

## 科学研究費補助金研究成果報告書

平成 24 年 5 月 18 日現在

機関番号：14401

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2011

課題番号：19052007

研究課題名（和文） フラストレーションが創る新しい物性

研究課題名（英文） Novel States of Matter Induced by Frustration

研究代表者

川村 光 (KAWAMURA HIKARU)

大阪大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：30153018

研究成果の概要（和文）：「**フラストレーション**」とは、様々な最適化条件が互いに競合し、系がそれらを同時に満たすことが出来ないような状況を指す。フラストレート系では、自明な最適化条件が存在しないために、系は一般に不安定となりやすく、**大きな揺らぎの効果**が発現したり、**新しいタイプの熱力学的状態や相**が実現される。本特定領域では、フラストレート磁性体の研究を核に、金属・強相関係・誘電体を含む多様なフラストレート系の統合的な探究を通して、フラストレーションを基軸とした新概念・新物性・新機能を開拓した。

研究成果の概要（英文）：“Frustration” represents the situation where several optimization conditions compete with each other so that the system cannot satisfy them simultaneously. In such “frustrated” systems, novel effects due to enhanced fluctuations arise, leading to an exotic order and a new thermodynamic phase. In this project, through integrated research of a variety of frustrated systems including magnets, metals, strongly correlated electrons and dielectrics, we have developed new material properties, new concepts and new functions induced by frustration.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	4,800,000	0	4,800,000
2008年度	7,900,000	0	7,900,000
2009年度	7,000,000	0	7,000,000
2010年度	14,300,000	0	14,300,000
2011年度	7,900,000	0	7,900,000
総計	41,900,000	0	41,900,000

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：フラストレーション・フラストレート磁性・カイラリティ・量子スピン液体

## 1. 研究開始当初の背景

「**フラストレーション**」とは、様々な最適化条件が互いに競合し、系がそれらを同時に満たすことが出来ないような状況を指す。フラストレート系では、自明な最適化条件が存在しないために、系は一般に不安定となりやすく、**大きな揺らぎの効果**が発現したり、時には非フラストレート系では見られない**新しいタイプの熱力学的状態や相**が実現される。もとより、フラストレーションは自然界では広く見られる極めて一般的な現象である。物性・統計力学の分野では、過去において、局在磁性体のスピン自由度に伴う磁気的なフラストレーションを対象とした研究が主に行われてきた。他方、今世紀に入った頃から、様々な新規化合物も含めた物質開発や測定技術の進歩、また計算機シミュレーションの進展や理論的新概念の登場に伴い、**フラストレート系研究の新たな機運が国際的にも急速に高まった**。長らく伝統的なフラストレート系研究の場であった磁性分野のみにとどまらず、**フラストレーション概念を、金属・強相関係・誘電体等のより広範な分野へと展開させることにより、フラストレート系固有の強く特異な揺らぎの効果を母体とした新規物性や、互いに競合する諸自由度の絡みから生み出されるであろう交差物性を狙う**というアプローチである。

## 2. 研究の目的

このような背景を受け、本領域申請の目的は、フラストレート磁性体の研究を核としつつも、**金属・強相関係・誘電体を含む多様なフラストレート系を統合的に扱うことにより、フラストレーションを基軸とした新概念・新物性・新機能の開拓を目指す**ことにある。フラストレーション概念を機軸とした分野横断的な研究を展開することにより、基礎科学としての物性物理学に新たな局面を切り拓くとともに、周辺他分野への発展のシーズを

生み出すことを目標とした。物性物理・固体化学・統計物理の諸分野、実験家と理論家、物質開発と物性測定、スピン・格子・軌道・電荷といった多様な自由度、多彩なフラストレーション物質（例えばパイロクロア・スピネルを代表とする幾何学的フラストレート磁性体、スピングラスを代表とするランダム磁性体、超伝導セラミックス等の超伝導体、磁気強誘電物質、リラクサー誘電体等々）を扱うグループの密接な連携により、フラストレート系が発現するであろう様々な異常物性の創出と解明を目指す。そして、このような分野横断的なフラストレーション研究を通して、関連研究分野の活性化、若手研究者の育成、国際交流にも資することを目的とする。

## 3. 研究の方法

本領域では、フラストレート磁性の研究を核としつつも、これら多様なフラストレート系を分野横断的に探求することにより、フラストレーションを基軸とした新物性・新概念・新機能の開拓を目指した。本特定領域では、研究項目として A01「フラストレート系の基礎物性」および A02「フラストレーションが生む新現象とその応用」の2つをおき、その下に「幾何学的フラストレート磁性体の新奇秩序」、「フラストレーションとカイラリティ」、「量子フラストレーション」、「フラストレーションと量子伝導」、「スピンフラストレーションと磁気強誘電性」、「フラストレーションとリラクサー」、「スピン・電荷・格子複合系における幾何学的フラストレーションと機能」の7つの班（ア班～キ班）を置き、それらを領域代表のリーダーシップの下に総括班が統括する構成を取っている。「フラストレーション」という概念主導の本特定領域にあって、様々な対象物質や研究手法でそれぞれの課題に取り組む各班を有機的に統合し、領域全体を方向づける役割を担う総括班の果たすべき役割は、とりわけ大きいものがある。

#### 4. 研究成果

総括班の役割は、一に領域全体の研究活動を活性化することにあるので、本項では、まず領域全体の研究成果を概観し、その後総括班が直接担った諸活動について述べる。

伝統的には、フラストレーション研究のコアとなってきたのは磁性分野であり、本特定領域においても磁性分野は重要な位置を占めている。フラストレーション磁性において近年大きな興味を集めているトピックの1つに**量子スピン液体**がある。その中でも中心的役割を果たしてきたのが、一連の3角格子反強磁性体であるが、本特定では、 **$S=1/2$  3角格子有機反強磁性体**  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>3</sub> や  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>2</sub> を対象に、NMR や比熱測定により、この物質が低温までスピン液体にとどまること、モット絶縁体であるにもかかわらず温度に比例した低温比熱を示すこと、有限温度で相転移的異常を示すこと等を明らかにした。また、 **$S=1$  3角格子反強磁性体** NiGa<sub>2</sub>S<sub>4</sub> が、動的諸量に顕著なアノマリーを伴う相転移的異常を示すこと、しかし低温相でもスピンは完全には凍結せずMHz程度の周波数を持って揺らいでいることを見出した。これまで典型物質が知られていなかった **$S=1/2$  カゴメ格子反強磁性体** に対しても、本特定では世界に先駆けて、ボルボース石とベシニエ石という2つのカゴメ純良試料合成に成功し、その物性に関する知見を得た。理論面からも、 $S=1/2$ 最近接相互作用**カゴメ格子反強磁性ハイゼンベルグモデル** に対し、現時点での世界記録となる42サイトまでの厳密対角化による解析を行い、この系がスピンギャップを持たず、磁化曲線が**“磁化ランプ”** という特徴的な振る舞いを示すとの結論を得た。一見フラストレーションが効かないと思われる**ハニカム格子**においても、フラストレーションが重要な役割を果たしていると思われる新たな磁性体 Bi<sub>3</sub>Mn<sub>4</sub>O<sub>12</sub>(NO<sub>3</sub>)を見出し、理論的にも新奇な**“リング液体”** や**“パ**

**ンケーキ液体”** 状態が提案された。さらには、一般に磁気秩序が安定化すると考えられている3次元でもフラストレーションが十分強い場合にはスピン液体状態が実現することを、**“ハイパーカゴメ格子”** 構造を形成する  $S=1/2$  量子反強磁性体 Na<sub>4</sub>Ir<sub>3</sub>O<sub>8</sub> において発見した。このように、これまで理論的期待が先行しがちであったスピン液体の分野において、本特定では幾多の新物質の合成に成功、理論的發展と合わせて、スピン液体が示す豊富な物性を明らかにすることが出来た。

フラストレーション磁性体においては、スピンの高次構造に対応した**複合自由度**が重要な役割を果たす場合がある。近年特に注目され、また本特定においても研究が進んだ量として、右・左の自由度に対応した**カイラリティ**がある。**スカラー・カイラリティ**は、伝導系においては顕著な**異常ホール効果**を導く。本特定での理論研究より、カイラリティが**スピン・カイラリティ分離**のような特異な物性を導くことが示唆されたが、関連した新奇な秩序化現象(**カイラル相、カイラルグラス秩序**)や新奇伝導現象(カイラリティ起源の異常ホール効果)が、**金属スピングラス系**や**パイロクロア系**を舞台に、実験的にも次々と見出された。関連して、カイラリティが有限値を持ったスカーミオン励起が周期的に配列した**スカーミオン格子**の実空間像を直接観測に成功した他、高い転移温度を持つヘリカル磁性体を用いて室温付近でスカーミオン結晶を安定化させることや、周期の短いヘリカル磁性体 MnGe において大きなホール効果を実現することにも成功した。理論的にも、強い次近接以降の相互作用のため非整合なヘリカル構造を持つ磁場中のハイゼンベルグ反強磁性体が、磁場中で多彩な**多重Q秩序**を形成すること、中でも triple-Q 状態はフラストレーション誘起のスカーミオン格子

であることを明らかにした。

フラストレート磁性体は、しばしばそのスピン自由度だけではフラストレーションを解消できず、**格子・軌道・電荷**といった他の自由度とカップルすることを通してフラストレーションを解消することもある。強誘電性とのカップリングは、**マルチフェロイック**スとして、近年大きな注目が集めてきた。マンガン酸化物  $\text{TbMnO}_3$  を対象に螺旋スピン構造に伴う**スピンベクトル・カイラリティ**が電気分極の向きと対応していることを偏極中性子測定により示した他、 $\text{TbMnO}_3$  や  $\text{MnWO}_4$  といったマルチフェロ物質を対象に、**磁場による電気分極制御、電場による磁化制御**にも成功した。スピンと軌道のフラストレーションが示す興味深い物性として、ハニカム構造をベースにした磁性体  $\text{Ba}_3\text{CuSb}_2\text{O}_9$  がスピン・軌道双方にわたるフラストレーション効果のために、低温まで秩序化が抑制された液體的振る舞いを示すことを見出した。

伝導性を持つフラストレート物質の輸送特性も本特定のターゲットの1つである。**パイロクロア型金属**  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  において、低温で磁気秩序を伴わずに**時間反転対称性を自発的に破る**新たな量子スピン液体状態が発現することをホール測定により見出し、その起源としてスピンカイラリティ秩序を議論した。関連して、**スピンアイス**的なイジングスピン系と伝導電子が結合したモデル系を理論的に解析、低電子密度領域において特異なスピン液體的状態が低温で出現することを見出した。また、パイロクロア型酸化物  $\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ ,  $\text{Sm}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$  において、フラストレーションによって誘起されたスピンカイラリティに起源を持つと思われる**特異なネルンスト効果**（熱伝効果の横応答）を観測した。

**リラクサー**はフラストレーションが本質

的な役割を果たしていると期待される誘電体であり、広い温度範囲で巨大な誘電率を示す実用上も重要な物質である。Spring-8 などの**超高分解能 X 線費弾性散乱**を用い、リラクサー現象が反強誘電と強誘電の競合拮抗の下に発現していることを明らかにした他、**高分解能中性子エコー法**を用い、リラクサーで重要となる局所分極領域の種となる非常に遅い横波振動モードを発見した。また、典型的なリラクサー PMN に対し、リラクサーの巨大誘電応答は系に内在するランダム場によって形成される**ナノサイズの強誘電ドメイン**構造に起因することを明らかにした

フラストレート系が示す**巨大応答**は、応用上も重要な役割を果たす可能性がある。本特定では今回、 $\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x\text{NiO}_3$  において**巨大な負の熱膨張効果**を発見した他、希土類化合物  $\text{SmNiC}_2$  で電荷密度波相と強磁性金属相の競合により磁場印加による一桁程度の**巨大磁気抵抗効果**を得た。電子線回折における新手法開発は、フラストレート系でしばしば形成される超構造の解明に、強力な手段を提供する。本特定では今回、**電子線小角散乱法**の手法を開発、これを用いてヘリカル磁性やカイラル磁気渦構等の**磁氣的微細構造**を実空間・波数空間双方で観察しヘリカル磁性体の磁場応答を明らかにした。

総括班は、上記のような成果をあげた特定領域5年間において、以下の諸活動を行い、本特定領域の効率的運営と研究活動の活性化に当たり、真に主導的役割を果たした。

- 1) 領域代表および各研究代表者他のメンバーによる**総括班会議**の開催（計13回）、2) 年度の**立ち上げ会合、成果報告会**を計6回、3) ホットな注目を集めているテーマをピックアップし成果発表を行い議論を深める“**トピカルミーティング**”の開催（計7回）、3) 世界に向け本領域の成果発表を行う**領域国**

際会議” International Conference on Frustration in Condensed Matter (ICFCM、仙台)”の開催、4) 国際協力としての日欧合同および日加合同のフラストレーション・コンファレンス(リヨンおよびバンクーバーで各1回開催)、5) フラストレーション関連の研究者の日常的交流と情報交換のための「フラストレーションセミナー」の定期的開催(大阪で計36回、東京で計11回開催)6) 情報発信のための領域ニュースレター発行と配布(計13回)、7) 一般向け科学雑誌「パリティ」でのフラストレーション関連の連載記事「フラストレーションは面白い」の企画、8) 近年のフラストレーション研究のレビューである日本物理学会英文誌 J. Phys. Soc. Jpn. における Special Topics “Novel States of Matter Induced by Frustration”の企画、9) 理研の一般公開に合わせたフラストレーションをテーマとした一般向け講演“フラストレーションの解消法”(講師:研究代表者、香取浩子氏)の企画、10) 領域ホームページの整備、等である。

#### 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140件、なお特定領域全体では計813件)

1. T. Okubo, S. Chung and H. Kawamura, “Multiple-q states and skyrmion lattice of the triangular-lattice Heisenberg antiferromagnets under magnetic fields” 査読有, Phys. Rev. Lett. **108**, 017206, 2012
2. T. Okubo, T. H. Nguyen and H. Kawamura, “Cubic and non-cubic multiple-q states in the Heisenberg antiferromagnets on the pyrochlore lattice” 査読有, Phys. Rev. B **84**, 144432, 2011
3. S. Okumura, H. Yoshino and H. Kawamura, “Spin-chirality decoupling and critical properties of a two-dimensional fully frustrated XY model” 査読有, Phys. Rev. B **83**, 094429, 2011
4. H. Kawamura, “The ordering of XY spin glasses” 査読有, J. Phys. Condens. Matter **23**, 164210, 2011
5. N. Kanazawa, Y. Onose, T. Arima, (他6名) “Large Topological Hall Effect in a Short-Period Helimagnet MnGe” 査読有, Phys. Rev. Lett. **106**, 156603, 2011
6. T. Itou, A. Oyamada, S. Maegawa and R. Kato, “Instability of a quantum spin liquid in an organic triangular-lattice antiferromagnet” 査読有, Nature Physics **6**, 673, 2010
7. D. X. Viet and H. Kawamura, “Monte Carlo studies of the ordering of the one-dimensional Heisenberg spin glass with long-range power-law interactions” 査読有, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 104708, 2010
8. S. Okumura, H. Kawamura, T. Okubo and Y. Motome, “Novel spin-liquid states in the frustrated Heisenberg antiferromagnet on the honeycomb lattice” 査読有, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 114705, 2010
9. D. X. Viet and H. Kawamura, “Spin-chirality decoupling in the one-dimensional Heisenberg spin glass with long-range power-law interactions” 査読有, Phys. Rev. Lett. **105**, 097206, 2010
10. T. Okubo and H. Kawamura, “Phase transition of the three-dimensional chiral Ginzburg-Landau model: search for the chiral phase” 査読有, Phys. Rev. B **82**, 014404, 2010
11. T. Okubo and H. Kawamura, “Signature of a  $Z_2$  vortex in the dynamical correlations of the triangular-lattice Heisenberg antiferromagnet” 査読有, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 084706, 2010
12. H. Kawamura, “Chirality scenario of the spin-glass ordering” 査読有, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 011007, 2010
13. D. X. Viet and H. Kawamura, “Monte Carlo studies of chiral and spin ordering of the three-dimensional Heisenberg spin glass” 査読有, Phys. Rev. B **80**, 064418, 2009
14. D. X. Viet and H. Kawamura, “Numerical evidence of spin-chirality decoupling in the three-dimensional Heisenberg spin glass model” 査読有, Phys. Rev. Lett. **102**, 027202, 2009
15. A. Ikeda and H. Kawamura, “Ordering of the pyrochlore Ising model with the

- long-range RKKY interaction” 査読有,  
J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 073707, 2008
16. H. Kageyama, T. Watanabe, Y. Tsujimoto,  
(他 11 名) “Spin-Ladder Iron Oxide:  
Sr<sub>3</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>5</sub>” 査読有, Angew. Chem. Int. Ed.  
**47**, 5740, 2008
  17. T. Itou, A. Oyamada, S. Maegawa, M.  
Tamura and R. Kato, “Quantum spin  
liquid in the spin-1/2 triangular  
antiferromagnet EtMe<sub>3</sub>Sb[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>”  
査読有, Phys. Rev. B **77**, 104413, 2008
  18. K. Ohwada, K. Hirota, H. Terauchi,  
(他 6 名) “Intrinsic ferroelectric  
instability in Pb(In<sub>1/2</sub>Nb<sub>1/2</sub>)O<sub>3</sub>-revealed  
by changing B-site randomness:  
Inelastic x-ray scattering study” 査  
読有, Phys. Rev. B **77**, 094136, 2008
  19. Y. Okamoto, M. Nohara, H. Aruga Katori  
and H. Takagi, “Spin-Liquid State in  
the S=1/2 Hyperkagome Antiferromagnet  
Na<sub>4</sub>Il<sub>3</sub>O<sub>8</sub>” 査読有, Phys. Rev. Lett. **99**,  
137207, 2007
  20. H. Kawamura and A. Yamamoto,  
“Vortex-induced topological  
transition of the  
bilinear-biquadratic Heisenberg  
antiferromagnet on the triangular  
lattice” 査読有, J. Phys. Soc. Jpn. **76**,  
073704, 2007
  21. I. A. Campbell and H. Kawamura,  
“Comment on “The spin-glass  
transition of the three-dimensional  
Heisenberg spin glass”” 査読有, Phys.  
Rev. Lett. **99**, 019701, 2007

[学会発表] (計 805 件)

1. Hikaru Kawamura, “Novel order and  
topological excitation in a  
two-dimensional Heisenberg  
antiferromagnet on a distorted kagome  
lattice”, Frustrated Magnets: From  
Spin Ice to Kagome Planes, Dec. 12,  
2011, Federal Univ. of Rio Grande,  
Natal, Brazil
2. Hikaru Kawamura, “Novel order and  
spin liquid in two-dimensional  
frustrated Heisenberg model with an  
incommensurate helical spin  
structure”, Novel Phenomena in  
Frustrated Systems, May 24, 2011,  
Center for Nonlinear Studies, Santa Fe

[図書] (計 2 件)

1. 有馬孝尚, アイビーシー, 「放射光 X 線  
磁気分光と散乱」, 2007, 252 頁

[その他]  
ホームページ等  
<http://www.frustration.jp/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

川村 光 (KAWAMURA HIKARU)  
大阪大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号: 30153018

### (2) 連携研究者

前川 覚 (MAEGAWA SATORU)  
京都大学・大学院人間環境学研究科・教授  
研究者番号: 40135489  
(H19 まで分担者、H20 から連携研究者と  
して参画)

陰山 洋 (KAGEYAMA HIROSHI)  
京都大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号: 40302640  
(H19 まで分担者、H20 から連携研究者と  
して参画)

常次 宏一 (TSUNETSUGU HIROKAZU)  
東京大学・物性研究所・教授  
研究者番号: 80197748  
(H19 まで分担者、H20 から連携研究者と  
して参画)

有馬 孝尚 (ARIMA TAKAHISA)  
東京大学・大学院新領域創成科学研究科・  
教授  
研究者番号: 90232066  
(H19 まで分担者、H20 から連携研究者と  
して参画)

廣田 和馬 (HIROTA KAZUMA)  
大阪大学・大学院理学研究科・教授  
研究者番号: 90272012  
(H19 まで分担者、H20 から H22.1 まで連  
携研究者として参画)

大和田 謙二 (OHWADA KENJI)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・  
量子ビーム応用研究部門・研究員  
研究者番号: 60343935  
(H22.1 から連携研究者として参画)

香取 浩子 (KATORI HIROKO)  
東京農工大学・大学院工学研究院・教授  
研究者番号: 10211707  
(H19 まで分担者、H20 から連携研究者と  
して参画)