客員所員を経験して

九州工業大学大学院工学研究院　　松平 和之

2015 年度の 1 年間、中辻所員がホストとなり新物質科学研究部門の客員准教授としてお世話になりました。客員所員の期間中は中辻所員ならびに中辻研究室の皆様には大変お世話になりました。どうも有難うございました。

今回の公募の研究テーマは「幾何学的フラストレーションによる量子磁性と伝導現象」であり、中辻所員から最近のパイロクロア酸化物での"問題点"について解決をして頂きたいとのことでした。そこでパイロクロア型イリジウム酸化物に関する研究を行いました。パイロクロア型イリジウム酸化物の研究は、中辻所員が 2006 年 3 月に $Pr_2Ir_2O_7$ での異常物性を報告(S. Nakatsuji, et al., Phys. Rev. Lett. **96**, 087204 (2006).)したのを機に、我々が 2007 年 4 月に $Ln_2Ir_2O_7$(Ln = Nd, Sm, Eu, ...)における金属絶縁体転移を報告(K. Matsuhira, et al., : J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 043706 (2007).)し研究が展開されてきました。近年は国内外の多くのグループが研究を開始し大きく発展しています。大変光栄なことに $Ln_2Ir_2O_7$ の金属絶縁体転移に関する論文(K. Matsuhira, et al., J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 094701 (2011).)が第 21 回(2016 年)日本物理学会論文賞を受賞しました。これは近年の研究の発展が評価されたためと思っており、この金属絶縁体転移を見つけることが出来たことをあらためて喜ばしく思っています。

さて、パイロクロア型イリジウム酸化物に関する研究における"問題点"として、物性が大きな試料依存性を示すことがあります。これは純良試料の合成の難しさもありますが、強い幾何学的フラストレーション効果などにより基底状態が競合している状況にあることや、パイロクロア格子特有のフラットバンドを持つため、非常に僅かな組成のズレに起因して物性が大きく変化する事にあります。特に金属-絶縁体転移の相境界近傍に位置している $Pr_2Ir_2O_7$ や $Nd_2Ir_2O_7$ は、組成のズレなどで物性が大きく変わります。これは最近行っている元素置換によるキャリアドープ効果でも確認されます。

このような状況において、中辻所員からの要望は(私の理解では)、より純良な試料の育成方法を確立し現状を打開する！というなかなか難しいものでした。ただ、この要望は私も望むことなので、この機会に物性研の優れた設備を利用して、少しながらも改善出来ればということで取り組みました。現在行われている単結晶育成方法はフッ化カリウム(KF)を用いたフラックス法(J. N. Millican, et al., Mater. Res. Bull. **42**, 928 (2007).)で、この育成方法は中辻所員がさまざまなフラックスを試行錯誤して見つけたそうです。先ずは異なるフラックスを用いることを試みました。詳細はまだ伏せますが、新しいフラックスでも単結晶(見た目は大変キレイ)が育成できることが判りました。しかし、残念ながら得られた単結晶は従来程度の質であり、満足な結果は得られませんでした。育成条件を最適にすることで結晶の質の向上が望めそうという印象はあり、今後に期待したいと思います。一般的にフラックス法での結晶育成は長時間かかります。パイロクロア型イリジウム酸化物では最低でも 3 週間程度必要です。この単結晶試料育成の仕込みのために、日帰りでの来所も度々していました。物性研の物質合成室のフラックス炉は大変優秀で良い結晶が得られるのですが、そのため中辻研とマシンタイムを分け合うことになり、試行回数が限られてしまったのが大変残念でした(同様なフラックス炉がもう 1 台あると大変助かるのですが。客員所員の期間中に製作しても良かったなと今更ながらに思っています)。このフラックス炉での単結晶育成は以前から共同利用(廣井研)で行っており、この続きは共同利用で行う予定です。

他にも別のアプローチとして、$Pr_2Ir_2O_7$ の真の基底状態についても、Cu 置換効果から調べました。Cu 置換の試料は、少量置換でも反応性が向上し、組成のズレが生じない合成条件で、純良多結晶試料が得られます。これを利用して物性の Cu 置換依存性を調べ、Cu ゼロ置換の物性を推察しようという試みです。物性評価として、電気抵抗と磁化測定は行いましたが、肝心の比熱測定装置(PPMS)の不調や中辻所員が 10 月から米国に長期滞在したこと等の影響もあり、極低温実験が出来ずに、中途半端な状態となっているのが残念です。

今回、客員所員を初めて経験してみて、上述のように計画通りには上手くいかないことが多かったですが(これは日常でもよくありますが)、日常の本務から離れて自由に研究が行えたので楽しかったです。応募時には月 2 回程度の来所を考えていましたが、結局、来所は 11 回(計 23 日(12 泊))で、研究打ち合わせを行った 6 月以降、おおよそ月に 1 回のペースでした。もし次の機会があれば、今回の経験を生かし、より効率良く研究が行えるのでは考えています。

物性研には共同利用、各種研究会、委員会などで、年におおよそ 5〜6 回は来訪しており、いつも大変お世話になっております。今後とも宜しくお願い申し上げます。