

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03682

研究課題名(和文) 精密磁場方向制御による極低温磁化測定の実現と異方的強相関系の研究

研究課題名(英文) Experimental technique for the low-temperature magnetization measurements with a precise tuning of the field direction and its application to strongly correlated systems with strong anisotropy

研究代表者

榊原 俊郎 (Sakakibara, Toshiro)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：70162287

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 10,800,000円

研究成果の概要(和文)：キャパシタンス式ファラデー法磁化測定装置に二軸のゴニオメーターを導入することにより、0.1度の角度精度下で極低温の磁化測定を実現することに成功した。この装置を用いて、遍歴イジング強磁性体URhGeの強磁性量子相転移の磁場温度相図を詳細に調べ、1次転移のウィング構造の可視化に成功した。また、スピナイス化合物Dy₂Ti₂O₇の[111]磁場方向の気相液相転移について、0.1度の精度で磁場を[111]軸にかけた測定を初めて行った。その結果、十分低温においても転移磁場に本質的な幅があり、磁気モノポールの結晶化転移の過程で何らかの空間構造が存在する可能性が明らかとなった。

研究成果の概要(英文)：Experimental technique for the low-temperature magnetization measurements with a fine tuning of the field orientation has been developed. Using this technique, we studied a field-induced quantum phase transition of the itinerant Ising ferromagnet URhGe and obtained the detailed structure of the wing phase diagram below the tricritical point. We also examined the liquid-gas transition of spin ice Dy₂Ti₂O₇ in a magnetic field by precisely tuning the field direction along the [111] axis. We confirmed that the first-order transition occurring near 0.9T has an intrinsic width of about 0.5T even at very low temperatures. The results suggest the presence of some spatial structure in the monopole crystallization transition.

研究分野：固体物理学

キーワード：極低温磁化測定 フラストレート系 強相関電子系 磁性

1. 研究開始当初の背景

低次元量子スピン化合物や重い電子系物質などの強相関物質の研究においては、0.1 K 以下の低温領域の磁化測定が必要になることがある。このような温度領域の磁化測定は容易ではなく、既製の実験装置では実現できない。代表者は独自の方法 (キャパシタンス式ファラデー法) による磁化測定技術の開発を行い、現在、最低到達温度は 50 mK、最大磁場 17 T で測定が行える環境にある。ところで、強相関物質の中には低次元性や磁気異方性を反映して、極めて狭い磁場方向のみで興味ある現象を示すものが少なくない。このような系を効率的に測定するためには、連続的に試料の方位を変化させながら磁化測定が行える技術が必要になった。

2. 研究の目的

本研究では、代表者がこれまでに開発したキャパシタンス式極低温磁化測定装置に、試料方位を 2 軸で制御できるゴニオメータを導入し、垂直磁場下で磁化を測りながら試料方位の微調整を可能にし、限られた角度範囲ではあるが連続的な磁場方向依存性の測定を実現する。開発した装置を用いて、磁場方位に敏感な強相関物質 URhGe および $Dy_2Ti_2O_7$ について精密な磁場方向制御可の測定を行う。

3. 研究の方法

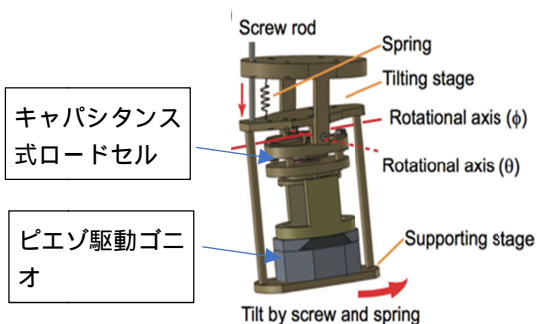


図 1 . 二軸制御機構

本研究で用いるキャパシタンス式極低温磁化測定装置は、磁場勾配下の試料に働く力を小型のキャパシタンス式ロードセルを用いて検出することで、磁化を得る。このキャパシタンス式ロードセルを図 1 に示すような二軸の回転機構に乗せることによって、角度変化を実現する。二軸回転機構は、手動式

の回転、およびピエゾ駆動ゴニオによる回転からなり、それぞれの回転軸は試料位置で互いに直交している。

4. 研究成果

本課題の主要な成果について、以下に述べる。

遍歴強磁性体 URhGe における磁場誘起量子相転移

遍歴強磁性体の量子相転移は多くの場合、一次転移となることが知られている。この 1 次転移の領域は、秩序変数である磁化に平行な磁場下でウィング状に広がった特徴的な相図を示すことが理論的に知られている。しかし殆どの系では圧力が制御変数であるために、一次転移の詳細な相図を調べるのが困難であった。直方晶 URhGe は c 軸磁化容易軸のイジング強磁性体 ($T_c=9.5$ K) で、図 2 に示すように磁化容易軸に垂直な b 軸方向の磁場によって磁気転移温度を制御できるユニークな系である。約 12 T の b 軸磁場で一次の量子相転移 (c 軸磁化成分の消失) を示すことが知られているが、この臨界磁場付近で c 軸に磁場を振ることにより、一次転移の相図の詳細が得られる。実際には bc 面内で磁場を b 軸から c 軸へ少し傾けながら磁化測定を行えば良い。そこで 2 軸制御の磁化測定装置を用いて、 b 軸近傍の精密な角度制御のもとで磁化測定を 150 mK まで行った。

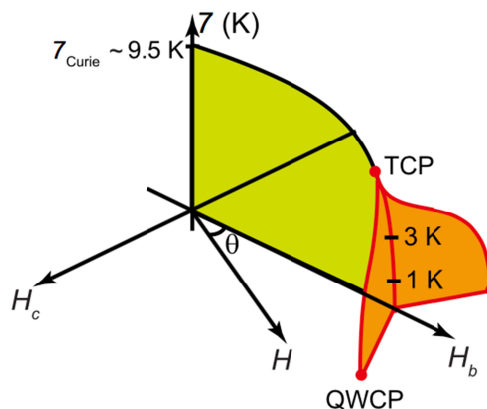


図 2 . URhGe の磁気相図 (概略図)

図 3 は磁化 (概ね b 軸成分) の磁場微分のピーク値を温度と c 軸磁場成分 H_c について二次元マッピングしたもので、信号の強い領域が一次転移に対応する。一次の量子相転移は H_c に対してウィング状に広がり、温度を上げていくと三重臨界点 TCP で閉じて二次転移に移行する。実験結果はこの様子をよく示しており、TCP は少なくとも

4 K 以上であることが示唆される。これは多くの先行研究の報告と比較してかなり高い温度であるが、図2からはTCPの正確な決定にはbc面内でb軸から0.5度以内に磁場方位を制御する必要があることがわかった。

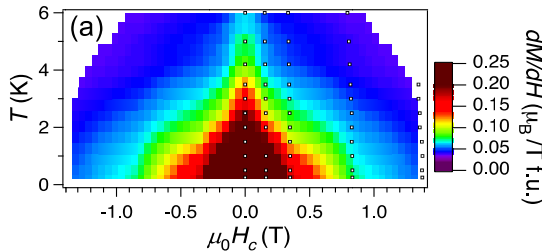


図3 . URhGeのウィング相図(実測結果)

スピナイス $Dy_2Ti_2O_7$ における気相・液相転移の再考

$Dy_2Ti_2O_7$ は Dy イオンがパイロクロア格子を形成し、基底状態では4面体ユニットの Dy スピンは2つが内向きで2つが外向きの”2-in 2-out”状態をとり、マクロに縮退している。[111]方向に磁場をかけると、 $H_{LG} \sim 0.9T$ において磁化の不連続な飛びを伴う気相液相型の1次転移を起こして、縮退のない”3-in 1-out”状態へと変化することが知られている。以前の測定結果では、 H_{LG} における1次転移の磁化の立ち上がりは鋭いが磁化の飽和は低温極限でも緩やかで、1次転移が非対称であった。しかしこの時の測定では試料に1度程度のミスアライメントがあり、これが転移のブロード化の原因の可能性があった。そこで今回、2軸の試料方位制御下で磁場を[111]方向に約0.1度以内の精度で合わせて測定を行った。用いた試料は $1.3mm \times 1.3mm \times 0.14mm$ の薄片で面内に[111]軸があり、反磁場係数はおよそ0.05である。0.15Kで測定した結果を図4に示すが、以前と同様に0.9Tの1次転移の磁化は、立ち上がりが鋭く飽和が緩やかな、明確な非対称性を示すことが明らかとなった。

図5には微分磁化率の大きさを温度磁場平面で2次元マッピングしたものである。1次転移の転移幅が0.4K以下ではほとんど温度によらず、この転移幅が本質的なものであることを示している。

交換相互作用および双極子相互作用を考慮した標準的なスピナイスモデルにおけるモンテカルロ計算によると、この1次転移では磁化は H_{LG} 以上で直ちに飽和する結果が得られている。実験結果は磁化の上昇が約1.5T近傍まで続くが、このような転移の広が

りは反磁場を考慮しても説明がつかない。したがって、実験で得られた1次転移の非対称性は非自明な現象である。この1次転移は磁気モノポールの結晶化転移という解釈がなされているが、モノポール結晶化の過程で何らかの空間構造が現れることを今回の実験結果は示していると言える。

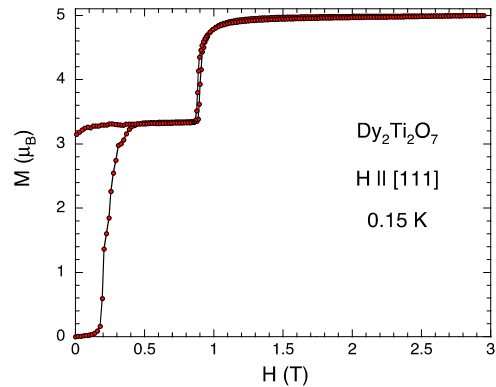


図4 . スピナイス $Dy_2Ti_2O_7$ の磁化曲線

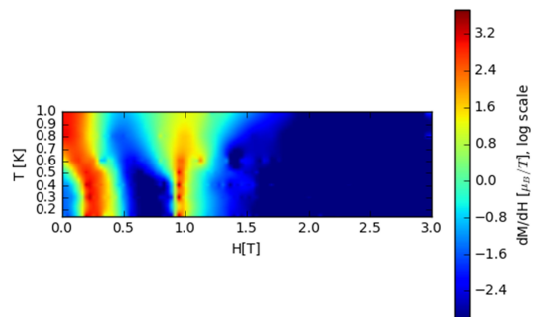


図5 . $Dy_2Ti_2O_7$ の[111]磁場下の微分磁化率(対数スケール)の温度磁場依存性の二次元マッピング

5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計14件)

- H. Yamaguchi, M. Okada, Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, T. Okabe, Y. Iwasaki, and Y. Hosokoshi, Randomness-induced quantum spin liquid on honeycomb lattice, Sci. Rep., 査読有, 7, 16144 (1-6) (2017) DOI:10.1038/s41598-017-16431-0
- Y. Kono, H. Yamaguchi, Y. Hosokoshi, and T. Sakakibara, Three-dimensional Bose-Einstein condensation in the spin-1/2 ferromagnetic-leg ladder 3-Br-4-F-V, Phys. Rev. B, 査読有, 96, 104439 (1-6) (2017) DOI:10.1103/PhysRevB.96.104439
- S. Nakamura, T. Sakakibara, Y. Shimizu, S.

Kittaka, Y. Kono, Y. Haga, J. Pospíšil, and E. Yamamoto, Wing structure in the phase diagram of the Ising Ferromagnet URhGe close to its tricritical point investigated by angle-resolved magnetization measurements, *Phys. Rev. B*, 査読有, 96, 94411 (1-9) (2017) DOI:10.1103/PhysRevB.96.094411

K. Mochidzuki, Y. Shimizu, A. Kondo, S. Nakamura, S. Kittaka, Y. Kono, T. Sakakibara, Y. Ikeda, Y. Isikawa, and K. Kindo, Thermodynamic Investigation of Metamagnetic Transitions and Partial Disorder in the Quasi-Kagome Kondo Lattice CePdAl, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, 86, 034709 (1-5) (2017) DOI:10.7566/JPSJ.86.034709

T. Okabe, H. Yamaguchi, S. Kittaka, T. Sakakibara, T. Ono, and Y. Hosokoshi, Magnetic properties of the $S=1/2$ honeycomb lattice antiferromagnet 2-C1-3,6-F2-V, *Phys. Rev. B*, 査読有, 95, 075120(1-6) (2017) DOI:10.1103/PhysRevB.95.07512

S. Kittaka, Y. Aoki, Y. Shimura, T. Sakakibara, S. Seiro, C. Geibel, F. Steglich, Y. Tsutsumi, H. Ikeda, and K. Machida, Thermodynamic study of gap structure and pair-breaking effect by magnetic field in the heavy-fermion superconductor CeCu₂Si₂, *Phys. Rev. B*, 査読有, 94, 054514(1-9) (2016) DOI:10.1103/PhysRevB.94.054514

S. Kittaka, Y. Shimizu, T. Sakakibara, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Onuki, Y. Tsutsumi, T. Nomoto, H. Ikeda, and K. Machida, Evidence for chiral d-wave superconductivity in URu₂Si₂ from the field-angle variation of its specific heat, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, 85, 033704 (1-4) (2016) DOI:10.7566/JPSJ.85.033704

H. Yamaguchi, Y. Shinpuku, Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, M. Hagiwara, T. Kawakami, K. Iwase, T. Ono, and Y. Hosokoshi, Unconventional $S=2$ alternating chain realized by a metal-radical hybrid-spin approach, *Phys. Rev. B*, 査読有, 93, 115145(1-7) (2016) DOI:10.1103/PhysRevB.93.115145

H. Takatsu, T. Taniguchi, S. Kittaka, T. Sakakibara, and H. Kadowaki, Quadrupole order in the frustrated pyrochlore magnet Tb₂Ti₂O₇, *J. Phys. Conf. Ser.*, 査読有, 683, 012022(1-6) (2016) DOI:10.1088/1742-6596/683/1/012022

S. Kittaka, A. Kasahara, T. Sakakibara, D. Shibata, S. Yonezawa, Y. Maeno, K. Tenya, and K. Machida, First-order superconducting transition of Sr₂RuO₄ investigated by magnetization and magnetic torque, *J. Magn. Magn. Mater.*, 査読有, 400, 81-83 (2016) DOI:10.1016/j.jmmm.2015.07.004

Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, H. Yamaguchi, and Y. Hosokoshi, Low temperature magnetic properties of a new quasi-one-dimensional organic magnet α -2-C1-4-F-V, *Phys. Procedia*, 査読有, 75, 679-686 (2015) DOI:10.1016/j.phpro.2015.12.088

M. Yokoyama, H. Mashiko, R. Otaka, Y. Sakon, K. Fujimura, K. Tenya, A. Kondo, K. Kindo, Y. Ikeda, H. Yoshizawa, Y. Shimizu, Y. Kono, and T. Sakakibara, Pauli-limited superconductivity and antiferromagnetism in the heavy-fermion compound CeCo(In_{1-x}Zn_x)₅, *Phys. Rev. B*, 査読有, 92, 184509(1-9) (2015) DOI:10.1103/PhysRevB.92.184509

H. Yamaguchi, T. Okubo, S. Kittaka, T. Sakakibara, K. Araki, K. Iwase, N. Amaya, T. Ono, and Y. Hosokoshi, Experimental Realization of a Quantum Pentagonal Lattice, *Sci. Rep.*, 査読有, 5, 15327(1-6) (2015) DOI:10.1038/srep15327

T. Tayama, W. Ohmachi, M. Wansawa, D. Yutani, T. Sakakibara, H. Sugawara, and H. Sato, Observation of a New Ordered Phase in the Kondo Semiconductor CeOs₄Sb₁₂, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, 84, 104701(1-6) (2015) DOI:10.7566/JPSJ.84.104701

〔学会発表〕(計 32 件)

榊原俊郎, 極低温で磁化を測る 磁場誘起の量子相転移への応用, 日本物理学会 第 73 回年次大会, 2018 年

河野洋平, スピン 1/2 有機フェロレグラーダ-3-C1-4-F-V の量子臨界性, 日本物理学会 第 73 回年次大会, 2018 年

中村翔太, トリリウム格子磁性体 EuPtSi の極低温磁化の方向依存性, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2017 年

榊原俊郎, トリリウム格子反強磁性体 EuPtSi の低温磁化, 日本物理学会 第 72 回年次大会, 2017 年

中村翔太, URhGe の磁化困難軸方向近傍の極低温磁化測定, 日本物理学会 第 72 回年次大会, 2017 年

奥田恭平, ニトロニルニトロキシドラジカルを用いた $S=1/2$ 二本足梯子型磁気格子の構築, 日本物理学会 第 72 回年次大会, 2017 年

岡部俊輝, 反強磁性八ニカム格子磁性体 2-CI-3,6-F2-V の低温物性 II, 日本物理学会 第 72 回年次大会, 2017 年

河野洋平, スピン $1/2$ 有機フェロレグラーダー-3-I-V の磁場誘起量子臨界現象, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年

中村翔太, URhGe の磁化困難軸方向の極低温磁化測定, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年

河野洋平, スピン $1/2$ 有機フェロレグラーダー物質の磁場誘起量子臨界現象, 日本物理学会 第 71 回年次大会, 2016 年

中村翔太, Jacques Flouquet, UCoGe の容易軸方向磁場下における磁化と比熱の測定, 日本物理学会 第 71 回年次大会, 2016 年

岡部俊輝, 反強磁性八ニカム格子磁性体 2-CI-3,6-F2-V の低温物性, 日本物理学会 第 71 回年次大会, 2016 年

中村翔太, 単結晶 Bi の極低温磁化測定, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年

河野洋平, フェルダジルラジカル系物質を用いた強磁性鎖からなるスピンラダーの量子臨界性の研究, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年

岡田将孝, フェルダジルラジカルを用いた新規金属錯体の低温物性, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年

〔その他〕

ホームページ等

<http://sakaki.issp.u-tokyo.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

榊原 俊郎 (SAKAKIBARA, Toshiro)
東京大学・物性研究所・教授
研究者番号: 70162287

(2) 連携研究者

橘高 俊一郎 (KITAKA, Shunichiro)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号: 80579805