



# フラストレートした1次元量子スピン磁性体で誘起される 強誘電転移と新奇量子磁気状態

安井 幸夫 (明治大学 理工学部物理学科)

## Ferroelectricity and New Quantum Magnetic States of Frustrated One-dimensional Quantum Spin Systems

Yukio Yasui

Department of Physics, Meiji University



#### ABSTRACT

Neutron scattering study and measurements of magnetic and dielectric properties have been studied for quasi one-dimensional spin 1/2 systems which are formed of edge-sharing CuO<sub>4</sub> square planes called CuO<sub>2</sub> ribbon chains. Due to the geometrical characteristic of the crystal structure of these systems, the nearest-neighbor exchange interaction between spins is ferromagnetic, and the second neighbor interaction is antiferromagnetic. The CuO2 ribbon chain systems are typical examples for the frustrated quantum spin systems driven by the competing interactions. We found that  $LiVCuO_4$  and  $PbCuSO_4(OH)_2$  with CuO<sub>2</sub> ribbon chains have helical magnetic order and exhibit a ferroelectric transition with the magnetic transition, simultaneously (called multiferroic). For the CuO2 ribbon chain systems, exotic quantum phases are theoretically predicted such as Haldane-dimer, spin-nematic, quadrupolar-order, and chiral-order phases.  $Rb_2Cu_2Mo_3O_{12}$  with  $CuO_2$  ribbon chains does not exhibit the long range ordering due to the quantum spin fluctuation and low dimensionality. For Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>, the ferroelectric transition is found to be induced by applying field without magnetic transition, which is a new type ferroelectric transition triggered by the magnetism of frustrated quantum spin systems. The obtained results strongly suggest that Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> exhibits some exotic quantum states.

Keywords: quantum spin, CuO2 ribbon chain, multiferroic, chiral-order, Haldane-dimer

## 1. はじめに

幾何学的フラストレーションがある場合や,ス ピン間の相互作用に競合があるスピン系がどのよ うな基底状態を示すのか,また,低温でどのよう な磁気的挙動を示すのかは基本的でありながら未 解決な大きな問題である.特に Cu<sup>2+</sup>スピンなどの 量子スピン系の場合,量子効果によって特異な物 理現象を示したり,新奇な量子状態の出現が期待 されるので大変興味が持たれる.

まずここで取り上げる  $CuO_2$  リボン鎖と呼ばれ る一次元の絶縁体量子スピン系を簡潔に紹介する.  $CuO_2$  リボン鎖とは, Fig.1(a)に示すように 2 価の 銅イオン  $Cu^{2+}$ が 4 つの酸素イオンに囲まれた  $CuO_4$  四角形が辺を共有して一次元的に連なった 構造をしており, リボンのように見えることから  $CuO_2$  リボン鎖系と呼んでいる.  $CuO_2$  リボン鎖系 では最近接交換相互作用  $J_1$ は Cu-O-Cu ボンド角が ほぼ 90°であるために強磁性的になり, また次近 接交換相互作用  $J_2$ は反強磁性的なものになるとい



Fig. 1: (a) Schematic structure of CuO<sub>2</sub> ribbon chain, together with electron wave functions of Cu( $3dx^2-y^2$ ) and O(2*p*) orbits. *J*<sub>1</sub> and *J*<sub>2</sub> are nearest-neighbor and next-nearest neighbor interactions, respectively. (b) Schematic figure of exchange interactions between Cu<sup>2+</sup> quantum spins.

う特徴をもつ.相互作用の概略図を Fig. 1(b)に示 すが、J<sub>1</sub>とJ<sub>2</sub>の相互作用が競合するので、低温で どのような磁性を示すかは簡単には予想できない. よって、CuO<sub>2</sub>リボン鎖系は磁気フラストレートし た一次元量子スピン系の典型例の1つと見なすこ とができ、新奇な量子状態や物理現象を生み出す 舞台と期待される.

磁気フラストレーションのあるスピン系は、低 温で磁気転移を起こす場合もあるが、そこでの磁 気構造は複雑で非自明なものになることが多い. 例えば、スピンが中途半端な角度に傾いた磁気構 造や、ヘリカル型やコニカル型の螺旋の磁気構造 が挙げられる.非自明な磁気構造をもつ物質では 磁性だけではなく他の物性量にも様々な異常が現 れることが期待される.その1つとして、ヘリカ ル磁気構造の磁気転移に伴って強誘電性が誘起さ れる現象が次々と報告され注目されている

(TbMnO<sub>3</sub>[1], Ni<sub>3</sub>V<sub>2</sub>O<sub>8</sub>[2]など). この現象は(反) 強磁性と強誘電性が同時に現れることからマルチ フェロイックと呼ばれ,磁性と強誘電性は共存し にくいという従来の概念を覆した.  $J_1 \ge J_2$ の相互 作用が競合している CuO<sub>2</sub> リボン鎖においても, 理論的には $|J_2/J_1| > 1/4$ の条件を満たす場合にはへ リカル型の磁気構造になることが期待される[3].

筆者らは CuO<sub>2</sub> リボン鎖系がもつ上記の特徴と 異常物性の可能性に注目し、物性研究を行ってき た.現在も研究は進行中であるが、これまでの主 な研究成果として下記の4つが得られた.

(i) LiVCuO<sub>4</sub> が量子スピン系で初めて磁気転移に 伴い強誘電性が生じるマルチフェロイック物質で あることを発見した[4-6]. (ii) 他グループにより マルチフェロイックを示すと報告されたが[7],非 常に複雑なために詳しい磁気構造が分かっていな かった LiCu<sub>2</sub>O<sub>2</sub> について、単結晶を用いて中性子 回折実験と Li 核の核磁気共鳴 (NMR) 実験を組 み合わせた磁気構造解析を行い、詳細な磁気構造 を決定した[8-9]. (iii) PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>も磁気・強誘 電同時転移が起こることを見出し、LiVCuO4との 共通点から強誘電出現の鍵となる性質を明らかに した[10-11]. (iv) 上記の3つの物質とは異なり長 距離磁気秩序を持たない Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>について, 磁場を印加することで長距離磁気秩序を伴わない にも関わらず強誘電性が誘起される新しいタイプ の磁場誘起強誘電転移を発見した[12].

著者らの CuO<sub>2</sub> リボン鎖系に対するこのような 実験的研究に触発されて、CuO<sub>2</sub> リボン鎖系は最近 理論的にも実験的にも盛んに研究されてきた.例 えば、最近  $J_1$ - $J_2$ の一次元量子スピンモデルにお いて、下記のようなエキゾチックな量子相の出現 が理論的に提案された[13-15]. $J_1 \ge J_2$ の比 $J_1/J_2$ とスピンの異方性 $\Delta \varepsilon$ パラメータとした場合、パ ラメータ領域によりベクトルカイラル相やハルデ ンダイマー相などの出現が提案されている.また、 磁場を印加すると $J_1/J_2$ の値によっては、ベクトル カイラル相やスピンネマティック相・Triatic 相・ Quatic 相などの磁気多極子液体相といったエキゾ チックな量子相の出現も提案されている. なお, 「ベクトルカイラル相」とは長距離磁気秩序はな いが隣り合うスピンベクトルの外積(ベクトルカ イラル)の期待値<(*S*<sub>i</sub>×*S*<sub>j</sub>)→が有限の値をもつと いう特異な磁気秩序状態,「ハルデンダイマー状 態」とは *S*=1/2 量子スピンが最近接強磁性相互作 用に起因してスピン *S*=1のハルデン鎖のように振 舞い非磁性になる状態,「スピンネマティック相」 とはスピンが矢印ではなく棒状自由度のように揃 いスピン液晶的な新しい量子状態,をそれぞれ意 味し,いずれも量子スピン特有の新奇な量子状態 である.

上記のように CuO<sub>2</sub> リボン鎖系に関する研究と しては、マルチフェロイック現象という観点から の研究と、理論的に提案されている新奇な量子状 態の実験的探索という観点からの研究、の両面が ある. ここでは LiVCuO<sub>4</sub>、PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>、 Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>の3つの物質系に絞って、これまで に得られている研究成果を紹介する.

#### 2. LiVCuO<sub>4</sub>

LiVCuO<sub>4</sub>では Fig. 2 に結晶構造の模式図を示す が, b 軸方向に沿った CuO<sub>2</sub> リボン鎖を有している. Cu<sup>2+</sup> spin (S=1/2) は  $T_N$ =2.4K で反強磁性に転移す る. この系の単結晶を作成し誘電特性を調べた結 果,誘電率の温度曲線は磁気転移温度付近でピー クをもち,さらに磁気転移温度以下で a 軸方向に 強誘電分極が出現することがわかった (Fig. 3(a)). よって,LiVCuO<sub>4</sub>は磁気転移に伴って強誘電性が 誘起されるマルチフェロイック現象を示すことを 発見した[4].当時報告されていたマルチフェロイ ック物質は、いずれも複数の磁性サイトを持ち、 かつ  $S \ge 1$  の古典スピン系であったので、S=1/2 の量子スピン系でしかも単一の磁性サイトしか持 たない単純な結晶構造のLiVCuO<sub>4</sub> がマルチフェ ロイック物質であることを見いだしたことは、マ



Fig. 2: Crystal structure of LiCuVO<sub>4</sub>. The edgesharing chains of  $CuO_4$  square planes can be seen with the VO<sub>4</sub> tetrahedra that connect the chains. The Li atoms are shown by the small black circles.





Fig. 3: (a) Temperature dependence of  $P_a$  of LiVCuO<sub>4</sub> taken at various fixed fields H//a, together with the neutron integrated intensities for 0 1- $\zeta$  1 ( $\zeta$ ~0.534) reflection at H = 0. (b) The magnetic structure of the Cu<sup>2+</sup> spins, schematically. *P*, *Q*, and  $e_3$  represent the vector of ferroelectric polarization, modulation vector, and helical axis, respectively.

ルチフェロイック現象の微視的メカニズムを理解 する上で重要な物質例である. この系の強誘電分 極出現のメカニズムに迫るには詳細な磁気構造を 知ることが重要と考え、単結晶を用いた中性子回 折実験を行った. JRR-3 のガイドホールに設置さ れている HQR (T1-1) 分光器を用いて, (hk0) 面及 び(0kl) 面で中性子回折実験を行った結果, T<sub>N</sub>以 下で $h k \pm \zeta 0$  (*h*+*k*=even) 及び $0 k \pm \zeta l$  (*k*+*l*=even)の 超格子磁気反射 (ζ~0.534) を観測した. 得られた 磁気散乱強度を使って磁気構造を求めた結果、先 行文献[16]どおり b 軸方向に不整合で, ab 面内 (CuO2 リボン鎖面内)でスピンが回転するヘリカル 型の磁気構造をもつことが確かめられた(Fig. 3(b)). 強誘電分極 P と磁気構造を Fig. 3(b)にまと めるが,強誘電分極 P,変調ベクトル Q,ヘリカ ル軸 $e_3$ の3者の間には、 $P \propto Q \times e_3$ の関係がある ことがわかった. さらに強誘電分極 P と磁気反射 の積分強度 Iを重ねてプロットすると、 $P \propto I$ の 関係があることもわかった (Fig. 3(a)). これらの 関係式はヘリカル型の磁気構造に起因する強誘電 現象についての既報の理論的指摘[17-18]と一致し ている[5-6]. LiVCuO4は S=1/2 で Cu のサイトが 1 種類の簡単な系なので、スピンー軌道相互作用を 考慮した微視的理論により、この系の強誘電分極 もいち早く計算され、マルチフェロイックのメカ ニズムの理解が進んだ[19-20].

Fig. 3(a)に磁場を a 軸方向に印加した場合の強誘電分極を示すが,磁場印加により強誘電分極が抑えられたことがわかる.この時の磁気構造を知るために,磁場中(H/a)で中性子回折実験を行った結果,H=2Tを境に磁気散乱の強度比が大きく変化することがわかった.得られた磁気反射強度比を解析したところ,H(//a)=2Tでab面内をスピンが回転するヘリカル構造から,bc面内を回転するヘリカル構造から,bc面内を回転するヘリカル構造がら、bc面内を回転するヘリカル構造がら、bc面内を回転するヘリカル構造がら、bc面内を回転するヘリカル構造でしたことがわかった.この結果は,磁場中(H//a)でのa軸方向の電気分極  $P_a$ が,H=2T以上で抑制されたことと良く対応しており,磁場中での振舞も, $P \propto Q \times e_3$ の関係式により理解可能である[5-6].

最近,LiVCuO₄についてマルチフェロイックの 観点からの研究目的とは異なり,新奇量子状態を 探索するために超高磁場中での磁化測定が報告さ れた[21].L.E.Svistov らによるとLiVCuO₄では50 テスラ弱で飽和するが,その手前の40テスラ付近 にスピンネマティック相が出現すると報告されて おり,大変興味がもたれる.

## 3. PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>

PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>の結晶構造の模式図をFig.4に示 す.CuO<sub>2</sub>リボン鎖内にはわずかなバックリングが あり,またCuO<sub>2</sub>リボン鎖面が結晶構造の*a*,*b*,*c* 軸方向と対応していないので、ここではCuO<sub>2</sub>リ ボン鎖の物性を議論するために、局所的な座標軸 *a'と c'*を導入する.*b*軸方向はCuO<sub>2</sub>リボン鎖の 方向,*c'*軸方向はCuO<sub>2</sub>リボン鎖面を平均した面 に垂直な方向,*a'*軸方向は*b*軸と*c'*軸の両方に 垂直な方向である.

**PbCuSO**<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub> は「Linarite」と呼ばれる鉱物で あり,鉱物から単結晶を切り出して各種の物性測 定を行った.*a*',*b*,*c*'の各軸方向に磁場をそれぞれ



Fig. 4: Crystal structure of PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>. The edge- sharing chains of CuO<sub>4</sub> square planes (called CuO<sub>2</sub> ribbon chains) are separated by the Pb<sup>2+</sup> ions and the SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> tetrahedra. The *a*'- and *c*'- axes are defined to be suitable for the local structure of the CuO<sub>2</sub> ribbon chains.



Fig. 5: Temperature dependence of the magnetic susceptibility  $\chi$  of PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>. The magnetic field of H=1 T is applied along the three directions shown in the figure. The inset shows magnetization curves taken at T=2 K under various magnetic field directions.



Fig. 6: (a) Temperature dependence of the dielectric constant  $\varepsilon$  of single crystal of PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>. The electric field *E* is applied along the three directions shown in the figure. (b) Temperature dependence of the ferroelectric polarization obtained for a polycrystalline sample of PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>.

印加して磁化率を測定した結果,温度を下げてい くと 5K 付近でブロードなピークを持ち,2.8K ( $\equiv T_N$ )で急激に減少する振舞を観測した(Fig.5).比 熱にもその温度で明瞭なピークが観測され,  $T_N=2.8K$  で反強磁性転移を示すことがわかった. 50K から 350K までの磁化率データを $J_1$ - $J_2$ モデル で4次までの高温展開により解析したところ, $J_1=$ -13±3 K (Ferro 的), $J_2=21\pm5$  K (AF 的)であること がわかった.この値は他の CuO<sub>2</sub> リボン鎖系のそ れと比べて、半分以下の小さな値であった.単結 晶を用いて、様々な軸方向に電場を印加して誘電 率を測定した結果、E//aの場合のみ、 $\epsilon$ -T 曲線に  $T_N$ でピークを観測した (Fig. 6(a)).また、焦電流



Fig. 7: Temperature dependence of the peak intensities for 0  $\delta$  1/2 reflection ( $\delta$ ~0.189) of PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>. The inset shows profile of the  $\omega$ -scan (sample-angle scan) for 0  $\delta$  1/2 reflection taken at *T*=1.7 K and *T*=7.0 K.

測定により強誘電分極を調べた結果, $T_N$ 以下で強誘電分極を観測するとともに,強誘電分極の向きが印加する電場の符号によって反転することもわかった (Fig. 6(b)).以上の結果より, PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub> が磁気・強誘電同時転移を示すマルチフェロイック物質であることがわかった[10-11].

単結晶を用いて印加する磁場方向を指定して磁 化率を測定した結果, CuO2 リボン鎖面に平行に磁 場を印加した場合のみ(a'軸方向とb軸方向), T<sub>N</sub>=2.8 K で急激に磁化率が減少した(Fig. 5). ま た,2K で各軸方向に磁場を印加して磁化曲線を測 定した結果,やはり CuO2 リボン鎖面に平行に磁 場を印加した場合のみ、H<sub>c</sub>=2.5T 付近で磁化曲線 の異常を観測した.また,得られた|J<sub>2</sub>/J<sub>1</sub>|の値は1/4 より大きく、理論的にヘリカル構造になることが 期待される.以上の結果より, PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>の磁 気構造は, ordered moment に CuO<sub>2</sub> リボン鎖面と平 行な成分が多いヘリカル型の磁気構造であると考 えられる. H<sub>c</sub>=2.5T 付近で観測された磁化曲線の 異常は、CuO2リボン鎖面内で回転するヘリカル構 造から、印加磁場に垂直な面内で回転するヘリカ ル構造へとスピンフロップしたと考えることで理 解できる. PbCuSO<sub>4</sub>(OH),の磁気構造をさらに詳し く知るために単結晶を用いた中性子回折実験を行 った. JRR-3 のガイドホールに設置されている HQR (T1-1) 分光器を用いて, (0kl) 面で中性子回 折実験を行った結果,  $T_N$ 以下で  $0 k \pm \delta l/2$  (k = even, l =odd)の超格子磁気反射 (δ~0.189)を観測した. 実験結果の例として, Fig. 7 挿入図に 0 δ 1/2 反射 (δ~0.189)のT=1.7Kと7.0Kで測定したω-scanプ ロファイルを示すとともに, Fig.7に081/2磁気 反射のピーク強度の温度依存性を示す.温度を下 げていくとピーク強度は T<sub>N</sub>以下で急激に増大し、 さらに散乱強度の Q-依存性を考慮すると観測し た超格子反射が磁気的なものであるとわかった. 磁気散乱強度比は b 軸方向に incommensurate な

modulation vector をもち, a'b 面内 (CuO<sub>2</sub> リボン鎖 面内)でスピンが回転するヘリカル磁気構造であ るとして矛盾のないものであった. 強誘電分極は a' 軸方向に出現しており, PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub> におい ても強誘電分極 P と磁気構造の間に,  $P \propto Q \times e_3$ の関係が成立あることがわかった [10-11].

PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>は,他のCuO<sub>2</sub>リボン鎖系と比べ て、J<sub>1</sub>とJ<sub>2</sub>の絶対値が小さく、さらに飽和磁場も 12 テスラ程度と小さな値を持つという特徴があ る.よって、PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub>では、スピンネマティ ック相など新たな磁気量子相が磁場印加により出 現するかどうかを飽和磁場までの広い範囲に渡っ て定常磁場により詳しく探査できるので、現在実 験を進めている.

## 4. $Rb_2Cu_2Mo_3O_{12}$

 $CuO_2$  リボン鎖をもつ  $Rb_2Cu_2Mo_3O_1$ ? では  $J_1=$ -138K (Ferro 的), J2=51K (AF 的)と報告されている が[22-23], 強い量子ゆらぎと低次元性により3次 元的な長距離磁気秩序は起こさないという特徴を 持つ.このことは磁化率の温度依存性(Fig.8)に short range magnetic order によるブロードなピーク 構造があるものの,長距離磁気秩序の存在を示す 急激な変化がないことからもわかる. この系のゼ ロ磁場での誘電率 ε を測定した結果,約 50K 以下 で 降温とともに誘電率の増大を観測した (Fig. 9). 詳しい実験結果を記述しないが、この誘電率の増 大はヘリカル構造の short range magnetic order の成 長に起因するものである. Cu サイトに Zn もしく は Ni といった不純物をドープすると, short range magnetic order の成長が乱されるために誘電率の 増大は抑制される(Fig. 9) [24].

磁場を印加して誘電率を測定した結果,磁場中 では, $T_c=8K$ で  $\epsilon$ -T曲線にピーク構造が現れるこ とがわかった (Fig. 9). 焦電流を測定し強誘電分極 を調べた結果, $T_c$ 以下で強誘電分極を観測し,磁 場誘起の強誘電転移が起こることを発見した



Fig. 8: Temperature dependence of the magnetic susceptibilities  $\chi$  of Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> measured under various magnetic fields.

(Fig. 10). Fig. 8 に印加する磁場を変えて測定した 磁化率を示すが,強誘電転移が誘起される T<sub>c</sub>付近 で磁化率に何の異常も観測されず磁気転移を伴っ ていないことがわかる. つまり,3 次元的な長距 離磁気秩序を伴わないにもかかわらず,磁場によ って強誘電性が誘起されるという大変奇妙な現象 を見出した[12]. この磁場誘起の強誘電転移は, 磁気フラストレートした量子スピン系の特異な磁 気状態が関与した新しいタイプのものと考えられ 大変興味を持っている. 理論的には一次元 J<sub>1</sub>- J<sub>2</sub> 量子スピンモデルにおいて,磁場印加によりベク トルカイラル相が誘起されると提案されており, Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> で観測した磁気転移を伴わない磁 場誘起強誘電相が「ベクトルカイラル相」に相当 すると考えられる.

最近,2K以下でRb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>の磁化率と比熱 を測定した結果,この系の基底状態は約2K程度



Fig. 9: Temperature dependence of the dielectric constant  $\epsilon$  of  $Rb_2Cu_2Mo_3O_{12}$  taken under various magnetic fields, together with the dielectric constant  $\epsilon$  of  $Rb_2(Cu_{0.98}Zn_{0.02})_2Mo_3O_{12}$  at  $H{=}0.$ 



Fig. 10: Temperature dependence of the electric polarization P of Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> taken under various magnetic fields.

のエネルギーギャップをもつ非磁性状態であるこ とがわかった. CuO2 リボン鎖系としては、非磁性 の基底状態をもつ初めての物質例である. さらに J-PARC の AMATERAS (BL14) を用いて中性子磁 気非弾性散乱により Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>1</sub>,の磁気励起を 調べたところ,磁気励起にも約2Kの明瞭なエネ ルギーギャップを観測した.現在,実験データを 解析中であるので詳細は記述しないが、この系の 基底状態が約 2K という J<sub>1</sub> (= -138K, Ferro 的) や J<sub>2</sub> (=51K, AF 的)より energy scale が2 桁近く小さい エネルギーギャップをもつ非磁性状態であること は大変興味深い.この系では J1 が強磁性的である ことに起因して, S=1/2 量子スピンがスピン S=1のハルデン鎖のように振舞い非磁性になる「ハル デンダイマー状態」をとり非磁性になっていると 考えられる. Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>では「ベクトルカイラ ル相」や「ハルデンダイマー状態」といったエキ ゾチックな量子相が次々と見つかっており、現在 も種々の研究を進めている.

## 5. 終わりに

磁気フラストレーションのある磁性体に関する 研究はこれまでに数多くあるが、多くが希土類イ オンや  $Cr^{3+}$ ,  $Fe^{3+}$ といった  $S \ge 1$ の古典スピンをも つ磁性体を対象にしており、量子スピン系に関す る実験的研究は適当な物質がないために進んでい なかった.また理論的にも量子スピンをきちんと 取り扱った計算が難しいために、研究が進んでい なかった.その点、ここで取り上げた  $CuO_2$  リボ ン鎖系は物質例が豊富であり、さらに 1 次元とい う簡単な構造であるので理論的に取り扱い易く量 子スピンの特徴を生かした計算が可能である.よ って  $CuO_2$  リボン鎖系は実験的にも理論的にも手 が届くところに、マルチフェロイック現象や新奇 な量子状態を研究する舞台を提供してくれる大変 貴重な物質系である.

マルチフェロイック現象のメカニズムを知るための磁気構造決定や、新奇な量子状態のミクロなレベルでの解明を進めるために、中性子回折実験と中性子磁気非弾性散乱実験は、必要不可欠かつ重要な役割を担っている。今後も中性子実験の特徴を最大限活用して、CuO2リボン鎖系やその他の遷移金属酸化物の異常物性研究を進展させていきたい.

### 6. 謝辞

本研究は佐藤正俊 名古屋大学名誉教授(現 CROSS, コーディネーター), 寺崎一郎 教授(名 古屋大学), 小林義明 准教授(名古屋大学), 加倉 井和久 部門長(JAEA) との共同研究の成果です. ここに深く感謝致します.また,この他の共同研 究者の皆様や所属していた研究室の大学院生の皆 さんにもご支援とご助言を頂きました.紙面の都 合上,全ての方のお名前を挙げられず申し訳あり ませんが,この場を借りて改めて御礼を申し上げ ます.なお,本研究は科研費特定領域「フラスト レーションが創る新しい物性」公募研究(No. 22014005)の支援を一部受けて行いました.

### 参考文献

- [1] T. Kimura et al., Nature (London) 426, 55 (2003).
- [2] G. Lawes *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95**, 087205 (2005).
- [3] R. Bursill *et al.*, J. Phys.; Condens. Matter 7, 8605 (1995).
- [4] Y. Naito *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 023708 (2007).
- [5] Y. Yasui *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 023712 (2008).
- [6] M. Sato et al., Solid State Science 12, 670 (2010).
- [7] S. Park et al., Phys. Rev. Lett. 98, 057601 (2007).
- [8] Y. Yasui et al., J. Phys. Soc. Jpn. 78, 084720 (2009).
- [9] Y. Kobayashi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 084721 (2009).
- [10] Y. Yasui et al., J. Phys. Soc. Jpn. 80, 033707 (2011).
- [11] Y. Yasui et al., J. Phys.: Conf. Ser. 320, 012087 (2011).
- [12] Y. Yasui et al., J.Appl. Phys., No.4, (2013) in press.
- [13] Hikihara et al.: Phys. Rev. B 78, 144404 (2008).
- [14] S.Furukawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105**, 257205 (2010).
- [15] S.Furukawa *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 094417 (2012).
- [16] B. J. Gibson et al., Physica B 350, e253 (2004).
- [17] H. Katsura *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
- [18] M. Mostovoy, Phys. Rev. Lett. 96, 067601 (2006).
- [19] H. J. Xiang *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 257203. (2007).
- [20] C. Jia et al., Phys. Rev. B 76, 144424 (2007).
- [21] L.E.Svistov et al., JETP Lett. 93, 21 (2011).
- [22] M. Hase et al., Phys. Rev. B 70, 104426 (2004).
- [23] M. Hase et al., J. Appl. Phys. 97, 10B303 (2005).
- [24] Y. Yasui et al., submitted to Phys. Rev. B.

安井 幸夫 (やすい ゆきお)

略歴:1999 年,名古屋大学博士号修得,博士(理学). 1999 年 学振特別研究員(PD).2002 年 名古屋大学

大学院理学研究科助手,2007 年 助教へ職名変更,2012年 明 治大学理工学部准教授.

- 所属:明治大学理工学部物理学科 准教授
- e-mail : yyasui@meiji.ac.jp

專門:固体物性物理学実験

趣味:旅行,研究,スイーツ巡り

