

機関番号：22604

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009年度～2010年度

課題番号：21740261

研究課題名 (和文) 幾何学的フラストレート磁性体における異常基底状態の探索

研究課題名 (英文) Investigation of anomalous ground state on geometrically frustrated magnet

研究代表者

東中 隆二 (HIGASHINAKA RYUJI)

首都大学東京・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：30435672

研究成果の概要 (和文) : パイロクロア酸化物 $Tb_2Ti_2O_7$ は、極低温まで長距離秩序を示さず、詳細な基底状態はまだ理解されていない。最近、この基底状態は、古典的なスピニアイス配置が量子力学的に混成した、量子スピニアイス状態であるという理論的な提案がなされた。我々は [100], [110], [111] 方向の極低温磁化、比熱測定よりスピニアイス同様の異方性の存在を観測し、幾何学的フラストレーションを示唆する磁気プラトーの存在を確認した。また、未解明の比熱異常が量子スピニアイス状態への相転移である可能性を示唆する実験結果を得た。

研究成果の概要 (英文) : Pyrochlore oxide $Tb_2Ti_2O_7$ does not show any long range ordering down to 20 mK and the true ground state had not established yet. Recently, theorists proposed that in the ground state of this material the “quantum spin ice” state is realized. This state consists of the superposition of six classical spin ice states by the hybridization of first excited doublet. From the DC magnetization and specific heat measurements down to 100 mK in the magnetic field along [100], [110], [111] directions, we clarified the Ising-like magnetic anisotropy and the plateau-like feature is observed below 0.5 K similar to the Kagome-plateau of spin ice compounds. In addition, we observed the anomaly in specific heat indicating the phase transition to quantum spin ice state.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
平成21年度	2,300,000	690,000	2,990,000
平成22年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性Ⅱ・磁性

キーワード：幾何学的フラストレーション

1. 研究開始当初の背景

「幾何学的フラストレート磁性体」は、結晶構造の幾何学的特性により、磁気的な基底状態に巨視的な縮退が残り、極低温まで揺らぎが残ることが予想され、その基礎物性が近年、非常に注目を集めている。

その中で今特に注目を浴びているのが、“ス

ピン液体状態”である。この種の磁性体では、スピンの幾何学的な配置により、同時に全ての相互作用を最小にすることが出来ないため、磁気相互作用の典型的なエネルギースケールであるキュリーワイス温度よりも十分低温においても長距離磁気秩序を起こさない。上の定義であれば、スピニアイス状態も

ある種のスピン液体状態であると言える。多くの物質は、磁気異方性、格子の歪み等と結びついて長距離秩序化を起こすが、スピン液体状態では、隣り合ったスピン同士で量子力学的結合体を形成し、その結合体が時間的、空間的にも揺らいだまま存在し長距離秩序を起こさない。スピン液体基底状態を示す候補物質として、量子性が強い小さいスピン磁気量子数を持つ、擬二次元三角格子磁性体 NiGa_2S_4 や三角格子の三次元的なネットワークを持ったハイパーカゴメ格子磁性体 $\text{Na}_4\text{Ir}_3\text{O}_8$ が知られているが、本研究では、正四面体格子の三次元的なネットワークで構成されたパイロクロア格子に磁気モーメントが局在するパイロクロア酸化物 $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ に注目した。この物質は、大きなスピン磁気量子数を持つにもかかわらず、キュリーワイス温度 $\theta_{\text{CW}} \sim -14 \text{ K}$ に対して 20 mK まで長距離秩序を示さない。当初、この物質はスピンアイス物質と同様なジニング異方性を持つものの最近接スピン相互作用が反強磁性的であるため巨視的な縮退を示さず、長距離秩序状態が実現すると予想されていた。しかしながら、中性子回折や μSR などの実験より極低温まで長距離秩序状態を示さないことが確認されたが、磁気秩序化を起こすという、相反した実験結果も発表されており、まだ合意を得る結論は得られていない。

最近、この物質が示すスピン液体状態の理論的な解釈として、量子スピンアイス状態が実現しているという提案がなされた。この状態では、古典的なスピンアイス配置状態が量子力学的に重ね合わさった状態で表現される基底状態が実現する。この状態は量子力学的な一重項基底状態であるため、古典的なスピンアイス状態とは異なり残留エントロピーは存在しない。さらに、古典的な系において観測される一部のスピンの縮退が解放された古典的カゴメアイス状態に対応する量子カゴメアイス状態の実現可能性についても予想されている。そのため、量子スピンアイス、カゴメアイス状態を実験的に観測し、スピンアイス状態の古典的描像と量子的描像間の基礎物性の違いを解明することは、“スピン液体状態”を理解するために非常に重要な問題であった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、純良単結晶を用いて磁場方向を精密に制御した状況下で極低温物性測定を行い、 $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ で予想される量子スピンアイス状態の本質を明らかにすることである。研究代表者はこれまでパイロクロア酸化物 $A_2B_2O_7$ ($A = \text{Dy, Ho}$, $B = \text{Ti, Sn}$) において観測される古典的スピンアイス状態に注目

し研究を進めてきた。それらの研究で得られた古典的スピンアイス状態の結果を本研究の結果と比較、議論することにより量子スピンアイス状態の実証および量子性に由来する特有の現象を探索する。

3. 研究の方法

研究対象物質である $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の純良単結晶は海外共同研究者のカナダの B. Gaulin 教授のグループから提供を受け研究を進めた。結晶の純良性についてはラウエ写真等で確認した。このようにして準備した純良単結晶を用いて以下の方法で研究を行った。

(1). 希釈冷凍機温度までの磁化測定による異方的磁化の探索

提供された純良単結晶を用いて磁場方向をこの結晶構造に特徴的な $[100]$, $[110]$, $[111]$ の3方向に精密に制御を行い、希釈冷凍機温度下での磁化測定を行う。実験装置については物性研の榊原研究室のファラデー法を用いた磁化測定装置を共同利用させて頂いた。この実験により、本物質の磁化過程と、古典的スピンアイス状態での 2-in 2-out 構造から理論的に予想される磁化過程の、類似点、相違点を検証した。特に $[111]$ 方向に磁場を印加した場合は古典的スピンアイス状態では一部のスピンの縮退が解放されたカゴメアイス状態が成立するが、量子性が重要である本物質ではどのような状態が実現されるかは自明ではない。

(2). 磁場方向を制御した状態下での極低温磁場中比熱測定による結晶場基底状態の探索

磁場方向を精密に制御した状況下で $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の極低温比熱測定を行う。実験装置は本研究室にある準断熱法を用いた自作の測定装置を用いて行う。量子スピンアイス状態では、単一スピンのみを考慮したときに予想される基底状態に第一励起状態が量子効果により混成を起こし、正四面体を基本とした新たな基底状態を構成するため、その結晶場は古典的スピンアイス状態とは全く異なる状態が実現していると予想される。結晶場状態は磁気モーメントの磁気異方性、外部磁場の大きさに依存するため、各方向での比熱の磁場依存性を解析することにより、量子スピンアイス状態の実現可能性を議論し、その結晶場基底状態を確立する。

さらに、本研究物質においても古典的スピンアイス状態の時と同様に $[111]$ 方向に磁場を印加した際に量子カゴメアイス状態が成立する場合、量子スピンアイス状態では残留エントロピーは存在しないため、量子スピンアイス、カゴメアイス状態間の物性の違い、

例えば残留エントロピーの存在有無等、は興味深い研究対象となる。量子カゴメアイス状態はまだ存在自体が解明されておらず、また古典的カゴメアイス状態との差異は自明ではないため、その詳細についても研究を行った。

4. 研究成果

(1) 磁気異方性及び、[111]方向磁場中での磁化プラトー状態の発見

研究対象物質の結晶構造に特徴的な[100], [110], [111]方向の 100 mK, 5 T までの極低温磁化測定の実験結果より、比較的高温である 4.2 K において既に磁気異方性が存在していることを確認し(図 1)、この系において通常のスピナイスの系と同様なイジング異方性が存在していることを明らかにした。

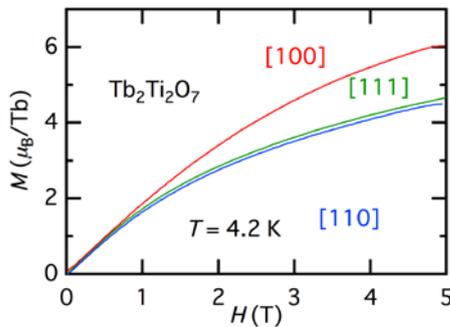


図 1: 4.2 K での[100], [110], [111] 方向の磁化曲線

さらに、0.1 K の [111] 方向の磁化曲線においてスピナイス物質と同様なカゴメプラトーを示唆する異常が存在することを発見し(図 2)、最近接のスピナイス相関が、フラストレーション系ではあまり考慮されてこなかった量子効果により、キュリーワイス則から予想される反強磁性的なものから強磁性的に変化していることを見いだした。これらの結果より、基底状態においてほぼ間違いなく量子スピナイス状態が実現していることを確認した。

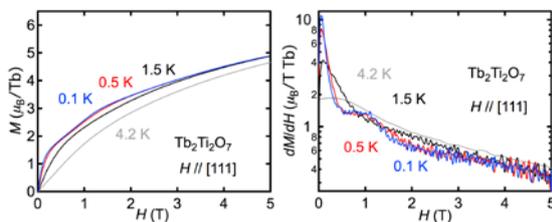


図 2: [111] 方向に磁場を印加した際の磁化と磁化の磁場微分の磁場依存性

(2) 量子スピナイス状態への相転移を示唆する異常の観測

理論において提唱されている量子スピナイス状態は基底状態が一重項状態であるため、通常のスピナイスが保持している残留エントロピーが存在しないことが予想されている。ゼロ磁場での極低温比熱測定の実験結果より、理論で予想されている通りゼロ磁場下では残留エントロピーが存在していないことを確認した。(図 3)

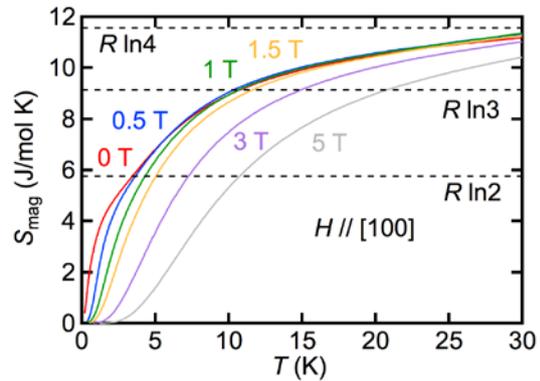


図 3: $H // [100]$ での磁気エントロピーの温度依存性

さらに、以前から報告はされていたがその起源が未解明であった 0.4 K 付近の比熱のピークに関して [100], [110], [111] 方向に磁場を印加した際の振る舞いに関して詳細な測定を行い、[100], [111] 方向では磁場を印加するとすぐに消失するが [110] 方向に磁場を印加した際は磁場が大きくなるにつれて高温側に移行していくような異方的な振る舞いを示すことを見出した。(図 4) これらの結果を総合して異方的な磁場温度相図を決定し、起源が未解明であった比熱のピークが量子スピナイス状態への相転移

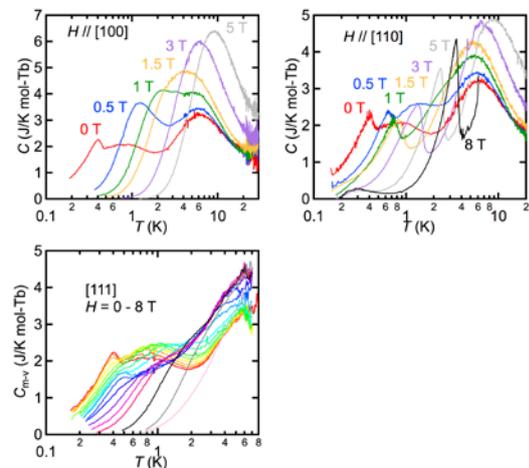


図 4: $H // [100], [110], [111]$ での磁気比熱の温度依存性

を示唆するものであることを見出した。

本研究で得られた成果は国内外で活発に研究がなされてきたにもかかわらず 10 年以上もの間未解決であった $Tb_2Ti_2O_7$ の基底状態の解明につながる非常に重要な実験結果であり、さらに、その基底状態が、大きな磁気モーメントを持つ系ではあまり考慮されてこなかった量子効果を取り入れることで実現する量子スピニアイス状態であることを実験的にほぼ確定したことについても非常に重要な意味を持つ成果である。

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 5 件)

- ① H. Sato, K. Tanaka, D. Kikuchi, T. Namiki, R. Higashinaka, Y. Aoki, M. Kohgi, H. Sugawara, K. Kuwahara, K. Iwasa, Current understanding of the heavy fermion superconductivity in $PrOs_4Sb_{12}$, *PhysicaC*, 査読有, Vol. 470, 2010, S525
- ② Tatsuoka, M. Watanabe, B. Suemitsu, Y. Ogawa, A. Yamada, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, R. Higashinaka, Y. Aoki, T. Namiki, K. Kuwahara, and H. Sato, Response of Itinerant-Electron Weak Ferromagnet $LaFe_4As_{12}$ to Pressure and Magnetic Field, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, vol. 79, 2010, 063704

[学会発表] (計 12 件)

- ① 東中隆二、中間章浩、安藤誠、渡辺慎、青木勇二、佐藤英行、カゴ状物質 RNb_2Al_{20} ($R = La, Pr$) の単結晶育成と低温物性測定, 日本物理学会 秋季大会, 2010/9/23, 大阪府立大学 中百舌鳥キャンパス
- ② R. Higashinaka, A. Nakama, M. Ando M. Watanabe, Y. Aoki and H. Sato, Magnetic and transport properties of RT_2Al_{20} ($R =$ rare earth, $T = Ti, V, Cr$ and Nb), Strongly Correlated Electron Systems SCES2010, 2010/6/27 – 7/2, Santa Fe convention center, New Mexico, USA
- ③ 東中隆二、宮崎亮一、青木勇二、M. Ramazanoglu, H.A. Dabkowska, B.D. Gaulin, 高木英典、佐藤英行、量子スピニアイス物質 $Tb_2Ti_2O_7$ の極低温磁場中比熱, 日本物理学会 秋季大会, 2009/9/26, 熊本大学
- ④ R. Higashinaka, R. Miyazaki, T. Tayama, M. Ramazanoglu, H.A. Dabkowska, Y. Aoki, T. Sakakibara, B.D. Gaulin, H. Takagi and H. Sato, Investigation of quantum spin ice state in $Tb_2Ti_2O_7$, Joint European Japanese

Conference: Frustration in Condensed Matter, 2009/5/13-14, Ecole Normale Supérieure de Lyon, France

[その他]

ホームページ等

<http://denshi-server.phys.se.tmu.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

東中 隆二 (HIGASHINAKA RYUJI)

首都大学東京・大学院理工学研究科・助教
研究者番号：30435672