

$\theta_i - \theta_j \rightarrow 0$ も $x_i - x_j \rightarrow 0$ も同様に達成される (図 2 参照). しかし同タイプでも基本周波数が異なる場合, 及び異種タイプの振動子同士の場合, $\theta_i - \theta_j \rightarrow$ 一定値は実現しても, $x_i - x_j \rightarrow 0$ とはならない (図 3, 図 4 参照). 本来, 異なる非線形方程式の解が完全に一致することはありえない. しかし非線形結合を用いて, それぞれの振動波形を大きく変え, リズムだけは合わせることが可能であることを本研究は示している.

リズム同期は生物界から工学系まで注目される重要な機能である. しかしながら, これまでの 2 種の同期法ではリズム同期の数学モデルと生体系との生物学的な関連が, 必ずしも明確ではなかったように思う. これに対し, 第 3 の方法は, 生体系のあらゆる問題において極めて重要な役割を果たす受容体 (レセプター) の機能そのものが, 生体系のリズム同期の要, キーになれることを明確に示している. 本研究がきっかけとなり生体系の理解が更に進むことを期待している.

参考文献

1) A. S. Pikovsky, M. G. Rosenblum and J. Kurths: 'Synchronization: A Universal Concept in Nonlinear Sciences' (Cambridge Univ. Press, 2001).

2) 田中久陽, 大石進一: 日本物理学会誌 **53** (1998) 200.
 3) 蔵本由紀, 川崎恭治, 山田道夫, 甲斐昌一, 篠本 滋: 「パターン形成」(朝倉書店, 1991) p. 149.
 4) 前田靖男編: 「モデル生物: 細胞性粘菌」(アイビーシー出版, 2000).
 5) 長野正道: 応用物理 **70** (2001) 941.
 6) S. Nagano: Develop. Growth. Differ. **42** (2000) 541.
 7) S. Nagano: Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 4826.
 8) S. Nagano: Prog. Theor. Phys. **103** (2000) 229.
 9) S. Nagano: Prog. Theor. Phys. **107** (2002) 861.
 10) 戸田盛和, 渡辺慎介: 「非線形力学」(共立出版, 1991) p. 73.
 11) 中山恒義: 「物理数学 (II)」(裳華房, 2001) p. 141.

(2002 年 5 月 27 日原稿受付)

A New Mutual Synchronization Method Taught by the Cellular Slime Mold

Seido Nagano

abstract: A new method for the mutual rhythm synchronization is derived. In this method, one variable to describe a limit cycle oscillator is replaced with the linear coupling of the same type of variables of individual oscillators. Thus, the globally synchronization of limit cycle oscillators can be achieved. This way of coupling between oscillators is the mathematical generalization of biological receptors of the cellular slime mold.

最近の研究から

スピニアイス系の磁気相関

- 安井幸夫 <名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻 464-8602 名古屋市千種区不老町 e-mail: yas@edu3.phys.nagoya-u.ac.jp>
 金田昌基* <名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻 464-8602 名古屋市千種区不老町>
 佐藤正俊 <名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻 464-8602 名古屋市千種区不老町 e-mail: e43247a@nucc.cc.nagoya-u.ac.jp>
 門脇広明 <東京都立大学大学院理学研究科物理学専攻 192-0397 東京都八王子市南大沢 1-1 e-mail: kadowaki@phys.metro-u.ac.jp>

パイロクロア型酸化物 $R_2Ti_2O_7$ (R =希土類元素) では, R^{3+} の磁気モーメントがある条件を満たすときに, よく知られた氷の構造のフラストレーションの問題と同様な問題が生じる (いわゆるスピニアイス系). ここでは $Ho_2Ti_2O_7$ の単結晶を用いて行われた中性子散乱実験結果を主たる例として, 低温で実現する状態について, 磁気相関の特徴やスピングラスの状態への移行の様子を見ながら議論する.

1. はじめに

パイロクロア型酸化物 $A_2B_2O_7$ は種々の興味で活発な研究がなされている. 例えば, $Nd_2Mo_2O_7$ の異常ホール抵抗の特異な振舞は, 異常ホール効果に関するこれまでの理解が不完全であったことを示しているように見える.¹⁻⁵⁾ また, この系のフラストレーションの問題は, 三角格子・カゴメ格子系のものとともに多くの議論の対象となっている.

* 現在, 日立製作所勤務.

フラストレートした金属・絶縁体転移系の例として, その物性にも興味を持たれる.⁶⁾ この系は A_4 , B_4 正四面体のそれぞれ独立な頂点連結ネットワークで形成されているが (図 1 左), A または B 原子が磁気モーメントを持ち, さらにそれらがある条件を満たすとき, 幾何学的なフラストレーションが生じる. 最も簡単なモデルは, 最近接のスピ間に反強磁性の交換相互作用が働く場合である. 正四面体上のあるスピンを仮に上向きとした場合, 隣のスピンは反

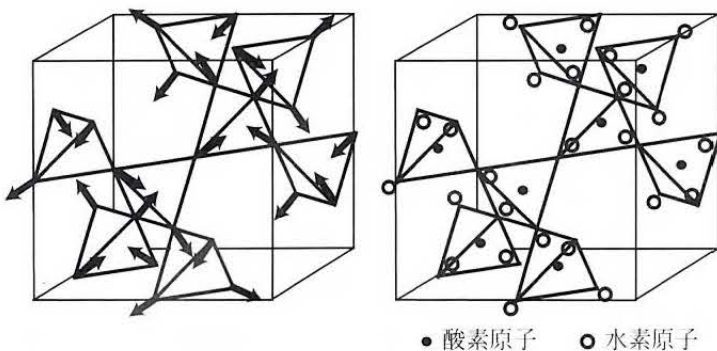


図1 左: スピネル型化合物 $A_2B_2O_7$ の A 元素位置を模式的に示す。矢印は分子場を用いた取り扱いて得られるスピン構造を示す。右: H_2O 固体(氷)の構造。正四面体の中心に酸素イオンが位置し、周囲の水素イオンのうち2つが主軸上を四面体頂点位置から酸素イオンに近づく方へ、他の2つが遠のく方へシフトした位置をとる。

強磁性相互作用により下向きになろうとする。しかし、隣り合うすべてのスピンが反対向きになるような配置を決められず、フラストレートした状態となる。このような場合、有限温度では長距離磁気秩序を持たないことが理論的に示されており、⁷⁾ また現実の系では、 $Y_2Mo_2O_7$ ⁸⁾ や $R_2Ru_2O_7$ ($R=Y$, 希土類元素)⁶⁾ 等で報告されているように、低温でスピングラス状態になることが多い。

一方、強磁性的な交換相互作用が働く場合はどうであろうか。この場合はすべてのスピンが同じ方向を向くことができるので、フラストレーションは存在しない。しかし、スピんにイジング的な異方性が働く場合(スピンの向く方向が正四面体の重心と頂点を結ぶ方向に固定され、正四面体の内向きあるいは外向きという2つの自由度しか持たない場合)には興味深い現象が起こる。1つの正四面体を考えた場合、スピン系の基底状態は4つのスピンのうち2つが容易軸方向内向き、残りの2つが外向きのいわゆる“2-in 2-out”構造をとる(図1左)が、2つの外向き(内向き)スピンの選び方が6通りあるので、正四面体の3次元ネットワーク全体では大きな自由度が残ることになる。これは H_2O 固体(氷)の水素イオンの位置の選び方に関するフラストレーションの問題⁹⁾ と等価なものを与えているので、スピンアイスと呼ばれる。^{10, 11)} すなわち、氷の中では酸素イオンがその周囲にある4つの水素イオンのうちの2つと共有結合し、残りの2つと水素結合している。この時、結合の仕方により水素イオンが四面体の重心位置にある酸素に近づくか遠ざかるかの変位をしており(図1右)、その変位方向の選び方をスピンの向きに完全に対応させることができる。このとき、基底状態が大きな縮退、もしくは大きな残留エントロピーで特徴づけられるので、興味をひきつけてきた。しかし、実験面からは低温で水素イオンの運動が遅くなること等のため十分なデータが得られていない。一方、スピンアイス系では、スピン構造の研究によって氷の問題と等価な研究が比較的短い時間スケールで精度よく

調べられる。また、磁場や一軸性圧力を印加して部分的にフラストレーションを解消させることにより、氷の場合とは異なるフラストレーション現象の研究も可能である。

2. $R_2Ti_2O_7$ ($R=Ho, Dy$)

$R_2Ti_2O_7$ ($R=Ho, Dy$) は、磁性を担う Ho^{3+} ($4f^{10}, J=8, gJ=10\mu_B$), Dy^{3+} ($4f^9, J=15/2, gJ=10\mu_B$) を A サイトに、磁性を持たない Ti^{4+} を B サイトに持つ。 $Ho_2Ti_2O_7$ では帯磁率の温度依存性がキュリー-ワイスの表式でほぼ説明され、ワイス温度 θ_w が約 1 K の強磁性的相互作用が働いていることがわかった¹²⁾ ($Dy_2Ti_2O_7$ の θ_w は 0.5 K ¹⁰⁾), $Ho_2Ti_2O_7$ ¹³⁾ や $Dy_2Ti_2O_7$ ¹⁴⁾ では低温において異方的な磁化曲線が観測されている。飽和磁化は磁場印加方向が $[001]$, $[111]$, $[110]$ の順に大きく、また、 $[111]$ 方向に磁場を印加した場合には 0.5 T 付近で磁化曲線に異常が見られた。この振舞は磁気モーメントが強いイジング異方性を持ち、かつ約 1 K の強磁性的相互作用が働いていると考えると自然に理解できる。¹⁴⁾ 中性子非弾性散乱による結晶場励起の測定結果から、 $Ho_2Ti_2O_7$ の結晶場準位の基底状態が、強いイジング異方性を示す $|J, J_z\rangle = |8, \pm 8\rangle$ であることがわかった。¹⁵⁾ 以上のことから、これらの系はスピンアイスの条件を満たしていると考えられる。実際、 $Ho_2Ti_2O_7$ では θ_w が約 1 K にも拘わらず 46 mK まで長距離磁気秩序が存在しない。¹⁶⁾ $Dy_2Ti_2O_7$ の比熱を 0.2 K までゼロ磁場中及び 0.5 T の磁場中で測定し、磁気モーメントのエントロピーを計算したところ、ゼロ磁場中では $(R/2)\ln(3/2)$ 程度の残留エントロピーが、0.5 T の磁場中ではその半分程度の残留エントロピーが残るとラミレス (A. P. Ramirez) らによ

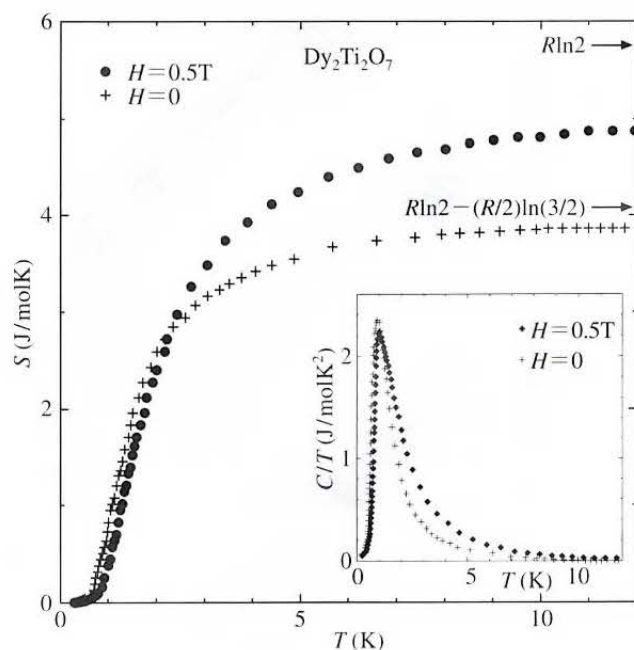


図2 $Dy_2Ti_2O_7$ の比熱(挿入図)から見積もったエントロピー(データは文献10から引用)。

り報告されている(図2).¹⁰⁾ $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ においても比熱測定から, $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ と同程度の大きさの残留エントロピーがあることがわかっている.¹⁷⁾ この $(R/2)\ln(3/2)$ という値が氷の水素イオンの位置に関する残留エントロピーの期待値と一致している⁹⁾ ように見えることも, これらがスピンアイスモデル物質系であることを示唆している. これらの系の磁気構造を調べれば, 氷のフラストレーションに関する問題への知見が得られる. ただし後で議論するが, これらの系では磁気モーメント間の相互作用として双極子相互作用が支配的になっていることがわかり, この場合には縮退が解け, 厳密にはスピンアイスモデルとは異なっている可能性がある.

3. 中性子散乱

$\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ について微視的磁性を知るのに有用な手段で

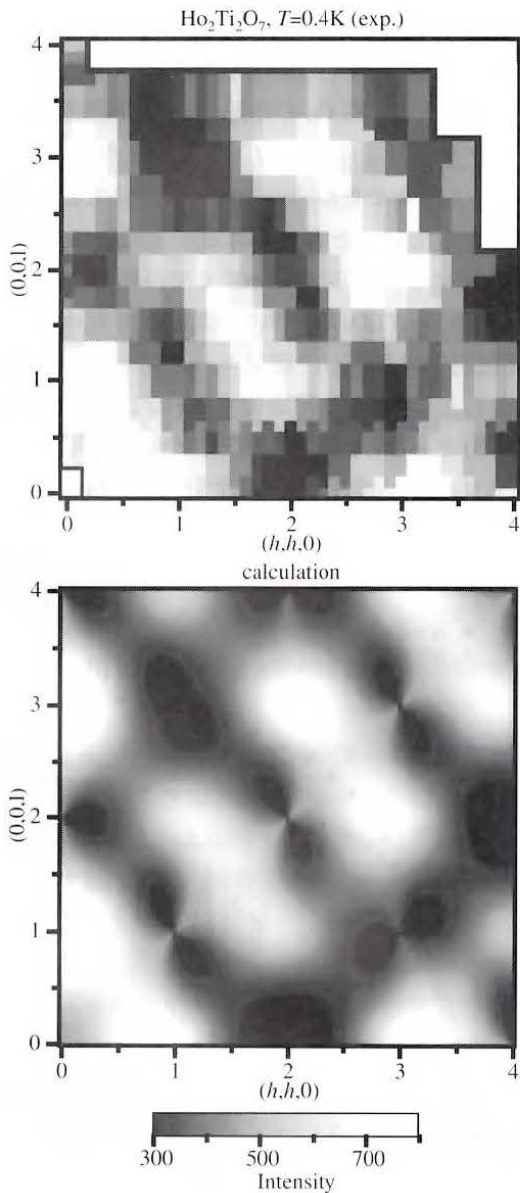


図3 上: $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の (h, h, l) 面内における磁気散乱強度マップ, $T=0.4\text{ K}$. 下: 式(4)を強度マップにフィットした結果.

ある中性子散乱を行い, 低温での磁気相関を調べた. 中性子散乱実験は単結晶を用いて日本原子力研究所改造3号炉のT1-1及びC1-1で行った. 詳しい実験条件・実験データは文献12を参照してもらいたい. 0.4 K で測定した (h, h, l) 面内の磁気散乱強度をマップで示したものが図3上である. 核散乱からの寄与は除いてある. 磁気散乱ピークは主に $(0.8, 0.8, 0)$, $(3.2, 3.2, 0)$, $(0, 0, 1)$, $(0, 0, 3)$ に観測され, $(1.5, 1.5, 1.5)$ や $(2.5, 2.5, 2.5)$ 付近にも島状の強度の強い部分が見られる. 散乱強度のピークと底にあたる逆格子点 $Q=(0, 0, 3)$, $(0.9, 0.9, 3)$ での強度の温度依存性を図4に示す. 温度下降に伴い約 30 K あたりから強度が Q にはっきり依存するようになり, 短距離磁気相関が発達してくることがわかる. この $Q=(0, 0, 3)$ の散乱強度を温度上昇または下降させながら 0.4 K まで測定した結果, 約 1.5 K 以下で散乱強度の温度による履歴がはっきり見られた. このことから, その温度あたりから Ho^{3+} 磁気モーメントの動きが非常に緩慢になってくることがわかった. 0.4 K まで急冷すると, 動きの遅くなった磁気モーメントが徐々に向きを変えて, 散乱強度の Q 依存性が時間経過とともに大きくなっていくが, これが完全に飽和するには数時間程度を要することがわかる(図4挿入図). 直流帯磁率や交流帯磁率 χ' と χ'' の測定でも, 温度下降の際に, 長距離秩序が成長する前にスピンの凍結することが示されている.^{18, 19)} なお, $\text{R}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$ ($\text{R}=\text{Ho}, \text{Dy}$) も同様の現象を示す系として粉末中性子散乱実験が行われ, ここで紹介した単結晶に対する結果とコンシステントな結果を与えている.²⁰⁾

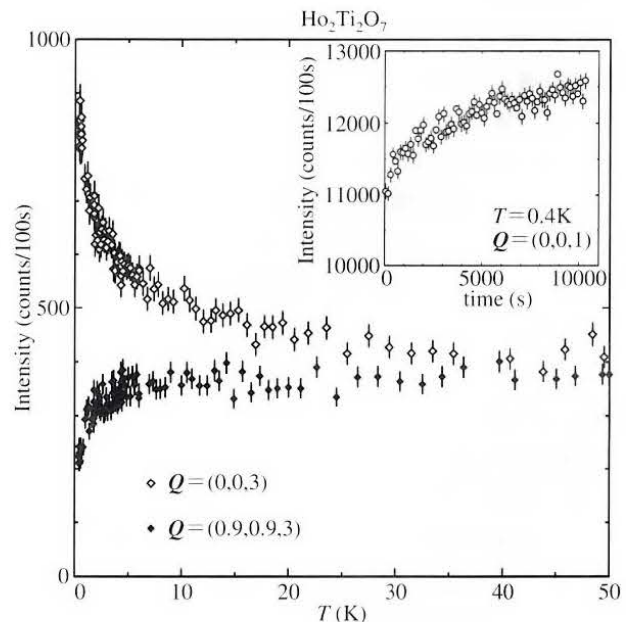


図4 $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の $Q=(0, 0, 3)$ および $Q=(0.9, 0.9, 3)$ における散乱強度の温度依存性. 挿入図は 0.4 K まで急冷した後の $Q=(0, 0, 1)$ における散乱強度の時間依存性.

4. 分子場近似による解析

(h, h, l) 面内の磁気散乱散乱強度の Q 依存性を分子場近似を用いて解析してみた。スピン系のハミルトニアンを次のように2次形式で記述する。^{12,20)}

$$\begin{aligned}
 H = & \sum_{n, \nu, \alpha, n', \nu', \beta} J_{n, \nu, \alpha; n', \nu', \beta} \mathbf{S}_{n, \nu, \alpha} \cdot \mathbf{S}_{n', \nu', \beta}, \\
 = & -D_a \sum_{n, \nu} [(\mathbf{n}_\nu \cdot \mathbf{S}_{n, \nu})^2 - |\mathbf{S}_{n, \nu}|^2] \\
 & - J_1 \sum_{\langle n, \nu; n', \nu' \rangle} \mathbf{S}_{n, \nu} \cdot \mathbf{S}_{n', \nu'} + D_{dp} r_{nn}^3 \\
 & \times \sum_{\langle n, \nu; n', \nu' \rangle} \left[\frac{\mathbf{S}_{n, \nu} \cdot \mathbf{S}_{n', \nu'}}{|\mathbf{r}_{n, \nu; n', \nu'}|^3} \right. \\
 & \left. - \frac{3(\mathbf{S}_{n, \nu} \cdot \mathbf{r}_{n, \nu; n', \nu'}) (\mathbf{S}_{n', \nu'} \cdot \mathbf{r}_{n, \nu; n', \nu'})}{|\mathbf{r}_{n, \nu; n', \nu'}|^5} \right]. \quad (1)
 \end{aligned}$$

ここで、 $\mathbf{r}_{n, \nu; n', \nu'}$ は並進ベクトル \mathbf{t}_n と primitive cell 内のスピンの位置ベクトル \mathbf{d}_ν ($\nu=1\sim 4$) を使って、 $\mathbf{r}_{n, \nu; n', \nu'} = \mathbf{t}_n + \mathbf{d}_\nu - \mathbf{t}_{n'} - \mathbf{d}_{\nu'}$ と表される。 $\mathbf{S}_{n, \nu, \alpha}$ は $\mathbf{t}_n + \mathbf{d}_\nu$ におけるスピンの α 成分 ($\alpha=x, y, z$) である。第二式の右辺の項は順に一軸異方性、交換相互作用、双極子相互作用を示している。第一項の D_a は異方性パラメーター、 \mathbf{n}_ν は容易軸のベクトルである。第二項では最近接原子間のみを考えている。 D_{dp} は磁気モーメントの大きさと最近接原子間距離により決まり、この系での値は 1.4 K である。

$\sum_{n', \nu', \beta} J_{n, \nu, \alpha; n', \nu', \beta} \mathbf{S}_{n', \nu', \beta}$ に比例した分子場が $\mathbf{S}_{n, \nu, \alpha}$ の位置に働くものとして計算を進めるのが、ここでの考え方である。対象とするスピンの大きいため、それを古典スピンと考え、式 (1) の $J_{n, \nu, \alpha; n', \nu', \beta}$ で表される行列 (12×12) を対称行列として扱う。

$J_{n, \nu, \alpha; n', \nu', \beta}$ のフーリエ変換、

$$J_{q; \nu, \alpha; \nu', \beta} = \sum_n J_{n, \nu, \alpha; n', \nu', \beta} \exp[-i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{t}_n + \mathbf{d}_\nu - \mathbf{t}_{n'} - \mathbf{d}_{\nu'})] \quad (2)$$

(\mathbf{q} は第一ブリュアンゾーン内の波数ベクトル) を求め、その $J_{q; \nu, \alpha; \nu', \beta}$ がつくる行列 (12×12) の固有値 $\lambda_q^{(\sigma)}$ と固有ベクトル $\mathbf{u}_{q; \nu, \alpha}^{(\sigma)}$ ($\sum_{\nu', \beta} J_{q; \nu, \alpha; \nu', \beta} \mathbf{u}_{q; \nu', \beta}^{(\sigma)} = \lambda_q^{(\sigma)} \mathbf{u}_{q; \nu, \alpha}^{(\sigma)}$) を用いると、波数に依存した帯磁率 $\chi_{q; \nu, \alpha; \nu', \beta}$ が単純な演算によって次のようになることがわかる。

$$\chi_{q; \nu, \alpha; \nu', \beta} \propto \sum_\sigma \frac{\mathbf{u}_{q; \nu, \alpha}^{(\sigma)} \mathbf{u}_{q; \nu', \beta}^{(\sigma)*}}{3k_B T - 2\lambda_q^{(\sigma)}}. \quad (3)$$

また、これは準弾性散乱近似 (ここでは良く成立することが実験的に確かめられている) の範囲で中性子散乱強度 $I(\mathbf{G} + \mathbf{q})$ (\mathbf{G} : 逆格子ベクトル) と

$$\begin{aligned}
 I(\mathbf{Q} = \mathbf{G} + \mathbf{q}) \propto & f(\mathbf{Q})^2 k_B T \sum_{\alpha, \beta, \nu, \nu'} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{Q}_\alpha \hat{Q}_\beta) \\
 & \times \chi_{q; \nu, \alpha; \nu', \beta} \cos[\mathbf{G} \cdot (\mathbf{d}_\nu - \mathbf{d}_{\nu'})] \quad (4)
 \end{aligned}$$

の関係で結ばれるものである。 $f(\mathbf{Q})$ は磁気形状因子である。ここから、予想されるキュリー温度 T_C^{MF} は、最大の固有値 $\lambda_{q, \text{max}}$ を用いて、 $T_C^{\text{MF}} = 2\lambda_{q, \text{max}}/3k_B$ である。この

$\lambda_{q, \text{max}}$ の波数 \mathbf{q} がこの分子場による取り扱いが予想する磁気構造の波数を与える。以上の関係を用い、有効温度 T と J_1 およびスケール因子をパラメーターとして、観測された強度にフィッティングを行ってみた (詳細は文献 12, 20)。解析の結果、強いイジング異方性 (ここでは $D_a = 810 \text{ K}$ とした) と双極子相互作用 ($D_{dp} = 1.4 \text{ K}$) を取り入れることにより、実験で得られた散乱強度マップの特徴を再現することができた (図3下)。この取り扱いによる温度 T は 1.91 K であった。 J_1 の値をゼロとしてもゼロでない値を用いても結果は大きく変わらないので、最近接交換相互作用が重要な役割を担っていることはないようである。この解析で得られたキュリー温度 T_C^{MF} は 1.9 K で、その時の磁気構造は図1左に示したのものにある (もちろん実際の転移は 46 mK まで見られていない)。分子場によるこの扱いは揺らぎが大きいところで近似が悪くなると考えられるが、実際には図3のように実験結果をほぼ再現する。相関長の成長が抑えられていることがその理由とする説もあるが、そもそも相関長が伸びない原因が振幅の大きな揺らぎであることを考えれば、そう簡単でもない。しかし、同時期に行われたモンテカルロ法による解析結果も、この系では強いイジング異方性と双極子相互作用が支配的であると、^{17,21)} さらに同じ磁気構造のオーダーを結論づけていることは、ここでの取り扱いが意味のあるものであることを示すようである。双極子相互作用は最近接原子間においては強磁性的に働くが、長距離までの相互作用が無視できないために、これらの系はスピンアイス系と区別して双極子スピンアイスとも呼ばれている。

5. 双極子スピンアイスの基底状態

双極子スピンアイスでは厳密には縮退が解け基底状態が1つに決まるようである。しかし、実際の系においてはこのような長距離秩序は存在せず、磁気短距離秩序を持ったスピクラスタが、動きの緩慢な状態を作っているにとどまっていると思われる。この理由は以下のように考えられる。最近接スピン間だけに交換相互作用 (強磁性的) が働き、さらに強いイジング異方性を持つ、本来のスピンアイス系では、“2-in 2-out” の条件を満たすスピン配列のあらゆる組み合わせが縮退している。このとき [001] 軸や [hhh] 軸に沿った領域での散乱強度が強くなると、分子場近似を用いた計算等から期待される (もちろん、長距離秩序はない)。しかし、双極子スピンアイス系である $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ では [001] 軸上の強度が (0, 0, 1) や (0, 0, 3) 付近へ、[hhh] 軸上の強度が (1.5, 1.5, 1.5) や (2.5, 2.5, 2.5) 付近に集まっているように見える。このことは長距離相互作用の存在で、“2-in 2-out” 構造が連結したパターンのうちで、図1左もしくはそれに近いスピン構造を持つクラスタ

ーの存在確率が増加したことに伴って、散乱強度のピーク幅等から 0.4 K での相関長を見積ると第二近接間隔より少し長いものになっていることがわかった。この程度の距離内にあるいくつかの四面体のスピクラスタでは、“2-in 2-out”の条件を満たすかぎり、そのスピンの配列が異なっても、0.5 K 程度の小さなエネルギー範囲内に縮退している。もちろん双極子相互作用のエネルギーが得をするパターンはこれの中でもエネルギーの低い位置にある。温度を下げていくと、30 K 付近から磁気相関が発達してくるが、さらに温度を下げた場合(双極子相互作用により短距離秩序パターン同士のエネルギー縮退が解けてはいるが)、それらのエネルギー差よりまだ温度が高く、多くの短距離秩序パターンを持つクラスタが混在するうちに、スピンの動きが緩慢になり徐々に凍結していく。その結果、異なる短距離秩序パターンのスピクラスタが混在した状態が低温まで観測されることになる。

6. まとめ

パイロクロア型化合物 $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の単結晶試料を用いた中性子散乱により、 (h, h, l) 面内における磁気散漫散乱強度の温度依存性・ Q 依存性を、 $T=0.4$ K まで測定し、主としてその結果を議論した。散乱強度マップについて行った解析は、磁気モーメント間に働く相互作用が、強いイジング異方性のほかに双極子相互作用が重要であることを示す。このような双極子スピンアイス系でも、異なる短距離秩序パターンをもつ多くのスピクラスタが、実効的には縮退したとみなせるエネルギーを持って混在する。このことがこの系の本質的特徴と思われる。異なったクラスタの混在という、いわばランダムネスを持った状態の温度を下げていくとき、1つの基底状態が選択される前に、スピンの凍結が起こるようである。

最後に [111] 方向 (1つの磁気モーメントの主軸方向) や [110] 方向 (2つの磁気モーメントを結んだ線方向) などに磁場や一軸性圧力を印加し、部分的にフラストレーションを解消させることができることを付け加えておきたい。この場合には氷に対するものと異なったタイプのフラストレーション現象が生じるので、新たな興味がわくものになっている。

本稿で紹介した研究は名古屋大学の伊藤雅典氏、原科浩氏、日本原子力研究所加倉井和久氏との共同研究である。実験は日本原子力研究所の改3号炉内に設置された東大物性研のスペクトロメーターを用いて行われた。ここに感謝する次第である。

参考文献

- 1) S. Yoshii, S. Iikubo, T. Kageyama, K. Oda, Y. Kondo, K. Murata and

- M. Sato : J. Phys. Soc. Jpn. **69** (2000) 3777.
 2) Y. Yasui, Y. Kondo, M. Kanada, M. Ito, H. Harashina, M. Sato and K. Kakurai: J. Phys. Soc. Jpn. **70** (2001) 284.
 3) T. Kageyama, S. Iikubo, S. Yoshii, Y. Kondo, M. Sato and Y. Iye: J. Phys. Soc. Jpn. **70** (2001) 3006.
 4) Y. Yasui, S. Iikubo, H. Harashina, T. Kageyama, M. Ito, M. Sato and K. Kakurai: J. Phys. Soc. Jpn. に投稿中.
 5) Y. Taguchi, Y. Oohara, H. Yoshizawa, N. Nagaosa and Y. Tokura: Science **291** (2001) 2573.
 6) S. Yoshii, K. Murata and M. Sato: J. Phys. Soc. Jpn. **69** (2000) 17.
 7) J. N. Reimers: Phys. Rev. B **45** (1992) 7287.
 8) J. E. Greedan, M. Sato and X. Yan: Solid State Commun. **59** (1986) 895.
 9) L. Pauling: *The Nature of the Chemical Bond* (Cornell Univ. Press, Ithaca, 1945) p. 301.
 10) A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava, R. Siddharthan and B. S. Shastry: Nature **399** (1999) 333.
 11) M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow, T. Zeiske and K. W. Godfrey: Phys. Rev. Lett. **79** (1997) 2554.
 12) M. Kanada, Y. Yasui, Y. Kondo, S. Iikubo, M. Ito, H. Harashina, M. Sato, H. Okumura, K. Kakurai and H. Kadowaki: J. Phys. Soc. Jpn. **71** (2002) 313.
 13) Y. Yasui, M. Kanada, M. Ito, H. Harashina, M. Sato, H. Okumura, K. Kakurai and H. Kadowaki: J. Phys. Soc. Jpn. **71** (2002) 599.
 14) H. Fukazawa, R. G. Melko, R. Higashinaka, Y. Maeno and M. J. P. Gingras: Phys. Rev. B **65** (2002) 054410.
 15) S. Rosenkranz, A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava, R. Siddharthan and B. S. Shastry: J. Appl. Phys. **87** (2000) 5914.
 16) M. J. Harris, S. T. Bramwell, T. Zeiske, D. F. McMorrow and P. J. C. King: J. Mag. Mag. Mater. **177-181** (1998) 757.
 17) S. T. Bramwell, M. J. Harris, B. C. den Hertog, M. J. P. Gingras, J. S. Gardner, D. F. McMorrow, A. R. Wildes, A. L. Cornelius, J. D. M. Champion, R. G. Melko and T. Fennell: Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 047205.
 18) K. Matsuhira, Y. Hinatsu, K. Tenya and T. Sakakibara: J. Phys. Condens. Matter **12** (2000) L649.
 19) K. Matsuhira, Y. Hinatsu and T. Sakakibara: J. Phys. Condens. Matter **13** (2001) L737.
 20) H. Kadowaki, Y. Ishii, K. Matsuhira and Y. Hinatsu: Phys. Rev. B **65** (2002) 144421.
 21) S. T. Bramwell and M. J. P. Gingras: Science **294** (2001) 1495.

(2002年7月15日原稿受付)

Magnetic Correlation of Spin Ice Systems

Yukio Yasui, Masaki Kanada, Masatoshi Sato

and Hiroaki Kadowaki

abstract: Magnetic moments of R^{3+} ions of $R_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ($R=\text{Ho}, \text{Dy}$) with large Ising anisotropy provide the problem of the geometrical frustration which is (almost) equivalent to that of solid H_2O . To investigate what kind of magnetic state is realized in these systems at low temperature, we have carried out neutron diffraction experiments on a single crystal of $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. The observed correlation pattern can be reproduced by the molecular field treatment and the Monte-Carlo simulation, where the dipolar interaction plays an important role. Although the degeneracy is, strictly speaking, mostly lifted due to the interaction, the system does not exhibit the magnetic ordering. Instead, with decreasing temperature, before reaching the long range ordered state, it gradually goes into the glassy state, as a result of the coexistence of many spin clusters which have short range magnetic order with different but almost degenerated energies.