

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 4 月 9 日現在

機関番号：32621

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540344

研究課題名（和文）

絶対零度の臨界温度を持つボースグラス相への臨界現象の NMR・ μ SR による研究

研究課題名（英文）

NMR and μ -SR study on the critical phenomena in the Bose-glass phase with $T_c=0$

研究代表者

後藤 貴行 (GOTO TAKAYUKI)

上智大学・理工学部・教授

研究者番号：90215492

研究成果の概要（和文）：

我々は、NMR を用いて、ボンドランダムネスを含んだ IPA-Cu(Cl_xBr_{1-x})₃ の系において、磁場中で緩和率及びスペクトルの測定を行った。これまでマクロ測定によって、 $0.87 < x < 0.44$ のみギャップレストなる、と言われていたが、NMR と μ SR 測定によって、イ) $x > 0.87$ の Cl-rich 相では、NMR でも μ SR でも磁気転移の兆候は見え、マクロ測定の結果を支持している。しかし、単純なギャップ相ではなく、低温でマイクロ相分離している。また、ギャップ磁場以上の強磁場では単純な、BEC ではなく、位相ランダムネスを含んだ不均一な状態となることがわかった。ロ) $x < 0.44$ の Br-rich 相では 2K まで LRO は存在しないものの、明瞭なスピソフリーズが見られた。フリーズは、 x の大小 0.1～0.4 にほとんど依存せず、わずかなランダムネスでギャップが破壊されることがわかった。このような振る舞いは、Cl-rich 相とは全く異なっている。

研究成果の概要（英文）：

(CH₃)₂CHNH₃Cu(Cl_xBr_{1-x})₃ abbreviated IPACu(Cl_xBr_{1-x})₃ is a mixed system of spin-gap compounds IPACuCl₃ and IPACuBr₃. This mixed system is reported by macroscopic measurements to show a magnetic order when the value of x is between the quantum critical points (QCPs) 0.44 and 0.87. We have investigated microscopically the ground state of the samples $x = 0.40$, 0.45 and 0.50 which are located near the QCP of $x_c = 0.44$, by Muon Spin Relaxation (μ SR) and NMR measurements. For $x = 0.40$, μ SR measurements in zero and longitudinal fields have shown that the spin fluctuation shows a significant slowing down with decreasing temperature, although the magnetic order does not appear down to $T = 15$ mK, indicating that the ground state is an exotic one rather than a gapped one. For $x = 0.45$ and 0.50, μ SR and NMR measurements do not show any magnetic order at low temperatures, indicating that the QCP is larger than the reported value of $x_c = 0.44$.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,300,000	690,000	2,990,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2011年度	300,000	90,000	390,000
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：物理学

科研費の分科・細目：物理学、物性II

キーワード：ボースグラス、NMR、 μ SR、量子スピン系

1. 研究開始当初の背景

| 本申請の目的は、NMR と μ SR というマイクロ

ローブを用いて、乱れた量子スピン磁性体における絶対零度へ向かう臨界現象をダイレクトに捉え、ボースグラス相が実在するか検証を行うことである。ボースグラス相は絶対零度で現れるため、実験室すなわち有限温度で直接観測するのは難しい。これまでの研究は、ボースグラス相と BEC 相との相境界の変化に関するものが殆どであった。東工大・田中らは量子スピン磁性体の固溶系 (Tl,K)CuCl₃ において、比熱と磁化率の測定から、相境界のベキ指数が乱れによって変化することを見出し、Fisher らのスケーリング理論と一致することから、これをもってボースグラスの検証であると主張した。しかし、これはボースグラス相に隣接した BEC 相の実験であり、ボースグラス相の実体は捉えていない。

2. 研究の目的

本申請では、絶対零度へ向かう NMR あるいは μ SR の臨界減速を捉えることで、絶対零度で『実在』するボースグラスの実体を明らかにすることを目的としている。

3. 研究の方法

多核 NMR 及び縦磁場 μ SR を用い、緩和率の温度依存性を異なる多数の磁場下で測定することで、臨界現象を捉える。

4. 研究成果

(1) IPA 混晶系において相図のリニューアル及び、Br 端と Cl 端とでの不純物に対する振る舞いの違いがあることを明らかにした。Cl 端はハルデン系に近く、有限濃度の不純物に対してロバストであることを見出した。

(2) Br 端において、僅かな不純物濃度で、 $T \rightarrow 0$ に向かうソフトモード (スピンプリージング) を観測した。その一方で、希釈冷凍温度域まで三次元長距離秩序は現れず、基底状態はボースグラスとなっている可能性が高いことを明らかにした。

(3) Cl 端の混晶系で、ギャップ磁場を超える強磁場低温下において、磁場誘起磁気秩序の存在を確認した。しかし、純粋な Cl 端相で見られた均一な横向きスタガード磁化すなわち、BEC 状態とは異なり、スピンの方向は完全にランダムである。これは、BEC の位相がランダムになっていることを意味している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 全て査読有 (計 2 2 件)

1) NMR study on field-induced charge anomaly in $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$; K. Misoka, H. Kuroe, D. Doi, T. Hamasaki, T. Sekine, T. Goto, M. Hase, K. Oka, T. Ito, H. Eisaki, T. Sasaki, J. Phys.: Conf. [4 pages] *in press*.

2) ¹¹B-NMR study on Shastry-Sutherland

system TbB_4 ; T. Muto, K. Kobayashi, T. Goto, A. Oosawa, S. Yoshii, T. Sasaki, N. Kobayashi, S. Michimura, F. Iga, and T. Takabatake, J. Phys.: Conf. [4 pages] *in press*.

3) ¹⁹F-NMR Study on Antiferromagnetic Heisenberg Chain KCuGaF_6 ; Y. Mori, T. Goto, I. Umegaki and H. Tanaka, J. Phys.: Conf. Ser. 302 (2011) 012012[4pages].

4) NMR study on Ru-based quantum spin systems of $[\text{Ru}(\text{acac})_3]$ and $[\{\text{Ru}(\text{acac})_2\}_2(\mu\text{-OEt})_2]$, S Nakajima, M Masuko, A Oosawa, T. Goto, T. Hashimoto, A. Endo and T. Hayashita, J. Phys.: Conf. Ser. 302 (2011) 012008[4pages], DOI:10.1088/1742-6596/302/1/012008

5) ^{63,65}Cu-NMR study on Mg-doped quantum spin system $\text{TlCu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Cl}_3$; S Atarashi, T. Goto, M Yamada, F Yamada, A Oosawa, H Tanaka and T Suzuki; J. Phys.: Conf. Ser. 302 (2011) 012009[4pages] DOI:10.1088/1742-6596/302/1/012009

6) Change in magnetic ground states in nonmagnetic-impurity-doped spin-gap systems $\text{TlCu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Cl}_3$ using muon spin relaxation; Takao Suzuki, Motoki Yamada, Yasuyuki Ishii, Isao Watanabe, Takayuki Goto, Hidekazu Tanaka, and Kenya Kubo, Phys. Rev. B **83**, 174436 (2011) [5 pages]

7) ⁶³Cu-NMR study on High-Tc Superconductor $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$; Y. Shindo, T. Goto, K. Nakamura, T. Takao, T. Adachi, Y. Koike; J. Phys.: Conf. Ser. **302** (2011) 012010 (4pages). DOI:10.1088/1742-6596/302/1/012010

8) Low-energy spin dynamics in randomness-introduced spin-gap systems $\text{Tl}_{1-x}\text{K}_x\text{CuCl}_3$ ($0.40 \leq x \leq 0.65$) probed by zero- and longitudinal-field muon spin relaxation; Takao Suzuki, Fumiko Yamada, Motoki Yamada, Takayuki Kawamata, Yasuyuki Ishii, Isao Watanabe, Takayuki Goto, Hidekazu Tanaka; Phys. Rev. B **82**, 094447 (2010) [7 pages], DOI:1103/PhysRevB.82.094447

9) Pressure effect on magnetic ground states in $\text{Tl}(\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x)\text{Cl}_3$ with $x = 0.015$ probed by muon-spin-rotation; Takao Suzuki, Isao Watanabe, Fumiko Yamada, Yasuyuki Ishii, Kazuki Ohishi, Risdiana, Takayuki Goto, Hidekazu Tanaka; J. Phys.: Conf. Series **200** (2010) 022061[4pages].

DOI:10.1088/1742-6596/200/2/022061
10) μ SR and NMR Study on Quantum Critical Point in Quantum Spin Ladder $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{Cu}(\text{Cl}_x\text{Br}_{1-x})_3$; S. Nakajima, T. Goto, T. Suzuki, I. Watanabe, H. Manaka and A. Amato; J. Phys.: Conf. Series **200** (2010) 022036[4pages].
DOI:10.1088/1742-6596/200/2/022036
11) μ SR study on the ground state of bond-disordered spin gap system $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{Cu}(\text{Cl}_{1-x}\text{Br}_x)_3$ ($x=0.95, 0.88$); T. Goto, T. Suzuki, S. Nakajima, K. Kanada, T. Saito, A. Oosawa, I. Watanabe, H. Luetkens, A. Amato; J. Phys.: Conf. Series **200** (2010) 022011[4pages].
DOI:10.1088/1742-6596/200/2/022011
12) Cu-NMR study of the quasi-one-dimensional magnet $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$; K Doi, T. Hamasaki, H. Kuroe, T. Sekine and T. Goto; J. Phys.: Conf. Series **200** (2010) 022006[4pages].
DOI:10.1088/1742-6596/200/2/022006
13) Pressure-induced new magnetic phase in $\text{Tl}(\text{Cu}_{0.985}\text{Mg}_{0.015})\text{Cl}_3$ probed by muon spin Rotation; Takao Suzuki, Isao Watanabe, Fumiko Yamada, Motoki Yamada, Yasuyuki Ishii, Takayuki Kawamata, Takayuki Goto and Hidekazu Tanaka; J. Phys.: Conf. Series **225** (2010) 012054[5pages]
DOI:10.1088/1742-6596/225/1/012054
14) Evidence for continuous change of spin states between impurity-induced order and pressure-induced order in $\text{TlCu}_{0.985}\text{Mg}_{0.015}\text{Cl}_3$ probed via muon spin rotation; Takao Suzuki, Isao Watanabe, Fumiko Yamada, Yasuyuki Ishii, Kazuki Ohishi, Risdiana, Takayuki Goto and Hidekazu Tanaka; Phys. Rev. B80 (2009) 064407 (5 pages).
DOI:10.1103/PhysRevB.80.064407
15) Spin fluctuations in the ground state of doped quantum spin system $\text{TlCu}_{1-x}\text{Mg}_x\text{Cl}_3$ with $x = 0.0047$ probed by muon-spin-relaxation (μ SR) technique; Takao Suzuki, Fumiko Yamada, Isao Watanabe, Teiichiro Matsuzaki, Takayuki Goto, Akira Oosawa, Hidekazu Tanaka; J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 074705 (5 pages).
DOI:10.1143/JPSJ.78.074705
16) ^1H -NMR Spin-Lattice Relaxation Rate of the Quantum Spin System $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{Cu}(\text{Cl}_x\text{Br}_{1-x})_3$ with $x=0$ and 0.35 ; Akira Oosawa, Takao Suzuki, Keishi Kanada, Satoshi Kojima, Takayuki Goto, and Hiroataka

Manaka; J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 053702(4 pages).
DOI:10.1143/JPSJ.78.053702
17) $^{63/65}\text{Cu}$ - and $^{35/37}\text{Cl}$ -NMR Studies of Triplet Localization in the Quantum Spin System NH_4CuCl_3 ; H. Inoue, S. Tani, S. Hosoya, K. Inokuchi, T. Fujiwara, T. Saito, T. Suzuki, A. Oosawa, T. Goto, M. Fujisawa, H. Tanaka, T. Sasaki, S. Awaji, K. Watanabe, N. Kobayashi; Phys. Rev. B79 (2009) 174418 (7 pages). DOI:10.1103/PhysRevB.79.174418
18) Quantum critical behavior in highly random systems $\text{Tl}_{1-x}\text{K}_x\text{CuCl}_3$ probed by zero and longitudinal-field muon-spin-relaxation (μ SR) measurements; Takao Suzuki, Fumiko Yamada, Takayuki Kawamata, Isao Watanabe, Takayuki Goto and Hidekazu Tanaka; Phys. Rev. B79, (2009) 104409 (5 pages). DOI:10.1103/PhysRevB.79.104409
19) Bond-randomness effect on the quantum spin system $\text{Tl}_{1-x}\text{K}_x\text{CuCl}_3$ probed by muon-spin-relaxation method; Takao Suzuki, Fumiko Yamada, Isao Watanabe, Takayuki Goto, Akira Oosawa and Hidekazu Tanaka; Physica B 404 (2009) 590-593
DOI:10.1016/j.physb.2008.11.108
20) μ SR-detected Soft mode toward a Possible Phase Transition in disordered spin gap system $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{-Cu}(\text{Cl}_x\text{Br}_{1-x})_3$; T. Goto, T. Suzuki, I. Watanabe, K. Kanada, T. Saito, A. Oosawa, H. Manaka; Physica B 404 (2009) 594-596.
DOI:10.1016/j.physb.2008.11.107
21) Magnetic phase diagram of the $S = 1/2$ antiferromagnetic ladder $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{CuCl}_3$; H. Tsujii, Y. H. Kim, Y. Yoshida, Y. Takano, T. P. Murphy, K. Kanada, T. Saito, A. Oosawa, T. Goto; J. Phys., Conf. Ser., **150** (2009) 042217 (4 pages).
DOI:10.1088/1742-6596/150/4/042217
22) Field-induced-moment nuclear Coupling for ^{59}Co in a Heusler alloy Co_2TiGa ; Y. Furutani, H. Nishihara, T. Kanomata, K. Kobayashi, R. Kainuma, K. Ishida, K. Koyama, K. Watanabe, T. Goto; J. Phys., Conf. Ser., **150** (2009) 042037 (4 pages).
DOI:10.1088/1742-6596/150/4/042037
[学会発表] (計 79 件より抜粋)
1) 晦日慶太, 土井憲一, 浜崎智彰, 黒江晴彦, 後藤貴行, 関根智幸, 佐々木孝彦, 長谷正司, 岡邦彦, 伊藤利充, 永崎洋 「25aAF-11 一次元鎖とダイマーからなる磁性 $\text{Cu}_3\text{Mo}_2\text{O}_9$ の

Cu-NMR IV」物理学会年次大会 2012 年 3 月 24 日(土) - 27 日(火) 関西学院大学

2) 新聡一郎, 後藤貴行, 長谷正司「24pYF-11 CuO₂ リボン鎖を持つ 1 次元競合系 Rb₂Cu₂Mo₃O₁₂ における ⁸⁷Rb-NMR」^A物理学会年次大会 2012 年 3 月 24 日(土) - 27 日(火) 関西学院大学

3) 進藤裕介, 後藤貴行, 中村一也, 高尾智明, 足立匡, 小池洋二「24aYH-49 ランタン系高温超伝導体 La_{2-x}Ba_xCuO₄ 単結晶における ⁶³Cu-NMR V」物理学会年次大会 2012 年 3 月 24 日(土) - 27 日(火) 関西学院大学

4) 橋本貴裕, 真中浩貴, 三浦陽子, 後藤貴行「24aPS-92 三角スピントラップ磁性体 KCrF₄ における ¹⁹F-NMR II」物理学会 2012 年次大会 3 月 24 日(土) - 27 日(火) 関西学院大学

5) 森康彦, 後藤貴行, 臼井泰志, 田中秀数「24aPS-85985 S=2 籠目格子反強磁性体 Cs₂LiMn₃F₁₂ の ⁷Li-NMR」物理学会年次大会 2012 年 3 月 24 日(土) - 27 日(火) 関西学院大学

6) 鈴木栄男, 渡邊功雄, 山田基樹, 後藤貴行, 田中秀数, 久保謙哉「24aPS-81 量子スピントラップ系 Tl(Cu_{1-x}Mg_x)Cl₃ (0.0047 < x < 0.015) におけるミュオンスピン緩和で見た基底状態 II」物理学会年次大会 2012 年 3 月 24 日(土) - 27 日(火) 関西学院大学

7) 星野侑宏, 新聡一郎, 後藤貴行, 長谷正司, 佐々木孝彦「24aPS-68 ネマチック状態が期待される一次元競合系 Cs₂Cu₂Mo₃O₁₂ における ¹³³Cs-NMR」物理学会年次大会 2012 年 3 月 24 日(土) - 27 日(火) 関西学院大学

8) 新聡一郎, 後藤貴行, 長谷正司^A 上智大理工, 物材機構「24aPS-66 ネマチック状態が期待される一次元競合系 Rb₂Cu₂Mo₃O₁₂ における ⁸⁷Rb-NMR II」物理学会年次大会 2012 年 3 月 24 日(土) - 27 日(火) 関西学院大学

9) 武藤知輝, 小林慶亮, 後藤貴行, 大沢明, 吉居俊輔, 佐々木孝彦, 小林典男, 道村真司, 伊賀文俊, 高島敏郎「24aAF-3, ¹¹B-NMR 測定で見た Shastry-Sutherland 系 TbB₄ におけるメタ磁性 II」物理学会年次大会 2012 年 3 月 24 日(土) - 27 日(火) 関西学院大学

10) 後藤貴行, 他, 三角格子有機磁性体 κ-(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ の μSR, 金研ワークショップ「電子自由度による強誘電体最前線」2011 年 11 月 1 日(火), 2 日(水), 東北大金研

11) T. Muto, K. Kobayashi, T. Goto, A. Oosawa, S. Yoshii, T. Sasaki, N. Kobayashi, S. Michimura, F. Iga, and T. Takahata, "11B-NMR study on Shastry-Sutherland system TbB₄", 26th International Conference on Low Temperature Physics

Aug. 10-17, 2011 Beijing, China

12) K. Misoka, K. Doi, T. Hamasaki, H. Kuroe, T. Goto, T. Sekine, T. Sasaki, M. Hase, K. Oka, T. Ito, and H. Eisaki, "Cu-NMR study on dimer-chain complex quantum spin system Cu₃Mo₂O₉", 26th International Conference on Low Temperature Physics Aug. 10-17, 2011 Beijing, China

13) Y. Shindo, T. Goto, K. Nakamura, T. Takao, T. Adachi, Y. Koike, ⁶³Cu-NMR study on High-Tc Superconductor La_{2-x}Ba_xCuO₄, International Symposium Nanoscience and Quantum Physics 2011 (nanoPHYS'11), Jan. 26-28, 2011, International House of Japan (Minato-ku, Tokyo, Japan)

14) S. Nakajima, M. Masuko, A. Oosawa, T. Goto, T. Hashimoto, A. Endo, and T. Hayashita, NMR study on Ru-based quantum spin systems of Ru(acac)₃ and [Ru(acac)₂]₂(μ-OEt)₂, International Symposium "Nanoscience and Quantum Physics 2011" (nanoPHYS'11), Jan. 26-28, 2011, International House of Japan (Minato-ku, Tokyo, Japan)

15) S. Atarashi, T. Goto, H. Tanaka and T. Suzuki, ^{63,65}Cu-NMR study on Mg-doped quantum spin system TlCu_{1-x}Mg_xCl₃, International Symposium "Nanoscience and Quantum Physics 2011" (nanoPHYS'11), Jan. 26-28, 2011, International House of Japan (Minato-ku, Tokyo, Japan)

16) Y. Mori, T. Goto, I. Umegaki, H. Tanaka, ¹⁹F, ^{69/71}Ga-NMR Study on Antiferromagnetic Heisenberg Chain KCuGaF₆, International Symposium "Nanoscience and Quantum Physics 2011" (nanoPHYS'11), Jan. 26-28, 2011, International House of Japan (Minato-ku, Tokyo, Japan)

17) S. Nakajima T. Goto, T. Suzuki, I. Watanabe, Y. Ishii, F. L. Pratt, N. Kobayashi and T. Sasaki, μSR Study on Triangular Lattice Magnet κ-(BEDTTF)₂Cu₂(CN)₃, (6P-088), International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals 2010 (ICSM 2010), July 4th-9th, 2010, Kyoto International Conference Center in Japan.

18) T. Goto, S. Nakajima, Y. Shindo, T. Hashimoto, A. Endo and T. Hayashita, NMR Study on Ru-based Quantum Spin Systems of [Ru(acac)₃] and [Ru(acac)₂]₂(μ-OEt)₂, (5P-145), International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals

2010 (ICSM 2010), July 4th-9th, 2010, Kyoto International Conference Center in Japan.

19) K. Kobayashi, T. Goto et al. 「¹¹B-NMR study on Shastry-Sutherland system TbB₄ (Poster)」 Joint IMR International Symposium High Magnetic Field Spin Science in 100T VI Application of High Magnetic Field for Condensed Matter and Material Science, December 7 - 9, 2009, IMR, Tohoku Univ. (さくらホール)

20) K. Hagiwara, T. Goto et al. 「Cu/Si-NMR Study on S=1/2 Low-Dimensional Antiferromagnet Dioptase (Poster)」 Joint IMR International Symposium High Magnetic Field Spin Science in 100T VI Application of High Magnetic Field for Condensed Matter and Material Science, December 7 - 9, 2009, IMR, Tohoku Univ. (さくらホール)

21) S. Nakajima, T. Goto et al. 「NMR Study on Field-Induced Magnetic order in Quantum Spin Ladder System (CH₃)₂CHNH₃Cu(Cl_xBr_{1-x})₃ (Poster)」 Joint IMR International Symposium High Magnetic Field Spin Science in 100T VI Application of High Magnetic Field for Condensed Matter and Material Science, December 7 - 9, 2009, IMR, Tohoku Univ. (さくらホール)、

22) K. Doi, T. Goto et al. 「Th-A-2.1-03 Cu-NMR study of the quasi-one-dimensional magnet Cu₃Mo₂O₉」 International conference on Magnetism 2009, July 26-31, 2009, Karlsruhe, Germany

23) S. Nakajima, T. Goto et al. 「Th-A-2.1-33 μ SR and NMR Study on Quantum Critical Point in Quantum Spin Ladder (CH₃)₂CHNH₃Cu(Cl_xBr_{1-x})₃ International conference on Magnetism 2009, July 26-31, 2009, Karlsruhe, Germany,

24) Takayuki Goto, et al. 「Th-A-2.1-37 μ SR study on the ground state of bond-disordered spin gap system (CH₃)₂CHNH₃Cu(Cl_{1-x}Br_x)₃ (x=0.95, 0.88)」 International conference on Magnetism 2009, July 26-31, 2009, Karlsruhe, Germany,

[その他]

<http://www.ph.sophia.ac.jp/~goto-ken>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

後藤 貴行 (GOTO TAKAYUKI)

上智大学・理工学部・教授

研究者番号：90215492

(2) 研究分担者

鈴木 栄男 (SUZUKI TAKAO)

国際基督教大学・アーツ・サイエンス研究科・研究員

研究者番号：40327862

中村 統太 (NAKAMURA TOTA)

芝浦工業大学・工学部・教授

研究者番号：50280871

(3) 連携研究者

なし