

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 17 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26800181

研究課題名(和文) 幾何学的にフラストレートした量子磁性体の高圧力下磁化測定による量子相転移の探索

研究課題名(英文) Search for a quantum phase transition in the geometrically frustrated quantum magnet via high pressure magnetization measurements

研究代表者

栗田 伸之 (Kurita, Nobuyuki)

東京工業大学・大学院理工学研究科・助教

研究者番号：80566737

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究の目的は顕著な量子効果が期待される幾何学的フラストレート磁性体において、圧力中で起きる量子相転移を発見することである。我々は高圧力下磁化測定により、非磁性基底状態と励起状態の間に励起ギャップを有する $S=1$ 三角格子反強磁性体 CsFeCl_3 の1.5 GPaまでの磁気相図を決定した。その結果、臨界圧力 ~ 0.9 GPaにおいて非磁性ギャップ状態から磁気秩序状態へと圧力誘起量子相転移が起きることを世界に先駆けて明らかにした。更に本物質の0.5 Kまでの極低温磁化測定を行い、常圧における磁場誘起磁気相転移が磁気励起マグノンのボース・アインシュタイン凝縮として理解できることも明らかにした。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to find a quantum phase transition triggered by application of pressure in the geometrically frustrated quantum magnet. We have constructed a magnetic phase diagram of the $S=1$ triangular-lattice antiferromagnet CsFeCl_3 with gapped ground state, via high-pressure magnetization measurements up to 1.5 GPa. It is found that at the critical pressure of ~ 0.9 GPa, CsFeCl_3 exhibits a pressure-induced quantum phase transition from a nonmagnetic gapped ground state to a magnetically ordered state. In addition, we performed the low-temperature magnetization measurement of CsFeCl_3 down to 0.5 K and revealed that a field-induced magnetic phase transition at ambient pressure can be understood in the context of the Bose-Einstein condensation of magnon quasiparticles.

研究分野：数物系科学

キーワード：幾何学的フラストレーション 高圧力 圧力誘起量子相転移 磁化測定

1. 研究開始当初の背景

磁性イオンが三角形を基本とした結晶配置をとる反強磁性体では、最近接相互作用の競合により幾何学的なフラストレーションが生じ、磁気秩序の形成が抑制される。スピン量子数 (S) $1/2$ の籠目格子反強磁性体では、幾何学的フラストレーションと量子揺らぎが特に顕著に現れるため、基底状態が非磁性のスピン液体や Valence Bond Solid (VBS) になることが理論的に提案されている。しかし $S = 1/2$ 籠目格子反強磁性体の理想的なモデル物質の発見には至らず、基底状態に関する統一的理解は得られていない。

少し歪んだ籠目格子を持つ $S = 1/2$ 籠目格子反強磁性体 $Rb_2Cu_3SnF_{12}$ は、中性子非弾性散乱測定により、基底状態が非磁性一重項で最低励起状態の間に励起ギャップを持つ風車型 VBS であることが明らかにされた。一方 $Cs_2Cu_3SnF_{12}$ は室温で正規籠目格子を持つが、 $T_N = 24$ K 以下で反強磁性秩序を示す。いずれも研究代表者の研究室で発見された新物質であり、大型純良単結晶が得られる数少ない $S = 1/2$ 籠目格子反強磁性体である。最近、様々な混晶物質 $(Rb_{1-x}Cs_x)_2Cu_3SnF_{12}$ の単結晶を育成し磁気及び比熱測定を行った。その結果、量子臨界点 $x_c \approx 0.53$ において、絶対零度における相転移である量子相転移が起きることが明らかになった。また、 $x < x_c$ では基底状態が valence bond glass 状態となっていることを示す結果が得られた [K. Katayama, N. Kurita, H. Tanaka, Phys. Rev. B 91, 214429 (2015)]。

量子臨界点近傍では、量子揺らぎや熱揺らぎに起因し新奇な秩序相や臨界現象が期待される。ただし混晶物質の場合、混晶による交換相互作用の非一様性の効果が量子臨界点近傍の低エネルギー状態における物理現象を複雑にする可能性がある。この点、圧力誘起量子相転移を示す物質であれば、圧力を外部パラメータとした基底状態の系統的制御により、化学量論的組成の同一単結晶を用いた研究を行うことが可能である。しかし、圧力誘起量子相転移を示す幾何学的フラストレート磁性体の報告例は非常に少ないのが現状である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、幾何学的フラストレート磁性体の圧力下磁気相図を明らかにし、圧力誘起量子相転移を発見することである。

研究開始時は $Rb_2Cu_3SnF_{12}$ 及び $Cs_2Cu_3SnF_{12}$ を対象物質としていたが、いずれの物質も圧力効果が小さく最高到達圧力でも基底状態に変化が現れないことが判明した。関連物質の圧力効果測定も行ったが、同様に圧力誘起量子相転移の発見には至らなかった。そこで対象物質を $S = 1$ 三角格子反強磁性体 $CsFeCl_3$ に切り替えた。

$CsFeCl_3$ は大きな容易面型の単イオン異方性により、基底状態が非磁性一重項となり励

起二重項との間に励起ギャップが開いている。磁場を c 軸方向に印加すると三角格子反強磁性体に特徴的な 120° 構造の反強磁性秩序相へと磁場誘起相転移を示すことが分かっている。

3. 研究の方法

$CsFeCl_3$ の単結晶試料は垂直ブリッジマン法を用いて育成を行った。本研究では 1 cm 角を超える大型の純良単結晶が得られた。

高圧力下磁化測定は、独自に開発した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。本研究では圧力中で出現した磁化の異常を圧力誘起磁気秩序によるものと結論づけたが、その異常が本質的なものか否かを慎重に検討する必要がある。高圧力下測定で特に懸念されるのは、圧力媒体の固化による非静水圧効果やバックグラウンド (圧力装置の磁化) の影響である。静水圧性に関して、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。バックグラウンドに関しては、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 電圧応答を様々な温度・磁場で測定し、両者の差から $CsFeCl_3$ の磁化の評価を行った (図 3 参照)。

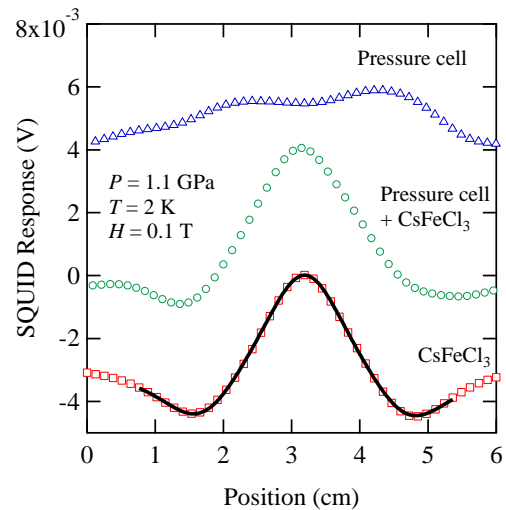


図 1 圧力装置、圧力装置 + $CsFeCl_3$ 、及び両者の差 ($CsFeCl_3$) の SQUID 電圧応答。実線は理論曲線。

4. 研究成果

(1) $CsFeCl_3$ の極低温磁気相図 (常圧)

$CsFeCl_3$ の常圧における磁場誘起磁気秩序相に関して、相転移を特徴付ける相境界の磁場・温度依存性に着目した研究は行われていなかった。そこで本物質の極低温磁化測定を行い、0.5 K までの磁場 - 温度相図を決定した (図 1)。破線は、転移磁場 H_N 及び転移温度 T_N を冪乗則 $H_N - H_c$ T_N でフィットして得られ

た結果である。ゼロ温度での臨界磁場 $H_c(T=0)$ は 3.8 T と見積もられた。挿入図は測定最低温度 (0.5 K) と様々な温度 (T_{max}) の間で臨界指数 を評価した結果である。 T_{max} の減少に伴い ϕ は減少し 1.5 に近づいていくことが判明した。この値はマグノン BEC の理論から得られる $\phi_{BEC}=1.5$ と一致する。今後、更に低温領域の磁場 - 温度相図を明らかにすることで、 $\phi_{BEC}=1.5$ に収束すると期待される。

本研究により、CsFeCl₃ における磁場誘起磁気秩序相転移が磁気励起マグノンの BEC として理解できることが世界に先駆けて明らかになった。

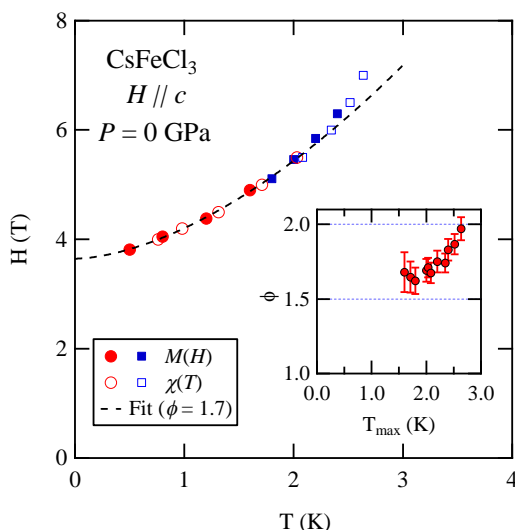


図2 CsFeCl₃ の常圧における磁場 - 温度相図。破線は冪乗則によるフィッティング曲線。挿入図は臨界指数 ϕ の T_{max} 依存性。

(2) CsFeCl₃ の圧力誘起量子相転移

本研究では CsFeCl₃ の 1.5 GPa までの高圧下磁化測定を行った。図 3 は各圧力における磁化率の温度依存性である。圧力を印加すると、 $P = 0.88$ GPa で低温領域に磁気相転移による異常が出現し、加圧と共にその転移温度 $T_N(0.1 T)$ は高温側へシフトしていることが分かる (挿入図)。

$T_N(0.1 T)$ と磁化過程の圧力依存性から得られた転移磁場 $H_N(1.8 K)$ の圧力依存性が図 4 である。 H_N は励起ギャップの大きさに相当する。従って、圧力を印加すると励起ギャップが小さくなり、臨界圧力 $P_c \sim 0.9$ GPa 以上で励起ギャップが消失し、基底状態が磁気秩序状態へと変化したと考えられる。

以上より、CsFeCl₃ では P_c で圧力誘起量子相転移が起きると結論付けられる。異なる三つの試料で同様の測定を行い、再現性のある結果が得られている。

今後は、CsFeCl₃ の圧力誘起秩序相における磁気構造の決定、及び Higgs モードの探索が重要な課題となる。 P_c 近傍の磁気秩序相では、異方性項 D と交換相互作用の競合により磁気モーメントが縮んだ状態になっている

と考えられる。この場合、秩序変数の振幅振動モードである Higgs モードを実験的に観測できる可能性がある。磁性体における Higgs モードに関して、モデル物質が不足しているため現時点で統一的理解は得られていない。

以上の研究成果は田中秀数教授との共同研究により得られた。現在、論文を投稿中 (arXiv: 1606.00109 参照) である。

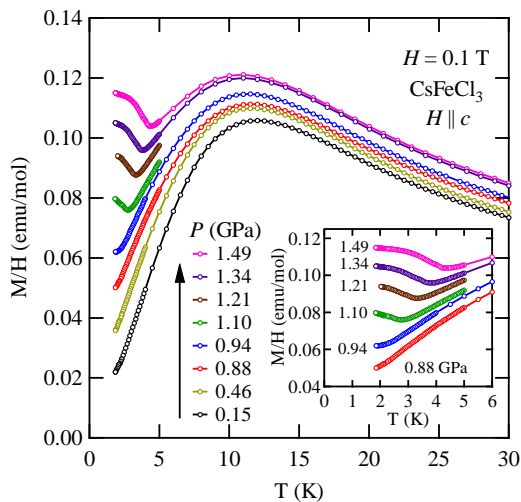


図3 各圧力における CsFeCl₃ の磁化率の温度依存性。挿入図は低温領域の拡大図。

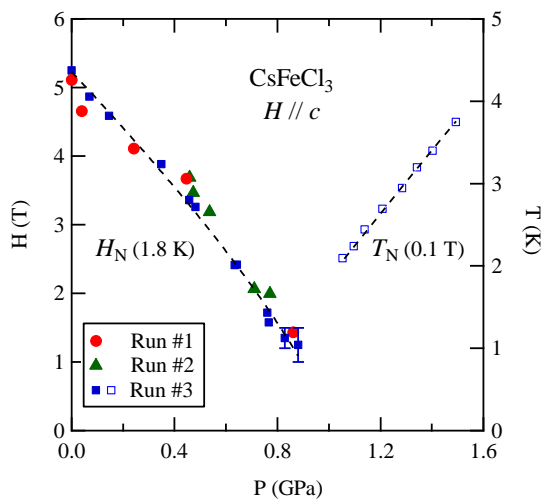


図4 磁化測定から決定した CsFeCl₃ の転移磁場 $H_N(T=1.8 K)$ 及び転移温度 $T_N(H=0.1 T)$ の圧力依存性。

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9件)

P. Chanlert, N. Kurita, H. Tanaka, D. Goto, A. Matsuo, K. Kindo "Field-

driven successive phase transitions in the quasi-two-dimensional frustrated antiferromagnet $\text{Ba}_2\text{CoTeO}_6$ and highly degenerate classical ground states” Phys. Rev. B 93, 094420 (2016), 査読有り
DOI: 10.1103/PhysRevB.93.094420

K. Koga, N. Kurita, M. Avdeev, S. Danilkin, T. J. Sato, H. Tanaka “Magnetic Structure of an $S=1/2$ Quasi-Two-Dimensional Square-Lattice Heisenberg Antiferromagnet $\text{Sr}_2\text{CuTeO}_6$ ” Phys. Rev. B 93, 054426 (2016), 査読有り DOI: 10.1103/PhysRevB.93.054426

栗田伸之, 木俣基, 鈴木博之, 松本武彦, 村田恵三, 宇治進也, 寺嶋太一 “鉄系圧力誘起超伝導体の静水圧・非静水圧効果” 高圧力の科学と技術, 69, 27-34 (2016), 査読有り
DOI: 10.4131/jshpreview.26.27

I. Umegaki, H. Tanaka, N. Kurita, T. Ono, M. Laver, C. Niedermayer, C. Rüegg, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, K. Kakurai “Spinon, soliton and breather in the spin-1/2 antiferromagnetic chain KCuGaF_6 ” Phys. Rev. B 92, 174412 (2015), 査読有り
DOI: 10.1103/PhysRevB.92.174412

K. Katayama, N. Kurita, H. Tanaka “Quantum phase transition between disordered and ordered states in the spin-1/2 Kagome lattice antiferromagnet $(\text{Rb}_{1-x}\text{Cs}_x)_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ ” Phys. Rev. B 91, 214429 (2015), 査読有り DOI: 10.1103/PhysRevB.91.214429

K. Koga, N. Kurita, H. Tanaka “Strong Suppression of Magnetic Ordering in a Frustrated $S=1/2$ Square-Lattice Heisenberg Antiferromagnet $\text{Sr}_2\text{CuTeO}_6$ ” J. Phys. Soc. Jpn. 83, 115001 (2014), 査読有り DOI: 10.7566/JPSJ.83.115001

H. Tanaka, N. Kurita, M. Okada, E. Kunihiro, Y. Shirata, K. Fujii, H. Uekusa, A. Matsuo, K. Kindo, H. Nojiri “Almost perfect frustration in the dimer magnet $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ ” J. Phys. Soc. Jpn. 83, 103701 (2014), 査読有り DOI: 10.7566/JPSJ.83.103701

K. Yokota, N. Kurita, H. Tanaka “Magnetic phase diagram of the $S=1/2$ Triangular-Lattice Heisenberg Antiferromagnet $\text{Ba}_3\text{CoNb}_2\text{O}_9$ ” Phys. Rev. B 90, 014403 (2014), 査読有り

DOI: 10.1103/PhysRevB.90.014403

[学会発表](計 21 件)

栗田伸之, 田中秀数 “基底一重項磁性体 AFeX_3 ($A=\text{Cs}, \text{Rb}; X=\text{Cl}, \text{Br}$) の圧力下磁気相図” 日本物理学会(第71回年次大会), 2016年3月19日、東北学院大学

栗田伸之, 田中秀数 “基底一重項磁性体 CsFeCl_3 における圧力誘起相転移” 物性研短期研究会「スピン系物理の深化と最前線」, 2015年11月16日、東京大学物性研究所

栗田伸之, 田中秀数 “ CsFeCl_3 及び RbFeBr_3 の高圧力下における磁気相図” 日本物理学会(2015年秋季大会), 2015年9月16日、関西大学

N. Kurita, H. Tanaka “High pressure phase diagram of the singlet-ground-state magnet CsFeCl_3 ” 20th International Conference on Magnetism 2015年7月9日, Barcelona, Spain

栗田伸之, 田中秀数 “基底一重項磁性体 CsFeCl_3 の磁場誘起磁気秩序相の圧力効果” 日本物理学会(第70回年次大会), 2015年3月21日、早稲田大学

栗田伸之 “鉄系圧力誘起超伝導体 EuFe_2As_2 の静水圧・非静水圧効果” 未来を拓く高圧力科学技術セミナーシリーズ(40)(日本高圧力学会), 2015年2月10日、東京大学(招待講演)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

栗田伸之 (KURITA NOBUYUKI)
東京工業大学・大学院理工学研究科・助教
研究者番号: 80566737

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし