



Title	スピノン・ペア系の磁気冷却と相転移
Author(s)	山下, 直彦
Citation	大阪大学, 1975, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/77">https://hdl.handle.net/11094/77</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏名・(本籍)	山下直彦
学位の種類	工学博士
学位記番号	第 3379 号
学位授与の日付	昭和 50 年 3 月 25 日
学位授与の要件	基礎工学研究科物理系 学位規則第 5 条第 1 項該当
学位論文題目	スピン・ペア系の磁気冷却と相転移
論文審査委員	(主査) 教授 長谷田泰一郎 (副査) 教授 伊藤 順吉 教授 中村 伝 助教授 松浦 基浩

### 論文内容の要旨

一重項状態を基底にもつ、スピン・ペア系  $\text{CeCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  及び  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.5\text{H}_2\text{O}$  について、その磁気冷却と相転移とを研究した。

本論文第 1 部において、 $\text{CeCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  の静磁場を用いた試料自体の断熱消磁の成果を報告する。立木等はスピン・ペア系における磁場中相転移を理論的に研究し、先きになされた長谷田等の  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.5\text{H}_2\text{O}$  の断熱磁化冷却の実験結果を説明すると同時に、より一般的なペア間相互作用の場合をも調べた。

$\text{CeCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  は  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.5\text{H}_2\text{O}$  と同様に、スピン・ペア系として知られている稀な例で、反強磁性的ペア間相互作用のもとに、相転移の起こることの知られている  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.5\text{H}_2\text{O}$  との比較の意味からも、磁場中秩序状態の出現の今一つの例、望むらくは、強磁性的ペア間相互作用の例を得ることを期待して、この塩での研究をはじめた。

初期条件  $\text{H}_i = 48\text{ kOe}$ ,  $T_i = 1.2\text{K}$  からの断熱消磁の冷却曲線はエネルギー準位の交差する磁場  $4.7\text{ kOe}$  近くで  $68\text{ mK}$  の最低温度を持った。又、交差磁場における帶磁率は強磁性的 Curie-Weiss 温度  $68\text{ mK}$  を持つ Curie-Weiss 則で表わされ、この相互作用は零磁場に於ける帶磁率の温度依存性をよく説明することが判った。又、 $72\text{ mK}$  以下の温度では交差磁場の近くで、磁気冷却曲線の底は平らかになり、このことより臨界温度  $72\text{ mK}$  以下の温度、交差磁場近傍で磁気相転移の出現することが結論された。低温での交流帶磁率の磁場依存性は、その最大値をとる磁場が  $50\text{ Oe}$  程度減少することを除くと、高温での依存性と非常によく似ており、これを磁気冷却曲線と比較すると冷却曲線のおれのところで帶磁率に何ら異常が見い出されなかった。

又、スピニ・ペアの4つのエネルギー準位を考慮した分子場理論に基づき、相境界、等エントロピー曲線、又冷却過程の断熱帶磁率等を調べ実験結果と比較した。

本論文第2部において、その熱平衡状態における、磁気冷却及び相転移の性格がよく知られている  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2.5\text{H}_2\text{O}$  のパルス断熱磁化により、顕著な冷却とスピニ秩序とが見い出された事につき述べる。

通常の磁気冷却は静的磁場を用いて行われ、磁場は冷却塩と非冷却物質の熱平衡が充分に成り立つ程度に緩く消磁されて来た。しかし、断熱化冷却の実験には、パルス磁場を用いることも可能であると考え、その検証を行った。

パルス断熱磁化過程の帶磁率測定を行った。初期強度度  $T_0 \geq 2.0\text{k}$  より、断熱磁化を行うと、スピニ系はほぼ対称的な微分磁化信号  $\frac{\sigma M}{\sigma t}$  を持つ、 $1.5\text{K}$  より低い場合には、 $34\text{ kOe}$  近くで非対称的な双峰構造を持つことが判った。この現象は断熱磁化冷却の結果生じる短距離秩序と関連があり、一次元 X-Y 模型を用い、断熱磁化過程の断熱磁化率を計算すると、実験的に観測された非対称性を除き、実験結果をよく説明することが判った。この非対称性については、スピニ・ペアの4つのエネルギー準位を考慮した分子場理論に基づいた計算を行い、比較するとよく説明されることが判った。以上の如き議論から、パルス断熱磁化法の正当性が確かめられた。

パルス断熱磁化法はいくつかの観点から、非常に有効な方法と考えられる。第一に、通常の静磁場では不可能であると考えられる大きな初期分裂をもつた物質での研究が可能になる点で、又、パルス磁場の周期がスピニ格子及至は格子一熱浴緩和時間より充分短いときには試料を直接液体ヘリウムに浸入した、状態で実験を行ってさえも断熱条件が満たされるので、外部から熱流入に悩まされないという利点がある。

### 論文の審査結果の要旨

一重項を基底状態に持つスピニ対系を磁場下におくと、励起三重項の一準位が基底項と交叉するに至る。この過程を断熱的に行うと、温度冷却を発生し、更に対間相互作用による磁気規則配列が実現する。対間相互作用が強磁性的である場合が、特に興味が持たれている。

本論文では、オ1部において  $\text{CeCl}_3 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  単結晶について、この方法によって外磁場5000ガウスの下で最低70mKの低温を実現し、且つ、対間強磁性の最初の実験例を与えた。又、従来無視されてきた上位二準位も考慮した解析を示している。又オ2部においては、上の断熱過程をパルス磁場中で行い、スピニ系内だけでの冷却と更には規則配列の実現を実験的にはじめて検証し、今後の新しい研究分野を拓いたものであって、学位の授与に値すると認められる。