

Title	Magnetic-field induced phase transitions of triangular-lattice magnets under high pressures investigated with the magnetic-susceptibility probe developed by using an LC circuit
Author(s)	二本木, 克旭
Citation	大阪大学, 2024, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/96388">https://hdl.handle.net/11094/96388</a>
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a>〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

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

Osaka University

## 論文内容の要旨

氏名 ( 二本木 克旭 )

## 論文題名

Magnetic-field induced phase transitions of triangular-lattice magnets under high pressures investigated with the magnetic-susceptibility probe developed by using an LC circuit  
(LC共振回路を用いた磁化率測定プローブによる三角格子磁性体の圧力下磁場誘起相転移の研究)

## 論文内容の要旨

磁性イオンが三角形の頂点に位置する三角格子磁性体は、磁性イオン間に反強磁性的交換相互作用が働く時、十分低温において磁性イオンの基底状態が一意に決まらず、エネルギー的に拮抗した状態が多数存在する。この際、磁気異方性や量子揺らぎのような摂動が基底状態を決定する役割を持つ。このような磁性体は多彩な磁場誘起相転移現象を示すことが予想されている。さらに、圧力印加により磁気異方性や交換相互作用が変化し、新奇な磁気特性を示すことが近年報告されてきている。従って、これらの特異な磁気相の観測及び理解において、極低温、強磁場、高圧力を同時に作用させた複合極限環境下の実験研究は大変重要である。

従来のパルス強磁場-高圧力下磁化測定手法では、金属製圧力セルに誘起される渦電流によるジュール発熱や測定感度の問題より、極低温高感度が必要な磁性体の測定は困難であった。本研究では、圧力セルの改良やジュール発熱による試料の温度上昇の評価、測定感度向上のためにLC共振回路を用いた磁化率測定手法の開発等を行った。その結果、最低温度1.4 Kにおいて、最大磁場51 T、最高圧力2.1 GPaの複合極限環境下で三角格子磁性体の磁気転移を観測可能な測定プローブの開発に成功した。

この測定装置を用いて、三角格子磁性体のCsCuCl<sub>3</sub>とCsFeCl<sub>3</sub>の圧力下における磁場誘起の磁気特性を調べた。CsCuCl<sub>3</sub>は $T_N = 10.5$  K以下の常圧で、umbrellaから2-1 coplanar相への磁場誘起量子相転移を示す。0.68 GPa以上の圧力下でup-up-down(UUD)の発現が報告されており、さらに高圧力下において、Y-coplanar相の発現が理論的に示唆されている。本測定によって、0.7 GPa以上でUUD相、1.79 GPa以上でY-coplanar相に対応する磁気転移を観測して、その磁場領域の圧力依存性を明らかにした。さらに飽和磁場に至るまでの全ての転移磁場の圧力依存性から、交換相互作用等の圧力依存性を明らかにした。これにより、CsCuCl<sub>3</sub>における圧力下磁場誘起量子相の発現は、圧力増加に伴う三角格子面間の交換相互作用の急激な減少に主に起因していることが分かった。

CsFeCl<sub>3</sub>は、単イオン異方性により、非磁性の一重項基底状態と磁気を持つ二重項の間にエネルギーギャップをもつ。このギャップは、圧力印加により小さくなり、臨界圧力 $P_c \sim 0.90$  GPaでギャップがなくなり、極低温で磁気秩序状態への量子相転移を示す。一方、磁場中においても常圧 $H_{c1} = 4$  T以上極低温で磁気秩序状態へ相転移する。この時、磁化は $H_{c1}$ 以上で急激に増加して、 $H_{c2} = 11$  T以上で平坦になった後、約33 Tでメタ磁性転移を示す。このメタ磁性の発現は基底状態( $J=1$ )と励起状態( $J=2$ )のレベルクロスに起因すると予想されている。本研究において、常圧下電子スピン共鳴測定より、 $J=1$ と $J=2$ 間の共鳴吸収モードを観測して、この予想を実験的に確かめた。圧力を印加すると、 $H_{c1}$ は低磁場側に移動して $P_c$ 以上で消失した。一方、 $H_{c2}$ は圧力とともに高磁場側に移動し、メタ磁性転移磁場は圧力とともに低磁場側に移動した。前者は、単イオン異方性及び交換相互作用の圧力依存性、後者は、圧力増加に伴う三方晶歪みのさらなる増加に起因することを明らかにした。さらに1 GPa以上の圧力下で、複数のメタ磁性状のステップが観測された。これは、圧力増加に伴う交換相互作用及び磁気異方性の変化によって、 $J=1$ と $J=2$ の状態が混成した複数の中間状態が発現したことを示唆している。

これらの研究成果は、複合極限環境下における物性研究の有用性を示し、将来様々な磁性体において新たな物理現象の発見に寄与することが期待される。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

氏 名 ( 二本木 克旭 )		
	(職)	氏 名
論文審査担当者	主 査	教授 萩原 政幸
	副 査	教授 松野 丈夫
	副 査	特任教授 (東京工業大学) 田中 秀数
	副 査	准教授 鳴海 康雄
	副 査	助教 木田 孝則

## 論文審査の結果の要旨

磁性イオンが三角形の頂点に位置する三角格子磁性体は、磁性イオン間に反強磁性的交換相互作用が働く時に基底状態が一意に決まらず、エネルギー的に拮抗した状態が多数存在する。このような磁性体は多彩な磁場誘起相転移現象を示すことが理論的に予想されて実験で検証されてきている。さらに、圧力印加により磁気異方性や交換相互作用が変化して、磁場中で新奇な磁気転移を示すことが近年報告されてきている。従って、これらの磁気相の観測及び理解において、極低温、強磁場、高圧力を同時に作用させた測定環境下での研究は大変重要である。

従来のパルス強磁場-高圧力下磁化測定手法では、金属製圧力セルに誘起される渦電流によるジュール発熱や測定感度の問題により、高圧力下極低温で高感度測定が必要な磁性体の研究は難しいものであった。本研究で、二本木氏は圧力セルの改良やジュール発熱による試料の温度上昇の評価、測定感度向上のために LC 共振回路を用いた磁化率測定手法の開発を行った。その結果、最低温度 1.4 K において、最大磁場 51 T、最高圧力 2.1 GPa の複合極限環境下での磁気転移の観測が可能となった。この測定装置を用いて、三角格子磁性体の CsCuCl<sub>3</sub> と CsFeCl<sub>3</sub> の圧力下における様々な磁場誘起相の磁気特性を調べた。

CsCuCl<sub>3</sub> は  $T_N = 10.5$  K 以下の常圧で、umbrella 相から 2-1 coplanar 相への磁場誘起量子相転移を示す。本測定によって、0.7 GPa 以上で UUD 相、1.79 GPa 以上で Y-coplanar 相に対応する磁気転移を観測して、飽和磁場に至るまでの全ての転移磁場の圧力依存性から、交換相互作用等の圧力依存性を明らかにした。これにより、CsCuCl<sub>3</sub> における圧力下磁場誘起量子相は、圧力増加に伴う三角格子面間の交換相互作用の急激な減少により、準古典スピン系から量子スピン系への変化が起こることで発現する事が分かった。CsFeCl<sub>3</sub> は、単イオン異方性により、非磁性基底状態と磁気的な二重項の間にエネルギーギャップを有する。鎖方向の  $c$  軸へ印加した磁場中において、磁化は臨界磁場  $H_{c1}$  以上で急激に増加して、 $H_{c2} = 11$  T 以上で一度ほぼ平坦になった後、約 33 T で二段のメタ磁性転移 ( $H_{m1}, H_{m2}$ ) を示す。本研究において圧力を印加により、 $H_{c1}$  は低磁場側に移動して臨界圧力以上で消失する一方、 $H_{c2}$  は圧力とともに高磁場側に移動し、 $H_{m1}, H_{m2}$  は圧力とともに低磁場側に移動した。前者は、単イオン異方性及び交換相互作用の圧力依存性、後者は、圧力増加に伴う三方晶歪みのさらなる増加に起因することを明らかにした。さらに 1 GPa 以上の圧力下で、複数のメタ磁性状のステップが観測された。これは、圧力増加に伴う交換相互作用及び磁気異方性の変化によって、エネルギー準位を構成する  $J = 1$  と  $J = 2$  の状態が混成した複数の中間状態が発現したことを意味しており、ハードコアボゾンモデルによる計算で定性的に示した。

本研究で行われた装置開発と本装置を用いて得られた研究成果は、複合極限測定環境下での磁性研究の先駆けになる内容を有しており、今後様々な量子磁性体やフラストレート磁性体の研究に用いられていく上での重要な知見を与えるものである。以上の理由から、本論文は博士 (理学) の学位論文として十分価値あるものと認める。