

機関番号：13301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2008～2010

課題番号：20540352

研究課題名（和文） 超低温強磁場環境下における1次元スピン磁性体の量子臨界現象の研究

研究課題名（英文） Quantum criticality of one-dimensional quantum magnets at ultralow temperatures and high magnetic fields

研究代表者

辻井 宏之 (TSUJII HIROYUKI)

金沢大学・学校教育系・准教授

研究者番号：10392036

研究成果の概要（和文）：1次元スピン磁性体における低温および磁場中での比熱、磁気熱量効果、磁気トルクの測定から、量子臨界点近傍の相転移や臨界現象を研究した。梯子型反強磁性体や1次元イジング型反強磁性体の磁気相図を求め、磁場方向による相図の違いを明らかにした。また、量子臨界点近傍で、核スピンの縦緩和が量子ゆらぎによって促進されること示す縦緩和に伴う発熱の観測に成功した。

研究成果の概要（英文）：Phase transitions and critical phenomena near the quantum critical point of one-dimensional quantum magnets have been investigated by means of specific-heat, magnetocaloric-effect, and magnetic-torque measurements. We have determined phase diagrams of a ladder antiferromagnet and an Ising-like linear-chain antiferromagnet. In addition, we have observed release of heat from hydrogen nuclear spins driven by quantum fluctuations near the quantum critical point.

交付決定額

（金額単位：円）

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|--------|-----------|-----------|-----------|
| 2008年度 | 2,000,000 | 600,000 | 2,600,000 |
| 2009年度 | 700,000 | 210,000 | 910,000 |
| 2010年度 | 700,000 | 210,000 | 910,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総計 | 3,400,000 | 1,020,000 | 4,420,000 |

研究分野：低温物理

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：磁性，物性実験，低温物性，量子スピン系，量子臨界現象

1. 研究開始当初の背景

1次元反強磁性体において、スピンの整数の場合には基底状態と励起状態の間にエネルギーギャップが存在する。エネルギーギャップを消失する臨界磁場以上でおこる磁場誘起相転移は、系のハミルトニアンを磁場によって変化させ絶対零度で生じる量子相転移のひとつの例であり、その量子ゆらぎによる臨界現象は重要な研究対象となっている。

臨界点近傍の強磁場領域では、回転対称性を保つような方向に磁場をかけた場合、臨界的振舞いである朝永-ラッティンジャー液体状態が実現すると考えられ、実際に1次元量子スピン系において観測されている。

一方で、半整数スピンの場合に基底状態からの励起にギャップがないことは、離れたスピンどうしがもつ相関距離が発散していることを意味するため、絶対零度で臨界現象を示していると考えることができ、低温での振

舞いに興味もたれる。

量子相転移は絶対零度で生じる相転移であるため、上記のような量子臨界現象を解明するためには、強磁場における測定において絶対零度を目指した低温環境の実現が重要である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、1次元量子スピン磁性体の比熱測定を、超低温および強磁場まで拡張することにより、量子1次元系の臨界現象を解明することにある。臨界磁場以上で現れる朝永-ラッティンジャー液体の性質や、臨界点における絶対零度近傍の臨界現象について磁気トルク測定などを併用し明らかにする。これにより、3次元のフェルミ液体における量子相転移の相図との比較を行い、1次元における量子相転移を解明する。

3. 研究の方法

(1) 強磁場における比熱測定

緩和法による比熱測定を、20 Tの強磁場および0.1 Kの低温まで行った。また、同じ比熱計を用いて磁場掃引中の温度変化から磁気熱量効果を測定した。これらの強磁場熱測定は、米国国立高磁場研究所の超伝導マグネットを利用して行った。

(2) 強磁場における磁気トルク測定

キャパシタンス法による磁気トルク測定を、35 Tの強磁場および30 mKの低温まで行った。測定には、米国国立高磁場研究所の超伝導マグネットおよび常伝導マグネットを利用した。

(3) 比熱計の開発

金沢大学極低温研究室の核断熱消磁冷凍機を利用した超低温比熱計の設計・製作を行った。また、米国国立高磁場研究所の35Tマグネットで使用されるヘリウム3冷凍機用強磁場比熱計を開発した。

4. 研究成果

(1) スピン梯子鎖の磁気相図

$S = 1/2$ を担う Cu イオンが梯子鎖を形成している $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{CuCl}_3$ (以後 IPA-CuCl₃) では、反強磁性的な leg 方向の相互作用に対して、rung 方向の強磁性相互作用が強く、これによって結合した2つの $S = 1/2$ スピンが $S = 1$ として振舞い、整数スピンの1次元反強磁性体と同等の基底状態を持つ複合ハルデーン鎖が形成されている。(図1に結晶構造を示す) IPA-CuCl₃の比熱及び磁気熱量効果の測定を、18 Tの高磁場および0.1 Kの低

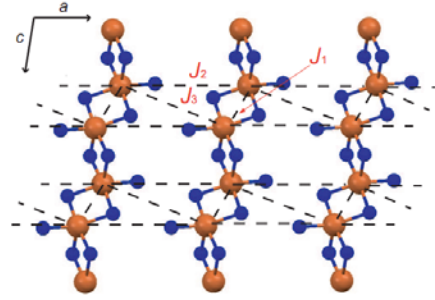


図1. IPA-CuCl₃の結晶構造。

温まで行い図2のような磁気相図を求めた。その結果、磁場誘起反強磁性秩序への転移磁場は、マグノンのボース・アインシュタイン凝縮を示す冪乗の温度依存性を示し、その係数は磁場方向に依存することが分かった。また、臨界磁場近傍で朝永-ラッティンジャー液体を示唆する比熱の温度に対する線形の振舞いが観測された。

また、磁気トルク測定を30 mKの低温および18 Tの高磁場まで行った結果、磁気トルクの磁場依存性において、磁場誘起反強磁性秩序の転移磁場が磁場の2次微分のピークとして観測された。これにより臨界磁場は比熱から求めた低温への外挿と一致することが分かり、磁気相図はより低温まで拡張された。この成果の一部は、第25回低温物理国際会議(LT25)で報告した。

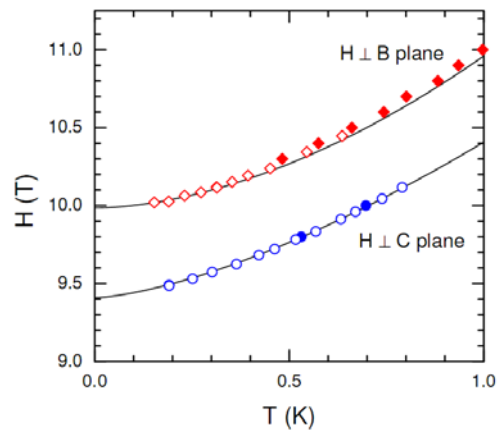


図2. IPA-CuCl₃の比熱および磁気熱量効果測定から求めた磁気相図。

(2) 量子臨界点近傍の熱発生

IPA-CuCl₃のハルデーンギャップが消失する9.11 Tの量子臨界点近傍で、緩和法比熱計を利用した熱測定を行った。比熱計に設置した試料を磁場中で急激に冷却し、最低温度付近まで冷えた段階で磁場を変化させた。この際に、臨界磁場の近傍で試料の温度に鋭い

ピークを観測した。ピークの高さは、試料を冷却したときの磁場、冷却前の温度、最終温度などに依存するが、ピークを積分して得られる発熱量から、量子臨界点近傍において水素の核スピンの急激な縦緩和により熱が発生していることが判明した。このことから、量子臨界点近傍で核スピンの縦緩和が量子ゆらぎによって促進されることが明らかになった。今後これまでの成果を論文にまとめる予定であり、2011年の日本物理学会でも発表した。

(3) 1次元イジング型反強磁性体の磁気相図

$S=1/2$ を担うCoイオンが擬1次元鎖を形成しているIsing型反強磁性体 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ では、零磁場において約5.4 Kで反強磁性秩序を示すことが分かっている。さらに低温では、反強磁性秩序相から高磁場不整合秩序相への転移が観測されている。 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の磁気トルク測定を、20 mKの低温および20 Tの高磁場まで行った。臨界磁場では、一次転移を示唆する磁気トルクのヒステリシスが観測され、これまでに行われている磁気熱量効果や磁化測定の結果と一致した。角度を変えた測定から、1次元鎖の方向から傾くに従って臨界磁場が増加することが分かった。比熱および磁気熱量効果の測定では、磁気トルクで観測された磁気相転移に相当する磁場において、磁気熱量効果に鋭いピークを観測し、磁気トルク測定で観測された磁気転移が明確になった。さらに、磁気トルク測定において磁場を35 Tまで拡張することにより、20 T付近で新しい磁気転移の可能性を示唆する異常が観測された。この成果の一部は2009年の日本物理学会で発表した。

(4) 比熱計の開発

金沢大学極低温研究室の核断熱消磁冷凍機を利用した超低温比熱計の開発では、1 mK温度領域の微小温度計となる発熱や磁場依存性が少ないキャパシタンス温度計の作成を目指して、緩和法比熱測定に適した材料を選定しながら、まず高温において性能評価などを行った。測定で使用する交流キャパシタンスブリッジを自作し超低温での測定のため改良を加えた。また、比熱計本体に設置するヒーターやサーマルリンクなどの調整を行った。今後、超低温での温度計や比熱計のテストを経て、量子相転移の臨界現象を解明するために非常に強力な研究手段となる可能性がある。

また、強磁場用比熱計として、米国高磁場研究所の35Tマグネットで使用するヘリウム3冷凍機用比熱計を開発した。交換可能な比熱計プラットフォームを用いることで、試料の大きさや磁場により受ける力に応じて熱

リンクの最適化が容易になった。また、従来の比熱計に比べ、最低温度持続時間が長くなり、マシンタイム中の液体ヘリウムの追加が必要なくなった。これにより、短いマシンタイムを有効に利用できるようになった。

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 7 件)

- ① H. Tsujii, C. R. Rotundu, B. Andraka, Y. Takano, H. Kageyama, and Y. Ueda, “Specific Heat of the $S=1/2$ Two-Dimensional Shastry-Sutherland Antiferromagnet $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ in High Magnetic Fields”, *Journal of the Physical Society of Japan*, 80, 043707 (2011) 査読有.
- ② B. Andraka, C. R. Rotundu, P. Kumar, and H. Tsujii, “Investigation of the heavy fermion state and superconductivity in $\text{Pr}_{1-x}\text{La}_x\text{Os}_4\text{Sb}_{12}$ by the upper critical field slope at T_c ”, *Journal of Physics: Condensed Matter*, 22, 345701 (5pp) (2010) 査読有.
- ③ K. Ienaga, Y. Inagaki, T. Kawae, and H. Tsujii, “Fe Magnetic Impurity Effect in Au Atomic Sized Conductor”, *Journal of Physics: Conference Series*, 200, 072042 (2010) 査読有.
- ④ B. Andraka, C. R. Rotundu, Y. Takano, and H. Tsujii, “The dilute limit of heavy fermions: evidence of the coherent nature of CeAl_3 ”, *Journal of Physics: Condensed Matter* 21 495601 (4pp) (2009) 査読有.
- ⑤ H. Tsujii, Y. H. Kim, Y. Yoshida, Y. Takano, T. P. Murphy, K. Kanada, T. Saito, A. Oosawa, and T. Goto, “Magnetic Phase Diagram of the $S=1/2$ Antiferromagnetic Ladder $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{CuCl}_3$ ”, *Journal of Physics: Conference Series*, 150, 042217 (2009) 査読有.
- ⑥ J. Yoshida, S. Abe, A. Tada, H. Tsujii, K. Matsumoto, H. Suzuki, and H. S. Suzuki, “Magnetic susceptibility of PrMg_3 at ultra low temperatures”, *Journal of Physics:*

Conference Series, 150, 042241 (2009) 査読有.

- ⑦ J. Yoshida, S. Abe, D. Takahashi, Y. Segawa, Y. Komai, H. Tsujii, K. Matsumoto, H. Suzuki, and Y. Onuki, “Novel Quantum Criticality in CeRu_2Si_2 near Absolute Zero Observed by Thermal Expansion and Magnetostriction”, Physical Review Letters 101, 256402 (2008) 査読有.

[学会発表] (計 8 件)

- ① 高野安正, 反強磁性体の量子臨界点近傍での核スピンからの熱発生, 日本物理学会第 66 回年次大会, 2011 年 3 月 26 日, 新潟大学 (新潟県)
- ② 今澤貴史, $S = 1$ と $S = 1/2$ を含む有機トリラジカル BIPNNBNO の比熱と磁気相互作用の見積もり, 日本物理学会第 65 回年次大会, 2010 年 3 月 20 日, 岡山大学 (岡山県)
- ③ T. Imazawa, “Specific Heat Study of an Organic Tri-radical BIPNNBNO Having $S = 1$ and $S = 1/2$ ”, The 3rd Japanese- Russian Workshop on Open Shell Compounds and Molecular Spin Devices, Nov. 16, 2009, Awaji Yumebutai International Conference Center, Hyogo.
- ④ 今澤貴史, $S = 1$ と $S = 1/2$ を含む有機トリラジカル BIPNNBNO の比熱測定, 第 48 回電子スピンサイエンス学会年会 (SEST2009), 2009 年 11 月 12 日, 神戸大学 (兵庫県)
- ⑤ 辻井宏之, $S = 1/2$ Ising 型反強磁性鎖 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の低温磁気トルク, 日本物理学会秋季大会, 2009 年 9 月 26 日, 熊本大学 (熊本県)
- ⑥ S. Abe, “Novel Quantum Criticality in CeRu_2Si_2 at Ultralow Temperatures Observed by Dilatometric Measurements”, International Conference on Magnetism (ICM2009), July 28, 2009 Karlsruhe, Germany.
- ⑦ H. Tsujii, “Magnetic Phase Diagram of the $S = 1/2$ Antiferromagnetic Ladder $(\text{CH}_3)_2\text{CHNH}_3\text{CuCl}_3$ ”, 25th International Conference on Low Temperature Physics

(LT25), Aug. 9, 2008 Amsterdam, the Netherlands.

- ⑧ Y. Yoshida, “Anisotropic magnetic phase diagram of the $S = 1/2$ frustrated-chain antiferromagnet $\text{Cu}_3(\text{CO}_3)_2(\text{OH})_2$ ”, 25th International Conference on Low Temperature Physics (LT25), Aug. 9, 2008 Amsterdam, the Netherlands.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

辻井 宏之 (TSUJII HIROYUKI)
金沢大学・学校教育系・准教授
研究者番号: 10392036