

イジング的異方性を持つ磁性体における横磁場誘起量子揺らぎ効果の研究

物質系専攻 47-186058 渡辺義人

指導教員：有馬 孝尚（教授）、 徳永 祐介（准教授）

キーワード：強相関電子系、量子相転移、磁性体、横磁場イジング模型

1. 研究背景

物質科学の対象は一般に多数の構成要素からなる多体系である。最も顕著な多体効果である相転移や臨界現象は古くから注目を集め続けており、量子相転移もその一つである。古典的な相転移が熱揺らぎを駆動力とするのに対し、量子相転移は圧力や磁場、組成などの量子揺らぎを起源とし、0 K にて起きる秩序相から無秩序相への相転移である（図 1）。物質内においては量子臨界点近傍で強い量子揺らぎに伴った、超伝導相や非自明な磁気秩序などの新規な量子相の発現が報告されている。そのため量子相転移の理解は物質科学の発展のために不可欠である。本研究で扱う横磁場イジング模型（Transverse Field Ising Model, TFIM）は量子相転移を起こす系として理論的に最も研究されている系の一つである。物質においても幾つかの一軸異方的な磁性イオンをもつ絶縁体が TFIM のモデル物質として研究されてきた。TFIM では、イジングの対称性を破らない方向である横磁場の印加によりスピンの揃った状態が乱され、秩序-無秩序の相転移が生じる。TFIM において量子揺らぎを引き起こす役割を果たす磁場は、組成比や圧力といった他の量子揺らぎの起源と比べ、外部から操作しやすい。しかし、モデル物質の少なからず量子臨界点近傍において量子揺らぎと結合しておきる物理現象の理解や機能開拓はいまだ十分でない。

本研究では①擬一次元 TFIM である CoNb_2O_6 を対象として、量子臨界点近傍での量子揺らぎが光吸収スペクトルに与える影響の調査と、②新規な TFIM モデル物質の候補として、イジング的磁気異方性を持つ TbPtIn の横磁場効果の検証と、金属化合物における横磁場イジング模型実現の可能性の追求を行った。

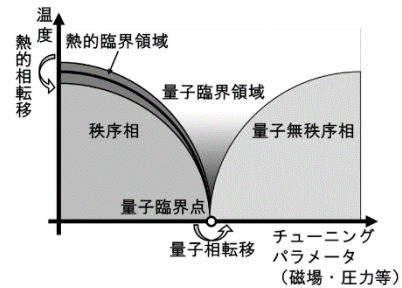


図 1: 量子相転移を起こす系の典型的な相図。

2. CoNb_2O_6 の量子臨界点近傍における短距離相関の観測

2.1. 目的

対象物質の CoNb_2O_6 は直方晶の空間群 $Pbcn$ に属する。磁性を担うのは Co^{2+} イオンであり、基底状態のクラマース二重項の磁気モーメントが強い一軸異方性を持つため、系をイジング模型にマップすることができる。 Co^{2+} イオンは c 軸方向にジグザグ鎖を形成していて、鎖内の相互作用が鎖間の相互作用に比べ強いいため擬似的な一次元イジング系とみなせる。磁化困難軸である b 軸方向への磁場印加により約 5 T で秩序相から無秩序相への量子相転移が起きる[1]。中性子非弾性散乱実験において観測された量子臨界点近傍での励起スペクトルは、一次元 TFIM から理論的に計算される励起スペクトルで上手く説明できる[2]。その為、物質内における TFIM の量子臨界点近傍の物性を調べるのに適していると言える。本研究では量子臨界点近傍の量子揺らぎを可視光の光吸収測定により検知することを目的とした。可視光帯の光吸収は Co^{2+} イオンの $d-d$ 遷移による。そのため、 Co^{2+} の d 電子による磁気モーメント間の相関による電子状態の変化が光吸収スペクトルの変化としての観測が期待される。

2.2. 結果と考察

Floating Zone 法により作製した CoNb_2O_6 の単結晶を用いて磁場下光吸収測定を行い、複数の吸収ピークに対して、磁場によるピーク位置の変化を観測した。図 2 に転移温度 ($T_N=2.9\text{ K}$) 前後における、 2.35 eV の吸収ピーク位置の磁場依存性を示した。磁場印加とともにピーク位置の低エネルギー側へのシフトが見られる。また、転移温

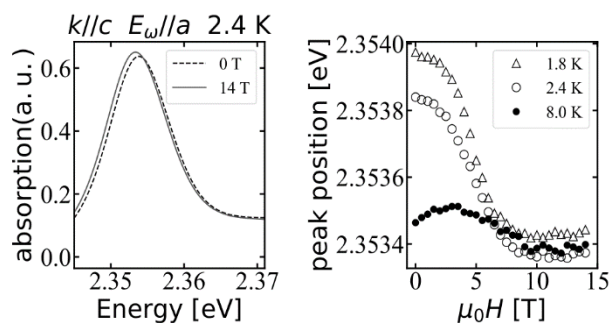


図 2: CoNb_2O_6 の光吸収スペクトルの磁場依存性。

度前後の磁場依存性は 6 T 付近で合流している。同様の傾向は異なるピークでも観測された。 $0\text{ T} < B < \text{臨界磁場 } (B_c)$ における転移温度前後でのピーク位置の違いは長距離秩序により、 Co^{2+} サイトに発生する有効磁場の効果が観測されていると理解できる。一方、比熱測定から見積もられる 1.8 K と 2.4 K における臨界磁場はそれぞれ 4 T と 2.5 T 程度であり、 6 T より小さい[1]。 8 K は転移温度より十分高温で、相関距離も時間も非常に小さいと考え、 $B_c < B < 6\text{ T}$ における転移温度前後での差異は、短距離・短時間の磁気モーメント間の相関が電子状態に与える変化に対応していると考えられる。広い磁場領域での量子揺らぎの観測に成功したと結論付けた。

3. TbPtIn の横磁場効果の検証とメタ磁性転移

3.1. 目的

TFIM モデル物質候補として希土類金属間化合物 $RT\text{In}$ (R =希土類元素, T =遷移金属元素) に着目した。 $RT\text{In}$ は空間群 $P-62m$ に属する ZrNiAl 型構造の物質であり、磁性は希土類イオン R^{3+} の局在化した磁気モーメントが担う。これまでに R や T により様々な磁気構造が実現することが報告されている[3]。本研究の対象物質である TbPtIn は 46 K 以下で全ての磁気モーメントが c 面内に向いた反強磁性的な磁気秩序を示す。 c 面内磁化過程の角度依存性の詳細な測定により一軸異方的な単一イオン異方性を持つことが提唱されている[4]。一軸異方性により、イジング模型にマップできることが期待される。また全ての磁気モーメントに対し結晶の c 軸は磁化困難軸になっていることから、 c 軸方向への磁場印加により横磁場イジング模型で記述できると考えられる。

3.2. 結果と考察

Self-Flux 法により作製した TbPtIn の単結晶を用いて交流電気抵抗率とパルス磁場下における磁化測定を行った。 $B < 14\text{ T}$ の定常磁場下の電気抵抗率の温度依存性測定の結果から、磁場印加とともに反強磁性転移温度が低くなることが明らかになった。 14 T の磁場下では転移温度は 34 K まで下がる。転移温度の 14 T までの磁場依存性を 0 K に外挿すると 25 T 付近に量子臨界点が存在することが示唆された。

一方、パルス磁場下の磁化測定により低温で 16 T 付近にメタ磁性転移が存在することが明らかになった。低温では履歴を伴う一次転移が観測されたが、 $T > 30\text{ K}$ では履歴がなくなり二次転移となる。転移温度よりも高温でもブロードなメタ磁性転移が 80 K まで見られた。

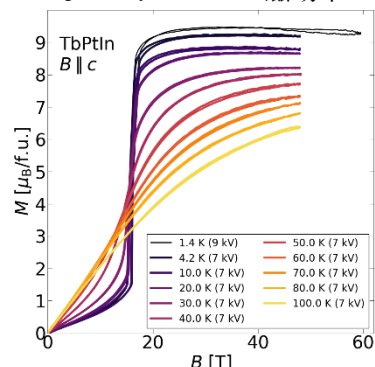


図 3: TbPtIn 磁化の磁場依存性。

電気抵抗率及び磁化測定により得られた TbPtIn の磁気相図を図 4 に示す。秩序相と無秩序相の相境界は低磁場では二次転移であったのに対し、高磁場では一次のメタ磁性転移となった。横磁場イジング模型における量子相転移では、磁気モーメントは c 面内に向いたまま二次転移により無秩序化することが期待される。一方、本研究の低温で観測された一次のメタ磁性転移では磁気モーメントの向く方向が c 面内から c 軸方向へ変わる。これは Tb^{3+} イオンの磁気モーメントの基底状態がイジング的な擬二重項でなくなったことを意味しているため、TFIM における量子相転移とは異なる。結論として TbPtIn の横磁場イジング的な量子臨界点はメタ磁性転移によって隠されていると言することができる。

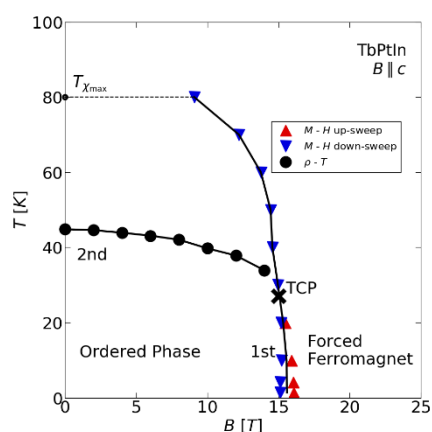


図 4：TbPtIn の磁気相図。

観測されたメタ磁性転移の起源を調べるために平均場ハミルトニアンを用いた数値計算を行った。系のハミルトニアンとして結晶場項とゼーマン項、容易軸方向への強磁性的相互作用項のみを仮定した場合にはメタ磁性転移を再現することはできなかった。しかし、困難軸方向への強磁性的相互作用項や、四極子間相互作用項を加えるとメタ磁性転移が生じることが明らかになった。得られた平均場ハミルトニアンで磁気相図を作成し、低温における一次のメタ磁性転移や、低磁場側での二次転移、転移温度以上でのメタ磁性転移などの再現に成功した (図 5)。さらに、相互作用の項のみを小さくすることによってメタ磁性転移的な振る舞いと横磁場イジング的な量子相転移が分離できることが明らかになった。このことは Tb^{3+} サイトに非磁性のイオンである Y^{3+} などをドーピングすることにより、量子臨界点に実験的にアクセスできる可能性を示唆している。

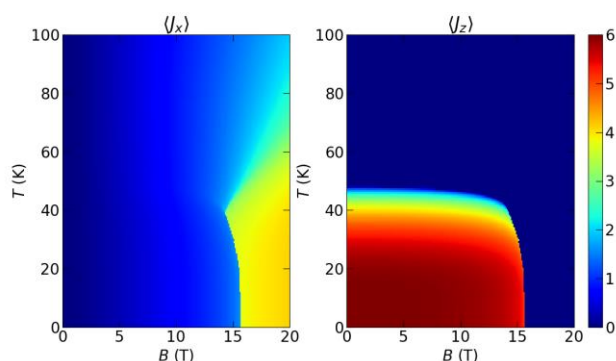


図 5：平均場ハミルトニアンにより得られた磁気相図。

【学会発表】

1. 渡辺義人, 阿部伸行, 木村尚次郎, 徳永祐介, 有馬孝尚 「1次元イジング系 CoNb_2O_6 の横磁場下光吸収測定」日本物理学会第 74 回年次大会 福岡 (九州大学)
2. 渡辺義人, 阿部伸行, 木村尚次郎, 三宅厚志, 徳永将史, 徳永祐介, 有馬孝尚 「イジング的反強磁性体 TbPtIn における横磁場効果」日本物理学会第 75 回年次大会 名古屋 (名古屋大学)

【参考文献リスト】

- [1] T. Liang *et al.*, Nat. Commun. **6**, 7611 (2015).
- [2] R. Coldea *et al.*, Science **327**, 5962 (2010).
- [3] A. Szytuła *et al.*, Acta Phys. Pol. A **117**, 590594 (2010).
- [4] E. Morosan *et al.*, Phys. Rev. B **71**, 014445 (2005).