

研究種目：特定領域研究
研究期間：2007～2011
課題番号：19052004
研究課題名（和文） 量子フラストレーション

研究課題名（英文） Quantum Frustration

研究代表者
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

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：量子スピン、フラストレーション

1. 研究計画の概要

低次元量子スピン系は、低次元性と量子揺らぎの効果により、古典スピン系とは全く異なる異常量子物性が現れることが期待される。本課題では、新物質開拓によって、二次元系を中心に「量子効果」が「フラストレーション」と相まって増強された特異な揺らぎや量子臨界性がつくり出す新奇物性を見出し、統一的な理解を得ることを目指す。

2. 研究の進捗状況

平成21年度までに、幾何学的フラストレーションをもつ量子スピン系を中心とする新物質の開発を固体化学の独自の視点から行った結果、イオン交換型層状ペロブスカイト化合物群 $(MX)A_{n-1}B_nO_{3n+1}$ とパイロクロアフツ化物化合物群 $A_2B_2F_6X$ ($A=Cd, Hg, X=O, S, B=$ 遷移金属) などの一連の新物質を数多く得ることに成功した。また、低温合成による物質開発の過程で、偶然に鉄が平面四配位をもつ化合物 ($SrFeO_2, Sr_3Fe_2O_5$ など) を合成することに成功した。 $SrFeO_2$ では、四配位の金属としては世界で初めてスピン転移を見出すことに成功し、これが隣り合う鉄の 3d 軌道間の競合によって起こることを見出した。二次元系の $(MX)A_{n-1}B_nO_{3n+1}$ では、 $(CuBr)Sr_2Nb_3O_{10}$ における 1/3 プラトー、 $Cu(Cl, Br)La(Nb, Ta)_2O_7$ における量子相分離現象を見出した。また、 $(CuCl)LaNb_2O_7$ において単結晶の合成に成功、構造解析、非弾性中性子散乱などによって強磁性 Shastry-Sutherland 模型のモデル物質になっていることを示唆する結果を得た。 $SrCu_2(BO_3)_2$ では、磁場中での格子変形の直接観測、NMR によって磁化プラトー相外でも超格子がメルトしないことを見出した。中性子

散乱により、転移圧力以下でその前兆現象らしきものを観測した。同格子をもつ TmB_4 が 1/2 磁化プラトーのみを発現する起源を解明するため、 $S=1/2$ xxz モデルと量子モンテカルロ法を行い、弱い第4近接相互作用の重要性、二回の有限温度転移、2次元イジングユニバーサリティクラスを示した。三次元系のパイロクロアフツ化物のいずれもが 100K 程度の反強磁性的な相互作用をもち、10K 程度まで磁気秩序が無いなど、フラストレーション効果が明らかになってきている。また、クロムスピネルの磁場中のプラトー現象をスピン、軌道の自由度から解釈した。一次元系で、酸素分子梯子や三角チューブを開拓し、磁気励起に関する新たな知見を得た。

3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。独自の視点により、イオン交換型層状ペロブスカイト化合物群、パイロクロアフツ化物群、平面四配位鉄酸化物など数多くの新物質合成に成功し、物性も中性子散乱をはじめとする各種測定を機能的に進めている。これに加え、理論との密接な連携により進めた結果、量子スピン系における各種の新しいフラストレーションの効果が明らかになるなど、研究は計画通り概ね順調に進んでいる。ただし、イオン交換型層状ペロブスカイト系では単結晶の育成および構造解析に、パイロクロアフツ化物系では試料の純良化に予想以上の時間がかかった。

4. 今後の研究の推進方策

イオン交換型層状ペロブスカイト系の単結晶育成と構造解析を押し進め、新しい磁場誘

起ネマティック秩序状態の解明, シヤストリーサーランド系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ で予想されている圧力下でのネマティック的磁性相の性質とその発現機構を解明する. 一次元人工酸素分子磁性体や三角スピントラップ磁性体における新奇カイラル秩序状態の有無を検討する. また, パイロクロアフッ化物系の試料の純良化と物性測定に重点的に進めていき, RVB 型量子無秩序状態やトポロジカル励起子など新しいマグノンダイナミクスなどを探求する. 理論的には, ハミルトニアン of 非対角行列要素が全て正であるようなフラストレート量子スピンモデルの数値シミュレーションとの比較をおこなう. パイロクロア酸化物はこれまでフラストレート磁性の中心物質群で多くの知見が得られているため, このフッ化物系と比較することで本質的なフラストレーションの効果を解明する. 分担者の加倉井が開発にかかわっている J-Park の非弾性中性子散乱装置アマテラスは今年度から本格的に稼働する予定である. 本装置は, 粉末試料で一気に励起状態を調べること出来るという利点を活かして, 一連の $\text{Cu}(\text{Cl}, \text{Br})\text{La}(\text{Nb}, \text{Ta})_2\text{O}_7$ やパイロクロアフッ化物について実験を行う. これらの研究を通じ, 二次元フラストレート系の特殊性と次元によらない普遍性を解明する.

5. 代表的な研究成果

[雑誌論文] (計 56 件)

- ① 辻本吉廣, C. Tassel, 林直顕, 渡邊貴志, 陰山洋, 吉村一良, 高野幹夫, M. Ceretti, C. Ritter & W. Paulus, Infinite-layer iron oxide with a square-planar coordination, *Nature* 450, 1062-1065 (2007). 査読有
- ② 植田浩明, 上田寛, Pressure-Enhanced Direct Exchange Couplings in Chromium Spinels, *Phys. Rev. B* 77(22), 224411/1-6 (2008), 査読有
- ③ 瀧川仁, 松原信一, M. Horvatic, C. Berthier, 陰山洋, 上田寛, NMR Evidence for the Persistence of a Spin Superlattice Beyond the 1/8 Magnetization Plateau in $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$, *Phys. Rev. Lett.* 101(3), 037202/1-4 (2008), 査読有
- ④ 陰山洋, 新しい幾何学的フラストレーション系のデザイン, トポロジーデザイン, 283-296 (2009) 査読無
- ⑤ 川上隆輝, 辻本吉廣, 陰山洋, Xing-Qiu Chen, C. L. Fu, C. Tassel, 北田敦, S. Suto, K. Hirama, Y. Sekiya, Y. Makino, 岡田卓, 八木健彦, 林直顕, 吉村一良, 那須三郎, R. Podlucky, 高野幹夫, Spin Transition

in a Four-Coordinate Iron Oxide, *Nature Chemistry* 1, 371-376 (2009), 査読有

- ⑥ 北田敦, 辻本吉廣, 陰山洋, 網代芳民, 西正和, 鳴海康雄, 金道浩一, 市原正樹, 上田寛, Y. J. Uemura, 吉村一良, Quantum phase transition in $(\text{CuCl})\text{La}(\text{NbTa})\text{O}$, *Phys. Rev. B* 80 (2009) 174409(1-5). 査読有
- ⑦ 益田隆嗣, 加倉井和久, A. Zheludev, Spin dimers in the quantum ferrimagnet CuFeGeO under staggered and random magnetic field, *Phys. Rev. B* 80(18), 180412(R)/1-4 (2009). 査読有
- ⑧ 益田隆嗣, 酸素分子により設計された磁性体における中性子散乱, *固体物理* 44(7), 463-472 (2009). 査読無
- ⑨ 三田村裕之, 植田浩明, 香取浩子, 榊原俊郎, 上田寛, 高木英典, *J. Phys. Soc. Jpn.* 76 (2007), 085001/1-2, 査読有

[学会発表] (計 138 件)

- ① 陰山洋, Structural Control of Perovskite Oxides by a Gentle Touch Symposium on Materials For Frustrated Magnetism (MFFM) Grenoble, 2009年3月5日, (フランス)
- ② 川島直輝, Ground States of $\text{SU}(N)$ Heisenberg Model, International Workshop on Topological Aspects of Solid State Physics, 2008年6月21日 (京都府)
- ③ 陰山洋, μ SR Studies of Quantum Phase Transitions in the $S=1/2$ Frustrated Square Lattice $\text{Cu}(\text{Cl}, \text{Br})\text{La}(\text{Nb}, \text{Ta})\text{O}_7$, 11th International Conference on Muon Spin Resonance, Relaxation, and Resonance (μ SR2008), 2008年7月24日, (つくば市)
- ④ 益田隆嗣, Spin dynamics in artificially designed oxygen molecule magnet, 国際磁性会議2009(ICM2009), 2009年7月31日, カールスルーエコングレスセンター (ドイツ カールスルーエ)
- ⑤ 川島直輝, Monte Carlo Approach to Phase Transitions in Quantum Systems, International Workshop on Statistical-Mechanical Informatics, 2009年9月16日, (仙台市)