

フラストレート量子磁性体における量子相転移とハイブリッド励起

物性研究所中性子科学研究施設 林田 翔平*1 益田 隆嗣
静岡大理学部 松本 正茂

*1 現：スイス連邦工科大学チューリッヒ校

概要

自発的対称性の破れた系におけるダイナミクスは、秩序変数の位相揺らぎに対応する南部・ゴールドストーン(NG)モードと振幅揺らぎに対応する振幅モードの二つに分類される。これらは独立に観測されるケースが多いが、ある条件下では混成することが知られている。有名な例としては、熱電材料のPbTeにおける音響フォノン(NGモード)と光学フォノン(振幅モード)が非調和項の存在のため強く混成するケースがある。フォノンスペクトルの再規格化により音響フォノンが抑制され熱伝導率が低くなり、高い性能指数が実現されている[1]。このような混成効果は自発的対称性の破れた系一般に存在するはずであるが、フォノン以外の系においては観測例が少ない。これは、NGモードがゴールドストーンの定理により保証されているのに対し、振幅モードは必ずしもその存在が保証されていないためである。たとえば磁性体で振幅モードが観測されるためには、低次元性やフラストレーション、量子臨界性などにより磁気モーメントが抑制されモーメントの伸縮が可能となる上に、振幅モードが安定に存在することが必要とされる。近年ヒッグスボソンの物性物理におけるアナロジーとして振幅モードが注目され、混成のない純粋な振幅モードの観測が、一次元鎖、二量体、正方格子、二本足梯子など、フラストレーションの存在しないスピン系においてさかんに試みられてきた[2]。そこで我々は、振動モードが安定に存在し得るフラストレーション系に着目し、圧力により量子臨界点を横切ることでどのようにスピンドダイナミクスが変化するかを、中性子非弾性散乱を用いて系統的に観測し、拡張スピン波理論による解析を行った。その結果、量子臨界点近傍で中性子スペクトルは再規格化され、NGモードと振幅モードの混成状態が出現することを明らかにした[3]。

容易面型スピン $S = 1$ 三角格子系

容易面タイプの異方性をもつ $S = 1$ スピン系は、量子相転移を示す系のプロトタイプの一つとして知られている。

スピン間相互作用が弱い場合は、Fig. 1(A)の左に示すように量子無秩序状態が基底状態であるが、相互作用が強くなると量子相転移が起こり、Fig. 1(A)の右に示すように秩序状態が出現する。このとき局所サイトの状態を考えると、第二励起状態 $|L\rangle$ は、秩序化したスピン方向のスピン演算子 S^{\parallel} のみによって基底状態 $|G\rangle$ から遷移される一方、第一励起状態 $|T\rangle$ はスピンに垂直方向の演算子 S^{\perp} のみによって遷移される。このことから、秩序化した $S = 1$ スピン系では、振幅揺らぎを有する状態 $|L\rangle$ が安定に存在し得ることになる。CsFeCl₃は容易面異方性を有する $S = 1$ スピンをもつ Fe²⁺ イオンが、Fig. 1(B)のように ab 面内で三角格子を形成する磁性体である。基底状態は量子無秩序状態であることが古くから知られていたが[4]、最近 1.0 GPa 程度の静水圧により秩序状態へと相転移することが報告された[5]。さらに、我々のグループで圧力下中性子回折実験を行い、磁気構造が非共線的な 120° 構造であることを明らかにした[6]。つまり、この物質は振幅モードが安定に存在し得るフラストレーション系であり、圧力により量子臨界点近傍にアクセス可能であることが分かる。モデルハミルトニアンは

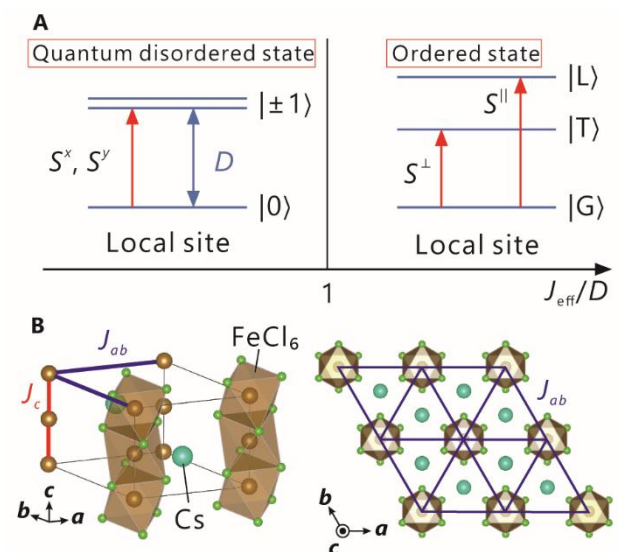


Fig. 1 (A) $S = 1$ 容易面タイプ反強磁性体のエネルギースペクトル模式図。(B)CsFeCl₃の結晶構造。

$\mathcal{H} = \sum_i D(S_i^z)^2 + J_c \sum_{\langle i,j \rangle, chain} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J_{ab} \sum_{\langle i,j \rangle, plane} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$

 で記述され、 D, J_c, J_{ab} が圧力で制御される。類似の系として、ハルデン物質として知られるCsNiCl₃が存在するが、大気圧で秩序化するため結合パラメータを制御するような系統的研究は困難であった。

実験結果と議論

物性研中性子施設が J-PARC で運営しているチョッパー分光器 HRC を用いて、大気圧下で測定された中性子スペクトルを Fig. 2(A)に示す。横軸の波数は $\mathbf{q} = (-k, 2k, 0)$ である。モードの数は1つであり、 $k = 1/3$ と $2/3$ で 0.6meV の異方性ギャップが存在しており、磁気励起の境界エネルギーは 1.3 meV となっている。この定性的なふるまいは先行研究[6]と一致しており、また分散は理論計

算(黄色曲線)で再現された。Fig. 2(B)のように 0.3GPa の圧力を印加すると、ギャップエネルギーは抑制される。さらに 1.4 GPa の圧力を印加し量子臨界点を少し超えると、Fig. 2(C)のようにスペクトルは大きく変化する。 $k = 1/3$ と $2/3$ からギャップレスな NG モードが立ち上がる様子が観測され、さらに高エネルギーの 0.55meV に別なモードも観測された。この量子臨界点近傍でのスペクトル構造をより詳細に調べるため、物性研中性子施設が日米協力事業により米国オークリッジ国立研の研究用原子炉 HFIR で運営している三軸分光器 CTAX を用いた測定も行った。Fig. 2(G)に示されるように、 $k = 1/3$ と $2/3$ での励起は分解能より広がっており、二つのモードが存在していることが示唆される。 $k = 5/6$ では明らかにブロードになっており、複数のモードが存在していることが示唆される。これらのス

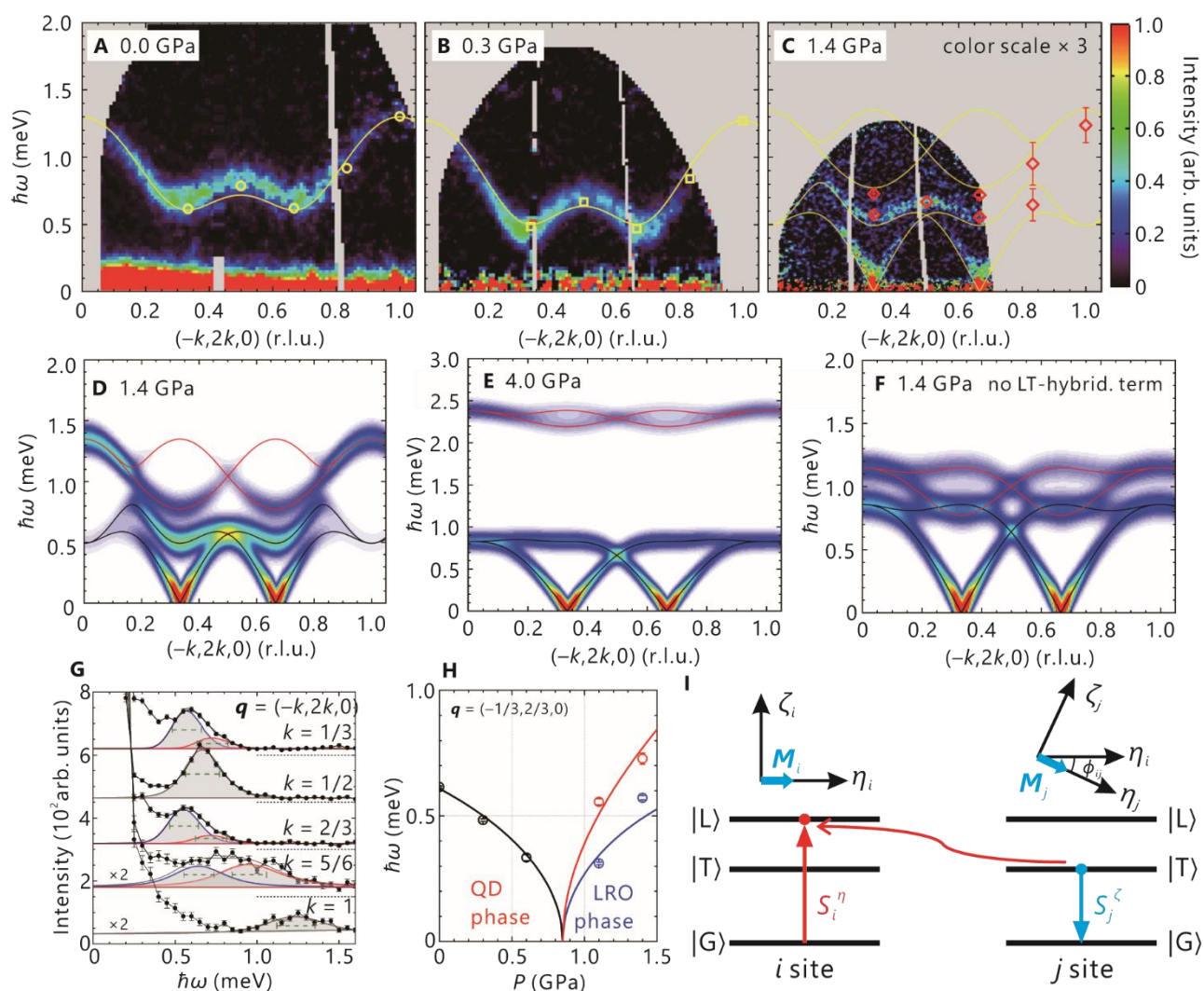


Fig. 2 (A)–(C)チョッパー分光器で測定された CsFeCl₃ の中性子散乱スペクトル実験データ(大気圧(A), 0.3GPa (B), 1.4GPa (C))。 (D)、(E) CsFeCl₃ の中性子散乱スペクトル計算データ(1.4GPa (D), 4.0GPa (E))。 (F)ハミルトニアン混成項を無視した中性子散乱スペクトル計算データ。 (G)三軸分光器で測定された 1.4 GPa における CsFeCl₃ の中性子散乱スペクトル実験データ。 (H) $\mathbf{q} = (-1/3, 2/3, 0)$ におけるモードエネルギーの圧力依存性。 (I) 混成項により j サイトの状態 $|T\rangle$ が i サイトの状態 $|L\rangle$ に飛び移る様子。

ベクトルを、分解能関数で畳み込まれたローレンツ関数でフィットして得られたピークエネルギーを、Fig. 2(C)の赤ダイヤでプロットした。二つの分光器による測定されたデータは、拡張スピン波理論による計算 (Fig. 2(D)) で再現されている。計算では4つのモードが存在しており、低エネルギーの二つのモードと高エネルギーの二つのモードは互いに交わることはなく、一番接近している $k=1/6, 5/6$ においては互いに反発している。さらに赤ダイヤの各データ点については、強度についても計算と比較したところ良い一致が見られた。 $k = 1/3$ において観測された各モードのエネルギーの圧力依存性は Fig. 2(H)の丸印ように示される。これらのエネルギーを、ハミルトニアン³の3つのパラメータが、 $J_c = -0.5 - 0.14 \times p, J_{ab} = 0.0312 - 0.0015 \times p, D = 2.345 + 0.365 \times p$ のように圧力 p に関して線形に変化すると仮定して計算すると、実線のように得ることができ、実験を再現している。このことから圧力により D, J_c, J_{ab} がよく制御され、量子相転移が存在していることが分る。ハミルトニアンをスピンサイトにローカルな座標系で表すと、三角格子内の項については $\mathcal{H}_{ij}^{ab} = J_{ab} [\cos \phi_{ij} (S_i^\eta S_j^\eta + S_i^\zeta S_j^\zeta) + S_i^\xi S_j^\xi + \sin \phi_{ij} (S_i^\eta S_j^\zeta - S_i^\zeta S_j^\eta)]$ となる。ここで、 η 軸はスピンモーメント方向、 ζ 軸は結晶学的な ab 面内で η 軸に垂直な方向、 ξ は c 方向である。また ϕ_{ij} は i サイトと j サイトのスピンモーメントのなす角度である。この中で、 $S_i^\eta S_j^\zeta - S_i^\zeta S_j^\eta$ の項が縦揺らぎ状態 $|L\rangle$ と横揺らぎ状態 $|T\rangle$ を混成させる。たとえば、Fig. 2(I)のように j サイトの $|T\rangle$ が i サイトの $|L\rangle$ に移動するようなプロセスが存在する。これにより Fig. 2(D)の $k=1/6, 5/6$ においてモード反発が発生する。この混成効果は、 $\sin \phi_{ij}$ がゼロでないこと、すなわちスピンが非共線の秩序を有していることが必要である。 $S_i^\eta S_j^\zeta - S_i^\zeta S_j^\eta$ の混成項を意図的に落として計算すると、Fig 2(F)のようにモード混成は発生せずモード反発も起こらない。また、圧力を高くして量子臨界点から系が離れていくと、図 2(E)のようにモードのエネルギースケールが大きく離れるため、モードの反発は観測不可能となり、混成も弱くなる。このように、NG モードと振幅モードの混成は、フラストレーションに起因するスピン秩序の非共線性と系が量子臨界点近傍にあることにより、生じることが明らかとなった。

まとめと展望

容易面型スピン $S=1$ 三角格子磁性体 CsFeCl_3 のスペクトルの圧力変化を系統的に研究した。量子相転移が存在し、量子臨界点近傍ではスピン構造が 120° 構造であることに

よる非共線性に起因する振幅モードと NG モードの混成が生じていることが明らかとなった。混成効果がモードの寿命に与える影響は興味深く将来の課題である。また非共線秩序においては、磁場中でマグノンの非相反性が期待されており、磁場効果の研究も興味深い。モード混成は非共線秩序一般に存在することから、格子不整合なサイクロイド構造、パイロクロア格子における all-in all-out 構造、スキルミオン格子など様々な状態で混成状態が観測されることが期待される。さらに、電荷密度波、スピン密度波、冷却原子系など、磁性体以外の自発的対称性の破れた系について混成状態が観測されることも期待される。

謝辞

本研究は、萩原雅人氏(元物性研、現 KEK)、栗田伸之氏(東工大)、田中秀数氏(東工大)、伊藤晋一氏(KEK)、Tao Hong 氏(ORNL)、左右田稔氏(元物性研、現お茶の水女子大)、上床美也氏(物性研)との共同研究により行われた。瀧川仁氏に有益なコメントをいただいた。J-PARC の HRC 分光器による中性子実験は、東大物性研および KEK 物質構造科学研究所により採択された実験課題 2015S01、2016S01、2017S01 により行われた。ORNL の CTAX 分光器による中性子実験は、東大物性研中性子施設が運営する日米協力事業の支援により行われた。

- [1] O. Delaire *et al.*, Nat. Mater. **10**, 614 (2011).
- [2] B. Lake *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 832 (2000), A. Zheludev *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 197205 (2002), C. Rüegg *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93**, 257201 (2004), P. Merchant *et al.*, Nat. Phys. **10**, 373 (2014), A. Jain *et al.*, Nat. Phys. **13**, 633 (2017), T. Hong *et al.*, Nat. Phys. **13**, 638 (2017).
- [3] S. Hayashida *et al.*, Sci. Adv. **5**, eaaw5639 (2019).
- [4] H. Yoshizawa *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **49**, 144 (1980).
- [5] N. Kurita and H. Tanaka, Phys. Rev. B **94**, 104409 (2016).
- [6] S. Hayashida *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 140405 (2018).