

Title	Peculiar Magnetic Properties of Chiral Helimagnets and a Frustrated Magnet Revealed by Electron Spin Resonance
Author(s)	吉澤, 大智
Citation	大阪大学, 2017, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/61511">https://hdl.handle.net/11094/61511</a>
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。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

## 論文内容の要旨

氏名 ( 吉澤 大智 )

## 論文題名

Peculiar Magnetic Properties of Chiral Helimagnets and a Frustrated Magnet Revealed by Electron Spin Resonance

(電子スピン共鳴によって明らかになったカイラルらせん磁性体とフラストレート磁性体の特異な磁性)

## 論文内容の要旨

シングルイオン異方性やジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用などの項は磁気構造の秩序化の際に重要な役割を果たし、近年の研究ではこれらの効果によって特異な磁気状態が発現することがある。電子スピン共鳴(ESR)測定はこういった特異な磁気状態の研究をするうえで有用な測定手法である。今回我々はカイラル磁性体と希土類パイロクロア格子磁性体に着目し、ESR測定を行った。

カイラル磁性体は強磁性相互作用と一様なジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用が競合し、強磁性磁気構造にひねりが加わることでカイラリティを持ったらせん磁気構造を形成する磁性体のことである。カイラル磁性体に磁場を印加すると、スキルミオン格子状態やカイラルソリトン格子(CSL)状態と呼ばれる特異な磁気状態が形成される。これらの磁気状態はメモリ素子などへの応用が期待されており、近年爆発的に研究が進展した系である。CrNb<sub>3</sub>S<sub>6</sub>は磁気秩序転移温度約130 K以下でカイラリティを有したらせん磁気構造を発現する物質であり、この物質のらせん軸に垂直に磁場を印加することでらせんが解け、らせん一巻と強磁性領域が交互に配列したCSL状態が発現する。これまでこのCSL状態を形成する相互作用についての議論はされてこなかったため、申請者はこの物質の持つ相互作用の情報を得ることを目的としてESR測定を行った。得られた共鳴モードをスピン波理論に基づいて解析した結果、鎖内強磁性相互作用16.2 K、DM相互作用1.3 K、シングルイオン異方性1.0 Kという値が得られた。これらの値の大きさは物質にある相互作用の指標となるワイス温度145 Kと比較すると小さいが、これは鎖間の大きな強磁性相互作用が存在するためである。また、ギガヘルツ帯でのダイナミクスについて調べるためにX-band ESR測定を行った。その結果、共鳴シグナルを示す複数のダイソニアンで表される主となるシグナルとともに非自明なスパイク状の構造が観測された。このスパイク状のシグナルが現れる範囲の始点と終点を磁場 - 温度相図上にプロットすると長距離秩序相内に二つの境界線があることがわかった。スパイク状の構造は変調磁場がないときには観測されなかったため、この構造が現れる領域では変調磁場の効果によって非自明な中間状態が形成され、マイクロ波の振動磁場によってソリトンの共鳴あるいは振動運動が誘起された結果、スパイク状の構造が観測されたものと考えられる。

CsCuCl<sub>3</sub>はc軸を鎖方向として鎖内に強磁性相互作用とDM相互作用、鎖間に反強磁性相互作用を有しており、そのため鎖方向にはカイラリティを持ったらせん磁気構造、面内方向には120° 磁気構造を形成する物質である。この物質の鎖方向に垂直に磁場を印加した場合のESR測定の結果は正確な解釈がなく、その理由は、これまで行われてきた研究が右手系と左手系の混ざったマルチドメインの試料であると考えられる。そこで申請者は単一のカイラリティを持つCsCuCl<sub>3</sub>単結晶試料に対して鎖方向に垂直な磁場中でのESR測定を行った。その結果、以前までに得られた結果と同様の共鳴モードのほかに、DM相互作用を考慮した強磁性的な共鳴モードで解釈できる新たな共鳴モードを観測した。この共鳴モードはCSL構造の強磁性領域に由来するモードであると考えており、ここからCsCuCl<sub>3</sub>でもCSL状態が発現している可能性が示唆される。

パイロクロア格子を持つ磁性体はその構成元素によって様々な磁気状態をとることがこれまでの研究からわかっている。CdYb<sub>2</sub>S<sub>4</sub>はYb<sup>3+</sup>がパイロクロア格子を形成し、これまでの我々のESR測定(T=1.5 K)の結果からPalmer-Chalker型あるいはψ<sub>2</sub>型の磁気構造を基底状態にとること考えられる。しかし、希土類パイロクロア格子系は極低温下での測定から様々な特異な振る舞いが明らかになっている。そこで我々は極低温での比熱・磁化測定、そして新たにヘリウム3冷凍機とESR測定用プローブを作製し、極低温・パルス強磁場でのESR測定を行った。作製したESR測定装置は最低温度540 mK、最大磁場50 Tでの測定が可能である。これらの測定から磁場 - 温度相図が得られ、1 K以下に磁場誘起秩序相があることがわかった。またESRブランチは600 mK以下と1.4 Kでほとんど同一であることがわかった。これにより、磁場誘起秩序相にESR測定のみで観測された新たな相転移があると考えられる。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 吉 澤 大 智 )	
論文審査担当者	(職) 氏 名
	主 査 教授 萩 原 政 幸
	副 査 教授 野 末 泰 夫
	副 査 教授 杉 山 清 寛
	副 査 教授 川 村 光
	副 査 准教授 鳴 海 康 雄

## 論文審査の結果の要旨

ある一方向に強磁性的な交換相互作用と一様なジャロシンスキー守谷 (DM) 相互作用を有するカイラルらせん磁性体は、らせん軸と垂直に磁場を印加すると、らせん状態と強磁性的に磁気モーメントが配列した状態が交互に現れる。そして、磁場が大きくなると強磁性的な領域が広がる特異な磁気状態を取ることが知られており、カイラルソリトン格子 (CSL) 状態と言われている。本論文の第一章では二種類のカイラル磁性体  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$  と  $\text{CsCuCl}_3$  に関して電子スピン共鳴 (ESR) 測定により観測された ESR シグナルの共鳴モードの解析結果と特異な磁氣的性質に関して報告されている。

$\text{CrNb}_3\text{S}_6$  ではらせん軸方向に磁場をかけて観測したいくつかの周波数での ESR シグナルの共鳴ブランチの解析からこの系の交換相互作用、DM ベクトル、シングルイオン型異方性の大きさが初めて求められた。また、らせん軸に垂直に磁場をかけると CSL 相が現れるが、その相中にスパイク状のシグナルが現れる磁場-温度領域があることがわかった。この境界は比熱測定等で異常が現れないので相境界とは考えられないが、高磁場側の境界は交流帯磁率測定でも観測されており、この系の特異なスピンドYNAMIXS に関係するものと考えられ、今後の CSL 相の理論の進展が求められている。この磁場-温度領域の物性は審査の際に大変関心が持たれた。

$\text{CsCuCl}_3$  では通常の合成法では右巻きと左巻きのカイラル状態が混在し、らせん軸に垂直に磁場を印加した際にドメイン境界から出現していると思われる複雑な ESR シグナルが解析を困難にしていた。最近、共同研究者により単一カイラルドメインの単結晶試料が合成された。これを用いてらせん軸と垂直に磁場を印加して、シンプルな共鳴ブランチが得られ、合わせて低磁場低周波領域に新たな ESR シグナルを観測した。本研究により CSL 状態での本質的な磁気励起を観測し、初めてその共鳴ブランチを分子場近似により解析し、実験結果を低磁場ではほぼ再現している。この際にらせん状態と強磁性状態からのシグナルが別々に現れるとして共鳴ブランチを説明しているが、これ以上の解析は理論家による計算が必要という結論になった。

第二章では希土類イオンがパイロクロア格子を組む磁性体の特異な磁氣的状態が報告されている。磁性イオンが正四面体の頂点に配置し、それらが頂点共有してできた格子をパイロクロア格子と呼ぶが、最近接磁性イオン間で交換相互作用 (強磁性、反強磁性) をして、正四面体の重心方向にローカルな異方性 (イジング、XY) を有する際に四つの特異な磁気状態を取ることが理論的に予想され、そのいくつかは実験的に明らかにされてきた。 $\text{Yb}^{3+}$  イオンが磁性イオンである  $\text{CdYb}_2\text{S}_4$  は反強磁性的な交換相互作用と XY 的な磁気異方性を有すると考えられ、小さなエネルギーギャップを基底状態近傍に有する Parmer-Chalker 状態かギャップレスの  $\psi_2$  状態のどちらかを取るであろうと予想されていた。本研究において ESR、比熱、磁化測定を行い、磁気秩序相が低磁場領域で高温側に張り出した特異な磁場-温度相図が得られ、ESR と比熱結果から零磁場でエネルギーギャップのない  $\psi_2$  状態であることが強く示唆された。さらに、ヘリウム 3 を用いた極低温 ESR 測定装置を開発し、共鳴ブランチの磁場変化から磁気秩序相及び短距離秩序相内に何らかの新たな境界の存在が明らかになった。

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。