

学位論文要旨

Exploring for novel magnetic ordered state stabilized by the competition between the quantum spin fluctuation, spin-orbit coupling and DM interaction of $S = 1/2$ triangular-lattice antiferromagnets, CsCuCl_3 and $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$
($S = 1/2$ 三角格子反強磁性体 CsCuCl_3 と $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ における量子スピンゆらぎの効果とスピン軌道相互作用、DM 相互作用の競合により出現する新奇磁気秩序相の探索)

世良 文香

【背景と目的】

スピン $S = 1/2$ の三角格子では幾何学的フラストレーション、量子スピンゆらぎが存在するため、古典的には考えられない特異な秩序相が出現する。このような三角格子に磁場をかけるとき、古典論では磁場中基底状態が無限に縮退している。この無限縮退は量子スピンゆらぎによって解かれることが知られており、盛んに研究されているが、現実には量子スピンゆらぎ由来の量子相転移を示す例は非常に少ない。本研究の対象物質である CsCuCl_3 と $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ はそのような稀な例である。現実には量子スピンゆらぎの効果を議論する上で、交換相互作用の異方性が重要になるが、本研究ではこのような観点から研究を進めている。 CsCuCl_3 は量子相転移が観測された初めての三角格子化合物であり、フラストレーションの観点から盛んに研究されている。この物質は高温で Jahn-Teller 効果により構造相転移を起こし、低温相でキラルな空間群に属するため、近年ではキラル磁性体として注目を集めている。ただし、その物性は Dzyaloshinskii-Moriya(DM)相互作用が存在するため複雑であり、発見から半世紀ほど経つ現在でも未解決問題を残している。 $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ は最近発見された化合物で、有効スピン $S_{\text{eff}} = 1/2$ を持つ理想的な Heisenberg 三角格子反強磁性体として考えられており、量子スピンゆらぎに起因する磁気相転移が観測されている。結晶構造は CsCuCl_3 の高温相と同じ空間群 $P6_3/mmc$ に属し、単純な三角格子モデルで考えることができるという利点があるが、秩序相における交換相互作用の異方性の見積もりについては意見が分かれている。

CsCuCl_3 と $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ は類似した構造を持つ $S = 1/2$ 三角格子反強磁性体であり、量子スピンゆらぎに起因する磁気相転移が観測されているが、両者の磁氣的性質を比較することで、量子スピンゆらぎの効果とスピン軌道相互作用、DM 相互作用の競合に関する新たな知見が得られると考えられる。そこで本研究では以下の 4 つを目的として実験を行った。

1. CsCuCl_3 と $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ における磁気異方性の起源の違いを明らかにする。
2. $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ における交換相互作用の起源を明らかにする。
3. CsCuCl_3 において圧力誘起量子相転移の可能性を探索し、圧力が量子スピンゆらぎに及ぼす影響を明らかにする。
4. CsCuCl_3 のキラリティから出てくる DM 相互作用の影響を調べる。

【結果と考察】

1. CsCuCl_3 と $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ の磁化測定

CsCuCl_3 と $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ について常圧で 15 T までの磁化測定を行った。 CsCuCl_3 の磁気異

方性は T_N 以下で温度に大きく依存し、温度減少に伴い増大することが分かった。一方、 $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ ではパラ領域から大きな面内磁気異方性が存在し、異方性は温度に依存しないことが分かった。この違いは面内磁気異方性の起源が CsCuCl_3 は DM 相互作用、 $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ はスピン軌道相互作用で分裂した励起状態を通しての van Vleck 項の異方性、と異なるためであると考えられる。

2. $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ に対する 3 部分格子模型による分子場計算

3 部分格子模型を用いて分子場計算により、交換相互作用と g 因子の異方性を求めた。交換相互作用を等方的に取り、結晶場、スピン軌道相互作用を取り入れたハミルトニアンを考え、高温・高磁場のパラ領域でフィッティングを行った。交換相互作用を等方的に取っているが、スピン軌道相互作用を通して交換相互作用の異方性が自動的に出てくることになる。これにより交換相互作用と g 因子の異方性を同時に同じベースのもとで、それぞれ $J/J_z = 1.19$, $g_{\perp}/g_{\parallel} = 1.13$ と求めることができた。これにより $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ では交換相互作用の異方性がかなり大きいことを示した。

3. CsCuCl_3 の圧力下での磁化測定

CsCuCl_3 について圧力下磁化測定を軸ごとに行った。 $H \parallel c$ においては $P > 0.6 \text{ GPa}$ で磁化が飽和磁化の $1/3$ を示す $M_s/3$ プラトー相が出現することを発見した(図 1)。これは量子スピンゆらぎの効果が最大である *up-up-down*(*uud*) 相の出現を示唆している。また T_N が加圧により増大するが、高磁場相の T_N の上昇率が低磁場相より大きいことを発見した(図 2)。圧力誘起 *uud* 相の発見は本研究が世界で初めてである。圧力誘起 *uud* 相が出現する理由は、高磁場相では圧力による DM 相互作用よりも面内反強磁性相互作用の増大の方が大きく、量子スピンゆらぎによるエネルギーの利得が面内磁気異方性に打ち勝つためであると考えた。また $H \parallel b^*$ では非常に小さい圧力で 1 気圧では 1 次相転移を伴い IC5 相が出現することを発見した。

【まとめ】

CsCuCl_3 と $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ の磁化測定の結果から軌道角運動量の果たす役割の違いが磁気挙動に及ぼす影響の違いを明らかにした。 $\text{Ba}_3\text{CoSb}_2\text{O}_9$ については分子場計算により g 因子と交換相互作用の異方性を決定し、量子スピンゆらぎを抑制する交換相互作用の異方性がかなり大きいことを示した。 CsCuCl_3 の圧力下磁化測定より、 $H \parallel c$, b^* とともに圧力により新奇磁気秩序相が出現することを見出した。 $H \parallel c$ の圧力誘起 *uud* 相については高磁場で顕著に増大した量子スピンゆらぎが面内磁気異方性に打ち勝つため出現すると考えられる。

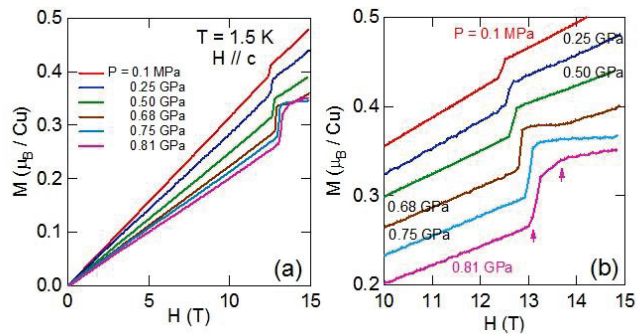


図 1. $H \parallel c$ における $T = 1.5 \text{ K}$ での圧力下磁化曲線

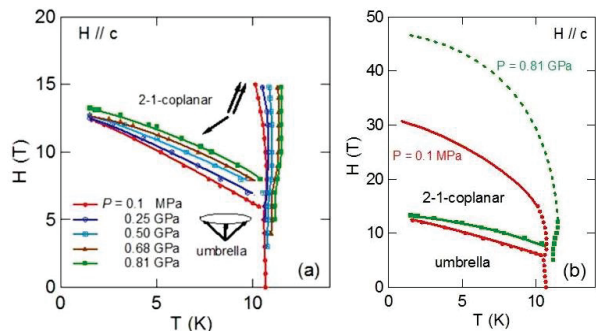


図 2. $H \parallel c$ の (a) 圧力下磁気相図 (b) 0.81 GPa の予想高磁場磁気相図 (*uud* 相は省略している)