

Title	High Field Magnetism of Two-Dimensional Triangular-Lattice Antiferromagnets and Development of ESR Apparatus at Extremely-Low Temperatures in Pulsed High Magnetic Fields
Author(s)	山口, 博則
Citation	大阪大学, 2010, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/58029">https://hdl.handle.net/11094/58029</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

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

Osaka University

氏名	やまぐちひろのり 山 口 博 則
博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)
学位記番号	第 2 3 5 5 7 号
学位授与年月日	平成 22 年 3 月 23 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 Triangular-Lattice Antiferromagnets and Development of ESR Apparatus at Extremely-Low Temperatures in Pulsed High Magnetic Fields (二次元三角格子反強磁性体の強磁場磁性と強磁場極低温 ESR 装置の開発)
論文審査委員	(主査) 教授 萩原 政幸 (副査) 教授 大貫 惇睦 教授 野末 泰夫 教授 田島 節子 教授 川村 光

## 論文内容の要旨

最近単結晶育成の成功が報告された 3 つの三角格子反強磁性体  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$ 、 $\text{CuCrO}_2$ 、 $\text{Rb}_4\text{Mn}(\text{MoO}_4)_3$  に対して、最大磁場 53 T、最大周波数 2 THz に亘る強磁場多周波電子スピン共鳴 (ESR) 測定及び、約 68 T までの強磁場磁化測定を行った。 $\text{Ni}^{2+}$ イオン ( $S=1$ ) が磁性を担う  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  は、NMR 及び  $\mu\text{SR}$  の結果から、10 K 以下で MHz オーダーの揺らぎを伴った新奇なスピンドYNAMIX を有することが分かり、その知見を得ることを目的として研究を進めた。その結果、ESR 吸収線幅の温度変化に特異な振る舞いが見られ、ハイゼンベルグ型三角格子反強磁性体において理論的にその存在が予想されているスピнкаイラリティーの成す渦である  $Z_2$  ボルテックスによる効果として説明することができた。また、低温領域での ESR 共鳴磁場の周波数変化、磁化過程、及び磁気比熱を、中性子回折で示されている約 57 度で回転するらせんスピン構造で説明することができた。これらの結果から、長距離秩序を示さないにもかかわらず、 $Z_2$  ボルテックス転移以下の温度で予想されているようにスピン波で説明できる物性を示すことが分かり、 $Z_2$  ボルテックス転移が本化合物で起こっている可能性を示すことができた。 $\text{Cr}^{3+}$ イオン ( $S=3/2$ ) が磁性を担う  $\text{CuCrO}_2$  は、磁気構造由来の電気分極を示すマルチフェロイック物質である。磁気構造に関しては未だ不明瞭な点が多く、我々は電気分極に関わる磁気構造を明確にすることを目的として研究を進めた。ESR 共鳴磁場の周波数変化測定では  $H//[1-10]$  で 5.3 T 付近に磁気転移を示唆する周波数で共鳴磁場が変化しない共鳴モードが観測された。また、磁化に関しても 5.3 T 付近に磁場微分の極大値が観測された。これらの実験結果に対して、中性子回折及び歪みゲージ測定の結果を考慮して、二軸異方性を持つ二等辺三角格子における 118 度らせんスピン構造で解析した結果、実験結果を良く再現することができ、5.3 T で電気分極のフロップを引き起こしていると考えられるスパイラル面フロップを定量的に示すことができた。 $\text{Rb}_4\text{Mn}(\text{MoO}_4)_3$  は、 $\text{Mn}^{2+}$ イオンが磁性を担う  $S = 5/2$  の二次元三角格子反強磁性体であり、1/3 磁化プラトーを伴う磁化過程の測定結果から、絶縁体としては初めての、弱いイジング異方性を持つハイゼンベルグ型反強磁性体であることが報告された。その検証及び、典型的なモデルにおける ESR の振る舞いを把握するために研究を進

めた。得られた ESR 共鳴モード及び報告されている磁化過程に関して、古典スピンの分子場近似及びモンテカルロシミュレーションを用いて解析した結果、実験結果を良く再現することができた。

フラストレーション系や量子スピン系では、 $^4\text{He}$  断熱蒸発による 1 K 付近までの測定では観測することができない、極低温領域における特異な振る舞いを示す物質が多く報告されている。また、それらの物質では量子揺らぎの影響が強いため長距離秩序が見られないものも多く、そのような系で ESR シグナル波形全体を観測するためには数テラを越える磁場を要する場合がある。また、量子スピン系の中でも、ゼロ磁場でエネルギーギャップを有するスピングャップ系では、特異な物性の発現が期待される量子臨界点近傍の状態を探るためには強い磁場でエネルギーギャップを潰す必要がある。このような研究背景の下、強磁場極低温 ESR 測定装置の開発を行い、最大磁場 60 T、最低温度 0.6 K での測定を可能にした。

## 論文審査の結果の要旨

三種類の三角格子反強磁性体  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$ 、 $\text{CuCrO}_2$ 、 $\text{Rb}_4\text{Mn}(\text{MoO}_4)_3$  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) 測定と約 68 T までの強磁場磁化測定を行った。

$\text{Ni}^{2+}$ イオン ( $S=1$ ) が磁性を担う  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  は 10 K 以下で MHz オーダーの揺らぎを伴った新奇な基底状態を有することから、そのスピンドYNAMIX を調べることを目的として研究を行った。その結果、ESR 吸収線幅の温度変化に特異な振る舞いが見られ、ハイゼンベルグ型三角格子反強磁性体において理論的にその存在が予想されているスピнкаイラリティーの成す渦である  $Z_2$  ボルテックスによる効果として説明することができた。また、帯磁率や ESR でアノマリーを示す温度 ( $T_0$ ) 以下での ESR 共鳴磁場の周波数変化、磁化過程を中性子回折で示されているらせんスピン構造で説明することができた。 $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  は長距離秩序を示さないにもかかわらずスピン波で説明できる物性を示すことが分かり、 $T_0$  が  $Z_2$  ボルテックス転移温度である可能性を示すことができた。

$\text{Cr}^{3+}$ イオン ( $S=3/2$ ) が磁性を担う  $\text{CuCrO}_2$  は、磁気構造由来の自発分極を示すマルチフェロイック物質である。磁気構造に関しては未だよくわからない点が多く、自発分極に関わる磁気構造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測定では三角格子面内  $H//[1-10]$  で 5.3 T 付近に周波数で共鳴磁場が変化しない共鳴モードが観測された。また、磁化に関しても 5.3 T 付近に磁場微分の極大値が観測された。これらの実験結果に対して、二軸異方性を持つ二等辺三角格子における 118 度らせんスピン構造で解析した結果、実験結果を良く再現することができ、5.3 T で電気分極の変化を引き起こしていると考えられるスパイラル面フロップを定量的に示すことができた。

$\text{Rb}_4\text{Mn}(\text{MoO}_4)_3$  は、 $\text{Mn}^{2+}$ イオンが磁性を担う  $S = 5/2$  の二次元三角格子反強磁性体であり、1/3 磁化プラトーを伴う磁化過程の測定結果から、絶縁体としては初めての弱いイジング異方性を持つハイゼンベルグ型反強磁性体であることが報告されている。その検証及び、典型的なモデルにおける ESR の振る舞いを調べるために研究を行った。得られた ESR 共鳴モード及び報告されている磁化過程に関して、分子場近似及びモンテカルロシミュレーションを用いて解析した結果、実験結果を良く再現できた。

フラストレーション系や量子スピン系では極低温領域における特異な振る舞いを示す物質が多く報告されている。また、それらの物質では ESR シグナル波形が数テラを越えるものもあり強磁場を要する場合がある。さらに、ゼロ磁場でエネルギーギャップを有する量子スピングャップ系では、特異な物性の発現が期待される量子臨界点近傍の状態を調べるために強い磁場でエネルギーギャップを潰す必要がある。このような研究背景の下、最大磁場 60 T、最低温度 0.6 K での測定が可能な強磁場極低温 ESR 装置を開発した。そして  $\text{NiGa}_2\text{S}_4$  で測定を行い、共鳴磁場がより低磁場側にシフトすることがわかった。今後の研究展開が期待される。

これらすべての研究及び装置開発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。