

令和元年6月14日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05414

研究課題名(和文) 基底一重項量子磁性体における圧力誘起秩序状態と相転移点近傍での臨界現象の研究

研究課題名(英文) Pressure-Induced Magnetically Ordered State and Critical Phenomena in the vicinity of the phase Transition of Single-Ground-State Quantum Magnets

研究代表者

栗田 伸之 (Nobuyuki, Kurita)

東京工業大学・理学院・助教

研究者番号：80566737

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は、基底一重項量子磁性体における圧力誘起秩序相の磁気構造及び相転移点近傍における臨界現象を実験的に明らかにすることである。我々はCsFeCl₃の圧力下中性子回折測定を行い、励起ギャップが消失するP_c(~0.9 GPa)以上の圧力領域において(1/3, 1/3, 0)付近で新たなBraggピークが出現することを明らかにした。詳細な磁気構造解析の結果、伝播ベクトルが(1/3, 1/3, 0)であり、ab面内で120°構造を形成していることが分かった。得られた臨界指数 $\nu = 0.24(1)$ はXY型の三角格子モデルで理論的に予想される $\nu = 0.253$ と非常に近い値である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁場誘起磁気相転移に関してはいくつかの量子磁性体を用いた実験的検証が行われ、マグノンのボース・アインシュタイン凝縮として定量的レベルで記述できることが世界的に定着している。一方、圧力誘起磁気相転移を示す量子磁性体についてはモデル物質の数が限られているのが現状である。本研究により、基底一重項量子磁性体CsFeCl₃で見出された圧力誘起秩序相が磁化等のマクロ測定だけでなくミクロ測定によっても確認され、その磁気構造も決定された。単イオン異方性に起因した基底一重項磁性体として初めての物質例という学術的意義も有する。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to experimentally elucidate the magnetic structure of the pressure-induced ordered phase and the critical phenomena in the vicinity of the phase transition of singlet-ground-state magnets. We have performed high-pressure neutron diffraction measurements of CsFeCl₃ and have found that a new Bragg peak appears around (1/3, 1/3, 0) at pressures above the critical pressure of ~0.9 GPa. Detailed analysis has shown that the ordered state spin configuration is a so-called 120 degree structure in the ab plane with a propagation vector of $k_{\text{mag}}=(1/3,1/3,0)$. The obtained critical exponent of $\nu=0.24(1)$ is close to 0.253, which is the theoretically predicted value for an XY triangular-lattice antiferromagnet.

研究分野：物性実験、量子スピン系

キーワード：基底一重項量子磁性体 圧力誘起量子相転移 磁気構造 臨界現象 磁気励起

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

量子効果が顕著な絶縁性磁性体(量子磁性体)では、古典スピンでは定性的にすら理解できない量子力学的な基底状態が現れる。最低励起状態との間に有限の励起ギャップを有する非磁性の基底一重項はその代表例であり、励起ギャップに相当する外場(磁場や圧力)が引き起こす磁気秩序相への相転移現象は磁性体研究の主要課題となっている。特に絶対零度で起きる相転移は量子相転移と呼ばれ、その転移点近傍では量子揺らぎに起因した様々な新奇物性が観測されている。磁場中で出現する秩序相については様々な量子磁性体に対して実験的検証が行われ、その秩序状態が準粒子マグノンのボース・アインシュタイン凝縮(BEC)として定量的レベルで記述できることが示された。マグノンの BEC 描像はスピン系を粒子系の立場からアプローチする磁性体の新たな研究手法として、現在では世界的に定着している。一方、圧力誘起量子相転移を示す磁性体は数少ないのが現状である。

本研究計画提案の時点において、本研究代表者のグループは有効スピン $S = 1$ の基底一重項磁性体 CsFeCl_3 が圧力誘起量子相転移を示すことを支持する実験結果を得ていた。 CsFeCl_3 は容易面型の大きな単イオン異方性に起因した励起ギャップを有する。これまで研究が進められているスピンドイマー系とは励起ギャップの起源が異なるため、 CsFeCl_3 は圧力誘起相転移を研究する新たなモデル物質となりうる。また、励起ギャップが消失する臨界圧力 P_c (~ 0.9 GPa) 直上の秩序相では異方性項 D と交換相互作用 J の競合により磁気モーメントが揺らいでいる。そのため秩序変数の振幅モードに対応する Higgs モードの観測が理論的に予言されている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、基底一重項量子磁性体における圧力誘起秩序相の秩序状態及び相転移点近傍における臨界現象を実験的に明らかにすることである。本研究では CsFeCl_3 を主な対象物質とするが、研究の進捗に応じて他の基底一重項量子磁性体を対象とした圧力誘起量子相転移の探索や磁場誘起秩序相の臨界現象の研究にも着手する。

3. 研究の方法

CsFeCl_3 、 RbFeBr_3 及び CsFeBr_3 の単結晶育成は垂直ブリッジマン法を用いて行った。特に CsFeCl_3 に関しては 1 cm 角を超える大型の純良単結晶が得られた。 RbFeBr_3 及び CsFeBr_3 は顕著な潮解性を示すため、試料のセットアップは窒素雰囲気下で行った。圧力下磁化測定は、クランプ式ピストンシリンダー型圧力発生装置と SQUID 磁束計 MPMS-XL 装置 (Quantum Design 社) を組み合わせて行った。高圧力下や極低温では圧力媒体が固化するが、静水圧性への影響を最小限に抑えるために Daphne7373 を用いた。圧力装置関連のバックグラウンドに関して、圧力装置のみの場合と試料が入った圧力装置の場合の SQUID 電圧応答の差から試料のみの磁化を評価した。最高到達圧力 1.5 GPa でも Sn (圧力校正用物質) の超伝導転移の温度幅に有意な変化が見られないことから、高い静水圧環境下で測定が行われたと考えられる。圧力下中性子回折測定には J-PARC の生命科学実験棟に設置された高分解能チョッパー分光器 HRC とスイス PSI に設置された単結晶中性子回折計 ZEBRA を用いた。

4. 研究成果

(1) CsFeCl_3 の磁場 - 温度 - 圧力相図

CsFeCl_3 の常圧・圧力下磁化に関しては、研究開始当初において既に測定結果が得られていた。本研究期間においては、常圧における磁気相図及び磁場誘起量子相転移磁場近傍における臨界指数の決定、及び 磁場 - 圧力相図の決定に焦点をあてた学術論文の執筆・投稿を行った。Physical Review B に掲載された本研究成果は、その重要性が認められ Editors' suggestion に選定された。

(2) CsFeCl_3 の圧力誘起秩序相

P_c 以上の圧力領域で出現する圧力誘起秩序相をミクロな視点からも確認するため、更にその磁気構造を決定するため、 CsFeCl_3 の圧力下中性子回折測定を行った。図 1 に示すように、2.0 GPa ($> P_c$) の圧力印加により $(1/3, 1/3, 0)$ 付近で新たな Bragg ピークの出現が観測された。このピーク強度は温度上昇により小さくなる(挿入図)ことから、磁氣的な起源を持ち磁気伝播ベクトルが $(1/3, 1/3, 0)$ であることが分かる。詳細な磁気構造解析を行った結果、 ab 面内で 120° スピン構造を形成していることが明らかになった。また、2.0 GPa における転移温度 $T_N = 5.6$ K 及び臨界指数 $\beta = 0.24(1)$ が得られた。この $\beta = 0.24(1)$ は XY 型の三角格子モデルで理論的に予想される $\beta = 0.253$ と非常に近い値である。本研究成果は Physical Review B に掲載された。本研究成果は、磁化等のバルク測定だけでなくミクロな視点からも CsFeCl_3 における圧力誘起磁気秩序相の存在を確認することができたという意義も有する。更に CsFeCl_3 の磁気励起スペクトルの圧力依存性を明らかにするために圧力下非弾性中性子散乱測定を行った。 P_c 以下の圧力領域では磁気励起のソフト化が観測された。これは圧力印加により励起ギャップが抑制されることを示しており、磁化測定の結果と符合する。一方、 P_c 以上の圧力領域ではギャップのある磁気励起とギャップレスな磁気励起の双方が観測された。この特異な磁気励起の起源について、論文執筆を行い学術雑誌への投稿を行った。

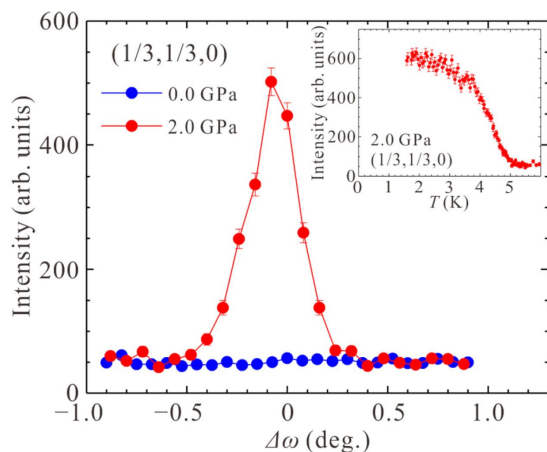


図1 CsFeCl₃における(1/3, 1/3, 0)反射の ω スキャン測定の結果。挿入図は2.0 GPaにおける(1/3, 1/3, 0)反射のBraggピーク強度の温度依存性。

(3) RbFeBr₃の常圧・圧力下磁気相図

RbFeBr₃の常圧及び圧力下での磁気相図を明らかにするために、常圧・圧力下磁化測定を行った。図2(a)はRbFeBr₃の常圧及び $H\parallel c$ での磁場 - 温度相図である。本物質はCsFeX₃ (X=Cl, Br)とは対照的に交換相互作用が異方性項よりも大きいため、ゼロ磁場で磁気秩序を示す。0.1 Tでは $T_{N1} = 5.6$ K及び $T_{N2} = 2.0$ Kにおいて逐次相転移が観測された。 $T < T_{N2}$ では120°より少し傾いた三角スピン構造、中間層の $T_{N2} < T < T_{N1}$ では部分的無秩序状態となることが分かっている。磁場を印加すると T_{N2} が高温側へシフトするが、少なくとも7 Tまで大きな変化は生じないことが明らかになった。

図2(b)は各圧力におけるRbFeBr₃の磁化率 M/H の温度依存性である。印加磁場は100 Oe、印加磁場方向は $H\parallel c$ である。圧力印加とともに T_{N1} による異常は低温側へシフトするが、1.0 GPa以上ではその異常が確認できない。従って1.0 GPa以上では T_{N1} が消失した、若しくは更に低温領域へシフトしたと考えられる。ここで、本物質の鎖内の交換相互作用には強磁性的なパスと反強磁性的なパスの両方が存在する。従って、鎖内の交換相互作用 J_0 が反強磁性的であることを考慮すると、圧力印加の主な役割は強磁性的な鎖内の交換相互作用の増大であると考えられる。同様に、CsFeX₃ (X=Cl, Br)に関しても圧力印加により強磁性的な鎖内の交換相互作用が増大したと考えれば、磁場誘起秩序相の圧力効果を説明することができる。本研究成果はJournal of Physics: Conference Seriesに掲載された。

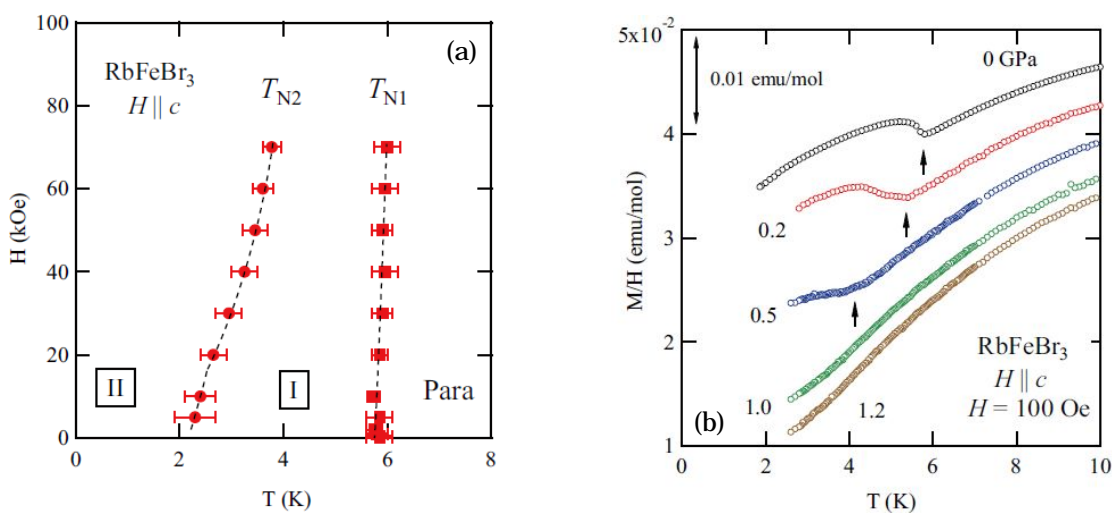


図2 (a)常圧におけるRbFeBr₃の磁場 - 温度相図。印加磁場方向は $H\parallel c$ 。(b)各圧力におけるRbFeBr₃の磁化率 M/H の温度依存性。印加磁場は100 Oe、磁場印加方向は $H\parallel c$ 。

(4) 上記以外の主な研究成果

本研究では、上記以外にも次の研究成果が得られた。

- CsFeBr₃における磁場誘起量子相転移の臨界指数の決定とマグノンBECの普遍性の実験的確認(極低温磁化・比熱測定、Physical Review Bに掲載)
- スピンドイマー系基底一重項量子磁性体Ba₂CuSi₂O₆Cl₂におけるトリプルバンドの分離とトポロジカルに保護されたエッジ状態(非弾性中性子散乱測定、Nature Communicationsに掲載)

- ・ スピンドイマー系基底一重項磁性体 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ における局在励起とその起源 (非弾性中性子散乱測定、Physical Review Letters に投稿中)

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計14件)

K. Nawa, K. Tanaka, N. Kurita, T. J. Sato, H. Sugiyama, H. Uekusa, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, S. Itoh, K. Kuwahara, H. Tanaka “Triplon band splitting and edge states in the quantum dimer compound $\text{Ba}_2\text{CuSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ ” Nat. Commun. 8, pp.2096 (2017) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1038/s41467-019-10091-6>

Y. Kojima, M. Watanabe, N. Kurita, H. Tanaka, A. Matsuo, K. Kindo, M. Avdeev “Quantum magnetic properties of the spin-1/2 triangular-lattice antiferromagnet $\text{Ba}_2\text{La}_2\text{CoTe}_2\text{O}_{12}$ ” Phys. Rev. B 98, pp.174406 (2018) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.174406>

M. Watanabe, N. Kurita, H. Tanaka, W. Ueno, K. Matsui, T. Goto “Valence-Bond-Glass State with Singlet Gap in the Spin-1/2 Square-Lattice Random J_1 - J_2 Heisenberg Antiferromagnet $\text{Sr}_2\text{CuTe}_{1-x}\text{W}_x\text{O}_6$ ” Phys. Rev. B 98, pp.054422 (2018) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.054422>

Y. Kasahara, T. Ohnishi, Y. Mizukami, O. Tanaka, S. Ma, K. Sugii, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, and Y. Matsuda “Majorana quantization and half-integer thermal quantum Hall effect in a Kitaev spin liquid” Nature, 559, pp.227 (2018) , 査読有り、 DOI: <https://doi.org/10.1038/s41586-018-0274-0>

Y. Kasahara, K. Sugii, T. Ohnishi, M. Shimosawa, M. Yamashita, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, Y. Matsuda “Unusual thermal Hall effect in a Kitaev spin liquid candidate α - RuCl_3 ” Phys. Rev. Lett., 120, pp.217205 (2018) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.217205>

S. Hayashida, O. Zaharko, N. Kurita, H. Tanaka, M. Hagihala, M. Soda, S. Itoh, Y. Uwatoko, T. Masuda “Pressure-induced quantum phase transition in quantum antiferromagnet CsFeCl_3 ” Phys. Rev. B 97, pp.140405(R) (2018) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.140405>

K. Shirasawa, N. Kurita, H. Tanaka “Universality of magnetic-field- induced Bose-Einstein condensation of magnons” Phys. Rev. B 96, pp.144404 (2017) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.144404>

S. Ito, N. Kurita, H. Tanaka, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, S. Itoh, K. Kuwahara, K. Kakurai “Structure of the magnetic excitations in the spin-1/2 triangular-lattice antiferromagnet $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ ” Nat. Communications 8, pp.235 (2017) , 査読有り、DOI: [10.1038/s41467-017-00316-x](https://doi.org/10.1038/s41467-017-00316-x)

P. Chanlert, N. Kurita, H. Tanaka, M. Kimata, H. Nojiri “Collective and local excitations in $\text{Ba}_2\text{CoTeO}_6$ ” Phys. Rev. B 96, pp.064419 (2017) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.064419>

S. Hirata, N. Kurita, M. Yamada, H. Tanaka “Quasi-two-dimensional Bose- Einstein condensation of lattice bosons in spin-1/2 XXZ ferromagnet K_2CuF_4 ” Phys. Rev. B 95, pp.174406 (2017) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.174406>

G. Gitgeatpong, M. Suewattana, S. Zhang, A. Miyake, M. Tokunaga, P. Chanlert, N. Kurita, H. Tanaka, T. J. Sato, Y. Zhao and K. Matan “High-field magnetization and magnetic phase diagram of α - $\text{Cu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ ” Phys. Rev. B 95, pp.245119 (2017) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.245119>

M. Okada, H. Tanaka, N. Kurita, K. Johmoto, H. Uekusa, A. Miyake, M. Tokunaga, S. Nishimoto, M. Nakamura, M. Jaime, G. Radtke, A. Saúl “Quasi-Two-Dimensional Bose- Einstein Condensation of Spin Triplets in Dimerized Quantum Magnet $\text{Ba}_2\text{CuSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ ” Phys. Rev. B 94, pp.094421 (2016) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.094421>

N. Kurita and H. Tanaka “Magnetic- field- and pressure-induced quantum phase transition in CsFeCl₃ proved via magnetization measurements” Phys. Rev. B 93, pp.104409 (2016) , 査読有り、DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.104409>

N. Kurita and H. Tanaka “Effects of magnetic field and hydrostatic pressure on the distorted triangular lattice antiferromagnet RbFeBr₃” J. Phys.: Conf. Ser. 828, pp.012002 (2017) , 査読有り

[学会発表](計 20 件)

N. Kurita, R. Takeda, H. Nojiri, and H. Tanaka “Low-temperature and high-magnetic-field ESR study of honeycomb-lattice quantum magnet α -RuCl₃” 21st International Conference on Magnetism 2018 年 7 月 16 日, San Francisco, USA,

K. Shirasawa, N. Kurita, and H. Tanaka “Universality of magnetic-field-induced Bose-Einstein condensation of magnons in the singlet ground state magnet CsFeBr₃” 21st International Conference on Magnetism 2018 年 7 月 16 日, San Francisco, USA,

N. Kurita, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, D. Yamamoto, T. Kanesaka, N. Furukawa, and H. Tanaka “Localized magnetic excitations of the strongly frustrated dimerised quantum magnet” 9th International Conference on Highly Frustrated Magnetism, 2018 年 7 月 10 日, Davis, USA

N. Kurita, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, D. Yamamoto, T. Kanesaka, N. Furukawa, and H. Tanaka “Localized magnetic excitations in the $S = 1/2$ fully frustrated dimer compound Ba₂CoSi₂O₆Cl₂” ISSP WORKSHOP Present and Future of Neutron Scattering Research on Condensed Matter Physics, 2018 年 6 月 4 日, Chiba, Tokyo

N. Kurita, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, D. Yamamoto, T. Kanesaka, N. Furukawa, and H. Tanaka “Localized magnetic excitations in the $S = 1/2$ fully frustrated dimerized magnet Ba₂CoSi₂O₆Cl₂” International Conference on Neutron Scattering ICNS2017, 2017 年 7 月 9 日, Daejeon, Korea

N. Kurita and H. Tanaka “Magnetic phase diagram of distorted triangular lattice antiferromagnet RbFeBr₃” 8th International Conference on Highly Frustrated Magnetism, 2016 年 9 月 7 日, Taipei, Taiwan

栗田伸之 “スピン 1/2 三角格子 Heisenberg 反強磁性体 Ba₃CoSb₂O₉ の磁気励起” 基研研究会「スピン系物理の最前線」, 2018 年 10 月 31 日、京都大学

栗田伸之 “フラストレーションの強いスピンドイマー系磁性体 Ba₂CoSi₂O₆Cl₂ の局在励起” 日本物理学会 (2018 年秋季大会) , 2018 年 9 月 9 日、同志社大学

栗田伸之, 竹田隆二, 野尻浩之, 田中秀数 “蜂の巣格子磁性体 α -RuCl₃ の集団励起” 日本物理学会 (2018 年秋季大会) , 2018 年 9 月 9 日、同志社大学

林田翔平, 萩原雅人, 松本正茂, 栗田伸之, 田中秀数, 上床美也, 伊藤晋一, 左右田稔, Tao Hong, Oksana Zaharko, 益田隆嗣 “基底一重項磁性体 CsFeCl₃ の圧力誘起量子相転移の中性子散乱研究” 日本物理学会 (第 73 回年次大会) , 2018 年 3 月 22 日、東京理科大学

栗田伸之, 赤木暢, 奥谷顕, 萩原政幸, 田中秀数 “フラストレーションの強い $S = 1/2$ スピンドイマー磁性体 Ba₂CoSi₂O₆Cl₂ における強磁場高周波 ESR” 第 56 回電子スピンスイエンス学会年会、2017 年 11 月 2 日、東京工業大学

栗田伸之, 田中公彦, 那波和宏, 佐藤卓, 河村聖子, 中島健次, 桑原慶太郎, 伊藤晋一, 金坂拓哉, 山本大輔, 古川信夫, 田中秀数 “AMATERAS を用いたスピンドイマー磁性体の磁気励起” MLF チョッパーユーザーミーティング DIRECTION 2017、2017 年 10 月 16 日、J-PARC

栗田伸之, 那波和宏, 佐藤卓, 河村聖子, 中島健次, 田中秀数 “フラストレーションの強い $S = 1$ スピンドイマー磁性体 Ba₂NiSi₂O₆Cl₂ における磁気励起” 日本物理学会 (2017 年秋

季大会) 2017年9月21日、岩手大学

林田翔平, 萩原雅人, 栗田伸之, 田中秀数, 上床美也, 伊藤晋一, 左右田稔, 益田隆嗣 “基底一重項磁性体 CsFeCl₃ の压力下中性子回折” 日本物理学会 (第72回年次大会) 2017年3月17日、大阪大学

白澤一樹, 栗田伸之, 田中秀数 “基底一重項磁性体 CsFeBr₃ の極低温磁気相図と量子臨界現象” 日本物理学会 (2016年秋季大会) 2016年9月13日、金沢大学

栗田伸之, 河村聖子, 中島健次, 田中秀数 “フラストレーションの強い S=1/2 スピンドイマー系 Ba₂CoSi₂O₆Cl₂ における局在励起” 日本物理学会 (2016年秋季大会) 2016年9月13日、金沢大学

栗田伸之, 那波和宏, 佐藤卓, 河村聖子, 中島健次, 田中秀数 “フラストレーションの強い S=1 スピンドイマー磁性体 Ba₂NiSi₂O₆Cl₂ における磁気励起” 日本中性子科学会第17回年会、2017年12月2日、福岡大学

林田翔平, 萩原雅人, 栗田伸之, 田中秀数, 松本正茂, 上床美也, 伊藤晋一, 左右田稔, Tao Hong, Oksana Zaharko, 益田隆嗣 “基底一重項磁性体 CsFeCl₃ の压力誘起量子相転移” 日本中性子科学会第17回年会、2017年12月2日、福岡大学

栗田伸之, 河村聖子, 中島健次, 田中秀数 “強いフラストレーションのある S = 1/2 スピンドイマー磁性体 Ba₂CoSi₂O₆Cl₂ における局在励起” 日本中性子科学会第16回年会、2016年12月1日、名古屋大学

栗田伸之, 田中秀数 “基底一重項磁性体 AFeX₃ (A = Cs, Rb; X = Cl, Br) の压力下磁気相図” 日本物理学会 (第71回年次大会、2016年3月19日 - 22日) 東北学院大学

6. 研究組織

(1) 研究分担者

なし

(2) 研究協力者

なし

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。