

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2011

課題番号：19052005

研究課題名（和文） 幾何学的フラストレート磁性体の新奇秩序

研究課題名（英文） Novel Ordering in Geometrically Frustrated Magnets

研究代表者

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

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、磁性体、新奇秩序、三角格子、かごめ格子、パイロクロア、反強磁性、核磁気共鳴

1. 研究計画の概要

本研究はスピンの規則格子上に位置しながらもスピン間相互作用が競合するために秩序化が抑制され、新しいタイプの相転移や新しい秩序状態が発現する幾何学的フラストレート磁性体について、新物質を探索・合成し、各種実験手段を用いて多重縮退が織りなす新しい秩序の解明とその選択的外部制御を目指すものである。モデル物質として、古典かごめ格子磁性体 $RFe_3(OH)_6(SO_4)_2$ 、 $S=1/2$ 量子かごめ格子磁性体 $timb$ 、ダイヤモンド鎖磁性体 $Cu_3(CO_3)_2(OH)_2$ 、イジング型かごめ格子磁性体である $[H_2OC_4N_4][Co_3F_6(SO_4)_2]$ 、 f 電子系フラストレート化合物 $CePdAl$ 、 UNi_4B 、スピニアイス物質 $Dy_2Ti_2O_7$ 、 $Ho_2Ti_2O_7$ 、 $Pr_2M_2O_7$ 等のフラストレート磁性体を対象に、磁化、NMR、比熱、ESR、 μSR などの測定手段を用いて、実験的研究を行う。また、継続的に各種物質群、各種幾何学的フラストレート格子、各種スピン（古典、量子）を持つ新しい幾何学的フラストレート磁性体の探索、合成を行う。

新規購入の実験機器や既存装置の改良により、NMR 装置の高精度化、試料回転や加圧等の新技術の導入により新しい物理量の測定を目指す。また試料合成装置と基礎物性測定装置を導入し、新規物質の探索と良質単結晶の合成のための設備の充実を行う。分担者間の協力により、試料の提供や各研究者の実験手段の有機的結合により、各種物質を多面

的に研究する。特定研究というプロジェクトにより情報交換の機会を増やし、また班構成の組織化を行って効率的な研究を進める。

2. 研究の進捗状況

(1) 新規物質の開拓

当初、計画していたモデル物質での実験も順調に進展しているが、それ以外に次のような新物質を見出し、研究を進め、フラストレート磁性についての新たな知見を得た。 $3d$ 電子系パイロクロア反強磁性体 $Cu_2(OH)_3Cl$ 、 $Ni_2(OH)_3Cl$ 、量子スピン三角格子反強磁性体 $EtMe_3Sb[Pd(dmit)_2]_2$ 、 $EtMe_3P[Pd(dmit)_2]_2$ 、量子スピンかごめ格子反強磁性体 $Rb_2Cu_3SnF_{12}$ 、 $Cu_3V_2O_7(OH)_2 \cdot 2H_2O$ 、 $BaCu_3V_2O_8(OH)_2$ 、 f 電子系スピギャップ物質 $YbAl_3C_3$ 、デルタ鎖フラストレート系 $Cu_2(AsO_4)(OH)_3 \cdot 3H_2O$ 、ハイゼンベルグ三角格子反強磁性体 $HCrO_2$ 、 $InMnO_3$ 、希土類パイロクロア物質 $Nd_2Ir_2O_7$ 、ハニカム格子反強磁性体 $BiMn_4O_{12}(NO_3)$ 等である。

(2) 実験手段の進歩

ピエゾローテーターを使用した試料回転装置を作製し、単結晶試料の核磁気共鳴を角度変化まで含めて実験可能にした。また新たに購入した高感度 NMR 装置とコイルシステムの改良により、 $1mm$ 角以下の微小な試料でも NMR 実験が可能になった。これにより量子スピンかごめ物質 $Rb_2Cu_3SnF_{12}$ の詳細な角度変化の実験が可能となり、DM 相互作用の詳細な情報を得ることができた。また UNi_4B 、 $YbAl_3C_3$ の角度変化の実験から四重極相互作用テンソルの情報を得ることが出

来た。

(3) これまでに得られた主な成果

① 量子スピンパイロクロア格子反強磁性体 $\text{Cu}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$ は逐次磁気相転移をすることを確認し、中間相では静的状態と動的状態が共存し、低温相はスピン波励起を持つ長距離秩序相であることを明らかにし、磁気構造を決定した。 $\text{Ni}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$ にも中間相が存在することを見だし、スピン揺動の時定数決定が重要であることが解った。

② 有機量子スピン三角格子反強磁性体 $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ は 20mk までスピン液体状態であり、1.0K で新たなスピン状態へ転移することを発見した。また $\text{EtMe}_3\text{P}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$ はスピンギャップをもち、加圧下で反強磁性相と隣接しない超伝導相が存在することを明らかにした。

③ 量子スピンかごめ格子反強磁性体 $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ はギャップを持つスピンダイマーを形成し、DM 相互作用によるスタガード磁化が存在することを見いだした。

④ 5f 電子系 XY 型三角格子反強磁性体 UNi_4B では近藤スクリーニング部分無秩序状態が実現していることを明らかにした。

⑤ 5f 電子系かごめ格子磁性体 CePdAl はフラストレーションが f 電子の遍歴性により解消され、部分無秩序状態になることを見いだした。

3. 現在までの達成度

①当初の計画以上に進展している。

(理由) フラストレーションのモデル物質となる新規物質を多数見出し、これらに実験手段の改良と進歩を生かした研究を積極的に行うことにより、当初計画以上の成果が得られているため。

4. 今後の研究の推進方策

モデル物質について NMR, ESR, 比熱、磁化等の実験を多角的に行っていく。新たに比熱測定が可能になったため、特に相転移の臨界現象について情報を得ていく。従来 NMR 実験の少なかった希土類パイロクロア物質についても微量核の信号探索や酸素同位体置換により実験を試みる。また他の実験・理論研究者との交流を深め、共同研究を推進する。

5. 代表的な研究成果

[雑誌論文] (計 53 件)

1. S. Maegawa, A. Oyamada and S. Sato; Novel Frustrated Behavior in Quantum Heisenberg Antiferromagnets on the

Pyrochlore Lattice: NMR Studies of $\text{R}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$ (R=Cu and Ni); J. Phys. Soc. Jpn. 79, 011002/1-12, (2010) 査読有

2. W. M. Zhang, H. Ohta, S. Okubo, M. Fujisawa, T. Sakurai, Y. Okamoto, H. Yoshida and Z. Hiroi; Kagome Lattice High-Field ESR Measurements of S=1/2 Antiferromagnet $\text{BaCu}_3\text{V}_2\text{O}_8(\text{OH})_2$; J. Phys. Soc. Jpn. 79, 023708/1-4, (2010) 査読有
3. H. Kadowaki, N. Doi, Y. Aoki, Y. Tabata, T. J. Sato, J. W. Lynn, K. Matsuhira and Z. Hiroi; Observation of Magnetic Monopoles in Spin Ice; J. Phys. Soc. Jpn. 78, 103706/1-4, (2009) 査読有
4. T. Itou, A. Oyamada, S. Maegawa, M. Tamura and R. Kato; Quantum Spin Liquid in the Spin-1/2 Triangular Antiferromagnet $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$; Phys. Rev. B 77, 104413/1-5, (2008) 査読有
5. A. Oyamada, S. Maegawa, M. Nishiyama, H. Kitazawa and Y. Isikawa; Ordering Mechanism and Spin Fluctuations in a Geometrically Frustrated Heavy-Fermion Antiferromagnet on the Kagome-like Lattice CePdAl : ^{27}Al NMR Study; Phys. Rev. B 77, 064432/1-9, (2008) 査読有
6. S. -H. Lee, H. Kikuchi, Y. Qiu, B. Lake, Q. Huang, K. Habicht and K. Kiefer; Quantum-spin-liquid States in the Two-dimensional Antiferromagnets $\text{ZnxCu}_{4-x}(\text{OD})_6\text{Cl}_2$; Nature Materials 853-857, (2007) 査読有

[学会発表] (計 103 件)

1. 前川覚、三角格子・パイロクロア格子量子スピン反強磁性体の新奇フラストレート磁性: 日本物理学会 秋季大会、2009 年 9 月 25 日、熊本大学、招待講演
2. S. Maegawa, A. Oyamada, S. Sato, M. Nishiyama, T. Itou and X. G. Zheng Spin dynamics in 3d Electron Pyrochlore-like Systems: Highly Frustrated Magnetism 国際会議 2008 年 9 月 8 日, Braunschweig Germany

[図書] (計 1 件)

1. 前川覚、フラストレーションが生み出す奇妙なスピン秩序: パリティ 2010 年 4 月号 p62-67 丸善株式会社

[その他]

1. YbAl_3C_3 のスピンギャップ状態の発見について、2008 年 1 月 1 日付けで科学新聞に掲載された。
2. 研究成果を下記ホームページで公表。
<http://nmr.jinkan.kyoto-u.ac.jp/maegawa-lab/index.html>