

2020年3月

## 遍歴局在相関係の超強磁場下での磁場誘起相転移

物質系専攻 学生番号 47-186027 鈴木 悠太

指導教員：松田 康弘（准教授）

キーワード：モット絶縁体，金属絶縁体転移，価数揺動，超強磁場磁化測定

### 研究背景

固体中の電子が強いクーロン相互作用により互いに反発しあう系は強相関電子系とよばれる。強相関電子系において、電子は電荷・スピン・軌道の3つの内部自由度を持ち、多体効果によって遍歴性と局在性の相関が発現し、さまざまな物質で多様な物理現象が生じる。 $d$ 電子が物性を担う遷移金属化合物では、 $d$ 軌道の局在性が強いために電子相関が強く、金属絶縁体転移やモット絶縁体といった現象が起こる。 $f$ 電子が物性を担う希土類化合物では、基本的には局在している $f$ 電子が伝導電子と混成し、遍歴性を獲得することで、重い電子系や量子臨界現象などが発現する。

バナジウム酸化物  $\text{Sr}_2\text{VO}_4$  は  $\text{K}_2\text{NiF}_4$  型構造を持ち、 $\text{V}^{4+}$  ( $3d^1$ ) が二次元正方格子を形成する、 $S = 1/2$  のモット絶縁体である。スピン軌道相互作用によって非自明な磁氣的性質が発現することが予想されている。室温では正方晶であり、 $T_2 = 127$  K で直方晶に転じた後、 $T_1 = 101$  K で再び正方晶になる[1]。この構造相転移の起源はまだ明らかになっていない。磁氣的状態に関しては  $T_N = 10$  K で反強磁性転移がみられ、この温度領域のみで内部磁場が観測される[1]。また基底状態に関して、ストライプ型スピン軌道秩序モデル[2]と磁気八極子秩序モデル[3]が提案されているが明らかとなっていない。

バナジウム硫化物  $\text{BaVS}_3$  は  $\text{CsNiCl}_3$  型構造を持ち、 $\text{V}^{4+}$  ( $3d^1$ ) が  $c$  軸方向に一次元鎖、 $c$  面内に三角格子を形成する、擬一次構造を持つ。 $T_{\text{MI}} = 69$  K で金属絶縁体転移(MIT)を示す。30 K で発現する磁気秩序[4]や  $T_{\text{MI}}$  で形成する超格子[5]が確認されており、MITの起源に関する議論が盛んに行われている。

ユウロピウム化合物  $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$  は  $\text{ThCr}_2\text{Si}_2$  型構造を持つ、 $\text{Eu}^{2+}$  ( $4f^7$ ) と  $\text{Eu}^{3+}$  ( $4f^6$ ) 間での典型的な価数揺動物質である。 $x \geq 0.85$  では反強磁性秩序を示すが、 $x \leq 0.85$  では価数揺動を示すことが知られている[6]。温度、圧力あるいは磁場によって価数転移を示す。この価数転移の起源や、価数転移における  $4f$  電子と伝導電子との混成の役割に興味を持たれている。

いずれの物質も非破壊パルスマグネットを用いた磁化測定[1,7,8]が行われており、さらなる強磁場領域での磁化測定が望まれている。本研究では、遍歴局在相関係であるこれらの物質に対する磁場中の電子状態を解明することを目的に、磁化測定を行うことで磁場誘起相転移を観測しようと試みた。

## 実験方法

実験では、約 100 T のパルス磁場を用いて、 $\text{Sr}_2\text{VO}_4$  [4.2、90 K]、 $\text{BaVS}_3$  [4.2 K] および  $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$  ( $x=0.79$ ) [4.2 ~ 67 K] の磁化測定をそれぞれ行った。([ ] 内は測定温度である。) 磁場印加には、破壊型磁場発生法の一つである縦型一巻きコイル法を用いた。試料が外部磁場により磁化した際にコイルに生じる誘導起電力として検出する。(誘導法と呼ばれる。) 図 1 に示すような平行型ピックアップコイルを用いた。

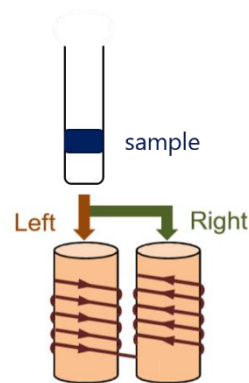


図 1 平行型ピックアップコイルの概念図

## 実験結果および考察

4.2 K における  $\text{Sr}_2\text{VO}_4$  の磁化測定で得られた磁化曲線を図 2 に示す。磁場上昇時の結果を示している。10 T までの磁化曲線には大きな立ち上がりが見られるが、これは磁場発生直後のスターティングノイズが、磁化の信号に対して影響を及ぼした結果であり、本質的な信号ではないと考えている。10 T 以上の強磁場領域は、スターティングノイズの影響が少なく、比較的信頼性が高い信号が得られた。また、この磁化曲線の概形から 55, 68, 76, 88 T 近傍に変曲点があることが認められる。先行研究の磁化曲線と比較すると、変曲点の存在のみを考えれば、55-68 T までが従来の 1/6 プラトーであり、76-88 T において新しいプラトー相が出現している可能性が示唆される。しかし、磁化変化が小さく、76 T の異常は本質的な信号かどうかは確定的ではない。そのため 55-88 T の領域全体が 1/6 プラトーである可能性もある。

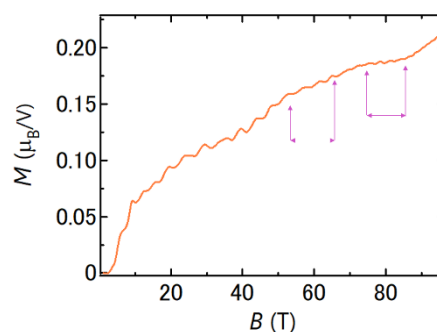


図 2 4.2 K における  $\text{Sr}_2\text{VO}_4$  の磁化曲線

4.2 K における  $\text{BaVS}_3$  の磁化測定で得られた磁化曲線を図 3 に示す。磁場上昇時、下降時において、それぞれ 60 T と 40 T に磁化の急激な変化が観測されている。これはメタ磁性転移による変化であり、過去の報告例[8]とも一致する。一方で、電磁ノイズの補償が十分な精度で行えなかった影響により、磁化曲線は磁場上昇時と下降時で大きなループが開いた。一方、理論的には 60 T 以上にさらなる別の磁場誘起相転移が期待されたが、120 T までには急激な磁化の変化は観測されなかった。従って、2つめの相転移はさらに強磁場領域にあると予想される。

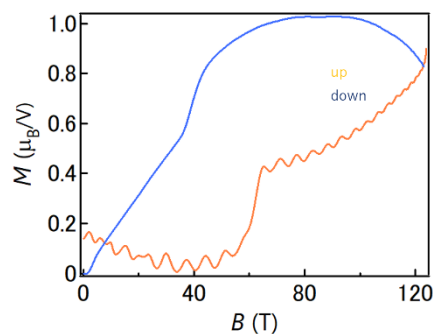


図 3 4.2 K における  $\text{BaVS}_3$  の磁化曲線

EuNi<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> (x=0.79) の 4.2 K から 67 K における磁化曲線を図 4 に示す。見やすくするために縦軸の原点は各グラフでずらして示した。4.2 K における飽和磁化の値が約 5 μ<sub>B</sub>/Eu と期待される値の 7 μ<sub>B</sub>/Eu に達しておらず、低温で価数揺動が残存していることが示唆される。したがって、磁場中で近藤効果が効いていると予想でき、EuNi<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> (x = 0.79) の磁場誘起価数転移は、非磁性基底状態からの重い電子状態への相転移であると考えられる。また、温度を上げていくと飽和磁化が 7 μ<sub>B</sub> に近づいていくことから、高温では近藤効果が抑制されることもわかる。一方、先行研究とは異なり、50 K 以降で価数転移が観測されなくなった。これは結晶の成長条件の違いに起因する可能性がある。本物質では、x=0.85 を境に反強磁性状態と価数揺動状態が区別される。このように EuNi<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> では、相転移が何らかの不連続な機構を持つことが予想される。これと同様のことが、磁場誘起価数転移に対しても起こっている可能性がある。

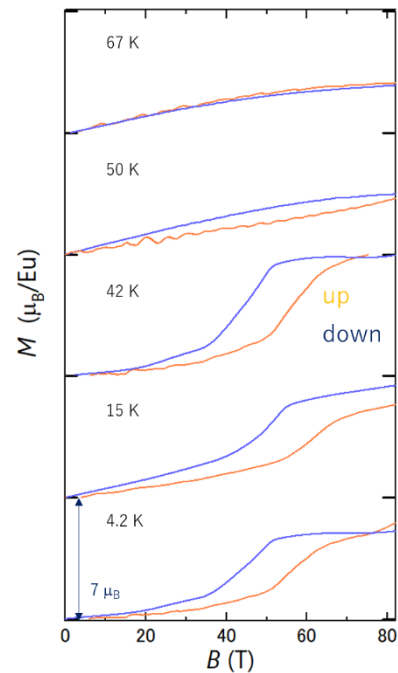


図 4 EuNi<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> (x=0.79) の磁化曲線

## 結論

本研究において、3 種類の遍歴局在相関電子系について 100 T 領域で磁場誘起相転移の研究を行った。Sr<sub>2</sub>VO<sub>4</sub> では新たな磁化プラトー相の可能性を示唆する結果を得たが、磁化変化が測定誤差と同程度であるため、今後の検証が必要である。BaVS<sub>3</sub>では、2 段目の磁場誘起相転移は 120 T 以上にあると予想できる結果を得た。EuNi<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> (x = 0.79)の磁場誘起価数転移は、単なる局在描像を超えて、遍歴性の強い重い電子状態が強磁場相に現れていることを示唆する結果を得た。

## 参考文献

- [1] I. Yamauchi, et al., Phys. Rev. B. 92, 064408 (2015)
- [2] Y. Imai et al., Phys. Rev. Lett. 95, 176405 (2005)
- [3] G. Jackeli et al., Phys. Rev. Lett. 103, 067205 (2009)
- [4] H. Nakamura et al. J Phys Soc Jpn 69, 2663 (2000)
- [5] T. Inami et al, Phys. Rev. B 66, 0T310B (2002)
- [6] H. Wada et al., J. Phys.: Condens. Matter 9, 7913-7923 (1997).
- [7] 三宅厚志ら、未出版
- [8] Y. Narumi et al. J. Phys.:76.1 (2007): 013706-013706 (2007).

## 学会発表

1. 「メガガウス領域での Sr<sub>2</sub>VO<sub>4</sub> の磁化過程」、強磁場コラボラトリ研究会 (東北大学 金属材料研究所、2018/11/26-27)
2. 「メガガウス領域での Sr<sub>2</sub>VO<sub>4</sub> の磁化過程」、日本物理学会 第 74 回年次大会 (九州大学、2019/3/14-17)
3. 「バナジウム系相関物質の強磁場磁気特性」、日本物理学会 2018 年秋季大会 (岐阜大学、2019/9/10-13)
4. 「超強磁場におけるバナジウム強相関電子系の磁化過程」、強磁場コラボラトリ研究会 (大阪大学、2019/12/3-5)
5. 「EuNi<sub>2</sub>(Si<sub>0.21</sub>Ge<sub>0.79</sub>)<sub>2</sub> の強磁場磁気特性」、日本物理学会 第 75 回年次大会 (名古屋大学、2020/3/16-19)