間研) |               |              |

## 口頭発表会プログラム

### 1月31日(月) 9 - 3 4 9 会場

10:00 開会の挨拶 学科長

#### 関根研(10:10 ~ 11:20)

|          |   |   |
|----------|---|---|
| A0174051 | GaN ナノコラム結晶の顕微ラマン散乱                             | 2 |
| A0174061 | GaN ナノコラム結晶の顕微ラマン散乱                             | 3 |
| A0174035 | GdMnO <sub>3</sub> のラマン散乱                       | 4 |
| A0174024 | NaV <sub>2</sub> O <sub>5</sub> の低温高圧下におけるラマン散乱 | 5 |
| A0174027 | 低温高圧下における帯磁率測定                                  | 6 |
| A0174062 | 超伝導体の混合状態における磁束の運動                              | 7 |
| A0174007 | 超伝導体の混合状態における磁束の運動                              | 8 |

#### 桑原研(11:20 ~ 12:00)

|          |                                    |    |
|----------|------------------------------------|----|
| A0074009 | 擬二次元層状 Mn 酸化物結晶のポンプ・プローブ測定         | 10 |
| A0174053 | 磁場中回転インサートによる物性測定                  | 11 |
| A0174046 | RMnO <sub>3</sub> 結晶の不純物置換効果       | 12 |
| A0174002 | RMnO <sub>3</sub> 結晶の化学圧力および外部圧力効果 | 13 |

**後藤研(13:30 ~ 14:40)**

|        |   |    |
|--------|---|----|
| 遠西 淳   | ランタン系高温超伝導体<br>La <sub>2-x</sub> Sr <sub>x</sub> Cu <sub>1-y</sub> Zn <sub>y</sub> O <sub>4</sub> (x ~ ¼)における磁気輸送特性 | 15 |
| 佐々木 智三 | 酸化物高温超伝導体 La <sub>2-x</sub> Sr <sub>x</sub> CuO <sub>4</sub> の<br>オーバードープ領域における超伝導状態                                | 16 |
| 荒木 恭介  | 電子ドープ系高温超伝導体 Sm <sub>2-x</sub> Ce <sub>x</sub> CuO <sub>4</sub> の Cu-NMR  | 17 |
| 知久 宏之  | 有機超伝導体κ-(BEDT-TTF) <sub>2</sub> Cu(NCS) <sub>2</sub> の<br>量子ゆらぎによる vortex 格子の融解                                     | 18 |
| 宮地 清志  | フラストレートした擬二次元三角格子反強磁性体<br>Cs <sub>2</sub> CuBr <sub>4</sub> の NMR   | 19 |
| 齊藤 健浩  | スピンギャップ磁性体 IPACuCl <sub>3</sub> の NMR   | 20 |
| 井上 紘亨  | 量子スピン磁性体 N(H,D) <sub>4</sub> CuCl <sub>3</sub> の Cu/D-NMR   | 21 |

**江馬研(14:40 ~ 15:50)**

|          |                                    |    |
|----------|------------------------------------|----|
| A0174015 | 光触媒機能を持つ<br>anatase 型二酸化チタン薄膜の光学特性 | 23 |
| A0174034 | ヘテロダイン検出法による四光波混合信号の測定             | 24 |
| A0174069 | Wavelet 変換を用いたコヒーレントフォノンの研究        | 25 |
| A0174049 | 無機有機量子井戸物質の励起子分光                   | 26 |
| A0174005 | 無機有機量子井戸物質の非線形光学応答                 | 27 |
| A0174019 | GaN/AlN 量子井戸のサブバンド間遷移の緩和過程         | 28 |
| A0174064 | GaN/AlN 量子井戸の<br>サブバンド間遷移の非線形光学効果  | 29 |

1月31日(月) 9 - 353会場

**水谷研(10:40 ~ 11:10)**

|          |  |    |
|----------|--|----|
| A0174068 | C 言語を用いた水素原子、<br>調和振動子、アンモニア分子の波動方程式の解 | 31 |
| A0174048 | クラスターの<br>クーロン爆発初期過程のシミュレーション          | 32 |
| A0174059 | TOF 装置内でのイオン運動の<br>分子動力学シミュレーション       | 33 |

**高柳(和雄)研(11:10 ~ 12:00)**

|          |                               |    |
|----------|-------------------------------|----|
| A0074006 | Heitler-London 法による水素分子の記述 I  | 35 |
| A0074030 | Heitler-London 法による水素分子の記述 II | 36 |
| A0174079 | 分子軌道法による水素分子の記述 I             | 37 |
| A0174045 | 分子軌道法による水素分子の記述 II            | 38 |
| A0174063 | Heitler-London 法と分子軌道法の比較     | 39 |

**伊藤研(13:30 ~ 14:40)**

|          |                             |                    |    |
|----------|-----------------------------|--------------------|----|
| A0174058 | 星の進化                        | Runge-Kutta 法による解法 | 41 |
| A0174060 | 星の進化                        | Relaxation 法による解法  | 42 |
| A0174008 | 遅い中性子捕獲反応による重元素合成           |                    | 43 |
|          | 太陽系組成比との比較                  |                    |    |
| A0174044 | 遅い中性子捕獲反応による重元素合成           |                    | 44 |
|          | Implicit 法と Laplace 変換による解法 |                    |    |
| A0174054 | 速い中性子捕獲反応による重元素合成           |                    | 45 |
|          | Implicit 法による解法             |                    |    |
| A0174014 | 速い中性子捕獲反応による重元素合成           |                    | 46 |
|          | 太陽系元素組成比の再現                 |                    |    |
| A0174018 | 速い中性子捕獲反応による重元素合成           |                    | 47 |
|          | 原子核質量モデルによる比較               |                    |    |

**清水研(14:40 ~ 15:50)**

|          |                        |  |    |
|----------|------------------------|--|----|
| A0174003 | ワインボトル型ポテンシャルの量子論的取り扱い |  | 49 |
| A0174066 | 相対論的模型による核物質の記述        |  | 50 |
| A0174023 | 相対論的模型による原子核の核構造       |  | 51 |
| A0174031 | EPR 対と観測問題             |  | 52 |
| A0174041 | カイラル対称性の自発的破れ          |  | 53 |
| A0174065 | SU(3)バリオンの磁気モーメント I    |  | 54 |
| A0174047 | SU(3)バリオンの磁気モーメント II   |  | 55 |

**2月1日(火) 9 - 349会場****大槻研(10:00 ~ 11:00)**

|          |                                 |  |    |
|----------|---------------------------------|--|----|
| A9974008 | 非一様磁場カオス系の数値的研究：古典計算            |  | 57 |
| A0174026 | 非一様磁場カオス系の数値的研究：波動関数            |  | 58 |
| A0174040 | 非一様磁場カオス系の数値的研究：<br>磁気抵抗のフラクタル性 |  | 59 |
| A0174032 | ランダムレジスタネットワークのスケーリング           |  | 60 |
| A0174016 | 磁性体中での電気伝導                      |  | 61 |
| A0174033 | 超伝導を記述する BdG 方程式の固有値の性質         |  | 62 |

**田中研(11:00 ~ 12:20)**

|          |   |  |    |
|----------|---|--|----|
| A0174036 | 低エネルギー電子衝撃による<br>C <sub>3</sub> F <sub>6</sub> の弾性散乱微分断面積 |  | 64 |
| A0174043 | C <sub>3</sub> F <sub>6</sub> の低エネルギー電子分光                 |  | 65 |
| A0174021 | COF <sub>2</sub> の低エネルギー電子分光                              |  | 66 |
| A0174017 | 低エネルギー電子衝撃による<br>H <sub>2</sub> O の電子励起過程の研究              |  | 67 |
| A0174057 | CH <sub>4</sub> 分子の電子衝撃による CH <sub>3</sub> ラジカル生成         |  | 68 |
| A0174070 | 低速 O <sup>5+</sup> -He 衝突における一電子および<br>二電子捕獲過程の研究         |  | 69 |
| A0174081 | 低速 N <sup>5+</sup> -He 電荷移行反応における<br>衝突エネルギー依存性           |  | 70 |
| A0174084 | ホワイトヘッドの哲学と物理学  |  | 71 |

## 2月1日(火) 9 - 353会場

### 高柳(俊暢)研(10:00 ~ 11:10)

|          |   |      |    |
|----------|---|------|----|
| A0174056 | 冷却型 8 重極線形イオントラップの開発  | 設計   | 73 |
| A0174082 | 冷却型 8 重極線形イオントラップの開発  | 性能評価 | 74 |
| A0174039 | レーザー冷却された $\text{Ca}^+$ イオンによる<br>クーロン結晶の観測                         |      | 75 |
| A0174011 | 表面電離法とレーザー誘起蛍光法による<br>金属原子ビームの強度と広がり角の診断                            |      | 76 |
| A0174076 | 電子衝撃による $\text{He } 2s^2 \ ^1S$ 二電子励起状態からの<br>自動電離スペクトル             |      | 77 |
| A0174010 | $\text{Li}^+$ イオン衝突による $\text{Ne}$ および $\text{Ar}$ からの<br>放出電子スペクトル |      | 78 |
| A0174083 | $\text{Li}^+$ イオン衝突による $\text{Ne}$ の二電子励起と PCI 効果                   |      | 79 |

### 坂間研(11:10 ~ 12:20)

|          |                                   |  |    |
|----------|-----------------------------------|--|----|
| A0174080 | 電気磁気効果を示す遷移金属酸化物薄膜の諸物性            |  | 81 |
| A0074054 | 基板の表面処理効果と遷移金属酸化物薄膜の物性            |  | 82 |
| A0174004 | 電子ドープ銅酸化物高温超伝導薄膜の<br>物性へのバッファ層の効果 |  | 83 |
| A0174042 | 遷移金属酸化物表面の SPM 観察                 |  | 84 |
| A0174028 | 酸化物表面への電極形成                       |  | 85 |
| A0174075 | 二酸化チタン薄膜の光触媒活性の<br>スパッタリング条件による変化 |  | 86 |
| A0174025 | Mo 表面からの電子回折                      |  | 87 |

## ポスター発表会

(13:30 ~ 14:00) ポスター発表会準備 (13:30 9号館ピロティ集合)

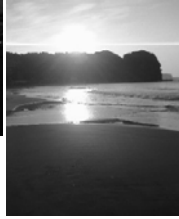
(14:00 ~ 16:50) ポスター発表会

| 時間            | 登壇者                 |
|---------------|---------------------|
| 14:00 ~ 14:50 | 関根研、桑原研、水谷研、高柳(和雄)研 |
| 15:00 ~ 15:50 | 江馬研、後藤研、伊藤研、清水研     |
| 16:00 ~ 16:50 | 大槻研、田中研、高柳(俊暢)研、坂間研 |

登壇者は自分のポスターの前で説明を行なうこと。  
登壇者でない学生も会場で説明を聞くこと。



# 低温物性研究室



## 指導教員

後藤貴行 助教授      鈴木栄男 助手

## 大学院生

上田 真徳      藤原 崇雄



## 卒業研究生

井上 紘亨      宮地 清志



齊藤 健浩      荒木 恭介      遠西 淳

佐々木 智三      知久 宏之



**研究背景** 酸化物超伝導体  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (LSCO)は、母物質である反強磁性絶縁体  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  の3価のLaを2価のSrで置換することにより、ホールをドーブしたものである。 $x=0.06$  付近から超伝導相が現れ、 $x=0.15$  で超伝導転移温度  $T_c$  が最大となる(最適ドーブ)。最適ドーブよりSr濃度の低いアンダードーブ領域の  $x=0.12$  近傍 (1/8 組成) において、特異的に超伝導が抑制される。さらにこの組成では超音波音速の増大や輸送現象の異常 (ホール係数の急激な減少) が観測され、低温において長周期の反強磁性的な長距離磁気秩序が出現することが知られている。そして、これらの物性異常を増大させる因子が存在し、それは、Laを同じ3価の希土類元素で置換して低温正方晶に構造相転移させること Cuを非磁性のZnで置換すること 磁場を印加すること の3つである。

一方、最適ドーブよりSr濃度の高いオーバードープ領域の  $x=0.22$  近傍 (1/4 組成) においてもわずかに超伝導の抑制が起こり、Zn置換によって  $T_c$  の低下が顕著になる。また、 $T_c$  の低下する組成がSr濃度の低い組成へシフトすることが報告されている [1]。そして、1/8 組成で明瞭に観測される音速に対する磁場効果が1/4 組成でも観測されることが見出されている。

本研究では、1/8 組成と1/4 組成の物性異常の関連性もしくは1/4 異常そのものの起源について知見を得ることを目的として、Zn置換試料  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Zn}_y\text{O}_4$  (LSCZO) における超音波音速に対する磁場効果とホール係数の温度依存性の測定を行った。

**実験方法** 試料は通常の固相反応法により作製した多結晶試料 ( $x=0.18 \sim 0.22 \cdot y=0.005$ ) を使用した。超音波音速は10 MHz帯の縦波を用いた位相比較法により測定を行い、ホール係数は磁場反転直流四端子法を用いて、12 T中で100 Kから温度を下げながら測定した。

**実験結果** LSCZOにおける電気抵抗測定により  $T_c$  の低下が  $x=0.195$  で観測された(図3に実線で示す)。また、LSCO ( $x=0.22$ )での  $T_c$  の低下はわずかなものであったが、LSCZO ( $x=0.195$ )では  $T_c$  の低下が顕著になった。これらの実験結果は過去の報告例 [1]と一致している。図1に0 T中と12 T中における音速の温度依存性を示す。LSCO ( $x=0.22$ )で観測された磁場による音速の増大はZnドーブした試料LSCZO ( $x=0.22$ )ではみられなくなっており、 $x=0.22$  における音速に対する磁場効果は、 $T_c$  が低下する組成のZn置換によるシフトに伴って消失したと考えられる。

図2に12 T中におけるホール係数  $R_H$  と電気抵抗率、電気抵抗率の温度微分  $d\rho/dT$  の温度依存性を示す。ホール係数は超伝導転移温度より十分に高い温度  $\sim 60$  K で減少し始めており、 $\sim 60$  K以下の低温域において、高温域とは異なる別の電子状態が出現していることが強く示唆される。そこで、電子状態が変化し始める温度を定量的に把握するために、およそ60 Kから100 Kの間でみられる直線的な温度変化からずれる温度  $T_{RH}$ 、超伝導転移に伴って電気抵抗率が急激に減少し始める温度  $T_c$  (12 T) を図2に示したように定義する。図3に  $T_{RH}$  と  $T_c$  (12 T) の組成依存性を示す。 $T_{RH}$  は  $T_c$  が低下する組成  $x=0.195$  で最大となっている。従って、 $T < T_{RH}$  で出現している電子状態は、1/8 組成の場合と同様に超伝導を抑制する性質を持つと考えられる。

[1] N. Kakinuma *et al.*, Phys.Rev. B **59**, 1491 (1999).

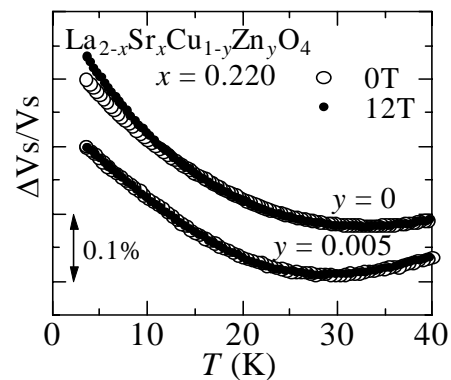


図1: 音速の温度依存性

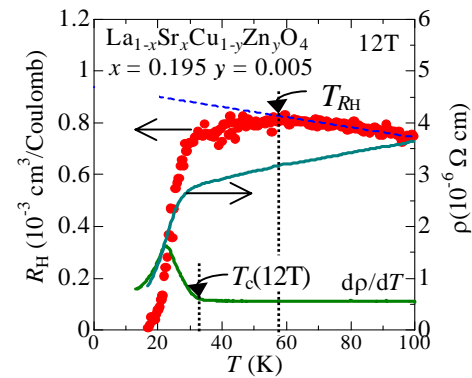


図2: ホール係数の温度依存性

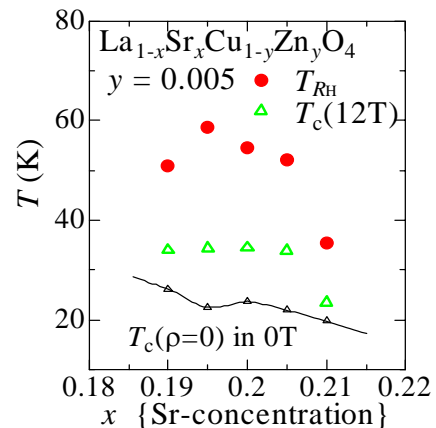


図3:  $T_{RH}$  と  $T_c$  の組成依存性

# 酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ のオーバードープ領域における超伝導状態

低温物性研究室 A0174000 佐々木 智三

【はじめに】酸化物高温超伝導体  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO)は、反強磁性絶縁体である  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  の3価のLaを2価のSrで置換することでキャリアとなるホールをドープしたものであり、超伝導になり電気伝導性を持つ $\text{CuO}_2$ 面と絶縁体であるLaOブロック層が交互に積み重なった2次元性の強い結晶構造を持つ。Sr濃度  $x = 0.06$  付近から超伝導相が現れ、 $x = 0.15$  (最適組成)までは  $x$  が増加するにつれて超伝導転移温度( $T_c$ )は上昇するが、それ以降  $T_c$  は低下し、 $x = 0.30$  付近では超伝導相が消失する。本研究では、磁束のピンニングポテンシャルと超伝導体積分率の測定から超伝導状態を調べることで、Sr濃度が高いオーバードープ領域では組成変化によってどのように超伝導相が消失しているのかを調べることを目的とする。

【実験】試料はTSFZ法により作製した単結晶のLSCO ( $x=0.21$ 、東北大学金属材料研究所の山田グループから提供)を用いて、温度範囲 24 ~ 42K、2 ~ 12Tの範囲の磁場を $\text{CuO}_2$ 面と平行にかけ、30mA ( $J_c$ : 臨界電流)の電流を $\text{CuO}_2$ 面に垂直に流し、電気抵抗測定を行った。

【結果】図1は各磁場における電気抵抗率の温度依存性である。縦軸(抵抗)は対数、横軸(温度)は逆数で示した。電流が流れていない場合、磁束が熱的励起によって Boltzmann 因子  $\exp(-U/k_B T)$  に比例した確率でピンニングポテンシャルの山を飛び越えるが、臨界電流に比べて非常に小さい電流である場合も近似的に同じように考えられる。そのような磁場・温度領域を Thermally Assisted Flux Flow(TAFF)領域といい、その領域で電気抵抗率は、

$$\rho_c(T) = \rho_{c0} \exp[-U(H, T)/k_B T] \quad (1)$$

$$U(H, T) = U(H, 0)(1 - T/T_c)^n \quad (2)$$

と表される(TAFFモデル)[1]。ピンニングポテンシャル  $U(H, 0)$ 、 $T = T_c$  での抵抗  $\rho_{c0}$ 、指数  $n$  をパラメータとして変化させてフィッティングした結果を図1の実線で表す。それによって得られたパラメータと、ピンニングポテンシャルの磁場依存性を図2に示す。指数  $n=3$  は、最適組成  $x = 0.15$  の場合の  $n = 1.5$ [2]と異なっている。一方、ピンニングポテンシャルは  $x = 0.15$  の場合[2]と比較して同程度の大きさで見積もられた。

電気抵抗測定では、電流と磁場に垂直な方向に磁束が試料全体を動くことから、ピンニングポテンシャルによるものだけでなく結晶欠陥や歪の影響を受けて、実際よりも大きなピンニングポテンシャルのように見積もってしまう。今後は超音波実験で磁束の弾性定数を測定し、TAFFモデルを用いた解析によって本質的なピンニングポテンシャルを見積もると同時に超伝導体積分率を求める予定である。

[1]M. Suzuki *et al.*, Phys. Rev. **B** 41,13 (1990).

[2]T. Hanaguri *et al.*, Phys. Rev. **B** 48,13 (1993).

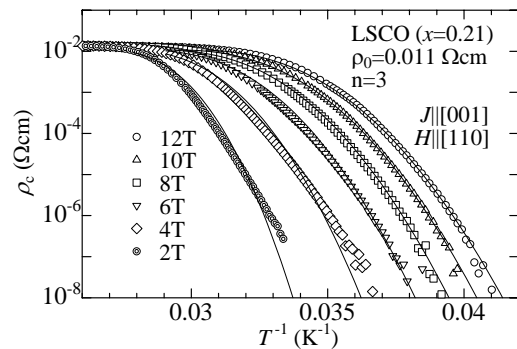


図1. 電気抵抗率の温度依存性

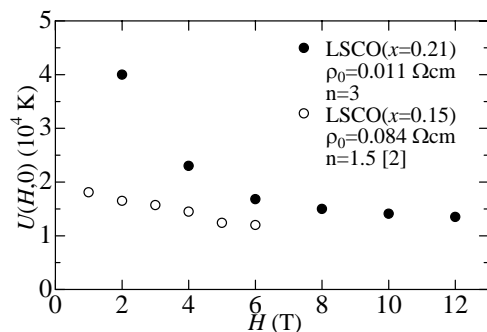


図2. ピンニングポテンシャルの磁場依存性



1. 実験目的

電子ドーピング系銅酸化物高温超伝導体  $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  は 2 次元  $\text{CuO}_2$  面を持ち、Cu-3d スピンが反強磁性を示す母物質  $\text{Sm}_2\text{CuO}_4$  の  $\text{Sm}^{3+}$  を  $\text{Ce}^{4+}$  で置換して電子をドーピングし還元処理したもので、Ce を少しずつ置換していくと  $x \approx 0.15$  付近で反強磁性相から超伝導相に量子相転移する。 $\text{Sm}^{3+}$  は 4f スピン(5 個)を持つため、本系は超伝導と磁性の両方の性質を示す事が特徴とされる。 $\text{Sm}_2\text{CuO}_4$  の 4f スピンは  $T_N=5.95\text{K}$  で反強磁性転移し、磁気モーメントの大きさが  $0.37 \mu_B$ (//c 軸)でスピン配列は a-b 平面内で強磁性的であると中性子散乱実験により報告されている[1]。これは他の電子ドーピング系超伝導体では見られない特殊な磁気構造である。同様に Ce をドーピングした超伝導相でも  $T_N=4.9\text{K}$  で磁気転移している可能性が磁化測定により報告されているが、磁気構造及び超伝導との関係についてはまだ詳しくわかっていない。

モーメントの大きさに比べて  $T_N$  が極めて高いため 4f スピン間の相互作用は交換相互作用が支配的であると予想されており、もし伝導電子を介した RKKY 相互作用が存在しているとすれば、近藤効果と磁気転移が競合する新しい電子状態が生まれる可能性があり、興味もたれている。本研究では  $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  における 4f 電子の磁性及び超伝導との関係を知る事を目的として Cu-NMR を用い実験を行った。

表 1: 試料作成焼成パターン

2. 実験方法

固相反応法を用いて多結晶試料  $\text{Sm}_{1.84}\text{Ce}_{0.16}\text{CuO}_4$  ( $T_C=15.3\text{K}$ ) を作製した。表 1 より、融点直下の温度で焼成し、さらに十分高温で還元処理を行うことが超伝導を発現するために必要であることがわかった。

$T_C$  は直流 4 端子法を用い電気抵抗測定を行うことで決定した。Cu-NMR はスピンエコー法により 2K ~ 40K の範囲で磁場掃引スペクトルを測定した。

|                                |   |
|--------------------------------|---|
| パターン<br>( $T_C=15.3\text{K}$ ) | 仮焼 950 12h  |
|                                | 本焼 1170 12h × 5<br>1250 12h<br>950 90h Ar-anneal<br>クエンチ約 36 分で常温 |
| パターン<br>非超伝導                   | 仮焼 950 12h<br>本焼 1150 12h × 2<br>850 40h Ar-anneal                |

3. 実験結果及び考察

電気抵抗測定より  $T_C=15.3\text{K}$  と求められた ( $T=12\text{K}$  で抵抗ゼロ)。また NMR 測定の結果、四重極分裂の見られないシャープなピークが見られた(図 1)。電子ドーピング系では Cu に対する周囲のイオン配置から生じた電場勾配とドーピングされた伝導電子からの寄与が打ち消しあうことが理論的に示されていることから、この結果は本試料が確かに電子ドーピングされた超伝導体であることを示している。

図 1 より  $T < 6\text{K}$  で Cu スペクトルのピークのすその部分に盛り上がりが見られた。この盛り上がりは Sm の磁気転移によるものと考えられる。これは磁化測定の結果 ( $T_N=4.9\text{K}$ ) [2] とも一致する。また低温でもシャープなスペクトルが残っているのは  $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  において最近接に Ce 原子がドーピングされていない Cu サイト (~51%) では Sm が Cu に対して対称的に配置されているので最近接の Sm の 4f スピン同士が打ち消し合い Cu は Sm からの磁場の寄与を受けないためである。逆に最近接に Ce 原子 1 つだけドーピングされている Cu サイト (~36%) では幾何学的なキャンセルが起らず内部磁場の変化が生じると考えられる。また  $T > T_N$  ではマクロ磁化が大きな温度依存性を示す [2] のに対し、Cu スペクトルのナイトシフトには温度依存性がみられない(図 2)。これは高温でも強い反強磁性的な近距離相関が残っているためであると考えられる。

参考文献:[1] Sumarlin et al.: Phys. Rev, 68, 2228-2231  
[2] Dalichaouch et al.: Phys. Rev, 68, 599-602

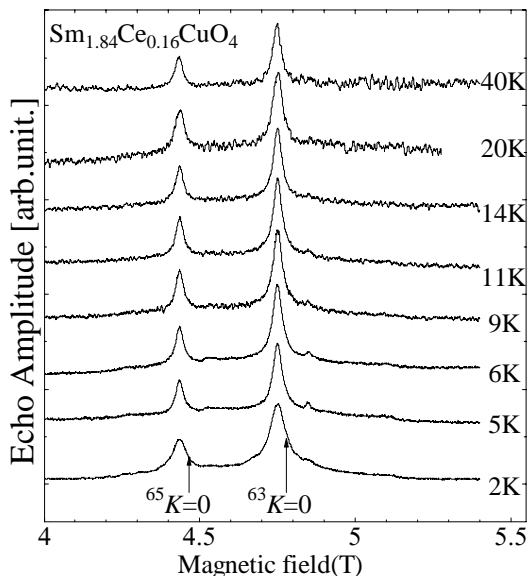


図1: Cu-NMRの磁場掃引スペクトル

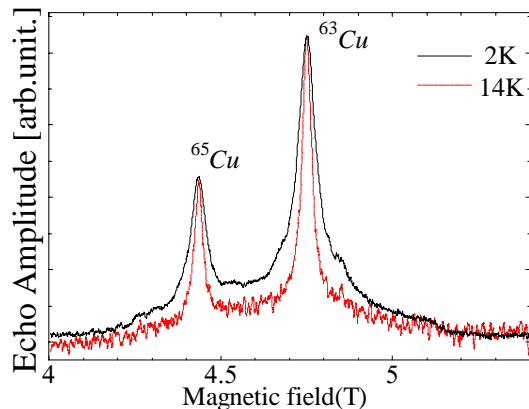


図2: Cuスペクトルの温度依存性

有機超伝導体 $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu(NCS) $_2$ はBEDT-TTFドナー分子からなる電子性の二次元伝導層と、陰イオンによる絶縁層とが交互に積層した結晶構造となっている。10.4Kの超伝導転移温度は酸化物超伝導体と比べ桁小さいが、擬二次元的な電子構造や広い磁束液体領域の存在など、酸化物超伝導体と酷似した特徴的な磁束状態を持つ系である。この系では約4T~7Tの高磁場域において、約1K以下の低温においても抵抗のない磁束固体状態とならず、大きな量子ゆらぎにより、有限低抵抗状態の量子磁束スラッシュ状態であると報告されている[1]。また、高温域における熱ゆらぎによる磁束液体状態から量子スラッシュ状態へはクロスオーバーではなく相転移的に変化することが報告されている[1]。この系は非常に純良であり、二次元性が極めて強いことから磁束状態の研究にすぐれている。本研究の目的は磁束液体状態から量子磁束スラッシュ状態への転移によってどのような変化が現れるのかをH-NMRによって観測することである。

実験は東北大学金属材料研究所の小林研究室より提供された、電気化学的酸化還元法により育成された単結晶試料を用いた。同研究所の15T超伝導マグネットと上智大後藤研6T超伝導マグネットを用いてH-NMRスペクトル測定とスピン格子緩和率( $T_1^{-1}$ )測定を行った。

図1は低磁場域( $H_0=1.011$ T)におけるスピン格子緩和率の温度依存性である。2.1K付近において臨界発散が見られる。これはこれまでに報告されている磁束液体-固体転移温度(約2.1K)と一致している[1]。臨界発散していることから二次相転移的であると考えられる。

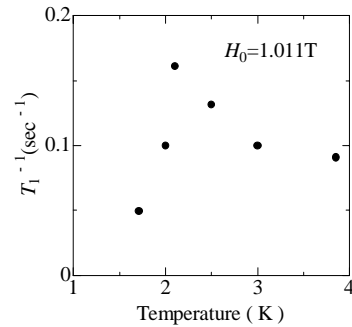


図1 スピン格子緩和率

図2は高磁場域( $H_0=5.035$ T, 4.579T)のスピン格子緩和曲線の初期勾配の曲率と関数  $I(\tau) = I_0(1 - \exp(-\tau/T_1))$  の曲率が一致するように  $\beta$  の値を決め、 $\beta$  の温度依存性を示したものである。高温域では一定値であるが約1.3K以下で急激に増大している。これは磁束液体状態からスラッシュ状態への転移を反映しているのではないかと考えられる。

図3はH-NMRスペクトルの温度依存性である。内部磁場の異なる2つのピークが観測された。低温になるほど低磁場側の成分( $S_a$ )が高磁場側の成分( $S_b$ )と比較して大きく現れる。1.1Kのスペクトルに示したように2つのガウス関数を用いてスペクトルを再現し、各温度での成分比を求めた。これを測定間隔を変えたスペクトルについても行うことにより、緩和率と成分比の温度依存性を評価した。その結果、1つの可能性として、2つのピークは磁束の固体相と液体相によるもので、低温ほど固体成分( $S_a$ )が増え、液体成分( $S_b$ )が減っていくとするモデルで説明できる。しかし、成分比が温度によらず一定の可能性もあり、さらなる実験と検討が必要である。また0.6Kにおいてスペクトルの形が高温域と異なって単一ピークになっており、これがスラッシュ状態への転移を反映しているのではないかと考えられる。

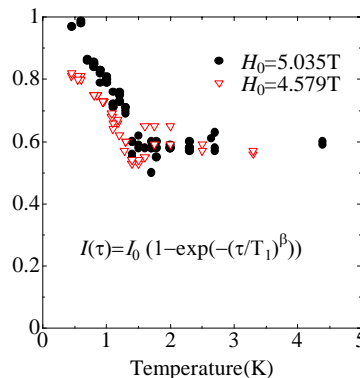


図2  $\beta$  値の温度依存性

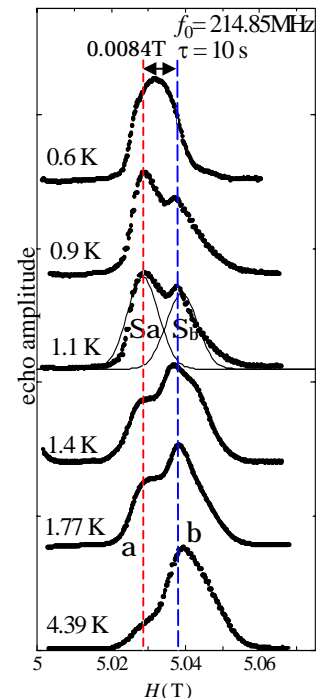


図3 H-NMR スペクトル

[1] T. Sasaki *et al.*, Phys.Rev. B **66**, 224513 (2002).

# フラストレートした擬二次元三角格子反強磁性体 Cs<sub>2</sub>CuBr<sub>4</sub> の NMR

低温物性研究室 A0174000 宮地 清志

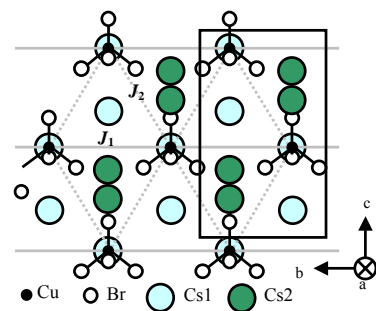
**(はじめに)** 擬二次元三角格子反強磁性体 Cs<sub>2</sub>CuBr<sub>4</sub> は、bc 面内に Cu が歪んだ三角格子 ( $J_1/J_2=0.467$ ) を形成している。フラストレーションのため  $T_N$  は極めて低く(ゼロ磁場で  $T_N=1.4\text{K}$  において秩序化)、スピン秩序の周期が結晶の格子定数と異なる(不整合)など特異な性質を示す(図1)。また結晶構造は斜方晶(空間群 Pnma)で Cu 原子の近傍には Br<sup>-</sup> が四面体的に配置されており、ユニットセル内には結晶学的に異なる二つの Cs-site が存在している。強磁場中においては飽和磁化の 1/3 に磁化プラトーが存在し、プラトー範囲内ではスピン構造が整合に、範囲外では不整合になることがわかっている。本物質の二つの Cs-site の同定を Cs-NMR により行う事、及び 3d-スピンの静的及び動的性質を調べるためオンサイトの Cu-NMR の信号探索を目的とし実験を行った。

**(実験)** CuBr<sub>2</sub>とCsBrの2:1の飽和水溶液から蒸発法(室温、一週間程度)により単結晶を作製した。粉末X線回折で不純物が含まれない事を確認し、単結晶ディフラクトより結晶軸を決定した。NMR測定は試料のab面を磁場と平行になるようにセットし、Cs核のシフト及びスピン緩和時間 $T_2$ の、ab面内での磁場方位依存性を、磁場 $H \approx 6\text{T}$ 、温度 $T = 4 \sim 20\text{K}$ の範囲で測定した。

**(結果)** Cs-NMRの磁場掃引スペクトルでは、シフトの異なるCsの2つの信号ピーク(A,B-site)が確認された。Cs核( $I=7/2$ )の四重極分裂は非常に小さく( $\nu_Q \sim 0.02\text{MHz}$ )、それぞれのピーク内に内包されている。図2は、磁場印加方向を変えて横緩和曲線を測定した結果である。単純な指数関数ではなく、スピンエコー振動がはっきりと表れている。このエコー振幅のパルス間隔依存性を、関数  $I(2\tau) = A \exp(-2\tau/T_2) \times \{\sin(2\pi\Omega + \phi) \times \exp(-2\tau/\tau_0) + \varepsilon\}$  でフィッティングを行い、ビートの周波数 $\Omega$ の値を求めるとほぼ  $\nu_Q$ と一致し、この振動はCs核( $I=7/2$ )の四重極分裂によるものだとわかった。 $\Omega, T_2^{-1}$ 及びナイトシフト  $H$ の角度依存性を図3に示す。 $\Omega$ の角度依存性が四重極相互作用の角度依存性  $\frac{1}{3}\nu_Q|1-3\cos\theta|$  でフィッティング出来た。角度  $\theta$ の原点よりCs-siteにおける電場勾配の主軸方向が決められる。これを点電荷近似によって求めた計算結果と照らし合わせることでCs-siteの同定を行った。また磁気的な物理量である $T_2^{-1}$ とナイトシフト  $H$ も、 $\Omega$ と同様の角度依存性を持つことがわかる。

Cu-NMRに関しては、磁場掃引及び回転スペクトル測定で( $T=4.2 \sim 20\text{K}$ ) Cuの信号は検出出来なかった(Csの信号強度の1/1000未満)。緩和率の測定結果 $T_2^{\text{Cs}} \approx 30\mu\text{s}$ 、 $A^{\text{Cs}} \approx 1.2\text{T}/\mu\text{B}$ を用いて、 $A^{\text{Cu}} \approx 10\text{T}/\mu\text{B}$ と仮定すると $T_2^{\text{Cu}} \approx 0.4\mu\text{s}$ と評価できる。通常、NMRの測定では $\tau \approx 10\mu\text{s}$ 程度が最小なので確かに検出限界を超えている事がわかる。

図1 Cs<sub>2</sub>CuBr<sub>4</sub>の結晶構造



参考文献 Fujii, et al. Physica B 346-347(2004)45-49

図2 Cs 2-siteの横緩和曲線

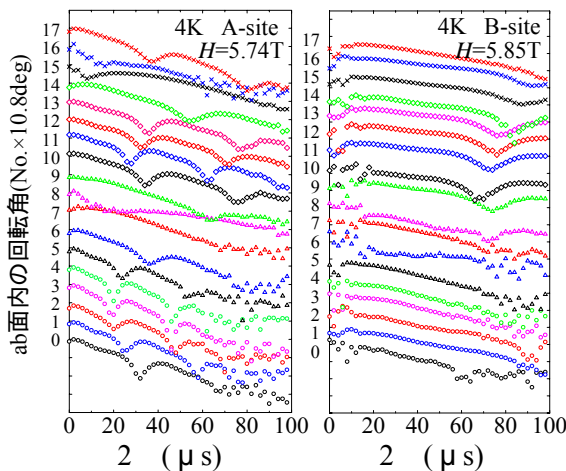
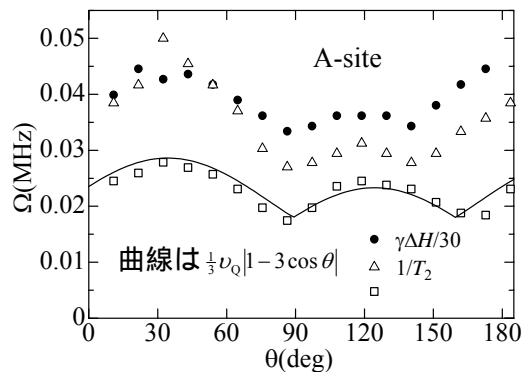


図3 ナイトシフト、横緩和時間の $T_2^{-1}$ の依存性





# スピンギャップ磁性体 $\text{IPaCuCl}_3$ の NMR

低温物性研究室 A0174000 齊藤 健浩

$\text{IPaCuCl}_3$  は  $S=1/2$  強磁性-反強磁性交替鎖系 (F-AF系) の物質である。この系は2つの Cu の  $3d$  スピン ( $S=1/2$ ) がダイマライズし、低温で  $S=1$  のスピンとして振る舞うため、Haldane ギャップを観測できることから注目されている。実際、磁化曲線の測定から零磁場でギャップを有し、臨界磁場  $H_c=10.1\pm 0.2\text{T}$ 、飽和磁場  $H_{\text{sat}}\approx 40\text{T}$  であることが報告され[1]、 $H > H_c$  で磁場誘起磁気秩序が存在することが比熱測定によって確認されている[2]。Hida は F-AF 系の Haldane limit ( $J_F \rightarrow \infty$ ) と dimer limit ( $J_F=0$ ) の間では量子相転移は起きないと理論的に証明している[3]。このため、マグノンのボースアインシュタイン凝縮が起こることが知られている  $\text{TiCuCl}_3$  等のスピンダイマー系とこの系との関連について興味がある。そこで、本研究では  $\text{IPaCuCl}_3$  の磁場誘起磁気転移を調べるために、マクロな磁化測定と共に、常磁性状態から秩序状態までの広い磁場範囲における Cu-NMR 測定を行った。

$\text{IPaCuCl}_3$  の単結晶は蒸発法によって作製した。生成した単結晶試料の外形は直方体であり、その直交する3つの表面をそれぞれ A, B, C 面と定義する。各面と結晶軸は数度程度異なる。実験は東北大学極低温科学センターの 7T-SQUID 磁束計を用い、A面垂直方向に磁場印加し磁化温度依存性の測定を行った。そして東北大学金属材料研究所の 20T 超伝導マグネットを用い、スピンエコー法による NMR 測定を行った。

図 1 は各磁場における磁化の温度依存性をプロットした物である。この結果に Troyer の理論式をフィットすることで決定したエネルギーギャップをプロットしたものが図 2 である。 $\text{TiCuCl}_3$  などのスピンダイマー系では、ゼーマン効果によって縮退の解けた第一励起トリプレットと基底シングレットとの間のエネルギーギャップが磁場の増加と共に  $H_c$  に向かって1次関数的に減少することが知られている。そこで、 $\text{IPaCuCl}_3$  においても同じ振る舞いをするのではと考えた。しかし、図 2 の結果からは直線的に減少するのではなく、 $H_c$  付近で急激にギャップが減少することがわかる

図 3 は共鳴周波数  $\omega=132.3\text{MHz}$ 、 $T=4.2\text{K}$ 、磁場掃引 7~16T での磁場掃引スペクトルである Cu 核スピン ( $I=3/2$ ) の低磁場側の satellite ( $I_z=3/2 \leftrightarrow 1/2$ ) のピークは、電気四重極相互作用 ( ${}^{63}\nu_Q=42\text{MHz}$ ) による効果のみの数値解析とフィットする。しかし、center ( $I_z=1/2 \leftrightarrow -1/2$ ) と高磁場側の satellite ( $I_z=-3/2 \leftrightarrow -1/2$ ) の Cu 核の信号は検出できなかった (11T 付近の2つのシャープなピークは測定プローブの Cu-Metal の信号である)。磁場誘起磁気秩序による内部磁場の増大によって center と高磁場側の satellite のスペクトルが wipe out したため、スペクトルが検出できなかったと考えられる。

## 参考文献

- [1] H.Manaka *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 69, 675 (2000).
- [2] H.Manaka *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 67, 3913 (1998).
- [3] K.Hida, Phys. Rev. B 45, 2207 (1992).

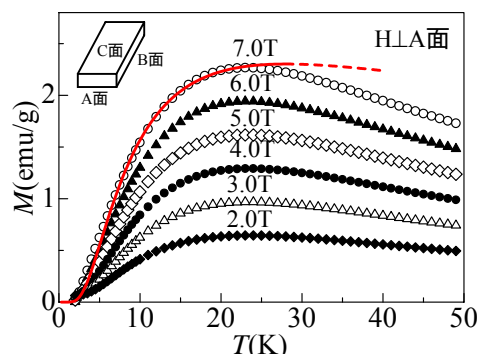


図 1 各磁場における磁化曲線。曲線は低温での  $\Delta$  における理論曲線。

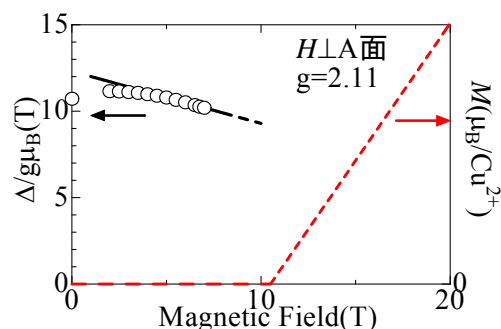


図 2 エネルギーギャップ  $\Delta$  の磁場依存性。破線は磁化曲線[1]。

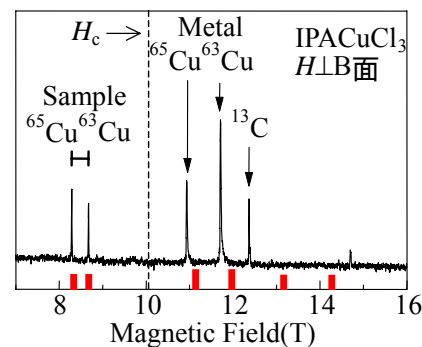


図 3 NMRスペクトル 縦棒はCu信号の数値解析結果

# 量子スピン磁性体 $N(H,D)_4CuCl_3$ の Cu/D-NMR

低温物性研究室 A0174000 井上紘亨

[はじめに] $NH_4CuCl_3$  が属する低次元量子スピン系の特徴は量子揺らぎが大きいこと、低温で磁気転移にくい、磁気異方性が小さい、スピンの小さいことである。 $NH_4CuCl_3$  は単斜晶系(空間群  $P2_1/c$ )であり  $Cu^{2+}$  イオンが二重鎖をなし、反強磁性ダイマーを形成して鎖同士で弱く結合した三次元スピンダイマー系といえる。同じ結晶構造である  $KCuCl_3$ ,  $TlCuCl_3$  は基底状態がシングレットでギャップがあり転移磁場以上でトリプレットが誘起されギャップレスとなる。また磁場誘起トリプレットをボース粒子とみなすことができ、低温においてボース・アインシュタイン凝縮(BEC)が起こる。それに対し  $NH_4CuCl_3$  は基底状態においてギャップレスとなっていて飽和磁化の 1/4, 3/4 において二段の磁化プラトーが存在し、プラトー外において低温で BEC が起こる事がわかっている。このように全く磁気的性質が異なる  $NH_4CuCl_3$  についてはプラトーの発生原因、スピン状態が詳しくはわかっていない。そこで本研究ではプラトー内外でのスピンのミクロな構造を調べるため Cu/D-NMR スペクトル測定を行った。

[実験方法]単結晶試料  $NH_4CuCl_3$ ,  $ND_4CuCl_3$  は蒸発法により作製した(後者は東工大の田中研から提供)。実験は 6T 超伝導マグネットを用いてスピンエコー法による Cu/D-NMR スペクトルの角度依存性と温度依存性をプラトー内外の磁場域において測定した。

[結果と考察]Fig.1 は第一プラトー(5.4 ~ 14.0T)とそれ以下の磁場範囲で結晶の  $b$  軸を回転軸として  $a-c$  面内で磁場を回転させられた Cu-NMR 信号のピーク位置をプロットしたものである。曲線は電気四重極相互作用のみ( $K=0$ )を考慮し数値解析を行った結果であるので Cu-NMR ではシングレットサイトのみを観測していると思われる。トリプレットサイトはオンサイトの  $3d$  スピンのゆらぎが大きく観測できなかったと考えられる。また室温での結晶構造から点電荷近似によって計算した電場勾配テンソルの最大主軸方向は  $c$  軸との角度が  $74^\circ$  程度なのに対し低温での実験結果である Fig.1 では  $52^\circ$  としてフィットしていることから大きな局所ひずみを伴った構造相転移が起きていることを示している。

Fig.2, Fig.3 は D-NMR スペクトルの温度依存性を第一プラトーの磁場範囲において測定したものである。温度依存性の異なる三つのサイト  $A_i$ ,  $B_i$ ,  $C_i$  が観測される。 $A_i$ ,  $C_i$  は温度依存性が大きいのでトリプレットサイトに隣接した  $ND_4^+$  からの信号であると思われる。逆にほとんど温度依存していない  $B_i$  ( $^2K=0$ ) はシングレットサイトに囲まれている  $ND_4^+$  からの信号と考えられる。このように磁気的に非等価なダイマーサイトの存在が常磁性状態において確認できた。またスペクトル分裂に表れたこれらの非等価ダイマーサイト(磁場誘起トリプレット)は局在している事がわかる。さらに Fig.3 から A サイトのスペクトル中に細かい四重極分裂が 20 数本存在する事がわかる。これは静止したアンモニウムイオンの頂点の向きが連続的な分布ではなく離散かつ有限個であることを示している。以上の結果から  $NH_4$  分子の向きが常磁性状態における非等価ダイマーサイトの形成と密接に関わっていると考えられる。

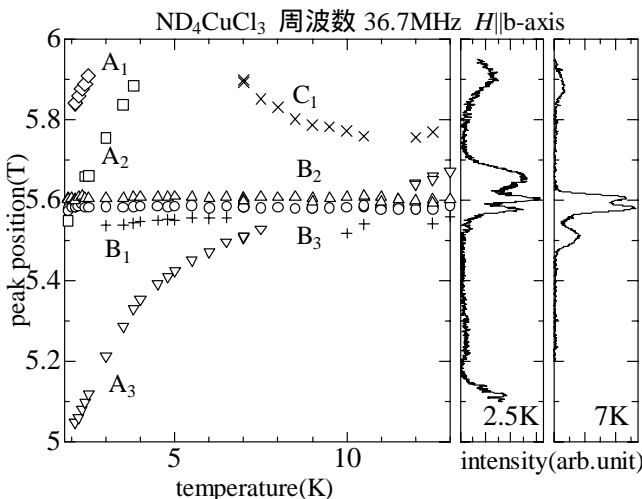


Fig.2 D-NMR スペクトルの温度依存性

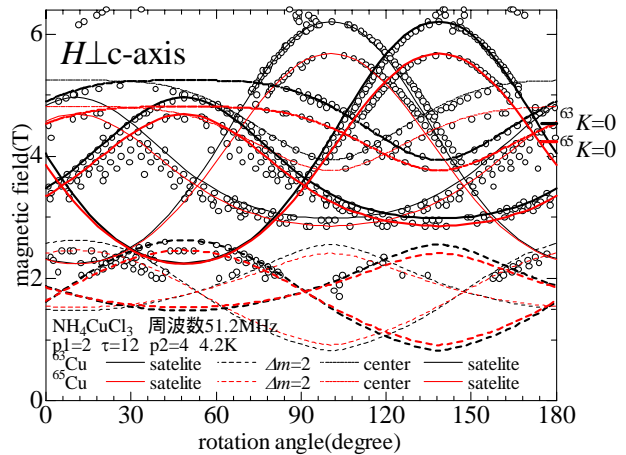


Fig.1 共鳴磁場の角度依存性

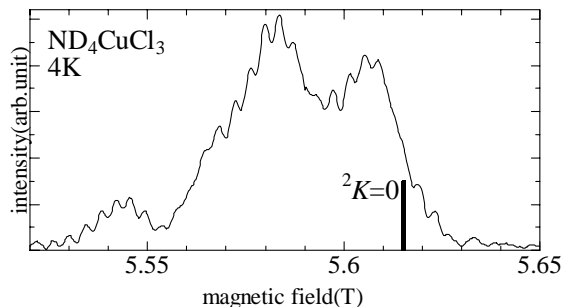


Fig.3 D-NMR スペクトルの拡大図