



我々は、物性研強磁場施設に特有な実験設備である、一巻きコイル装置と誘導法磁化測定法を用いることで、2 ~ 110 K の温度領域で、LaCoO<sub>3</sub> に 133 T に及ぶ超強磁場を印加し、磁化測定をおこなった。そして、LaCoO<sub>3</sub> の相図上にエントロピーの小さな高磁場相が存在することを示して示した。以下ではその結果を簡単に紹介する [3]。

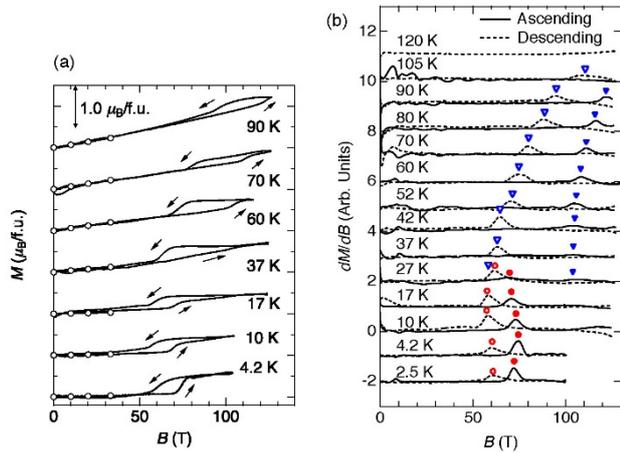


図 3 (a) LaCoO<sub>3</sub> の磁化曲線  $M$ 、(b) LaCoO<sub>3</sub> の磁化の磁場微分  $dM/dB$

### 【実験結果】

図 3(a) の 30 K 以下の磁化曲線を見ると、磁気転移における磁化変化は  $0.5\mu_B/\text{Co}^{3+}$  程度であり、HS 状態における飽和磁化  $4.0\mu_B/\text{Co}^{3+}$  ( $g=2$  と仮定) に対しておよそ  $1/8$  の小さな値である。また、30 K までは転移磁場に温度依存性が見られない。この結果はこれまでの報告と良い一致を示した。

一方で、我々は 30 K 以上の温度領域で異常な磁場応答を発見した。30 K を超えると、転移磁場が急に 100 T を超えるほど上昇した。さらに温度を上げると、磁場上昇・下降時の転移磁場が共に高磁場側にシフトしていった。この結果は図 3(b) の  $dM/dB$  曲線の温度依存性をみるとより明らかである。転移磁場を磁場温度平面にプロットしたものが図 4 である。観測された相境界は、通常のスピントロニクスから予想される相境界 (図 4 破線) と全く異なることがわかった。よって磁場誘起スピン転移は非従来の機構によるものと推察される。また、30 K 程度で転移磁場が急激に変化することから、高磁場相は (B1) と (B2) の 2 種類に分けられると考えた (図 4)。

(B1)、(B2) 相の起源に関する詳しい議論は本論文に譲るが、我々は (B1)、(B2) 相の起源としてスピン状態や軌道状態などの自由度が秩序化したエントロピーの小さな相であると考えた。具体例を挙げると、図 4 の挿入図のように (B2)

相ではスピン状態が HS (または IS) 状態と LS 状態の結晶状態になっている。さらに (B1) では残された軌道自由度が秩序化し、さらにエントロピーが低下した相であると考えた。このように考えると定性的に実験結果を再現するからである [3]。

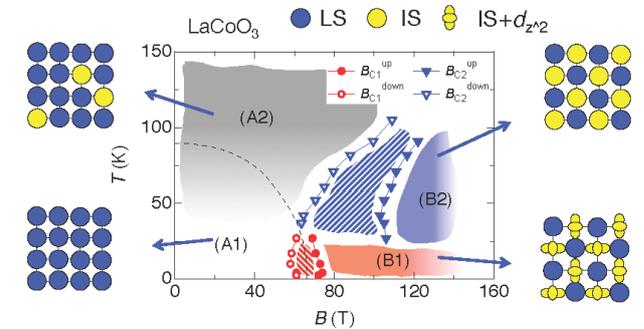


図 4 LaCoO<sub>3</sub> の磁場-温度相図と各相のスピン状態 (我々の当初の予想) の模式図

我々の論文のすぐ後に 2 軌道ハバードモデルの磁場応答に関する論文が出版された [4, 5]。これらの論文では共通して、スピントロニクス系における磁場誘起励起子絶縁体相の存在を主張しており、我々の実験結果を説明するとしている。特に Tatsuno らの論文では具体的に、(B1) 相に励起子絶縁体相が、(B2) 相にスピン状態結晶相が対応しているのではないかと主張されている (図 5)。さらに約 1500 T に及ぶ広域な磁場範囲で相図を予想し、1000 テスラ付近で励起子絶縁体相への再突入があることを予言した [4]。また、Sotonikov らの論文では、励起子絶縁体相で超流動状態になっているのは IS であり、HS ではないと述べられている点も興味深い。これは、IS の移動に比べて HS の移動には多くの電子遷移過程が関与するため、起こりづらいという議論である [5]。

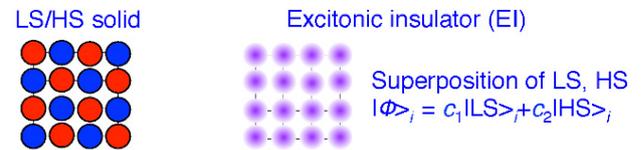


図 5 2 軌道ハバードモデルの理論解析 [文献 4] によって予想された (B1)、(B2) 相の起源の模式図。(左) LS-HS 結晶相、(右) 励起子絶縁体相。ここで、HS、LS はそれぞれ一つの励起子、真空に対応する。固体全体で HS、LS の波動関数がコヒーレントに量子混合した状態は、HS (励起子) の超流動相に対応する。これは励起子絶縁体に相当する。

## 【今後の展望】

現状で新奇高磁場相に関する実験結果は 133 T までの磁化測定に限られており、十分とは言えない。観測されている磁化は飽和の 1/4 から 1/8 程度であり、全磁化過程の半分以上は不明な状態である。実験的には非自明な磁場効果が観測され、その起源の議論が始まったことは、近い将来にコバルト酸化物系の包括的理解のきっかけになるかもしれない（我々も Pr 系コバルト酸化物の研究も行った[6]）。最近になって第一原理計算や強相関効果を取り入れた解析などが進み、理論的にも新たな展開をみせている。今後は励起子絶縁体相やスピン状態固体相の存在を検証するために観測事実の蓄積が大事であり、まず非破壊パルス磁場で到達できる LaCoO<sub>3</sub> の 60 T の磁気転移において、電気伝導率、構造、電子状態、光学的物性の変化など多面的な実験結果を蓄積することが重要である。また、物性研にしかない電磁濃縮装置と独自開発の測定系を用いることで、1000 T を超える超強磁場下での磁化・磁歪測定を実現させ、LaCoO<sub>3</sub> の磁場-温度相図の全体像を明らかにすることが当面の目標である。

## References

- [1]. J. Kuneš, *J. Phys.: Cond. Matt.* **27**, 333201 (2015).
- [2]. J. Nasu, T. Watanabe, M. Naka, S. Ishihara, *Phys. Rev. B* **93**, 205136 (2016).
- [3]. A. Ikeda, T. Nomura, Y. H. Matsuda, A. Matsuo, K. Kindo, K. Sato, *Phys. Rev. B*, **93**, 220401 (2016).
- [4]. T. Tatsuno, E. Mizoguchi, J. Nasu, M. Naka, S. Ishihara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 083706 (2016).
- [5]. A. Sotnikov, J. Kuneš, *Sci. Rep.*, **6**, 30510 (2016).
- [6]. A. Ikeda, S. Lee, T. T. Terashima, Y. H. Matsuda, M. Tokunaga, T. Naito, *Phys. Rev. B* **94**, 115129 (2016).