

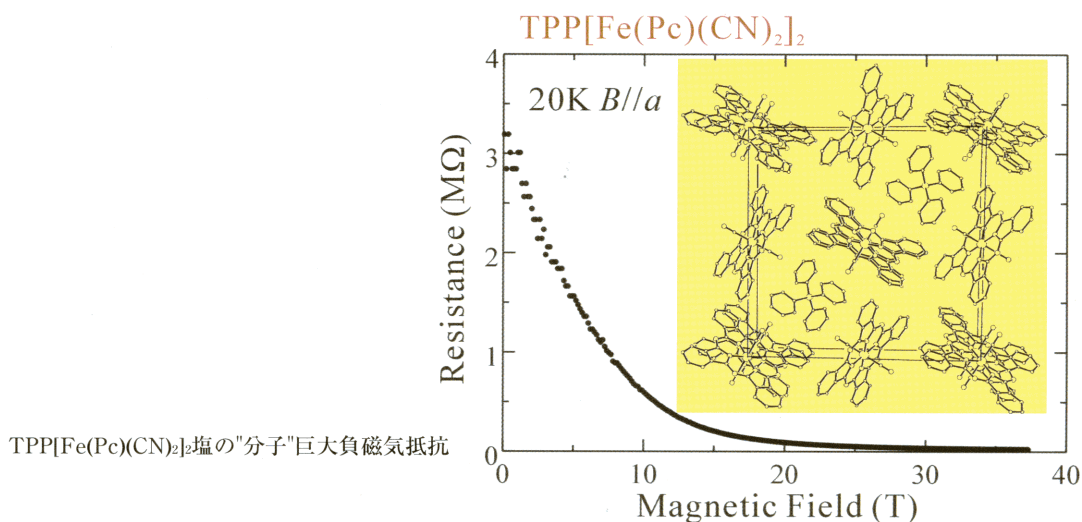
物性研だより

第43巻
第4号

2004年1月

1	遷移金属表面吸着分子の第一原理計算.....相澤秀昭
3	高輝度光源加速器の開発研究.....小関 忠
4	高压下での比熱測定.....梅原 出
研究室だより	
8	○田島研究室.....田島裕之
物性研究所短期研究会報告	
17	○短波長光などのコヒーレンスの生成・消滅に関する新しい知見と構想
27	○フラストレーションが創る新しい物性
82	物性研究所談話会
物性研ニュース	
87	○人事異動
88	○東京大学物性研究所の教官公募の通知
89	○退官記念講演会のお知らせ
90	○テクニカル・レポート 新刊リスト

編集後記



東京大学物性研究所

ISSN 0385-9843

遷移金属表面吸着分子の第一原理計算

物質・材料研究機構、物性研客員助教授 相澤 秀昭

遷移金属元素は工業上極めて重要な化学反応の触媒としてしばしば非常に重要な役割を果たす。例えば自動車の排気ガス中に含まれる主要3成分の一酸化炭素(CO)、窒素酸化物(NO_x ガス、主に NO)、炭化水素(HC)を浄化する、いわゆる三元触媒は Rh, Pd, および Pt といった遷移金属微粒子を活性成分として含む。分子が化学反応を起こすのは触媒の表面上であるから、遷移金属表面に関する研究がこれまで精力的になされてきたのは当然と言える。

近年の計算機資源の充実と第一原理計算手法の洗練により、このような遷移金属表面系に関して非常に精度の高い計算をすることが可能になってきた。一例として Pt(111)平坦表面上に NO 分子が吸着した系を挙げると、STM や LEED などの実験^[1]および第一原理計算^[2]によって図 1 (a)に示すような一配位のオントップ吸着種と三配位のホロー吸着種からなる分子吸着構造となることがわかっているが、この構造モデルは図 1 (b)に赤線で示すような振動スペクトルの実験データと矛盾するかのよう思えた。ところが、実際に表面吸着系に対して N-O 結合伸縮振動モードの振動数と振動ピーク強度を計算すると、実験を非常に良く再現することがわかった。さらには、N-O 結合が振動する際の電子密度分布の変化を解析することによって、この一見矛盾するかに思えるスペクトルの原因を明らかにすることができた^[3]。

ところで、古くから高い触媒活性を示すのは遷移金属の平坦表面部分ではなく、ステップやキンクなどの欠陥部分であると信じられてきた。これは欠陥部位では金属原子は結合原子数が少なくなるわけであるから化学結合論的に至極もつともである。しかしどのような欠陥部位が特に触媒活性が高いかを探るには、原子構造を自分の手でいじれる第一原理計算が最適であるように思われる。幸い、日本の計算機資源は非常に豊富であり、欠陥を含むような計算も比較的容易に行えるようになりつつある。現在、図 2 に示すような Rh(331) というステップ表面に NO 分子が吸着した系に対する計算が進行中である。計算量を節約するために、当初はステップを一つだけしか含まないユニットセルで計算していたが、それでは NO 分子が解離して N 原子と O 原子になったときに小さすぎる周期性のために偽りの相互作用を入れてしまうことになる恐れがあることから、現在ではステップを2つ含み、ステップ平行方向の周期性も2原子周期から3原子周期に増やしたユニットセルを用いている。現時点では図 2 (a)のような最安定の NO 分子吸着構造が求まっただけであるが、図 2 (b)をはじめとする様々な解離過程の終状態との間の反応バリアーを計算したいと考えている。さらには同様の手続を様々なステップ表面に対して行い、どのような原子種および原子配置が最大の触媒活性を生み出すかについて探りたい。なお(331)表面は(111)テラスと(111)テラスからなるという意味で、東大物性研の吉信研究室で研究している Pt(997)表面と共通しており^[4]、実際に図 2(a)のようなステップブリッジサイトが最安定であり、Rh(331)表面上ではあるが、N-O 結合伸縮振動数の計算値が 1590 cm^{-1} であるということから、NO/Pt(997)系の振動スペクトル^[5]で観測されている 1630 cm^{-1} におけるピークがステップブリッジ種で間違いないという知見を与えている。テラスのより広い表面に対して広範に吸着サイトを探ることにより、 1390 cm^{-1} 付近に存在する同定不能のピークの正体もわかってくるかもしれない。

参考文献

- [1] M. Matsumoto *et al.*, Surf. Sci. **454-456**, 101 (2000); *ibid.* **513**, 485 (2002).
 [2] H. Aizawa *et al.*, Surf. Sci. **514**, 394 (2002).
 [3] 相澤秀昭他、表面科学 **24**, 306 (2003).
 [4] J. Yoshinobu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **90**, 248301 (2003).
 [5] N. Tsukahara *et al.*, Private communications.

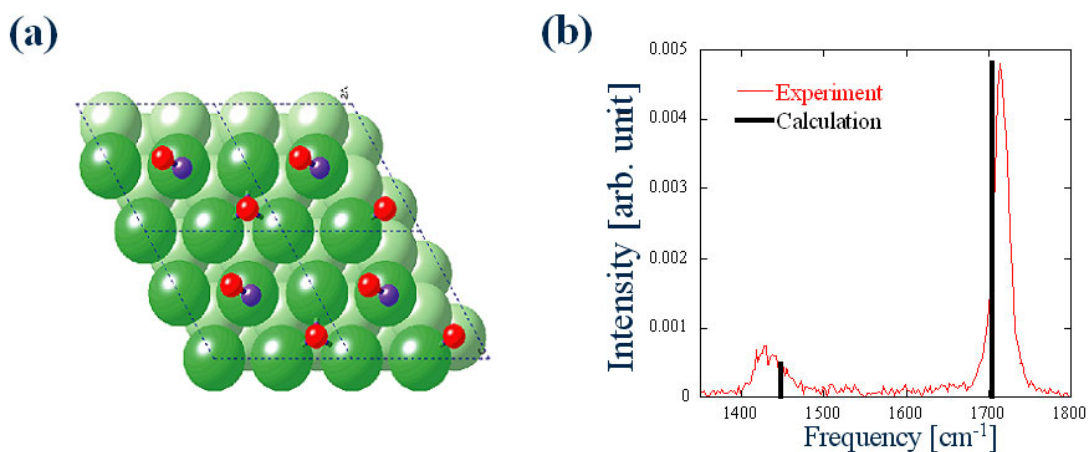


図1 (a) NOPt(111)系に対する吸着構造モデル。2×2ユニットセル中でオントップサイトとホローサイトにNO分子が一つずつ吸着する。(赤：O，青：N，緑：Pt)
 (b) この構造に対して計算した振動スペクトルおよびそれに対応する実験データ^[1]

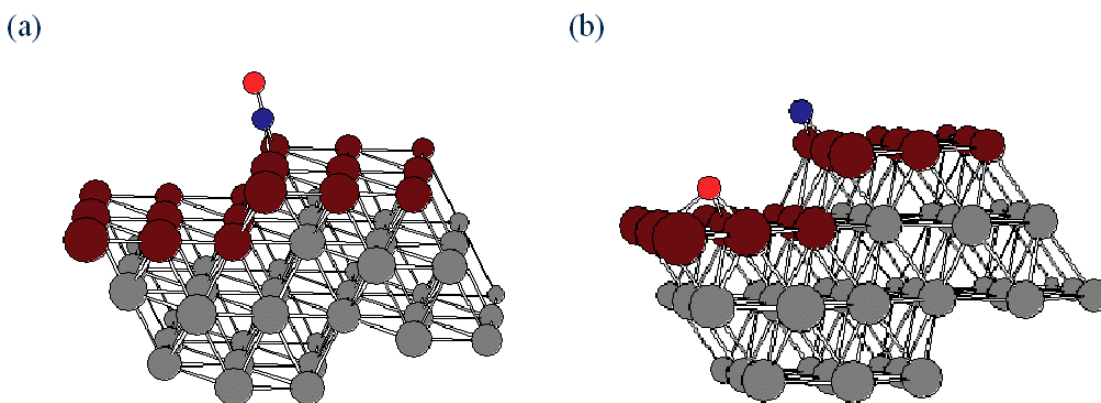


図2 (a) NO/Rh(331)系の最安定吸着状態。NO分子は2つのステップRh原子にまたがって吸着する。(赤：O，青：N，茶：Rh (最外層)，灰：Rh (それ以外))
 (b) NO解離後のNおよびO原子の配置の候補の一つ。N原子は2つのステップRh原子にまたがったままで、O原子がステップを下ってテラスのホローサイトに吸着する。

高輝度光源加速器の開発研究

理化学研究所、物性研客員助教授 小関 忠

私は 2003 年 10 月から半年間、客員として物性研にお世話になっています。中村助教授を中心とする軌道放射物性研究施設（以下 SOR 施設）の加速器グループと協力して、真空紫外・軟 X 線高輝度光源加速器に関する研究に取り組んでいます。

真空紫外・軟 X 線光源リングのように比較的ビームエネルギーの低いリングにおいて大きなビーム電流を安定に蓄積するためには、ビームの集団効果に起因するビーム不安定性の対策が加速器の成否を左右する重要な課題となります。私たちは、高エネルギー加速器研究機構と共同で、ビーム不安定性を起しにくい「高次モード減衰型高周波加速空洞」を開発しましたが、現在は、同軸導波管型高次モードカプラの開発等、加速空洞における高次モードの減衰性能をさらに高める研究を進めています。また、ビーム軌道の高い安定性は高輝度放射光の利用実験には不可欠ですが、高精度、高安定な電磁石システムの詳細設計、開発研究も行っています。

一方、私が所属する理化学研究所では Radioactive Isotope Beam Factory (RIBF) 計画が進んでいます。その中には、加速器で作り出す（天然には存在しない）不安定原子核の核構造、特に電荷分布を、電子散乱によって調べるという構想があり、そのために 0.5 GeV 以下の電子蓄積リングを建設することが検討されています。電子と不安定核との散乱実験で十分なルミノシティを得るためには、できる限り大きな電流を電子リングに蓄積する必要があり、低エネルギー・大電流という、真空紫外・軟 X 線リングと共通の課題を持っていることとなります。物性研での共同研究の成果を、理研の加速器計画の中でも生かしていきたいと考えています。

私は、2001 年 6 月まで助手として SOR 施設に勤務していましたので、高輝度光源計画とは大変長いつき合いで、かれこれ 10 年以上関わってきたこととなります。その間、上田先生、福山先生はじめ歴代物性研所長の先生方や、柿崎先生、神谷先生、石井先生等 SOR 施設に在籍された（在籍中の）諸先生方のご尽力で、計画は実現に向けて着実に前進して来ました。未だ建設スタートにはいたっていませんが、図らずも随分長い準備期間をおいたおかげで、計画の内容は十分に吟味され、洗練されてきたのではないかと思います。加速器に関する開発研究においても、すでに様々な成果が得られ、高輝度光源に要求される高い性能を建設直後から達成し得る技術的基盤はかなり整いつつあると言って良いでしょう。一日も早く計画が予算化され、建設がスタートすることを心から祈念いたします。

高圧下での比熱測定

横浜国立大学工学研究院、物性研客員助教授 梅原 出

このたび、物性研だよりの原稿依頼がございましたので、平成14年度、物性研究所で客員研究員として、上床先生や辺土助手とともに開発してまいりました高圧セルとそのセルを用いました比熱測定などについてお話し上げたいと思います。従来、比熱の測定は、研究者のオリジナルの測定装置が、各研究室で工夫され、また、改良され、ノウハウが蓄積され、一子相伝のように研究室で展開していたように感じます。ところが、昨今、市販の比熱測定装置が出回り始め、きわめて精度の高い測定が、 ^3He 温度から室温までおこなわれるようになりました。比熱の測定を、以前からおこなわれている研究者の方々の中には、時代だから仕方がないと思いつつ、何か納得のいかない思いを抱いていらっしゃる方も多いかと存じ上げます。研究室のオリジナルの装置を活かし、市販の比熱測定装置にできないことをしてみたい。こんな思いに、高圧下での比熱測定は答えてくれるやも知れません。軽い読み物としてお読みいただければ幸いに存じます。

高圧を発生するには多くの方法があります。たとえば、物性研の上床研究室には、キュービックアンビル、ブリッジマンアンビル、ダイヤモンドアンビル、そして各種のクランプセルなど様々な圧力発生装置がございます。このなかで、小さな研究室でも、比較的容易に、良質な静水圧を得ることが出来るのはクランプ型のセルではないでしょうか。現在では、4GPa 以上の圧力も得られるようになっておりますし、希釈冷凍機の温度領域でも、測定が可能になっているようです。この小稿では、2GPa 程度の圧力を比較的簡単に出すことが出来、かつ比熱と磁化測定が同様の圧力下でおこなえる、マイクロセルについてご紹介したいと思います。

このセルの特徴は、市販の SQUID 磁力計のなかで磁化測定がおこなえることです。SQUID 磁力計は感度もよく、使い勝手も悪くなく極めて良好な装置ではあります。ただ、どの研究者の方のデータも同じ精度で、同じシーケンスで測定されていますので、学会発表などで見せていただくデータに没個性と申せるような感じをもっている研究者の方も多いかと思います。そこで、この市販の磁化測定装置でも、圧力下の測定がおこなえて、測定に付加価値をつけてみたい、かつ、比熱の測定も高圧下でおこないたい。こういう目論みでセルを開発しました。圧力セルの設計の基本的な考え方については、共同研究者の上床先生の丁寧な解説がございますのでそちらを参照ください。¹⁾

セルの概念図を図1にあげました。

素材はシリンダーとナットが CuBe 合金です。サンプルを入れるセルはテフロンで出来ています。キャップも同様です。この、テフロンセルを挟むようにして、銅製のシールリングを配しました。このシールリングが圧をかけたときにつぶれていき、圧力をシールしてくれます。ピストンとピストンのバックアップにはジルコニアを用いました。テフロン製セルの下側に入れる銅製シールリングの下に、小さなピストンが入っていますが、これは、1GPa 以上の高圧下で、銅製シールリングがつぶれる際に、ところてんのように、はみ出してくる、これを防ぐためです。測定試料はテフロン製のセル内に、低温での圧力のモニター用のマンメーター、たとえば、Sn とともに入れます。圧力媒体は、様々あると思いますが、われわれはフロリナート70と77の1:1混合液を用いました。

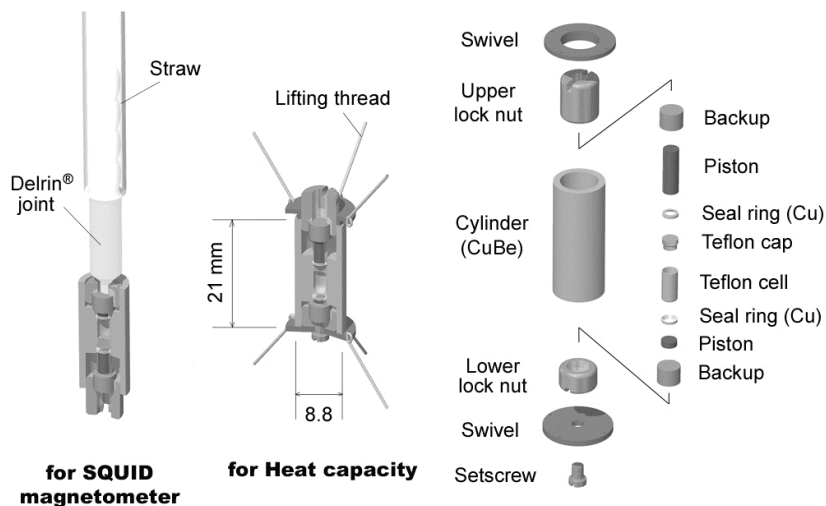


図1 圧力セル

さて、以上のようなセルを図にあるように組み立て、WC 製の押し棒で押しは、クランプ、押しはクランプしていき、圧力媒体を通して圧をかけていきます。われわれは、理研製の油圧プレス機 COM-10 (10トンプレス) を用いてプレスしています。これに、デジタルプレスメーターDPS-7000S をつなぎ、圧をモニターしながらの加圧をおこないます。このデジタルプレス機は、デジボルにつなぐことが出来、デジボルの電圧は GPIB を通してコンピュータに取り込まれ、圧力に変換してモニターしております。押し棒、ピストン、バックアップなどはいわゆる「斜め押し」にならないように押すのが肝要であるかと思ひます。斜め押しになりますと、部品同士が点接触するため、これらを破損する恐れがあるからです。部品同士にカプトンテープなどを貼っておくのも良いかと思ひます。クランプセルのクランプは測定者によって、クランプの仕方がまちまちで、後々、いわゆる圧抜けの原因になりますので注意深くする必要があります。また、なるべく同様のトルクでしめていくことも肝心かと思ひます。クランプ後の圧抜きもなるべくゆっくりとおこなったほうが良いでしょう。特に、高圧下では、圧抜きの際に部品の破損が頻繁に起きるようです。

図1にあるように、われわれは通常の SQUID 測定に用いられているストローに、デルリンで作製した治具を使って、クランプセルをぶら下げております。さて、SQUID を用いた磁化測定上、重要なことは圧力の確認でしょう。室温でかけた圧は、低温にすると様々な原因で圧抜けをしますので、出来れば毎回圧力のモニターをする必要があるでしょう。われわれは、Sn の超伝導転移点の圧力変化を追いかけることで低温での圧力を確定しています。図2にその例を示します。この測定では、残留磁場を極力減らすこと、毎回同様の測定条件でおこなうこと、超伝導体の測定では当然のことをしっかり行うべきです。転移点の圧力変化は、文献²⁾などを参照ください。マンメータを用い圧力を確定した後、測定試料の測定をおこないます。例として、図3に、セリウム金属間化合物 CeAg 単結晶の帯磁率の温度変化を示しました。強磁性キュリー温度などの圧力変化がよく観測されております。

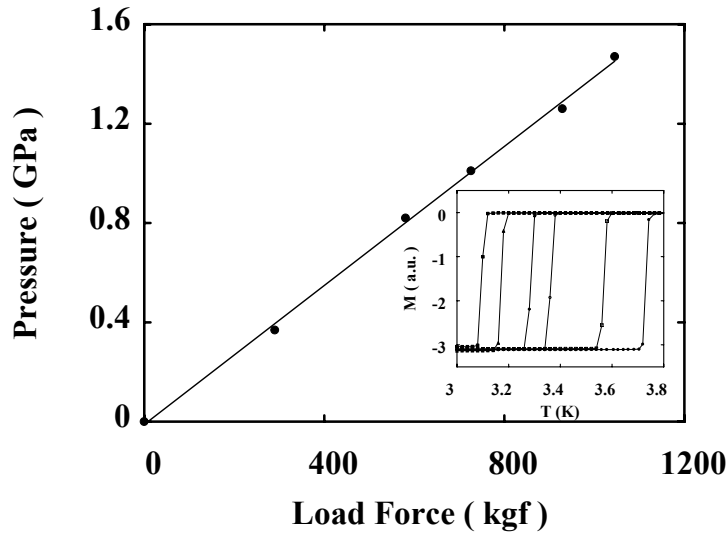


図2 Snの磁化の圧力依存

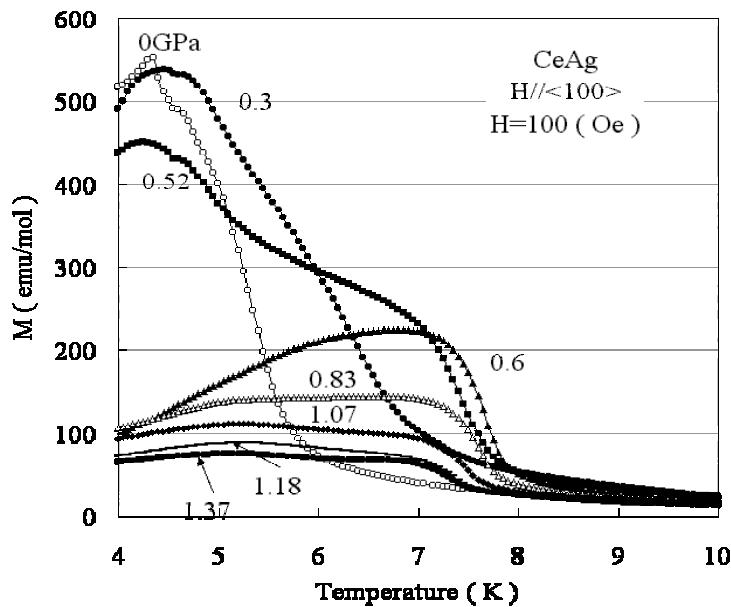


図3 CeAgの磁化の圧力依存

次は、比熱測定についてです。本稿でご紹介いたします、比熱測定は、以前、われわれが、通常の比熱測定をおこなうために用いていたもので、きわめて一般的な断熱法による測定装置です。これに、図1に示したような治具をもちいて断熱空間にぶら下げます。上部のナットにはあらかじめネジが切っておりますので、これを無酸素銅で作製したリングにねじ込めるようにしております。このリングには、RuO₂などの小型のチップ型の温度計が貼り付けられています。また、セル下部のナットにはM2のネジ穴がほどこされており、無酸素銅製のリングに、圧力セルをM2のネジで固定します。この下部のリングには抵抗ヒータが貼り付けられています。これらのセル固定用のリングはテグスなどでクライオスタットに結び付けられており、セルの脱着はき

わめて容易です。測定は通常の断熱法による測定でおこなっております。加熱曲線も良好で特に問題はありません。高圧下の比熱測定で重要なのは、圧力媒体の比熱の圧力変化でしょう。たとえば、フッ素ナトリウムは、高圧下で比熱がどんどん小さくなってまいります。これは、あらかじめ各圧力下で測定をおこなっておく必要があるでしょう。固体圧、たとえば、AgCl などを用いた測定をおこなっていらっしゃる研究者も多数いらっしゃるようです。この場合、圧変化はほとんどないようです。いずれにいたしましても、圧力媒体の吟味はこれからも、試行錯誤が必要であるようです。図4に実際の測定例を示しました。磁化測定によく対応した結果となっております。これらの結果は、現在進行中の高圧下での電気抵抗の結果などと総合的に解釈いたしまして、いずれ、発表の機会があればと思っております。さて、このセルは、クランプセルとしては、世界でも最小のもののひとつであろうかと思えます。重さとしては約9 g程度です。その分、試料空間が狭く、この測定の場合、試料が70mg程度であります。したがって、セルや圧力媒体を差し引いた後の試料の熱容量はきわめて小さいものとなるわけです。この測定の場合、磁気相転移の観測をおこなっていますので、試料からの寄与は比較的大きくなってまいります。また、圧力媒体の寄与も試料の寄与に比べまして、決して無視できるものではなく、この温度領域では、圧力媒体をいかに取り扱うかが、大きな命題かと認識しており、今後も、同様の測定を志向していらっしゃる研究者の方々同士の情報交換が重要かと思えます。

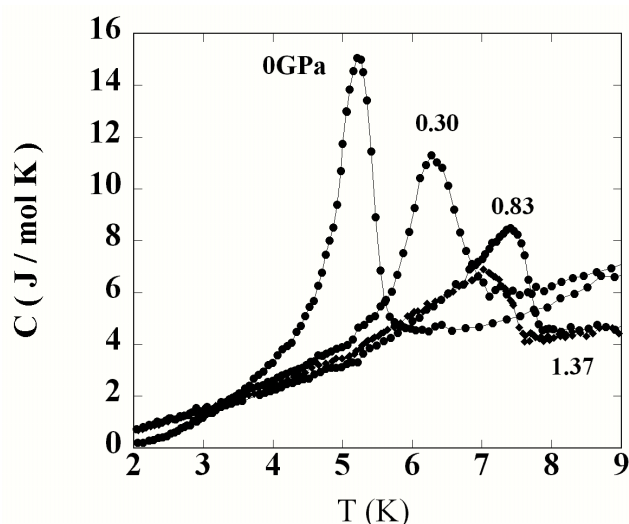


図4 CeAg の比熱の圧力依存

平成15年度も引き続き、物性研究所の客員研究員として、強相関電子系の圧力誘起超伝導体の研究を通して³He 温度領域、希釈温度領域での高圧下比熱測定の開発をおこなっております。また、交流法を用いた超高圧下での比熱測定法も確立すべく準備いたしております。全国の圧力下の比熱測定をおこなっておられます研究者のかたがた、どうぞ、情報をオープンにして、この分野を発展させましょう。

また、共同研究者の上床先生、辺土さんには、全面的にお世話になっております。ここに、感謝の意を示したいと思います。

参考文献

- 1) Y. Uwatoko et al., 固体物理 Vol.38, No.4 (2003) 47.
- 2) L. D. Jennings, C. A. Swenson: Phys. Rev. 112 (1958) 31.

研究室だより

田島研究室

新物質科学研究部門 田島研究室 田島 裕之

早いもので、物性研に着任して8年目を迎えた。私の研究室では、「有機物、分子性物質の物性探索」が“国是”であり、それに沿った研究をすすめてきた。今回の原稿は辛先生に原稿の依頼をうけたことが直接のきっかけであるが、助手の花咲君がこの7月に工学部物理工学科へ転出し、研究室のこれまでを振り返るにもよい時期にあるように思われる。

1. 1996年 着任直後

それまで勤めていた東京大学理学部化学教室を離れて、物性研究所に着任したのが1996年である。当時の記憶は今ではやや薄らいってしまったが、実験室として与えられた部屋に多くの高級な設備が残っていた事を今でも覚えている。一年近くかけて、備品の行き先を決め、物品によっては廃棄を行い、実験室を整備した。当時の物品で現在まで使っているものとしては、帯磁率測定装置があり、これは重宝している。

この年は、助手なし、学生なしでほとんど研究を行った記憶がないが、現在研究室で主力武器となっている、超伝導マグネット等の設計と入札を行ったことは今でも鮮明に覚えている。変わったところでは、理論の甲元先生、白石さんと共著で、計算の論文を書き上げている。

2. 電荷分離に関する仕事

翌年に入って、花咲君が助手として着任し、山本君、京田君が修士として入学し、ようやく研究室としての体裁が整ってきた。この年に、山本君の研究テーマとして開始した仕事が、 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ に関する研究である。

Liは+1価であるのに対して、Cuは約+1.33価となることから、この物質では、 Me_2DCNQI 上の(平均)伝導電子密度を0.5個/分子から0.66個/分子まで連続的に変えることができる。

一般に分子性伝導体の伝導電子密度をコントロールするのは難しく、ほとんどすべての分子性伝導体では、一分子あたり $1/n$ 個(n :整数)という値を持つ。このような値をずらすことにより、何が起こるかを調べてみたいという興味は以前からあった。とりわけ、次元性の高い物質では、格子周期との整合効果が大きいことが予想されるため、整数比をずらすことにより何らかの物性変化が期待できると考えたのである。

母体となる一次元伝導体、 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}$ は、室温で金属的な伝導性を示すが、温度を下げることにより構造相転移を伴わない金属-絶縁体転移(structure-less transition)を示すといわれており、その起源を探ることも目標の一つであった。

実際のところ、この実験で一番大変なのは、混晶比を決定して各種の試料を作成するところであるが、山本君はこの仕事を実に手際よくこなしたことは、今も記憶に新しい。またこの仕事においては、加藤先生をはじめとする加藤研究室のメンバー(特に青沼、山浦両氏)に、非常にお世話になった。

図1にこの物質系の電気抵抗温度依存性の図を示す(T. Yamamoto *et al*; *J. Phys. Soc. Jpn.*, **68**, 1384 (1999))。実験の結果、 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}$ の電気伝導度温度依存性は、以前から報告されている金属的なもの以外に種々のものがあることがわかった。ドーピングされた試料からの類推で考えれば、純粋な試料はむしろ半導体的な温度依存性挙動を示し、金属的な温度依存性はむしろ欠陥等によるということが明らかになった。また、ドーピングによる新たな相転移 ($x=0.14$ 付近) を見出した。

ドーピング効果の実験をしていて、ピュアな物質の特性を見出すということはある意味で意外であったが、これは物質を合成する立場からは、「少しでも金属的なものを得ようとする心理」が働き、金属的な電気抵抗温度依存性のみが論文として報告されていたものと考えられる。実際、その後何人かのひとに聞いてみたところ、半導体的な挙動を示すデータは以前から知っていたが、電極が悪くなったものと考えていたという話も聞いた。

$(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}$ の金属的伝導性が、実は欠陥によるものであったという発見は、当時の我々にとってはひとつの breakthrough であった。というのは、単純なバンド計算では、この物質は一次元金属となることが予想されていたからである。多くの一次元分子性伝導体は、中赤外領域に非常に強い電子遷移 (mid-infrared 吸収) を示すことが知られており、この光学的特性と金属的電気伝導性の共存がどう矛盾なく説明できるかは長い間議論されていた。 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ の結果は、この議論に決着をつけたもので、mid-infrared 吸収こそがこの物質の intrinsic な性質で、金属的伝導性はいわば extrinsic な性質であることが、これにより明らかになったのである。残る問題は、mid-infrared 吸収そのものの起源であるが、これは(動的)電荷分離・スピン分極を反映した電子遷移を考えれば、説明できることに気がついた。ちなみに一次元電子系における電荷分離の理論は、妹尾さん、福山先生らが、その当時提案していた。

$(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ に関する仕事は、電気抵抗測定、光反射測定に引き続いて、その後ラマン分光測定、熱起電力測定を行い、一次元電子系に関して依然としなかった部分が、多少なりとも私なりに理解できた気がしている。この仕事に関連して大きな収穫は、「動的な電荷分離・スピン分極は、観測周波数の差により、観測できたりできなかったりする」という考え方を、一連の実験結果に基づいて見出したことである。何人かの理論家による類似の提案が、ほぼ同時期に独立にあったが、実験に基づいた提案としてはこれが最初であったと思う。いわゆる強相関物質では、実験手法により金属的に見えたり、半導体的に見えたりする現象が古くから知られていたが、この提案は、この矛盾を解消するものであり、大筋では多くの研究者に現在受け入れられつつあるように思われる。またこの提案の正しさを証明するような実験事実が、他の研究者によっても、報告されつつある。

さて、mid-infrared 吸収を、電荷分離・スピン分極を反映した電子遷移と考える解釈は、mid-infrared バンドを用いて、電荷分離パターンを推定する可能性を切り開いた。電荷分離・スピン分極に伴う中赤外の遷移がどのようになるかは、それ自体理論の難しい問題と思うが、大部分の分子性伝導体の場合、オンサイト

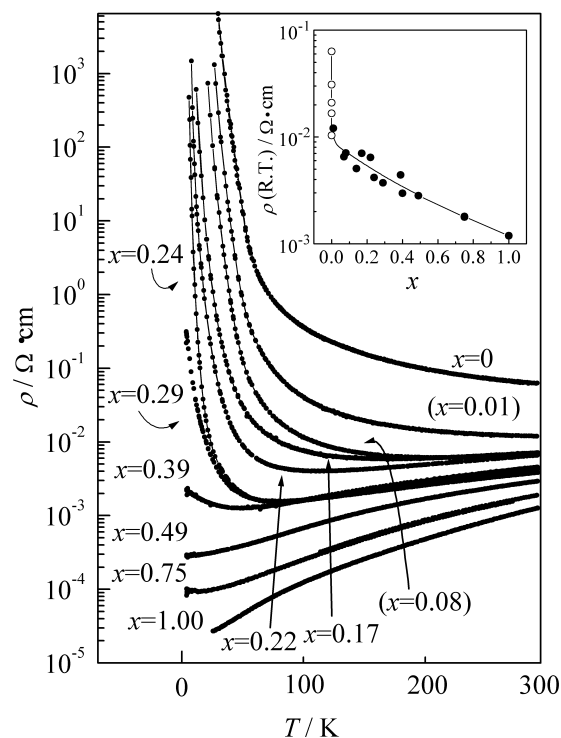


図1 擬一次元伝導体 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ の電気抵抗温度依存性 ($x > 0.39$ では3次元金属)。

クーロン反発はバンド幅よりも小さく、平均場近似でもある程度のことだと考えて、伝導度スペクトル計算を行うことにした。ちなみに、一電子強結合バンドモデルに対する伝導度スペクトル計算のプログラムは、以前に自作したものがあり、これを改良することにより、平均場近似のプログラムは容易に作成することができた。

これらの道具立てを用いて挑んだのが θ - $\text{ET}_2\text{MM}'(\text{SCN})_4$ ($\text{MM}'=\text{RbCo}, \text{RbZn}, \text{CsZn}$) 塩である。この試料は、現在物性研におられる森先生が超工研におられたときから、研究されていた物質で、鹿野田先生や高橋先生らのグループの NMR による研究で、電荷分離が生じていることは明らかにされていた。ただし、私たちが研究に取り掛かった時点では、電荷分離のパターンはまったく報告されていなかった。京田君に実験を行ってもらい、スペクトルの計算を行った結果、この物質の絶縁相の電荷分離パターンは水平ストライプ構造と考えれば、説明できることがわかり、物理学会で報告した (図 2 : H. Tajima *et al*; *Phys. Rev. B*, **62**, 9378 (2000))。この結果は、その後の NMR あるいは振動分光の研究により確認された。ちなみにこの θ - $\text{ET}_2\text{MM}'(\text{SCN})_4$ の実験においては、室温においても mid-infrared 吸収が観測されており、室温における電荷分離・スピン分極の可能性を示唆している。一電子近似の計算に基づいてスペクトルの解釈を行えば、垂直ストライプ構造の揺らぎが存在すると思われるのだが、この点に関してはまだはっきりとした結論は出ていない。

電荷分離の仕事は、分光学が前面に出てくる仕事でもあり、 θ 塩の後も続けている。 β - ET_2PF_6 は、私が博士課程の時代に赤外分光測定を行った物質であるが、当時はスペクトルの帰属が不完全であり、私自身ずっと気にしていた。最近、外国人特別研究員の Ding さんに、反射分光測定、Raman 分光測定を、再実験してもらったが、当時考慮していなかった電荷分離を考慮すると、スペクトルの帰属が矛盾なくできることがわかり、20 年ぶりに謎が解けた気分を味わっている。

電荷分離に関して最後にひとつだけ付け加えておきたいことは、2000 年の春に開かれた、物理学会の領域 7 シンポジウムのことである。このとき私は分子性伝導体の電荷分離に関連して、 $(\text{Me}_2\text{DCNQI})_2\text{Li}_{1-x}\text{Cu}_x$ 塩および θ - $\text{ET}_2\text{MM}'(\text{SCN})_4$ 塩の分光測定の結果と mid-infrared band の起源に関する解釈を述べたのだが、同じシンポジウムで、バナジウムブロンズに関して理論計算の立場から講演された千葉大の大田先生が、mid-infrared band の起源に関して、私とほぼ同じ結論を得ていた。この二つの研究は、まったく独立に進んでいたもので、同時期にほぼ同じ結論に至っていたことは、私としては驚きであるとともに、100 人力の加勢を受けた気分であった。

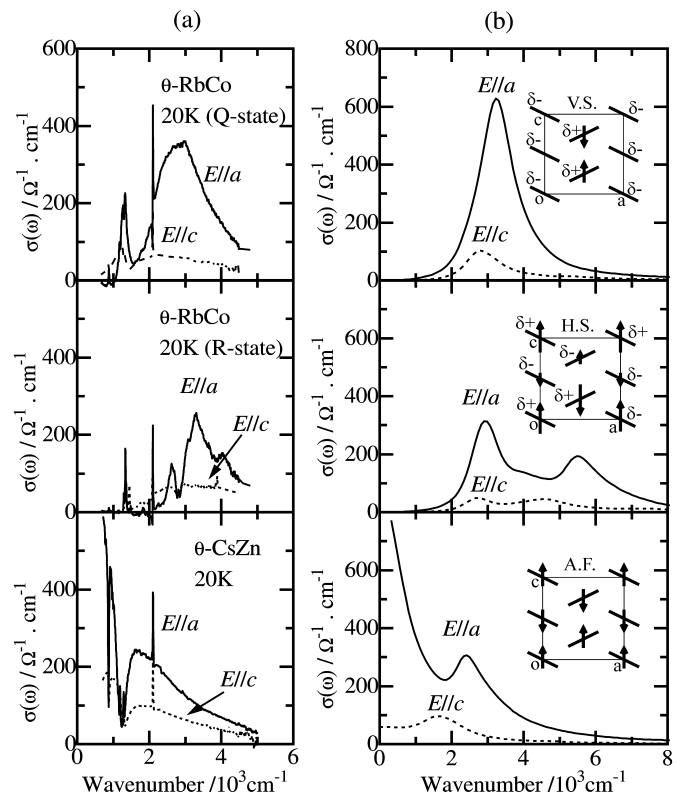


図 2 θ - $(\text{ET})_2\text{MM}'(\text{SCN})_4$ の光学伝導度スペクトル(a)および平均場近似による光学伝導度スペクトルの計算(b)

3. フタロシアニン塩の研究 —分子に由来する巨大負磁気抵抗—

(Me₂DCNQI)₂Li_{1-x}Cu_x よりやや遅れて研究を始めたのが、フタロシアニン塩である。この物質は、磁気輸送特性の装置を立ち上げるに当たって、なにか面白い試料がないかと思っていたときに、北大の稲辺グループの講演を分子構造討論会で聞いたのがきっかけであった。講演では、結晶構造類似の2つの電荷移動錯体 TPP[Fe(Pc)(CN)₂]₂ と TPP[Co(Pc)(CN)₂]₂ が、まったく異なる電気抵抗温度依存性を示すことを述べていた

(図3: Fe(Pc)(CN)₂ の分子構造: M. Matsuda *et al*, *J. Mater. Chem.*, **10**, 631 (2000))。この現象が Fe と Co の磁性の違いを反映していることを期待して、共同研究を始めた。稲辺グループには化学教室時代の研究室の後輩である内藤さんがいたため、いろいろと実験がしやすかった。

この研究を始めた時期は、分子性伝導体に関する磁気量子振動に関する研究がひと区切りつき、磁気抵抗に関連した新しい現象を模索されていたときである。負の磁気抵抗は、正の磁気抵抗と異なり、磁性と伝導電子の相関を反映しており、その点からも私は興味があった。磁気抵抗の実験は助手の花咲君が専門であったため、装置の立ち上げから一連の測定を行ってもらった。

最初の実験は、理学部化学から持ってきた、8T マグネットで行った。20K 程度の温度であったと思う。8T の磁場で、電気抵抗が数 10% 程度減少したのを見て、この物質での巨大負磁気抵抗の出現を確信した。

その後、18T のソレノイドマグネットがイギリスから届いて、本格的な実験を花咲君が始めた。異方性の大きな巨大負磁気抵抗 (図4: N. Hanasaki *et al*, *Phys. Rev. B*, **62**, 5839 (2000))、異方性の大きなキュリー定数等、この物質はいくつか驚くべき結果を示した。

Fe(Pc)(CN)₂ 分子では、鉄原子を内包したフタロシアニン環があり、前者は局在スピンの源となっており、後者は伝導電

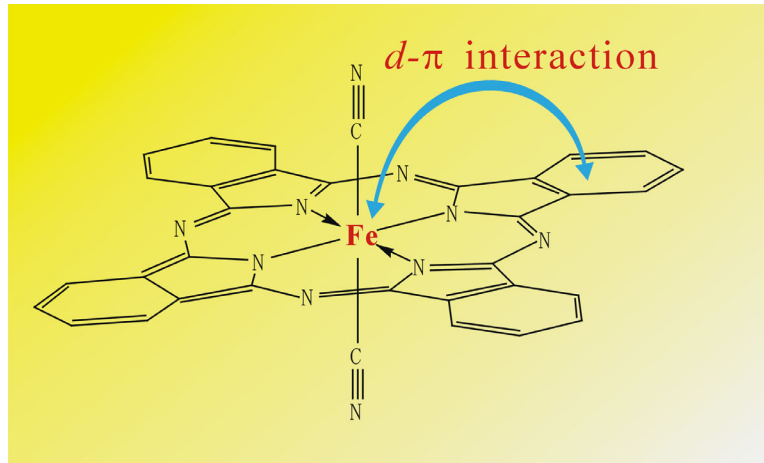


図3 d- π 相互作用と軌道磁気モーメントを有する分子 [Fe^{III}(Pc)(CN)₂]

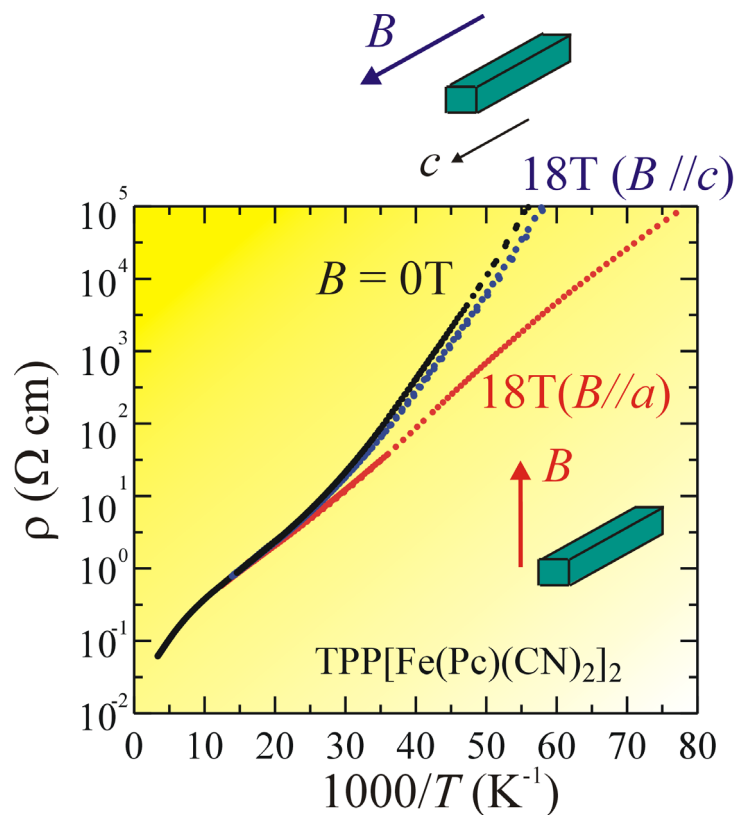


図4 TPP[Fe(Pc)(CN)₂]₂ 塩の"分子"巨大負磁気抵抗。磁場に関する異方性は Fe(Pc)(CN)₂ 分子の g テンソル異方性に起因する。

子の供給源になっている。この両者の間には強い $d-\pi$ 相互作用があり、そのため巨大負磁気抵抗が出現するというのが最も単純な解釈である。興味深いことに、この物質の負磁気抵抗異方性は、分子の配向を反映しており、CN 軸に沿った方向で大きな負磁気抵抗が観測される。これは、鉄原子の軌道磁気モーメントが部分的に残っており、 g 値が分子配向に依存した大きな異方性を持つからである。巨大負磁気抵抗を示す物質は種々あるが、分子レベルの電子構造を反映した巨大負磁気抵抗を示す物質としては、私はこの物質しか知らない。この物質の巨大負磁気抵抗は、 $[\text{Fe}(\text{Pc})(\text{CN})_2]$ 分子の構造そのものに起源があるために、結晶構造の異なるものでも $[\text{Fe}(\text{Pc})(\text{CN})_2]$ 分子さえ含めば、類似の現象を観測できると予想される。実際、結晶構造が異なる塩でも、類似の巨大負磁気抵抗は観測される。なお、鉄フタロシアニン塩を北大で作成していた、松田君は、この研究をきっかけとして、博士の学位を取得した後に、物性研に来ることとなった。また花咲君はこの塩に関する仕事を評価されて、最近工学部講師に昇任したことについては既に述べた。ちなみにこの鉄フタロシアニン塩の負磁気抵抗の測定は、研究室で行った定常磁場下の実験の後、超強磁場施設(大道さん、長田先生)で実験させていただく機会を得ている。その結果、電気抵抗が 1% 以下まで減少する現象を確認した(表紙の図参照)。

余談になるが、当初局在磁気モーメントを持たない、標準一次元物質として考えていた $\text{TPP}[\text{Co}(\text{Pc})(\text{CN})_2]_2$ についても、正の巨大磁気抵抗、磁気抵抗のヒステリシス等が最近見つかると、現象はより複雑化している。この現象の解明は、現在修士の柘田君が、樹神さん、瀧川先生にお世話になりながら、NQR, NMR による研究をすすめている。

4. Schön-Batlogg 事件、生体発光素子の研究

研究室の歴史を語る上で、2000 年におこった Schön-Batlogg 事件は省くことはできない。(注: その後の報告書では、Batlogg 氏の責任は問われていない。ただし、彼の「素晴らしい」講演が、この事件を拡大させたという点を考慮して、ここでは Schön-Batlogg 事件と呼びたい。) この事件の原因としては、研究者自身のゆがんだ功名心、周囲からの圧力等種々考えられるが、世紀の変わり目という特別な雰囲気もその遠因かも知れない。この時期古いものを捨て去り、新しい秩序を作ろうという機運が世界中で高まっていた。

実は、私自身は、Schön 氏らが FET 超伝導の報告をするより以前に、当時 M1 の坂本君と有機単結晶を用いた FET 作成を試みている。この実験は、私自身が過去 10 年間暖め続けていたアイデアでもあった。(おそらく同じ考えを持っていた人は、他にもいたと思う。) 坂本君と一緒にやった時の経験では、他のことをやりながら、ひとつづついろんな課題を解決してゆけば、単結晶 FET の作成は不可能ではないという感触であった。

このような経験があったため、ICSM2000 で Batlogg 氏の講演を聴いたときの衝撃は人一倍強かった。特に、「われわれはこれだけメンバーで、たった 2 年間で、この仕事をやった」と彼が誇らしげに会場で話したときは、いろいろな気持ちで、打ちのめされた状態であった。この状態は、一年以上続いた。

この研究は人によって受け止め方がずいぶんと異なったようである。私が打ちのめされた気分になった一方で、花咲君は、FET の実験をするのだと元気いっぱいであった。どうすべきか迷ったが、花咲君がぜひやりたいということで、M1 の塚本君と一緒にやってもらうことにした。

この仕事はどういう結末を迎えたかは、読者は既に御存知と思う。日本の多くのグループと同じ運命を迎えたのである。このことは、研究室としては残念なことであったが、Schön 氏の結果が捏造らしいといううわさが立つにつれて、私の心はだんだん晴れていった。

花咲君たちが単結晶 FET を目指した実験をしているうちに、私自身は別の方向を考えていた。そもそも、この種の分子デバイスは、非晶質あるいは多結晶薄膜試料を用いて作成することも可能であり、物性研究の

対象を、いわゆる分子性伝導体(=電荷移動単結晶) から、多結晶薄膜、非晶質薄膜、有機結晶界面へと拡張してゆくよい機会であると思うに至ったのである。

分子性伝導体は、たしかに有機物ではあるが、ある意味では特殊な有機物である。われわれの身の回りには、数限りない有機物があり、そういった当たり前の有機物の電子物性を研究できる可能性に魅力を感じた。そのような、非晶質物質の電子物性研究を行うためには、簡単に作成でき、モビリティに対する要求が低く、電流電圧特性だけでなく、発光スペクトルも得られる発光ダイオード素子のほうが、FET よりも物性測定手法としては優れている。そこで、池田君、松田君に、生体蛋白質の一種であるシトクロム c (図 5: 分子構造、図 6: 電界発光スペクトル: H. Tajima *et al*, *Solid State Commun*, **126**, 579 (2003)) を用いた有機発光ダイオードの作成に、取り組んでもらった。御存知のように有機発光ダイオードの研究は、実用レベルの段階に達しており、研究が進んでいる。ただし、こと生体物質に限れば、シトクロム c 生体発光ダイオードは、世界

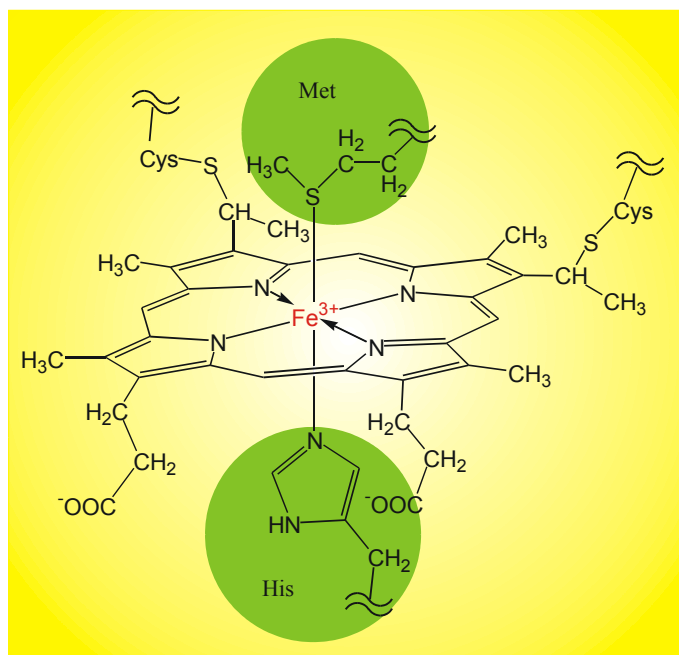


図 5 生体蛋白質 シトクロム c の分子構造

最初の研究成果だと思う。この生体発光素子の量子効率¹は 10^{-7} 程度ときわめて低い²が、生体物質の電子物性を研究するという観点から言えば、電流-電圧特性以外に、発光スペクトル、発光量子効率が求まる電界発光測定は魅力的である。この研究は、始まったばかりで詳しい話を述べる段階ではないが、大事に育てていきたいと思っている。PD の池田君、松田君、修士の縞谷君がこの仕事を現在行っているが、予想外のことばかりの連続である。なお、発光スペクトルの測定、および AFM の測定にあたっては、秋山研究室の皆様(秋山先生、安東さん、Ji-Won Oh さん、吉田さん)にお世話になっている。

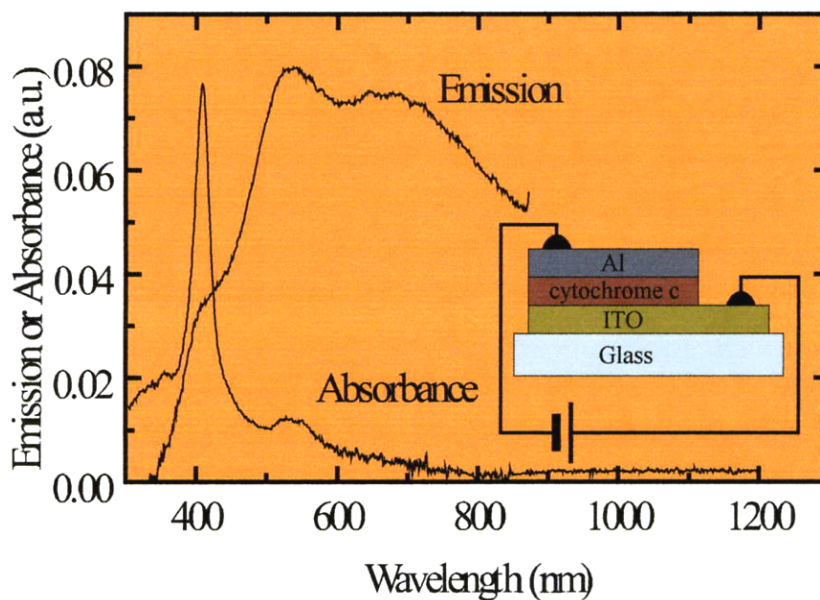


図 6 シトクロム c 生体発光ダイオードの電界発光スペクトル

5. 実験装置

物性研では、共同研究の垣根が低い。これまで述べてきた研究成果からもお分かりのように、私の研究室であげた節目となる成果は、所内共同研究の恩恵を何らかの点で受けている。しかしながら、海のものとも、山のものとも知れないものの実験を積み重ねていくためには、(特に研究の初期においては) 自前の装置が必要である。そのために、かなりの時間を使って装置の開発も行ってきた。ここでは、それらに関する説明を簡単に述べる。

(a) 磁気抵抗測定システム

この装置は、助手の花咲君が立ち上げ、フタロシアニン塩等の実験に使ってきた。超伝導磁石にはソレノイド型 (18T) およびスプリット型 (9T) の 2 種類があり、共通の温度可変インサートおよび希釈冷凍機を、両方のマグネットで用いることができる。

測定用のプローブとしてはいろいろあるが、代表的なものを挙げれば、一軸試料回転型プローブ、圧力セル用プローブがある。

(b) 光学用マグネットおよび赤外～遠赤外分光装置

この装置は磁場中の赤外～遠赤外反射分光スペクトルを測定するためのシステムである。磁場中で試料回転角を制御する部分を作成するのに手間がかかったが、赤外領域の測定に限れば、順調に稼動している。この装置の作成に当たっては、山崎さん、坂本君、井上君に協力してもらった。現在遠赤外領域への装置の拡張を行っている。

(c) 量子効率測定システム

有機 EL 素子の量子効率を測定するシステムである。現在は室温での測定のみが可能であるが、近いうちに低温での実験ができるように改造する予定である。

(d) 帯磁率測定システム

汎用の帯磁率測定システムである。5.5T までの磁場印加が可能である。

(e) 常磁性共鳴測定装置

X-band の汎用 ESR であり、1.5T までの磁場印加が可能である。

(f) 卓上型小型プローブ顕微鏡

自己検知式の AFM であり、有機薄膜の観察、膜厚測定に用いている

6. 光学測定室

光学測定室は、物質設計評価施設の共通実験室のひとつであり、田島研究室とは独立の研究室であるが、物性研着任以来、物質設計評価施設の光学測定室担当所員として、施設運営に携わっているため、多少触れておく。

光学測定室は柏移転に伴い、簡便な顕微分光関連の設備を充実させた。現在は、顕微ラマン分光測定、顕微赤外分光測定、顕微可視～紫外分光測定が可能である。これらの装置の中には、もともとは田島研で使用していた装置も混じっており、所内外の共同利用に供している。

柏に移転してから、顕微分光測定の装置を充実したため、共通実験室の利用者も、六本木時代と較べると増えて来た。ホームページを利用したセミナー室の予約システムが実験装置の予約に利用できそうだと思う、プログラムの作成者である常行研究室・赤木さんに相談したところ、システムを手直しして、光学測定室の機器利用予約システムを作成することを快諾していただいた。このシステムは、いろいろな点で便利であり、重宝している。(赤木さん本当にありがとうございます。)

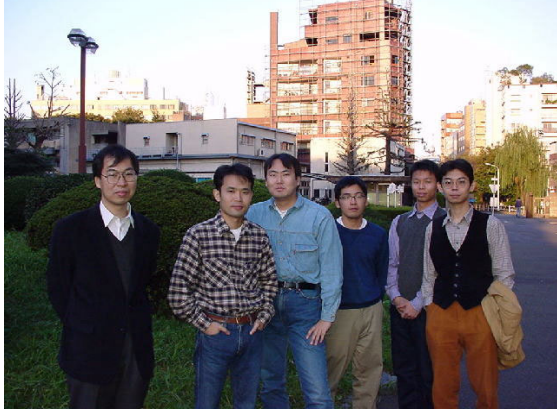
光学測定室には現在技官の方が居られないので、共同利用のお世話はもっぱら私自身と私の研究室で行っている。このため、受け入れ人数にも限界があるが、幸いにして現時点ではこの点は問題となっていない。

7. 課外活動

最後になるが、研究以外の活動に関して少し述べておこう。私自身が、もともとスポーツが得意というわけでないせいか、六本木時代に課外活動を取りたてて行った記憶はない。柏に移転してから、研究室メンバーに栢田君（野球）、縞谷君（テニス）、井上君、池田君（卓球）などスポーツが得意な人が増えて来た。中でも松田君はその中心人物で、ボーリング大会、バッティングセンター等で大活躍している。松田君は研究室にやってきた年に、ボーリング大会で個人総合優勝をはたし、その効果もあり、研究室も準優勝を果たした。

また翌年度は助手の花咲君が、個人総合優勝（なんと！）を果たし、松田君も個人総合成績で3位と活躍した。研究室としても2チーム出場し、はずれくじなしの3位と5位と入賞した。去年は松田君が個人総合成績で健闘した以外は、だめであったが、今年はぜひとも捲土重来を期したいと思っている。

以上思いつく範囲で、研究室が発足して以来の話を書いた。このようにしてまとめてみると、研究上で、所内外の共同研究の恩恵を受けているという感が強い。助手の花咲君、研究室メンバー、秘書の菱沼さん、共同研究者の皆様をはじめとして、周囲の人のお世話になっていると改めて思う。最後に拙文をここまで読んでいただいた読者に感謝したい。本稿を書くにあたっては、できるだけ間違いがないように書いたつもりであるが、なにぶん記憶に基づく記述であり、誤り等に関しては、御指摘いただくとともに、お許しいただきたいと思っている。



研究室の写真 (左上) 六本木時代にとった研究室の集合写真
(右上) 研究所ボーリング大会 (2001年) での準優勝メンバー
(下) 研究室メンバー (2003年4月)

物性研究所短期研究会

短波長光などのコヒーレンスの生成・消滅に関する新しい知見と構想

日時：平成15年11月14日(金)～11月15日(土)

場所：東京大学物性研究所 6階講堂

真空紫外線より短波長の「コヒーレント」な光を生成する試みは、レーザー、プラズマ・ソース、放射光などのそれぞれの手段において急速に発展しつつあり、また新しい手法・構想も提案されつつある。このなかで、「コヒーレンス」概念を分類し、どのようなコヒーレンスが生成されるのか、逆にどのようなメカニズムがどの種類のコヒーレンスを低減させるのかを明らかにすることは、量子ビットなど、コヒーレンスをなるべく長時間維持するなどの目的にとっても有用な指針をあたえると思われる。特に、局在励起に適している短波長光は一般に励起寿命が短いといわれるが、局在励起がある種のコヒーレンスを失うことにより（3準位レーザーのように）「準安定化」すると、一種の対称性の破れがおきて部分系である2準位系が別のコヒーレンスを獲得するというモデルが、短波長光の場合にもそのまま適用可能か、新たに必要な条件は何か、などを考察することは重要である。しかし、現状では全系のコヒーレンスの生成・消滅と部分系のコヒーレンスの生成・消滅を矛盾なく記述することは大変困難な問題である。

本研究会では、分野の異なる研究者が上記の問題意識をふまえて一堂に会し、比較的長時間の討論時間を保証しながら、原理的な問題については波長を特に限定せずに総合的視点で、これまでの到達点と新しい試みの提案等について集中的な議論を行った

プログラム

11月14日（金曜）

- | | | |
|-------------|-------------------------------|-------------------|
| 10:00～10:10 | はじめに | 宮原 恒昱（都立大・院理） |
| 10:10～10:50 | Energy Recovering Lineac | 横谷 馨（KEK・加速器研究施設） |
| 10:50～11:30 | サブ5 fs 可視光パルスによる分子振動コヒーレンスの研究 | 小林 孝嘉（東大・理） |
| 11:30～12:10 | サブ10アト秒精度の波束干渉計を用いた一分子メモリー | 大森 賢治（分子研） |
| 12:10～13:20 | 昼 食 | |
| 13:20～14:00 | 「コヒーレンス」概念の整理と問題の所在 | 宮原 恒昱（都立大・院理） |

- 14:00~14:40 強相関電子系における過渡的コヒーレント光学過程
相原 正樹 (奈良先端大学院・物質創成科学)
- 14:40~15:20 多連光パルス列による位相緩和の制御
内山智香子 (山梨大・医学工学)
- 15:20~15:40 休憩
- 15:40~16:20 エンタングルメントのデコヒーレンスと再構成
山本 俊 (総研大・先導科学)
- 16:20~17:00 半導体中のデコヒーレンス過程とその制御
南 不二雄 (東工大・理)
- 17:00~17:40 群速度とコヒーレンス
北野 正雄 (京大・工)
- 18:00~19:30 懇親会

11月15日 (土曜)

- 9:00~9:40 孤立分子系の様々な量子プロセスにおける位相干渉効果
上田 潔 (東北大・多元研)
- 9:40~10:00 空間コヒーレンスの高いプラズマX線レーザの発生
田中 桃子 (原研関西研・光量子科学研究センター)
- 10:00~10:20 プラズマX線レーザのコヒーレンス
並河 一道 (東京学芸大)
- 10:20~10:40 休憩
- 10:40~11:20 短波長短パルス光への期待—励起状態ダイナミクス—
鎌田 雅夫 (佐賀大)
- 11:20~11:40 SPring-8 BL27SU における BaTiO₃ の軟X線斜入射 speckle 実験
鈴木 拓 (北九州市立大・国際環境)
- 11:40~12:00 同上実験の解析
田口 宗孝 (理研・SPring-8)
- 12:00~13:00 昼食
- 13:00~13:40 二光子量子もつれ合い状態と量子干渉
枝松 圭一 (東北大・通研)
- 13:40~14:20 強磁場中での半導体からのテラヘルツ電磁波放射
猿倉 信彦 (分子研)
- 14:20~14:45 2次元超伝導プラズモンのテラヘルツ波応答
長島 健 (阪大・超伝導フォトニクスセンター)
- 14:45~15:45 全体討論とまとめ

Energy Recovery Linac

高エネルギー加速器研究機構 横谷 馨

近年、世界のいくつかの研究所においてERL (Energy Recovery Linac)の設計研究が進められている。これは第3世代光源を大きく上回る高輝度・短バンチの可能性をもつ新しいタイプの光源である。その原理は、放射光放出後の電子を、廃棄する前に、加速時と同じ超伝導線形加速器で減速することにより、そのエネルギーを回収して次の電子の加速に使うものである。これによって、限られた一次電力消費のもとで大電流が可能となると同時に、低エミッタンス・短バンチ光源を実現できる。高エネルギー加速器研究機構においても、物質構造研究所・加速器研究施設を中心に研究が進められている。本講演では研究の現状、問題点などをまとめる。

サブ5fs 可視光パルスによる分子振動コヒーレンスの研究

東大院理 小林 孝嘉

1999年度に開発した4.7fs パルス発生装置を用いて種々の分子や高分子の振動コヒーレンスの研究を行った。

1 ポリアセチレン: ポリアセチレンは最も単純な構造をもつ共役ポリマーである。白川教授らによる試料作成法の確立以降、実験面での研究が急速に進み、また、一次元電子系のモデル物質として、理論的にも様々な興味を引いている。ポリアセチレンには二重結合の立体配置により t (trans) 型と c(cis) 型の2種類が存在するが、そのうち t-polyacetylene では基底状態の2つの相、すなわち(-C=C-)n (A-phase)と(=C-C=)n(B-phase)が縮退している。このため、2つの相の境界に結合欠陥(ソリトン)が存在可能する。Bishop等によるSSHハミルトニアンを用いたシミュレーションによると、ソリトン対の分離に要する中間状態の寿命はおよそ100fsとされている。この中間状態においては、ソリトン対は強い空間的閉じ込めを受け exciton-like な振る舞いを見せ、さらに、「ブリーザ (breather)」と呼ばれる、周辺格子の振動を伴うダイナミカルなソリトン対の結合状態が存在することも、Fukutame等及び他のグループにより予想がされていた。しかし、実験的には、ブリーザそのものの存在が示された例はなく、今回初めてブリーザの実験的証拠を得ることに成功した。

2 ポルフィリンJ会合体: シアニン等ある種の色素分子は、適当な溶媒に高濃度にとかした場合は、分子間力により、会合体を作ることがある。この時、会合分子間の双極子-双極子相互作用により励起子が会合体中に非局在化し、この非局在励起子状態が吸収スペクトル中に非常に先鋭化したいわゆるJ吸収帯を示す。ポルフィリン誘導体である tetraphenylporphyrin sulfonic acid (TPPS)のJ会合体の第二励起一重項状態(S₂励起子吸収帯)を共鳴励起しプローブ光をJ会合体の吸収の低いエネルギーに対応する2.46eVでプローブした。その結果、吸収飽和及び、誘導放出によりプローブ光透過率が瞬時に増加し次に、130fsの時定数で減衰することが見られた。励起は、第二励起状態S₂へ行われているので、この減衰はS₂→S₁内部転換に伴うものである。実時間分光により得られた実験結果からスペクトログラムを計算した結果、単一分子では見られずJ会合体形成によってのみ見られる337cm⁻¹のリング・ドローミング・モードが観測された。このモードは、近似的に正方形平面型の分子がピラミッド型に面外振動するため、会合分子間の双極子-双極子相互作用に大

きな影響を与え、J 会合体の実時間分光に大きな信号となって現れる。このモードの二分の一周期に対応する、 663cm^{-1} の信号も見られ、これがほぼ130fs で減衰することが分かった。この倍周波数成分は、波束が、ポテンシャルの最低位置を通過する時に現れるプローブ波長に対応する信号は一周期で二回現れるので見られる成分である。従って、上の実験結果は、 2.46eV というプローブ光子エネルギーは、 S_2 のポテンシャル上ではその極小値の観測に対応し、 S_1 では、それ以外の点の観測に対応する事を示している。

サブ10アト秒精度の波束干渉計を用いた一分子メモリー

岡崎国立共同研究機構 分子科学研究所 大森 賢治

波束の干渉は物質の波動性を示す顕著な例であり、原子からナノ構造に至る様々な量子系を制御する上で最も基礎となる現象である。このような量子制御は、結合選択的な化学反応制御や量子コンピューティングといった先端的なテクノロジーの開発に繋がるものとして期待されている。波束干渉法の鍵を握る技術は、波束のペアを生み出す二つの光パルスの時間間隔をいかに精密に制御できるかという1点に集約される。その精度は、数フェムト秒からアト秒という波束の量子振動の時間サイクルを凌駕しなければいけない。そうすれば二つの波束の位相差はロックされ、安定した干渉が得られることになる。我々は、二つのフェムト秒パルスの時間間隔を10アト秒以下の精度で制御する「アト秒位相変調器 (APM)」と呼ばれる装置を開発し、これを HgAr 分子の希薄な集団に適用することによって、かつてない超高精度の波束干渉計をつくりだすことに成功した (Ohmori *et al.*, *Physical Review Letters*, upcoming article.)。この新しい波束干渉計は、実に 250nm 近傍の短波長域においても 100%のフリンジコントラストを発生させることができる。さらに我々は、波束内の三つの振動固有状態の干渉波形が徐々にばらけた後に再び同期する様子を実際に観測することに成功した。この現象は、三つの振動状態の量子振動の時間サイクルが互いに 0.1%ほどずれていることに起因しており、以前から知られている波束の崩壊と再生(collapse and revival, Yeazell *et al.*, *Physical Review Letters* 64, 2007 (1990).)とは全く異なるものである。このような干渉波形のずれを積極的に応用することによって、我々はパルスの時間間隔を変えるだけで三つの振動固有状態の任意の重ね合わせ状態をつくりだすことに成功した。また、干渉直後の位相情報は、熱的な分子集団に保存された各振動固有状態のポピュレーションを使って読みだすことができ、このポピュレーション情報は、系全体のコヒーレンスが消失した後でも分子集団内に長時間保存されることを実証した。これら一連の知見は、様々な量子系における波束干渉に共通する普遍的なものであり、コヒーレント制御の新たな局面の開拓に結びつくものである。

「コヒーレンス」概念の整理と問題の所在

東京都立大学大学院理学研究科 宮原 恒昱

本来、干渉現象から定義された「コヒーレンス」概念は、その運動自身が干渉性をもたなくとも、物質にその運動をコピーできる可能性を考慮することにより「全コヒーレント」という概念が生まれた。この概念をさらに一般化すると、光子波束の運動や光子波束のパルス列はコヒーレントな運動を物質中につくりだせ

るので、一般化されたコヒーレント状態の一種といえることができる。

しかし、光子を記述する6次元位相空間は、その要素がすべて干渉するにもかかわらず物理的実体としては区別することが重要である。特に $\omega-t$ 空間は、将来ホログラムなどの発展が期待されるが、実空間・運動量空間とは区別して扱わねばならない。物質系でも、たとえばBCS超伝導では、2種類の位相が熱浴の影響で自然に区別されるので注意する必要がある。

コヒーレンスの生成・消滅は観測過程と分かちがたく結びついているが、単パルスによる「ハンマー」としての役割はよく利用されているものの、熱浴による冷却を利用したコヒーレンスの生成例はまだ少ない。また全コヒーレントな軟X線の利用法についての提案もほとんどない。量子もつれに関連して、物質の内部自由度を考慮した光子の観測・測定の理論の構築が待たれる。

強相関電子系における過渡的コヒーレント光学過程

奈良先端科学技術大学院大学物質創成科学研究科 相原 正樹

強相関電子系は、高温超伝導を始めとする多様な物性を示すが、従来の研究は主にその低エネルギー励起状態に限られていた。しかし、最近、非常に大きな非線形光学応答や、モット絶縁体における光誘起絶縁体金属転移など強相関電子系に特有な興味深い光学現象の観測が報告されている。特に、パルス光応答は、電荷とスピンの自由度の絡み合いを敏感に反映することが明らかにされ、強相関電子系の特徴を明らかにする新たな切り口を与えることが期待されている。まず、ハバードハミルトニアンからオンサイト・クーロンエネルギー U が十分に大きい場合の有効ハミルトニアンを導出した。これは、基底状態において良く知られた $t-J$ ハミルトニアンの他に、光励起状態に特有なホロンとダブロンペアの様々な運動を記述する項を含む。これを元にパルス光励起された強相関電子系の過渡的な各種相関関数を計算した。1次元系の場合のスピンの相関関数は殆ど時間変化せず、スピン電荷分離が起きていることが示された。2次元系の場合、スピンの相関関数の減衰は電荷相関関数より遅れて現れ、スピンと電荷は完全に分離はせずある程度結合していることが示された。また、2次元系におけるTFWMの時間応答は、ダブロンとホロンの相対運動による $1/t$ 程度の非常に速い緩和の後に、スピンの緩和を反映した遅い緩和を示す。スピンの相関関数の場合と異なり、遅い緩和はほぼ指数関数的減衰を示し、位相緩和時間は $1/J$ ($J=4t^2/U$) で決まっている。これは、TFWMが系のコヒーレンスを観測しているために電荷と位相の絡み合いを明瞭に反映している点に注目したい。

多連光パルス列による位相緩和の制御

山梨大学 大学院医学工学総合研究部 内山智香子

近年、量子コンピューティングの研究が飛躍的に進み、量子原理の情報分野への応用が現実味を帯びてきている。しかし、下敷きとしている理論研究は理想的条件下での基礎的振る舞いを示したに過ぎず、期待される大容量・高速コンピュータの実現に向けて克服すべき問題は数多く残されている。中でも、情報を担う量子系が外部環境からの影響に脆いために、長時間にわたって安定した情報制御ができないことが深刻な障

害となっている。本講演では、その障害を取り除く方法の一つとして、多連光パルス列の印加による純位相緩和現象の回復について述べる。具体的には、(1) スピナーボソン系において、純位相緩和現象を記述するために本質的な役割を果たす非線形相互作用を取り入れた場合のパルス制御法の有効性について、(2) 環境世界の性質を利用した、パルス制御法について述べる予定である。(参考文献:C.Uchiyama and M.Aihara; Phys. Rev. A68, 042311(2003), C.Uchiyama and M.Aihara; Phys. Rev. A 66, 032313(2002).)

エンタングルメントのデコヒーレンスと再構成

山本 俊^{A,B}、井元 信之^{A,B,C} ^A総研大先導、^BCREST、^CNTT

近年、量子力学の特異な性質を利用して新しい情報処理を行う、いわゆる量子情報処理の研究が注目を集めている。特に多くの qubit を必要とするタスクにはデコヒーレンスの影響が顕著に表れるため、量子情報処理にはデコヒーレンスから qubit を保護する為の方法として、量子エラー訂正(QECC)、エンタングルメント抽出、無擾乱部分空間(DFS)等が理論的に考えられている。特にエンタングルメントは qubit の通信を仲介する万能なリソースとして注目されている為、エンタングルメント抽出は重要な操作として注目されている。我々はこのエンタングルメント抽出を線形光学素子と光子検出器のみを用いて行う方法を提案し、パラメトリック変換から発生した偏光状態のエンタングルした光子対を用いて実証実験を行った。本研究会ではこのエンタングルメント抽出に関して報告する。

半導体中のデコヒーレンス過程とその制御

東京工業大学大学院理工学研究科 南 不二雄

GaAs 量子ドットにおいて電子分極、特に励起分極の位相が1ns 以上も保持することを示した。GaAs 量子ドットにおいては、フォノン・ボトルネック効果により励起子とフォノンとの衝突過程が凍結されて、励起子の位相が長時間保持されることがこれらの結果が観測できる原因であることを示した。

物質に π パルス列を照射して、ディファイジング過程をアクティブに凍結するという新しい試みを層状半導体 GaSe の励起子に対して行った。この方法は π パルスによる時間反転を巧みに利用した方法であり、通常の半導体を用いても電子分極の位相緩和時間が飛躍的に長くなる方法である。実験結果を基にして、この方法の実現性を議論した。

群速度とコヒーレンス

京都大学大学院工学研究科電子工学専攻 北野 正雄

最近、光の群速度が再び注目されている。電磁誘導透過(EIT)や誘導ラマン増幅などの量子エレクトロニクス的手法により、媒質の分散特性を制御することによって、群速度を真空に対する値“ c ”から大幅に変化させることが可能になったからである。

ここでは2つのテーマ、すなわち(1) 光速“ c ”を越える群速度と負の群速度 (2) EITによる低群速度と光パルスの静止,について議論する。

吸収線の中央付近や、利得線の近傍では分散が減少する異常分散が見られる。吸収係数の周波数依存性に起因する波形の変形を押さえることにより、 c を越える群速度が観測されるようになった。異常群速度の本質は集中定数系における負群遅延に帰着させることができる。電子回路による負群遅延回路は、上記の因果律との関係を見るのに適した系である。

遷移の干渉効果である EIT は非常に狭い周波数範囲で起こり、対応する位相変化も急峻であり、大きい正常分散を示す。EIT の窓に同調したパルスを入射すると、真空の場合に比べて非常にゆっくりと伝搬させることができる。このパルス伝搬は光と原子系のコヒーレンスの混成モード(dark state polariton) の伝搬と見なすこともできる。ポラリトンの伝搬速度は、2つの光の一方(制御光)の強度に依存する。これを利用すると、伝搬中のパルスの速度を自由に変化させることが可能であり、極端な場合には全く静止させてしまうことができる。このパルスの凍結効果を利用して、光の量子状態を原子系に移す手法が提案されている。

孤立分子系の様々な量子プロセスにおける位相干渉効果

東北大多元研 上田 潔

Young の2つのスリットを通過した光の干渉実験は光が波の性質をもつことを証明するものである。電子もまたシュレディンガーの波動方程式で記述されるような波の性質をもつために同様の実験で干渉を観測することができる。様々な系の量子過程には Young の2スリット実験のように始状態と終状態とが等しいけれどもそこにいたる経路が異なることによる干渉効果が多く見出される。本発表ではこのような干渉効果の観測を3例ほど紹介する。

空間コヒーレンスの高いプラズマX線レーザーの発生

日本原子力研究所 光量子科学研究センター 田中 桃子

光量子科学研究センターではレーザープラズマを利得媒質としたX線レーザーの開発とコヒーレントX線の利用技術開発を行っている。今回、波長 13.9 nm のX線レーザーで、フルコヒーレントでビーム発散角がほぼ回折限界のX線レーザーを得ることができた。これは、2つの利得媒質を用い、1つ目の利得媒質中で発生したX線レーザーをシード光として2つ目の利得媒質で増幅するという方法で発生させている。このX線レーザーのパルスあたりのコヒーレント光子数は 10^8 個であり、さらに媒質の最適化により2桁以上の増力が可能である。

プラズマX線レーザーのコヒーレンスの利用

東京学芸大学 並河 一道

最近、ダブルターゲット方式のX線レーザーが日本原子力研究所関西研究所の光量子科学研究センターのX線レーザーグループによって開発され、ほぼ回折限界に近い空間コヒーレンスを持つ光源が実現した。この光源の特徴は、ボース縮退度（コヒーレント体積に含まれる光子の数）が極めて高い（ $\sim 10^{10}$ 、放射光は $\sim 10^3$ ）ことである。このような光源を用いると原子の内殻に高い確率で2つのホールを生成することができる。このとき1つのホールがつぶれて発生する蛍光X線の強度はボース縮退度の2乗に比例し、入射X線強度の2次の相関を反映する。2ホール生成を原子相関分析器として利用して、X線レーザーのコヒーレント時間が評価でき、プラズマX線の発光源のサイズが求まる。原子相関器を用いるこのような光源の評価方法は将来の自由電子レーザーの光源の特性評価にも利用できる発展性がある。1ホール状態とは異なる対称性をもつ励起状態に関する分光学的な情報が得られることなどこの現象を利用した別な発展の可能性もある。

短波長短パルス光への期待—励起状態ダイナミクス—

佐賀大学シンクロトロン光応用研究センター 鎌田 雅夫

最近、世界的に盛んになってきた新しい短波長短パルス光源の開発や利用に向けて、放射光とレーザーを組み合わせたポンププローブ法による実験手法（①レーザーポンプ+放射光プローブ、②放射光ポンプ+レーザープローブ、③レーザー+放射光の2光子励起など）について概観したのち、①の場合の具体例として、GaAsならびに超格子系表面における表面光誘起起電力（Surface Photo-Voltage）効果についての内殻光電子プローブによる研究結果を報告し、ナノ秒領域ならびにマイクロ秒領域での半導体表面での熱的ならびにトンネル過程によるキャリアダイナミクスについて考察した。また、BESSYで行なわれたSi表面のSPV効果についての60psまでの時間分解内殻光電子分光や高調波軟X線を利用した約60fsの時間分解能を持つ光電子分光によるPt/酸素の表面化学研究、ならびに内殻励起子減衰過程の研究など、今後短波長短パルス光源の利用に期待したい研究課題を紹介した。

SPring-8 BL27SUにおける BaTiO₃の軟X線斜入射 speckle 実験

(北九市大環工、^a日大文理、^bJASRI-SPRING-8、^d播磨理研、^e東大物性研、^f岡山大理)

○鈴木 拓, ^a高野 秀和, ^b竹内 晃久, ^b上杉健太郎, ^b鈴木 芳生, ^b為則 祐介, ^d高田 恭孝,
^d田口 宗孝, ^{e,d}辛 埴, ^f澤田 昭勝

speckle 実験は入射光に高いコヒーレント性を要求するため、主としてレーザー光を用いて行われてきた。近年第3世代型の放射光施設を用いて高輝度・高コヒーレント光が利用できるようになり、X線 speckle 実験の報告がなされている。本発表では SPRING-8 BL27SU にて行った BaTiO₃ 単結晶表面に対する全反射軟X線 speckle 実験の結果を報告する。speckle 実験では一般にビームの絞り込みにピンホールが用いられているが、本研究ではより極小のビームをより大フラックスで得るためにフレネルゾーンプレートを使用した。試料には BaTiO₃ を用いた。BaTiO₃ は400K 付近にキュリー点近傍の構造相転移点があることが知られている。本実験では室温で0次反射光である円状の像と、その円型像斜め上方の小角散乱領域に細かい線状反射が観察された。試料を383K→450K と加熱してゆくにつれて像は大きく変化し383K では0次反射光は楕円状になり、内部に大きな縞模様構造が生じる。上方の小角領域の線状反射はまとまってきて次第に太くなった。450K では小角領域の反射光は消失し、円内部の模様も極めて淡くなった。これはキュリー点を越えた BaTiO₃ 表面が1.7Kev の軟X線全反射に対して完全平滑であることを示している。

軟X線スペckル実験の解析

理化学研究所/SPRING-8 田口 宗孝

コヒーレントな光がランダムな構造を持つ表面から散乱された場合、散乱光の強度はランダムな干渉縞を示す。これはスペckルとして知られており、可視光領域ではレーザーによる研究が盛んに行われている。これに対し、X線領域（特に軟X線領域）でのスペckル実験は近年ようやく始まったところである。一般にスペckル像のパターンには特定の表面構造の情報が含まれている。スペckル実験において測定される量はフーリエ変換パターンの絶対値であり、パターンの位相の情報を実験的に取り出すことは難しい。しかしながら物体の電子密度の情報を得るには、位相情報を何らかの形で得なければならない。これがいわゆる「位相問題」である。

本発表では、軟X線領域でスペckル実験をある意義や特徴（特に元素選択性や偏光依存性）とこれから可能性などを概観した後、現段階で最善の方法と思われるオーバーサンプリングによる位相再生の方法についての詳しい解説を行う予定である。

強磁場中での半導体からのテラヘルツ電磁波放射

分子科学研究所 猿倉 信彦

Magnetic-field dependence of THz-radiation power from InAs surface is investigated by using a hybrid magnet up to 28 T. It is found that THz-radiation power saturates at around 3 T and also at 13 T. This result leads to the conclusion that a magnetic field of 3 T is optimum for the enhancement of THz-radiation power. Additionally, THz-radiation spectrum exhibits periodic structure at magnetic fields above 12 T. This can be attributed to the change of dielectric constant induced by the strong magnetic field resulting in the interference of THz-radiation pulses from the front and back surfaces of the InAs substrate.

2次元超伝導プラズモンのテラヘルツ波応答

大阪大学 超伝導フォトンクス研究センター 長島 健, 田中 優紀, 萩行 正憲

テラヘルツ帯の低次元プラズモンポラリトンの応答を測定することを目的として、高温超伝導体薄膜にグレーティング結合器を付与した試料について、テラヘルツ電磁波パルスの透過測定を行った。透過電場波形をフーリエ変換して得られる透過率及び位相シフトスペクトルには結合器を付与しない場合には見られない、特異な構造が観測された。これら透過電場波形及びスペクトルの温度変化から超伝導キャリアのプラズモンと電磁波が結合した2次元プラズモンポラリトンがコヒーレントに励起されていることがわかった。励起されたポラリトンはプラズモンを構成する超伝導キャリアにダンピングがないために、よりプラズモ的な性質を持つ。講演では透過特性温度変化の詳細、ポラリトンの分散曲線を測定した結果について紹介する。

物性研究所短期研究会

フラストレーションが創る新しい物性

日時：平成 15 年 12 月 1 日（月）～12 月 3 日（水）

場所：東京大学物性研究所大講義室 6 階 A 632 室

はじめに

大阪大学理学研究科 川村 光

相互作用に競合があるような所謂フラストレート磁性体の磁気秩序化の問題は、3 角格子反強磁性体・カゴメ格子反強磁性体やスピングラス等の研究を通じて長らく活発な研究が展開されてきたところであるが、最近では特にスピネル系、パイロクロア系に大きな関心が集まっている。これらのフラストレート磁性体では強い揺らぎの効果のため、系の秩序化が低温まで抑制されたり、通常では見られない特異な秩序化現象が生起される。例えば量子スピン液体、スピニアイス、カイラル秩序相、カイラルグラス、量子多量体秩序等の新奇な秩序化現象や概念が提唱され、現実にも観測されつつある。このようなフラストレート磁性体には、絶縁体のみならず金属のものも多数存在し、そこではフラストレーションと伝導電子の絡みが興味深い現象を引き起こす。近年注目されている例として、d 電子系の示す重い電子的な挙動や、ある種のパイロクロア磁性体で顕著に観測される異常ホール効果、新規 3 角格子系 $\text{Na}_x\text{CoO}_2\text{yH}_2\text{O}$ の示す超伝導などがあげられる。また、幾何学的フラストレーションを有する格子上的の強相関電子系の示す特異な振る舞いも理論的に注目されつつある。

このような最近の興味深い研究の進展を受け、昨年度前期には、物性研短期研究会「フラストレート系の磁性と新しい物性」を開催した。多数の参加者を得て活発な発表討論が行われ、極めて有意義な研究会となった。この成功を受け、本年度はフラストレート磁性を包含する形でより広く、伝導現象、金属絶縁体転移、電荷・軌道自由度等の電子物性とフラストレーションの関わりをも視野に入れ、我が国のフラストレート系の研究の一層の発展に資すべく、短期研究会「フラストレーションが創る新しい物性」を開催した。フラストレーションに関連した数多くの講演があり、多数の参加者を得て大変活発な質疑応答がなされ、極めて有益な研究会となった。

プログラム

12月1日（月）

●10:50-10:55 はじめに（連絡など）

セッション I 座長 東大物性研 今田 正俊

●10:55-11:20 スピネル酸化物における相転移と軌道自由度 東大物性研 上田 寛

●11:20-11:40 クロムスピネル酸化物 CdCr_2O_4 の磁性 理研 香取 浩子

●11:40-12:00 LiV_2O_4 における重い電子の起源 東大物性研 山下 靖文、上田 和夫

昼食 12:00-13:00

セッション II 座長 名大理 佐藤 正俊

●13:00-13:25 パイロクロア格子上の超伝導 東大物性研 広井 善二

- 13 : 25-13 : 50 三角格子超伝導体 $\text{Na}_x\text{CoCo}_2\text{yH}_2\text{O}$ の NMR 京大理 吉村 一良
 - 13 : 50-14 : 15 三角格子上での強相関電子系 東大理 小形 正男、是常 隆
 - 14 : 15-14 : 35 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot \text{yH}_2\text{O}$ の NMR/NQR 名大理 小林 義明、横井 麻衣、佐藤 正俊
 - 14 : 35-14 : 50 $\text{Na}_2\text{CoO}_2 \cdot \text{yH}_2\text{O}$ への不純物効果 名大理 横井 麻衣、小林 義明、佐藤 正俊
 - 14 : 50-15 : 10 Na_xCoO_2 の高分解能角度分解光電子分光
東北大理 佐藤 宇史、H-B. Yang、H. Ding、S.-C.Wang、A. K. P. Sekharan、松井 浩明、相馬 清、
高橋 隆、竹内 恒博、J. C. Campuzano、R. Jjn、B. C. Sales、D. Mandrus、Z. Wang
 - 15 : 10-15 : 25 フラストレーション系での CDW と超伝導 東大理 田中 康寛、柳瀬 陽一、小形 正男
- 休息 15 : 25-15 : 40

セッションⅢ 座長 阪大理 川村 光

- 15 : 40-15 : 55 フラストレートしたハバードモデルと三角格子 $t\text{-}J$ モデルの超伝導
東北大理、名大工、東大理 横山 寿敏、渡⑩ 努、田仲由喜夫、井上順一郎、小形 正男
 - 15 : 55-16 : 10 三角角格子多軌道ハバード模型による Na_xCoO_2 の超伝導
名大理、新潟大理 矢田 圭司、大野 義章
 - 16 : 10-16 : 25 Orbital degeneracy and spin-triplet superconductivity in triangular lattice
スイス連邦工科大学 山下 靖文
 - 16 : 25-16 : 40 スピネル相 CuCo_2S_4 の Tc への不純物効果 名大理 相藤 夏紀、佐藤 正俊
 - 16 : 40-17 : 05 スピン1/2かごめ格子反強磁性体の基底状態と低エネルギー励起 京大人間環境 前川 覚
 - 17 : 05-17 : 25 Nb 系新パイロクロア酸化物 $\text{R}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$
京大理、京大国際融合創造セ 中辻 知、坂井 修、Yatramohan Jana、深澤 英人、前野 悦輝
 - 17 : 25-17 : 40 フラストレーションと量子効果—量子 ANNNI モデルの場合 京大基研 常次 宏一
 - 17 : 40-17 : 55 フラストレーションによる銅酸化物の電荷ストライプ 東北大理 坂井 徹
- 懇親会 18 : 00-20 : 00 於・物性研食堂



12月2日(火)

セッションⅣ 座長 京大人間環境 前川 覚

- 9 : 30-9 : 55 3次元ハイゼンベルグスピングラスのスピンのカイラリティ秩序化 東大総合文化 福島 孝治
 - 9 : 55-10 : 15 磁場中3次元ハイゼンベルグスピングラスの秩序化 阪大理 今川 大輔、川村 光
 - 10 : 15-10 : 35 カノニカルスピングラスの異常ホール効果 阪大理 谷口 年史
 - 10 : 35-10 : 50 スピングラス転移と異常ホール効果 名大理 影山 健友、佐藤 正俊
 - 10 : 50-11 : 05 XY スピングラス模型におけるスピンのカイラル転移
東北大工 山本 剛生、中村 統太
- 休息 11 : 05-11 : 15

セッションⅤ 座長 東大物性研 ⑩川 仁

- 11 : 15-11 : 35 パイロクロアスラブ構造を持つ磁性体 $\text{Ba}_2\text{Sn}_2\text{Ga}_{10-7p}\text{ZnCr}_7\text{pO}_{22}$ の磁性
福井大工、福井大遠赤外セ 菊池 彦光、藤井 裕、光藤誠太郎

- 11 : 35-11 : 55 パイロクロア格子上のハイゼンベルグモデルの秩序化 阪大理 川村 光、伊尾木将之
 - 11 : 55-12 : 10 スピネル型 CuCrZrS_4 のリエントラントスピングラス 室蘭工大 永田 正一
 - 12 : 10-12 : 25 希釈磁性体とリエントラントスピングラス 東北大工 安孫子俊介、松原 史卓
- 昼食 12 : 25-13 : 25

セッションVI 座長 東大工 十倉 由紀

- 13 : 25-13 : 50 カゴメアイス状態からのエントロピー放出 – 比熱による $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の低温物性相図 –
京大国際融合創造セ、京大理 前野 悦輝、東中 隆二、中辻 知
 - 13 : 50-14 : 10 パイロクロアスピンアイスの磁場誘起転移 東大物性研 榊原 俊郎
 - 14 : 10-14 : 30 スピンアイス化合物の低温磁性 九工大工 松平 和之
 - 14 : 30-14 : 45 磁場中の双極子のスピンアイス---[110]-方向とその周辺
北大理 吉田 俊一、根本 幸児、和田 宏
 - 14 : 45-15 : 00 ガーネット格子上的スピンアイスの振る舞い 阪大工 吉岡 匠哉
 - 15 : 00-15 : 20 $\text{Rb}_2(\text{Pd}_{1-x}\text{M}_x)_3\text{S}_4$ ($\text{M}=\text{Co}, \text{Mn}$) の希釈カゴメ格子磁性
東工大理工 飯尾 勝矩、藤原 香弘、久木 亮太
 - 15 : 20-15 : 40 フラストレーション系の強磁場 ESR 神戸大分子フォトセ 太田 仁
- 休息 15 : 40-15 : 55

セッションVII 座長 東大新領域 高木 英典

- 15 : 55-16 : 40 強相関電子酸化物のスピンカイラリティおよびベリー位相の制御 東大工 十倉 好紀
- 16 : 40-16 : 55 比熱からみた $\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ および $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ における磁気構造変化
ERATO 小野瀬佳文
- 16 : 55-17 : 15 パイロクロア系 $\text{R}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ($\text{R}=\text{Tb}, \text{Yb}, \text{Ho}$) の低温での磁氣的挙動
名大理、原研 安井 幸夫、佐藤 正俊、加倉井和久
- 17 : 15-17 : 30 カイラル秩序の実験的検証を巡って 九大理 網代 芳民
- 17 : 30-17 : 50 CePdAl の部分無秩序状態 京大人間環境 小山田 明
- 17 : 50-18 : 05 Classical and Quantum Spin Dynamics in the fcc antiferromagnet NiS_2 with Frustration
東北大金研 遠藤 康夫
- 18 : 05-18 : 20 フラストレーションのある多重軌道電子模型の新奇な軌道秩序状態
日大理工 山中 雅則
- 18 : 20-18 : 35 バナジウムスピネル酸化物におけるフラストレーションとスピン軌道相転移
理研、京大基研 求 幸年、常次 宏一
- 18 : 35-18 : 50 パイライト型化合物 NiS_2 の高周波 ESR
福井大遠赤外セ 光藤誠太郎、藤田 敏之、出原 敏孝、本河 光博

12月3日 (水)



セッションVIII 座長 京大理 前野 悦輝

- 9 : 30-10 : 00 フラストレーションによって生まれる新しいタイプのスピン液体、電荷液体
物性研 今田 正俊
- 10 : 00-10 : 25 3角格子上の強相関フェルミオン系 – 2次元ヘリウム3の低温物性 東大理 福山 寛
- 10 : 25-10 : 40 Gapless Spin Liquid in Two Dimensional Antiferromagnetic Solid ^3He
物性研、*Rutgers Univ. 枘富 龍一*、柄木 良友、石本 英彦
- 10 : 40-11 : 05 3角格子を有する有機伝導体におけるスピン液体と電荷グラス 東大工 鹿野田一司

休息 11:05-11:15

セッションIX 座長 阪大理 川上 則雄

- 11:15-11:40 3角格子を持つ強相関2次元系分子性導体 Pd(dmit)₂塩の物性 理研 加藤 礼三
- 11:40-11:55 擬三角格子をもつ有機導体の超伝導 物材機構、東理大理工 近藤 恒、守谷 亨
- 11:55-12:20 2次元直交ダイマースピン系 SrCu₂(BO₃)₂の磁化プラトーと磁気励起 東大物性研 樹神 克明、瀧川 仁
- 12:20-12:35 2次元直交ダイマー系 SrCu₂(BO₃)₂ における磁場誘起現象: Dzyaloshinsky-Moriya 相互作用の影響 青学大理工、Lausanne 大 宮原 慎、F. Mila

昼食 12:35-13:35

セッションX 座長 京大理 吉村 一良

- 13:35-13:55 三角格子およびカゴメ格子での電子相関効果 阪大工、京大基研 川上 則雄、今井 剛樹、常次 宏一
- 13:55-14:15 フラストレーション系の magnetocapacitance 早稲田大理工、JST さきがけ 勝藤 拓郎
- 14:15-14:30 歪んだ三角格子磁性体 KNiCl₃ 系物質における磁性と誘電性および複合物性 東工大理工 西脇 洋一、飯尾 勝矩
- 14:30-14:45 層状酸化物 Na_xCo₂O₄ における重い電子系の振舞 島根大総合理工 三好 清貴
- 14:45-15:00 三角格子上の斥力 Hubbard 模型における triplet 超伝導の可能性 東大理、電通大量子物質工 有田亮太郎、黒木 和彦、青木 秀夫
- 15:00-15:15 Na_xCoO₂ におけるトリプレット f 波超伝導の可能性---ポケット状フェルミ面と van Hove 特異点の効果--- 名大工、東大理、電通大量子物質工 黒木 和彦、田仲由喜夫、有田亮太郎
- 15:15-15:30 幾何学的フラストレーションの存在する金属電子系における多量体秩序形成の可能性 青学大理工 下村 能弘、宮原 慎、古川 信夫
- 15:30-15:45 2次元 J₁-J₂ハイゼンベルグ模型におけるプラケット状態 豊田工大、名大理、三重大工 高野 健一、大野 義章、佐野 和博

休息 15:45-16:00

セッションXI 座長 東大物性研 上田 和夫

- 16:00-16:15 Phase transition of three-dimensional frustrated systems 東大工 轟木 義一、宮下 精二
- 16:15-16:30 ランダム磁場・異方性スピン系の相図 原研計算科学セ 板倉 充洋
- 16:30-16:45 スピン梯子系のカイラルな状態と双対性 理研 桃井 勉、引原 俊哉
- 16:45-17:00 S=1/2 ジグザグ XXZ スピン鎖における1/3プラトー状態と分数磁化励起 新潟大理 奥西 巧一
- 17:00-17:15 フラストレートした S=1/2ボンド交替鎖の磁場誘起相転移 阪大サイバーセ、新潟大理、東工大理工、東北大理 前島 展也、奥西 巧一、岡本 清美、坂井 徹
- 17:15-17:30 磁場中のスピンラダーとチューブにおけるフラストレーションの効果 東工大理 佐藤 正寛
- 17:30-17:45 S=1 two-leg ladder の(1/2) 飽和磁化のプラトーとフラストレーション 東工大理工、東北大理、新潟大理 岡本 清美、坂井 徹、奥西 巧一
- 17:45-18:00 d-ドットで実現するスピンアイス: 超伝導ナノテクによるフラストレート系の創世 原研計算科学セ*、東北大金研+、大阪府大工*、CREST(JST)# 町田 昌彦*#、板倉 充洋*、小山 富男+*、加藤 勝*#、石田 武和*#
- 18:00-18:15 FR スピン AF 系と振動系との結合-カイラリティと動的ヤーンテラー効果と対応- 千葉大自然科学、大阪市大工 山崎 久嗣、夏目 雄平、寺井 章、中村 勝弘

スピネル酸化物における相転移と軌道自由度

東京大学物性研究所 上田 寛

スピネル構造のBサイトは、所謂パイロクロア格子と呼ばれる正四面体の頂点共有による3次元ネットワークを形成し、反強磁性磁気秩序や電荷秩序に対し強いフラストレーションを持つ。スピネル酸化物には多くの化合物が存在し、d電子の数が半整数の LiTi_2O_4 や LiV_2O_4 は最低温度まで電荷秩序を形成せず、前者は超伝導を後者は重い電子系の振る舞いを示す。また、d電子の数が整数の物質は絶縁体で、ワイス温度からは強い反強磁性相関が期待されるが、低温で立方晶から正方晶への構造相転移により幾何学的フラストレーションが解け初めて反強磁性磁気秩序を示す。ところで、最も量子効果が期待される $S = 1/2$ (d^1)の物質は興味深い物性が期待され強く望まれていたにもかかわらずこれまで報告がなかった。我々は初めて該当物質 MgTi_2O_4 の合成に成功し、この物質が 260 K で立方晶から正方晶への構造相転移を伴う金属—絶縁体転移を示すことを見出した。低温金属相はスピン 1 重項状態にあり、転移の性格はパイエルス転移に似ている。何故 1 次元系固有のパイエルス転移が 3 次元系で生じるのかについて、スピネル構造が BO_6 八面体の稜共有による 1 次元鎖の直交 3 次元格子になっていることから、1 次元鎖方向に軌道秩序が起これば電子系が 3 次元系から 1 次元系になり、パイエルス転移が起こりえるというモデルを提唱した。スピネル格子における軌道秩序については、最近 ZnV_2O_4 についても非弾性中性子散乱実験からその証拠が見出された。 ZnV_2O_4 はワイス温度が約 800 K と高いにも関わらず、低温まで磁気秩序を示さず、50 K で構造相転移を示した後 40 K で反強磁性磁気秩序を示す。構造相転移温度以上の立方晶常磁性相での非弾性中性子散乱スペクトルは 3 次元反強磁性スピン揺らぎで説明できるが、50 K 以下の正方晶常磁性相および正方晶反強磁性相でのスペクトルは全く非対称で、1 次元磁性モデルで説明される。これらの結果は、2 個の d 電子の内 1 個は d_{xy} 軌道を占め、残りの 1 個はある 1 次元鎖方向では d_{yz} を、それに直交する 1 次元鎖方向では d_{zx} を占める軌道秩序を考えると 1 次元鎖方向には強い磁気相関、1 次元鎖間には弱い磁気相関となり、1 次元磁性モデルが説明できる。

これらのことは、強くフラストレートした系で、如何にして何らかの自由度を使ってそのフラストレーションを解きエントロピー的に安定は状態を作り出すかを示していて、興味深い。

他に、 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ に続いてシャストリー・サザーランド格子を持つ第 2 の 2 次元直交ダイマー系物質 $\text{Nd}_2\text{BaZnO}_5$ の磁性についても報告した。この物質の最も奇妙な点は、非磁性物質 $\text{La}_2\text{BaZnO}_5$ との固溶系において、磁性 Nd イオンが薄まるにも関わらず、Nd あたりの磁化率はその値および温度変化において極低温付近を除いて全く同じ挙動を示す点にある。即ち、磁性 Nd イオン間の磁気相関が非磁性 La イオンで断ち切られるにも関わらず、Nd イオン間の磁気相関がほとんど変化無しに残っているように見え、不思議な現象である。

クロムスピネル酸化物 CdCr_2O_4 磁性

理化学研究所,CREST 香取 浩子

CdCr_2O_4 は Cr^{3+} がパイロクロア格子を形成しているために幾何学的フラストレーションを有するスピネル酸化物反強磁性体である。Curie-Weiss 温度 θ が -70K であるにも関わらず、強いフラストレーションのために反強磁性秩序は $T_N=7.8\text{K}$ という低温で形成される。単結晶試料を用いた帯磁率の測定結果 (図1) から、1 次転移を示す帯磁率のとびが T_N で起こり、 T_N 以下では容易面型の磁気異方性を持つことがわかる。この反強磁性相転移は立方晶から正方晶への構造相転移を伴うが、磁性イオンである Cr^{3+} では t_{2g} 軌道の縮退が解けているため、軌道自由度が消失している。従って、この構造相転移はスピンと格子とが強く結合している結果生じる転移であり、スピン—ヤーン・テラー転移とも呼ばれている。スピンと格子とが強く結合した幾何学的フラストレーション物質の秩序形成に対する磁場の影響について調べるために、 CdCr_2O_4 の強磁場中での磁化および強制体積磁歪を測定した。

図 2 に強磁場磁化曲線を示す。28T 付近でヒステリシスを伴った磁化のとびが生じ、28T 以上では $1.5\mu_B/\text{Cr}^{3+}$ の磁気モーメントを持った磁化プラトーが観測された。この結果から、28T 以上では磁場によって新しい磁気秩序が形成されるこ

とが明らかとなった。測定は立方晶の[111], [100], [110]のそれぞれに平行に磁場を印加して行なったが、磁化曲線の磁場方向依存性が全く観測されなかったことから、強磁場中では等方的な磁気異方性を持つと考えられる。磁化プラトー相では、磁化の値から、正四面体の頂点に位置する4つの Cr^{3+} スピンのcollinearであり、そのうちの3つのスピンの上向き、1つのスピンの下向きの磁気構造を持ったフェリ磁性状態であると予想される。強制体積磁歪の測定から、このフェリ磁性相への転移は大きな磁歪を伴っていることが明らかになった。従って、この磁場誘起相転移においてもスピンと格子とが強く結合していると結論できる。

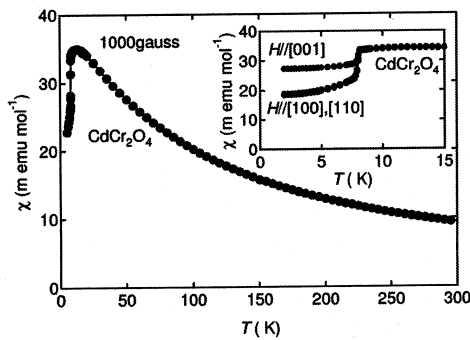


図1 CdCr_2O_4 の帯磁率

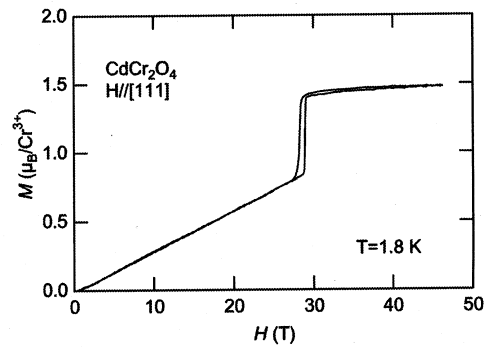


図2 CdCr_2O_4 の強磁場磁化曲線

パイロクロア格子上的超伝導

物性研 広井 善二

パイロクロア格子を有する新しいパイロクロア関連酸化物 $\text{KO}_2\text{Os}_2\text{O}_6$ において、転移温度 10Kの超伝導を発見した。通常のパイロクロア酸化物は $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_6\text{O}'$ の一般式で表され、立方晶系の空間群 $\text{Fd-}3\text{m}$ に属し、A、B、O、O' 原子はそれぞれ 16d、16c、48f、8b サイトにある。ここで遷移金属原子 B は6個の酸素原子 O に囲まれた八面体をなし、頂点を共有して三次元ネットワークを形成する。B原子のみに着目すると、B原子の正四面体が頂点を共有しながら繋がった、いわゆるパイロクロア格子が現れる。一方、新しい酸化物 AB_2O_6 では、同一のパイロクロア格子を有するが、A原子がO'原子の代わりに8b サイトに入ると考えられている。このような構造はA原子が比較的大きな場合に安定となることが予想され、実際に RbNbWO_6 などにおいてこのタイプの結晶構造が報告されている。しかしながら、A原子が小さい時には、単に16d サイトに欠損が生じる場合があり、そこでも AB_2O_6 組成の酸化物が存在することが知られており、これらは一般に欠損型パイロクロア酸化物と呼ばれている。これらを区別するために、ここではA原子が8bサイトを占める酸化物をβ型パイロクロア酸化物と呼ぶことにする。

β型パイロクロア酸化物 $\text{KO}_2\text{Os}_2\text{O}_6$ では、Osの形式価数が5.5価であり、2.5個の5d電子を有する。この電子数は、すでに1Kの超伝導が発見されているパイロクロア酸化物(α型) $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ ($5d^2$) と 225Kで金属—絶縁体転移を示す $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ ($5d^3$) の中間に対応する。これら三つの酸化物は基本的にパイロクロア格子上的の遍歴電子系においてバンドフィリングを変えた系とみなすことができ、その結果としてこのように大きな物性変化を示すことから非常に面白い物理が潜んでいるように思える。特に $\text{KO}_2\text{Os}_2\text{O}_6$ の超伝導は、以下の2つの実験事実より unconventional な可能性が高く興味深い。一つは、その上部臨界磁場が通常の超伝導に予想されるパウリリミットの2倍に達することである。2つめは、静磁化率の温度依存性が高温でキュリーワイス的であり、-300Kを越える負のワイス温度から大きな反強磁性相互作用の存在が予想される。さらに面白いことに、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ に見られるような長距離秩序の代わりに約50Kに何らかの短距離秩序または擬ギャップの存在を示唆するブロードな山を示して低温で減少する。これには大きな電子相関効果とパイロクロア格子上的のフラストレーションが関係しているものと考えられる。最近報告された CoO_2 三角格子における超伝導とともに、三角格子を舞台とした新しい超伝導研究の今後の展開が大いに期待される。

三角格子超伝導体 $\text{Na}_x\text{CoCo}_2\text{yH}_2\text{O}$ の NMR

京都大理・大学院理学研究科 吉村 一良

最近 Takada らによって発見された超伝導体 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ ($x=0.35, y=1.3$) は、Co 酸化物および 2 次元三角格子系では初めての超伝導体であり注目されている。

超伝導発現機構について有益な実験的知見を得るため、 ^{59}Co 核 NMR・NQR 測定を行った。NMR・NQR 測定は、超伝導ギャップ関数の対称性やフェルミ面における状態密度に関する微視的な情報を得るのに非常に有効な手段である。まず、Co サイトの NQR 測定（ゼロ磁場）において得られたスピン格子緩和率 ($1/T_1$) は、 T_c 直下で急激な減少を示し、その温度依存性はほぼ T^3 に従う。通常、Fermi 面上で等方的なギャップを持つ s 波のスピン三重項超伝導体では、ギャップ形成に伴って $1/T_1$ が増大するため T_c 直下でピークを形成し、それより低温はほぼ指数関数的に減少する。したがって、この NQR の $1/T_1$ の振る舞いは、Fermi 面上で等方的なギャップが形成されない、いわゆる異方的超伝導が実現していることを示している。また、NMR でも、ゼロ磁場での結果同様、 T_c 直下で急激な減少を示しており、7 T の磁場下でも超伝導が存在し、高い H_{c2} (約 60 T) のために、 T_c があまり変化していないことに対応している。

次に、磁場配向試料 (c 軸が磁場に垂直に配向した二次元パウダー試料) を用いて得られた磁場掃引スペクトルから、電気四重極相互作用を 2 次摂動で取り扱ったときに得られる関係 $\delta H_j = K_j + C_j / H_j^2$ ($j=1, 2$) に従うことを用いて、ナイトシフトの面内方向の 2 つの成分および電気四重極相互作用のパラメータを決定した。その結果、 T_c より低温において、実験誤差範囲内でナイトシフトは一定であることが明らかになった。このことは、 $1/T_1$ で見られたように超伝導のギャップ関数がこの化合物において異方的であると同時に、スピン三重項超伝導が形成されていることを強く示唆している。現在のところこの異方性は、 Sr_2RuO_4 や UPt_3 のように、超伝導を担うクーパ対の対称性が p 波または f 波であることを起因すると考えられる。常伝導状態において示唆された強磁性的な揺らぎを考慮すると、 CoO_2 面において、RVB (Resonance Valence Bond) 状態が成立しているという興味深い理論研究も報告されている。

以上、Co 酸化物で初めての超伝導体 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ ($x=0.35, y=1.3$) において、非常にエキゾチックな異方的スピン三重項超伝導が実現している可能性が高いことが NMR・NQR 測定により得られた。

三角格子上での強相関電子系

東京大学理学部 小形 正男、是常 隆

幾何学的フラストレーションを持つ格子については、これまで主にスピン系において研究がなされてきた。一方、電子系におけるフラストレーションの効果は未だわかっていないことも多い。フラストレーションの効果が表われるためには、スピン系と同様に、かなり強い電子相関のある系を考えなければいけない。しかし、一般に強相関とフラストレーションを同時に扱うということは非常に困難であるため、このような研究はこれまであまりなされていなかった。

我々は、三角格子ハイゼンベルグ模型において提唱された RVB 状態という量子的な状態が、正孔をドープしたときにどのように現われるかということについて研究した。近年、 Na_xCoO_2 や有機導体である κ -(BEDT-TTF) $_2\text{X}$ などにおいてほぼ三角格子もつ物質が見つかり、その中には超伝導を示すものも見ついている。これらの物質を念頭に置いている。

三角格子 t - J 模型に対して平均場近似を行うと、格子の形状に整合した $d_x^2 - y^2 + id_{xy}$ 波という異方的超伝導状態が half-filling 近傍で実現することがわかった。さらに高温展開法という手法を用いても、この平均場近似の結果と同じ結論が得られることを示した。高温展開法は強相関とフラストレーションを厳密に扱える数少ない手法のひとつであり、低温への外挿という困難があるものの、様々な性質を明らかにすることに成功した。特に、 t - J 模型のパラメータであるホッピング t の符号によって、系の性質が全く変わってしまうことも明らかになった。

$t > 0$ の場合に超伝導相関の計算を行うと、上記の d 波超伝導の相関が発達することが明らかになった。一方 $t < 0$ の場合には、相図上の非常に広い領域で強磁性状態が安定化することがわかった。このことは平坦バンド強磁性や金森理論

と、長岡の強磁性とが連続的につながっているということを表している。この強磁性的な領域の近傍では、トリプレット超伝導の相関が発達することが確かめられた。特に、低電子密度領域ではハバード模型でも示唆されている f 波超伝導の相関が発達することが分かった。このように、フラストレーションのある系では様々な超伝導の可能性があることを示すことができた。

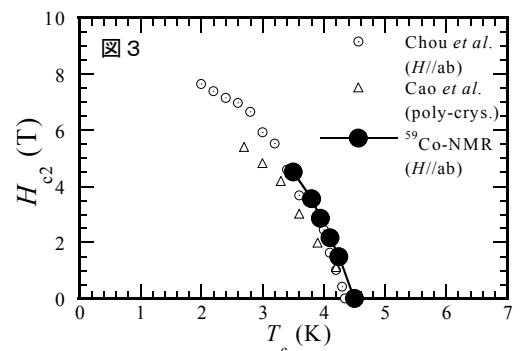
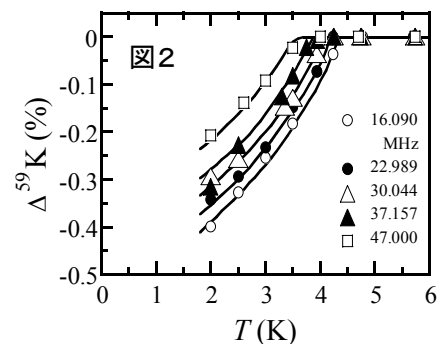
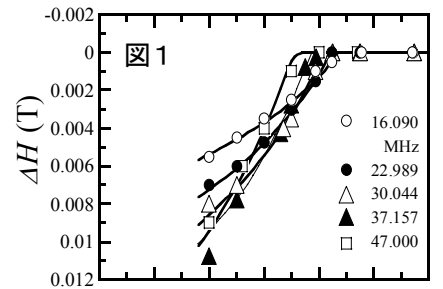
- [1] T. Koretsune and M. Ogata: Phys. Rev. Lett. **89**, 116401-1-116401-4 (2002). “Resonating-Valence-Bond States and Ferromagnetic Correlations in the Doped Triangular Mott Insulator”
 [2] M. Ogata: J. Phys. Soc. Jpn **72**, 1839-1842(2003), “Superconducting States in Frustrating t - J Model: A Model Connecting High- T_c Cuprates, Organic Conductors and Na_xCoO_2 ”
 [3] T. Koretsune: Doctor Thesis (Univ. of Tokyo, 2004).

$\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ の NMR/NQR

名大理 小林 義明、横井 麻衣、佐藤 正俊

$\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ はコバルト酸化物として初めての超伝導体で、超伝導転移温度 $T_c = 4.5\text{K}$ をもつ¹⁾。伝導を担う CoO_2 面内の Co が二次元三角格子を形成するという特徴から超伝導状態が unconventional である可能性²⁾ や multi-band 系であることを考慮した軌道ゆらぎによる s 波超伝導の可能性³⁾ が期待される。この系の超伝導オーダーパラメーターの対称性を議論するため、 ^{59}Co 核磁気共鳴を用いて共鳴磁場の(ナイト)シフトや核磁気緩和率 $1/T_1$ の温度依存性を調べた。主要な結論は論文⁴⁾ 報告したので、ここでは Co-NMR スペクトルより見積られたナイトシフトの結果を詳細に述べる。

試料の CoO_2 面内のひとつ y 方向に磁場をかけた場合、 ^{59}Co NMR 共鳴磁場は、 T_c 以上 10K までほとんど温度変化しないが、 T_c 以下降温で徐々に増加を示す。図 1 にその様子を示す。但し、 $\Delta H(T) = H_{\text{res}}(T) - H_{\text{res}}(4.7\text{K})$ とした。測定温度領域では四重極共鳴周波数 ν_Q が温度に依存せず殆ど一定であることから、 T_c 以下の共鳴磁場の増加は ν_Q の二次の効果ではなく内部磁場の減少だけが効く。 T_c 以下の超伝導相で見られる内部磁場の減少の起源として、スピン-重項形成によるスピン磁化の減少と超伝導の反磁性磁化の出現とが考えられるが、スピン磁化の減少中は外部磁場増加に伴って増加するのに対し、反磁性磁化は逆に減少するという異なる磁場依存性を持つ。図 1 を見ると $T=2\text{K}$ で外部磁場の増大に伴い内部磁場の減少量は増大するので、スピン磁化(磁化率)が T_c 以下減少していることがわかる。図 2 にナイトシフト K の 4.7K からの差 $\Delta K = f\gamma/H_{\text{res}}(T) - f\gamma/H_{\text{res}}(4.7\text{K})$ を示す(f は共鳴周波数、 γ は核磁気回転比)。これが T_c 以下スピン磁化率の減少量に対応する。 T_c 以上の K の温度変化から K のスピン成分は $0.6 \pm 0.1\%$ と見積られるので、 $T=0\text{K}$ で K のスピン成分は殆ど零になるようである。よって超伝導電子対は singlet 状態にあると結論づけられる。 ΔK が減少を始める温度は外部磁場の増加と共に減少することがわかる。これは単結晶試料⁵⁾ や多結晶試料⁶⁾ で報告された電気抵抗の磁場依存性から見積られる T_c の磁場依存性(即ち H_{c2} の温度依存性)にほぼ一致する。Co-NMR から得られた T_c の磁場依存性を参考論文^{5, 6)} からのものと合わせて図 3 に示す。 $T=0\text{K}$ での $H_{c2}(H//ab)$ は約 8T と見積られ、この値は T_c が 4.5K



をもつ超伝導体の singlet 対に対する Zeeman 分裂の効果いわゆるパウリ限界で理解できるものである。このことも超伝導電子対が singlet であることを支持する。以上のように、Co-NMR ナイトシフトからは超伝導オーダーパラメーターの対称性が s 、 d 、 g 波などに限定されると考えてよい結果を得た。さらに零磁場 NQR で測定された核磁気緩和率を温度で割った $1/T_1T$ は T_c 以上で低温に向けてわずかに増大を示すが、 T_c 直下で降温時に増大を示した後、明らかに T_c より低温にずれた温度から減少に転ずる振舞を示す。これは超伝導状態が s 波か d_1+id_2 波のように、超伝導オーダーパラメーターの対称性がノードを持たないものであることを支持する。

参考論文

- 1) K. Takada *et al.*: Nature **422** (2003) 53.
- 2) M. Ogata: J. Phys. Soc. Jpn. **72** (2003) 1839.他
- 3) K. Sano and Y. Ono: J. Phys. Soc. Jpn. **72** (2003) 1847.
- 4) Y. Kobayashi *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **72** (2003) 2161 及び 2453.
- 5) Chou *et al.*: cond-mat/0306659.
- 6) Cao *et al.*: J. Phys.: Condens. Matter **15** (2003) L571.

この結果とは異なり T_c 直下から降温で $1/T_1T$ が減少し、より低温での温度変化が d 波対称性支持する結果が T_c 高く残留状態密度の小さい試料で現れるというの報告もあり⁶⁾、データの信頼性を高めるべく、再現性等を確かめなければ成らない。

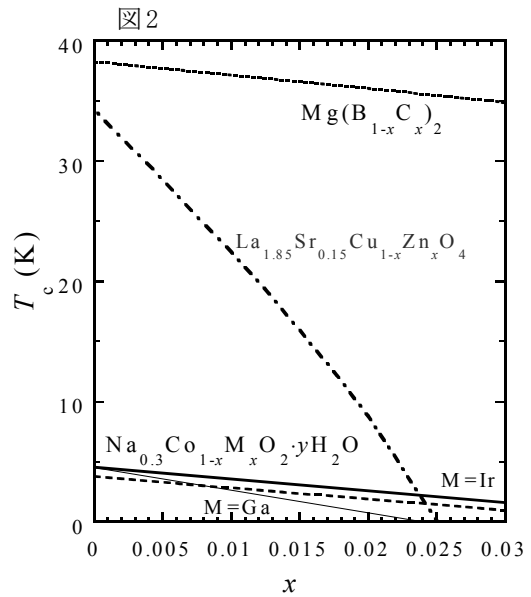
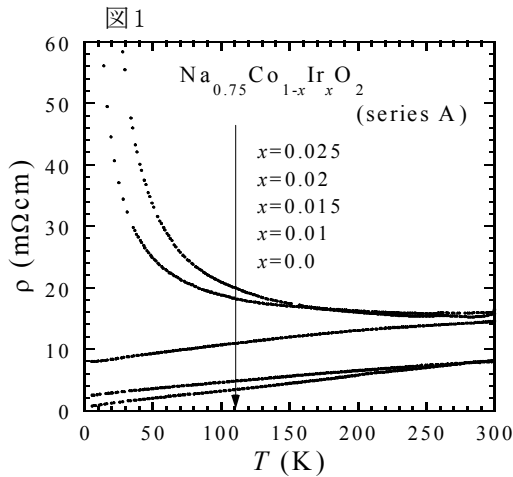
NazCoO₂·yH₂O の T_c への不純物効果

名大理 横井 麻衣、渡部 秀和、森 義彦、茂吉 武人、
横田 一広、中島 正雄 小林 義明、佐藤 正俊

Co の三角格子を含む NazCoO₂·yH₂O は、転移温度 $T_c \sim 4.5$ K の超伝導を示す。我々はこれまで、Co-NMR のナイトシフト、零磁場 NQR の核磁気緩和率 $1/T_1$ の測定を通して、超伝導電子対の対称性について議論してきた。ここでは、非磁性不純物の T_c への影響の大きさが、超伝導秩序パラメーターの対称性が s 波かどうかを決める手がかりになることに注目し、Co サイトにいくつかの種類の不純物ドーブを試みた。そのうち確実にドーブが行われていると思われる Ir と Ga についての結果を報告する。

Na₂Co_{1-x}M_xO₂(M=Ir,Ga) の X 線回折実験で得られた c 軸長や、残留抵抗(図 1)の系統的な x 依存性は Ir や Ga による Co サイト置換がよく行われていることを示す。また、 $H=1$ T での磁化率には x の増加によるキュリー成分の変化が見られないので、Ir と Ga は非磁性不純物として作用すると考えられる。Na₂Co_{1-x}M_xO₂·yH₂O(M=Ir,Ga)の $H=5$ G での反磁性磁化率の測定によって決定した T_c の x 依存性(図 2)は、 $|dT_c/dx|$ が Ir,Ga のそれぞれについて ~ 1.0 と 2.0 (K%)となった。この値を s 波以外の超伝導状態に対する pair breaking の枠組みで説明しようとする、(すでに知られているコヒーレンス長の ~ 100 Å を用いて¹⁾、1%置換の際の mean free path が ~ 1000 Å でなければならないことになる。これは、そのときの不純物間の平均距離(~ 30 Å)に比較して大きすぎるので、観測された T_c の減少が非磁性不純物による pair breaking と考えるのは難しく、 p 波や d 波の可能性は低いようである。では、 T_c の減少は何によるのであろうか。図 1 に示したように、Na₂Co_{1-x}Ir_xO₂ の抵抗は、 $x \geq 0.02$ において低温で絶縁体的振舞を示し、ドーブにより弱局在の効果があることを示している。薄膜の MoGe 等で、sheet resistance R の増大に伴う T_c の減少がよく知られている²⁾ が、この系でも同様の局在効果が効いている可能性があると考えている。

- 1) F. C. Chou *et al.*, cond-mat/0306659.
- 2) J. M. Graybeal and M. R. Beasley, Phys. Rev. B **29**, 4167 (1984).



Na_xCoO₂ の高分解能角度分解光電子分光

東北大院理, ポストン大^A, 名工大^B, イリノイ大^C, オークリッジ国立研
 佐藤 宇史, H.-B. Yang^A, S.-C. Wang^A, A. K. P. Sekharan^A, H. Ding^A, 松井 浩明, 相馬 清吾,
 高橋 隆, 竹内 恒博^B, J. C. Campuzano^C, R. Jin^D, B. C. Sales^D, D. Mandrus^D, Z. Wang^A

層状水和コバルト酸化物 Na_xCoO₂yH₂O における超伝導が発見¹されてから、その超伝導発現機構について実験・理論の両面から精力的な議論が展開されている。しかしながら、超伝導機構に直結する超伝導ギャップの対称性については、報告される実験結果や理論的アプローチに研究グループ間で大きなばらつきがあり、全くコンセンサスが得られていない。その理由の一つとして挙げられるのが、バンド構造やフェルミ面といった、超伝導を理解する上で不可欠な常伝導状態の電子構造についての情報が不足している事である。そこで今回我々は、先ず、超伝導を示さない非水和コバルト酸化物 Na_xCoO₂の電子状態を明らかにするために、高分解能角度分解光電子分光(ARPES)を行った²。

ARPES 測定は、米国ウィスコンシン放射光施設において U-PGM, U-4mNIM ビームラインを用いて行った。エネルギー分解能は10-20 meV、運動量分解能は0.02 Å⁻¹ に設定した。清浄試料表面は、8×10⁻¹¹ Torr の超高真空下で試料を劈開する事により得た。

図1に、ARPES 測定で決定した Na_{0.55}CoO₂ のフェルミ波数(k_F)の位置(図中○,▽,□,◇)と、LDA バンド計算³ による Na_{0.5}CoO₂のフェルミ面形状を比較したものを示す。図から明らかなように、実験で得られた k_F の位置は、バンド計算における Γ(A) 点中心の六角形状のホール面に良く対応している。一方、バンド計算では K(H) 点近傍に小さなホール面が存在しているのに対して、実験ではそれに対応するフェルミ面は観測されていない。さらに、実験では、ΓK 方向でバンドが一本のみフェルミ準位を切るのに対して、ΓM 方向では二本のバンドがフェルミ準位を切っている。この二本のバンドは、バンドが分裂して生

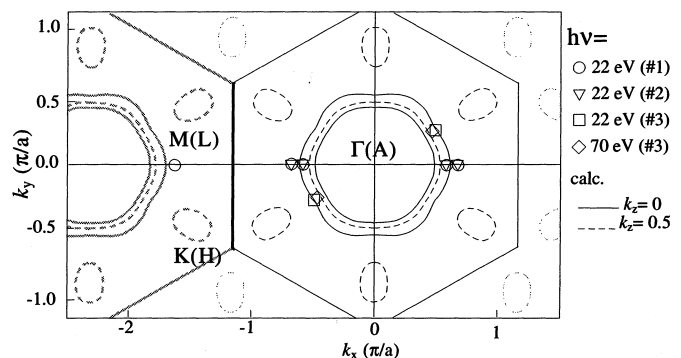


図1 ARPES 実験で決定した Na_{0.55}CoO₂のフェルミ波数(○, ▽, □, ◇) と LDA バンド計算³によるフェルミ面の比較

じたものである事が示唆される。分裂の起源として、バンド計算で予測される **bilayer splitting** が考えられるが、実験において ΓK 方向でバンド分裂が観測されない事を考慮すると、この可能性は低いと考えられる。

さらに我々は、実験で得られたバンド分散を **tight binding** の式でフィットすることにより、 ΓK 方向のバンド幅がバンド計算に比べて 5-10 倍も質量が増強している事を見出した。この事は、 ΓK 方向でバンドが比較的平坦である事を示すと共に、 Na_xCoO_2 の電子状態に電子相関が強く影響している事を示している。

- [1] K. Takada *et al.*, Nature **422** (2003) 53.
- [2] H.-B. Yang *et al.*, cond-mat/0310532.
- [3] D. J. Singh, Phys. Rev. B **61** (2000)13397.

フラストレーション系での CDW と超伝導

東大理 田中 康寛、柳瀬 陽一、小形 正男

フラストレーション系における CDW と超伝導は、Co 酸化物や θ -型有機導体などの系で興味を持たれている。 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ においては、コバルト原子のつくる三角格子上で超伝導が生じる。一方 θ -型有機導体は、分子が異方的三角格子を組んだ $3/4$ フイリングの系であり、いくつかの物質は電荷秩序を示す。この電荷秩序については、オンサイト斥力 U に加えて、最隣接クーロン相互作用 V が重要であると考えられている。また、 θ -型の系では、 θ -(DIETS) $_2$ [Au(CN) $_4$] のように、一軸性圧縮下において絶縁相に隣接した超伝導を示す物質があり、電荷の揺らぎが超伝導に寄与している可能性があると思われる。

このことから我々は、超伝導における電荷揺らぎの効果を調べるため、三角格子において U と V を考慮した拡張ハバードモデル：

$$H = -t \sum_{\langle ij \rangle \sigma} (c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + h.c.) + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} + V \sum_{\langle ij \rangle} n_i n_j,$$

を考え、RPA 近似を用いた計算を行った。その結果、CDW 近傍で f 波の超伝導が有利になることが分かった。図 1 は、電子密度 $n=0.8$ 、温度 $T/t=0.01$ において得られた (U, V) 平面での相図である。

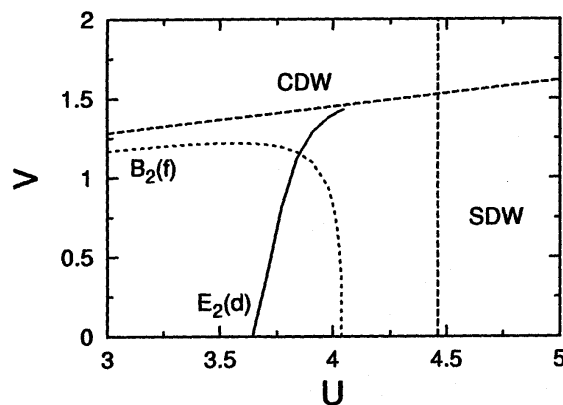


図 1 : $n=0.8$ 、 $T/t=0.01$ における相図。破線は CDW、SDW の境界を表し、実線、点線の上で、それぞれ d 波、 f 波に対応するエアシュベルグ方程式の固有値が 1 になる。SDW 近傍では d 波、CDW 近傍では f 波の超伝導が有利になる。

得られた f 波の対称性をもつギャップ関数は、実空間においては三角格子上の 6 つの次近接サイト上で大きな振幅を持っている。これは、CDW 近傍で、 V の効果によって電子が最隣接ではなく、次近接サイトでペアを組んだためと解釈することができる。

フラストレートしたハバードモデルと三角格子 t - J モデルの超伝導

東北大理、名大工¹、東大理²

横山 寿敏、渡邊 努¹、田仲由喜夫¹、井上順一郎¹、小形 正男²

銅及びコバルト酸化物の超伝導体を念頭に、標記のモデルに対して（最適化）変分モンテカルロ法 [(O)VMC 法] を用いて、特に超伝導状態の安定性や静的な性質を議論する。VMC 法は局所相関を厳密に扱うため、ハバードモデルではそのパラメーター（相関強度 U/t 、電子密度 n ）の全領域に渡って、目的の状態の物理量を定量的に計算することができ、また t - J モデルのような強相関模型に対しても、同様の有効性がある。以下で、[1] 通常の正方格子 ($t'=0$) に対する結果、[2] t' 項を導入した場合の予備計算の結果、[3] 三角格子 t - J モデルの結果の概要を順に記す。

[1] ハバードモデルに対しては、同一サイト上の相関因子のみを取り入れたグッツヴィラー射影因子（強相関展開 0 次）に相当）では、定性的に不適切な結果を導く場合があるので、以下では展開 2 次の項までを取り入れた関数（二重占有と空サイトの最隣接サイト束縛因子）を用いる。 $t'=0$ の通常の正方格子のハバードモデルでは、 d 波超伝導の性質がバンド幅程度の $U(=U_{co})$ の値を境に大きく変わる。凝縮エネルギー ΔE を見ると、弱相関領域 $U < U_{co}$ では、非常に小さい ($U/t=4$ でも $10^{-4} t$ の桁) が、 $U/t=6.5$ 程度で指数関数的に急激に増大し、 $U=U_{co}$ ($\sim 13, n=0.88$) で最大値を取り、強相関側 ($U > U_{co}$) では、極めて良く $\Delta E \sim \exp(-t/J)$ の形でフィットされる。強相関領域では $J(=4t/U^2)$ が有効引力として働いており、 t - J モデルへのマッピングが成り立つ領域になっていることが解る。また、 $U < U_{co}$ ($U > U_{co}$) では、超伝導転移がポテンシャル（運動）エネルギーによって誘起されており、光学伝導度の総和則の破れが観測されている銅酸化物は運動エネルギー誘起の転移と見られることと併せ、銅酸化物が $U > U_{co}$ にあることが判る。

[2] 次近接サイトへのホッピング (t') 項を含む正方格子ハバードモデルについて、 6×6 サイト、 $n=0.89$ の予備計算の結果では、 $t' > 0$ の場合は、超伝導が抑制される一方、反強磁性状態は著しく安定化される。逆に $t' < 0$ の場合は、反強磁性状態は強く抑制されるが d 波超伝導状態は $t'/t = -0.2 \sim -0.3$ を中心に、 ΔE が大きく増大する。このことは、光電子分光をはじめ多くの銅酸化物の実験や理論と定性的に一致するものである。ただ t' が入った系に対する結論は、関数をさらに改良し、サイズや電子密度を変えたより綿密な計算の結果を待つ必要がある。

[3] 三角格子 t - J モデルに対し、様々なペア対称性を持つ超伝導状態を計算し、その安定性を議論した。強相関領域の典型的パラメーター $J/t=0.3$ の場合に、 $t > 0$ では $0.76 < n < 1$ の電子密度で、 $t < 0$ では $0.40 < n < 1$ という広い領域で、ノードレスで時間反転対称性を破った $d+id$ 波が安定となる。これは平均場（およびグッツヴィラー）近似を用いた計算と定性的に一致する。ノードを持つ単純な d 波もそれぞれの領域両端の n で $d+id$ 波と極めて近いエネルギーを持つ。ちなみに、フェルミ面が van Hove 特異点を通る $n=0.5$ ($t < 0$) では、 ϵ_F で夥しいレベルの縮退があり、三重項超伝導状態が正常状態より安定化するが、 $d+id$ 波の安定性には及ばない。

三角格子多軌道ハバード模型による Na_xCoO_2 の超伝導

名古屋大学理学研究科 矢田 圭司

新潟大学理学研究科 大野 義章

Na_xCoO_2 は $x=0.5$ の時に巨大な熱起電力を示すことから熱電材料として注目されてきたが、最近になって水を intercalate した $Na_xCoO_2 \cdot yH_2O$ ($x \approx 0.35, y \approx 1.3$) で超伝導が発見されます注目浴びている。この物質は CoO_2 面が 2 次元的な伝導面を形成するという点では銅酸化物高温超伝導体と似ているが、 Co が三角格子を形成して幾何学的にフラストレートしているという点、またフェルミ面を切るバンドが複数の d 軌道からなるという点で大きく異なっている。本研究では、フラストレーションの効果と多軌道の効果を共に考慮に入れた計算を行い、 $Na_xCoO_2 \cdot yH_2O$ の超伝導機構について調べた。実際に行った計算の手順を以下に示す。

- ④ Co の d 軌道 5 個、Co 面の上下にある酸素の p 軌道 6 個の合計 11 個の軌道からなる tight-binding モデルを作り、バンドの分散が Singh のバンド計算に合うように Slater-Koster のパラメタを決める。(図 1)
- ④ 軌道内 (軌道間) クーロン斥力 $U(U')$ フント結合 J 、ペアホッピング J' をもつ多軌道ハバード模型に RPA を適用してスピンの揺らぎ、電荷・軌道の揺らぎを計算し、それらの秩序領域を調べる。
- ④ 上で計算した揺らぎを使って、singlet、triplet の超伝導ギャップ方程式を導き、超伝導の転移温度を求める。

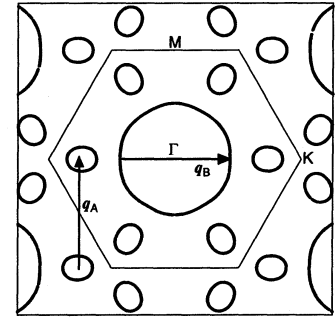


図 1: tight-binding 近似による $\text{Na}_{0.35}\text{CoO}_2$ のフェルミ面

銅酸化物超伝導体が反強磁性揺らぎを媒介とした d 波超伝導であるのに対して、この系では三角格子の強いフラストレーションの効果により反強磁性揺らぎが抑えられ、 $x \approx 0.35$ では波数 q_A の collinear 的スピン揺らぎを媒介とした singlet の g 波超伝導が実現する (図 2)。このスピン揺らぎは 6 個のホールポケット (E_g 成分) 間の nesting によるが (図 1)、超伝導ギャップは Γ 点を中心とするホール面 (A_{1g} 成分) で大きな値をもち、この g 波超伝導にはフラストレーションに加えて多軌道の効果も重要である。一方、 $x \approx 0$ では二重交換機構による強磁性揺らぎを媒介とした triplet の f 波超伝導が現れる。さらに、 $U < U'$ の時には、波数 q_A の collinear 的な軌道揺らぎを媒介とした s 波超伝導も得られた。図 2 の T_c のドーピング依存性から、 $\text{Na}_{0.35}\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ の超伝導が singlet の g 波超伝導に対応することが判る。

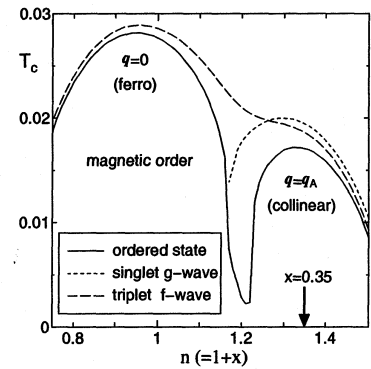


図 2: T_c のドーピング依存性 ($U = 1.55, U' = 1.35, J = J' = 0.1$)

Orbital degeneracy and spin-triplet superconductivity in a triangular lattice

山下 靖文(ETH Zurich)

FuChn Zhang(Univ. of Hong Kong)

最近新しく発見された二次元遷移金属酸化物超伝導体 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ ($x \sim 0.35, y \sim 1.3$) を記述する単純化されたモデルとして、三角格子上の t_{2g} 軌道縮退ハバードモデルを研究した。一電子ハミルトニアン(H_0)に含まれる飛び移り積分を、バンド計算による経験的パラメタ、 $(dd\sigma) = -1, (dd\pi) = 0.54, (dd\delta) = 0$ を用いて Slater-Koster の関係式から決定した。但し、最隣接コバルト原子間の直接の重なり積分に比べて、 $dp\pi$ 積分を含む酸素を介した高次のプロセスが無視出来ると仮定した。 H_0 を対角化し分散関係を計算した所・超伝導物質に対応する $\nu = 5.35/6$ ファイリングの時にフェルミエネルギーが鞍点に一致し、二次元の Van Hove 特異性からそこでの状態密度が対数発散的に大きくなることが分かった。この状態密度の発散は大きな強磁性揺らぎの存在を意味しており、 ^3He に於ける超流動と類似したクーロン相互作用に由来する電子的な機構により、スピン三重項超伝導が基底状態として実現する可能性を示唆している。

クーロン相互作用(U, U', J)の増大による常磁性状態からの磁気不安定性を、乱雑位相 (RPA) 近似により評価したところ、電子相関が十分に大きな領域では強磁性 ($q=0$) スピン密度波が安定な解となることが分かった。次に RPA 近似による有効ペアポテンシャルをスピン、軌道、スピン・軌道結合揺らぎにより記述し、線形化されたギャップ方程式を数値的に解くことにより超伝導状態の安定性について考察した。その結果・常磁性相と強磁性相の間に奇パリティの超伝導相が存在することが示された。超伝導の秩序変数はフント結合の大きさにより異なった対称性を持ち、1) フント結合の弱い領域ではスピン揺らぎに加えて、軌道及びスピン・軌道結合揺らぎの影響によりトリプレット f 波 (D_6 群 B_1 表現) が、2) フント結合の強い領域ではスピン揺らぎによりトリプレット p 波 (E 表現) が最も安定な解となることが分かった。

スピネル相 CuCo_2S_4 の T_c への不純物効果

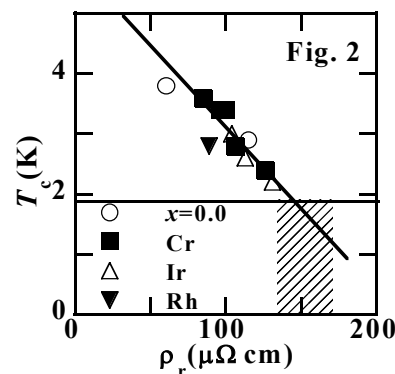
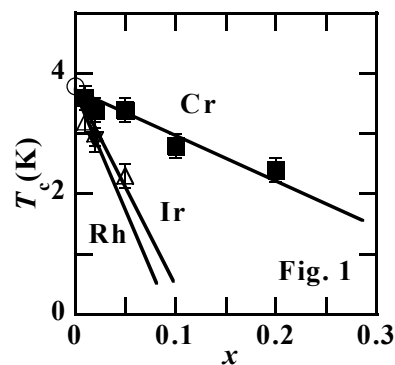
名大理 相藤 夏紀、佐藤 正俊

Co の 2 次元三角格子をもつ $\text{Na}_2\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ は、転移温度 $T_c \sim 4.5$ K の超伝導体で、その超伝導の対称性についてさかんに議論がなされている。一方、スピネル化合物 CuCo_2S_4 は $T_c \sim 4$ K の超伝導体で、Co の正四面体が三次元ネットワークをつくる構造をもつことから、三角格子の 3 次元版ともいわれているが、その超伝導対称性は、核磁気緩和率 $1/T_1$ の顕著なコヒーレンスピークをもつことから s 波と考えられる。この系の T_c への不純物効果をみるために Co サイトに Cr、Ir、Rh をドーブし、それらの電気抵抗と帯磁率を 1.9 K 以上の温度で測定した。

作成した CuCo_2S_4 の試料には $T \geq 1.9$ K で超伝導が見られるもの(a)と見られないもの(b)が存在した。その 2 種類の試料の格子定数やパウリ磁化率に違いは見られず、また、不純物相として見られることのある CoS_2 の量に超伝導出現の有無が依存しているわけでもない。ただ、残留抵抗に有意の違いが見られ、(a)の場合はその値が約 $100 \mu\Omega$ 、(b)の場合は約 $150 \mu\Omega$ となっている。不純物をドーブしたサンプルでは ρ や T_c に再現性が見られることを考えると、この試料依存性の問題はドーブしていないサンプルのみのものである。

$\text{Cu}(\text{Co}_{1-x}\text{M}_x)_2\text{S}_4$ ($\text{M}=\text{Cr, Ir, Rh}$) はどの M の場合も x の増加に伴って格子定数が増加し、電気抵抗率の大きさもほぼ系統的に増加する。電気抵抗と帯磁率の測定から、 T_c が x とともに徐々に減少することがわかった。Cr、Ir、Rh をドーブした場合、それぞれ $x=0.1, 0.025, 0.01$ まで超伝導転移が見られた。 x が小さいところでは、シーリング反磁性の体積分率は約 100% である。 T_c の x 依存性を Fig.1 に示す。Cr、Ir、Rh の場合、 $|dT_c/dx|$ はそれぞれ 0.15、0.65、0.9 K/% である。この値は $\text{Na}_2\text{Co}_{1-x}\text{Ir}_x\text{O}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ の $|dT_c/dx| \sim 1.0$ K/% や s 波超伝導といわれる $\text{Mg}(\text{B}_{1-x}\text{C}_x)_2$ の $|dT_c/dx| \sim 1.0$ K/% とほぼ同じオーダーである。

T_c が x に直線的に変化することから、 s 波超伝導体に対する磁性不純物による pair-breaking の効果があると仮定して、 T_c の減少の割合を見積もってみる。pair-breaking の理論によれば dope しはじめの x における T_c 降下が $\Delta T_c \equiv T_c(0) - T_c(x) \sim 0.44\pi^2(\xi/\Lambda)T_c(0)$ (ξ : コヒーレンス長、 Λ : 平均自由行程) とかける。不純物を 1% ドーブした場合として、 $\xi \sim 130 \text{ \AA}$ 、 $\Lambda \sim 30 \text{ \AA}$ を用いて計算すると $\Delta T_c \sim 70$ K/% となり、実際の値よりも非常に大きな値となる。これは不純物原子による pair-breaking はないことを示す。Fig.2 は T_c を残留抵抗 $\rho_r(T_c \text{ 直上の } \rho)$ に対してプロットしたものであるが、すべての点がほぼ直線上にのっていることがわかる。このような例は、 Nb_3Ge や V_3Si でも見られており、電子局在がその T_c 降下の origin であるとの提案もなされている。我々は CuCo_2S_4 においても同様の機構による T_c の下降を考えている。何もドーブされていない試料で超伝導が起こらない理由もこの残留抵抗と T_c の関係を見れば理解できるが、なぜ non-dope の試料のみで ρ_r の値が試料ごとに大きく変化するかについては未解決である。 $\text{Na}_2\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ に非磁性の不純物をドーブした場合の T_c の下降は p 、 s 波の CuCo_2S_4 に対する今回の結果と類似している。このことは $\text{Na}_2\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ においても、電子局在効果を考えれば十分であることを示しており、異方的超伝導体に対する非磁性不純物の pair-breaking の可能性を否定し、ひいては異方的超伝導の対称性そのものを否定しているようである。



1) M. Yokoi. *et al.*:cond-mat/0312242

スピン1/2かごめ格子反強磁性体の基底状態と低エネルギー励起

京都大学大学院人間・環境学研究科 前川 寛

かごめ格子ハイゼンベルグ型反強磁性体においてはスピン配列に連続無限個の縮退があり、スピンの大きさにかかわらず絶対零度においても長距離磁気秩序は起こらない。しかし、熱揺らぎや量子揺らぎなどの無秩序による秩序化や、微少な摂動による有限温度での秩序化が起こることもある。一方、スピン 1/2 の系においてはフラストレーション効果に量子効果が加わり、RVB 状態やシングレットダイマー液体、カイルスピン液体等のスピン液体状態が生じるとも言われている。また、基底状態と励起状態間にはギャップが存在すると予言されている^[1]が、そのギャップは $S = 0$ 状態が詰まっているとも言われている^[2]。

我々は古典スピンかごめ格子反強磁性体のモデル物質であるスピン $s = 5/2$ を持つ鉄ジャロサイト $\text{RFe}_3(\text{OH})_6(\text{SO}_4)_2$ について、磁化、NMR、中性子回折の実験を行い、弱い異方性により 60K で長距離秩序が起こり、 $q = 0$ 型の 120° スピン構造をとり、スピン波励起が生じていることを明らかにした^[3]。

ついで我々は $s = 1/2$ の Cu^{2+} がかごめ格子を形成している量子スピンかごめ格子反強磁性体のモデル物質 $[\text{Cu}_3 \text{[titmb]}_2 (\text{CH}_3\text{CO}_2)_6] \cdot \text{H}_2\text{O}$ の単結晶試料を合成し、磁化と NMR の実験を行っている^[4]。2K までの磁化率の温度変化は、キュリー・ワイス則によくのり、ワイス温度は -1.21K 、スピンの大きさは 0.392 と求まった。 ^1H -NMR スペクトルにシフトはなく、 1.4K まで秩序化は見られなかった。スピン格子緩和率は $20\text{K} \sim 300\text{K}$ の温度域でほとんど温度に依存しない。これは緩和率が磁化率と温度の積に比例していることを示しており、スピンが常磁性的に揺らいでいることを反映している。一方、 10K 以下では緩和率が急速に減少し、 $1/T_1 = A \exp(-\Delta/kT)$ でよく表現できる。エネルギーギャップ Δ の磁場依存性は、 $\Delta = 0.90 \cdot g \mu_B H$ と表現することができ、零磁場でのエネルギーギャップ Δ_0 は 0.90K 、臨界磁場は 0.6T と求まった。比熱の実験からは 13K と 0.1K 付近に 2 つのピークが観測されており、相互作用 J は 19K と求められている^[5]。 $J/\Delta_0 = 21$ は厳密数値対角化の計算値 $J/\Delta_0 = 20$ とよく一致している。緩和率は $S = 1, M = -1$ と $S = 0, M = 0$ 状態間の遷移による揺らぎに起因しており、この系が $S = 0$ の基底状態と $S = 1$ の第 1 励起状態を持つ量子スピン液体状態になっていることを示唆している。今後さらに、より低温、低磁場における実験を行い、 $s = 1/2$ かごめ格子反強磁性体における量子フラストレーションの研究を進める予定である。

なお、本研究は京大人環の川原慎一、上田未紀、小山田明、藤田健一、山口良平の各氏との共同研究である。

[1] C. Zeng and V. Elser; Phys. Rev. B51, 8318 (1995).

[2] Ch. Waldtmann, H-U. Everts, B. Bernu, et al.; Eur. Phys. J. B2, 501 (1998).

[3] M. Nishiyama, S. Maegawa, T. Inami, and Y. Oka; Phys. Rev. B 67, 224435 (2003).

[4] S. Kawahara, M. Ueda, S. Maegawa, et al.; Proc. of ICM'03, Roma, 2003, J. Mag. Mag. Matt.

[5] Z. Honda, K. Katsumata and K. Yamada; J. Phys. Condens. Matter, 14, L625 (2002).

Nb 系新パイロクロア酸化物 $R_2\text{Nb}_2\text{O}_7$

^a 京大理, ^b 京大国際融合創造セ

坂井 修 ^a, Yatramohan Jana ^{a,b}, 深澤 英人 ^a, 中辻 知 ^a, 前野 悦輝 ^{a,b}

最近、我々は量子現象が起こると期待される Nb^{4+} ($S = 1/2$) 系新パイロクロア酸化物の合成に成功したが、 $\text{Y}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ では絶縁体であるのに関わらず $S = 1/2$ スピンがわずか 0.23% しか観測されないという新奇な現象を見出し深澤らにより報告した^[1]。また、 $\text{Tb}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ においても Nb^{4+} のスピンは観測されず、一方、低温で Tb スピンによるガラス的振る舞いが起こることを示した^[2]。この Nb サイトのスピン消失の起源については、 $\text{Y}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ の構造解析等を通じて研究を進めているが、依然明らかになっていない。ここでは、R サイトを Dy, Yb に置換することにより、R サイトのフラストレーションの効果と、Nb サイトのスピン役割・影響を調べたので報告する。

$R_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ は $R_2\text{O}_3$ と NbO_2 を用い浮遊帯域法により融解合成し、磁化と比熱を測定した。われわれの合成した $R_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ ($R = \text{Dy}, \text{Yb}$) は X 線解析によりパイロクロア型に単相化していることが確認された。磁化率は 1.8K まで異常はなく、高温での Currie-Weiss から相関はすべて反強磁性的で有効モーメントは希土類イオンのみを仮定したときの値によく一致した。また、先の報告同様に Nb^{4+} のスピンの寄与は確認されなかった。

$\text{Dy}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ では反強磁性相互作用による all-in, all-out のスピン配置による短距離秩序の形成と思われる異常が約 1K で交流磁化率 (図参照) とゼロ磁場での比熱に観測された。また、比熱から求めたエントロピーが $R\ln 2$ になることから、 Dy^{3+} の基底状態は二重項であることがわかった。

$\text{Yb}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ では 1.8K から 0.3K までの交流磁化率 (図参照)、比熱に異常は観測されず、磁気フラストレーションの重要性が確認された。エントロピーがほぼ $R\ln 2$ になることから Yb^{3+} の基底状態も二重項であると考えられる。

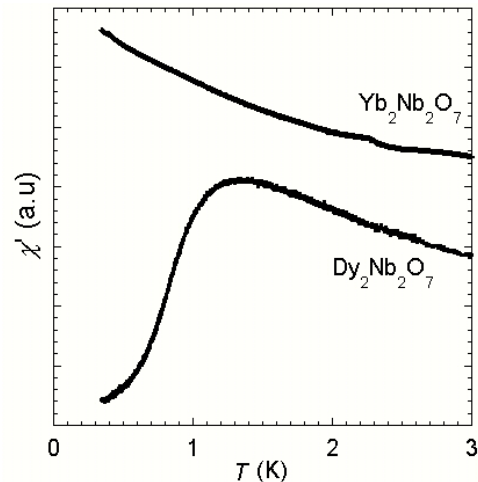


図 交流磁化率実数成分の温度依存性

[1] H. Fukazawa and Y. Maeno, Phys. Rev. B **67** (2003) 054410.

[2] Y. M. Jana *et al.* Phys. Rev. B **68** (2003) 1774413.

フラストレーションと量子効果 — 量子 ANNNI 模型の場合

京都大学基礎物理学研究所 常次 宏一

フラストレートした系の本質的な特徴は低エネルギーに非常に多くの状態が集積していることである。古典的な基底状態は熱力学的に縮退して残留エントロピーが有限であり、この縮退が弱い摂動によって解けることで低温において非常に多様な物性を示す。この摂動としては双極子相互作用などの遠距離力や小さな磁気異方性など共に、量子揺らぎが重要である。本研究においては、古典的に縮退した基底状態がどのように量子揺らぎによってユニークな量子基底状態になるかという問題を 1 次元量子 ANNNI 模型を調べることによって研究した。

量子 ANNNI 模型は最近接および次近接交換相互作用 (J_1 および J_2) をもつ Ising 模型に横磁場 h をかけたモデルである。次近接相互作用が反強磁性であり、しかもその比が $|J_2/J_1|=1/2$ でかつ横磁場がない場合には熱力学的に縮退した基底状態をもち、フラストレーション点 (FP) と呼ばれ、残留エントロピーは $\log((5^{1/2}+1)/2)$ で与えられる。この点のまわりで $g=|J_2/J_1|-1/2$ と $y=h/J_1$ をコントロールパラメータとして量子基底状態の振舞いを調べた。

まず FP における縮退した基底状態はこの点において磁壁のエネルギーが零になることに対応していることが、Ising スピン変数から磁壁を記述するキルク変数への双対変換によって簡単に示される。ただし磁壁は互いに隣接するボンには来ることができないという束縛条件の下にある。この表示においては、コントロールパラメータの 1 つである g は無次元化された磁壁のエネルギーであり、 y はキルク変数の横方向の 2 成分の内の 1 成分のみの結合を表している。 y の 1 次のオーダーにおいては、上記の磁壁の束縛条件を考慮すると、キルク変数の横方向の結合は kinematical に $O(2)$ 対称性を回復するので、自由フェルミオンの問題に帰着することができて基底状態エネルギー E_0 を厳密に計算できる。このようにして、スケーリング関係式 $E_0=J_1F(y/g)$ およびスケーリング関数 F を求めた。

この結果より、FP 近傍において基底状態の相図は 3 つの相から成立っていることが判った。

(A) $-\infty < R=g/h < -1/2$ においては磁壁の真空相、(B) $1 < R < \infty$ においては磁壁の結晶相 (秩序相)、(C) $-1/2 < R < 1$ においては磁壁の量子液体相であり、磁壁の密度は R と共に連続的に変化する。したがって 3 つの相を隔てる 2 つの相境界が漸近的に直線的に FP に向かって両側から入り、その傾きは左右で 2 倍異なっていることが示すことができた。この磁壁の量子液体相の存在が FP におけるマクロに縮退した古典基底状態と量子揺らぎの帰結である。なお y に関して 2 次の有効ハミルトニアンも求め、その効果による新たな転移の振舞いを解析している。

フラストレーションによる銅酸化物の電荷ストライプ

東北大理 坂井 徹

銅酸化物高温超伝導体等で観測されている電荷ストライプが生じるひとつのメカニズムとして、反強磁性的交換相互作用のフラストレーションを起源とするものを紹介する。

銅酸化物の性質を記述する 2 次元正方格子 t - J 模型において、 J/t を十分大きくすると反強磁性的なスピン相関によりドーブされたホール間に引力が働き、これがペアリング、さらには相分離を引き起こすことはよく知られている。このような状況で、フラストレーションを引き起こす反強磁性的次近接交換相互作用 J' を導入すると、単純に相分離した状態よりも、ホールがストライプ状に並ぶほうがエネルギー的に得ることを簡単に示すことができる。この次近接相互作用を起源とする電荷ストライプが実現する可能性を調べるため、16 サイトの有限系 t - J 模型に対する数値対角化の解析を行ったところ、ある程度現実的なパラメータ領域で、電荷ストライプが安定化する可能性のあることが示された。^[1]

さらに中性子散乱によってその存在が確認されている、4 体スピン交換相互作用（リング交換相互作用）も、各ブラケット上でもとの反強磁性交換相互作用と、量子力学的にフラストレートしている（後者がシングレットを安定化するのに対し、前者はトリプレットを安定化する）ため、同様の効果が期待される。実際にこの 4 体相互作用を導入した数値計算でも、現実的なパラメータ領域で電荷ストライプが出現する可能性があることが示された。^{[2][3]}

このように、スピンのフラストレーションは、強相関電子系における電荷ストライプの起源となり得ることが、簡単な説明と数値計算により示された。

[1] T. Sakai: Phys. Rev. B 63 (2001) 140509(R).

[2] T. Sakai: Physica C 378 (2002) 208.

[3] T. Sakai: J. Phys. A: Math. Gen. 36 (2003) 9303.

3 次元ハイゼンベルグスピングラスのスピンのカイラリティ秩序化

東大総合文化 福島 孝治
阪大理 川村 光

これまでの理論的・数値的計算からは、短距離相互作用型 3 次元スピングラス模型で有限温度スピングラス相転移を起こすのは、イジングスピングラス系だけであることが示唆されていた。一方で、実験的には様々な種類のスピングラス磁性体においてスピングラス平衡相転移が確認されており、また希薄磁性体のグループは磁氣的異方性が非常に弱く、ほぼ等方的なハイゼンベルグ系が第ゼロ近似的には成り立つと考えられている。この矛盾点に対して、これまでは弱い異方性が系にイジング的な振舞を導き、実験的に観測されている相転移はイジングスピングラス型の相転移であると解釈されてきた。

また、別の解釈として、川村によってカイラリティ機構が提唱された。そこでは異方性の無い等方的なハイゼンベルグスピングラスにおいて、通常スピングラス転移を伴わない、カイラリティのガラス的な熱平衡相転移(カイラルガラス相転移)が有限温度で実現すると考える。それが現実的に存在する異方性を通じてスピンの凍結として観測される。すなわち、カイラリティ機構では、カイラルガラスが実験的に観測されるスピングラスの正体であり、イジングスピングラスではないと考えている。我々はこれまでにカイラルガラス相転移が等方的ハイゼンベルグスピングラス模型において、有限温度で存在することを数値実験から確かめた。また、そのカイラルガラス相はこれまで知られていたイジングスピングラス相とはかなり性質が異なっており、実験を説明しうることがわかってきた。

しかしながら、揺動散逸定理の破れを観測することで低温相の議論が実験的にできるようになり、またエイジング現象の特性においてイジング物質とカノニカルスピングラスの違いが指摘され、弱い異方性起因のイジングスピングラス説の説明能力がますます弱くなると、今まで無いと思われていたハイゼンベルグスピングラスの有限温度相転移論がにわかに

議論されるようになってきた。

我々は、さらなる大規模数値計算を行い、カイラルガラス転移とスピングラス転移の同時相転移の可能性を様々な観点から検証した。その結果、最近の指摘はスピンとカイラリティが短い時間・距離スケールで実質的に結合していることから見える擬似的な臨界現象として説明できることがわかった。カイラリティ自体は元々はスピン変数で表現されているために、短距離ではカイラルガラス相転移の影響から、スピングラス転移も起きているようにみえるというわけである。我々の結果は、長距離での振る舞いで両者は分離していることを強く示唆しているので、カイラルガラス転移だけが単独で起こるカイラリティ機構を支持する。

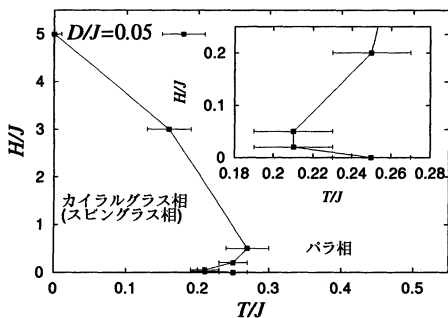
磁場中 3 次元ハイゼンベルグスピングラスの秩序化

大阪大学大学院理学研究科 今川 大輔、川村 光

実験的には多くのスピングラス磁性体、とりわけカノニカルスピングラスとして過去多くの研究がなされてきた希薄磁性合金スピングラスにおいては、磁気異方性が弱く相互作用はハイゼンベルグ型とみなせることが知られている。したがって、スピングラスの物性、とりわけスピングラス秩序化の機構を理解するためには、3次元のハイゼンベルグスピングラスについての研究が不可欠である。等方的な3次元ハイゼンベルグスピングラスでは有限温度スピングラス秩序が無いと考えられてきたため、3次元ハイゼンベルグスピングラスのランダム磁気異方性を入れ、更に磁場中での秩序化現象に関する研究はなされていない。そこで、我々は、スピンおよびカイラリティー自由度に注目した、有限磁場中での異方性のある3次元ハイゼンベルグスピングラスの秩序化現象について、熱平衡モンテカルロシミュレーションを用いて調べた。系としては

$$\mathcal{H} = \sum_{\langle ij \rangle} (J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + \sum_{\mu, \nu=x,y,z} D_{ij}^{\mu\nu} S_i^\mu S_j^\nu) - H \sum_{i=1}^N S_i^z$$

というハミルトニアンで与えられる1辺 L の3次元立方格子上的 $N=L^3$ 個の古典ハイゼンベルグスピン模型を考え、周期境界条件を課している。ボンド J_{ij} は $\pm J$ 分布 ($J=1$)、ランダム異方性テンソル $D_{ij}^{\mu\nu}$ は対称テンソルを考え独立なテンソル成分は $[-D, D]$ 一様分布とした。今回は $D/J=0.05$ に固定した。 H は外部磁場である。なお、ランダム磁気異方性と磁場が入っているため、系のグローバルな対称性は完全に消失している。にもかかわらず、解析の結果、1ステップ



的な RSB を伴うカイラルガラス転移は有限温度で起こり、同時にスピンも秩序化することが明らかになった。更に、 $H/J=0.05$ の場合のカイラリティの臨界指数を求めると $\beta_{CG} \sim 0.9$, $z_{CG} \nu_{CG} \sim 5.1$ となり、零磁場のものと近い数値が得られた。また、磁場を振り ($H/J=0.01 \sim 5.0$)、磁場-温度面相図を描いてみた(左図参照)。すると、低磁場側で印可磁場の増大とともに転移温度が急速に降下する AT 線的な振舞いがみられ、その後は磁場の増大に関して転移温度があまり変わらないという、実験^[1] で観測されているような相図が得られた。

参考文献

[1] D. Petit, L. Fruchter, and I. A. Campbell, Phys. Rev. Lett. **83**, 5130 (1999); Phys. Rev. Lett. **88**, 207206 (2002).

カノニカルスピングラスの異常ホール効果

阪大理 谷口 年史

AuFe, CuMn, AgMn 等の希薄磁性合金はカノニカルスピングラスと呼ばれ、典型的な SG 物質として様々な実験が行われてきた系である。しかし、そもそもカノニカル SG を表していると考えられる 3次元ハイゼンベルグ SG で、SG 転移が有限温度に存在するか否かは、未だ議論の分かれる問題である。実験結果の分子場モデルとの比較においても、様々な定量的な不一致（磁性不純物濃度と SG 転移点の関係、磁場中 SG 転移点、臨界指数等）が指摘されている。これらの矛盾点を自然な形で説明する理論としてカイラリティ機構¹⁾が導入された。また、最近ホール抵抗率 ρ_{xy} と磁化 M からカイラリティ帯磁率が ρ_{xy}/M に比例する可能性^{2,3)}が指摘され注目されている。カノニカル SG の ρ_{xy} の測定はすでに報告⁴⁾があり、また、リエントラント SG 等で ρ_{xy}/M による解析^{5,6)}も行われているが、我々は SG 特有の温度磁場履歴を最大限考慮した測定を、カノニカル SG の一つである AuFe(8at.%Fe)で行った。図1は ρ_{xy} と M の同時測定による各々の量の温度変化である。 ρ_{xy} にも M と同様に零磁場冷却(ZFC)と磁場中冷却(FC)に差が観測された。図2に ρ_{xy}/M の温度依存性を示す。 ρ_{xy}/M は SG 転移点近傍で異常を示し、転移点以下で ZFC,FC に差が生じる。 ρ_{xy}/M には skew 散乱、side jump の寄与も含まれるが、これらは抵抗率を ρ とすると、各々 ρ, ρ^2 に比例することが知られている。しかし、同時に測定した ρ には ZFC,FC の差は観測されず、図2で観測された ρ_{xy}/M の ZFC,FC の差は、 ρ_{xy} にこれら skew 散乱、side jump からの寄与ではない別の機構の存在を示している。この ρ_{xy}/M に観測された ZFC,FC の差は SG のカイラリティ機構から予言された振る舞い³⁾と一致し、カノニカル SG が本質的にカイラルグラスである可能性を示唆していると思われる。

- 1) H.Kawamura, Phys.Rev.Lett. 68(1992)3785.
- 2) G.Tatara and H.Kawamura, J.Phys.Soc.Jpn. 71(2002)2613.
- 3) H.Kawamura, Phys.Rev.Lett. 90(2003)047202.
- 4) S.P.McAlister and C.M.Hurd, 37(1976)1017.
- 5) S.H.Chun et al., J.Appl.Phys. 90(2001)6307.
- 6) N.Aito et al., J.Phys.Soc.Jpn. 72(2003)1226, T.Kageyama et al., J.Phys.Soc.Jpn. 72(2003)1491.

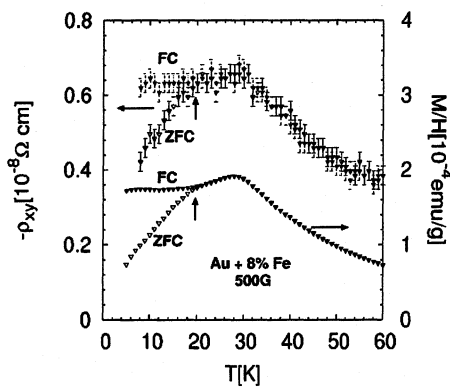


図1: ρ_{xy} , M 同時測定による ZFC, FC の温度依存性

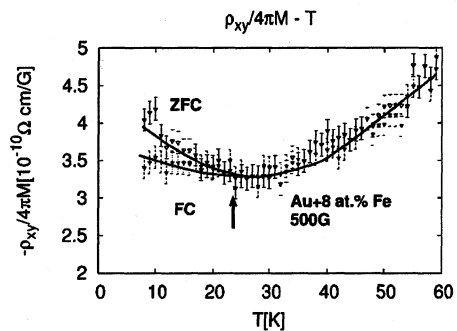


図2: ρ_{xy} , M の温度依存性

スピングラス転移と異常ホール効果

名大理 影山 健友、佐藤 正俊

強磁性体の異常ホール効果は、そのホール抵抗 ρ_H が多くの場合磁場 H に比例する正常項と磁化 M に比例する異常項とで $\rho_H = R_0 H + 4\pi R_s M$ と表される。このような式で説明できない振舞が見られる系として $\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ や CuCr_2S_4 の例があるが、これらの場合は non-trivial な磁気構造との関連でその特異な振舞が議論されている。一方、スピングラス相のホール効果に対して凍結しているはずのスピнкаイラリティと磁場によって誘起された一様磁化との結合が一様カイラリティを生み出し、それがホール抵抗を出現させるという提案がある。このような寄与が本当に見られるかどうかを、ここでは詳述しないが ρ_H の測定法に十分注意したうえで実験的に研究している。

リエントラントスピングラス系物質である $\text{Fe}_{0.7}\text{Al}_{0.3}$ は、温度を下げると $T_C \sim 350\text{K}$ で強磁性に転移したあと $T_G \sim 70\text{K}$ でスピングラス相に転移する。この系のホール抵抗 ρ_H の温度依存性は、一見磁化の温度依存性と同様に見えるが、異常ホール係数 R_s の温度変化を詳しく見ると温度が降下するにつれて T_G 付近から急に減少していることがわかる(図 1)。このような折れ曲がりや R_s が電気抵抗率 ρ 、または ρ^2 に比例するとする従来の理論では説明できない(電気抵抗率には T_G 付近で異常がない)ことから、カイラリティによる寄与の可能性が考えられる。

他の系でこのような寄与が見られるかどうかを調べるために、強磁性金属 $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{CoO}_3$ の Co サイトに Cu をドーピングした系でも測定を行った。この系では伝導電子と局在電子との間の相互作用が Hund coupling による強磁性的なものであると考えられるので、理論計算を単純に適用すればカイラリティよる項が負に寄与すると期待される。Cu 濃度が 0.2 や 0.4 の試料は、それぞれ約 130K、70K でスピングラス相に転移する。このような試料に対して ρ_H の測定を行ったところ、低磁場での測定時に約 40K 付近で R_s の温度変化に異常が見られた(図 2)。このような異常は $\text{Fe}_{0.7}\text{Al}_{0.3}$ のときと同様に従来の理論では説明することができないので、カイラリティによる寄与の可能性が考えられる。しかし、スピングラス転移温度 T_G 付近で異常が起きていないこと、また理論で期待される寄与とは符号が異なるという点が疑問に思われる。 R_s の異常が起きる温度が T_G より低温側にずれているがその理由についての考察も行った。

図 1

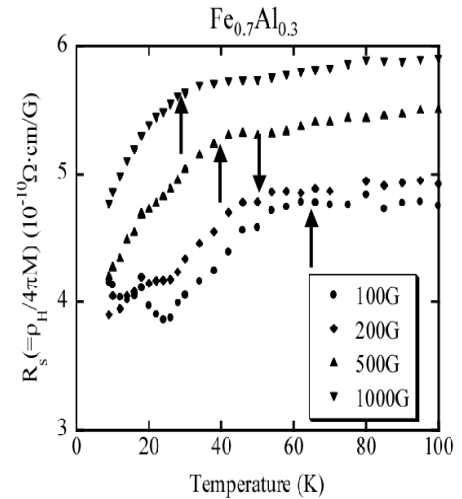
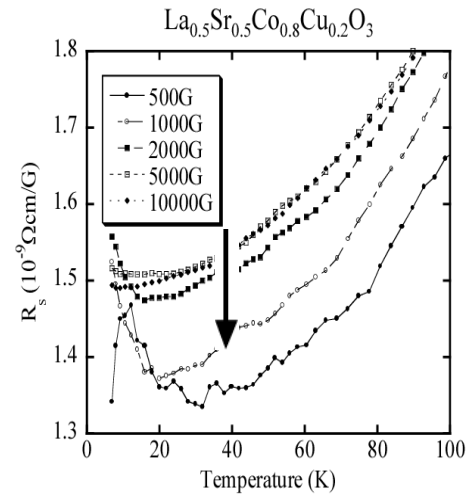


図 2



XY スピングラス模型におけるスピнкаイラル転移

東北大工 山本 剛生、中村 統太

これまで 3次元 XY および Heisenberg スピングラス模型において、スピンの凍結は起こらず、局所的なカイラリティのみが凍結するカイラルガラス転移(CG 転移)が起こるという説が有力だった。しかし、近年、我々の行った非平衡緩和法^[1,2] 他様々な計算^[3] によって、スピン自体が凍結するスピングラス転移(SG 転移)が起こることがわかってきた。こ

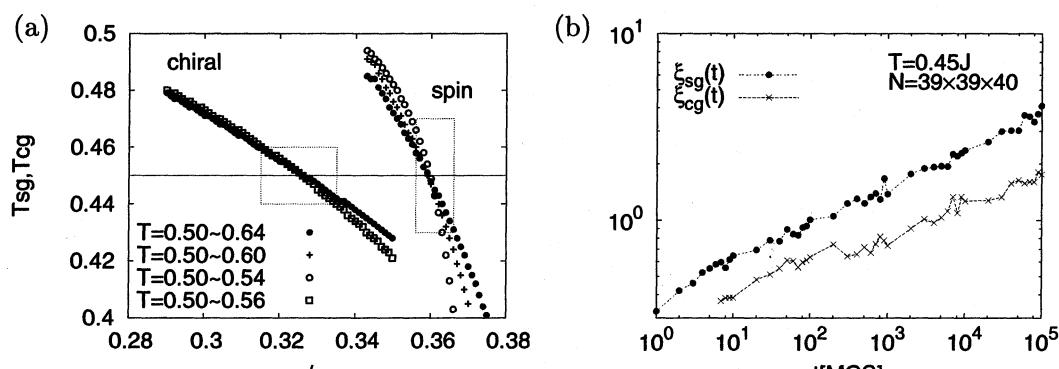
これらの相転移が同時に起こる ($T_{sg} = T_{cg}$) のか、独立に起こる ($T_{sg} < T_{cg}$) のかが問題であり、この問題は現実のスピンガラス現象の理解に大きく影響する。そこで我々は、3次元 XY スピンガラス模型の SG 転移と CG 転移を非平衡緩和法で調べ同時相転移か否かを検証した。

図1(a)に、有限時間スケーリングによって得られたと $T_{sg, cg}$ 臨界指数の比 $\gamma/z\nu$ の関係を示す。スケーリング解析に使う温度領域を変えると結果は系統的に変化する。しかし、温度領域を変えてもある一点で全てのデータが重なることがわかる。正しいスケーリング解析であるならば、どんな温度領域でも同じ結果を与えるはずであるから、この重なる点が正しい結果だと考えられる。よって SG 転移、CG 転移の転移温度・臨界指数は

$$T_{sg}=0.45\pm 0.02 \quad \gamma/z\nu=0.361\pm 0.05 \quad z\nu=5.0\pm 0.5 \quad (1)$$

$$T_{cg}=0.45\pm 0.01 \quad \gamma/z\nu=0.325\pm 0.01 \quad z\nu=4.8\pm 0.5 \quad (2)$$

と見積もれる。このことから、スピンとカイラルが同時相転移することが明らかになった。また、非平衡緩和過程における相関長の発展を計算した。その結果相関長は ξ_{sg} 、 ξ_{cg} と同じ指数でべき発散していくことがわかった。図1(b)



[1]

図1: (a)スケーリングの結果.シンボルは温度領域の違いを示し、box は誤差の範囲を示す. (b)相関長の非平衡緩和.

T.Nakamura and S.Endoh, J.Phys.Soc.Jpn.71,2113(2002)

[2] T.Nakamura, S.Enhoh and T.Yamamoto, J.Phys.A. 36,10895(2003)

[3]例えば L.W.Lee and A.P.Young, Phys.Rev.Lett. 90,227203(2003)

パイロクロアスラブ構造を持つ磁性体 $Ba_2Sn_2Ga_{10-7p}ZnCr_7pO_{22}$ の磁性

福井大工 菊池 彦光、藤井 裕
福井大遠赤外セ 光藤誠太郎

表題中のパイロクロアスラブとは、正四面体が頂点結合し、図1のように二次元的に配列した格子を指す。この構造は、かごめ格子 - 三角格子 - かごめ格子からなる積層格子ともみなすことができる。したがって、各格子点に、互いに反強磁性的に相互作用するスピが存在する場合にはスピンフラストレーション効果が生じることが期待される。理論的にもカイラル Kosterlitz - Thouless 転移が予測される^[1]など興味深いスピン系であるが、これまで現実物質としては $SrCr_{9-6}Ga_{3+6}O_{19}$ が知られているだけであった。最近新たなモデル物質として、 $Ba_2Sn_2Ga_{10-7p}ZnCr_7pO_{22}$ もパイロクロアスラブ構造を持つことが見出された^[2]。この化合物の磁性に関しては磁化率と比熱測定^[3]の報告があるのみである。今回我々は、磁性の詳細を知る

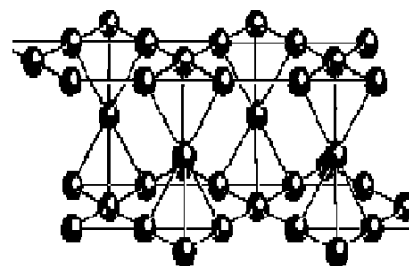


図 1

ために、NMR および ESR の磁気共鳴法を用いた実験を行った。試料は全て多結晶体である。 ^{69}Ga , ^{71}Ga 核の NMR はパルス法で測定した。 Cr^{3+} の ESR 実験は 120GHz のガン発振器を用いてパルス磁場中で行った。

NMR 測定の結果、1) 共鳴信号の線幅が低温域ではほぼ温度に反比例して増加する、2) 低温域での磁化率は Curie 的に増大するのに対し、共鳴位置のシフトは大体 50~60K 近傍で極大を示したあと低温域では減少傾向を示す、といった事を見出した。これらの結果は、Ga サイトに加わる内部磁場の不均一性が温度降下とともに増大すること、パイロクロアスラブの基底状態は一重項状態であること、を示唆する。

Cr 濃度が大きい ($p>0.8$) 試料の ESR 信号は温度低下とともに、線幅の急激な上昇と共鳴位置の低磁場シフトが観測された。同様の結果は $\text{SrCr}_{9-\delta}\text{Ga}_{3+\delta}\text{O}_{19}$ においても観測されている^[4]。共鳴磁場の低磁場シフトは不均一な内部磁場が存在する場合に観測された例があることから、NMR の結果と考え合わせ、スピンプラストレートした $\text{Ba}_2\text{Sn}_2\text{Ga}_{10-7p}\text{ZnCr}_{7p}\text{O}_{22}$ においては、低温域において内部磁場の不均一性が発展するものと考えられる。

[1] H. Kawamura and T. Arimori, Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 077202.

[2] S. Hagemann et al., Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 894.

[3] H. Kikuchi . et al., JPSJ **72** (2003) Suppl. B 117.

[4] H. Ohta et al., J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 848.

パイロクロア格子上的ハイゼンベルグモデルの秩序化

阪大理 川村 光、伊尾木将之

反強磁性的な最近接相互作用を持った 3 次元パイロクロア格子上的古典ハイゼンベルグモデルは、その非常に強いフラストレーションに伴う縮退効果のために、絶対零度に至るまで磁気秩序化を示さないことが知られている。現実のパイロクロア系では、弱い接動的な相互作用のため縮退が解け、有限温度での何らかの磁気秩序化ないしはスピン凍結を示すものと考えられる。これらの弱い接動的相互作用としては、磁気異方性、双極子相互作用、次近接相互作用、格子歪み、ランダムネス等、様々なものがある。講演では、これらの接動的相互作用のうちから、1) 容易軸的な磁気異方性、2) 強磁性的な次近接相互作用、3) 強磁性的な次近接相互作用、の 3 つの場合について、モンテカルロシミュレーションの計算結果を報告し、それぞれの場合の磁気相転移の性格を明らかにした。1) の場合には、 $q=0$ の長距離秩序 (LRO) が有限温度で起きるが、その際異方性の大きさにより転移が 2 次から 1 次になる。2) の場合には、 $q=0$ での collinear な (上上下下) 構造への 1 次転移が有限温度で起きる。3) の場合には、noncoplanar な (カイラルな) 構造をもった 4 周期のコメンシュレートな LRO への 1 次転移が有限温度で起きることが判明した。このように、摂動的相互作用の種類によって多様な秩序化が生起しており、これはパイロクロア構造特有の強いフラストレーションに伴う縮退の効果の現れであると考えられる。

スピネル型 CuCrZrS_4 のリエントラントスピングラス

室蘭工大工 永田 正一

スピングラスの研究は数学的解析が一般的に難解で実験との直接的比較が困難な場合が多い。磁氣的相互作用が短距離で、かつ結晶格子上でランダムネスや幾何学的フラストレーションが明瞭に定義できる典型的な絶縁体において議論を発展させることが望まれる。本研究で提案する絶縁体のスピネル型化合物 CuCrZrS_4 はリエントラントスピングラスを示し、理論と実験結果をより精密に比較可能な魅力ある磁性体の一つと考えられる。

CuCrZrS_4 は約 60K で強磁性相転移を示す。さらに、10K 以下になるとスピングラス状態へとリエントラント転移することを図 1,2 のように見出した^[1]。Cu イオンは A-サイトに位置し 1 価で非磁性である。B-サイト上に 4 価の非磁性

Zr イオンと 3 価の磁性 Cr イオン ($S=3/2$) が 50%ずつランダムに配置される。スピネル型構造の B-サイト上だけで実現した希薄ランダム磁性系であることが特徴である。最近接相互作用は強磁性の F ボンドで第二隣接は逆符号の反強磁性相互作用の AF ボンドである^[2]。CuCr₂S₄ は T_c=377K の強磁性体であるが、Cr を非磁性イオン Zr で希釈すると相対的に AF 効果が強くなり、50%付近ではランダムネスを通じて競合性が増加してスピングラス相に再突入すると考えられる。

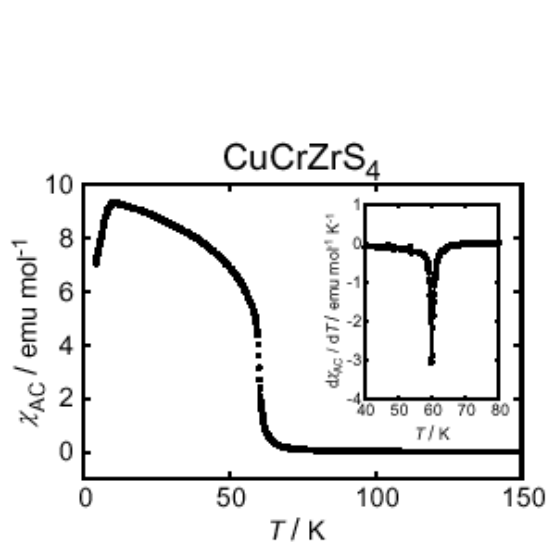


図 1. AC 線形磁化率の温度依存性:
周波数 80Hz, 磁場振幅 5.0 Oe

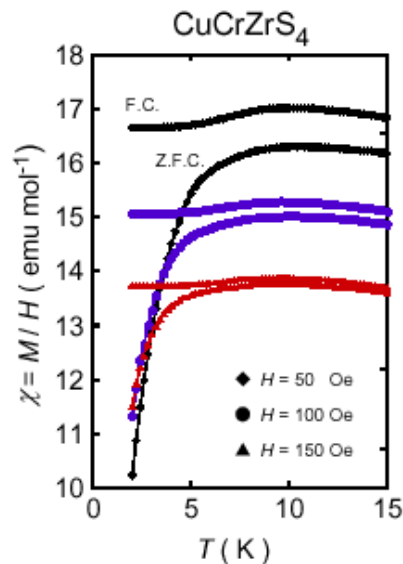


図 2. FC および ZFC 磁化率

参考文献

- [1] Y. Iijima *et al.*, *Philos. Mag.* **83** (2003)2521.
[2] H. Maletta, *J. Appl. Phys.* **53** (1982)2185.

希釈磁性体とリエントラントスピングラス

東北大工 安孫子俊介、松原 史卓

リエントラントスピングラス (RSG) 現象は、様々なスピングラス物質において観測されているが、理論的には未解決である。RSG に関する理論研究を進めるためには、実際の現象を再現するモデルを作ることが必要である。

我々は以下のような Eu_xSr_{1-x}S 型のモデルを提案する。

$$\mathcal{H} = -J_1 \sum_{\langle ij \rangle} x_i x_j (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) + J_2 \sum_{i,j}^{N,N,N} x_i x_j (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) + D \sum_{i>j} x_i x_j \left\{ \frac{\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j}{r_{ij}^3} - 3 \frac{(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{r}_{ij})(\mathbf{S}_j \cdot \mathbf{r}_{ij})}{r_{ij}^5} \right\}$$

これは、過去に研究された最近接と次近接の交換相互作用のあるモデルに、磁気双極子相互作用の項を加えたものになっている。ここで、 $|\mathbf{S}_i|=1$ 、 $J_2/J_1=0.2$ 、 $\langle x_i \rangle=x$ (スピン濃度) である。また磁気双極子相互作用は $D/J_1=0.001$ とした。

モンテカルロシミュレーションにより、このモデルは低温での磁化の消失、強磁性クラスターの存在という RSG 現象の特徴的な性質を再現することがわかった。

図 1 に磁化の温度依存性を示す。x=0.85 及び x=0.82 では、低温で急激な磁化の消失がみられる。図 2 は、系全体を立方体のブロックに分割しブロック毎に磁化を測定したものである。小さなブロックサイズ ($L_B \leq 8$) では低温側においても

磁化が成長し続けることから、系全体の磁化が消失しても有限の大きさのクラスターが存在することがわかる。従って、低温側の磁気構造は強磁性クラスターの集合で特徴づけられる。

スピン配列のスナップショットの観察から、強磁性クラスターが vortex like 配置をとるために磁化が急激に消失することがわかった。この性質は磁気双極子相互作用によるものである。事実、 $D=0$ の場合には vortex like な配置は見られなかった。

また予備的計算において、磁場中冷却とゼロ磁場冷却のずれや、RSG 相での通常とは異なる相関関数の形 ($\propto e^{-\gamma/l}$) について実験事実との定性的な一致がみられた。

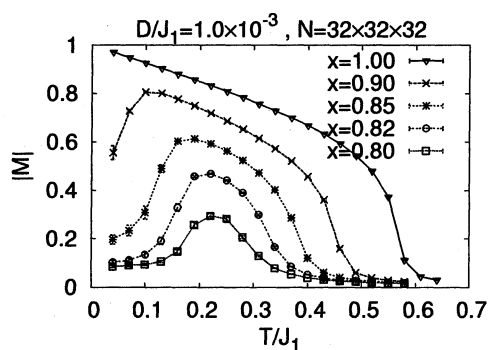


図1：いくつかの磁性原子濃度 x における磁化の温度依存性 ($D/J_1=0.001$)

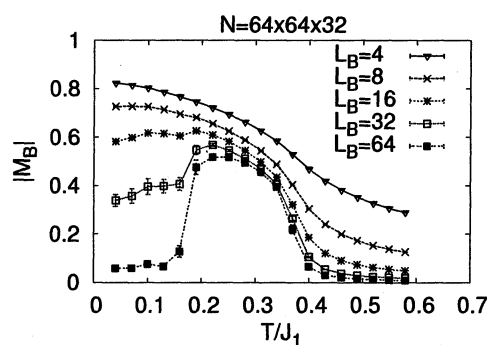


図2： $x=0.85$ の場合のブロック磁化。磁化消失時でも $L=8$ のクラスターが存在する事がわかる

カゴメアイス状態からのエントロピー放出

—比熱による $Dy_2Ti_2O_7$ の低温物性相図—

A 京都大学理学研究科物理、B 京都大学国際融合創造センター
前野 悦輝^{A,B}、東中 隆二^A、中辻 知^A、斎藤 将史^A

パイロクロア型酸化物 $Dy_2Ti_2O_7$ は代表的なスピンアイス物質として知られている。すなわち頂点共有の四面体が3次的に連結したパイロクロア格子で、 Dy^{3+} が Ising スピン系を構成する。そして双極子相互作用が主要となる強磁性相関のもとで、約 1 K 以下で幾何学的にフラストレートした two-spin in, two-spin out (2-in, 2-out) のスピンアイス状態をとり、 $R\ln 2$ の 29% に相当する残留エントロピーが比熱から確認されている。

我々はこれまでに Matsuhira ら^[1] と独立に、磁化過程の異方性と磁場中比熱の異方性から、[111] 方向の磁場下では新たな残留エントロピーを示す状態が実現することを見出した^[2-4]。パイロクロア格子は、[111] 方向と垂直な三角格子面とカゴメ格子面の積層構造とみなせる。約 1 T 以下では磁場と平行な Ising 軸をもつ三角格子上のスピンの整列している条件のもとで、カゴメ格子上的スピンは 2-in, 2-out のアイスルールを満たすマクロに縮退した配位をとることが期待され、実際 $R\ln 2$ の約 8% にあたる残留エントロピーを観測した^[4]。

本研究では、0.1 K までの磁場中低温比熱の測定結果をもとに構築した磁場-温度相図にもとづき、カゴメアイス状態の残留エントロピーの放出について議論した。カゴメアイス状態から 1-in, 3-out の磁場整列状態への変化は一次転移で起こることが磁化測定から明らかにされている^[5]。その一次転移線に対応する比熱異常を観測すると共に、一次転移線の終点 (0.40 K, 1.0 T) での臨界的比熱増大を観測した。0.3 K 以下の低温では、一次転移線より高磁場側にも比熱の上昇が目立つようになり、1.25 T に緩やかな比熱ピークをもつことが明らかになった。これは一次転移でカゴメアイスの残留エントロピーが完全には開放されないことを示唆している。このことは高磁場側で磁化がすぐには飽和しないという測定結果^[6]にも矛盾はしないが、今後は比熱と磁化を結ぶさらに定量的な熱力学的考察が必要となろう。

またこの研究会では $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の誘電率についても 0.3K までの温度、7T までの磁場での結果を報告した。ゼロ磁場では 1K におけるスピン凍結に伴うキャパシタンスの減少とエネルギー散逸ピークが観測され、また[111]方向の磁場下ではカゴメアイス状態の磁化プラトーに対応する振る舞いも明確に観測された。

- [1] K. Matsuhira *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **14** (2002) L559.
- [2] H. Fukazawa, R.G. Melko, R. Higashinaka, Y. Maeno, and M. J.P. Gingras, Phys. Rev. B **65**, 054410-1-5 (2002).
- [3] R. Higashinaka, H. Fukazawa, and Y. Maeno, Physica B **329-333**, 1040-1041 (2003).
- [4] R. Higashinaka, H. Fukazawa, and Y. Maeno, Phys. Rev. B **68**, 014415-1-5 (2003).
- [5] T. Sakakibara *et al.* Phys. Rev. Lett. **90**, 207205 (2003).

パイロクロアスピンの磁場誘起転移

東大物性研 九工大工^A 榊原 俊郎、青木 英和、田山 孝、廣井 善二、松平 和之^A

スピンアイス化合物 $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ は幾何学的フラストレーションのためにゼロ磁場で残留エントロピーを持つ。この巨視的縮退は[111]方向の磁場に対して2段階で解かれることが知られている。まず“two-spin-in, two-spin-out”のice ruleに従う乱雑さがカゴメ格子に残ったカゴメアイス状態が約 0.5T 付近から現れ、ついで $H_c=0.95\text{T}$ 付近でice ruleを破る“three-spin-in, one-spin-out”状態へのスピントリップが起こる。このスピントリップは、最近接相互作用のみを考えると単一サイトの現象であり相転移にならないはずであるが、低温磁化・比熱測定から我々は約 0.4K 以下でこれが1次相転移に移行すること、また転移にもなってカゴメアイスの残留エントロピーが放出されることを以前報告した。今回、転移の臨界点近傍におけるエントロピーの磁場変化を詳細に調べるために磁気熱量効果の測定を行った。

図1は、断熱状態にある試料に対して磁場を変化させたときの試料温度の変化率 $(\partial T/\partial H)_S$ を磁場の関数として描いたものである。熱力学により $(\partial T/\partial H)_S = -(\partial S/\partial H)_T / (T/C_H)$ であるので、 $(\partial T/\partial H)_S$ はエントロピーの磁場変化を直接反映する物理量である。図からわかるように、臨界点 $T_{cr} \sim 0.4\text{K}$ の前後で顕著な変化が見られた。 $T > T_{cr}$ では $(\partial T/\partial H)_S$ の磁場依存性は H_c 近傍でほぼ対称的であり、エントロピーは H_c で大きなピークを形成することが読みとれる。これは H_c においてフリップするスピンの有効磁場がゼロを過ぎることによる。一方、 $T < T_{cr}$ では $(\partial T/\partial H)_S$ の H_c 近傍の振舞いは明らかに非対称でかつ H_c において発散的になっている。この結果は H_c でのエントロピーの急激な減少を意味し、1次転移を裏付けている。1次転移の潜熱が正しく測定できていないためやや過小評価ではあるが、転移の前後におけるエントロピー変化は $\Delta S \sim -0.5\text{J/K}^2\text{molDy}$ と見積もられた。これはカゴメアイス状態の残留エントロピーと同程度の大きさであり、以前の比熱・磁化測定の解析結果とほぼ一致している。

また、同じくスピンアイス化合物である $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の[111]方向磁化測定を行い、約 1.7T において1次転移を観測した。これから見積もられる最近接有効相互作用は $J_{\text{eff}}=1.95\text{K}$ となり、 $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の $J_{\text{eff}}=1.04\text{K}$ と比べて約2倍の大きさである。

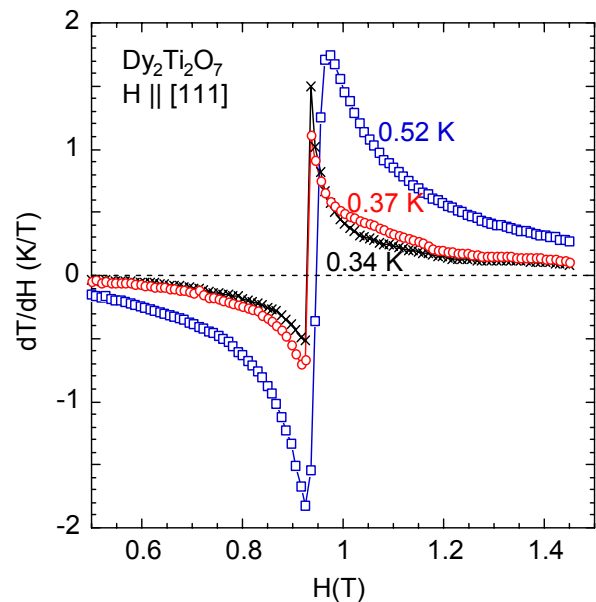


図1

スピニアイス化合物の低温磁性

九州工大工 松平 和之

スピニアイスを示す化合物はこれまでに $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Ho}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Dy}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$ の4つのパイロクロア酸化物が知られている。スピニアイス化合物のスピンド結への過程やスピニアイス状態の性質を明らかにする目的で、交流磁化率測定を用いこれら4つの化合物についての系統的な研究を進めている。磁化の緩和時間の温度変化は1~2K以下ではエネルギー障壁 E_B が10~30K程度の熱活性型に近い温度依存性を示し、およそ0.7KでDC磁化のタイムスケールに達しスピンドが凍結した状態となる。これは2-in2-outの局所スピンド相関の発達によるクラスター間の緩和による過程と考えられる^[1,2]。10K以上の高温では E_B が200K程度の熱活性型の温度依存性を示す。交流磁化率測定のタイムスケール ($>10^{-5}\text{sec}$) では Dy 化合物のみにこの緩和による異常が観測される^[2,3]。最近、中性子スピンドエコー法によって $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ でも同様な緩和が存在する事が明らかにされ、強い1軸磁気異方性による単一スピンドの熱的反転による緩和と考えられている^[4]。この単一スピンドの熱的反転と低温でのクラスターによる緩和過程の間に、緩和時間が温度にほとんど依存しないクロスオーバー領域がある。その緩和時間 τ_{cross} は $\text{Dy}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$ で $\sim 1 \times 10^{-2}\text{sec}$ 、 $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ で $\sim 2 \times 10^{-4}\text{sec}$ であり、Ho系では $\sim 10^{-7}\text{sec}$ と推測される。最近、この領域の緩和過程が量子トンネル型との解釈がされている^[5]。しかし、 $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ において少量のGd置換によって、 τ_{cross} は顕著な減少を示す^[6]。磁気異方性のないGdのスピンド反転が系全体の緩和時間に影響を与えていると考えられることから、この領域でのスピンド相関による緩和過程の存在を示唆している。

真の基底状態の実現や巨視的縮退の破れによる新奇状態の探索として1軸圧力を用いた試みについて報告した。実験は $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 単結晶を用い、磁場および圧力を[001]、[110]、[111]の主要な3方向へ印可し、約1.2Gpaの圧力下で1.7Kの磁化過程の測定を行なった^[7]。1軸圧力による各軸方向での飽和磁化の減少の割合は、1%程度の格子変形による予測と良い一致を示した。また、[001]方向のみ初磁化率が4%程度増大しており、巨視的縮退の破れの現れを示唆している。

- [1] K. Matsuhira, Y. Hinatsu, K. Tenya and T. Sakakibara : J. Phys.: Condens. Matter **12**(2000)L649.
- [2] K. Matsuhira, Y. Hinatsu and T. Sakakibara: J. Phys. : Condens. Matter **13**(2001)L737.
- [3] J. Snyder, J. S. Slusky, R. J. Cava, And P. Schiffer. : Nature **413**(2001)48.
- [4] G. Ehler, A. L. Cornelius, M.Orendac, M. Kajnakova, T. Fennell, S. T. Bramwell and J. S. Snyder. J. Phys.: Condens, Matter **15**(2003)L9.
- [5] J. Snyder, B. G. Ueland, J. S. Slusky, H. Karunadasa, R. J. Cava, Ari Mizel and P. Schiffe : Phys. Rev. Lett. **91**(2003)107201.
- [6] 松平和之、横田和幸、土井貴弘、日夏幸雄、高木精志：日本物理学会第58回年次大会28pXH8.
- [7] 桑原慎太郎、美藤正樹、松平和之、出口博之、高木精志、広井善二：日本物理学会2003年秋季大会2laPS44.

磁場中の双極子スピニアイスー [110] -方向とその周辺

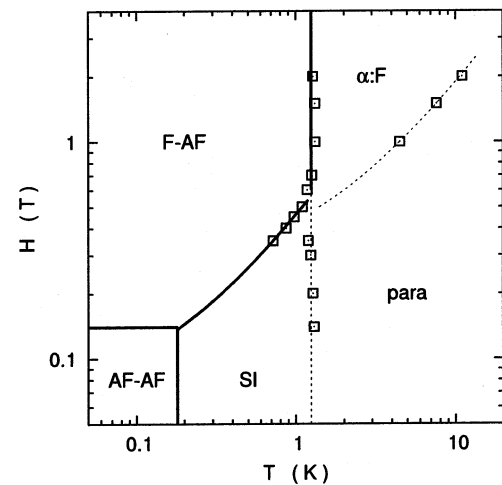
北大院理 吉田 俊一, 根本 幸児, 和田 宏

近年、スピニアイス物質 $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の磁場中での振る舞いが注目を集めている^[1,2]。講演では[110]-磁場中におかれた双極子スピニアイス系の比熱異常^[1]を説明するためにモンテカルロシミュレーションを行った結果を紹介した。系のハミルトニアンは以下の通り：

$$\mathcal{H}(\sigma_1, \sigma_2, \dots, \sigma_N) = -\mu_B \text{Peff} \sum_i (\mathbf{H} \cdot \mathbf{n}_i) \sigma_i + (J_{\text{nn}} + D_{\text{nn}}) \sum_{\langle ij \rangle} \sigma_i \sigma_j \\ + \frac{3D_{\text{nn}}}{5} r_{\text{nn}}^3 \sum_{\langle ij \rangle}^{\text{long}} \frac{|\mathbf{r}_{ij}|^2 (\mathbf{n}_i \cdot \mathbf{n}_j) - 3(\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{n}_i)(\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{n}_j)}{|\mathbf{r}_{ij}|^5} \sigma_i \sigma_j,$$

ただし, J_{nn} , D_{nn} は最近接の交換相互作用と双極子相互作用の大きさで, $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ のパラメータ $J_{nn}=-1.24\text{K}$, $D_{nn}=2.35\text{K}$, $p_{\text{eff}}=10$ を用いた。

系には[110]-磁場の影響を受けるスピンと受けないスピンがある。影響を受けるスピンは全て磁場の方向を向いた強磁性 Ising 鎖(α -鎖)を作る。低温ではアイスルールによって α -鎖以外のスピンも強磁性 Ising 鎖(β -鎖)を構成する。最近接相互作用だけでは β -鎖には自由度が残る。長距離の双極子相互作用を考慮すると β -鎖の秩序化に伴う相転移が起こると考えられる。系の基底状態は α , β -鎖を用いると理解しやすくなる。双極子スピニアイスのゼロ磁場での基底状態は α -鎖と β -鎖が鎖間で、反強磁性的に並んでいる(AF-AF)と考えることが出来る。また、鎖間で強磁性/反強磁性的に並んだ α , β -鎖が作る内部磁場は 0 になる。双極子相互作用を考慮すると、 β -鎖には反強磁性的な相互作用が働く。そのため、十分強い磁場中での基底状態は α -鎖が強磁性的に並び、 β -鎖が反強磁性的に並んでいる状態(F-AF)となる。これは、中性子散乱^[2]で指摘された $Q=X$ 構造である。



シミュレーションの結果、比熱は実験と同様の温度依存性を示すことが分かり、その結果から描いたのが上の相図である。磁場が0.4T以上で比熱は2つのピークを持ち、低温側のピークでは β -鎖の秩序化とアイスルール状態への移行が同時に起こっている。図中口がシミュレーションで得られた比熱ピークで、実線が相転移を表す。低温低磁場側の実線は基底状態の解析から得られた予想図で、AF-AF から F-AF への転移は0.14T で起こる。

[1] Z. Hiroi, K. Matsuhira and M. Ogata: Cond-mat / 0306240.

[2] T. Fennell. *et al.*: Appl. Phys. A74 (2002) S889.

ガーネット格子上的スピニアイス的振る舞い

大阪大学 吉岡 匠哉, 古賀 昌久, 川上 則雄

近年、幾何学的フラストレーションをもつ系が大きな注目を集めている。その例としてパイロクロア格子系、ガーネット格子系、カゴメ格子系などがある。パイロクロア格子系においてはスピニアイス($\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 等)が巨視的な残留エントロピーをもつ物質として実験、理論の両面で盛んに研究が行われている。我々はこのスピニアイスと同様にガーネット格子の各格子点において局所的なイジングスピンの存在するモデルについて考えた。このモデルにおいて最近接強磁性相互作用を仮定するとスピニアイスに類似した幾何学的フラストレーションが生じる。このような幾何学的フラストレーションを持つ系において最近接強磁性相互作用と長距離型の相互作用の競合を考えると興味深い振る舞いが期待される。ここではモンテカルロシミュレーションを用いてフラストレーションの効果について調べた結果を報告する。

双極子間相互作用を第N近接まで考慮したモデルにおいてはNの値を変化させることにより様々な相が現れる(図1)。N=1~3 のモデルにおいて系は巨視的な残留エントロピーを持ち、N=4~14 のモデルにおいて系の基底状態は秩序化した状態であるということがわかった。極低温で特徴的ふるまいを示すN=4, 14のモデルに注目すると、N=4のモデルにおいては高温側の比熱のピークが生じる温度において系は二次相転移を起こすことが有限サイズ効果を調べることでわかった。また、N=14のモデルにおいて自由エネルギーにカスプが生じることから系は一次相転移を起こすことがわかった。さらにこれらのモデルについて副格子磁化を調べた結果、系の基底状態はどちらも同じ秩序化した状態であり、N=4のモデルにおいては比熱におけるダブルピークの間において部分無秩序相が実現していることがわかった。このように長距離型の相互作用の範囲を変えることでフラストレーションの効果により様々な相が現れることがわかった。

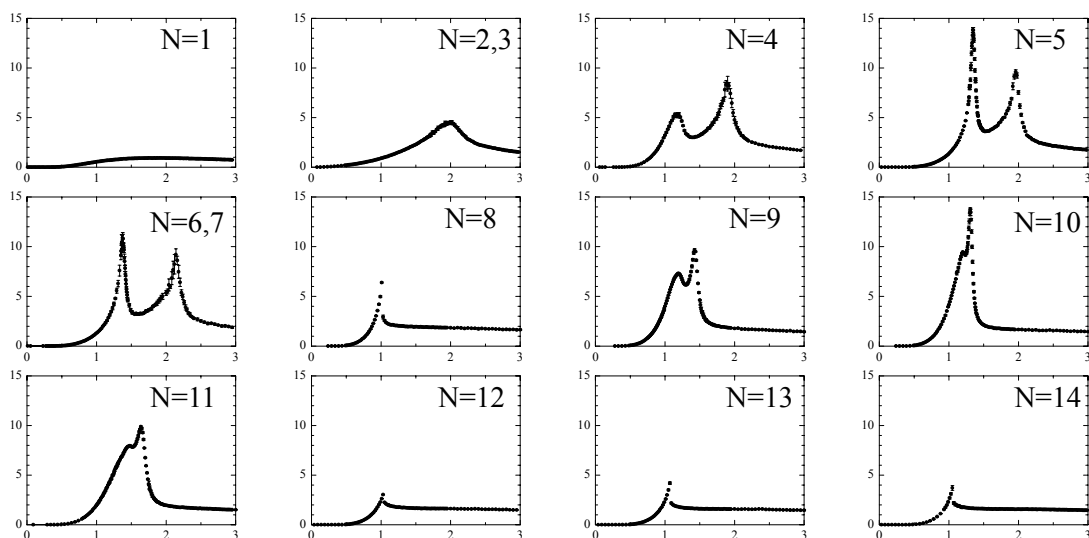


図1 比熱 $C(\text{J/mol/K})$ の温度変化。(第 N 近接相互作用までを考慮)

$\text{Rb}_2(\text{Pd}_{1-x}\text{M}_x)_3\text{S}_4$ ($\text{M}=\text{Co}, \text{Mn}$)の希釈カゴメ格子磁性

東工大理工 飯尾 勝矩、藤原 香弘、久木 亮太

三元遷移金属硫化物 $\text{A}_2\text{Pt}_3\text{S}_4$ ($\text{A}=\text{K}, \text{Cs}, \text{Rb}$)に対する Bronger 等による結晶構造解析を基に、^[1] 我々のグループはこの結晶群において $\text{Rb}_2\text{Ni}_3\text{S}_4$ や $\text{Rb}_2\text{Pd}_3\text{S}_4$ の Ni や Pd イオンが典型的なカゴメ格子を組むことに気づき、単結晶を作成して磁気測定を行なった。特に前者 Ni^{2+} 系 (3d)⁸ については低温で弱い強磁性的振る舞いが見られたことから、カゴメ格子磁性との対応で興味を持った。^[2] その後、Elder 等により磁性と伝導測定が $\text{K}_2\text{Ni}_3\text{S}_4$ を対象に行われており(カゴメ格子層のスタッキングの周期性が少し異なる)、やはり低温で見られる磁性に Ni の価数揺動をコメントしていることも知った。^[3] しかし、試料の作成過程を吟味するなかで、Ni イオンを囲み蜂の巣格子を成す S イオンの長方形配位の特徴と Ni と S の間の強い共有結合性を反映して、完全な結晶では Ni^{2+} が低スピン状態にありバンド的な非磁性絶縁性を示すことが分かった。^[4, 5] 他方、発展的な視点として、薄田等の $\text{Rb}_2\text{Ni}_3\text{S}_4$ を対象とした密度汎関数法による計算から E_F 直下の電子状態はカゴメ格子を反映してフラットバンドを形成している可能性があり、^[4, 6] $\text{Rb}_2\text{Ni}_3\text{S}_4$ を母体としてキャリア・ドーピングを施したときに、新しい磁性と伝導の発現が期待できることも分かった。

これ等の研究過程で Pd^{2+} 系 (4d)⁸ では試料作成過程の如何に拘わらず非磁性を示す経験的知見を得たので、我々は、むしろ低スピン状態にある非磁性 Pd^{2+} を (3d)⁷ の Co^{2+} や (3d)⁵ の Mn^{2+} で置換し、希釈ながらもカゴメ格子に磁性イオンを植え付ける表題の研究を開始した。ただし、これらの試料は粉末結晶である。その結果、置換率 x はカゴメ格子のサイトパーコレーション・スレシヨールド $x_p (=0.62)$ を越えるまでには至っていないが、複数の置換率の試料の磁化率の温度依存性からカゴメ格子磁性を吟味出来る系統的データが得られた。例えば、 $\text{Rb}_2(\text{Pd}_{1-x}\text{Co}_x)_3\text{S}_4$ 系の大凡の特徴として、Co スピン間には $J/k \sim -35\text{K}$ 程度の反強磁性相互作用が働いているが、温度を降下させると 15K 付近で磁化率の FC、ZFC 曲線に履歴が現れる。 $\text{Rb}_2(\text{Pd}_{1-x}\text{Mn}_x)_3\text{S}_4$ 系では、主要な相互作用は反強磁性的で $J/k \sim -1300\text{K}$ と非常に大きく、磁化率は高温からワイス温度 θ よりかなり低温の 150K 付近までキュリー・ワイス則に従っており、また、2.5K 付近まで秩序の兆しが見られない。これ等の特徴の内、特に Mn 系はスピン・フラストレーションの大きいカゴメ格子反強磁性体の磁性を反映しているものとして理解出来る。両希釈系の ESR 測定から、Co 系では $g_{\perp}=2.00$ と $g_{\parallel}=2.66$ のイジング異方性を示す共鳴が、他方、Mn 系では $g=2.00$ の位置に、それぞれきれいな共鳴吸収が観測された。^[7] キュリー一定数から見積もった S の値と併せて、これ等の結果は (3d)⁷ 及び (3d)⁵ の電子系が低スピン状態にあり、両系は $S=1/2$ の量子スピン系を形成していることを強く示唆している。

- [1] W. Bronger, R. Rennau and D. Schmitz: Z. anorg. allg. Chem. 375 (1970) 1039.
 [2] T. Kato, K. Hondou and K. Iio: J. Magn. Magn. Mat. 177 (1998) 591.
 [3] S. H. Elder, S. Jobic, R. Bree, M. Gelabert and F. J. DiSalvo: J. Alloys and Comp. 235 (1996) 135.
 [4] T. Fukamachi, Y. Kobayashi, A. Nakamura, H. Harashina and M. Sato: J. Phys. Soc. Jpn. 68 (1999) 3668.
 [5] K. Hondou, Y. Fujiwara, T. Kato, K. Iio, A. Saiki, M. Usuda and N. Hamada: J. Alloys and Comp. 333 (2002) 274.
 [6] M. Usuda and N. Hamada: Read at Annual Meeting of Phys. Soc. Jpn., Tokushima (2001) 17pPSB-25.
 [7] ESR の測定は日本電子(株)応用研究センター中井由実氏により実施された。

フラストレーション系の強磁場 ESR

神戸大学分子フォトサイエンス研究センター 太田 仁, 大久保 晋
 神戸大学自然科学研究科 神川 朋久
 神戸大学 VBL 國本 崇, 稲垣 祐次
 福井大学工学部 菊池 彦光

最近, フラストレーションを持つ低次元反強磁性体が興味を持たれている。このような系としては, 次近接相互作用を持つ一次元反強磁性体やデルタ鎖があるが, ここで取り上げるのはダイヤモンド鎖化合物である。ダイヤモンド鎖に関する理論的研究は, 高野, 岡本, 利根川などによるものがあるが実験的には, よいモデル物質がのぞまれる。我々は, 天然鉱物 Azurite ($\text{Cu}_3(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2$) に注目した。この物質は磁化率の温度依存性に 5 と 23K に極大をもち 2K まで磁性不純物によるキュリー項が観測されない非常にきれいな系で, H/b (鎖軸方向) の場合 1.5K において 16 から 26T に 1/3 磁化プラトーが観測される量子スピン系である。この系は, 約 2T という銅化合物としては広い ESR 線幅を持ち, 通常の X-band ESR 測定では観測が困難であるため, 神戸大の強磁場 ESR 装置で ESR 測定をおこなった。その結果, 23K 以下で異方的な大きな g シフトと, 一次元反強磁性体に特有な低温における線幅の発散を示さないという特異な振舞いが観測された。[1] さらに 1.8K, H/b において 50 から 900GHz の広い周波数領域に関して 36T までのパルス磁場で強磁場 ESR を観測したところ, 図 1 に示すように 1057GHz(50K) のギャップを持つ基底状態からの直接遷移を観測した。この遷移の g 値が 16T で変化することと 26T で非常に弱くなることから, この直接遷移が磁化プラトーと関係していることがわかる。しかし, g 値は 2 よりずっと大きく, その起源及び磁化プラトー領域の基底状態の決定など今後解明していく必要がある。

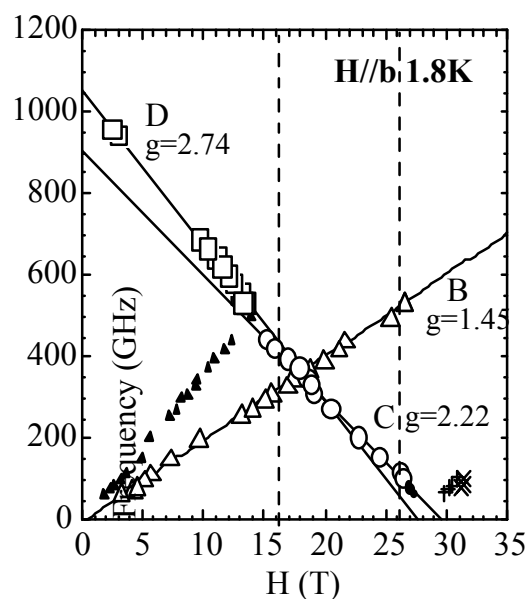


図 1 Azurite の周波数-磁場依存性。記号の大きいものは強い吸収をあらわす。C, D が直接遷移。

- [1] H. Ohta et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 72 (2003) 2464-2467.

強相関電子酸化物のスピнкаイラリティおよびベリー位相の制御

東大・理工, 産総研・強相関電子 (CERC), ERATO-スピン超構造 (SSS) 十倉 好紀

フラストレーション系で強相関電子系に特徴的に現れる物性について、量子競合相の制御、量子位相の制御、および交差相関物性の観点から、次の話題について、レビューした。

[1] 多重臨界金属-絶縁体相図とフラストレーション (PRL 90,177203; PRB68, 094417.)

電荷・軌道秩序と遍歴強磁性が競合する多重臨界点近傍では、フラストレーションおよびランダムネスが長距離秩序を抑制し、巨大な相揺らぎを引き起こし、また外場巨大応答の因となる。マンガン酸化物を例にとり、A サイト固溶系と秩序系の相違や CMR 効果の起源を述べ、また、パイロクロア型 Mo 系の電子相図への影響を論じた。

[2] スピнкаイラリティとベリー位相制御-異常ホール効果 (Science291,2573; 302,92; PRL 90, 257202.)

パイロクロア型 Mo 系でのスピнкаイラリティ起源の異常ホール効果に関する最近の実験的進展を述べた。また、 $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{RuO}_3$ 薄膜結晶での異常ホール効果、磁気光学スペクトルを、スピン・軌道相互作用の非摂動的効果を k-空間の磁気単極子のモデルで取り込んだ計算結果と詳細に比較検討を行い、ベリー位相モデルの妥当性を検証した。

[3] スピンフラストレーションと巨大電気磁気効果 (Nature 426, 140.)

ANNNI モデル的なフラストレーションを有するペロブスカイト型 (斜方晶) RMO_3 (R=Tb, Dy など) において、スピン系の IC-C ロックイン転移にともなう、強誘電性の発現を示した。また、f-d 相互作用を介した強誘電分極の磁場制御の例を示し、マルチフェロイクスにおける巨大電気磁気効果の設計の方向性を示した。

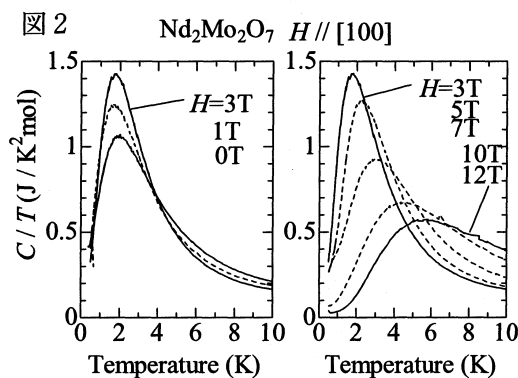
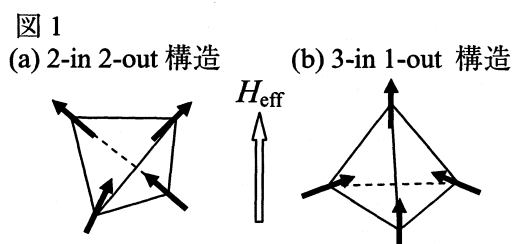
比熱からみた $\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ および $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ における磁気構造変化

ERATO A, 東大工 B, CERC

小野瀬佳文 A、田口康二郎 B、伊藤 利充 C、十倉 好紀 A,B,C

$\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ においては、Nd のモーメントが強い一軸異方性のためにスピンアイス系と同様な 2-in 2-out 構造(図 1 (a))を低磁場領域で示している。しかしながら、Mo サイトのスピン偏極した伝導電子との相互作用によって、スピンアイス系で存在するような基底状態の縮退は解かれている。一方、Mo スピンは Nd スピンとの相互作用を感じてマクロな磁化方向からわずかに傾いている。最近、この物質において通常の振る舞いと異なる異常ホール効果が見出され、Mo スピンの傾きによって誘起されたスピнкаイラリティが起源であるとの提案がなされた。本研究では、異常ホール効果におけるスピнкаイラリティ機構の検証やスピンアイス系との比較といった観点から、比熱を用いて磁場下の磁気構造の検証を試みた。

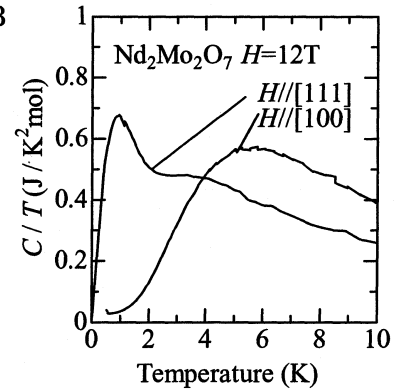
図 2 に $H//[100]$ の配置の 10K 以下における比熱の磁場依存性を示す。この温度領域では Nd スピンによる寄与が支配的であり、ゼロ磁場において 2K 付近に存在するピークは Nd が 2-in 2-out 構造に揃うことによって生じるものである。磁場を 0T から増やしていくと、2-3T までは、高温のエントロピーが徐々に低温側に移動していき、ピーク位置も高温から多少低温に移動する。それに対して 3T 以上では逆にピーク位置が高温に移動していく。



この 3T 付近のクロスオーバーは Mo スピンと Nd スピンが反強磁性的に揃った状態から強磁性的に揃った状態への移り変わりを示唆している。この系ではスピナイスのように残留エントロピーが絶対零度まで存在することはないが、スピン状態の磁場方向依存性は類似している。図 3 に 12T における $H//[111]$ と $H//[100]$ の配置の比熱の温度依存性を示す。 $H//[111]$ の配置では 12T で 0.9K 付近にブロードなピークが現れる。このピークは Nd スピンが図 1(b) のような 3-in 1-out 状態に揃ったために生じたものと考えられる。最近、 $H//[111]$ のときのみ異常ホール効果の符号が高磁場で反転することが田口らによって見出されている。スピカイラリティは 3-in 1-out 構造のときには、2-in 2-out 構造のときの逆の符号を取るなのでこの結果はスピカイラリティ機構を支持するものである。

なお、講演題目には $Nd_2Zr_2O_7$ ものせたが、講演では時間の都合上 $Nd_2Mo_2O_7$ のみを議論した。

図 3



パイロクロア系 $R_2Ti_2O_7$ ($R=Tb, Yb, Ho$) の低温での磁氣的挙動

名大理、都立大理^A、東大物性研^B、原研先端基礎^C

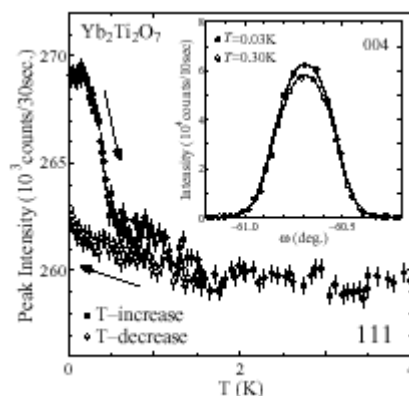
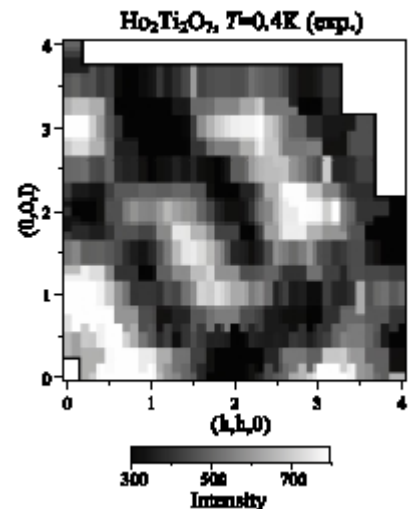
安井 幸夫、左右田 稔、飯久保 智、伊藤 雅典、佐藤 正俊、門脇 広明^A、阿曾 尚文^B、加倉井和久^C

パイロクロア化合物 $R_2Ti_2O_7$ では、 R^{3+} イオンが頂点を共有する正四面体ネットワークを形成している。R サイトの磁気モーメントが反強磁性的に相互作用する場合 (例えば、 $R=Tb^{IV}$) や、強い一軸異方性を持ちかつ強磁性的に相互作用する場合 ($R=Ho, Dy$ 、spin ice と呼ばれている)、磁気モーメント間に強いフラストレーションが働く。また、強磁性的な相互作用を持ち弱い XY-like な異方性を持つ $Yb_2Ti_2O_7$ では $T=0.24K$ において比熱に入型のとびが観測され注目されている。今回、単結晶を用いた中性子回折実験を行い、これらの物質系の磁気相関や低温での磁氣的振舞を調べた。

スピナイス系 $Ho_2Ti_2O_7$ の 0.4K で測定した (hhl) 面内の磁気散漫散乱強度マップを示す(右上図)。明るい

色の領域が強度の強い部分であり、温度上昇に伴い Q -依存性が消失していく。分子場近似による解析やモデル計算による解析を行った結果、モーメント間の相互作用として双極子相互作用が主に効いていると考えることで散乱強度マップを再現することができた。²⁻⁴⁾ 双極子相互作用による長距離相互作用によって厳密には縮退が解け基底状態が 1 つに決まるが、実際の系では長距離磁気秩序は存在せず short range order のままモーメントの動きが緩慢になっていく。その理由は双極子相互作用によるエネルギーの分裂が小さく実効的には縮退しているとみなせるエネルギーを持った多くの状態が混在しているからと考えられる。

$Yb_2Ti_2O_7$ の中性子回折実験を行った結果、いくつかの nuclear Bragg 点上において 0.24K 以下で磁気 Bragg 反射を観測し(代表的な ω -scan profile を右下挿入図に示す)、この 0.24K で強磁性転移が起き、collinear もしくはそれに近い磁気構造をとることがわかった。また、散乱強度-温度曲線に履歴が観測される(右下図)こと、0.030K に急冷後、磁気 Bragg 強度が飽和するまでに数時間を要することなど、低温で Yb^{3+} 磁気モーメントの動きが緩慢にな



ることを示すデータが得られた。Bragg 反射強度の解析により決定した磁気モーメントは $1.1 \mu_B$ で、磁化曲線の飽和磁化 $1.8 \mu_B$ よりかなり小さい。このことはこの系が強磁性的な最近接交換相互作用と弱い異方性により基本的には collinear な強磁性秩序をもつにしても、弱い XY 的異方性や双極子相互作用によって、ランダムに freeze する成分を含んでいることを示している。

パイロクロア型化合物 $R_2Ti_2O_7$ では $Tb_2Ti_2O_7$ も含めて最近接交換相互作用と双極子相互作用と異方性を適切に評価すれば低温の磁氣的挙動がかなり統一的に理解できることがわかってきた。

- [1] Y. Yasui *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. 71 (2002) 599.
- [2] 安井幸夫等: 日本物理学会誌 57 (2002) 830.
- [3] M. Kanada *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. 71 (2002) 599.
- [4] H. Kadowaki *et al.*: Phys. Rev. B65 (2002) 144421.
- [5] Y. Yasui *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. 72 (2003) 3104.

カイラル秩序の実験的検証を巡って

九大院理 網代 芳民

自然界で普く観測される相転移現象の多くは何らかの対称性の破れと深く関わっている。しかしながら古くから光学異性体の特徴付けるものとして認識されてきた右旋性、左旋性の対称性の概念がカイラル対称性として相転移現象において重要視されるようになったのは、スピンプラストレーション効果に由来して三角格子反強磁性体に代表されるカイラル対称性を有する磁性体の研究に始まる。そもそも磁性体における相転移はスピン対称性の破れのみに着目して、空間次元とスピン対称性を反映した普遍群によって記述されてきたが、系がカイラル対称性を有するならば新しい相転移が生じる可能性が議論されてきた。^[1] 最近のスピングラスの問題を含めて、スピン秩序とカイラル秩序の絡みを実験的に検証するためにはカイラル秩序を観測する実験手段が不可欠である。

本講演では、筆者が永年抱えているカイラル秩序の実験的検証についての現状を紹介した。数多くの実験が集積されて来たのは XY スピン三次元積層三角格子系と見なせる六方晶 $CsMnB_3$ の相転移に関する研究である。この系では種々の臨界指数が詳細に決定されて、Kawarura によって提唱されているようにスピン対称性 S_1 とカイラル対称性 Z_2 が結合した新しい普遍群 $S_1 \times Z_2$ で期待される臨界指数が実験的には得られている。理論的には未だ新普遍群であるのかどうかについて諸説あるが、いずれにしても実験で決定された臨界指数が、カイラル秩序を伴わない通常のスピン対称性のみの普遍群とは明確に異なっていることから、直接的にカイラリティを検証する実験が待望されてきた。反対称相互作用によってカイラル対称性が生じる場合には偏極中性子による観測が可能であるが^[2]、プラストレーションに起因して対称相互作用からカイラル対称性が生じる場合には偏極中性子と言えども通常の条件ではカイラリティの直接観測は不可能であり、電磁気効果を利用したカイラリティ選択^[3,4] や一様磁場への投影^[5] といった工夫が必要である。

最近になってようやく工夫をこらした偏極中性子実験によって、 $CsMnBr_3$ のカイラル臨界指数の決定がなされた。^[6] 得られた結果は、スピン秩序とカイラル秩序が同時に生じており、それらの臨界指数からスピンとカイラル秩序が結合した新しい普遍群に属することが検証された。

一次元や二次元では通常の高距離スピン秩序が無いために例えば、二次元 XY スピン三角格子ではスピン対称性 S_1 に由来する Berezinskii-Kosterlitz-Thouless 転移温度 T_{BKT} の上方において離散的なカイラル対称性 Z_2 を反映した二次元 Ising 普遍群に属すると考えられるカイラル秩序が生じることが予測されている。このように、ある種の条件下で、スピン対称性とは独立にカイラル対称性の破れを伴う新しい相転移 (カイラル相転移) が生じる可能性が理論的に提唱されているが実証されていない。最近の話題としては、次近接相互作用のある擬一次元物質において比熱異常が観測されるもののミュースアール実験からはスピン秩序の徴候が観測されず、スピンの長距離秩序を伴わないカイラル相が生じている可能性が指摘されており^[7]、詳細な実験が待たれる。

我々としては、高温超伝導セラミックスの grain 間超伝導転移で期待されるカイラル・グラス転移をミュースアール実験で検証する試み^[8] や放射光による偏極 X 線を利用する可能性を検討している^[9]。

- [1] 例えば H. Kawamura, J. Phys.: Condens. Matter 10, 4707 (1998) ,Proc. French-Japanese Symposium in Fukuoka, Kyushu Univ. Press, 124 (2001)
- [2] 例えば B. Roessli, P. Boni, W. E. Fischer, Y. Endoh: PRL. 88, 237204 (2002)
- [3] K. Shiratori et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 48, 1111 (1980)
- [4] M. L. Plumer, H. Kawamura, A. Caille: Phys. Rev. B43, 13786 (1991)
- [5] S. V. Maleyev: Phys. Rev. Lett. 75, 4682 (1995)
- [6] V. P. Plakhty, J. Kulda, D. Visser, E. V. Moskvina. J. Wosnitza: PRL. 85, 3942 (2000)
- [7] A. Lascialfari et al.: Phys. rev. B67, 22408 (2003)
- [8] Y. Ajiro, M. Hagiwara, I. Watanabe, M. Matsuura, H. Kawamura, K. Koyama, H. Deguchi, T. Asano, K. Nagamine: KEK Proceedings, 2002-2, p60 (2002)
- [9] Y. Ajiro: Quantum Materials Research Seminar Series at RIKEN Synchrotron Radiation Physics Faculty (2003)

CePdAl の部分無秩序状態

京都大学大学院人間・環境学研究科 小山田 明

CePdAl は、三角格子的フラストレーションとヘビーフェルミオンとしての性質を、両方有することで知られている。特に中性子回折で明らかにされたように、磁気構造が三角格子上的イジングスピンのような部分無秩序相であることが興味を集めている^[1]。中性子回折ではさらに低温で磁気構造が変化することが提案され、電気抵抗に異常があることも報告されていた。一方近藤効果を考慮した2次元系における分子場計算により、磁気構造が $J_1 > 0, J_2 < 0$ と考えれば説明できること、この部分無秩序相が絶対0度まで安定であることが示されている^[2]。しかし分子場計算は2次元系についてのものであり、実際の3次元系で最低温度まで部分無秩序相のままであるかどうかは議論を呼んでいた。また c 軸方向に *incommensurate* 構造であると提案されていることも興味深い。そこで我々は、核磁気共鳴法を用いてミクロな観点から磁気構造について情報を得ることを目的として実験を進めている。

^{27}Al NMR スペクトルは、常磁性状態では $I = 5/2$ から期待される5本のピーク構造を示すが、磁気秩序状態では、7本のピーク構造を示す。明瞭なピークが観測されることは、一見 *incommensurate* 構造とは相容れないように思われる。しかし NMR スペクトルの *simulation* を行った結果、このピーク構造は *incommensurate* 構造で良く説明されることがわかった。NMR スペクトルは温度を 50mK まで下げても、線幅が増加する以外定性的には変化がなく、また緩和時間にも特に異常が観測されない。以上により、磁気構造が中性子回折で提案されているものと矛盾がないこと、また 50mK まで部分無秩序状態のままであることが NMR 測定により示された。

さらに緩和時間の温度変化から以下のことが明らかになった。

1. 転移温度以下で $T_1T = \text{constant}$ が成立している。
2. 転移温度以上では、 $\exp(-\Delta/T)$ に比例している。

1. の結果から、無秩序状態にある Ce モーメントは常磁性状態にあるのではなく、ヘビーフェルミオン状態にあり磁気モーメントが消失していることが示唆された。このような磁気モーメントの消失が、部分無秩序状態を最低温度まで安定化させていると考えることができる。また 2. の結果から Ce モーメントは転移温度以上では、2次元的な局在モーメントとして振る舞っていることがわかった。

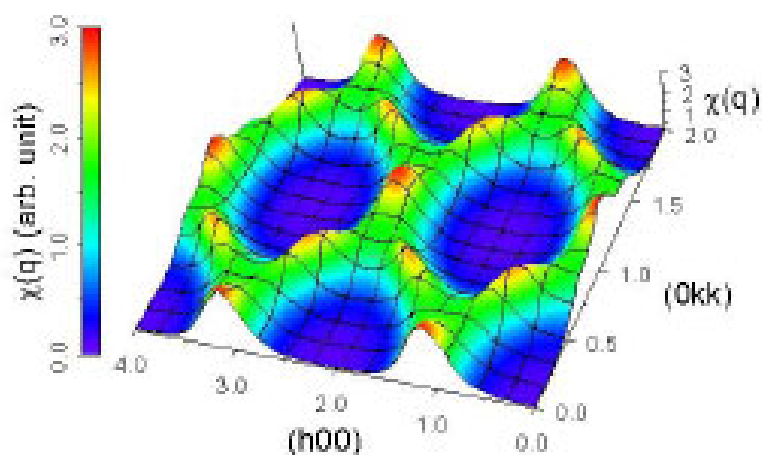
- [1] L. Keller, A. Dönni, H. Kitazawa and B. van den Brandt Appl. Phys. A 74 (2002) S686.
 [2] M. Dolores, Núñez-Regueiro, C. Lacroix and B. Canals Physica C 282-287 (1997) 1885

Classical and Quantum Spin Dynamics in the fcc antiferromagnet NiS₂ with Frustration

東北大金属材料研究所、国際高等研究所 遠藤 康夫

NiS₂における反強磁性長距離秩序相共存 (type I、II) の解釈は古い問題であるが、未だに完全解はない。NiS₂の中性子磁気散乱の実験結果は古典的な Frustration effect の概念を導入することによって、共存問題が完全に理解出来る。ネール温度 (39.3K) 以下で type I の反強磁性秩序に対応する Bragg 散乱の他に、fcc 逆格子境界面上に \mathbf{Q} に依存しない (散乱強度は磁気散乱因子に従う) 散漫散乱が存在する。磁気散乱は準弾性散乱が主でエネルギー、 \mathbf{Q} の幅は大きな温度変化をする。ネール温度以下で相関距離は最近接 Ni 原子間距離よりも短く、エネルギー幅は測定温度よりも小さい。平均場近似に含まれる over count を補正した理論解析から、長距離相互作用がもたらす Frustration を考慮すると NiS₂ の磁気相図、磁気散漫散乱を与える磁化率 ($\chi(\mathbf{Q})$) が再現できる。

正四面体のコーナーを共有する fcc 格子の反強磁性は長距離相互作用による Frustration 効果が磁氣的性質を支配する傾向が強く、NiS₂ の場合は複数のオーダー相が縮退しているが、構造歪みの助けを借りて縮退がとれる。この事実は低エネルギーの準弾性散乱が構造歪み出現と同時にエネルギーギャップを伴う非弾性散乱とスピン波にかわることで証明される。NiS₂ の場合は量子揺らぎの効果はむしろ小さくスピニアイス、シングレット基底状態などは実現しないことも証明された。例えば、type I、II とを結ぶ 4 体相互作用を導入することな Frustration によって、共存相の存在を証明できることにこの研究の意義がある。また十分低温では量子揺らぎが顔を出すことも証明された。尚、この研究は松浦直人、平賀晴弘、永長直人、Mishchenko と共同で行われ、科研費、CREST 研究費の援助を受けた。



ネール温度以下での NiS₂ の $\chi(\mathbf{Q})$ M. Matsuura et al., Phys. Rev. B 68 (03) 094409

フラストレーションのある多重軌道電子模型の新奇な軌道秩序状態

日本大学理工学部 山中 雅則

軌道縮退の縮退度を一般の N とする多重軌道の強相関電子模型の厳密な基底状態の考察を行なった。この強相関電子模型はハバード型であり、on-site のクーロン相互作用に加えて、density 相関、correlated hopping などの相互作用を有する。基底状態は、排他的反強磁性の軌道状態となる。この状態はグラフ理論の彩色問題と等価である。つまり、プラケットをバーテックスに、隣接プラケットをエッジとする双対グラフのバーテックス彩色に等価である。この状態は、一般に

はマクロに縮退しており、縮退度は異なる彩色数に一致する。2次元格子の場合、4色定理により軌道縮退数4のモデルであれば、(規則格子を含む)任意のランダム格子において可解である。3次元以上の格子の場合は、ランダム超多面体の彩色問題に等価となる。この場合の可解条件は格子を2次元曲面に既約埋め込みを行ない、そのオイラー数の関数として、ヒューワットの定理から導くことができる。また、基底状態の縮退度、つまりゼロモードの数は染色多項式により与えられる。これは、模型の位相幾何学的な性質がヒューワットの定理を通して代数多項式によって与えられるという広義の指数定理である。通常のスピン1/2の反強磁性においては、三角格子の1プラケット内においてフラストレーションが発生する。しかし、本模型のように多成分に拡張を行なった場合、フラストレーションは局所的には発生せず、大域的なつじつま合わせの不一致というかたちで発生する。これは、地図の塗り分けをにたとえることができ、ある程度の領域はいつでも塗り分け可能であるが、塗り進むにつれて塗り分けが不可能になることがある、という性質を反映したものである。このような、グラフ理論、組み合わせ理論のもつ構造を積極的に反映した統計力学的模型の研究は、これまでにあまり解析が行われていない。多種の格子において模型を構成し、それぞれの性質について調べるのが今後の課題である。

バナジウムスピネル酸化物におけるフラストレーションとスピン軌道相転移

理研 求 幸年、京大基研 常次 宏一

バナジウムスピネル酸化物 AV_2O_4 ($A=Zn, Mg, Cd$) の示す二つの相転移のミクロスコピックな機構を理論的に研究した結果について報告する^[1]。これらの物質では、物性を担うバナジウムイオンが三次元的な幾何学的フラストレーションをもったパイロクロア格子を組んでいる。約 50K において立方晶から正方晶への構造相転移を示し、続いて約 40K において反強磁性転移を示すことが知られている^[2]。また、反強磁性相における磁気構造は、 ab 面内にできた反強磁性一次元鎖が c 軸方向に up-up-down-down という二倍周期で積み重なったものと考えられている^[3]。(正方晶の歪みの方向を c 軸とした。)これまでの理論研究において、スピン自由度の縮退を解消するために構造相転移が生じるとする spin driven Jahn-Teller 機構が提唱されていたが^[4]、この枠内ではこれら二つの相転移を統一的に理解することは難しい。また、同じスピネル構造をもつクロム化合物 ACr_2O_4 では、構造相転移と反強磁性転移が同時に生じるという違いが見られることから^[5]、スピンの自由度だけではなく、 Cr^{3+} イオンでは不活性だが V^{3+} では活性である t_{2g} 軌道の自由度が重要な役割を果たしていると考えられる。

そこで本研究では、三重縮退した t_{2g} 軌道の自由度をあらわに取り入れた軌道縮退ハバード模型を出発点として、強相関極限におけるスピン軌道有効模型を導出し、平均場近似およびモンテカルロシミュレーションを用いた解析を行なった。この結果、この有効模型が異なる温度で二つの相転移を示すことを明らかにした。温度の低下に伴い、まず最初に、正方晶のヤーン・テラー歪みを伴う軌道秩序相転移(一次転移)が見られる。軌道秩序の構造は、 xy と yz 軌道がそれぞれ一つの d 電子で占有された面と、同様に xy と zx 軌道が占有された面とが、 c 軸方向に交代的に積層したものである。この軌道秩序の形成によってスピン自由度の縮退が一部解かれて、 ab 面内の一次元鎖内に反強磁性相関が成長する。さらに低温で、第三近接サイト間の相互作用により一次元反強磁性鎖間に相関が生じ、三次元的な反強磁性転移(二次転移)が起きる。得られた磁気構造は上で述べた実験結果と一致している。以上の結果により、これらのバナジウムスピネルにおいては、 t_{2g} 電子のもつ軌道の自由度が、幾何学的フラストレーションの部分的な解消を通じて磁気転移を誘引するという本質的な役割を果たしていることが明らかになった。

[1] H. Tsunetsugu and Y. Motome, Phys. Rev. B **68**, 060405 (2003).

[2] Y. Ueda, N. Fujiwara, and H. Yasuoka, J. Phys. Soc. Jpn. **66**, 778 (1997); H. Mamiya *et al.*, J. Appl. Phys. **81**, 5289 (1997); N. Nishiguchi and M. Onoda, J. Phys.: Condens. Matter **14**, L551 (2002).

[3] S. Niziol, Phys. Status Solidi A **18**, K11 (1973).

[4] Y. Yamashita and K. Ueda, Phys. Rev. Lett. **85**, 4960 (2000).

[5] I. Kagomiya, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 916 (2002); M.T. Rovers *et al.*, Phys. Rev. B **66**, 174434 (2002).

パイライト型化合物 NiS_2 の高周波 ESR

福井大学 遠赤外領域開発研究センター^A 国際高等研^B
光藤誠太郎^A、藤田 敏之^A、合田 郷^A、出原 敏孝^A、本河 光博^{A,B}

NiS_2 は多くのパイライト (FeS_2) 型の磁正化合物が強磁性を示すなか、反強磁を示す化合物であり、磁気イオンである Ni^{2+} ($S=1$) が面心立方格子を組み、強い三次元のフラストレーション効果を示す。しかしながら、低温で二段階の長距離磁気秩序が観測される。 $T_{N1}=40\text{K}$ 以下で、まず Type I の反強磁性長距離秩序を示し、さらに低温の $T_{N2}=30\text{K}$ 以下で Type I と Type II 反強磁性の秩序の共存状態を示す。また T_{N2} 以下で、これらの反強磁性秩序とともに強磁性成分が現れる。これらの低温の奇妙な振る舞いについては Yoshimori や Yoshida らにより高次の交換相互作用である 4 体交換相互作用を用いた議論が行われている^[1,2]。また、最近の軌道秩序やフラストレーション系の研究の進歩を受け、カイラルスピン状態を考えることで現れる軌道強磁性による強磁性成分の発現機構^[3]や、次次近接までの交換相互作用を考慮することによる Type I と Type II 反強磁性秩序の共存機構^[4]が議論されている。また、Matsuura 等による中性子の非弾性散乱実験において T_{N2} 以下で、 2meV という低エネルギーの奇妙なスピン波が観測されている。しかしながら、電子スピン共鳴 (ESR) によるこの系の磁性はほとんど研究されていない。我々は以前から、フラストレーション系の示す奇妙な電子スピン共鳴の振る舞いに興味を持ち実験を行ってきた。ここでは、 NiS_2 について高周波の電子スピン共鳴を行った結果について紹介する。

実験は、 90GHz から 230GHz の周波数範囲にわたって行った。中性子の実験と同様 T_{N2} 以下で ESR を観測した。図 1 に 4.2K における典型的な ESR スペクトルを示す。 190GHz 以上で、ESR (三角印) が観測され、周波数の増加にともない共鳴磁場も増加していく。図 2 に共鳴磁場と共鳴周波数のダイアグラムを示す。この ESR 共鳴磁場の周波数依存性は高磁場で常磁性共鳴ラインに漸近していくような単純な反強磁性共鳴モードでは説明できないものであり、定性的には、反対称的磁気相互作用を持つ場合にしばしば観測される特徴を示していると考えられるものであった。

[1] A. Yoshimori and H. Fukuda, JPSJ **46**, 1663 (1979)

[2] K. Yoshida and S. Inagaki, JPSJ **50**, 3268 (1981)

[3] R. Shindou and N. Nagaosa, PRL **87**, 116801 (2001)

[4] M. Matsuura, *et al.*, PRB **68**, 094409 (2003)

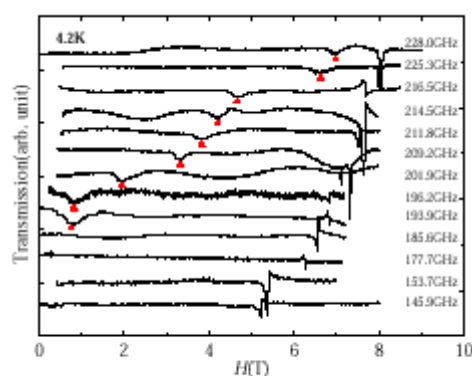


図 1

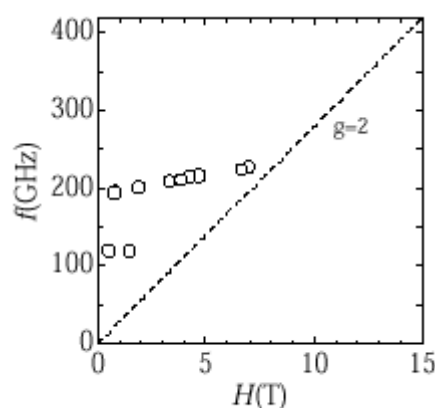


図 2

フラストレーションによって生まれる新しいタイプのスピン液体、電荷液体

東京大学物性研究所 今田 正俊

2次元ハバード模型の数値計算の結果、最近接および次近接トランスファーを含むような正方格子や三角格子上のハバード模型の場合、モット転移の近傍に対称性の破れを伴わないモット絶縁相が見出されている。次近接トランスファーを含むような正方格子などのフラストレーション効果のある格子模型では、量子モンテカルロ法の負符号問題などのために有効な数値計算手法が知られていなかった。最近、経路積分繰り込み群法によって、このような系の数値計算が可能となり、モット転移近傍のモット絶縁相が新奇なスピン液体相（非磁性絶縁相）となっていることが明らかとなった。この相は、金属相と反強磁性絶縁相に挟まれて存在する。経路積分繰り込み群法に対して、全スピンや全角運動量などの保存量子数に対する射影を行ないながら繰り込み操作を行なう方法を開発した結果、精度の高い励起スペクトルの計算も可能となった。これを用いて非磁性絶縁相の励起スペクトルを調べた結果、スピン励起がギャップレスであること、各スピンの励起の分散がほとんどないことが明らかとなった。ギャップレスなスピン励起を持つ量子スピン液体相の存在は、最近 E T 型有機化合物^[1]および基盤上の2次元ヘリウム3の系^[2,3]でも見出されており、我々がハバード模型上で見出した新奇な量子スピン液体相と対応するものと判断される。

[1] 鹿野田一司：本研究会報告参照

[2] 福山寛：本研究会報告参照

[3] 枘富龍一、柄木良友、石本英彦：本研究会報告参照

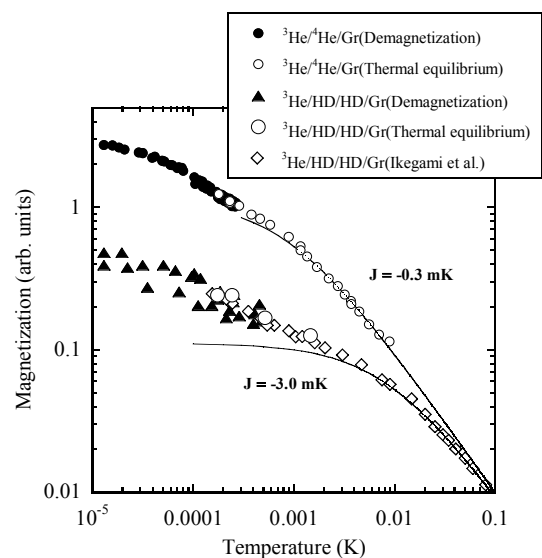
Gapless Spin Liquid in Two Dimensional Antiferromagnetic Solid ^3He

東大物性研 Rutgers 大^A

枘富 龍一^A、柄木 良友、石本 英彦

グラファイト上の2次元固体 ^3He は三角格子量子スピン系であり、 ^3He 間に反強磁性的な相互作用が働いていることから、幾何学的なフラストレーションが生じる。また、 ^3He 間に剛体球的な相互作用が働くため、 ^3He 特有の多体交換相互作用が重要になっている。偶数体の交換は反強磁性的、奇数体の交換は強磁性的な相互作用が働くため多体交換相互作用が競合した系である。このような系において24原子による厳密対角化を用いた理論計算の結果、基底状態はスピナー重項のスピン液体状態であり、スピニングャップが期待されている。しかしながら、 $100\mu\text{K}$ 程度までの比熱測定からはスピニングャップを示唆する振舞いは見られず、基底状態に対する明確な知見は得られていない。本研究ではこの系での基底状態を探索するため、試料自身である2次元固体 ^3He の直接核断熱消磁を行い、 $10\mu\text{K}$ という温度領域までのそれを冷却し、核磁気共鳴による磁化測定を行った。

右図に1層目に非磁性の固体 ^4He を用いた4/7整合固体 ^3He の磁化の温度依存性を示す。黒丸が初期磁場0.55 Tesla、初期温度 $190\mu\text{K}$ から最終磁場5 mTまで直接核断熱消磁を行った結果である。磁化は $10\mu\text{K}$ まで緩やかに増加し、スピニングャップの存在を示唆するような振舞いは観測されなかった。更に下地層に2原子層の水素-重水素分子(HD)を用い交



換相互作用を10倍程度増強した系でも同様の測定を行った。相互作用の大きさに対して1/300程度まで冷却されているが、相転移及びスピンギャップの存在を示唆するような異常な振舞いは見られなかった。以上の結果からこの系での基底状態はスピンギャップのない“Gapless Spin Liquid”という新たな状態が実現されていると考えられる。

3角格子を有する有機伝導体におけるスピン液体と電荷グラス

東京大学大学院工学系研究科 鹿野田 一司

多くの有機伝導体は層状構造をもつ。BEDT-TTF分子は、種々のアニオンXと多くの擬2次元伝導体(BEDT-TTF)₂Xをつくり、有機伝導体の中でも最も広く研究されてきている。とくに、伝導層内でBEDT-TTF分子の配列が異方的な三角格子としてモデル化される2つの物質系κ-(BEDT-TTF)₂Xとθ-(BEDT-TTF)₂Xは、それぞれバンド充填が1/2と1/4となっていることから、そこに現れる絶縁体はモット絶縁体と電荷秩序絶縁体としてそれぞれ調べられてきた。最近、我々は、これらの絶縁体のスピン状態と電荷状態に対して三角格子に由来するフラストレーションが決定的な効果を与える実験結果を得たので、ここに報告する。

まず、前者に関連して、典型的なモット絶縁体であるκ-(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Clのスピンは27Kで反強磁性秩序を起こすことが既に明らかにされている。この物質は、三角格子の異方性を特徴づける2種類の移動積分の比t'/tが0.75と評価されている。これに対し、もう一つのモット絶縁体κ-(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ではt'/tがほぼ1となっている。当然、スピンに対するフラストレーションの効果が期待されるが、事実、2Kまでの磁化率測定で磁気転移は観測されず常磁性のままである。3角格子ハイゼンベルグモデルの磁化率の近似式にフィットすることによりJが250Kと見積もられた。我々は、この物質をさらに低温の30mKまで冷やして¹H-NMR実験を行った結果、この温度まで明確な磁気転移は観測されなかった。よって、この物質でスピン液体と呼ぶにふさわしい状態が実現されていると考えられる。

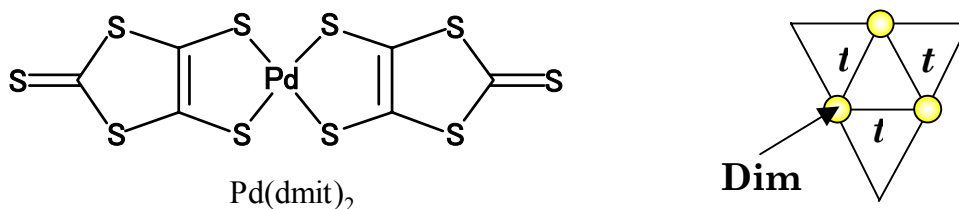
バンド1/4充填のθ-(BEDT-TTF)₂RbZn(SCN)₄は200Kで伝導面内2倍周期の構造変調を伴う電荷秩序転移を起し絶縁体化する。興味深いのは、200K付近を急冷するとこの構造転移が消失するが電荷の局在が低温で起こることである。最近行った¹³C-NMRのスペクトル、T₁、T₂の測定は、低温で電荷グラスと呼ぶべき電荷の不均一な凍結が起こっていることを示唆している。これは、三角格子の対称性が残ったが故に電荷配置に生ずるフラストレーションの効果として理解できる。

本研究は、宮川和也(東大工)、清水康弘(東大工/京大理)、大能和人(東大工)、河本充司(北大理)、谷口弘三(埼玉大理)、前里光彦(京大理)、斎藤軍治(京大理)諸氏との共同研究である。

3角格子を持つ強相関2次元系分子性導体Pd(dmit)₂塩の物性

理化学研究所 加藤 礼三

金属錯体Pd(dmit)₂は、+1価の四面体型閉殻カチオン(Me₄Z⁺, Et₂Me₂Z⁺; Z=P, As, Sb)を対イオンとして同形構造(β'-型)を持つ一連のアニオンラジカル塩を形成する。単位格子は、結晶学的に等価な2つの伝導層を含み、各伝導層内では2量体[Pd(dmit)₂]₂が異方的3角格子を形成している。これらの塩は、常圧ではモット絶縁体で、その静磁化率は、高温領域で2次元3角格子系スピン1/2 Heisenberg反強磁性体に特徴的な温度依存性を示し、多くは低温で反強磁性秩序状態をとる。



この系の特徴は、静水圧および1軸性ひずみによって、on-site Coulomb 相互作用（2量体上の実効的なクーロン相互作用 U_{eff} ）、バンド幅（ W ）、フラストレーションの度合い（ t'/t ）を変化させ、超伝導を含む多様な電子状態を発現させることができる点にある。これらの圧力効果は、カチオンに強く依存する。カチオンは、結晶内における $\text{Pd}(\text{dmit})_2$ 分子の配列に影響を与え、カチオンの違いは U_{eff}/W と t'/t に反映されている。この系の電子状態は、 U_{eff}/W と t'/t をパラメータとした相図で表現でき、フラストレーションによる絶縁相の高いエントロピーが低温で金属相を相対的に安定化すると考えれば、圧力効果とカチオン依存性を説明することができる。また、静水圧および a , b , c^* 軸方向の1軸性ひずみでは金属化しない Me_4P 塩では、単位格子内の2つの伝導層が結晶学的に非等価に変形すると予想される方向（ $a+b$ ）に1軸性ひずみをかけると、系が金属化することを見出した。これは、各々の伝導層に由来する伝導バンドが非等価となり、分散およびフィリングが異なってくるため、一種の self doping を起こしたためと考えられる。本研究は、田嶋陽子、中尾朗子、大平聖子、田嶋尚也、田村雅史（理研）、山浦淳一（物性研）の各氏との共同研究である。

擬三角格子をもつ有機導体の超伝導

東大生研， 物材機構 近藤 恒
東理大理工 守谷 亨

2次元有機超伝導 κ -(BEDT-TTF) $_2$ CuN(CN) $_2$ Cl は常圧の絶縁体が圧力下で超伝導に転移する。この絶縁体相は反強磁性状態であり、超伝導は異方的である。2次元有機超伝導は飛び移り積分 $-t$, $-t'$ と on-site の Coulomb 相互作用 U で記述される三角格子的なハバードモデルによってあらわされ（図1）、この物質は $t'/t \sim 0.7$ で与えられる。一方、 $t'/t \sim 1.1$ である κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ は同様に常圧の絶縁体が圧力下で超伝導に転移するが、この絶縁体は磁気秩序はもたない。どちらの場合もバンドは half-filled でありモット転移の金属側は中間結合領域であるので、この超伝導状態は弱相関側（金属相側）からのアプローチによって記述されるものと考えられる。

そこで、この三角格子的なハバードモデル ($0.8 < t'/t < 1.2$) に fluctuation exchange (FLEX) 近似を適用して常磁性状態の動的帯磁率および自己エネルギーを自己無撞着に決定し、幾何学的フラストレーションの強さが超伝導や反強磁性にどのような影響を及ぼすかを調べた。

$t'/t = 1.0$ の場合は反強磁性は抑えられ、同時に超伝導も抑制される。これは幾何学的フラストレーションの効果であると考えられる。 $t'/t = 1.0$ から離れると抑制されていた超伝導が出現し、 $|t'/t - 1|$ を大きくすると T_c は増大する（図2）。このときの超伝導の対称性は $t'/t < 1$ のときは $d_{x^2-y^2}$ 型であり、 $t'/t > 1$ のときは d_{xy} 型である。一方、反強磁性状態は超伝導状態に比べフラストレーションによる抑制効果が強いので、 $|t'/t - 1| \sim 0.2$ より大きい領域で出現しうる。 $t'/t = 1.1$ のとき、2次元有機超伝導体に対応する相互作用の大きさ ($U/t \sim 8$) 近傍では反強磁性状態は出現しない。以上のことはフラストレーションの効果により反強磁性が抑制された常磁性モット絶縁体に圧力をかけることによって超伝導が出現し得ることを示している。

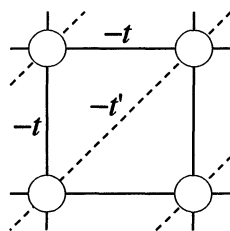


図1：単位胞と飛び移り積分。

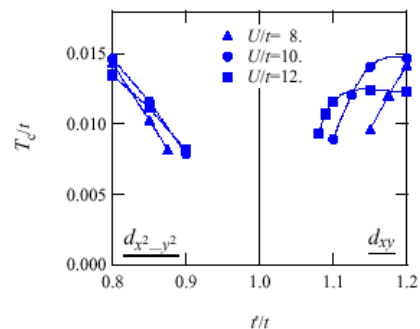


図2：移転温度 T_c の (t'/t) -依存性

2次元直交ダイマースピン系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ の磁化プラトーと磁気励起

東大物性研 樹神 克明、瀧川 仁

2次元スピン系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は Cu スピンがダイマーを形成し、互いに直交して2次的に配列しており、Shastry-Sutherland 格子と等価な系である。この系の磁化曲線には、その飽和磁化の 1/8、1/4、1/3 の磁化において磁化プラトーがみられる。この磁化プラトー相では励起されたトリプレットが互いの斥力によって局在し、超格子を形成していると考えられている。実際、1/8 プラトー相で得られた Cu-NMR スペクトルは広い周波数領域にわたって多数のピークをもち、並進対称性が破れ磁気超格子が形成されていることを示している。また Cu サイトに誘起されている磁化の分布を有限サイトの厳密対角化の結果と比較することにより、1/8 プラトー相の磁気超格子は菱面系の単位格子をもち、その内部で磁化が振動していることもわかっている (図 1 黒丸)。さらに我々は強磁場中で ^{11}B -NMR 測定を行い、1/8 プラトー相および隣接する低磁場相の静的、動的性質を調べたので報告する。

1/8 プラトー相において ^{11}B スペクトルを測定したところ、Cu の場合と同様に多数のピークが観測された。得られたスペクトルから ^{11}B 核の感じる内部磁場の分布を見積もり、Cu-NMR をもとに決定した磁気構造から得られるそれと比較した。 ^{11}B 核の感じる内部磁場には双極子磁場が含まれているので、内部磁場の分布は2次元面内で決定された磁気構造の積層パターンに強く依存する。可能な積層パターンについて内部磁場を計算したところ、図 1 の場合に実験で得られた内部磁場の分布をもっともよく再現できることがわかった (灰色のダイマーは隣接する面でのトリプレットの位置を示している)。

高温、低磁場の磁化が空間的に一様な相 (ユニホーム相) から 1/8 プラトー相への相転移の様相を調べる目的で、 ^{11}B スペクトルおよび ^{11}B 核のスピン-格子緩和率 $1/T_1$ 、スピンスピン緩和率 $1/T_2$ の磁場、温度依存性を測定した。 ^{11}B スペクトルの形状から、臨界磁場、臨界温度付近でユニホーム相と 1/8 プラトー相が共存すること、さらに 1/8 プラトー相の秩序パラメータは磁場、温度にあまり依存しないことがわかった。また $1/T_1$ 、 $1/T_2$ はともに臨界磁場、温度で通常 2 次相転移でみられるような発散的ふるまいを示さない。これらの結果はユニホーム相から 1/8 プラトー相への相転移が 1 次であることを示している。

図 2 にユニホーム相で得られた $1/T_1$ の温度依存性を示す。測定した磁場領域ではすでに磁化曲線に有限の磁化が観測されている。それにもかかわらず $1/T_1$ は熱活性型の温度依存性を示し、この磁場領域でエネルギーギャップが消失していないことを示している。この結果はすでに得られている ESR や比熱の測定結果とも一致する。この異常なふるまいは、ダイマー内の Cu-O-Cu ボンドのバックリング歪みに起因する Cu スピンの g テンソルの交替と、ダイマー内およびダイマー間の Dzyaloshitski-Moriya (DM) 相互作用を考慮することによって理解できる。また g テンソルの交替とダイマー内 DM 相互作用に起因して、ユニホーム相において大きな交替磁化が発生することもわかった。

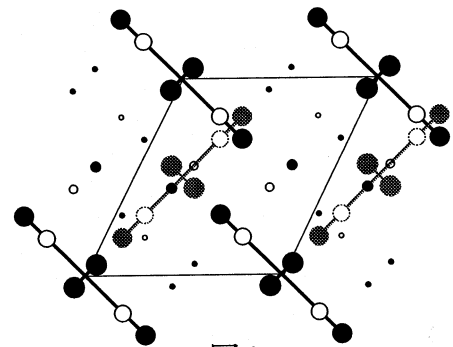


図 1

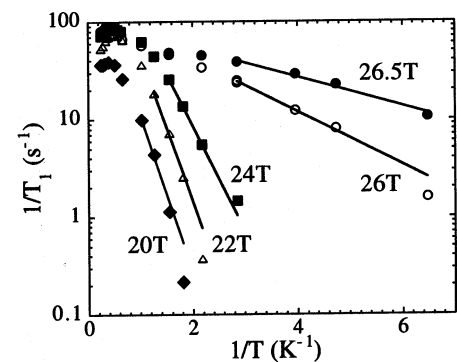


図 2

2次元直交ダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ における磁場誘起現象: Dzyaloshinsky-Moriya 相互作用の影響

青山学院大学理工学部物理学科 宮原 慎
EPFL, Switzerland Frédéric Mila

2次元スピングャップ系物質 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は量子揺らぎの効果により特異な性質 (例えばダイマー一重項の厳密な基底状態、極在性の強い三重項励起、磁化プラトー) を示し、その磁氣的性質のほとんどは2次元直交ダイマーハイゼンベルク模型 (Shastry-Sutherland 模型) で良く再現することができる。

ところが、最近の実験によりハイゼンベルク模型だけでは説明ができないようないくつかの磁場誘起現象が観測されている: (1)ESRやNMRで観測された臨界磁場でのエネルギーギャップの残存、(2)NMRで観測された磁場誘起の交替磁化、(3)磁化曲線で観測された臨界磁場より低磁場中で出現する有限な磁化。

我々は直交ダイマーハイゼンベルク模型に Dzyaloshinsky-Moriya 相互作用 D を加えた模型を取り扱い、摂動計算や厳密対角化を用いて磁場中での性質を調べた。その結果、ハイゼンベルク模型の相互作用 J の数パーセントの大きさの D を加えることで上記の磁場誘起現象がよく説明できることを示した。

三角格子およびカゴメ格子での電子相関効果

大阪大学 川上 則雄、物性研 今井 剛樹、京都大学 常次 宏一

近年、幾何学的なフラストレーションをもつ量子スピン系や強相関電子系に注目が集まっている。その典型例として四面体が頂点を共有して3次元的に広がったパイロクロア格子系や、その2次元版であるカゴメ格子系などがある。これまでスピン系に関しては多くの研究がなされてきたが、金属相における種々の物理量にフラストレーションの効果がどのように現れるかという問題が注目を集めるようになってきた。たとえば、三角格子構造をもつ有機物質での金属絶縁体転移や最近発見されたNaを含むコバルト酸化物での超伝導などがその典型例である。また、後者のコバルト酸化物はd軌道の対称性を考慮すると有効的にカゴメ格子ともみなせることも指摘されている。このような「強相関電子系の金属相におけるフラストレーション効果」は物性物理に非自明で面白い問題を提起している。ここでは FLEX 近似を用いてカゴメ格子と三角格子の金属相での電子相関効果を調べた結果を報告する。

[1] カゴメ格子

まず2次元フラストレート系の典型例としてカゴメ格子模型を考える。ここではハバード模型をとりあげ、クーロン相互作用に関する弱結合からのアプローチを採用した。揺らぎ交換近似 (FLEX) を用いて、各種の帯磁率の運動量依存性をしらべた。その結果、電子相関が強くなるにつれて、帯磁率は運動量依存性が抑えられつつ運動量空間で一様に増幅されることがわかった。実際に FLEX を用いて磁気・電荷不安定性を調べたところ、カゴメ格子ではこれらの不安定性が著しく抑えられることがわかった。この結果は強相関の極限で得られるハイゼンベルク模型におけるスピン秩序の消失もと符合した結果となっている。さらに、準粒子形成に電子相関がどのように影響するかを調べるため一粒子スペクトルを計算した。その結果、カゴメ格子のジオメトリーの効果によって準粒子重みが増大し、フェルミ液体的性質が現れやすくなる。また準粒子重みの運動量依存性もカゴメ格子ではほとんどなくなり、これは帯磁率の結果とも整合している。

[2] 三角格子

同様の考察を三角格子の電子相関効果について、動的クラスタ近似と FLEX を組み合わせて行った。カゴメ格子と本質的に同様の結果が得られた。すなわち、三角格子でも幾何学的フラストレーションの影響でスピン相関が運動量空間で一様になり、実空間で局在化したスピン揺らぎが誘起されることがわかった。

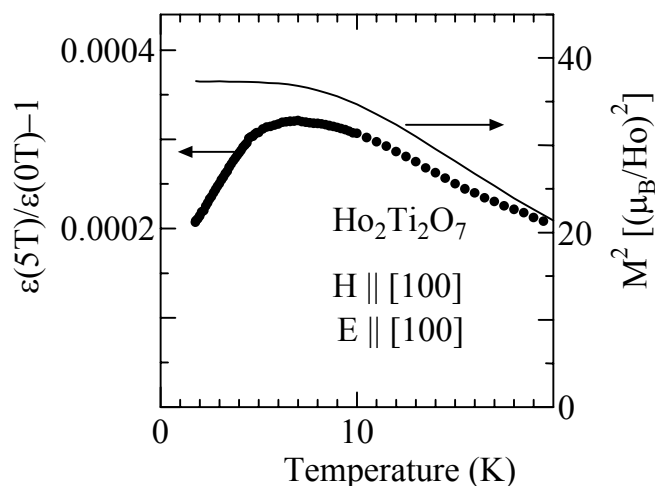
フラストレーション系の magnetocapacitance

早稲田大学理工学部物理学科、科学技術振興機構さきがけ 勝藤 拓郎

磁性を持つ誘電体の誘電率には、隣合うスピンの対相関 $\langle S_i \cdot S_j \rangle$ に比例した項がある。例えば、 EuTiO_3 では、この項に由来する誘電率の大きな磁場依存性 (magnetocapacitance) があることが知られている^[1]。 EuTiO_3 のような立方格子では、転移温度以上ではゼロ磁場下での $\langle S_i \cdot S_j \rangle$ はゼロであると考えることができ、そこでの magnetocapacitance は磁化の2乗に比例する。しかし、幾何学的フラストレーションが強いスピン系では、転移温度より上でもスピンの揺らいでいて $\langle S_i \cdot S_j \rangle$ が有限の値を持ち、magnetocapacitance が磁化の2乗からずれてくるのが期待される。

一例として、パイロクロア型 $\text{R}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ (R=希土類) を取り上げる^[2]。この物質では、R 間の磁性相互作用が R の種類によって異なり、様々な形のスピンフラストレーションが起こる。R=Ho の場合 (強磁性相互作用)、右図に示すように magnetocapacitance は低温で M^2 から小さいほうへずれている。これは Ho のモーメントが局所的には強磁性的に配列して“2in-2out”のスピンの配列が実現していることを意味する。一方、R=Gd の場合には逆に低温では magnetocapacitance のほうが大きくなっており、Gd スピンは反強磁性的に揺らいでいることがわかった。

Magnetocapacitance と M^2 が一致しない別の例として、スピネル型 ZnFe_2O_4 が挙げられる。この系では低温で magnetocapacitance が増大しており、これは中性子散乱での散漫散乱の増大と関係していると考えられる。



[1] T. Katsufuji et al., Phys. Rev. B 64, 054415 (2001).

[2] T. Katsufuji et al., Phys. Rev. B, in press.

歪んだ三角格子磁性体 KNiCl_3 系物質における磁性と誘電性および複合性

東工大院理工 西脇 洋一、飯尾 勝矩

ABX_3 の化学式を持つ物質のうち、六方晶 CsNiCl_3 型三角格子反強磁性体は c 軸方向に面を共有しながら連なる BX_6 八面体の鎖状構造をもち、鎖内での磁気相互作用が強いため擬一次元磁性体として扱える。磁性 B^{2+} イオンは c 面内で三角格子配列をとるため、スピン間にフラストレーションが生じる。 KNiCl_3 系物質は CsNiCl_3 型構造をプロトタイプとし、磁気相転移に加え構造相転移を起こす。この格子歪みは c 軸方向の BX_3 鎖のシフトに特徴づけられ、スピンフラストレーションを一部解消し、また反転対称性が破れて強誘電性を発現させることがある。このため KNiCl_3 系物質群は磁気秩序相と強誘電相の両方を持ち得る。これまでに我々のグループはいくつかの KNiCl_3 系物質の磁性、誘電性を実験的に明らかにしてきた。

特に KNiCl_3 系物質に属するイジングスピン物質に注目すると、 TlCoCl_3 および RbCoBr_3 の磁気的性質は、構造相転移を起こさない CsCoBr_3 や CsCoCl_3 とは異なる。それは格子歪みにより磁気相互作用に変調がかかりフラストレーションが部分的に解消されているためと考えられるが、歪んだ積層三角格子上の磁性研究は、XY スピン系が理論実験両面から進められていたのに対して、イジングスピン系においては未解明な部分が残っている。

RbCoBr_3 は強誘電相転移点と反強磁性相転移点が極めて近い温度で起こっており、磁性と誘電性の絡み合ったメカニ

ズムが存在している可能性がある。ネール温度以下の誘電率の温度依存性には、奇妙な2つのピークが現れ、強誘電相転移点では発散を示さず、転移点よりやや下にブロードなピークが見られる。(図1)このような振る舞いから間接型強誘電相転移が起こっていると考えられ、磁気秩序化がこの誘電率特性に与える影響を考慮する必要がある。また、磁化率の温度依存性から、ネール点以下でイジング軸に垂直な方向に自発磁化が発生し、さらに温度の降下に伴い再配列を起こしていることが分かる。(図2)

今後、 RbCoBr_3 のこれらの現象について、磁性と誘電性の両面に注意を払いながらそのメカニズムを解明しつつ、歪んだ積層三角格子上的イジングスピンの秩序化、及び磁性と誘電性の複合物性について研究を進めていきたい。

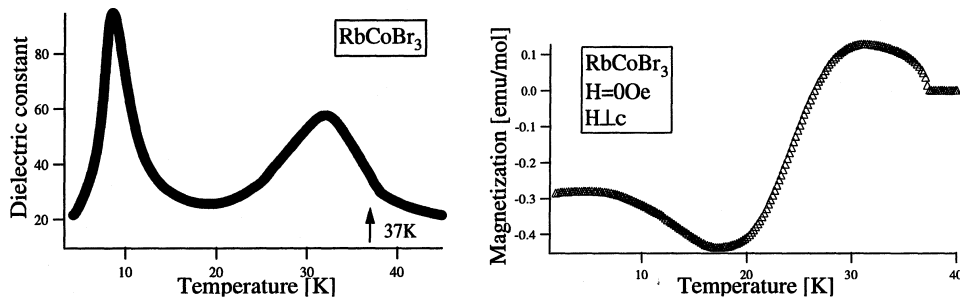


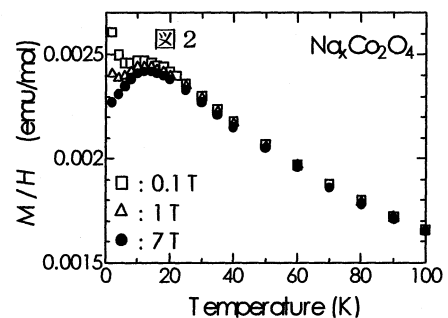
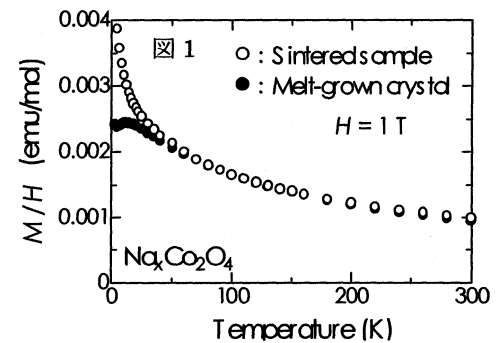
図 1: RbCoBr_3 の c 軸方向の誘電率の温度依存性 図 2: RbCoBr_3 の磁化の温度依存性

層状酸化物 $\text{Na}_x\text{Co}_2\text{O}_4$ における重い電子系的振舞

島根大総合理工 三好 清貴

$\text{Na}_x\text{Co}_2\text{O}_4$ は層状構造を持つ金属伝導体であり、大きな熱起電力を示すことから元々は熱電変換材料として注目されている物質である^[1]。一方、この系を磁性体として見ると、Co 原子が 2 次元三角格子を形成すること、帯磁率が Curie-Weiss の振舞と負の Weiss 温度 ($\Theta = -150\text{K}$) を示すことから^[2]、スピンフラストレーションの効果が期待される。さて、今回の研究会の趣旨にもあるように、最近ではフラストレーションと伝導電子が絡んだ新しい物性に高い関心が集まっているが、特に LiV_2O_4 スピネルにおける重い電子系の挙動 ($\gamma = 420\text{mJ/molK}^2$)^[3] は、その中の代表的な興味の対象の一つであろう。 $\text{Na}_x\text{Co}_2\text{O}_4$ はフラストレーションが可能な結晶構造をもつこと、有限温度で磁気秩序が現れないこと、そして金属的な伝導を示すことなど LiV_2O_4 と共通した性質を併せ持ち、さらに電子比熱係数は $\gamma = 80\text{mJ/molK}^2$ であると報告されている^[4]。以上のことから、 $\text{Na}_x\text{Co}_2\text{O}_4$ においても LiV_2O_4 と同様の重い電子系の挙動が現れることを期待し、その検証を試みた。

我々はまずフローティングゾーン法を用いて、 $\text{Na}_x\text{Co}_2\text{O}_4$ ($x=1.5$) の溶融・育成を行った。図 1 に今回作製した溶融結晶と従来の焼結試料 ($x \sim 1.0$) の帯磁率の温度変化の測定結果を示す。残念ながら単結晶試料は得られなかったが、図 1 に見るように溶融結晶の帯磁率には 15K 付近で幅広なピークが見られる。一方、焼結体試料では、従来報告されている通り、常磁性不純物のために低温で増大し続けている。図 2 では、 $H=7\text{T}$ まで磁場を印加しているが、ピークの大きさや位置はほとんど変化していない。また、 $H=7\text{T}$ では試料に若干含まれる不純物のモーメントが飽和するため、低温の upturn は見られな



い。以上のような帯磁率の振舞は LiV_2O_4 で観測されたものと非常に良く似ている。また電気抵抗は金属的で、低温では $\rho = \rho_0 + AT^2$ の式に従い、他の重い電子系と同様にフェルミ液体の挙動を示すことがわかった。また電子比熱係数 γ は約 60 mJ/molK^2 であることがわかった。ウィルソン比は $R_w = 2.7$ (強相関係では通常 $R_w = 2$ 前後)、また $A/\gamma^2 \sim 10^{-4} [\mu \Omega \text{ cm/K}^2 / (\text{mJ/molK}^2)^2]$ であり、門脇-Woods の関係よりも一桁大きくなった。 A/γ^2 については単結晶試料を使えばもう少し下がるのではと考えている。以上のように $\text{Na}_x\text{Co}_2\text{O}_4$ では、 LiV_2O_4 と同様に、帯磁率の幅広のピークを伴いながら有効質量の増大したフェルミ液体の形成が起こり、有効質量の増大にはフラストレーションの関与が期待される。

[References]

- [1] I. Terasaki *et al.*, PRB **56**, R12685 (1997).
- [2] R. Ray *et al.*, PRB **59**, 9454 (1999).
- [3] S. Kondo *et al.*, PRL **78**, 3729 (1997).
- [4] Y. Ando *et al.*, PRB **60**, 10580 (1999).

三角格子上的斥力 Hubbard 模型における triplet 超伝導の可能性

東京大学大学院理学系研究科、電通大量子物質工学科¹

有田亮太郎、黒木 和彦¹、青木 秀夫

強磁性揺らぎを媒介とする、あるいは強磁性と共存するなど強磁性と結合した超伝導(超流動)は、 ^3He 以来、いくつかの物質で観測されている。最近発見されたコバルト酸化物における超伝導も、強い強磁性揺らぎが観測され、triplet 超伝導の可能性も議論され、強磁性と関連が深いことが示唆されている。一方、一般に理論的に、微視的模型から出発して triplet 超伝導を発現させることは、ペアリング相互作用が singlet に比べ小さい等のために難しいこと

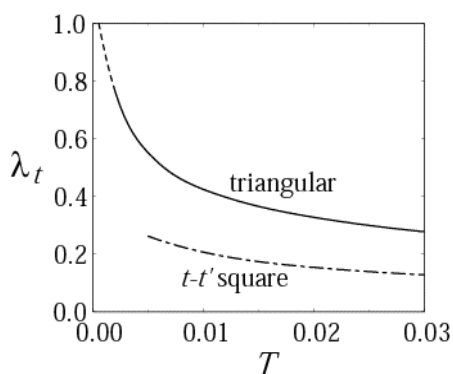


図 1. FLEX 近似による、Eliashberg 方程式の最大固有値の温度依存性。強磁性揺らぎが共に強い t - t' 正方格子と三角格子では、フェルミ面が非連結になる後の方が格段に超伝導不安定性が高い。

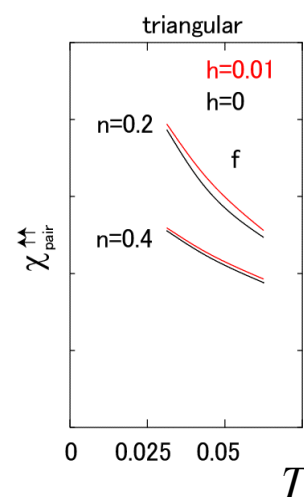


図 2. 動的クラスター近似による、磁場中三角格子上的低密度電子のペア感受率の温度依存性。外部磁場 h が感受率を増大させる。

が指摘されていた。^{1,2} 本講演では先ず、三角格子上的 Hubbard 模型では、低電子密度のときに Fermi 面が非連結な二つのポケットから構成され、node が Fermi 面と交差するのを避けた超伝導 gap 関数 (f-wave) が生じ、有限の転移温度を持つ可能性があることを FLEX 近似で示した。³ これは動的クラスター近似+量子モンテカルロ法でも再現されるとともに、この系に磁場をかけると、ゼーマン・エネルギーのためにスピン揺らぎが異方的になり、上で得られた f-wave がさらに有利になる ($\uparrow\uparrow$ channel での nonunitary pairing) 可能性を指摘した。⁴

¹ R. Arita, K. Kuroki, and H. Aoki, Phys. Rev. B **60**, 14585 (1999); J. Phys. Soc. Jpn. **69**, 1181 (2000).

² P. Monthoux and G. G. Lonzarich, Phys. Rev. B **59**, 14598 (1999).

³ K. Kuroki and R. Arita, Phys. Rev. B **63**, 174507 (2001).

⁴ R. Arita, K. Kuroki, and H. Aoki, cond-mat/0206358.

Na_xCoO₂におけるトリプレット f 波超伝導の可能性

—ポケット状フェルミ面と van Hove 特異点の効果—

電通大量子物質工学科 名古屋大工学系研究科、東京大学大学院理学系研究科

黒木 和彦、田仲由喜夫、有田亮太郎

今年発表された超伝導体 Na_xCoO₂·yH₂O¹は三角格子上の d 電子系であることから注目を集めている。いくつかの実験により unconventional pairing の可能性が指摘され、特にスピン・トリプレット超伝導の可能性がある点もまた関心を集めている²。我々は以前より、三角格子上で hole の数が少ないとき、K 点、K'点を中心としたポケット状のフェルミ面が存在することに起因して、スピン・トリプレット f 波超伝導が起こる可能性があることを指摘してきた³。この場合 f 波ギャップのノードはフェルミ面の間を通過するので、フェルミ面上は full gap が開き、超伝導に有利となる。この観点から Na_xCoO₂のバンド計算⁴をみると、K 点付近にポケット状のフェルミ面(図 1)が存在し、かつ K 点付近のバンド構造を反映して、フェルミ準位付近の状態密度が高くなっていることがわかる。そこで、我々はこの K 点付近のバンド構造の特徴を取りこんだ有効的な単一バンド・ハバード模型を考え、FLEX 近似を用いて超伝導の可能性を調べた。その結果、高い状態密度を反映して強磁性的なスピンゆらぎが強くなり、そのこととポケット状のフェルミ面があることが要因となってトリプレット f 波超伝導が起こることがわかった(図 2)⁵。

¹ K. Takada et al, Nature **422**, 53 (2003).

² T. Waki et al, cond-mat/0306036

³ D.J.Singh, Phys. Rev. B **61**, 13397 (2000)

⁴ K. Kuroki and R. Arita, Phys. Rev. B, **63**, 174507 (2001). ⁵ K. Kuroki, Y.Tanaka, and R.Arita, cond-mat/0311619

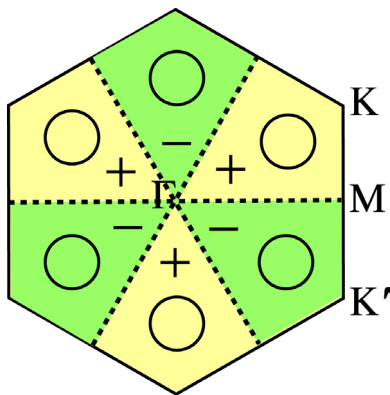


図 1 ポケット状フェルミ面の概念図と f 波ギャップ。

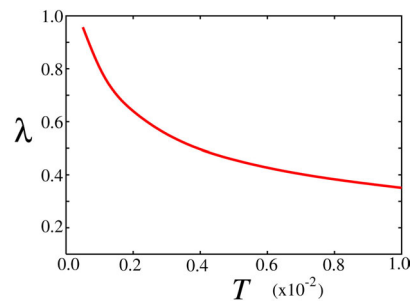


図 2 FLEX 近似で計算した Eliashberg 方程式の f 波ギャップ固有値の温度依存性。 $\lambda=1$ の温度が T_c になる。

幾何学的フラストレーションの存在する金属電子系における多量体秩序形成の可能性

青学大理工物理 下村 能弘、宮原 慎、古川 信夫

フラストレートした金属電子系においては、電子の運動すなわち運動エネルギーの利得の効果により、フラストレーションのために生じたマクロな縮退が解け、多量体秩序を形成する可能性がある。本研究ではフラストレーションを持つ金属電子系を調べるために、カゴメ格子上の局在スピんにスピンアイスのような一軸異方性を仮定した二重交換スピンアイス

ス模型をモンテカルロシミュレーションにより解析した。ここではさしあたり、局在スピンを古典スピンとして、強磁性フント結合が非常に大きい強結合極限の場合を考察した。

まず低温におけるスピン構造因子から次の結果が得られた。(1) カゴメ格子の並進対称性が破れ、より大きな周期構造が出現している。(2) 各三角形は、'two-in one-out'、もしくは、'one-in two-out' になっている。また、この系では最近接局在スピン間の相対角により電子の飛び移りやすさが異なる。このことから個別の局在スピンのかわりに電子の飛び移りやすいボンドに注目し系を見直すと、図1に示した様に、局在スピンの12量体（ドデカマー）でカゴメ格子が埋め尽くされていることがわかった。そこで、このドデカマー状態が長距離秩序になっていることを見るために、ドデカマー構造因子、ドデカマー構造因子におけるピークのサイズ依存性、温度依存性、ドーピング依存性を調べた。これらの結果は次のようになる。(1) カゴメ格子の周期性に対して、2倍の周期性がある（並進対称性の破れ）。(2) ピークの大きさは系のサイズに比例して大きくなる。(3) 粒子数が $n \approx 1/3 \sim 1/2$ のドーピング領域においてピークが観測される。これらの結果から粒子数が $n \approx 1/3 \sim 1/2$ のドーピング領域においてドデカマー秩序が形成されることが示された。

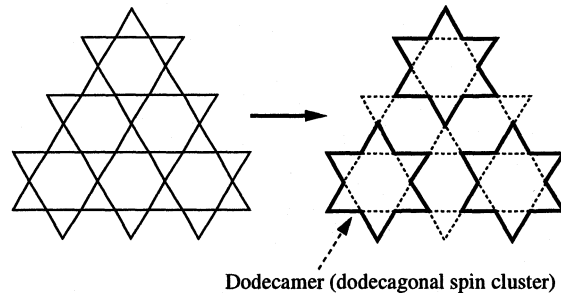


図1: カゴメ格子における局在スピンのドデカマー形成

ドデカマー形成の起源として次の二つが考えられる。(1) 並進対称性の破れがフェルミ面にギャップを開けエネルギーを下げる。(2) フラストレーションによる縮退を解く上で、運動エネルギーの利得が大きいスピン配位が選ばれる。そこで、状態密度を計算したところ化学ポテンシャルがバンド内にあることがわかり、ドデカマー状態は金属的であると言える。このことからドデカマー形成には運動エネルギーの利得が重要な役割を果たすことがわかる。またこれは上の(3)からわかるように、ドデカマー形成はフェルミ面の形状に敏感でないという結果とコンシステントである。このようにフェルミ面にギャップを開けないのは強磁性相互作用+金属という二重交換のメカニズムが効いているためと考えられる。この系からの類推により、フラストレーションと運動エネルギーの利得の効果により多量体秩序を形成するというシナリオは、フラストレートした古典的な自由度（断熱的な場）と相互作用している金属電子系において一般的に成り立つかも知れない。

2次元 J_1 - J_2 ハイゼンベルグ模型におけるプラケット状態

豊田工大 高野 健一、名大理(元) 紀藤 吉哉
新潟大理 大野 義章、三重大工 佐野 和博

2次元 J_1 - J_2 模型は、最近接 J_1 と次近接 J_2 の交換相互作用がある正方格子上の量子スピン系を記述する基本的な模型として以前から研究されてきた。特に、この系はフラストレーションの効果でスピン・ギャップを持った無秩序状態になる可能性があるため、興味を引きつけている。無秩序状態の存在については多くの議論があるが、比較的新しい数値計算によっても支持されている^[1]。無秩序状態の有効な候補としては、プラケット状態^[2]、ダイマー状態^[3]、一様なRVB状態^[4]などが主張されてきた。どれが正しいか、数値計算や各種の展開などによって検討されてきたが、システムサイズの制限や特定の状態に有利な近似を用いているなどの問題があり、決着には至らなかった。

ここでは、特定の状態に依存しない新しい非線形シグマ模型の方法によってこの問題の解明を試みた。まず、元の J_1 - J_2 模型にプラケット型のひずみを導入して拡張した。これによってフラストレーションのある一様な模型とフラストレーションがなくプラケットひずみのある模型が連続的に議論できる。つぎに、この拡張された J_1 - J_2 模型に対して、古典的にはネール状態であるような領域に適用でき、すべての低エネルギー励起を表現する場の理論を導出した、これは3つの

massive なベクトル場と非線形シグマ模型で記述されるベクトル場からなっている。導出は 1 次元系に対する非線形シグマ模型の方法の類推からなされた⁶。これに対してくりこみ群の結果を適用して⁶、フラストレーションとひずみのパラメータ空間で相図を得た。これによると無秩序相はプラケットひずみのない場合からひずみの強い極限まで連続しており、途中に相転移は存在しない。一方、押川の整合条件⁷より、ひずみのないもとの J_1 - J_2 模型は並進対称性が破れ、縮退した基底状態を持たなければならない。これより、もとの J_1 - J_2 模型の基底状態はプラケット状態であるという結論を得た⁸。

[1] S. Sorella, PRL **80** (1998) 4558.

[2] M. E. Zhitomirsky & K. Ueda, PRB **54** (1996) 9007; L. Capriotti & S. Sorella, PRL **84** (2000) 3173.

[3] R. R. P. Singh et al., PRB **60** (1999) 7278; V. N. Kotov et al., PRB **60** (1999) 14613.

[4] L. Capriotti, et al., PRL **87** (2001) 097201.

[5] K. Takano, PRL **82** (1999) 5124; PRB **61** (2000) 8863.

[6] S. Chakravarty et al., PRL **60** (1988) 1057; PRB **39** (1989) 2344.

[7] M. Oshikawa, PRL **84** (2000) 1535.

[8] K. Takano, Y. Kito, Y. Ono & K. Sano, PRL **91** (2003) 197202.

Phase transition of three-dimensional frustrated systems

東大工 轟木 義一、宮下 精二

我々は 3 次元フラストレート系のモデルとして、積層三角格子反強磁性イジングモデルと HCP 格子上の XY モデルについて研究を行った。

積層三角格子反強磁性イジングモデルは CsCoCl_3 や CsCoBr_3 のモデルとして知られている。これらの物質はフラストレーションのために磁氣的に逐次転移をすることが中性子散乱の実験により解っている。この性質は最初に目片によって次近接相互作用のある三角格子イジングモデルの平均場近似を用いて説明された。目片の結果では、この物質は T_{N1} 、 T_{N2} と T_{N3} ($T_{N1} < T_{N2} < T_{N3}$) において 3 回の 2 次転移をし、 $T < T_{N1}$ では 2 つの副格子磁化が同じ大きさの 2 副格子フェリ磁性相、 $T_{N1} < T < T_{N2}$ では 3 つの副格子磁化がすべて異なる大きさの 3 副格子フェリ磁性相、 $T_{N2} < T < T_{N3}$ では 3 つの副格子のうち一つが秩序化しない部分無秩序相が現れると予想されていた。しかしながら、低温側の転移点 T_{N1} および T_{N2} では比熱など物理量の異常が実験で観測されていない。また、この系に対して小関らの数値的な研究があり、中性子散乱の実験や比熱の温度依存性をよく再現していたが、中間相の性質や低温側の転移の性質などは明らかになっていなかった。このように、低温側の転移の性質は十分には解っていなかった。そこで我々は、積層三角格子反強磁性イジングモデルについて詳しい解析を行った。その結果、3 副格子フェリ磁性相は現れず、部分無秩序相から 2 副格子フェリ磁性相への転移は 1 次転移だという結果を得た。もし 1 次転移だとするならば、なぜ比熱に飛びがないのかという長年の問題に対して、我々は、潜熱に一番寄与していると思われる c 軸に沿ったドメインウォールの数に関する考察を行った。それによると、副格子ごとでは飛びがあるが、系全体としては 3 つの副格子間でちょうど打ち消し合い転移前と後でドメインウォールの数に飛びが見えず、すなわち、c 軸方向の相互作用の寄与がほとんどないことが解った。したがって、この転移はエネルギー的に一番寄与しているドメインウォールの数の変化が打ち消しあうため潜熱が非常に小さい 1 次転移だという事を明らかにした。結局、積層三角格子反強磁性イジングモデルの相転移の機構は、6 状態一般化クロックモデルと同じであることが解り Z_6 対称性モデルの新しい様相の理解に到達する事ができた。

HCP 格子上の XY モデルは、三角格子 XY モデルがずれて積み重なっているモデルである。二次元の場合はこのモデルはカイラル転移と K T 転移の 2 回の相転移が起ると思われているが、3 次元のモデルでは転移の性質がどうなるかは解っていない。我々は面間の相互作用が面内の相互作用に比べて弱い場合について調べた。その時、面間の相互作用が少しでも入ると、秩序相として不整合相が現れる事が解った。また、その場合の相転移は 1 次転移だという事が解った。

ランダム磁場・異方性スピン系の相図

日本原子力研究所計算科学技術推進センター 板倉 充洋

強磁性的なスピン系に、サイトごとにランダムな方向を向く磁場や異方性を加えるとこれが秩序を破壊する方向に働き、強磁性相互作用とのあいだにフラストレーションが生じる。三次元のスピン系においてはImry-Maらの議論^[1]によりIsingスピンのような離散スピン系では長距離秩序が安定、XYスピンのような連続スピン系では長距離秩序が不安定になることが示せる。

ランダム磁場 Ising モデルでは、低温、弱ランダム磁場の領域に秩序相が存在し、秩序-無秩序相転移は絶対零度、有限ランダム磁場における基底状態相転移に帰着されることが知られている^[2]。幸いランダム磁場 Ising モデルの基底状態を多項式時間で求めるアルゴリズムが存在するので^[3]、現在では 128^3 という大規模な計算が行われ、臨界指数なども求められている^[4]。

一方連続スピン系では長距離秩序は不安定だが冪相関が出現する可能性があることが理論的に指摘されてきた^[5]。さらにランダム磁場 XY モデルに帰着される、不純物を含む超伝導磁束格子系で“Bragg glass 相”と呼ばれる冪相関をもった相が観測され、理論や数値計算でも確認されている^[6-7]。

著者はこのような系の典型例であるランダム異方性ハイゼンベルグモデルのモンテカルロシミュレーションを行った結果、冪相関が転移温度よりはるか低温で観測されることを確認した^[8]。またこの相においてはスピングラス秩序は長距離相関を持ち、レプリカオーバーラップの分布関数はデルタ関数的になることも分かった。これらのことから低温相では系が冪的なスピン相関を持つ基底状態が支配的になっていることが分かる。なぜ基底状態がこのような冪相関を持ったフラクタルな構造をもつ状態になるのかは現在研究中である。

参考文献

- [1] Y. Imry and S. Ma, Phys. Rev. Lett. **35** 1399, (1975).
- [2] M. Itakura, Phys. Rev. B **64**, 012415 (2001).
- [3] *Phase transition and Critical Phenomena*, vol, 18, edited by C. Domb and J. L. Lebowitz (Academic, London, 2001).
- [4] A. A. Middleton, cond-mat/0208182.
- [5] A. Aharony and E. Pytte, Phys. Rev. Lett. **45**, 1583 (1980).
- [6] T. Giamarchi and P. LeDoussal, Nature (London) **413**, 404 (2001).
- [7] D. E. Feldman, Phys. Rev. Lett. **84**, 4886 (2000).
- [8] M. Itakura, Phys. Rev. B **68**, 100405(R) (2003).

梯子系のカイラルな秩序状態と双対性

理研 桃井 勉、引原 俊哉
東理大 中村 正明
NIMS 胡 暁

近年、我々は、梯子上のスピン系、及び電子系に様々な双対性がある事を見出した。その結果、梯子系において様々なカイラルな秩序状態が現れる事を明らかにした。

まず、スピン梯子系におけるスピンとカイラリティの自由度間の双対変換を作った^[1]。この変換を用いることにより、4体相互作用を含むスピン梯子系のパラメタ空間に双対性が存在する事がわかった。また、この変換を用いスカラー・カイラル秩序状態が厳密な基底状態になるモデルを構築した^[2]。このスカラー・カイラル相は基底状態が2重に縮退してお

り、その上にスピギャップが開いている量子的な状態である。

最近、更に、電子系のボンド演算子に対するゲージ変換を用いる事により、密度とカレント自由度間、及び、スピンと電荷自由度間の厳密な双対変換を作った^[1]。この変換を梯子上の電子系に当てはめると **staggered flux** や **circulating spin current** 等のカイラルな秩序状態が **CDW** 状態と **dual** な状態である事がわかる。さらに、一般化されたハバードモデルにこの変換を当てはめると、このモデルのパラメタ空間に双対な構造が存在する事がわかる。この変換により、**staggered flux** 状態や **circulating spin current** 状態が実現するパラメタ空間を容易に特定できる。

[1] T. Hikihara, T. Momoi, and X. Hu, Phys. Rev. Lett. **90** (2003) 087204.

[2] T. Momoi, T. Hikihara, M. Nakamura, and X. Hu, Phys. Rev. B **67** (2003) 174410.

[3] T. Momoi and T. Hikihara, Phys. Rev. Lett. in press, (cond-mat/0310574).

S=1/2 ジグザグ XXZ スピン鎖における 1/3 プラトールと分数磁化励起*

新潟大理学部 奥西 巧一、 福井工大 利根 川孝

1次元量子スピン系においてフラストレーションを持つ最も基本的なスピン系といえば最近接と次近接相互作用を持つハイゼンベルク鎖であろう。J₁-J₂ 鎖とかジグザグ鎖とか呼ばれている。基本的なだけに古くから研究されており、ゼロ磁場基底状態はスピン液体相とダイマーギャップ相が実現されることはよく知られている。もちろん、有限磁場中の研究も沢山あったが、フラストレーションの効果と強い量子揺らぎのために、本質的な部分がハッキリしていなかった。そこでまず、我々は、ジグザグ鎖の磁化過程を DMRG を用いて根性で計算し、模型のシンプルさとは裏腹に極めて多彩な現象が現れることを示した。自発的並進対称性の破れを伴う1/3プラトール、磁化曲線の折れ曲がるカスプ特異性、磁場中のエネルギーが全磁化の遇奇により振動するという遇奇性など、これまでにあまりお目にかかったことのないものばかりである。

これらの新奇な現象を統一的に解釈するにはどうすればよいを議論するために、XXZ 異方性を持たせたハミルトニアン

$$\hat{H} = \sum [J_1 \hat{h}_{i,i+1} + J_2 \hat{h}_{i,i+2}] - H \sum S_i^z, \quad \hat{h}_{i,j} = \varepsilon [S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y] + S_i^z S_j^z$$

を考える。1/3プラトールがイジング極限に繋がっており、並進対称性の破れを伴う ↑↑↓、↑↓↑、↓↑↑ の3つのオーダーが実現されることが厳密にわかっているからである。量子系の磁化過程を議論するとき問題なのは、1/3プラトールからの磁気的な励起と XY 項による量子揺らぎの効果である。その励起はドメイン壁 (DW) で構成され、合計6種類 (うち無限系で独立なものは4) の可能な組み合わせがある。それぞれの DW は S^z=±1/3、±2/3 の磁化を運ぶ粒子とみなせ、なおかつ S^z=±2/3の DW は S^z=±1/3の DW の束縛状態になっている。そこで、撰動論により DW の低エネルギー有効模型を作り、その2体問題を厳密に解き、S^z=±1/3DW とその束縛状態の分散関係を求めたところ、J₁/J₂の比により S^z=±1/3、および ±2/3DW のクロスオーバーが起こることが明快にわかった。最近接 XY 項により運動エネルギーを稼ぐことで S^z=±1/3DW が安定化し、逆に次近接項は束縛状態を安定化するのである。さらに、DW と束縛状態の分散の相対的な関係の移り変わりが、前述の1/3プラトール周囲の特異な磁化過程の理解に決定的な役割を果たす。磁化過程の定性的性質は磁気的な励起粒子を、磁場の大ききで決まる“フェルミ面”まで励起バンドにつめて行くことで理解されるが、束縛状態のバンドの底の部分の特異性を引っ掛けることで磁化カスプが生じるのである。磁化の遇奇によりすべての S^z=1/3を持つ DW が束縛状態を完全に組めるかどうかどうことから磁化過程の遇奇性も説明できる。

量子数として分数をもつ励起はあちらこちらで登場するが、このようなシンプルな模型でもそれが現れ、なおかつ物理現象の解釈に重要な役割を果たすというのは大変興味深い。現状では、分数磁化 DW 励起の見られるジグザグ鎖は見つかっていないが、競合の弱い領域でのジグザグ鎖は現実に見つかってきており、今後の展開が期待される。

*K. O. and T. T. JPSJ 72 (2003)479; cond-mat//0307121(to appear in Phys. Rev. B)

フラストレートした S=1/2 ボンド交替鎖の磁場誘起相転移

阪大サイバー、新潟大理^A、東工大理工^B、東北大理^C
前島 展也、奥西 巧一^A、岡本 清美^B、坂井 徹^C

次近接相互作用によるフラストレーションを有する S=1/2 ボンド交替鎖が弱い鎖間相互作用によって結合した場合の磁場誘起相転移現象を、DMRG や厳密対角化などの数値的手法を用いて調べた。

一般に擬 1 次元系の磁場誘起相転移現象は、もとの単一鎖の磁場中での性質を強く反映したものとなっている。フラストレートした S=1/2 ボンド交替鎖のような 1 次元スピンギャップ系は、二つの臨界磁場 H_{c1} , H_{c2} ($H_{c1} < H_{c2}$) の間では臨界相 (Tomonaga-Luttinger 相) となり、そこでの系の臨界的性質は以下の二つの相関関数によって表される。

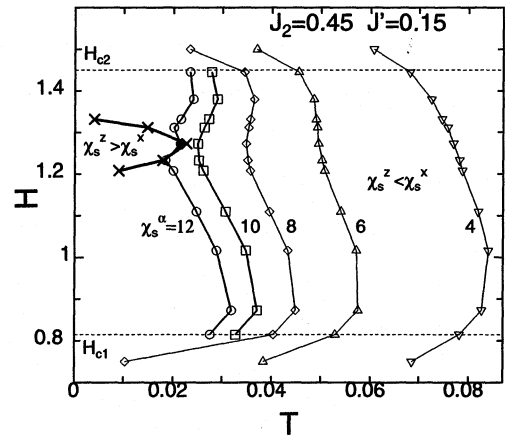
$$\langle S_0^x S_r^x \rangle \sim (-1)^r r^{-\eta} \quad (1)$$

$$\langle S_0^z S_r^z \rangle \sim m^2 + \cos(k_F r) r^{-\eta'}. \quad (2)$$

ここで m は一様磁化であり、磁場 H は z 方向にかかっているものとする。 k_F は m の値に依存し、 $k_F = (1-2m)\pi$ の関係がある。この臨界相における支配的な相関は η と η' の大小関係によって決定される。 $\eta < \eta'$ の場合、前者の commensurate な相関関数が支配的となるが、 $\eta > \eta'$ の場合は後者の incommensurate な相関関数が支配的となる。

多くの 1 次元系では commensurate な相関が支配的となることが知られている。しかしながらフラストレートした S=1/2 ボンド交替鎖では磁場 H と次近接相互作用 J' の条件がそろえば、incommensurate な相関関数が支配的となることが理論的に示されている^[1]。このような状況で鎖間相互作用が加わった場合、incommensurate なスピン構造を持った長距離秩序が現れることが期待される。この incommensurate 秩序は実験的には未だ観測されていないが、S=1/2 ボンド交替鎖のモデル物質と見られる有機磁性体 F_5PNN に対する最近の実験的研究で $\eta > \eta'$ を示唆する結果が報告されるなどしており^[2]、実験的興味も高まっている。

本研究においては、有限温度における staggered 帯磁率 χ_s^α ($\alpha = x$ or z) の計算を中心とした数値的研究により、具体的にどのような磁場-温度領域で incommensurate 秩序相が現れうるかを定量的に調べた。commensurate なスピン揺らぎの強さを表す χ_s^x と incommensurate な揺らぎを表す χ_s^z を計算してその大小関係を比べた結果の一つを以下の図に示す。このグラフは強い最近接相互作用 J_1 を 1, 弱い最近接相互作用力を J_2 を 0.45, そして $J' = 0.15$ としたときの χ_s^α の磁場温度依存性である。このグラフから分かる最も重要な点は、磁場 H と次近接相互作用 J' の条件が整っても $\chi_s^z > \chi_s^x$ となり incommensurate 相関が支配的となるのは低温領域のみであり、高温領域では $\chi_s^z < \chi_s^x$ となり commensurate な相関が支配的になることである。故に、十分強い鎖間相互作用が存在する場合、温度を下げていくとまず長距離秩序として現れるのは commensurate 秩序のほうであり、incommensurate 秩序が現れるとすればその後になるという結論が導き出される。



staggered 帯磁率の磁場温度依存性。太線で囲まれた領域のみで $\chi_s^z > \chi_s^x$ となる。

[1] N. Haga and S. Suga, J. Phys. Soc. Jpn. **69**, 2431 (2000).

[2] K. Izumi, et al., 日本物理学会第58回年次大会 (2003年) 30pXF-7.

磁場中のスピ NRA ダーとチューブにおけるフラストレーションの効果

東工大理工 佐藤 正寛

近年、量子スピン系において、局在スピンが梯子状に配列した擬 1 次元模型(スピ NRA ダー)が活発に研究されており、また対応する物質も多数発見生成され、その実験研究も活発である。そこで我々は以下にあるような競合的な相互作用を含む擬 1 次元量子スピン模型 2 つを考察し、それらが示す量子臨界現象における普遍的性質について議論した。

対象とする模型は、一様又は交替磁場(H_u 又は H_s) 中にある 2-leg スピ NRA ダー模型

$$\hat{H} = J \sum_{m=1,2} \sum_j \vec{s}_{m,j} \cdot \vec{s}_{m,j+1} + J_{\perp} \sum_j \vec{s}_{1,j} \cdot \vec{s}_{2,j} - \begin{cases} H_u \sum_j (S_{1,j}^z + S_{2,j}^z) \\ H_s \sum_j (-1)^j (S_{1,j}^z + S_{2,j}^z) \end{cases}$$

と、一様磁場 H 中の N -leg 整数スピ NRA ダー及びチューブ模型

$$\hat{H} = J \sum_{l=1}^N \sum_j \vec{s}_{l,j} \cdot \vec{s}_{l,j+1} + J_{\perp} \sum_{l=1}^N \sum_j \vec{s}_{l,j} \cdot \vec{s}_{l+1,j} - H \sum_{l=1}^N \sum_j S_{l,j}^z$$

である。両模型とも鎖方向の結合は反強磁性的($J > 0$)とする。

はじめの模型では鎖間の結合が反強磁性的のとき($J_{\perp} > 0$)、この結合と磁場(H_u 又は H_s) とが競合し、それに由来する量子相転移の存在が予想される。実際、スピ NRA 1/2 と 1 のときは相転移が存在しパラメータ空間(J_{\perp} , H_u or H_s) 上での基底状態の相図が部分的に決定されている。我々はこれらの結果をスピ NRA S の場合に一般化した。スピ NRA S の系において $J \rightarrow 0$ 極限を考えると、系は 2 体(ダイマー)問題に還元され、その基底状態は、磁場の変化に応じて生じる $2S$ 回の準位交差によって次々に異なる量子数をもつ状態に移り変わる。各準位交差点近傍で交差しようとするダイマーの 2 状態のみを抽出し鎖内結合 J を摂動論的に取り込むといういわゆる縮退摂動論を実行すると、各交差点近傍において一様(交替)磁場系では有効ハミルトニアンとして一様(交替)、磁場をもつスピ NRA 1/2 XXZ 模型が現れることが分かった。この有効模型のスピ NRA は抽出した 2 状態を表している。この結果より、鎖間結合が十分強いときは一様(交替)磁場による磁化過程において、 $2S$ 回だけセントラルチャージ $c=1$ の臨界領域(点)が現れるという予想が得られる。

第 2 の模型では、我々は非線形シグマ模型(NLSM)の方法を使う。ラダー(チューブ)系では、模型の右辺第 2 項(すなわち鎖間結合)にある l の和は 1 から $N-1$ (1 から N) まで取る。またチューブでは、 $\vec{S}_{N+l,j} = \vec{S}_{l,j}$ とする。 d 次元立方格子上の反強磁性体や鎖内鎖間の両方向とも反強磁性的なラダーのような競合のない反強磁性スピ NRA 系に対する標準的な NLSM の方法では、全ての空間方向に反強磁性短距離秩序が成長していることを仮定する。しかし我々の模型では、 N が奇数で鎖間結合が反強磁性的の場合、鎖間にフラストレーションが存在しこの仮定が使えなくなる。そこで我々は、まず各鎖を NLSM にマッピングし続いて鎖間結合を摂動的に加えるという処方箋を採用する。この方法は鎖間結合の大きさ $|J_{\perp}|$ が弱いときにしか正当化されないという弱点はあるものの、鎖間結合を競合の有無に関わらず系統的に扱うことができるという強みを持つ。上の処方に加えて、各鎖で課されている拘束条件を全ての鎖で平均化し、その拘束条件を鞍点法で近似すると、系の作用は各鎖の反強磁性揺らぎを表す場の 2 次形式となり、これは厳密に解ける。ここで整数スピ NRA のみを考えている為、扱い難いトポロジカル項が作用に現れないことに注意されたい。この有効模型を解いて以下の結果を得た。

競合がない場合は、鎖間結合を強くするほど、又は鎖の本数を増やすほどギャップが小さくなることを予想した(2, 3-leg ラダーにおいては量子モンテカルロ法の結果と $|J_{\perp}|$ が小さい場合に準定量的に合致することを確認済)。またギャップを担うマグノンバンドは磁場なしでは 3 重縮退していて、磁場を入れると 3 つにゼーマン分裂するという予想通りの結果も再現されることを確認した。一方、鎖間が反強磁性的で奇数本鎖の競合のあるチューブ系では、ギャップの減り方が競合のないときに比べ数倍遅いことを予想した。さらにこの場合は最低バンドが磁場なしのとき 6 重縮退することも分かった。この余分な 2 重縮退はチューブのループ方向のパリティ変換に対する対称性に由来していると考えられる。非競合系と競合系におけるこの最低バンドの縮退構造の違いから磁場誘起の臨界現象に著しい違いが生じることを予想できる。すなわち、非競合系では十分高磁場を加えると 1 本のマグノンバンドがマグノンのポーズ凝縮を起こし $c=1$ の臨界相が生じるが、一方競合系では一般に磁場によって 2 本のバンドが下降してくる為、 $c=2$ の臨界相が現れると予想できる。

S=1 two-leg ladder の(1/2)飽和磁化のプラトーとフラストレーション

東工大理工、東北大理^A、新潟大理^B
岡本清美、坂井徹^A、奥西巧一^B

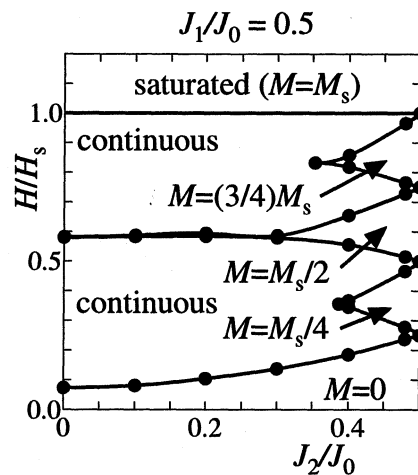
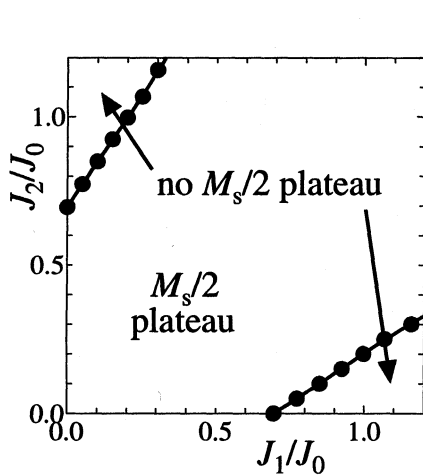
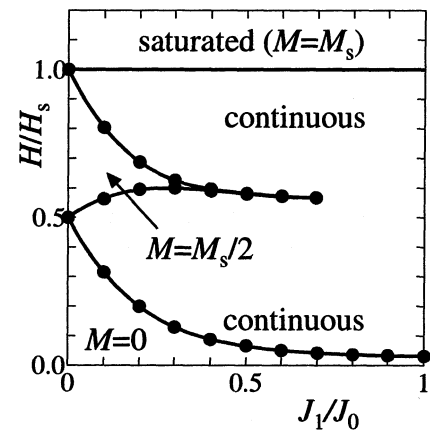
S=1の two-leg ladder において飽和磁化 M_s の1/2に現れる磁化プラトーとフラストレーションの関係を調べた。モデルは

$$\mathcal{H} = J_0 \sum_j \mathbf{S}_{1,j} \cdot \mathbf{S}_{2,j} + J_1 \sum_j (\mathbf{S}_{1,j} \cdot \mathbf{S}_{1,j+1} + \mathbf{S}_{2,j} \cdot \mathbf{S}_{2,j+1}) + J_2 \sum_j (\mathbf{S}_{1,j} \cdot \mathbf{S}_{2,j+1} + \mathbf{S}_{2,j} \cdot \mathbf{S}_{1,j+1}) - H \sum_j (S_{1,j}^z + S_{2,j}^z) \quad (1)$$

で、 $\mathbf{S}_{l,j}$ は $l=1, 2$ 番目の鎖の j 番目のスピン演算子である。 J_1 と J_2 を入れ換えたものは同じモデルになる。我々はこの問題を縮退摂動論、レベルスペクトロスコピー (LS)、DMRG で扱った。LS は、数値的対角化データを詳細に調べることによってプラトー有無などの KT 的量子相転移点を精密に求める手法である。

$J_2=0$ では、 $M_s/2$ プラトーが存在する領域は $J_0/J_1 < 0.695$ ($J_0/J_1 > 1.44$) であることが LS で示された。すなわ、 $M_s/2$ プラトーは十分小さい鎖間相互作用では存在せず、いわゆる等方的な場合 $J_0=J_1$ ですら生じない。この点は $S=1/2$ two-leg ladder の $M=0$ プラトー問題 (無限小の鎖間相互作用でプラトーが現れる) とは全く様相を異にしている。LS の結果は DMRG の結果とコンシステントである。図は DMRG による磁場 H (H_s は飽和磁場) と J_1/J_0 の磁気相図で、continuous 領域では磁場の変化と共に磁化が連続的に変化する。細長く伸びた $M_s/2$ プラトー領域が終わるところが $J_1/J_0=0.695$ である。

これに対角型鎖間相互作用 J_2 を加えるとフラストレーションが生じ、相図で $M_s/2$ プラトー領域を広げる作用をする。また、 $M_s/4$ と $(3/4)M_s$ のプラトーが生ずる場合もある。図は $M_s/2$ プラトー相図と $J_1/J_0=0.5$ のときの磁気相図である。



d-ドットで実現するスピナイス：超伝導ナノテクによるフラストレート系の創出

(Realization of Ice Model by using d-dots: Novel Frustrated Systems Created by Superconducting Nano-fabrication Techniques)

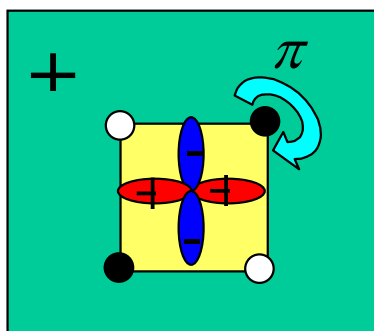
原研・計科技セ[#]、大阪府大[§]、東北大^{*}、CREST(JST)⁺

町田 昌彦^{#+} (発表者)、板倉 充洋[#]、加藤 勝^{#+}、小山 富男^{#+}、石田 武和^{#+}

(抄録)高温超伝導体の超伝導クーパー対の対称性はd-波であり、高温超伝導体のドット (d-ドット)を適当な配置でs-波の従来型超伝導体に埋め込むと、超伝導波動関数の位相の干渉効果により自発的な半磁束及び反半磁束が現れることが知られている。講演では、この自発半磁束及び反半磁束の出現パターンが、d-ドットを正方格子状に配置することでイジングモデルに、ジグザグに配置することでアイスモデルに各々、帰着できることを理論的に示す。これらの結果は、超伝導ナノテクを利用し、d-ドットアレイを作ることで、既存のモデルも含めて新しいフラストレート系を創出できることを意味している。

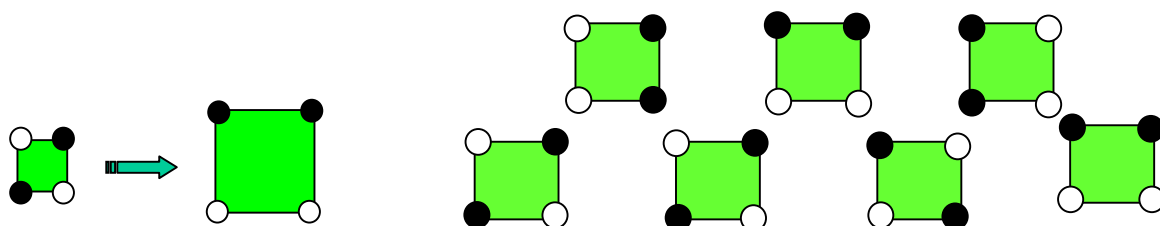
キーワード：超伝導クーパー対、対称性、d-波、S-波、d-ドット、半磁束、アイスモデル

1. d-ドット埋め込みによる半磁束出現パターン

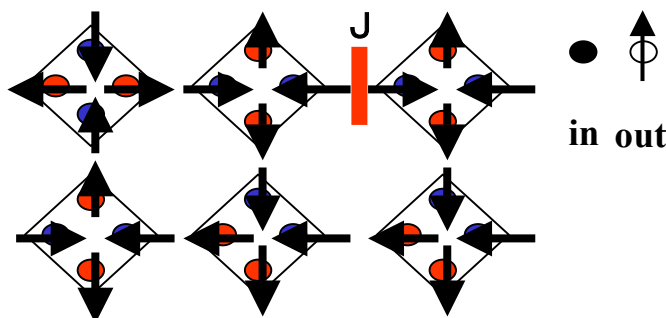


左図は、中央がd-ドット、周辺部がs-波の金属超伝導体であり、+ (-)は超伝導クーパー対波動関数の符号を表している。s-波では、符号変化がない一方、d-波は図のように結晶軸依存の符号変化を有することから、矢印の方向に位相差 π の変化が自発的に現れ、自発電流、ひいては自発半磁束が出現する。こうして、青を半磁束とすると赤は反半磁束であり、左図のようなパターンが考えられる一方、波動関数の符号反転により、黒→白、白→黒となるパターンも同様に可能であり、それら2つのパターンは縮退していることが分かる(擬スピンとして読み替え可能)。一方、このようなd-ドットを正方格子状に配列した場合は、隣接ドット間の磁束間相互作用(最近接磁束の向きは互いに逆向きの場合がエネルギー的に安定である)が系の擬スピンパターンを決定するため、イジングモデルに帰着することが分かる

2. d-ドットアレイとアイスモデル



ドットのサイズが小さい場合、1.で述べたように上左図のような縮退した2状態のみが現れる。一方、ドットのサイズを大きくすると矢印で示したような状態(4重縮退)も現われ、合わせて6状態が現れる。こうして、上右図のように大きなd-ドットを並べると、ドット間は反強磁性的結合が安定となる(この結合に係るエネルギーをJとする)。



さて、上右図を変形すると模式的に右図のような関係が成り立つことが分かる（即ち、2-in 2-out で表現される 2 次元アイスピンモデルと等価な模式図に帰着する。但し、 J が ∞ のときアイスモデルに完全に一致することに注意）。

3. まとめ

d-ドットのサイズや配列を適当に配置することでイジングモデルやアイスモデルなど自在に構築できることが分かった。フラストレート系研究の一助となることを期待する他、新しい系の創出も可能であることを指摘したい。

FR スピン AF 系と振動系との結合 —カイラリティと動的ヤーンテラー効果との対応—

千葉大自然、大阪市大工^A 山崎 久嗣、夏目 雄平、寺井 章^A、中村 勝弘^A

非線形格子振動と量子スピン系がスピン間の距離に依存するような交換相互作用を通して結合したモデルを提案し、それを数値計算で研究して、量子カオスの本質に迫りたい。ここで提案するモデルは、局在スピンを持つ 3 つの格子点が周期的に並んでいる三角格子を考えて、それらが指数型相互作用（戸田格子）を作っているというものである。研究会ではこのモデルが中村ら^[1]による基底を採用することによって Longuet-Higgins ら^[2]が提案した $Eg_{\otimes}eg$ の動的ヤーンテラー系（以下 DJTE）と一致することを示した。

この振動系は実質的に 2 次元であり、特に展開の 3 次までを取ると Henon-Heiles model の Hamiltonian

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2m}(P_x^2 + P_y^2) + \frac{\kappa}{2}(x^2 + y^2) - \mu(-x^3 + 3xy^2) \quad (1)$$

となる。これは、古典力学系のカオス問題として多くの研究が積み重ねられてきた。我々は、この各格子点に $\text{spin} = 1/2$ の量子スピン s を与えて、それらの中に反強磁性型 Heisenberg 交換相互作用 $\mathcal{H} = \sum_{i,j} J(s_{ix}s_{jx} + s_{iy}s_{jy} + s_{iz}s_{jz})$ を与える。このスピン自由度だけでも frustration を持つ spin 系であり、既に中村によって詳しく解析されている^[1]。ここではさらに、この J が格子点間距離の関数であることを考え、2 次元振動モードの変位で展開する。すなわち、 $J_1 = J(1 + \frac{\alpha}{2}(x - \sqrt{3}y))$, $J_2 = J(1 - \alpha x)$, $J_3 = J(1 + \frac{\alpha}{2}(x + \sqrt{3}y))$ と記される。その結果、展開項を通じて振動系とスピン系が結合する。これによって、スピン系へ格子振動の非線形性効果が極めて自然に取り込まれる。本モデルでは 2 自由度の平面内振動 (x, y) を取り入れているが、分子全体が伸縮するモードは含まない。これまで量子カオスについての研究は格子部分についての量子計算は Gutzwiller 他によってなされてる。本研究の目的はそれらに量子反強磁性スピン系に反映させて、量子カオスを調べるところにある。このような具体的な物性系での量子カオス研究の方法は、遷移金属イオン DJTE の量子カオス研究^[3]と同じものである。

計算は、3 スピン系とともに、格子振動モード 2 つも phonon として量子的に扱い、巨大行列対角化の方法で調べる。ただし、保存量は全エネルギーと全スピンの z 成分 $s_z^{\text{total}} \equiv s_{1z} + s_{2z} + s_{3z}$ である。さらに、カイラルオーダーパラメータ

$$\hat{\chi} = \mathbf{S}_1 \cdot (\mathbf{S}_2 \times \mathbf{S}_3) \quad (2)$$

と DJTE での電子軌道角運動量 $\hat{\ell}_z$ の振る舞いと関係があると予想した。実際エネルギーの増加とともに $\langle \hat{\ell}_z \rangle$ の期待値の振るまいが非線形項がない場合は格子の振動準位に依存した規則的な振動をするが、 $\langle \hat{\chi} \rangle$ の場合も同様な振る舞いが見られる。さらに、非線形項を付加すると $\langle \hat{\chi} \rangle$ が不規則振動し、非線形項を大きくすると振動が見られなくなることがわかった。この結果はもちろん DJTE でも見られており、^[3]の論文においてはそれを量子カオスとして定義しており、量子カオスの実験可能な観測量として電子軌道角運動量の抑制を提案した。今回も同様にカイラリティを量子カオスの強さを測る量として提案する。以下はカイラリティのエネルギー依存性の結果である。図 1 (a) は非線形項が無い場合のエネルギーに対する振動を表しており、図 1 (b) は非線形項がある場合のエネルギーに対する不規則振動の抑制を表している。詳しくは^[4]を参照。

従来、非線形振動と量子スピンとの結合を具体的なモデルに基づいて計算した研究例は極めて少ない。本モデルの研究は意義が深いと考えられる。

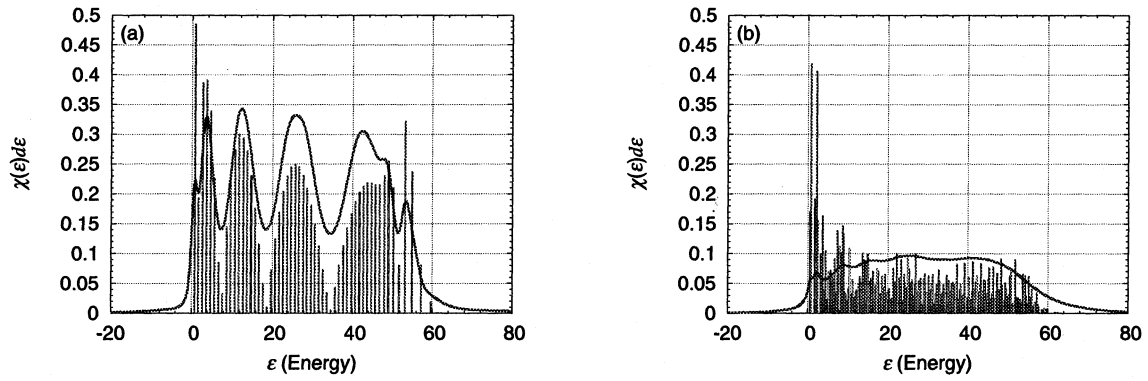


図1 : カイラリティのエネルギー依存性。 $\chi(\varepsilon)d\varepsilon(= \sum_p |\sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n a_{n,p}^2| d\varepsilon)$ エネルギー刻みは $\varepsilon=0.25$ 。(a) と (b) はそれぞれ、非線形項の大きさ $\mu=0, 0.47$ にあたり、スピン格子間の相互作用の強さは $\alpha=0.707$ である。エネルギーの単位は $\hbar\omega$ である。さらに実験との対応を考慮してそれぞれのピークにガウス関数を描いている。

- [1] H. C. Longuet-Higgins et al., Proc. R. Soc. A. **244**, 1(1958)
- [2] K. Nakamura and A. R. Bishop, Phys. Rev. Lett. **54**, 861 (1985); Phys. Rev. B **33**, 1963(1986)
- [3] H. Yamasaki, Y. Natsume, A. Terai and K. Nakamura, Phys. Rev. E **68**, 046201(2003)
- [4] H. Yamasaki, Y. Natsume, A. Terai and K. Nakamura, (投稿中), preprint nlin. CD/0312039

物性研究所談話会

日時：2003年10月7日（火） 午後3時～4時

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：Julian Eastoe

(School of Chemistry - University of Bristol - Bristol - UK)

題目：Applications of new surfactants

要旨：

Surfactants may be easily mistaken for humdrum, commodity chemicals. The seminar will describe various novel functionalised surfactants that have been designed with specific new applications in mind, and examples are given below.

Particular attention will be paid to surfactants that are active in supercritical carbon dioxide ^[1, 2], since these systems show much promise in "green chemistry" applications.

Two other areas will also be covered :

- a. templating of inorganic nano-particles using novel microemulsions made from polymerisable surfactants ^[3,4].
- b. photo-control of micellar aggregation using a unique stilbene-containing Gemini surfactant.

[1]. J.Am.Chem.Soc., 2001, 123, 988.

[2]. Phys.Chem.Chem.Phys., 2000, 2, 5235 and Langmuir, 2002, 18, 3014.

[3]. Chem.Mater., 2000, 12, 3533.

[4]. Langmuir, 2001, 17, 5388.

日時：2003年10月9日（木） 午後3時～4時

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：Thomas A. Jung 博士

(Paul Scherrer Institut, Switzerland)

題目：SELF INTERMIXED MONOLAYER PHASES:

A new Mode of Molecular Self-Assembly

要旨：

In this work, a novel route to highly perfect molecular self-assembly ^[1] through competing interactions on a metallic surface is presented. Depending on the relative surface coverage of two adsorbed species, Sub-phthalocyanine and C60, periodic intermixed monolayers consisting of 1D chains with 1nm width or 2D hexagonal patterns are formed on the atomically clean Ag(111).

The structural parameters and the different molecular patterns as a function the relative coverages are deduced from room-temperature Scanning Tunneling Microscopy (STM) studies ^[2]. These novel intermixed patterns are different

from previously known self-assembled molecular monolayers in that they form intermixed patterns at room temperature on uniform, unreconstructed and atomically clean terraces. For the first time, control of the ordering of intermixed arrays of functionalisable molecules created by self-assembly has been demonstrated over hundreds of nanometers.

[1] G. M. Whitesides, J. P. Mathias and C. T. Seto. *Science* 254, 1312 (1991)

[2] M. de Wild et al. *ChemPhysChem* 10 881 (2002)

This work has been done at National Center of Competence in Research on Nanoscale Science, Basel, Switzerland, in collaboration with M. de Wild, S. Berner, H. Suzuki, A. Baratoff, H.-J. Guentherodt

日時：2003年10月14日（火） 午後1時30分～2時30分

場所：物性研究所本館 6階 A615号室

講師：久我 隆弘

（東京大学総合文化研究科）

題目：光で原子を自由に操作する

（レーザー冷却、ボーズ凝縮、共振器量子電気力学）

要旨：

レーザー技術の発展は、気体原子の運動までも自由に制御することを可能にし、1985年には200マイクロケルビンの超低温原子集団を作り出した（レーザー冷却）。そして、90年代に入り成熟度を増したレーザー冷却技術と蒸発冷却技術とを組み合わせることで、1995年には希薄原子気体のボーズ凝縮が実現した。

講演では、原子気体ボーズ凝縮が実現するまでの経緯を簡単に振り返り、これまでボーズ凝縮体を用いて行われた実験研究のいくつかを紹介する。

さらに、これら数々の話題を提供している、量子光学・量子エレクトロニクスと呼ばれる分野の、今後の発展性、可能性について考えてみたい。

日時：11月4日(火) 午後1時30分～3時

場所：物性研究所6階 A615号室

講師：Fritz Herlach

(Leuven, Belgium)

題目：Frontiers of Pulsed Magnet Design

要旨：

At the K.U.Leuven pulsed field laboratory, high performance coils with optimized internal reinforcement by fiber composites have been pioneered and continuously further developed. Coils made with soft copper wire and Zylon-epoxy composite have sustained fields up to 75 T. For extended service life, 75 T user coils are made with an inner section of strong micro-composite wire and an outer section of soft copper, with additional outer reinforcement. A system of axial compression has been designed that increased peak field significantly. Based on the results obtained with these coils, an outlook to possible future development will be given. This includes a discussion of new materials like the multi-composite wire and high strength M5 fibers developed by Magellan.

日時：11月4日（火） 午後4時～

場所：物性研究所6階 A615号室

講師：橋本 秀樹

（大阪市立大学 理学研究科・数物系専攻）

題目：光合成系の分子構築・機能と人工光合成系の創成

要旨：

光合成系は生命が38億年もの歳月をかけ、自然選択と言う圧力のもとで様々な試行錯誤を繰り返した結果創成された地球上における最高の光エネルギー変換機関です。その機能発現には、蛋白質と言う反応場の中でクロロフィルやカロテノイドと言った特定の環構造および共役鎖長を有した共役ポリエン化合物（光合成色素）が空間的に規則正しく配列した、いわゆる超分子複合体が関係しています。生体による光操作技術と言う観点から眺めた場合、この色素蛋白質超分子複合体は生命維持の目的のために最適化されたバイオナノデバイスと呼ぶことが提案されます。今回の講演では、光合成光アンテナ捕集系および光反応中心複合体の分子構築と機能、さらには人為的に色素構造を改変し蛋白質系に再構築した人工色素蛋白質超分子複合体の創成とその単結晶X線構造解析について講演者の研究成果も交えながら話題提供したいと思います。10フェムト秒を切る超高速過渡吸収分光を適用することにより初めて見えた、カロテノイドの中間励起状態の発見（平成14年12月20日号の米科学誌サイエンスに掲載された内容）に関する話題提供したいと思います。

日時：2003年11月7日（金） 午後1時30分～2時30分

場所：物性研究所6階 A615号室

講師：大谷 義近

（理化学研究所フロンティア研究システムグループリーダー）

題目：ナノスケール磁性体のスピンドYNAMIX

要旨：

本講演では、ナノスケールの強磁性体、特にディスク型の強磁性体中に特徴的に生成する磁気渦に着目して静的及び動的物性について議論する。動的物性として渦構造に重畳して励起するスピン波についてまた渦そのもののダイナミクスに着目し、孤立渦および静磁的に結合した渦格子のダイナミクスについて議論する。

日時：11月14日（金） 午後4時～5時

場所：物性研究所6階

講師：Dr. S.A. Grigera

（University of St. Andrews, UK）

題目：Quantum criticality and metamagnetism in the Ruthenate $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$

要旨：

Quantum criticality may provide a unified framework for understanding many facets of strongly correlated electron behaviour of solids. Furthermore, entirely novel behaviour is often seen in the close vicinity of quantum critical points. In this talk we will discuss the bilayer ruthenate metal $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$. We will show evidence for the presence of a magnetic-field-tuned quantum critical point and discuss the nature of such a point. In addition we will show the presence of unusual properties that become much more pronounced as the disorder level is reduced.

日時：2003年11月25日(火) 午前11時～

場所：物性研究所本館6階 A613号室

講師：Dr Carlos Manzano

(Max-Planck-Institut für Festkörperforschung, Stuttgart, Germany)

題目：Scanning Tunneling Microscopy of self-organized semiconductor quantum dots

要旨：

The atomic processes driving the pyramid-to-dome transition in the Ge/Si(001) system are identified by in-situ scanning tunneling microscopy.

The transition is observed using two different experimental conditions: (1) by depositing more than 7 ML of Ge at 560°C or (2) by annealing 6 ML of Ge at the growth temperature of 560°C for more than 600 s. The two methods show qualitatively similar results, indicating that the material redistribution from the wetting layer and among the islands is at the origin of the transition.

The experimental results clearly demonstrate the decisive influence of kinetics on the transition and are strongly supported by ab-initio calculations of the strain-dependent diffusivity of Ge adatoms on the reconstructed (105) facets of the islands.

Sample annealed during 900 sec at 560°C, the initial shape of the pyramid evolves through different steps before transforming completely in a dome.

This work has been done in collaboration with G. Costantini, G. Katsaros, A. Rastelli, U. Denker, H. von Kanel, O.G. Schmidt, and K. Kern

日時：12月5日(金) 午後1時30分～2時30分

場所：物性研究所本館6階 A615号室

講師：Professor Per Nordblad

(Uppsala University, Sweden)

題目：Dynamics of a perturbed equilibrium spin glass state

要旨：

A Ag(Mn) spin glass is left to age at $T=0.9T_g$ for an extended amount of time (100 000 sec) to enforce a state that mimics the equilibrium spin glass phase when the system is observed on shorter time scales ($t < 1000$ sec). This spin glass state is then subjected to a temperature perturbation (cycling) of different strength and duration. The dynamics of the spin glass after this perturbation process is used to deduce information on how the original 'equilibrium' spin glass state is recovered after the perturbation. The results are put into the context of the ghost domain version of the droplet scaling model as formulated and discussed by H. Yoshino in J. Phys. A: Math. Gen. 36 (2003) 10819.

日時：2004年1月6日(火) 午後3：30～

場所：物性研究所6階 A632号室

講師：Prof. A.P. Young

(Dept. Physics, UC Santa Cruz)

題目：Recent developments in the theory of spin glasses

要旨：

An introduction to spin glasses will be given followed by a summary of some salient experiments, both equilibrium measurements concerning the spin glass phase transition and non-equilibrium measurements in the low temperature phase. Results of recent numerical studies of spin glasses using models with "vector" spins will then be described.

人 事 異 動

【研究部門等】

○ 平成16年1月1日付け

(採 用)

氏 名	所 属	職 名	異 動 内 容
植 田 浩 明	附属物質設計評価施設	助 手	独立行政法人理化学研究所協力研究員から

東京大学物性研究所の教官公募の通知

下記により助手の公募をいたします。適任者の推薦、希望者の応募をお願いいたします。

1. 研究部門名等及び公募人員数

新物質科学研究部門 分子集合体物性領域（田島研究室）助手1名

2. 研究内容

柔軟な思考性に基づいて、優れた物性測定技術あるいは試料作成技術を用いて、有機薄膜素子あるいは伝導性電荷移動塩等の分子集合体電子物性研究を物理・化学の両面で行う。過去の研究分野は必ずしも問わないが、当該分野の一定知識を要求する。

3. 応募資格

修士課程修了、又はこれと同等以上の能力を持つ人。

4. 任 期

任期は5年とする。ただし、再任は可とし、1回を限度とする。

5. 公募締切

平成16年2月6日（金）必着

6. 就任時期

決定後なるべく早い時期を希望する。

7. 提出書類

(イ) 推薦の場合：

- 推薦書（健康に関する所見を含む）
- 履歴書（略歴で結構です）
- 業績論文リスト（必ずタイプし、特に重要な論文に○印をつけること）
- 主要論文の別刷（3編程度）

(ロ) 応募の場合

- 履歴書（略歴で結構です）
- 業績論文リスト（必ずタイプし、特に重要な論文に○印をつけること）
- 主要論文の別刷（3編程度）
- 健康診断書
- 所属の長又は指導教官等の本人についての意見書（宛先へ直送）

8. 書類提出先

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉5丁目1番5号
東京大学柏地区庶務課人事掛
電話 04(7136)3205
e-mail jinji-kakari@issp.u-tokyo.ac.jp

9. 本件に関する問い合わせ先

東京大学物性研究所 新物質科学研究部門 助教授 田島裕之
電話 04(7136)3235
e-mail tajima@issp.u-tokyo.ac.jp

10. 注意事項

「新物質科学研究部門（田島研究室）助手応募書類在中」、又は「意見書在中」の旨を朱書きし、郵送の場合は書留で郵送のこと。

11. 選考方法

東京大学物性研究所教授会で審査決定いたします。ただし、適任者のない場合は、決定を保留いたします。

平成15年10月29日

東京大学物性研究所長
上 田 和 夫

退官記念講演会

日 時：2004年3月9日（火） 午前10時より
場 所：物性研究所 本館6階 大講義室（A632）

10：00－10：10 所長挨拶
10：10－10：25 藤井保彦先生業績紹介（吉澤英樹所員）
10：25－11：55 藤井保彦先生講演
「中性子＞構造物性＜X線」

昼 食

13：00－13：15 石川征靖先生業績紹介（榊原俊郎所員）
13：15－14：45 石川征靖講演
「金属間化合物における磁性と超伝導」

休 憩

15：00－15：15 後藤恒昭先生業績紹介（上床美也所員）
15：15－16：45 後藤恒昭先生講演
「極限物性研究とともに33年」

記念パーティ

開演時間：午後17時30分より
場 所：東京ケータリング柏カフェテリア

Technical Report of ISSP 新刊リスト

Ser. A

No.3702

Real-Time Capturing of the Nuclear Wave-Packet Shape in the
Self-Trapped Excitons. by Taira Matsuoka, Jun Takeda,
Susumu Kurita, and Tohru Suemoto

編集後記

柏に移転して、もうすぐ4年になる。昔の六本木時代を知らない世代もだんだん増えつつある。私の場合、移転して一番変わったのは、昼食の事情である。今でも、六本木のカレーや中華料理などの事が大変懐かしい。ついでながらお酒を飲みに行く事も難しくなった。おいしい食事やお酒をとりながら、親しい人と様々なことに議論ができた。また、建物が大きくなったことはいいことであったが、予想もしなかったことに、お互いのコミュニケーションがとりにくくなった。六本木の時は、エレベータや廊下のどこかで、一度は誰かに会い、立ち話ができる。共同研究などは、こういうところで始まることの方が、意外な展開があって、おもしろいことが多かった。

柏に来てからは、意識しないと、コミュニケーションが取れにくくなって来ている。「研究室だより」も今年度から積極的に書いてもらうようになった。2号の秋山先生、3号の④信先生に続いて、今回は田島先生と、比較的若い先生方に書いてもらっている。「研究室だより」が物性研内外の共同研究の助けとなれば幸いである。

なお、次号の原稿締切りは3月10日です。

所属又は住所変更の場合等は事務部共同利用掛までご連絡願います。

辛 埴