



Title	High Field Magnetism of Two-Dimensional Frustrated Antiferromagnets
Author(s)	Fujita, Takahito
Citation	大阪大学, 2013, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/51402
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

幾何学的フラストレーションを有する磁性体は理論研究、実験研究共に盛んに行われており、近年『新奇な磁性の宝庫』と言われ注目されている。

理論的には、フラストレート磁性体は、基底状態に多重な縮退が存在し、磁氣的に落ち着かない状態であると言われている。一方、実験的には、不純物や、格子歪みや単結晶合成が困難な点などの問題があり、モデル化合物の合成が困難な点が研究の障壁となっていた。しかし近年の合成技術向上により優良な化合物が見つかり始めてきた。

本論文では、優良な単結晶が得られている2種類の2次元フラストレート磁性体(カゴメ格子反強磁性体 $\text{KFe}_3(\text{OH})_6(\text{SO}_4)_2$: K-Fe-jarosite、三角格子反強磁性体 $\text{CuFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_2$) について研究を行った。

カゴメ格子反強磁性体 K-Fe-jarosite は格子歪みや格子欠陥がなく理想的な優良な古典カゴメ格子反磁性体として興味を集めている。カゴメ格子反強磁性体の単結晶の報告例は極めて稀であるが、K-Fe-jarosite については mm オーダーの単結晶の合成に成功しており、詳細な情報を得ることができると考えられる。このような観点から、K-Fe-jarosite は数少ない優良なモデル物質であり、古典ハイゼンベルグカゴメ格子反強磁性体の実験研究に大変有用なサンプルであると言える。

そこで理想的な古典ハイゼンベルグカゴメ格子反強磁性体について摂動項の効果まで詳細に検証することを目的に我々は強磁場多周波 ESR、磁化測定を行った。我々はこれらの実験結果をジャロシンスキー・守谷 (DM) 相互作用と結晶場に基づくシングレイオン異方性による 2 種類のモデルによって解析した。その結果、DM 相互作用を用いたモデルで実験結果をよく再現することができた。

本研究は初めて古典ハイゼンベルグカゴメ格子反強磁性体の磁場変化について定量的な解析に成功した研究例として興味深いと言える。

三角格子反強磁性体 $\text{CuFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_2$ はその特異な磁性により長年注目を集めている物質である。本系では磁場誘起相で自発分極が観測されており、 CuFeO_2 はマルチフェロイック物質の 1 つとして理解される。さらに、 Fe^{3+} サイトを僅かな非磁性イオンの置換することにより強誘電相が零磁場で安定化することが報告されている。この結果は強誘電相が非磁性イオン置換効果により制御できることを示唆しており興味深い、その起源はまだ未解明である。

ここでは我々は非磁性イオン Ga^{3+} を僅かにドーブした CuFeO_2 の単結晶を合成し、磁場中での振舞いを調べるために、ESR、磁化及び電気分極測定を行った。これらの実験結果を比較した結果、磁化及び電気分極で見られた強誘電相のシフトと比べると ESR 励起モードのシフトは小さかった。一方、極僅かな非磁性イオン置換によって ESR 線幅の急激な増大が観測された。そこで我々はこの励起モードの広がりに着目し強誘電相の安定化の説明を試みた。その結果、ESR 線幅程度の広がりを考慮入れることで、強誘電相への転移を記述する励起モードのソフト化を定量的に説明することができた。さらに ESR 線幅と強誘電相のシフト量の間に良い相関が得られた。

以上の観点から我々は非磁性イオンドーブによって強誘電相が安定化する起源は、主に励起モードの広がりにあると結論付けた。

論文審査の結果の要旨

カゴメ格子反強磁性体 $\text{KFe}_3(\text{OH})_6(\text{SO}_4)_2$ (K-Fe-jarosite) と三角格子反強磁性体 $\text{CuFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_2$ ($x=0\sim0.028$) の二種類の擬二次元フラストレート反強磁性体に対して、最大磁場 53 T、最高周波数 2 THz に亘る強磁場多周波電子スピン共鳴 (ESR) 測定、強磁場磁化測定及び電気分極測定を行った。フラストレート磁性体とは幾何学的あるいは長距離の交換相互作用などで相互作用が競合し、基底状態が多くの縮退を示す磁性体で、異方性、磁場や格子歪みなどの僅かな摂動で縮退が解け、新奇な磁性状態や磁気秩序を示すことが理論的に予想され、また、実

【32】

氏 名 藤 田 崇 ひと

博士の専攻分野の名称 博 士 (理学)

学 位 記 番 号 第 2 5 8 1 3 号

学 位 授 与 年 月 日 平成 25 年 3 月 25 日

学 位 授 与 の 要 件 学位規則第 4 条第 1 項該当

理学研究科物理学専攻

学 位 論 文 名 High Field Magnetism of Two-Dimensional Frustrated Antiferromagnets

(2 次元フラストレート反強磁性体の強磁場磁性)

論 文 審 査 委 員 (主査) 教 授 萩原 政幸

(副査) 教 授 野末 泰夫 教 授 花咲 徳亮 教 授 川村 光
准教授 杉山 清寛

験的にも観測されてきている。

最初に挙げた化合物 K-Fe-jarosite は Fe^{3+} イオン ($S=5/2$) が磁性を担い、低温まで格子が歪まずに理想的なカゴメ格子反強磁性体である。昨今の試料合成技術の向上により純良な単結晶を得ることができるようになり、詳細な研究を行うことが可能になった。この化合物では磁場中での磁化の跳びが観測され、零磁場での磁気構造が中性子散乱実験によりわかっていたが、それらがどのような起源によるのか二種類 (Dzyaloshinsky-Moriya (DM) 相互作用とシングライオン異方性) の解釈がなされていた。そこで、この系を支配する異方性の起源が何なのかを調べることを目的として研究を行った。その結果、磁化及び ESR 共鳴磁場の周波数依存性共に、DM 相互作用を異方性起源とした場合、非常によく説明することができた。この研究により長年議論されてきた異方性起源に終止符を打つことができた。

K-Fe-jarosite と同様に Fe^{3+} イオンが磁性を担う三角格子反強磁性体 CuFeO_2 は、ハイゼンベルグスピン系に見られる 120 度スピン構造を作らずに、零磁場でイジングスピンのような up-up-down-down の四副格子の磁気構造を示す新奇な磁性体である。三角格子面に垂直な磁場中で数多くの磁気相転移を示し、最初の磁場誘起相ではらせん磁気構造由来の自発電気分極を示し、磁場誘起強誘電 (FEIC) 相を有するマルチフェロイック物質としても大変興味を持たれている。Fe サイトを非磁性イオンの Ga^{3+} で置換した場合、ほんの僅かの置換量 ($< 2\%$) で FEIC 相が零磁場でも現れるようになり、その起源が問題となっていた。そこで Ga ドープの純良単結晶 $\text{CuFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_2$ ($x \sim 0.028$) を合成し、その起源を磁気励起の観点からを明らかにすることを目的として研究を行った。ESR 共鳴磁場の周波数変化は Ga ドープによってあまり変化せずに、ESR の線幅が極端に大きくなることがわかった。エネルギー分散を計算して、FEIC 相でのらせん磁気構造のピッチ角に対応する波数の所にエネルギーの極小値を有し、それがソフト化することで FEIC 相が実現することがわかったが、Ga ドープした系ではエネルギーブランチはソフト化せず、ESR の線幅に対応するブランチ幅の増大によって説明できることがわかった。わずかの Ga 置換量での ESR 線幅の増大に関してはまだその起源はわからないが、磁気励起の観点から FEIC 相への転移の仕組みが明らかにされた。

これらすべての研究は博士の学位にふさわしく、よって本論文は博士 (理学) の学位論文として十分価値のあるものと認める。