

令和元年 8月30日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04131

研究課題名(和文) 新規低次元およびフラストレート遍歴電子系遷移金属化合物の創生と異常物性探索

研究課題名(英文) Search for novel itinerant-electron transition metal compounds with low dimensionality and frustration effects and their syntheses and anomalous physical properties

研究代表者

吉村 一良 (Yoshimura, Kazuyoshi)

京都大学・理学研究科・教授

研究者番号：70191640

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：フラストレート効果と層状構造など低次元性との組み合わせによって、特異な遍歴電子物性を示す可能性を有する新規の低次元遍歴電子遷移金属物質群を探索・合成し、その新規電子物性についてのマクロ及びミクロの両面から明らかにするため、無機固体物性化学的な基盤研究を行った。その結果、得られた二次元遍歴磁性系では、系統的な合成・ハイパワー核磁気共鳴装置を用いた物性測定を行い、得られた結果をスピンゆらぎの観点から解析を行った。また得られたエキゾチック超伝導体では、超伝導転移温度 $T_c$ とスピンゆらぎのエネルギー $T_0$ との相関関係について議論を行った。これらにより遍歴電子系の統一描像の確立へと近づくことができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究によって、申請者らがこれまで世界に先駆けて発見・合成してきた様々な遷移金属化合物群をベースとして、新規低次元・フラストレート遍歴化合物群を創生し、電子相関やスピンゆらぎを制御して、新たな遍歴電子磁性体や超伝導体を構築・創生することに成功してきた。122型CoP二次元遍歴強磁性体系、籠型A3T4Sn13超伝導体、三角格子金属クラスター物質などがその典型例である。更にそれらの新たな電子物性について、スピンゆらぎに基づく遍歴電子理論によって統一的に理解することに成功している。従って本研究は、無機物性化学を含む物性科学において学術的に高い意味をもち、国内・外への波及効果が大きいと言える。

研究成果の概要(英文)：With a combination of frustrate effect and low dimensionality of layered structure, we have performed systematic searches and syntheses of new itinerant-electron transition-metal systems which may show remarkable novel itinerant electron properties, then have performed basic researches in the research field of inorganic solid-state chemistry in order to elucidate their physical and chemical properties both from macroscopic and microscopic view points. As for obtained 2-dimentional itinerant-electron magnetic systems, we have analyzed the systematic data measured mainly by using high-power NMR apparatus in terms of spin-fluctuation theory. In the case of obtained exotic superconductors, the correlation between superconducting transition temperature  $T_c$  and characteristic temperature of spin-fluctuation energy,  $T_0$  has been investigated and established the linear relation between them, These results may lead to the unified picture of itinerant-electron systems.

研究分野：無機物性化学

キーワード：遍歴電子磁性 二次元遍歴電子系 エキゾチック超伝導 フラストレーション効果 核磁気共鳴 遷移金属化合物

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

磁性と超伝導は、無機固体物性化学を含めた固体物性分野での最も重要なテーマであり、新たな遍歴電子磁性体やエキゾチック超伝導体を構築・創生し、新規な電子物性を明らかにすることは、新たなブレイクスルーにつながる研究となる可能性を秘めている。申請者らはこれまで、様々な低次元構造やフラストレート効果を有する化合物に着目し、新物質探索・合成の研究を行い、核磁気共鳴(NMR)法を用いた微視的電子状態の研究を行ってきた。その中で世界に先駆けて  $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$  というフラストレート系パイロクロア型酸化物が超伝導を示すことを初めて見出した (H. Sakai, K. Yoshimura *et al.*, *J. Phys.: Condens. Mat.* **13**, L785 (2001))。この超伝導体の発見はフラストレーション系としては世界で初めてであり、パイロクロア化合物が金属伝導を示す遍歴電子系となると、その大きな磁気フラストレーションを用いた超伝導を示す可能性が非常に注目された。その後、 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$  という  $\text{CoO}_2$  三角格子面を基調とした三角格子超伝導体について研究を行い、Co 価数を明らかにすることによって、この系の超伝導が、フラストレーションを解消するため、Co スピン間の強磁性相互作用を用いることによって起こるエキゾチック超伝導であることを見出している (H. Ohta, K. Yoshimura *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 066404 (2011))。このような流れの中で東工大の細野らによって発見された鉄系超伝導体  $\text{RO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$  ( $R$ =希土類金属) (Y. Kamihara, H. Hosono *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **130**, 3296 (2008)) は、超伝導転移温度  $T_c$  が 50 K 以上にもおよび、基礎・応用研究の両面から世界的に注目され、現在、エキゾチック超伝導体の研究が国内・外で精力的に行われている。

この鉄系超伝導体の関連物質に関して申請者等は、FeAs 面と同様の FeTe(Se)面を有する PbO 型結晶構造の超伝導体  $\text{Fe}(\text{Te}_{1-x}\text{Se}_x)$  系に注目し、 $x=0.0\sim 0.5$  の広範囲にわたって単結晶を合成することに成功し、マクロ電子物性研究や NMR によるミクロな電子物性測定によって、強磁性的な電子相関の強い異常な常伝導状態の振る舞いが超伝導性と密接にかかわっていることを見出している (C. Michioka, K. Yoshimura *et al.*, *Phys. Rev. B* **82**, 064506 (2010))。また、この鉄を基調とした超伝導体と同構造の関連コバルト化合物である  $\text{LaOCoAs}$  において、新たな二次元遍歴電子強磁性の振る舞いも見出された (H. Ohta and K. Yoshimura, *Phys. Rev. B* **79**, 184407 (2009))。その強磁性の振る舞いは、スピンゆらぎ理論の新しい展開の結果、理論構築された新たな臨界現象である「強磁性臨界点では磁化のアロット・プロット ( $M^2$  vs  $H/M$ ) ではなく、磁化の 4 乗プロット ( $M^4$  vs  $H/M$ ) に従う」ことが明らかになり、遍歴電子強磁性の新たな発展へと結びつく展開を見せている (高橋・吉村, “遍歴磁性とスピンゆらぎ” (内田老鶴圃, 2012))。また、122 構造の Co 化合物  $\text{BCo}_2\text{P}_2$  ( $B=\text{Ca, Sr, Ba, R}$ ) 系において遍歴電子磁性が見出され、最近の申請者らによって、 $\text{LaCo}_2\text{P}_2$  と  $\text{CaCo}_2\text{P}_2$  は  $\text{LaOCoAs}$  と同様に二次元遍歴電子強磁性体系であることが見出されている。このような状況から本研究の申請・実施を計画するに至った。

### 2. 研究の目的

磁性と超伝導は、無機固体物性化学を含めた固体物性分野での最も重要なテーマであり、新たな遍歴電子磁性体やエキゾチック超伝導体など、新規量子物性を生み出す新物質の構築・創生は、無機固体物性化学の基礎・応用研究の両分野の発展に大きな貢献をもたらすものである。

本研究では、フラストレート効果と層状・鎖状構造など低次元性との組み合わせによって、異常な遍歴電子物性を示す可能性を有する新規の低次元遍歴電子遷移金属物質群を探索・合成し、その新規電子物性についてのマクロ及びミクロの両面から明らかにする。その物性測定結果の解析と遍歴電子系に対するスピンゆらぎ理論とを比較検討することにより、電子状態・スピンゆらぎを制御し、遍歴クラスター系・エキゾチック超伝導体系や低次元遍歴電子磁性体系の創生のための無機固体物性化学的な基盤を確立することを目的とする。すなわち、本研究では、申請者らがこれまで世界に先駆けて発見・合成してきた様々な遷移金属化合物群をベースとして、新規低次元・フラストレート遍歴化合物群を創生する。低次元性やフラストレーションの観点から電子相関やスピンゆらぎを制御し、新たな遍歴電子磁性体やエキゾチック超伝導体・新規クラスター三角格子磁性体を構築・創生し、新たな電子物性を明らかにし、確立していくことが目的である。

### 3. 研究の方法

フラストレート効果や二次元層状構造などの低次元性の組み合わせ、新規低次元遷移金属物質群の探索・合成を行う。その際、通常固相反応法、フラックス法、化学輸送法に加えて、最近、申請者たちが開発した金属ハイドライド還元法などによる低温合成や、FZ 法、高压合成法を用いることにより幅広く新物質探索・開発を行った。また、上記物質開発で合成された化合物について、X 線回折による温度に依存した精密構造の解析や電気抵抗・磁気・比熱といったマクロ物性評価測定、および、核磁気共鳴・緩和(NMR)、 $\mu$ SR などのミクロ物性評価測定を行い、その実験結果と遍歴電子系に対するスピンゆらぎ理論や厳密対角化法による理論的量子スピン数値計算結果との比較検討を総合して行い、低次元およびフラストレート遍歴系化合物における新規な異常遍歴電子物性について探索・創生およびその固体物性評価することによって確立していくことを目指し、研究を行った。

平成 28 年度から 30 年度まで一貫して、以下の(1)物質探索・合成、(2)基礎的な化学的評価、および、(3)マクロな物性評価を行った上で(4)の NMR,  $\mu$ SR によってミクロな物性測定を行い、

スピンゆらぎや電子相関の物性情報を得て、遍歴系に対するスピンゆらぎ理論および量子スピン系に対する厳密対角化数値計算の理論と比較検討を行った。それによって総合的に新規低次元・フラストレート遍歴電子系の異常物性の探索・創生・構築する研究を行った。

(1) 目的で掲げた酸化物系・カルコゲナイド系やニクタイト系において新規低次元・フラストレート遍歴電子系化合物の探索・合成を行った。

(2) 探索・合成した試料を現有の強力粉末X線回折装置、単結晶用4軸X線回折装置、走査型・透過型電子顕微鏡とそれに付属のEDS分析装置を用いて、結晶構造や化学組成に関する評価を行い、さらに低温・高温X線装置を用いて、X線回折測定を低温(4K)から高温(1000K程度)まで測定し、精密結晶構造解析を行い次元性や対称性について詳細に調べることによって、フラストレート効果や電子系の低次元性と格子系との関係を明らかにする研究を行った。

(3) 合成した試料について現有の電気・熱・磁気測定システムを用いて14Tまでの磁場下で、0.3Kから室温までの電気抵抗測定(四端子法)、磁化および磁化率測定、比熱測定およびホール係数測定を行い、さらに物性研・金道研究室のパルス強磁場を用いた強磁場磁化過程の測定を行うことによって、新規遍歴化合物系のマクロ物性について詳細に調べた。

(4) 合成を行った試料について、購入予定のハイパワーのパルスNMR装置を組み込んだNMR測定、およびNMRと相補的である $\mu$ SR測定のマクロ物性測定によって、新規に創生された遷移金属化合物系について、動的な磁気的性質、すなわちスピンゆらぎについての情報を調べ詳細に解析し、フラストレート系遍歴電子系遷移金属化合物についてのスピンゆらぎ理論や厳密対角化法による量子スピン系理論による数値計算と比較検討を行った。

#### 4. 研究成果

フラストレート効果と層状・鎖状構造など低次元性との組み合わせによって、異常な遍歴電子物性を示す可能性を有する新規の低次元遍歴電子遷移金属物質群を探索・合成し、その新規電子物性についてのマクロ及びミクロの両面から明らかにするため、低次元遍歴電子磁性体についての無機固体物性化学的な基盤研究を行った。以下の4-1.~4-4.の研究テーマについての研究成果について説明する。

##### 4-1. 二次元遍歴電子系超伝導体の構築

ニクタイト系に加え鉄カルコゲナイド系も二次元遍歴電子系として非常に重要であり、最近超伝導が発見されたFe(Te-Se)系およびA(Fe, Ni)<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>系(A=K, Tl, Rb, Cs)に注目した。Fe(Te-Se)系、AFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>系はFeAs層と同じ構造のFe(Te-Se)層を有し、Fe(Te-Se)系では12-14K程度の、AFe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>系では30-35K程度のT<sub>c</sub>を有する超伝導を示すことが報告されている。本研究では、FeとTe-Seの組成の制御に加え、良質単結晶の合成し、さらにはTe層やLa(Te-Se)層などを用いてFe(Te-Se)層間に挿入し、多層構造の形成などによって新物質探索を目指した。また、合成された試料のX線回折実験による結晶の対称性や格子長の温度変化を詳細に調べ、さらにミクロな物性測定を行った。これまでに得られている本系の結果を示す。最近セルフ・フラックス法によって合成された(K-Tl)Fe<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>の単結晶試料を用いてNMRの核スピン・格子緩和率(1/T<sub>1</sub>)測定を行った。その結果、超伝導転移温度T<sub>c</sub>以下で1/T<sub>1</sub>は、T<sub>c</sub>直下でのコヒーレンスピークの欠如、更に低温でべき乗則( $\sim T^3$ )など、強相関係の超伝導に共通の振る舞いが観測されていて異方的エキゾチック超伝導が実現している可能性が高いことが明らかになった。また、ANi<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>系では、4K程度の低温で超伝導を発現するが、NMR測定によって詳細に調べた結果、磁気揺らぎが超伝導発現に寄与していることが確認できた。さらに、A(Co-Fe)<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>(A=K, Tl, Rb, Cs)系を中心とした二次元遍歴電子系では、系統的な合成を試み、そのエキゾチック超伝導では超伝導転移温度T<sub>c</sub>とスピン揺らぎのスペクトル幅のエネルギーの温度スケールT<sub>0</sub>との直線関係について拡張・議論することができた。

##### 4-2. 二次元遍歴電子系強磁性体の構築

LaCoAsO系やLaCo<sub>2</sub>P<sub>2</sub>系は、Coを基調とした二次元遍歴電子強磁性を示すことが明らかになっているが、その強磁性の振る舞いは、スピンのゆらぎの理論の新しい展開の結果明らかになった。すなわち強磁性臨界点近傍では磁化のアロット・プロット(M<sup>2</sup> vs H/M)が上に凸で直線とならず、磁化の四乗プロット(M<sup>4</sup> vs H/M)が直線的となるのである。この振舞いは、磁化が臨界点で連続であり、また、スピンゆらぎのゼロ点ゆらぎの項と熱ゆらぎの項の総和が一定であると言うことを仮定した、高橋によるスピンゆらぎの新しい理論展開によって明らかになった振舞いとよく一致する(高橋・吉村, 「遍歴電子とスピンゆらぎ」(内田老鶴圃, 2012))。また、SrCo<sub>2</sub>P<sub>2</sub>は二次元の交換増強されたPauli常磁性体であって、50T程度の強磁場を印加することによって常磁性から強磁性へと転移する、いわゆる遍歴電子メタ磁性転移が見出され注目されているが、パルス強磁場によるSr<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>Co<sub>2</sub>P<sub>2</sub>(x<0.5)についての強磁場磁化測定の結果、x=0, 0.2では遍歴電子系のメタ磁性転移が二段に観測されることが明らかになってきている。この二段の遍歴電子メタ磁性転移はスピン揺らぎを繰り込んだ理論でない説明できないことが明確となった。このCo122系ではLaCo<sub>2</sub>P<sub>2</sub>がLaCoAsOと同様に二次元遍歴電子強磁性体であり、CaCo<sub>2</sub>P<sub>2</sub>は面内強磁性、面間反強磁性のいわゆるAタイプの遍歴電子反強磁性体で、これらの物性は、二次元構造と深く関わっている。LaCo<sub>2</sub>P<sub>2</sub>の単結晶試料を用いた磁化曲線を詳細に行った結果、非常に大きな磁気異方性を示し、低温では5~6Tの大きな異方性磁界を有している。この異方性磁界の大きさはA(Co, Fe)<sub>2</sub>Se<sub>2</sub>(A=K, Cs, Rb, Tl)系では10Tを超えることも明らか

になった。また、 $\text{LaCo}_2\text{As}_2$ では $c$ 軸異方性( $c$ 軸が容易磁化方向)となることが明らかになり(他の試料では面内が容易磁化方向)、実用面からも注目されている。この振る舞いに関して導入したNMR装置を用い、容易磁化方向も含めて、異方性磁場を決定することに成功した。これらの系では10Tを超える非常に大きな異方性磁界を有し、Se系、P系とAs系でその異方性の方向が面内と面直と全く異なっていることが明らかになって、重要な結果であると考えられる。さらに $\text{LaCo}_2\text{P}_2$ の単結晶を用いてNMR測定を行い、スピンゆらぎの理論によって定量的に解析し、二次元遍歴電子強磁性の振る舞いを微視的に明らかにすることができた。

二次元遍歴電子強磁性については、スピンゆらぎの観点から解析を行い、 $T_C$ 近傍での $M^4$ - $H/M$ の直線性が明らかになった。また、有効磁気モーメント $p_{\text{eff}}$ 、自発磁気モーメント $p_s$ 、キュリー温度 $T_C$ 、スピンゆらぎのエネルギー幅 $T_0$ の間に、 $p_{\text{eff}}/p_s=1.4(T_C/T_0)^{-2/3}$ という3次元遍歴系に成り立つユニバーサルな関係から、その係数が $1.4 \rightarrow 1.0$ の方向に変化し、二次元的な遍歴電子の振る舞いが成り立つことを明らかになった。この関係は、 $\text{LaCo}_2\text{P}_2$ 、 $\text{LaCo}_2\text{As}_2$ や今回新たに得られた全ての二次元遍歴電子強磁性系で成立していることが確認され、遍歴電子の統一理論のへと向かっていることを示すことができた。スピンゆらぎの観点から、本系の系統的な二次元遍歴電子の振る舞いを統一的な理解に近づいたが、NMR装置の確立と、それを用いたスピン格子緩和率( $1/T_1$ )測定と定量的な解析法の確立が大きな役割を果たしたと言える。

#### 4.3. 新規遍歴電子系の構築

さらに新規な遍歴電子物性を示す可能性を有する新規低次元遍歴電子遷移金属物質群として、新たな二次元遍歴電子系化合物 $\text{RCo}_9\text{Si}_4$ (Rは希土類元素)に注目し研究を行った。その中でも $\text{LaCo}_9\text{Si}_4$ と $\text{YCo}_9\text{Si}_4$ に的を絞って研究を行った。その結果、 $\text{LaCo}_9\text{Si}_4$ では遍歴電子強磁性発現寸前の交換増強されたパウリ常磁性体であり、 $\text{YCo}_9\text{Si}_4$ ではキュリー温度 $T_C=20\text{K}$ の遍歴電子強磁性体であることが明らかになった。これらに対し磁化 $M$ の磁場 $H$ 依存系を系統的に測定し、 $\text{LaCo}_9\text{Si}_4$ では低温で遍歴電子メタ磁性転移が臨界磁場9T辺りで観測された。また、 $\text{YCo}_9\text{Si}_4$ では、 $T_C$ 近傍では、アロット・プロットではなく、 $M^4$ が $H/M$ に対して直線的になり、スピン揺らぎの高橋理論に従うことが明らかになった。この関係から、スピン揺らぎの波数ベクトルに依存したスペクトル幅に対応する温度スケール $T_A$ をスピン揺らぎ理論を通して求めることができた( $T_A=17200\text{K}$ )。さらにNMR実験により、核スピン-格子緩和率( $1/T_1$ )と磁化率( $\chi$ )とのスケールリングから、スピン揺らぎスペクトルのエネルギー幅に対応する温度スケール $T_0$ が求められた( $T_0=1460\text{K}$ :  $\text{LaCo}_9\text{Si}_4$ 、 $T_0=761\text{K}$ :  $\text{YCo}_9\text{Si}_4$ )。これらを用い、二次元遍歴強磁性体に対するスピン揺らぎ理論でつじつまの合う解析ができ、実験結果を上手く再現することができた。

さらに、エキゾチック超伝導の新規物質に関しては、籠状構造を有する強結合超伝導体 $\text{A}_3\text{B}_4\text{Sn}_{13}$ ( $\text{A}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{La}$ ;  $\text{B}=\text{Co}, \text{Rh}, \text{Ir}$ )において、構造相転移の量子臨界点と超伝導転移温度の関係が明らかになり、格子振動のラットリングと強磁性的なスピン揺らぎの関係が超伝導発現に重要であることが明らかになってきた。

#### 4.4. 新規フラストレート系の構築

新規フラストレート系としては、Cr弗化スピネルやパイロクロア弗化酸化物系を取り上げ探索・合成し研究を行った。秩序型パイロクロア弗化物における二次元カゴメ格子を形成する系として $\text{Cs}_2\text{KCr}_3\text{F}_{12}$ や $\text{Cs}_2\text{NaCr}_3\text{F}_{12}$ などの合成に成功した。それらの磁化率測定や強磁場磁化過程の結果、カゴメ格子上の歪によって交換相互作用 $J$ に不均一性が生じ、低温でギャップタイプになる系とギャップレスタイプになる系が実験的に見つかった。構造解析から決定された格子の歪を用いて、第一原理計算、厳密対角化数値計算によって、その振る舞いを理論的に説明することにも成功した。

また三角格子クラスター磁性体 $\text{Li}_2\text{ScMo}_3\text{O}_8$ では、 $\text{Mo}_3$ -クラスターが $S=1/2$ を有し、最低温まで磁気秩序を示さないことが明らかになったが、これに関して、 $\text{Mo}_3$ -クラスターの遍歴性によって、スピン液体的状態を示している可能性が高く、NMR、 $\mu\text{SR}$ 測定などのマイクロで詳細な実験を行った。その結果、最低温まで磁気秩序を示さないことがマイクロな実験からも明らかになった。このことはフラストレート系遍歴電子における新たな描像を与えるものであり、今後の展開がさらに期待される。

### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 23 件)(以下の17件、および、その他(査読有)6件)

1. Jun Sugiyama, Hiroshi Nozaki, Izumi Umegaki, Takeshi Uyama, Kazutoshi Miwa, Jess H. Brewer, Shintaro Kobayashi, Chishiro Michioka, Hiroaki Ueda, and Kazuyoshi Yoshimura, "Static magnetic order on the metallic triangular lattice in  $\text{CrSe}_2$  detected by  $\mu^+\text{SR}$ ", *Phys. Rev. B*, 査読有, **94**, 2016, 014408/1-5.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.014408
2. Masato Goto, Hiroaki Ueda, Chishiro Michioka, Akira Matsuo, Koichi Kindo, and Kazuyoshi Yoshimura, "Various disordered ground states and 1/3 magnetization-plateau-like behavior in the  $S=1/2$   $\text{Ti}^{3+}$  kagome lattice antiferromagnets  $\text{Rb}_2\text{NaTi}_3\text{F}_{12}$ ,  $\text{Cs}_2\text{NaTi}_3\text{F}_{12}$ , and  $\text{Cs}_2\text{KTi}_3\text{F}_{12}$ ", *Phys. Rev. B*, 査読有, **94**, 2016, 104432/1-10.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.104432
3. Masaki Imai, Chishiro Michioka, Hiroaki Ueda, and Kazuyoshi Yoshimura, "NMR investigation of spin fluctuations in the itinerant-electron magnetic compound  $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Co}_2\text{P}_2$ ", *Phys. Rev. B*,

査読有, **95**, 2017, 054417/1-7.

DOI: 10.1103/PhysRevB.95.054417

4. Yuya Haraguchi, Chishiro Michioka, Manabu Ishikawa, Yoshiaki Nakano, Hideki Yamochi, Hiroaki Ueda, and Kazuoyoshi Yoshimura, “Magnetic-Nonmagnetic Phase Transition with Interlayer Charge Disproportionation of Nb<sub>3</sub> Trimers in the Cluster Compound Nb<sub>3</sub>Cl<sub>8</sub>” *Inorg. Chem.*, 査読有, **56**, 2017, 3483-3288.  
DOI: 10.1021/acs.inorgchem.6b03028
5. Masato Goto, Hiroaki Ueda, Chishiro Michioka, Akira Matsuo, Koichi Kindo, Kento Sugawara, Shintaro Kobayashi, Naoyuki Katayama, Hiroshi Sawa, and Kazuoyoshi Yoshimura, “Ising-like anisotropy stabilized 1/3 and 2/3 magnetization plateaus in the V<sup>3+</sup> kagome lattice antiferromagnets Cs<sub>2</sub>KV<sub>3</sub>F<sub>12</sub>, Cs<sub>2</sub>NaV<sub>3</sub>F<sub>12</sub>, and Rb<sub>2</sub>NaV<sub>3</sub>F<sub>12</sub>”, *Phys. Rev. B*, 査読有, **95**, 2017, 134436/1-10.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.134436
6. Y. J. Hu, Y. W. Cheung, W. C. Yu, Masaki Imai, Hibiki Kanagawa, Joichi Murakawa, Kazuoyoshi Yoshimura, and Swee K. Goh, “Soft phonon modes in the vicinity of the structural quantum critical point”, *Phys. Rev. B*, 査読有, **95**, 2017, 155142/1-5.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.155142
7. Hiroaki Ueda, Yasuaki Tanioku, Chishiro Michioka, and Kazuoyoshi Yoshimura, “Magnetocrystalline anisotropy of La- and Co-substituted M-type strontium ferrites: Role of Co<sup>2+</sup> and Fe<sup>2+</sup>”, *Phys. Rev. B*, 査読有, **95**, 2017, 224421/1-6.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.224421
8. K. Nawa, M. Takigawa, S. Krämer, M. Horvatić, C. Berthier, M. Yoshida and K. Yoshimura, “Dynamics of Bound Magnon Pairs in the Quasi-One-Dimensional Frustrated Magnet LiCuVO<sub>4</sub>” *Phys. Rev. B*, 査読有, **96**, 2017, 134423/1-6.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.96.134423
9. Yao Zhang, J-S. Chen, J. Ma, J. Ni, Masaki Imai, Chishiro Michioka, Yuta Hadano, Marcos A. Avila, Toshiro Takabatake, and Kazuoyoshi Yoshimura, “Transitions from a Kondo-like diamagnetic insulator into a modulated ferromagnetic metal in FeGa<sub>3-y</sub>Ge<sub>y</sub>”, *PNAS*, 査読有, **115**, 2018, 3273–3278.  
[www.pnas.org/cgi/doi/10.1073/pnas.1713662115](http://www.pnas.org/cgi/doi/10.1073/pnas.1713662115)
10. Alisa Shimada, Hiroki Nakano, Tōru Sakai, and Kazuoyoshi Yoshimura, “The Spin-1/2 Triangular-Lattice Heisenberg Antiferromagnet with  $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Type Distortion Behavior around the Boundaries of the Intermediate Phase”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, **87**, 2018, 034706/1-7.  
<https://doi.org/10.7566/JPSJ.87.034706>
11. Nupur Bhakta, Tatsuki Inamori, Ryu Shirakami, Yasuaki Tanioku, Kazuoyoshi Yoshimura, and Pabitra Kumar Chakrabarti, “Magnetic orderings and their analyses by bound magnetic polaron model of Yb<sup>3+</sup> doped nanocrystalline zinc oxide (Zn<sub>0.98</sub>Yb<sub>0.02</sub>O)”, *Materials Research Bulletin*, 査読有, **104**, 2018, 6-14.  
<https://doi.org/10.1016/j.materresbull.2018.03.020>
12. Shintaro Kobayashi, Hiroaki Ueda, Chishiro Michioka, Kazuoyoshi Yoshimura, Shin Nakamura Takuro Katsufuji, and Hiroshi Sawa, “Anomalous double-stripe charge ordering in  $\beta$ -NaFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> with double triangular layers consisting of almost perfect regular Fe<sub>4</sub> tetrahedra”, *Physical Review Materials*, 査読有, **2**, 2018, 054402/1-6.  
DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.2.054402
13. Hiroaki Ueda, Hikaru Shakudo, Hiroaki Santo, Yutaro Fujii, Chishiro Michioka, and Kazuoyoshi Yoshimura, “Magnetocrystalline Anisotropy of Single Crystals of M-, X-, and W-Type Strontium Hexaferrites”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, **87**, 2018, 104706/1-5.  
DOI: <https://doi.org/10.7566/JPSJ.87.104706>
14. Masato Goto, Hiroaki Ueda, Chishiro Michioka, Akira Matsuo, Koichi Kindo, Kento Sugawara, Shintaro Kobayashi, Naoyuki Katayama, Hiroshi Sawa, and Kazuoyoshi Yoshimura, “In-plane spin canting and 1/3-magnetization-plateaulike behavior in S = 3/2 Cr<sup>3+</sup> kagome lattice antiferromagnets Cs<sub>2</sub>KCr<sub>3</sub>F<sub>12</sub> and Cs<sub>2</sub>NaCr<sub>3</sub>F<sub>12</sub>”, *Phys. Rev. B*, 査読有, **97**, 2018, 224421/1-8.  
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.224421>
15. Yuya Haraguchi, Chishiro Michioka, Akira Matsuo, Koichi Kindo, Hiroaki Ueda, and Kazuoyoshi Yoshimura, “Magnetic ordering with an XY-like anisotropy in the honeycomb lattice iridates ZnIrO<sub>3</sub> and MgIrO<sub>3</sub> synthesized via a metathesis reaction”, *Phys. Rev. Materials*, 査読有, **2**, 2018, 054411/1-6.  
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.2.054411>
16. H. Sakai, T. Hattori, Y. Tokunaga, and S. Kambe, H. Ueda, Y. Tanioku, C. Michioka, K. Yoshimura, K. Takao, A. Shimoda, T. Waki, Y. Tabata, and H. Nakamura, “Occupation sites and valence states of Co dopants in (La, Co)-codoped M-type Sr ferrite: <sup>57</sup>Fe and <sup>59</sup>Co nuclear magnetic resonance studies”, *Phys. Rev. B*, 査読有, **98**, 2018, 064403/1-10.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.98.064403
17. Y. W. Cheung, Y. J. Hu, M. Imai, Y. Tanioku, H. Kanagawa, J. Murakawa, K. Moriyama, W. Zhang,

K. T. Lai, K. Yoshimura, F. M. Grosche, K. Kaneko, S. Tsutsui, and Swee K. Goh, “Evidence of a structural quantum critical point in  $(\text{Ca}_x\text{Sr}_{1-x})_3\text{Rh}_4\text{Sn}_{13}$  from a lattice dynamics study”, *Phys. Rev. B*, 査読有, **98**, 2018, 161103(R)/1-5.

DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.161103>

〔学会発表〕 (計 86 件)

(国際会議, 以下の2件を含め15件)

1. The 21st International Conference on Solid Compounds of Transition Elements (SCTE2018)  
日時: 2018, March 25-29 (11:00~11:30), 場所: Technical University of Wien (TUW), Vienna (Wien), Austria  
講演番号: We-A1i (March 28) 招待講演, タイトル: Recent Progress in Itinerant Magnetism and Spin Fluctuations in Intermetallics and Compounds, 著者: Kazuyoshi Yoshimura
2. 2018 International Conference on Electronics Packaging and IMAPS All Asia Conference (ICEP-IAAC 2018)  
日時: 2018, April 17-21 (16:00~17:00), 場所: Hotel Hanamizuki, Kuwana, Japan  
講演番号: Keynote Lecture (Wednesday, April 18, 16:00~17:00) 基調講演, タイトル: Magnetism and Superconductivity, 著者: Kazuyoshi Yoshimura  
(国内学会 (日本物理学会、粉体粉末冶金協会の春秋大会において), 71件)

〔図書〕 (計 1 件)

1. Kazuyoshi Yoshimura (共著), シュプリンガー (English), “The Kyoto Manifesto for Global Economics, Creative Economy”, ([https://doi.org/10.1007/978-981-10-6478-4\\_9](https://doi.org/10.1007/978-981-10-6478-4_9), ISBN 978-981-10-6477-7; ISBN 978-981-10-6478-4 (eBook)), Chapter 9 “Zero and Emptiness (Vacuum/Void) in Physics and Chemistry”, 15 pages (pp.141-155), (Eds. S. Yamash'ta, T. Yagi and S. Hill, 2018年2月, Springer).

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<https://research-er.jp/researchers/view/199595>

<http://www.sci.kyoto-u.ac.jp/ja/research/researcher/kazuyoshiyoshimura-ch.html>

## 6. 研究組織

### (1) 研究分担者

研究分担者氏名: 植田 浩明  
ローマ字氏名: Ueda, Hiroaki  
所属研究機関名: 京都大学  
部局名: 理学研究科  
職名: 准教授  
研究者番号 (8桁): 10373276

研究分担者氏名: 道岡 千城  
ローマ字氏名: Michioka, Chishiro  
所属研究機関名: 京都大学  
部局名: 理学研究科  
職名: 助教  
研究者番号 (8桁): 70378595

### (2) 研究協力者

研究協力者氏名: 金道 浩一  
ローマ字氏名: Kindo, Koichi

研究協力者氏名: 坂井 徹  
ローマ字氏名: Sakai, Toru

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。