

平成21年 5月 18日現在

研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2006～2008
 課題番号：18740196
 研究課題名（和文） 光ファイバ変位計を用いた量子磁性体の磁場誘起構造相転移の研究
 研究課題名（英文） Study of field-induced structural phase transitions of quantum magnets by a optical fiber dilatometer
 研究代表者
 鳴海康雄（NARUMI YASUO）
 東北大学・金属材料研究所・准教授
 研究者番号：50360615

研究成果の概要：磁場によって誘起される量子磁性体の構造変化を非接触かつ高感度で検出するために、光ファイバ変位計を用いた磁場中歪み測定装置を開発した。これに加えて、歪みゲージ法や放射光X線回折の手法を組み合わせ、マルチフェロ物質として知らせる CuFeO_2 や 2次元反強磁性体 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ など、様々な磁性体に関する磁場中の格子定数を詳細に測定し、磁気相互作用と格子定数の磁場依存性に関して、その相関関係を明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	2,400,000	0	2,400,000
2007年度	500,000	0	500,000
2008年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	180,000	3,680,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：強磁場、構造相転移、磁歪、光ファイバ、X線

1. 研究開始当初の背景

磁性体を研究する上で、磁性を担うスピンは結晶中の原子を格子点として固定されたものとして考える事が一般であるが、ソフトな磁性体や磁気的なエネルギースケールが大きくなった場合には、格子点の変位に伴う弾性エネルギーと磁気的なエネルギーをバランスさせた上で磁気的な性質が決定される。また、フラストレーション磁性体と呼ばれる物質群では、結晶構造の幾何学的な対称性が磁気的な性質を決定する上で重要な働きをすることが知られている。このように、磁性体の研究を行う上で結晶構造変化とい

う観点から調べる事は重要である。

物質の構造変化を検出する方法には、X線や中性子線など量子ビームと言われる光源を用いたマイクロな回折測定による方法と、歪みゲージなどを用いたマクロな歪み測定が存在する。回折測定は基本的に試料に対して非接触の実験であり、単純な構造の変位だけでなく対称性に関わる情報を得ることが可能である。一方の歪み測定の手法では得られる情報はマクロな変位量だけであるが、回折測定に比べると一般に2桁程度の高感度な測定が期待できる。実際には、それぞれの特徴を生かして両手法を相補的に使うことに

より、効率的な研究の進展が期待される。歪み測定的手法においては、最も簡便で広く普及している歪みゲージ法は、試料に直接測定ゲージを接着する必要がある、接着剤による変性が危惧される場合や、サイズの問題などで適応可能な試料の条件に多くの制限が課されていた。

2. 研究の目的

本研究では、物質の歪み変化を非接触で検出することが可能な光ファイバ変位計を用いて、磁場によって誘起される磁性体の構造変化を高感度に測定できる測定装置を開発し、放射光X線を用いた回折測定的手法と組み合わせた相補的な実験を行うことにより、物質の示す強磁場中での磁性の変化と構造との相関関係について明らかにすることを目的とする。具体的には磁気的な秩序状態と強誘電性が共存しているマルチフェロ物質や、磁場中で磁化がある特定の値で一定となる磁化プラトーを示す量子磁性体に関して、その結晶構造変化を測定して、現象発現の機構を考える。

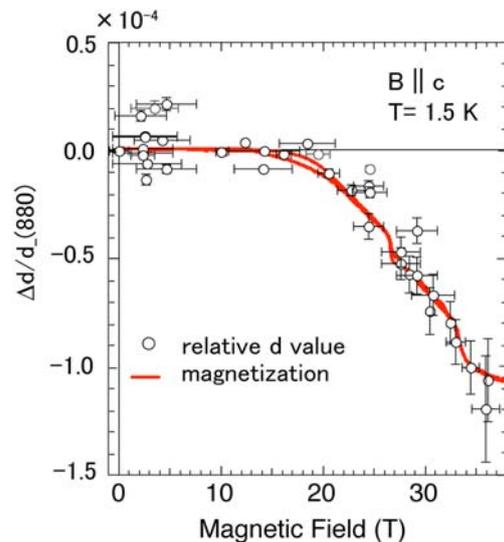
3. 研究の方法

(株)ナノテック社の光ファイバ変位計をベースに、低温強磁場中で使用できるようなプローブを作成する。具体的にはヘリウム温度での使用が可能になるように光ファイバの隙間をエポキシ樹脂で充填し真空シールを施した光ファイババンドルを作成する。また試料と光源先端部と位置を精密に調整出来るように、PEEK材を用いたネジ式の試料ステージを作成し、上記にファイバプローブと組み合わせる。これをカンタムデザイン社のPPMS超伝導マグネットに組み込んで定常磁場中での実験を、また硝子デューワー製クライオスタットと通常のソレノイド型パルスマグネットを用いてパルス磁場中歪み測定実験を行った。こちらはDC電圧に変換された試料から反射された光強度をデジタルメモリで2マイクロ秒毎に計測し時間分割測定を行った。また、これと独立にSPring-8の放射光X線とパルス強磁場を組み合わせた磁場中X線回折測定を実施した。こちらはスプリット型パルスマグネットで磁場発生を行い、磁場に垂直な面内での構造変化を時分割測定が可能な2次元検出器を用いて詳細に調べた。

4. 研究成果

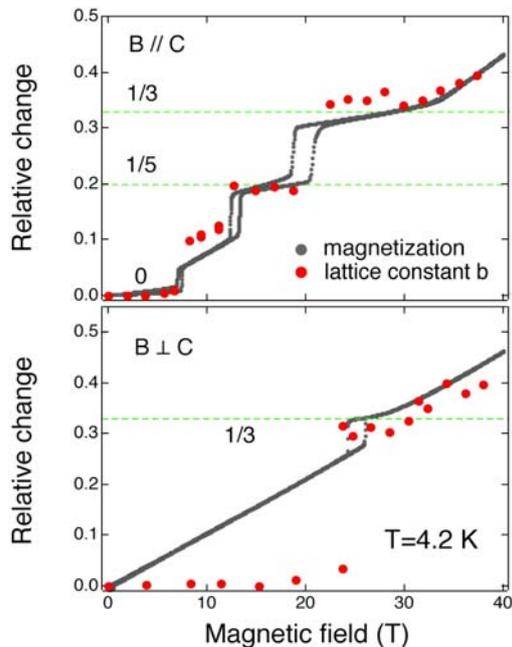
(1) 強磁場中で多段の磁化プラトーを示すことから興味が持たれ数多くの研究が行われている2次元量子磁性体 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ に関して、放射光X線とパルス強磁場を組み合わせた磁場中X線回折実験を行って、磁場誘起磁気相における格子定数の磁場依存性の測定

を行った。単結晶試料のc軸に磁場を印加し、垂直方向となるa軸を含む面内を散乱面とした配置で回折実験を行い、その結果磁化の発達に伴って直交ダイマー面内の格子定数aが減少することがわかった。またその振る舞いは磁化過程の変化と線形関係でスケールすることが明らかとなった。本物質の磁性は主にダイマーユニット内のCu-O-Cu超交換相互作用が担っていると考えられる。超交換相互作用においては酸素原子を介した結合角において相互作用の大きさに依存性が見られることが良く知られており、今回の実験結果はその角度依存性を考えることで、負の体積変化を説明することができる。ただし、定量的にはダイマー間の相互作用とその距離依存性を考慮する必要があることから、より正確なモデルの確立と理論的な計算を行っていく必要があると考えている。さらに本物質のプラトー領域では結晶の対称性とは異なる対称性を持った3重項励起子の結晶化が理論的に示されており、それに伴った構造相転移の発現が期待される。今後はこのプラトー状態における構造の情報をより詳細に調べるために、これまで測定を行った条件より、低温・高磁場領域に測定範囲を広げて、実験を行っていく必要があると考えている。



(2) マルチフェロ物質として知られる三角格子反強磁性体 CuFeO_3 は、低温領域において正三角形に配置されたスピン内で生じるフラストレーションを解消するために、正三角形から不等辺三角形へと構造を変化させて磁気的な構造を安定化させることが知られている。また、磁場の印加に伴って多段の階段状に磁化ステップが現れること、さらに中間磁場領域において磁場誘起の強誘電現象を発現すること、といった興味深い現象を示すことから注目され多くの研究が行われている。我々は本物質の放射光X線を用いた磁場中回折測定を行い、三角格子面に垂直なc

軸(B//c)に磁場を印加した場合、多段の磁化過程を反映した格子定数bの階段状の変化を観測した。この磁化にスケールされる構造の変化は交換相互作用を一次の距離依存し絵として近似した磁気弾性モデルを各磁場誘起相で期待される磁気構造に適応することで定量的に説明することができる。一方、磁場をc軸に垂直(B⊥c)に印加した場合には、低磁場領域で磁場に線形な変化を示す磁化過程とは対照的に格子定数bはほとんど変化を示さない事がわかった。しかし、1/3 磁化プラトーの現れる高磁場領域では、格子定数bの磁場変化にはB//c, B⊥cで大きな差異は現れなかった。このことから、この物質が磁気異方性の小さなハイゼンベルグ型反強磁性体のモデル物質と考えられているが、低磁場領域では大きな磁気異方性を示し、磁場の印加によってそれが緩和されるという減少を構造変化の観点からも明らかにした。この物質の示す磁場誘起強誘電性には、酸素原子と鉄原子の強い混成効果が影響していると考えられており、磁気異方性の発現も同様の



機構が働いているものと推測される。

(3) 光ファイバ方式レーザー変位計を低温磁場中で利用可能にするためのクライオスタットを開発し、超伝導マグネットを用いた定常磁場環境、またパルスマグネットを用いてパルス強磁場環境において、コバルト酸化物 CoO の磁歪測定を行った。高温で立方晶の結晶構造をもつ CoO は、単斜晶への構造変化を伴った磁気秩序を示す。また磁気異方性の方向が主軸から大きく傾いている事など、興味深い物性を示すことが知られているが、単純な結晶構造であるにも関わらずまだまだ

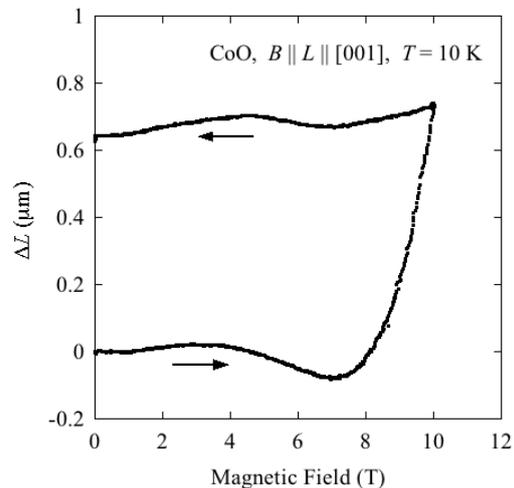
未解決の問題が多くこの物質である。実験結果では、結晶ドメインの整列にもなうと考えられるヒステリシスをもった磁歪の変化を観測した。この結果は、過去に行った磁歪測定の結果とほぼ矛盾しないものであり、この実験手法が強磁場磁歪測定において十分有効であることを示すことができた。これにより、歪みゲージでは測定の困難であった微少試料や有機磁性体の磁歪測定の実施が現実的なものとなったと考えている。

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)

[雑誌論文] (計 7 件)

- ① Yasuo NARUMI, Noriki TERADA, Yoshikazu TANAKAら (他計 11 名、1 番目)、 Field Induced Lattice Deformation in the Quantum Antiferromagnet $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$, Journal of the Physical Society of Japan, 78, 043702, (2009), 査読有り
- ② Yasuo Narumi, Yoshikazu Tanaka, Noriki Teradaら (他計 13 名、1 番目)、 Magnetization process and the associated lattice deformations in an intermetallic compound Gd_5Ge_3 , Journal of the Physical Society of Japan, 77, 053711, (2008), 査読有り
- ③ Yoshikazu Tanaka, Yasuo Narumi, Noriki Teradaら (他計 16 名、2 番目)、 Lattice



Deformations Induced by an Applied Magnetic Field in the Frustrated Antiferromagnet HgCr_2O_4 , Journal of the Physical Society of Japan, 77, 76, 043708, (2007), 査読有り

- ④ N. Terada, Y. Narumi, Y. Sawaiら (他計 15 名、2 番目)、 Correlation between crystal structure and magnetism in the

frustrated antiferromagnet CuFeO₂ under high magnetic fields, Physical Review B, 75, 224411, (2007)、査読有り

- ⑤ Yasuo Narumi, Ken-ichi Suga, Koichi Kindoら (他計6名、1番目)、Metamagnetic Transition to Poor Conductor in BaVS₃, Journal of the Physical Society of Japan, 76, 013706, (2007)、査読有り
- ⑥ N. Terada, Y. Narumi, K. Katsumataら (他計14名、2番目)、Field-induced lattice staircase in a frustrated antiferromagnet CuFeO₂, Physical Review B, 74, 188040R, (2006)、査読有り
- ⑦ Y. Narumi, K. Kindo, K. Katsumataら (他計13名、1番目)、X-ray diffraction studies in pulsed high magnetic fields, Journal of Physics Conference Series, 51, 494, (2006)、査読有り

[学会発表] (計3件)

- ① 鳴海康雄 (他10名、1番目)、SrCu₂(BO₃)₂の強磁場磁性と格子変形II、日本物理学会第64回年次大会、2009年3月29日、立教大学
- ② 鳴海康雄 (他11名、1番目)、SrCu₂(BO₃)₂の強磁場磁性と格子変形、日本物理学会秋季大会、2008年9月20日、岩手大学
- ③ 鳴海康雄、金道浩一、光ファイバ変位計を用いた強磁場磁歪測定装置の開発、日本物理学会第63回年次大会、2008年3月23日、近畿大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鳴海康雄 (NARUMI YASUO)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号：50360615

(2) 研究分担者

無し ()

研究者番号：

(3) 連携研究者

無し ()

研究者番号：