

科学研究費補助金研究成果報告書

平成24年6月8日現在

機関番号：12601
研究種目：特定領域研究
研究期間：2007～2011
課題番号：19052003
研究課題名（和文） フラストレーションと量子伝導

研究課題名（英文） Frustration and Quantum Transport

研究代表者

常次 宏一 (TSUNETSUGU HIROKAZU)
東京大学・物性研究所・教授
研究者番号：80197748

研究成果の概要（和文）：

幾何学的フラストレーションが本質的な役割を果たす典型物質試料の純良化に成功するとともに、多くの新物質を発見した。さらにフラストレート系において出現するカイラリティなどの非自明揺らぎが関与する輸送特性の観測に成功するとともに、量子ベリー位相のもたらす新しい輸送現象の理論的予言を与えた。また、フラストレート系の磁気揺らぎが金属絶縁体転移に及ぼす影響をその電気伝導の臨界性ととも明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

We have succeeded in purification of various standard materials with geometrical frustration and also discovered many new frustrated materials. We have observed transport properties where unconventional fluctuations like chirality play an essential role. We also have made theoretical predictions of transport phenomena originating from quantum Berry phase. We have also demonstrated the effects of frustrated spin fluctuations on metal-insulator transition, and shown a new criticality in electric transport.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	34,700,000	0	34,700,000
2008年度	34,100,000	0	34,100,000
2009年度	29,800,000	0	29,800,000
2010年度	26,400,000	0	26,400,000
2011年度	13,300,000	0	13,300,000
総計	138,300,000	0	138,300,000

研究分野： フラストレーションが創る新しい物性

科研費の分科・細目： 物理学・物性Ⅱ

キーワード： フラストレート系、物性実験、物性理論、磁性、量子伝導

1. 研究開始当初の背景

フラストレート系の研究は量子スピン系を中心に日本及び欧米諸国で盛んに行われていた。LiV₂O₄の重い電子系の振舞いの発見を契機にして、伝導電子系においてフラストレーションと電子間の強相関効果の協奏に

より新奇物性が出現する可能性が注目され始めていた。フラストレート金属における特異な低エネルギー励起が伝導電子と相互作用することによる、新奇量子輸送現象はその典型例として期待された。また、フラストレート系の励起のもつ量子ベリー位相の効果

がどのように輸送係数に反映されるのかも重要な問題であるとの認識が広がりはじめていた。

2. 研究の目的

研究開始時点までにフラストレートしたスピン系において特異な磁気的性質が多く発見されていた。本研究計画の目的はフラストレート効果が顕著な強相関金属および量子スピン系においてその量子輸送現象の特質を明らかにすると共に、その結果を応用して量子臨界性を利用した磁場、圧力などの輸送係数の制御が展望されるような新しい知見を得ることである。

そのために、フラストレート系の新物質探索および純良試料の合成と、それを用いた精密な磁性および輸送特性の測定を目指す。また、理論的にはフラストレートして格子上のクーロン斥力の強い遍歴電子系の電子状態および輸送係数の研究を行う。また、異常ホール効果やスピンホール効果の研究を理論的、実験的に行い、量子ベリー位相の伝導現象への効果を解明する。

3. 研究の方法

まず、新しいフラストレート格子伝導物質の探索のために、様々な固体化学的無機化合物合成手法（固相反応、水熱反応、化学輸送法等）を用いた。また、純良単結晶を主にフラックス法を用いて合成した。

得られた新物質、純良試料において磁性と伝導の相関を調べるために、磁化、比熱などの基礎熱力学量および、電気抵抗、ホール係数などの輸送係数の測定を行った。測定は室温から、希釈冷凍機の温度の範囲まで、さらには、高磁場 9 T までの範囲で行った。また、領域外の研究者とも協力して、放射光 X 線構造解析、中性子回折、ミュンオンスピン共鳴実験など、多角的な測定を行った。

また、特に金属クラスター系に注目した異常現象の探索、カノニカルスピングラス系における臨界現象・磁場効果の観測、磁場勾配によるスピン流の誘起と検出の試み等も行った。

さらに、電子相の競合に起因した輸送現象の巨大応答の発現を目指した。三角格子を含む物質系を合成し、その磁気抵抗の変化率および X 線回折を測定した。またスピン・カイラリティに起因する物性を探索するため、パイロクロア型酸化物を合成し熱電効果および横応答、誘電率等を測定した。

理論研究では、まず伝導電子系におけるフラストレーション効果を調べるため、解析的な手法として実空間繰込み群に基づく低エ

ネルギー有効ハミルトニアン構築および解析を行うとともに、数値的手法としては、フラストレートクラスターを用いた動的平均場法に基づく大規模並列計算を行った。また、局在スピン系におけるトポロジカルな量子ベリー位相の効果に起因するマグノンのホール効果を調べるために、半古典近似による波束の運動方程式の解析と微視的モデルに対するスピン波の計算を用いた研究を行った。

4. 研究成果

フラストレート格子伝導物質の探索の結果、多くの新物質を発見するとともに、それらの物質における新しい現象を観測した。新しい三角格子電気伝導物質 Ag_2NiO_2 、 Ag_2MnO_2 を合成し、電気伝導性と磁性および軌道状態の相関を研究した。さらにパイロクロア遍歴電子反強磁性体として期待される $\text{YMn}_2\text{Zn}_{20}$ を合成し、Mn パイロクロア格子の弱い反強磁性相関とそれに起因すると思われる重い電子状態を発見した。また、星形四面体格子を内包する η カーバイト型化合物を開拓した。同格子では構成元素の違いや外場により多彩な現象が期待されるが、これまでに特異な量子臨界現象や遍歴電子メタ磁性等を見出した。金属クラスター系ではクラスタースピン重項状態を形成する GaNb_4S_8 や高スピングラス状態とスピン重項状態が競合・混在する $\text{V}_4\text{S}_9\text{Br}_4$ 等、いくつかの興味深い物質を開拓した。

Yb 系化合物 $\beta\text{-YbAlB}_4$ の純良単結晶の精密磁気測定から、この物質の量子臨界点が金属では初めて実質的にゼロ磁場に存在することを発見した。この量子臨界現象は温度を下げるだけで自発的に現れるため、特異点周りの異常な金属状態の解明に役立つだけでなく、量子臨界相、あるいは、スピン液体相という新しい金属相の実現の可能性を示唆する。

フラストレーションによる異常な磁気伝導効果、および、新しい量子現象の可能性に注目して研究を行ってきた結果、パイロクロア型金属磁性体 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の 2 K 以下のスピン液体状態において、ホール抵抗が温度・磁場の変化に対して大きな履歴現象を示すことを見出した。この 2 K 以下、スピン凍結温度 0.3 K 以上の低温状態では、スピンアイス相関が発達することで 4f モーメントがカイラリティなどの高次の自由度を使って時間反転対称性を破ったカイラルスピン液体相を形成することが示唆される。

銅鉱物ボルボサイトおよびベシニエイトにおけるスピン 1/2 カゴメ格子の研究を行った。乱れの影響を少なくした試料において、

特異な基底状態や磁場誘起逐次相転移を発見した。また、両物質において強磁場での磁化測定の結果から、通常期待される $1/3$ ではなく $2/5$ に対応する値において磁化プラトーを観測した。また、 $S=1/2$ の三角格子系と考えられていた $\text{Ba}_3\text{CuSb}_2\text{O}_9$ の結晶構造が蜂の巣格子を基調とした短距離の構造を持つことを発見し、フラストレーション効果として軌道の秩序が抑えられると同時に、低温で量子スピン液体が乱れにも関わらず実現する可能性を指摘した。さらに、 $S=1$ の2次元三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 の純良単結晶を用いた、磁性に関する多角的な手法で実験を進め、低温 8 K で2次元磁性に特有な新しい磁気相転移を示唆する結果を得た。これは三角格子のハイゼンベルグスピンに特有な Z_2 vortex の発生によるだけでなく、整数スピンに特有な biquadratic 相互作用等による量子効果が重要な可能性が明らかになった。

パイロクロア型モリブデン酸化物において、スピン・カイラリティーに起因するネルンスト効果(熱電効果の横応答)を実証した。有機三角格子系 $(\text{BEDT-TTF})_2\text{RbZn}(\text{SCN})_4$ において、2倍周期と3倍周期の電荷秩序が共存するが、両者の競合によって非線形伝導効果が観測される事をX線回折実験で示した。希土類化合物 SmNiC_2 では電荷密度波と強磁性金属相が競合しているが、磁場印加によって電荷密度波をスイッチングする事に成功し、巨大磁気抵抗を観測した。磁気抵抗率は従来の希土類化合物の最高値を上回るものであった。希土類化合物 GdNiC_2 において、8種類の電子相が関わる逐次相転移を発見し、超格子の波数の逐次的変化も見出した。

理論研究では、フラストレートした強相関電子系の代表として、三角格子ハバード模型のモット金属絶縁体転移に関する研究を中心に行った。フラストレーションが部分的に解放されている場合には、リエントラント転移が実現し、有機導体 κ -ET 塩の実験結果が説明できることを示した。また、転移点近傍における電気伝導度の計算を行い、光学伝導度の低エネルギー重みが示す臨界性を発見した。さらに、その臨界指数が従来期待されていた熱力学量と同じものでは無い事を示し、フラストレートした電子の量子伝導の新しい様相を明らかにした。また、重い電子的振舞を示す LiV_2O_4 の低エネルギー有効模型を実空間繰込み群の手法を用いて構築する事に成功し、電子ダイナミクスにおける軌道とスピンのエンタングルメントの重要性を指摘した。

量子ベリー位相に関係する理論として、電荷の自由度のない局在スピン系においてスピン波のホール効果の研究を行い、この効果

が可能であることを理論的に明らかにした。その機構は、フラストレート磁性体に典型的なスピン・カイラリティーに起因するトポロジカルな量子ベリー位相によるものであることを明らかにした。さらに、実際にスピン波のホール効果を示す現実的なフラストレート磁性体のモデルを提案した。また、電子系における異常ホール効果と同様に無散逸伝導を示す内因性機構と散逸的伝導を示す外因機構が、マグノン・ホール効果でも可能であることを明らかにした。また、この理論結果に触発されて、磁場勾配誘起スピン流の熱的観測を試み、実験データを蓄積した。

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 154 件)

- ① S. Nakatsuji(筆頭), 他15名, Spin-Orbital Short-Range Order on a Honeycomb-Based Lattice, *Science*, vol. 336, pp. 559-563, 2012年, 査読有, DOI: 10.1126/science.121215
- ② N. Hanasaki(筆頭), Y. Nogami(2番目), 他4名, Magnetic field switching of the charge-density-wave state in the lanthanide intermetallic SmNiC_2 , *Phys. Rev. B*, vol.85, 092402/1-5, 2012年, 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.85.092402
- ③ K. Hattori, H. Tsunetsugu, Phonon Dynamics and Multipolar Isomorphic Transition in β -Pyrochlore KOs_2O_6 , *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol.80, 023714/1-4, 2011年, 査読有, DOI: 10.1143/JPSJ.80.023714
- ④ Y. Okamoto(筆頭), Z. Hiroi(6番目), 他4名, Magnetization plateaus of the spin-1/2 kagome antiferromagnets volborthite and vesignieite, *Phys. Rev. B*, vol.83, 180407/1-4, 2011年, 査読有, DOI:10.1103/PhysRevB.83.180407
- ⑤ Y. Matsumoto(筆頭), S. Nakatsuji(2番目), 他7名, Quantum Criticality without Tuning in the Mixed Valence Compound β - YbAlB_4 , *Science*, vol.331, 316-319, 2011年, 査読有, DOI: 10.1126/science.1197531
- ⑥ T. Waki(筆頭), H. Nakamura(10番目), 他8名, Interplay between quantum criticality and geometric frustration in $\text{Fe}_3\text{Mo}_3\text{N}$ with stella quadrangula lattice, *EPL*, vol.94 (3), 37004/1-6, 2011年, 査読有, DOI:10.1209/0295-5075/94/37004
- ⑦ S. Fujimoto, Spin Nematic State as a Candidate of the Hidden Order Phase of URu_2Si_2 , *Phys. Rev. Lett.*, vol.106, 196407/1-4, 2011年, 査読有,

- DOI:10.1103/PhysRevLett.106.196407
- ⑧ N.Hanasaki(筆頭), Y.Nogami(4番目), 他5名, Successive transition in Rare-earth intermetallic compound GdNiC_2 , Journal of Physics: Conference Series, vol.320, 012072/1-4, 2011年, 査読有, DOI:10.1088/1742-6596/320/1/012072
- ⑨ M.E. Zhitomirsky, H. Tsunetsugu, Magnon pairing in quantum spin nematic, Europhysics Letters, vol.92, 37001/1-5, 2010年, 査読有, DOI:10.1209/0295-5075/92/37001
- ⑩ Y. Okamoto (筆頭), Z. Hiroi (5番目), 他3名, Itinerant-Electron Magnet of the Pyrochlore Lattice: Indium-Doped $\text{YMn}_2\text{Zn}_{20}$, J. Phys. Soc. Jpn. vol.79, 093712/1-4, 2010年, 査読有, DOI:10.1143/JPSJ.79.093712
- ⑪ Y. Machida (筆頭), S. Nakatsuji (2番目), 他3名, Time-reversal symmetry breaking and spontaneous Hall effect without magnetic dipole order, Nature, vol.463, 210-213, 2010年, 査読有, DOI:10.1038/nature08680
- ⑫ S. Nakatsuji (筆頭), 他2名, Novel Geometrical Frustration Effects in the Two-Dimensional Triangular-Lattice Antiferromagnet NiGa_2S_4 and Related Compounds, J. Phys. Soc. Jpn., vol.79, 011003/1-16, 2010年, 査読有, DOI:10.1143/JPSJ.79.011003
- ⑬ Y. Tabata (筆頭), H. Nakamura (6番目), 他8名, Existence of a Phase Transition under Finite Magnetic Field in the Long-Range RKKY Ising Spin Glass $\text{Dy}_x\text{Y}_{1-x}\text{Ru}_2\text{Si}_2$, J. Phys. Soc. Jpn., vol.79 (12), 123704/1-4, 2010年, 査読有, DOI: 10.1143/JPSJ.79.123704
- ⑭ T. Waki (筆頭), H. Nakamura (10番目), 他8名, Non-Fermi-liquid behavior on an iron-based itinerant electron magnet $\text{Fe}_3\text{Mo}_3\text{N}$, J. Phys. Soc. Jpn., vol.79 (4), 043701/1-4, 2010年, 査読有, DOI:10.1143/JPSJ.79.043701
- ⑮ M. Sato, S. Fujimoto, Existence of Majorana Fermions and Topological Order in Nodal Superconductors, Phys. Rev. Lett., vol.105, 217001/1-4, 2010年, 査読有, DOI:10.1103/PhysRevLett.105.217001
- ⑯ Y.Nogami(筆頭), N.Hanasaki(2番目), Y.Noda(9番目), 他9名, Charge order competition leading to nonlinearity in organic thyristor family, J. Phys. Soc. Jpn., vol.79, 044606/1-5, 2010年, 査読有, DOI:10.1143/JPSJ.79.04460
- ⑰ K. Hattori, H. Tsunetsugu, Effective Hamiltonian of three-orbital Hubbard model on pyrochlore lattice: application to LiV_2O_4 , Phys. Rev. B, vol.79, 035115/1-25, 2009年, 査読有, DOI:10.1103/PhysRevB.79.035115
- ⑱ Y. Okamoto (筆頭), Z. Hiroi (3番目), 他1名, Vesignieite $\text{BaCu}_3\text{V}_2\text{O}_8(\text{OH})_2$ as a Candidate Spin-1/2 Kagome Antiferromagnet, J. Phys. Soc. Jpn. vol.78(3), 033701/1-4, 2009年, 査読有, DOI:10.1143/JPSJ.78.033701
- ⑲ S. Fujimoto: Hall effect of spin waves in frustrated magnets, Phys. Rev. Lett., vol.103, 047203/1-4, 2009年, 査読有, DOI:10.1103/PhysRevLett.103.047203
- ⑳ M. Sato, Y. Takahashi, S. Fujimoto, Non-Abelian Topological Order in s-Wave Superfluids of Ultracold Fermionic Atoms, Phys. Rev. Lett., vol.103, 020401/1-4, 2009年, 査読有, DOI:10.1103/PhysRevLett.103.020401
- ㉑ T. Ohashi (筆頭), H. Tsunetsugu (3番目), 他2名, Finite Temperature Mott Transition in Hubbard Model on Anisotropic Triangular Lattice, Phys. Rev. Lett. vol.100, 076402/1-4, 2008年, 査読有, DOI:10.1103/PhysRevLett.100.076402
- ㉒ H. Yoshida (筆頭), Z. Hiroi (6番目), 他4名, Unique phase transition on spin-2 triangular lattice of Ag_2MnO_2 , J. Phys. Soc. Jpn., vol.77(7), 074719/1-4, 2008年, 査読有, DOI:10.1143/JPSJ.77.074719
- ㉓ T. Koyama (筆頭), H. Nakamura (7番目), 他5名, Frustration-induced valence bond crystal and its melting in Mo_3Sb_7 , Phys. Rev. Lett. vol.101, 126404/1-4, 2008年, 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevLett.101.126404
- ㉔ N.Hanasaki (筆頭), Y.Onose (3番目), S.Iguchi (5番目), S.Onoda (8番目), 他6名, Anomalous nernst effects in pyrochlore molybdates with spin chirality, Phys. Rev. Lett., vol.100, 106601/1-4, 2008年, 査読有, DOI:10.1103/PhysRevLett.100.106601

[学会発表] (計 399 件)

- ① S. Fujimoto, “Spin nematic scenario for the hidden order phase of URu_2Si_2 ”, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems SCES 2011, 2011年8月30日, ケンブリッジ(イギリス)
- ② S. Nakatsuji, “Time-reversal symmetry breaking and spontaneous Hall effect without magnetic dipole order in $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ ”, American Physical Society March Meeting, Symposium on “Gapless Spin Liquids”, 2011年3月23日, デンバー(米国)
- ③ N.Hanasaki, “Successive Transition in Rare-Earth Intermetallic Compound GdNiC_2 ”, International Conference on Frustration in Condensed Matter, 2011年1月12日, 仙台
- ④ H. Nakamura 他4名, “Geometric frustration

in itinerant electron magnets”, International Conference on Magnetic Materials 2010, 2010年10月29日, コルカタ (インド)

- ⑤ Z. Hiroi, “Highly frustrated magnets of current interest”, Highly Frustrated Magnetism 2010, 2010年8月4日, ボルチモア (米国)
- ⑥ N. Hanasaki, “Photoemission Spectra in Phthalocyanine-molecular Conductor Exhibiting Giant Magnetoresistance”, International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals, 2010年7月6日, 京都
- ⑦ H. Nakamura 他6名, “Electron correlation and metamagnetism of the stella quadrangula lattice in transition-metal nitrides and carbides”, IV Euro-Asian Symposium “Trends in MAGnetism” EASTMAG-2010, 2010年7月1日, エカテリンブルグ (ロシア)
- ⑧ H. Tsunetsugu, “Strongly Correlated Electrons with Geometrical Frustration”, APCPT-MPIPKS Seminar and Workshop, “Topological Order: From Quantum Hall Systems to Magnetic Materials”, 2009年7月13日, ドレスデン (ドイツ)
- ⑨ S. Fujimoto, “Hall effect of spin waves in frustrated magnets”, Joint European Japanese Conference: Frustration in Condensed Matter, 2009年5月14日, リヨン (フランス)
- ⑩ Z. Hiroi, “Spin liquids on the kagome lattice”, EURO-JAPAN FRUSTRATION 2009, 2009年5月12日, オルセー (フランス)
- ⑪ H. Tsunetsugu, “Strongly Correlated Electrons on Frustrated Lattices”, International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2008, 2008年9月8日, Braunschweig (ドイツ)
- ⑫ S. Nakatsuji, “Geometrical Frustration Effects in Phase transition and Transport Phenomena”, Highly Frustrated Magnetism 2008, 2008年9月9日, Braunschweig (ドイツ)

[図書] (計3件)

- ① 藤本聡, 川上則雄, サイエンス社, 「量子多体系の物理」, 2011年, pp.1-169
- ② D. Poilblanc, H. Tsunetsugu, Springer Verlag, *Introduction to Frustrated Magnetism*, Chapter 21, “Mobile holes in frustrated quantum magnets and itinerant fermions on frustrated geometries”, 2011年, pp.563-586
- ③ Z. Hiroi, M. Ogata, Springer Verlag, *Introduction to Frustrated Magnetism*, Chapter 22, “Metallic and Superconducting Materials with Frustrated Lattices”, 2011年, pp.587-627

[産業財産権]
○出願状況 (計2件)

名称: 酸化物及び電気導体の電気物性制御方法
発明者: 池田直、花咲徳亮
権利者: 岡山大学
種類: 特許権
番号: 特願2008-222351、特開2010-053006
出願年月日: 平成20年8月29日
国内外の別: 国内

名称: 電歪素子及び電気歪生成方法
発明者: 池田直、野上由夫、花咲徳亮、寺崎一郎
権利者: 岡山大学、早稲田大学
種類: 特許権
番号: 特願2008-001653、特開2009-164429
出願年月日: 平成20年1月8日
国内外の別: 国内

[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

常次 宏一 (TSUNETSUGU HIROKAZU)
東京大学・物性研究所・教授
研究者番号: 80197748

(2) 研究分担者

廣井 善二 (HIROI ZENJI)
東京大学・物性研究所・教授
研究者番号: 30192719

中辻 知 (NAKATUSUJI SATORU)
東京大学・物性研究所・准教授
研究者番号: 70362431

中村 裕之 (NAKAMURA HIROYUKI)
京都大学・工学研究科・教授
研究者番号: 00202218

藤本 聡 (FUJIMOTO SATOSHI)
京都大学・理学研究科・准教授
研究者番号: 10263063

花咲 徳亮 (HANASAKI NORIAKI)
大阪大学・理学研究科・教授
研究者番号: 70292761

(3) 連携研究者

野上 由夫 (NOGAMI YOSHIO)
岡山大学・自然科学研究科・教授
研究者番号: 10202251