

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20340089

研究課題名(和文) 極低温強磁場多周波 ESR による量子スピン及びフラストレーション系の研究

研究課題名(英文) Studies on quantum and frustrated spin systems by ultra-low temperature high-field multi-frequency ESR

研究代表者

萩原 政幸 (HAGIWARA MASAYUKI)

大阪大学・極限量子科学研究センター・教授

研究者番号：10221491

研究成果の概要(和文)：定常磁場中で 0.1 ケルビン、パルス磁場中で 0.6 ケルビンまでの極低温度(ケルビンは絶対温度の単位で摂氏 0 度がおよそ 273 ケルビン)で測定のできる強い磁場中(ネオジウム磁石表面磁場のおよそ数十倍)で多くの周波数(マイクロ波帯から遠赤外線)を用いて測定のできる電子スピン共鳴(略して ESR、MRI で用いる核磁気共鳴と同様な磁気共鳴の一種で電子スピンによる磁気共鳴)装置を開発した。これらの装置を用いて、量子効果(量子力学に基づく効果)の顕著な量子磁性体や磁氣的相互作用の競合するフラストレート磁性体の測定を行い、前者では高い磁場領域でこれまで観測されてこなかった新たなシグナルを観測してこの磁性体の新たな相転移の起源を明らかにし、後者では ESR シグナルの現れる磁場の変化を見出した。

研究成果の概要(英文)：We have developed high magnetic field multi-frequency electron spin resonance (ESR) apparatuses that can measure down to 0.1 K in a static magnetic field and down to 0.6 K in a pulsed magnetic field to study two kinds of magnets with remarkable quantum effects and competing exchange interactions. We have found novel ESR signals above a critical field where the energy gap vanishes which were not observed at the temperatures down to 1.3 K for the former, and the shift of an ESR resonance field for the latter.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	8,500,000	2,550,000	11,050,000
2009年度	4,100,000	1,230,000	5,330,000
2010年度	2,200,000	660,000	2,860,000
年度			
年度			
総計	14,800,000	4,440,000	19,240,000

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：磁気共鳴、極低温、強磁場、多周波数、量子磁性体、フラストレート磁性体

1. 研究開始当初の背景

(1) 物性物理学の発展はそれまであまり考慮されていなかったり、不可能と考えられていたパラメーター領域への展開によってもたらされている。測定手段においては磁場、圧力、温度などの物理パラメーター領域を広

げることにより新たな現象の発見がもたらされてきたことはサイエンスを行っている人々にとって周知のことである。

(2) 我々の所ではこれまでに世界で最も広い磁場と周波数の観測領域を持つ強磁場多周

波電子スピン共鳴(ESR)装置を開発し有しており、現在更なる観測領域の拡大に努めている。しかしながら、さらなる極限条件である極低温との組み合わせを可能にする ESR 装置の開発に着手しているものの予算の関係上思うように進められていなかった。

2. 研究の目的

そこで本科研費により極低温下の強磁場多周波 ESR 装置の開発を一気に進め、研究課題に記載している量子スピン系、フラストレーション系を中心に新たな研究を展開していくことを研究目的にした。具体的には磁場誘起の量子相転移（ハミルトニアン中のあるパラメータを変化させた時に、絶対零度で起きる相転移）近傍の物理の理解を得ることで、量子スピン系やフラストレート系では量子効果や幾何学的フラストレーション効果により磁場誘起の新奇な物性の発現が期待されるため、これらの研究をより深化させることである。

3. 研究の方法

(1) 超伝導磁石を用いた定常磁場 ESR 装置では大陽日酸社製の ^3He - ^4He 希釈冷凍機と用いた ESR 測定用クライオスタットを開発する。

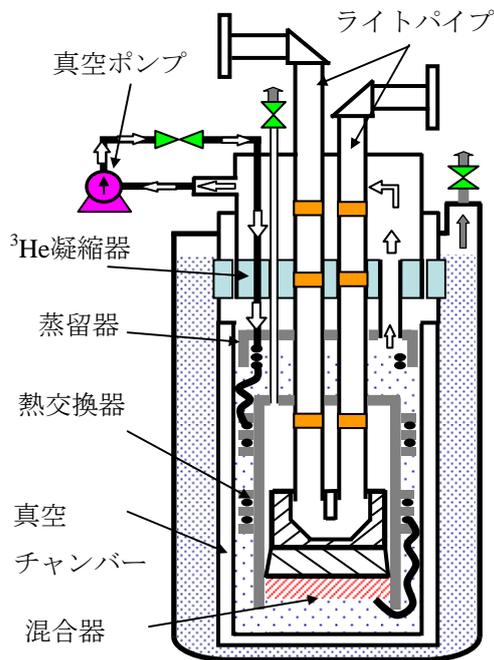


図1. 希釈冷凍機を用いた極低温 ESR 装置

(2) パルス磁石を用いたパルス磁場 ESR 装置では手作りの ^3He 冷凍機を自作し、この冷凍

機と組み合わせた ESR 用クライオスタットを開発する。

(3) 前者の装置を用いて量子スピン 1 の擬一次元反強磁性体、つまりハルデン磁性体の Ni 化合物 NDMAP の極低温強磁場 ESR 測定を行う。

(4) 後者の装置では三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 の ESR スペクトルの温度変化を極低温まで詳細に行う。

4. 研究成果

(1) 研究方法の(1)に関しては図1にポンチ絵のカットビューで示す ESR クライオスタットと希釈冷凍機を組み合わせた極低温 ESR 装置を開発した。本装置のポイントは多周波数での測定が可能であるように素通しのライトパイプを用い、輻射熱をカットするために輻射カットのフィルター（図のだいたい色）を合計3枚入れたことである。

(2) 研究方法の(2)に関しては ^3He ガスハンドリングシステムと ESR クライオスタットを開発した。図2には開発した ^3He ガスハンドリングシステムの写真を載せている。これと ^3He 用の ESR クライオスタットとボア径の大きなパルス磁石を開発し、最低温度約 0.6 K を実現して 60 T までの強磁場中での ESR 測定が可能となった。

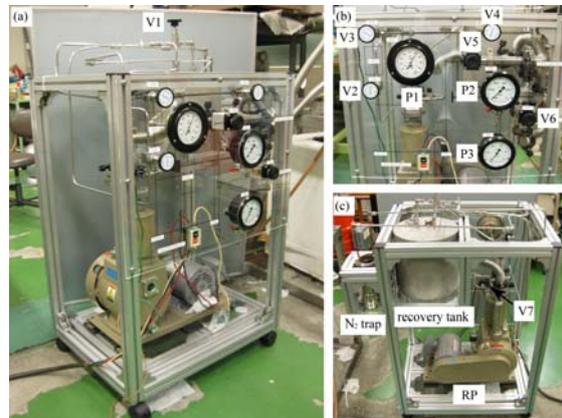


図2. ^3He ガスハンドリングシステム

(3) 研究方法の(3)に記載している極低温定常磁場 ESR 装置で行った NDMAP の実験結果に関して記載する。図3に 32.6 GHz で Ni 鎖方向の ESR スペクトルの温度変化を示している。ハルデンギャップが磁場によってつぶれる臨界磁場(約 4 T)以上で 500 mK 以下の温度でシグナルが現れるのがわかる。

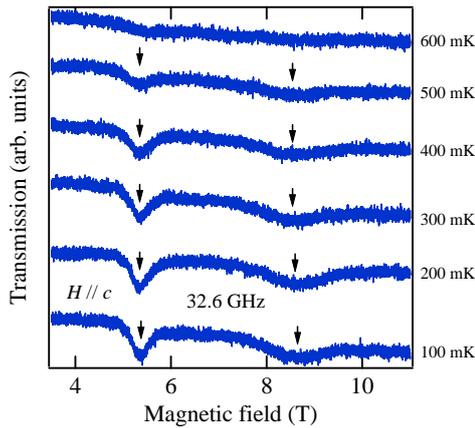


図3. NDMAP の ESR シグナルの温度変化

また、図4には最低温度 100 mK で行った多周波数での ESR スペクトルを示している。周波数を高くするに従って共鳴磁場が大きくなっていく ESR シグナルと逆に小さくなっていくシグナルが観測されている。これらのシグナルの共鳴磁場を周波数—磁場ダイアグラムにプロットしたところ、臨界磁場以上での最低エネルギーブランチが 14 T あたりでソフト化することがわかり、比熱で観測されたアノマリーに対応することがわかった。これはスピン配列の磁場中変化に対応しているものであると予想されている。

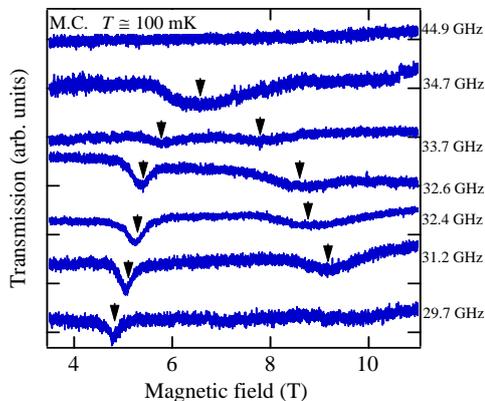


図4. NDMAP の ESR シグナルの周波数変化

(4) 研究方法の(4)に関しては三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 の三角格子面に垂直な方向に磁場をかけた際のシグナルの温度変化を最低温度 0.6 K まで測定し、低温でさらに共鳴磁場が低磁場側にシフトしていくことを観測した。その様子は図5に示されている。開発にあたって様々なトラブルがあり、最低温度での実験が思うように進められなかったが、最終年度に測定できるところまで何とかこぎつけることができた。今後は磁場誘起の秩序—無秩序転移をする擬一次元イジング型反強磁性体 BaCoV_2O_8 の磁場誘起の極低温で

観測された新たな相の磁気構造や電子状態に関する知見を得るために本装置を用いた測定を行いたいと考えている。

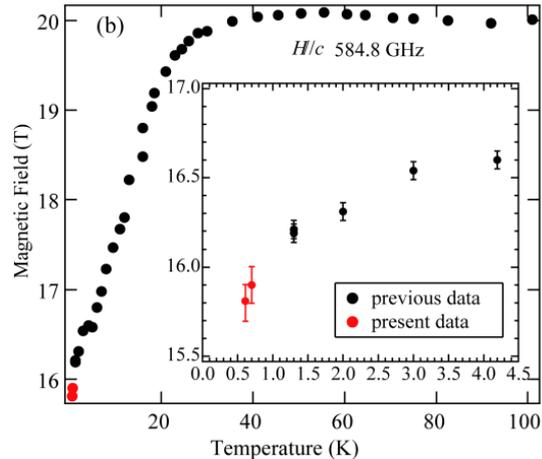


図5. NiGa_2S_4 の共鳴磁場の温度変化

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 11 件)

- ① H. Yamaguchi, M. Hagiwara *et al.*, High-Field ESR and Magnetism of the Triangular Lattice Antiferromagnet NiGa_2S_4 , *Journal of the Physical Society of Japan*, 査読有、79 巻、(2010)、054710-1-8
- ② T. Kashiwagi, M. Hagiwara *et al.*, Antiferromagnetic resonance study of sodalite loaded with sodium by multi-frequency ESR, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 査読有、71 巻、(2010)、544-547
- ③ H. Yamaguchi, M. Hagiwara *et al.*, Electron Spin Resonance in a New Triangular-Lattice Layered Oxide, *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有、200 巻、(2010)、012231-1-4
- ④ M. Hagiwara *et al.*, Multi-frequency ESR studies on a Haldane magnet in a field-induced phase at ultra-low temperatures, *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有、200 巻、(2010)、022012-1-4
- ⑤ S. Kimura, M. Hagiwara *et al.*, High frequency ESR measurements on the spin crossover complex $[\text{Mn}^{\text{III}}(\text{taa})]$, *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有、200 巻、(2010)、022025-1-4
- ⑥ 萩原政幸、フラストレーションがつくる新しい物性 第5回幾何学的フラストレート磁性体を強磁場中においたら?、*物理化学雑誌「パリティ」*, 査読無、5 巻、(2010)、64-67
- ⑦ H. Yamaguchi, M. Hagiwara *et al.*, Spiral-spin flop probed by ESR in the multiferroic triangular-lattice antiferromagnet CuCrO_2 , *Physical Review B*, 査読有、81 巻、(2010)、

033104-1-4.

⑧ H. Yamaguchi, M. Hagiwara et al., High-Field Magnetism of the Spin-Ladder Material $\text{Na}_2\text{Fe}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$, Journal of the Physical Society Japan、査読有、78 巻、(2009)、124701-1-5

⑨ M. Hagiwara et al., Development of an Ultra-Low Temperature Multi-Frequency ESR Apparatus, Journal of Physics: Conference Series、査読有、150 巻、(2009)、012015-1-4

⑩ T. Kashiwagi, M. Hagiwara et al., Multi-Frequency ESR in the Haldane Magnet NDMAP below 1 K, Journal of Physics: Conference Series、査読有、150 巻、(2009)、042083-1-4

⑪ S. Kimura, M. Hagiwara et al., Low Temperature Magnetism of the $S=1/2$ quasi one-dimensional Ising-like antiferromagnet BaCoV_2O_8 , Journal of Physics: Conference Series、査読有、150 巻、(2009)、042090-1-4

[学会発表] (計 9 件)

① M. Hagiwara, ESR in a Disordered Network of Nanographene Sheets, The Horiba-19th International Conference on The Application of High Magnetic Fields in Semiconductor Physics and Nanotechnology, 2010. 8. 3, Fukuoka

② H. Yamaguchi, M. Hagiwara et al., Electron Spin Resonance in the Quasi-Two-Dimensional Triangular-Lattice Antiferromagnet $\text{Rb}_4\text{Mn}(\text{MoO}_4)_3$, Highly Frustrated Magnetism 2010, 2010. 8. 3, Baltimore, USA

③ M. Hagiwara, High-Field Studies on Geometrically Frustrated Spin Systems at KYOKUGEN, International Conference on Core Research and Engineering Science of Advanced Materials, 2010. 6. 3, Suita, Osaka

④ M. Hagiwara et al., Multi-frequency ESR studies on a Haldane magnet in a field-induced phase at ultra-low temperatures, The International Conference on Magnetism 2009, 2009. 8. 30, Karlsruhe, Germany

⑤ M. Hagiwara, Exotic phases in quantum and frustrated spin systems, Spin Waves 2009, 2009. 6. 9, St. Petersburg, Russia

⑥ 柏木隆成、萩原政幸他、量子磁性体の極低温強磁場多周波 ESR II、日本物理学会第 64 回年次大会、2009.3.28、立教大学

⑦ 柏木隆成、萩原政幸他、量子磁性体の極低温強磁場多周波 ESR、日本物理学会

2008 年秋季大会、2008.9.21、岩手大学
⑧ T. Kashiwagi, M. Hagiwara et al., Multi-Frequency ESR in the Haldane Magnet NDMAP below 1 K, Low Temperature Physics Conference LT15, 2008.8.11, RAI Conference Center, The Netherlands

⑨ M. Hagiwara et al., Development of an Ultra-Low Temperature Multi-Frequency ESR apparatus, Low Temperature Physics Conference LT15, 2008.8.9, RAI Conference Center, The Netherlands

[その他]

ホームページ等

http://www.mag.cqst.osaka-u.ac.jp/index_j.html

6. 研究組織

(1) 研究代表者

萩原 政幸 (HAGIWARA MASAYUKI)

大阪大学・極限量子科学研究センター・教授

研究者番号 : 10221491