

# 量子スピニアイス系 $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の実験的研究

明治大理工； 安井幸夫

Experimental Studies on Quantum Spin Ice Material  $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$

Meiji Univ.; Y. Yasui

パイロクロア化合物  $\text{R}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  では、 $\text{R}^{3+}$  イオンが頂点を共有する正四面体ネットワークを形成している。R サイトの磁気モーメントが強い一軸異方性を持ち、かつ強磁性的に相互作用する場合、各四面体上のスピンは 2-in 2-out 構造が安定である (R=Ho, Dy、スピニアイスと呼ばれている [1])。しかし、2-in 2-out 構造であっても結晶全体では巨視的な縮重度があるために極低温でも磁気秩序を形成しない。スピンを 1 つ反転させると 1-in 3-out と 3-in 1-out の対ができるが、それらは独立に伝搬できるので、仮想的な磁気単極子とみなすことができると提案された [2]。

本研究で取り上げる  $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  では、多結晶試料において  $T_c=0.21\text{K}$  で比熱にとびが現れると報告され [3]、その後複数のグループにより実験結果が報告されたが [4,5]、この転移の発現機構の解明は進んでいなかった。その理由の 1 つは、相転移温度が希釈冷凍機が必要な  $0.24\text{K}$  と低いために、測定可能な物理量や実験装置が極めて限られるからである。もう 1 つの理由は、比熱にとびをもつ単結晶作成の困難さが挙げられる (単結晶の試料依存性が大きい)。発表者らは比熱にとびをもつ大型単結晶の作成に初めて成功し、下記に述べる実験的研究を行ったのでその結果を報告する。

単結晶を用いた交流磁化率測定および中性子回折 (JRR-3 の T1-1(HQR) で測定) を行った結果、 $T_c$  で強磁性の長距離磁気秩序が現れることを見出した [4]。Fig. 1 に 111 磁気反射の散乱強度の温度依存性を示すが、 $T_c$  以下で長距離磁気秩序が現れたことがわかる。各磁気反射の強度比より磁気構造を解析

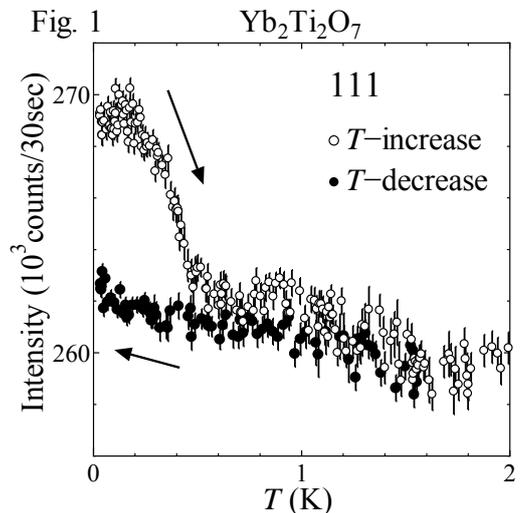


Fig.1: 111 磁気反射の温度依存性。昇温時および降温時に測定した場合で温度履歴があるが、 $T_c$  以下で磁気反射を観測。

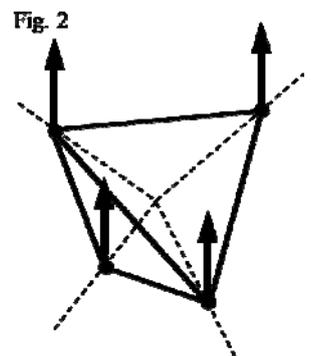


Fig.2: 観測した各磁気反射の強度比を説明する磁気構造。

した結果、[001]方向及びそれと等価な方向を向く collinear な強磁性磁気構造であることが分かった(Fig. 2)。この磁気構造は、 $\text{Yb}^{3+}$ の磁気異方性が古典スピアイス系( $R=\text{Ho}, \text{Dy}$ )と同様の強い一軸異方性と考えると理解できず、ある程度の面内異方性の存在を意味している。さらに発表者らのグループでは偏極中性子を用いた磁気散漫散乱測定により磁気相関を調べ、小野田氏が量子スピアイスモデルを用いた理論的解析を行った結果、この転移は仮想的な磁気単極子がボーズアインシュタイン凝縮を起こし強磁性状態に相転移したと理解できた[5] (講演 26pKQ-5 参照)。なお、量子スピアイスと呼ぶのは、 $\text{Yb}^{3+}$ 磁気モーメントが、一軸異方性成分に加えて面内成分も含んでいるために、上記の仮想的な磁気単極子が量子力学に従って運動すると見なせるからである。この転移の特徴をさらに理解するために、東大物性研の榊原研究室で装置をお借りして、単結晶を用いた磁場中比熱  $C$  と直流磁化率の測定を行った。Fig. 3 に磁場下の  $C/T$ - $T$  曲線を示すが、 $H=0$  で  $T_c \sim 0.2\text{K}$  に現れた  $C/T$ - $T$  曲線のピーク温度は磁場とともに高温側にシフトした。ピーク温度の磁場依存性を詳しく見ると、磁場中データの  $H \rightarrow 0$  外挿値は、 $H=0$  の  $T_c$  に一致せず、基底状態から励起するのに有限のエネルギーが必要なことが分かった。Fig. 4 に磁化率の温度依存性を示すが、温度履歴の振舞いは、一次の相転移であることを示しており、この相転移の特殊性が際立つ。本講演では、これまでに得られた  $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  の実験成果をまとめて報告する。

なお、これらの研究は、佐藤正俊、加倉井和久、寺崎一郎、荒木孝治、橘高俊一郎、榊原俊郎、L. -J. Chang、小野田繁樹各氏や他の多くの方との協力のもとに行なわれてきたものである。

- [1] A.P. Ramirez *et al.*: Nature **399** (1999) 333.
- [2] H. Kadowaki *et al.*: JPSJ **78** (2009) 103706.
- [3] H. W. J. Blöte *et al.*: Physica **43** (1969) 549.
- [4] J. A. Hodges *et al.*: PRL **88** (2002) 077204.
- [5] A. Yaouanc *et al.*: PRB **84** (2011) 172408.
- [6] Y. Yasui *et al.*: JPSJ **72** (2003) 3014.
- [7] L.-J. Chang *et al.*: Nature commun. **3** (2012) 992.

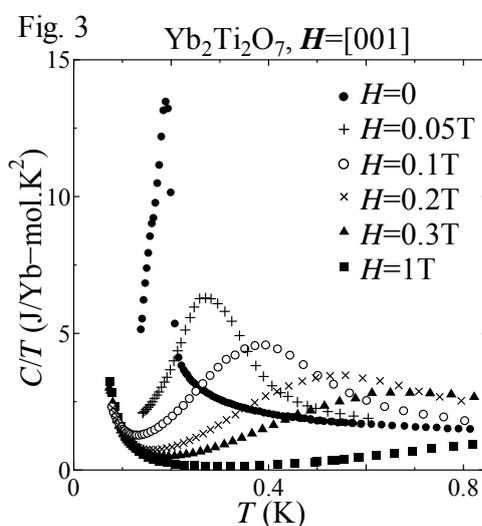


Fig.3: 磁場中で測定した比熱  $C/T$  の温度依存性。

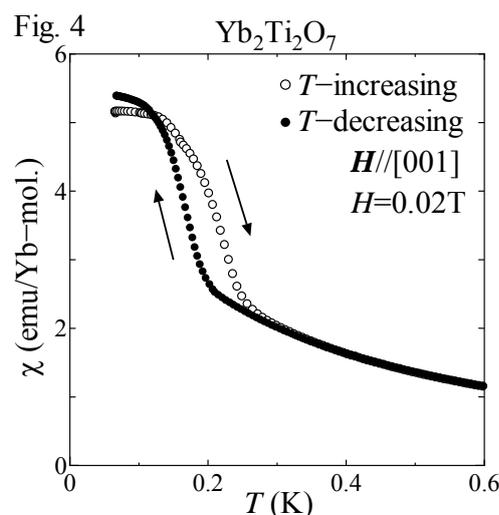


Fig.4:  $H=0.02\text{T}$  の磁場中で測定した磁化率の温度依存性。温度履歴の振舞いは一次の相転移であることを示す。