

擬一次元反強磁性体 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の垂直磁化過程

Magnetization process of the quasi one-dimensional antiferromagnet $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ in transverse fields

木村尚次郎¹, 渡辺和雄¹, 萩原政幸², 何長振³, 谷山智康⁴, 伊藤満⁴, 小山佳一⁵
¹東北大・金研, ²大阪大・極限セ, ³中国科学院, ⁴東工大・応セラ研, ⁵鹿児島大・理工
 S. Kimura¹, K. Watanabe¹, M. Hagiwara², Z. He³, T. Taniyama⁴, M. Itoh⁴ and K. Koyama⁵
¹ Institute for Materials Research, Tohoku University
² KYOKUGEN, Osaka University
³ Fujian Institute of Research on the Structure of Matter, Chinese Academy of Science
⁴ Materials and Structures Laboratory, Tokyo Institute of Technology
⁵ Faculty of Science, Kagoshima University

1. はじめに

擬一次元反強磁性体はその量子揺らぎの効果に起因した興味深い振る舞いをしばしば示す。 Co^{2+} が磁性を担う $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ は Ising 的な磁気異方性をもつ $S=1/2$ 擬一次元反強磁性体である。 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ は正方晶をとり、 c 軸方向に CoO_6 八面体が辺共有して一次元鎖を形成する。この物質は磁化容易軸である c 軸方向の磁場下で特異な量子相転移を示すことが知られる[1-3]。すなわちこの物質は零磁場下では 5.4 K で反強磁性秩序するが、 c 軸方向に磁場を加えると磁壁伝搬モードのソフト化に伴って量子揺らぎが顕著になり、約 4 T で秩序をもたないスピン液体状態へと転移する。一方、 c 軸に垂直に磁場を加えた場合、 $H//[110]$ では約 40 T の飽和磁場まで磁気秩序が保持される事がこれまでの磁化測定から示唆されていた[4]。このことは磁化容易軸に垂直な磁場下では、磁化の飽和付近まで相転移が生じないことを示す $S=1/2$ 一次元 Ising 型反強磁性モデルからの理論予想[5]と合致している。ところが最近、 $H//[100]$ の磁場下で 10 T 付近になんらかの転移を示唆する磁歪の異常が報告された[6]。このことは、 c 軸周りの 45 度の磁場方向の違いによって基底状態が変化する興味深い性質をこの物質が持つことを示す。本研究では磁化の温度変化を測定して、 $H//[100]$ における $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の振る舞いを調べた。

2. 実験方法

試料は自己フラックス法で作製された単結晶を用いた。磁化曲線は東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターの 18 テスラ超伝導磁石 (18T-SM) を用い、引き抜き法によって測定した。7T までの磁化および帯磁率測定は、SQUID 磁束計を用いて測定した。

3. 実験結果

Fig.1(a)に $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の $H//[100]$ で観測された微分磁化曲線 (dM/dH) を示す。1.7 K において 9.5 T 付近に観測された磁気転移を示す小さなピークが温度上昇とともに低磁場側にシフトする振る舞いが観測されている。Fig.1(b)に $H//[100]$ での磁化率の温度微分

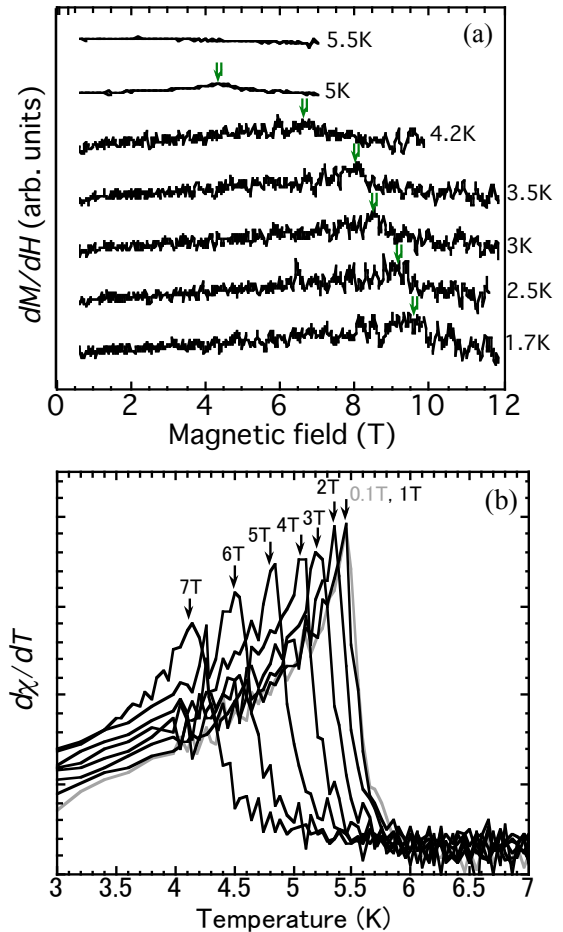


Fig.1 (a) dM/dH and (b) $d\chi/dT$ curves of $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ for $H//[100]$, obtained from the magnetization measurements

($d\chi/dT$) を示す。 $d\chi/dT$ がピークを示す温度が $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の反強磁性転移温度に対応している。これらの測定で観測された転移点をプロットして得られた $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の $H//[100]$ における磁場温度相図を Fig.2 に示す。磁化と帯磁率測定で異常が観測された点は一致しており、反強磁性秩序が磁場の増加とともに急激に抑制されていることがわかる。すなわち、この結果は[100]方向の磁場印加により、反強磁性秩序相から無秩序相への量子相転移が生じることを示

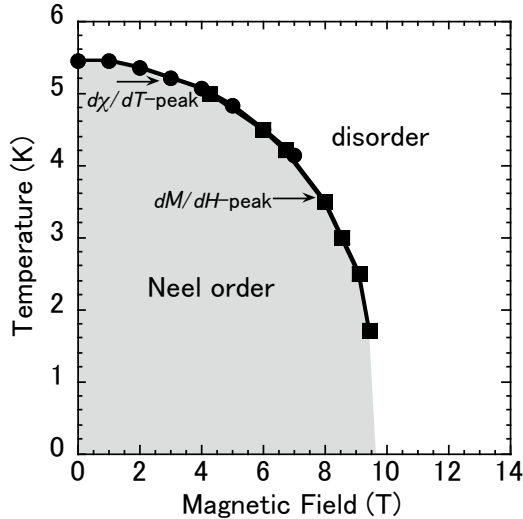


Fig.2 Phase diagram of $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ for $H//[100]$ obtained from the magnetization measurements

している。一方、 $H//[110]$ の場合、反強磁性転移温度はほとんど磁場変化しないことが過去の比熱測定から報告されている[7]。比較的低磁場で秩序-無秩序転移を起こす $H//[100]$ における振る舞いは、上述の単純な一次元 Ising 型反強磁性モデルからは説明できない。我々は、この振る舞いが磁性イオン周辺の局所構造の主軸が、印加磁場方向と一致しない場合に生じる有効磁場と関係していると考えている。例えば、 $S=1/2$ 擬一次元 Heisenberg 型反強磁性体 $\text{CuCl}_2 \cdot 2((\text{CD}_3)_2\text{SO})$ では、その特徴的な結晶構造に起因してサイトごとに符号を変える staggered な有効磁場が外部磁場の印加に伴い生じるため、磁場誘起秩序-無秩序転移が起こることが知られている[8]。そこで $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の結晶構造に関して考察する。 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の CoO_6 八面体は鎖方向である c 軸からいくらか傾いている。また、この物質は空間群 $I4_1/acd$ に属し、 CoO_6 八面体が四倍周期でその向きを変えるらせん状の一次元鎖を形成する。従って、個々の Co^{2+} イオンの磁気的主軸方向も鎖内において四倍周期で変化することになる。磁気的主軸が鎖方向(Z 方向)から角度 θ 傾いている場合、 Z 方向に垂直に外部磁場 H_0 を印可したとき、以下の様な有効磁場 H_{ef} が生じる。

$$H_{\text{ef}}(Y) = (g_{XY} / g_{XX}) H_0$$

$$H_{\text{ef}}(Z) = (g_{XZ} / g_{XX}) H_0$$

ここで、磁場方向に X 軸、 X, Z に垂直な方向に Y 軸をとる。また、 g_{ii} ($i, j = X, Y, Z$)は、主軸方向の g 値を g_1, g_2, g_3 としてそれぞれ次の様に記述される。

$$g_{XX} = (g_1 \cos^2 \theta + g_3 \sin^2 \theta) \cos^2 \phi + g_2 \sin^2 \theta$$

$$g_{XY} = (g_1 \cos^2 \theta - g_2 + g_3 \sin^2 \theta) \sin \phi \cos \phi$$

$$g_{XZ} = (g_3 - g_1) \sin \theta \cos \theta \cos \phi$$

ϕ は、主軸方向が鎖から傾いた方向と外部磁場方向とのなす角である。ここで磁気的主軸の方向が四倍周期で変化することを考慮すると、磁場方向が鎖に垂直な面内のどの方向にかかるかによって、生じる有効磁場が異なることがわかる。 ϕ が 0° 及び、それから 90° ずつ変化する配置に外部磁場が印加された場合、 Z 方向に up-0-down-0 の四倍周期の有効磁場が生じる。一方、 ϕ が 45° の場合は、 Z 方向の up-down-down-up に加え Y 方向に右-左-右-左の staggered な有効磁場が現れる。つまり、外部磁場の印加方向を 45° 変えることによって、誘起される有効磁場が定性的に変化する。この有効磁場が $H//[100]$ と $[110]$ の振る舞いの違いの起源となっていると考えている。

4. まとめ

$S=1/2$ 擬一次元 Ising 型反強磁性体 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ に関して $[100]$ 方向に磁場をくわえた磁化測定を行い、磁場誘起による秩序-無秩序相転移を観測した。この振る舞いに関し、 $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ の特徴的な結晶構造に基づいて考察した。

参考文献

- [1] S. Kimura, H. Yashiro, K. Okunishi, M. Hagiwara, Z. He, K. Kindo, T. Taniyama and M. Itoh: Phys. Rev. Lett. **99** (2007) 087602.
- [2] S. Kimura, T. Takeuchi, K. Okunishi, M. Hagiwara, Z. He, K. Kindo, T. Taniyama and M. Itoh: Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 57202.
- [3] S. Kimura, M. Matsuda, T. Masuda, S. Hondo, K. Kaneko, N. Metoki, M. Hagiwara, T. Takeuchi, K. Okunishi, Z. He, K. Kindo, T. Taniyama and M. Itoh: Phys. Rev. Lett. **101** (2008) 207201.
- [4] S. Kimura, H. Yashiro, K. Okunishi, M. Hagiwara, Z. He, K. Kindo, T. Taniyama and M. Itoh: J. Phys.: Conf. Ser. **51** (2006) 99.
- [5] P. Pfeuty: Ann. Phys. (N. Y.) **57** (1970) 79.
- [6] S. Niesen, O. Heyer, J. Brand, M. Valldor and T. Lorenz: Poster presentation at International Workshop 2010 on Strongly Correlated Transition Metal Compounds (Cologne, September 2010).
- [7] Z. He, T. Taniyama, M. Itoh: Appl. Phys. Lett. **88** (2006) 132504.
- [8] Y. Chen, M. B. Stone, M. Kenzelmann, C. D. Batista, D. H. Reich and C. Broholm: Phys. Rev. B **75** (2007) 214409.