



Title	Study of the Magnetic-Field and Pressure Effects on the Metal-to-Insulator Transition System BaVS <sub>3</sub>
Author(s)	田原, 大夢
Citation	大阪大学, 2020, 博士論文
Version Type	VoR
URL	<a href="https://doi.org/10.18910/76370">https://doi.org/10.18910/76370</a>
rights	
Note	

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論文内容の要旨

氏名 (田原 大夢)

論文題名

Study of the Magnetic-Field and Pressure Effects on the Metal-to-Insulator Transition System BaVS<sub>3</sub>  
(金属-絶縁体転移を示す系BaVS<sub>3</sub>の磁場-圧力効果の研究)

論文内容の要旨

BaVS<sub>3</sub>は六方晶ペロブスカイト型構造(空間群:P6<sub>3</sub>/mmc)を持つ。この結晶系ではVS<sub>6</sub>八面体が面共有しながらc軸方向にジグザグ鎖を形成し、鎖同士がab面内で三角格子を形成する。この物質は、多くの“量子臨界点”近傍に位置すると考えられている物質であり、非常に複雑な電子状態を持つ。例えば、BaVS<sub>3</sub>は1次元金属の特徴である、電荷密度波の形成を伴った金属絶縁体転移(MI転移)をT<sub>MI</sub> ~ 70 Kでおこなすが、バンド計算からはむしろ2次元的な伝導を示唆する結果が得られている。ほかにも、BaVS<sub>3</sub>はT<sub>MI</sub>以下ではスピニングレット状態と呼ばれる無秩序状態が発達するものの、T<sub>N</sub> ~ 30 K以下では磁気秩序する。このような複雑な電子状態を紐解くために圧力を印加することは強力な手段の一つであり、本物質でも圧力下での構造変化や輸送特性は調べられてきたが、磁気的特性についてはほとんど調べられてこなかった。先行研究から、MI転移は2.0 GPa程度の静水圧力下では消失することが分かっている。私はBaVS<sub>3</sub>において1.15 GPaまでの圧力下帯磁率測定および圧力下強磁場磁化測定を、測定手法の開発から行った。

図1に様々な圧力下での帯磁率の温度変化を示す。各圧力におけるT<sub>MI</sub>において、帯磁率はピークを示す。T<sub>MI</sub>よりも高温の領域では、印加圧力によらず帯磁率は有効磁気モーメントp<sub>eff</sub> ~ 1.28 μ<sub>B</sub> (≡ J = 0.3, g = 2), ワイス温度θ<sub>w</sub> ~ 8.0 Kのキュリー・ワイス則に従う。これは、局在スピンS = 1/2から期待されるp<sub>eff</sub> ~ 1.73 μ<sub>B</sub>と比べると有意に小さい。また、キュリー・ワイス則の定数に変化しないことは、磁気相関や磁気モーメントの大きさが圧力によって変化しないことを示している。次に、図2に様々な圧力下での磁化曲線を示す。0.80 GPa以下の圧力下においてはメタ磁性転移が観測された。また、0.90 GPa以上の圧力下においてはメタ磁性転移は観測されなかった。メタ磁性転移後の磁化曲線が0.4 μ<sub>B</sub>/V (≡ J = 0.2, g = 2)で飽和するブリルアン関数に漸近することから、メタ磁性転移後の状態は、高温領域から期待される全磁気モーメントのおよそ67%が常磁性的に振る舞う状態であることが分かった。これらの結果から、MI転移とメタ磁性転移がそれぞれ異なった相境界を持つ、と理解することが出来る。すなわち、BaVS<sub>3</sub>においては少なくとも2つのスピンギャップが独立に存在する。この実験事実はこれまでにBaVS<sub>3</sub>で行われてきた議論とは相反する結果である。

私はこのメタ磁性転移を含めたBaVS<sub>3</sub>の磁気特性を明らかにするべく、先行研究の実験事実に注意して議論の再構成を行った。結論として、遍歴的なバンドによる寄与を考えることで、この物質でのMI転移およびメタ磁性転移でのスピン状態の変化を理解できることを提案する。バナジウムの3d軌道に由来するt<sub>2g</sub>軌道にはbroadなA<sub>1g</sub>軌道とnarrowなE<sub>g</sub>軌道が存在するが、これらの軌道間で混成が起こることを仮定することで複数のスピンギャップの形成を理解することが可能である。特に重要なこととして、BaVS<sub>3</sub>のメタ磁性転移が磁気秩序および軌道秩序と無関係である可能性を初めて明確に示した。

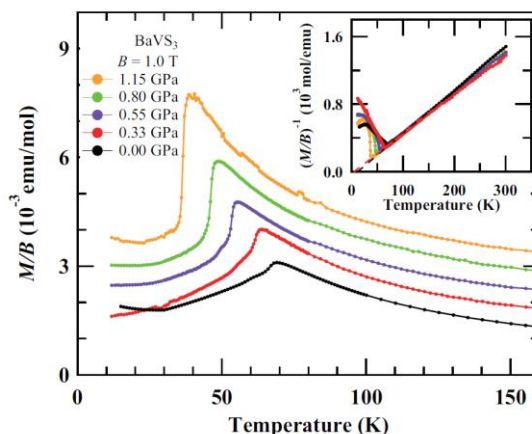


図1. 帯磁率の圧力変化。挿入図は各圧力における逆帯磁率の温度依存性。

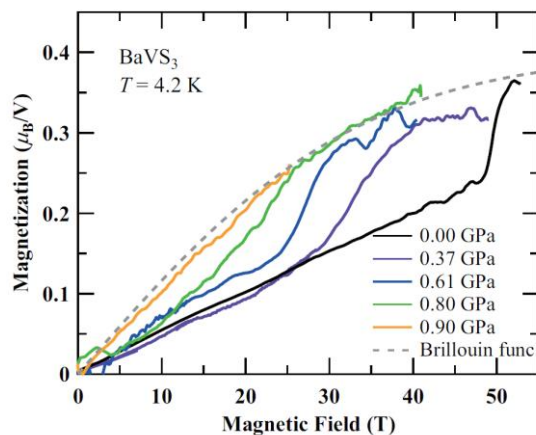


図2. 磁化曲線の圧力変化。図中の点線はブリルアン関数によるフィッティング。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 田 原 大 夢 )		
	(職)	氏 名
論文審査担当者	主 査	教授 萩原政幸
	副 査	教授 花咲徳亮
	副 査	招へい教授 三宅和正 (先端強磁場科学研究センター)
	副 査	准教授 宮坂茂樹
	副 査	准教授 鳴海康雄
<b>論文審査の結果の要旨</b>		
<p>絶対零度において物理パラメーターを変えることで現れる量子臨界点(QCP)の近傍は今日の物性科学における新奇な物性発現の宝庫である。銅酸化物高温超伝導体、重いフェルミ電子系、巨大磁気抵抗物質等数多くの今日的な研究対象はこの範疇に入る。しかもスピン、電荷、格子などの様々な自由度が拮抗したエネルギースケールにある際には、その物理的性質は多彩な顔を見せる。</p> <p>本論文の研究対象である BaVS<sub>3</sub> は、VS<sub>6</sub> 八面体が面共有によって c 軸方向つながったジグザグ鎖構造を有する物質で、<math>T_{MI} \sim 70</math> K において一次元金属の特徴である電荷密度波の形成を伴った金属絶縁体転移(MI 転移)を示す。この MI 転移は圧力の印加によって急激に抑制され、QCP(<math>p_{cr} \sim 2</math> GPa)において完全に消失する。一方で、常圧下 <math>T_{MI}</math> 以下において強い磁場を印加すると BaVS<sub>3</sub> はメタ磁性転移を示す。この現象は、<math>T_{MI}</math> で形成されたスピンシングレット状態と呼ばれる無秩序な非磁性状態が磁場によって崩壊したものとして理解されている。しかしながら、特徴的な電気物性である MI 転移がスピンシングレットの形成という磁気特性にどのようなメカニズムで関与しているのかという統一的理解がこれまで得られていなかった。</p> <p>田原太夢君は、その解明につながる鍵として圧力と磁場を組み合わせた複合極限環境における BaVS<sub>3</sub> の磁気測定を提案し、そのための圧力下帯磁率および圧力下強磁場磁化測定を、測定手法と装置の開発から行った。まず、圧力下帯磁率測定によって、<math>T_{MI}</math> において現れる帯磁率のピークは圧力によって低温にシフトするものの、<math>T_{MI}</math> 以上の磁気相関や磁気モーメントの大きさは圧力によって変化しないことを明らかにした。さらに、従来知られていた金属絶縁体転移より低温側にスピンギャップが複数存在する事を示すアノマリー(<math>T_a</math>)が存在し <math>p_{cr}</math> よりも低圧の 0.9 GPa において消失することを見出した。また圧力下強磁場磁化測定では、0.80 GPa 以下の圧力下においてはメタ磁性転移を観測し、<math>T_a</math> のアノマリーがメタ磁性転移と同じ臨界圧力を持つ事を明らかにした。これらの結果を下に圧力-磁場-温度の三次元相図を作成し、従来知られていた臨界温度 <math>T_{MI}</math> や臨界圧力 <math>p_{cr}</math> によって決められていた相境界とは別に新たな相境界があることがわかった。これらの結果について考察を行い、従来の局在スピン描像ではなく、遍歴的なバンドによる寄与を考えることで、この物質での MI 転移およびメタ磁性転移でのスピン状態の変化を理解できることが分かった。本研究は強磁場-高圧-極低温という最も測定が困難な複合極限環境下で行われており、複雑な電子状態を有する BaVS<sub>3</sub> の研究に新たな切り口を与えている。</p> <p>この研究は博士の学位にふさわしく、よって本論文は博士(理学)の学位論文として十分価値のあるものと認める。</p>		