

# ファラデー回転による Cr 系スピネル酸化物の 超強磁場磁化過程

東大物性研、東大院工<sup>A</sup>

宮田敦彦<sup>A</sup>, 小嶋映二, 植田浩明, 上田寛, 嶽山正二郎

Magnetization process of chromium spinel oxide  
by Faraday rotation measurements in ultra-high magnetic fields

Institute for Solid State Physics, Univ. of Tokyo

Department of Applied Physics, Univ. of Tokyo<sup>A</sup>

A. Miyata<sup>A</sup>, E. Kojima, H. Ueda, Y. Ueda, S. Takeyama

ZnCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub> belongs to a frustrated antiferromagnetic Heisenberg spin system in which the ground state is macroscopically degenerated. This degeneracy of the ground state is lifted by quantum and thermal fluctuations. These fluctuations stabilize the collinear magnetic structure. This is called order from disorder phenomenon. We investigated magnetization process of ZnCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub> by Faraday rotation measurements and temperature dependence of collinear plateau phase. We observed order from disorder phenomenon and show that the width of the plateau in magnetic field is widened as temperature increases.

## 1. はじめに

Cr 系スピネル酸化物 MCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub> (M は非磁性金属原子) は、磁性を担う Cr<sup>3+</sup> イオンがパイロクロア格子を形成し、幾何学的にフラストレートしたハイゼンベルグスピン系と考えられている。この系では、フラストレーションを解消するため、ネール温度 (12.5 K) で結晶構造も同時に変化する。また、CdCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub> における磁化測定から 28 T で磁化に不連続な飛びが起こり、飽和磁化である 3 μ<sub>B</sub> の半分のところで、共線的 (collinear) な磁気構造である 1/2 プラトーが現れ、磁気構造の変化とともに結晶構造も変化することが分かっている [1]。これは、スピンと格子

が強く相互作用しているためであり、スピンハミルトニアンは、

$$\mathcal{H} = \sum_{(i,j)} J[\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - b(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j)^2] - h \cdot \sum_i \mathbf{S}_i \quad (1)$$

と表せ、右辺第二項の双二次交換相互作用は、共線的な磁気構造を安定化させる。また、量子揺らぎや熱揺らぎは、通常、磁気構造を壊す働きをするが、フラストレーションのため基底状態にマクロな縮退がある場合、揺らぎに対して共線的な磁気構造が安定化することが知られている。特に、揺らぎの効果が大きい二次元系のカゴメ格子や三角格子で詳しく研究されている [3, 4, 5]。三次元系であるパイロクロ

ア格子でも order from disorder が顕著にあらわれることが理論の面からわかっている[6]。しかし、双二次交換相互作用も共線的な磁気構造を安定化させるので、order from disorder と区別するため、双二次交換相互作用の係数  $b$  の小さい物質  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  で磁化過程の温度依存性から熱揺らぎの効果を調べた。

$\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  で共線的な磁気構造は、100 T 以上で現れるため、超強磁場が必要となる。しかし、超強磁場下では、誘導法による磁化過程は、誘導電圧が大きいなどの困難があるため、ファラデー回転法による磁化測定を行った。

ファラデー回転法は、ファラデー回転角が磁化の奇数次の項を用いて、

$$\theta_F = aM + bM^3 + cM^5 + \dots \quad (2)$$

と表せるので、 $\theta_F$  を求めることによって間接的に磁化を求めている。

## 2. 実験

磁場発生は、一巻きコイル法と電磁濃縮法を用いた。それぞれ磁場発生は  $\mu\text{s}$  のオーダーであり、物性測定には、一巻きコイル法だと 190 T、電磁濃縮法だと 500 T 程度まで測定可能である。

試料は、フラックス法により作製された  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  の単結晶を厚さが 100  $\mu\text{m}$  程度になるように光学研磨したものをを用いた。ファラデー回転の信号は、試料が厚い方が大きくなるが、光量が減ってしまう。このため光量を増やし、ファラデー回転の信号も得られる最適な厚さとして 100  $\mu\text{m}$  程度にしている。また、試料が薄いので試料の補強のために石英に貼り付けて研磨している。

光源は、半導体レーザー (波長 639 nm) を用い、検光子で縦偏光と横偏光に分けてファラデー回転角を求めて

いる。

冷却方法は、ヘリウムフロー型のクライオスタットを用い、クライオスタットには、絶縁体であるベークライトやスタイキャスト 1266 を使っている。約 5 K までの低温下で実験が可能となっている。

## 3. 実験結果

今回の実験でファラデー回転角に寄与する成分として石英のファラデー回転と試料の反磁性項によるファラデー回転が考えられ、この項を補正して磁化過程を出している。この補正の仕方、過去に我々の研究室では、類似物質の  $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  において強磁場までファラデー回転角が式 (2) の磁化の一次の項でうまく表せることがわかっている[7]。

この補正を行った一巻きコイル法による実験結果は、図 1 のようになる。

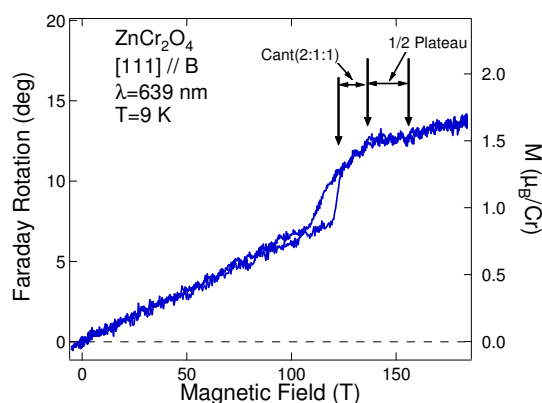


図 1 一巻きコイル法を用いたファラデー回転による  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  の磁化過程

120 T での磁化の飛びの後にキャント (2:1:1) 相を経て 135 T から 1/2 プラトーが現れることがわかる。1/2 プラトーまでの磁場 135 T とプラトーの幅 23 T の比は、 $23 \text{ T} / 135 \text{ T} \approx 0.17$  とな

り、 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の場合の  $33 \text{ T}/28 \text{ T} \approx 1.18$  と比べてプラトーの幅が、小さいことから  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  では共線的な磁気構造を安定化させる双二次交換相互作用の係数  $b$  が小さいことがわかる。また  $b$  が小さい時に、キャント (2:1:1) 相が現れ、反強磁性相 (AF 相) からキャント (2:1:1) 相への相転移が一次転移であるという結果は、Penc 等による予想と一致する [8]。

飽和磁化までにどのような相が現れるのか調べるため、より強い磁場下で測定できる電磁濃縮法を用いた。実験結果は、図 2 のようになる。

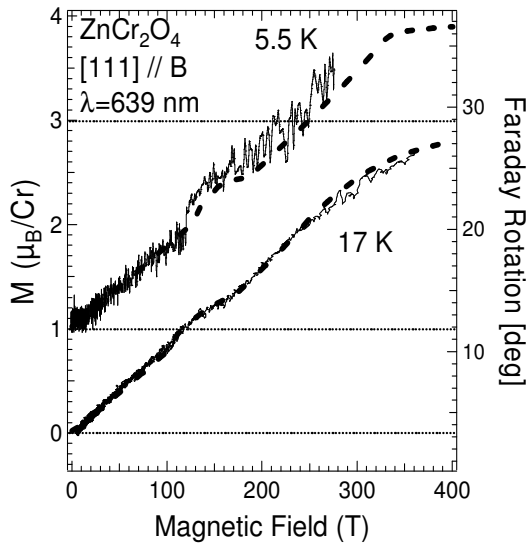


図 2 電磁濃縮法を用いたファラデー回転による  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  の磁化過程 (実線) と求等によるモンテカルロシミュレーションの計算結果 (破線) [6]

電磁濃縮法でのファラデー回転による磁化測定は、400 T 弱まで行い、 $2.7 \mu_B$  まで測定できたが、5.5 K での磁化過程は、磁場発生時に振動が起るため光信号が減少し、ノイズが大きくなってしまっている。また、入射する直線偏光は  $45^\circ$  傾けているので、回転角が  $45^\circ$  に近づくと縦偏光か横偏光のど

ちらかの光信号がゼロになり、ノイズが増える。このため、飽和磁化までに相転移があるのか確認はできなかった。

黒の破線は、求等による予備的な計算結果 [6] で、式 (1) において  $b=0.02$  とし、第三近接交換相互作用  $J_3$  を強磁性的にして、サイズは、 $4 \times 4 \times 4 \times 16$  サイトでモンテカルロシミュレーション計算している。

実験結果は、計算結果と強磁場側まで定性的によく一致していることがわかる。

磁化過程の温度依存性を見てみると図 3 のようになる。

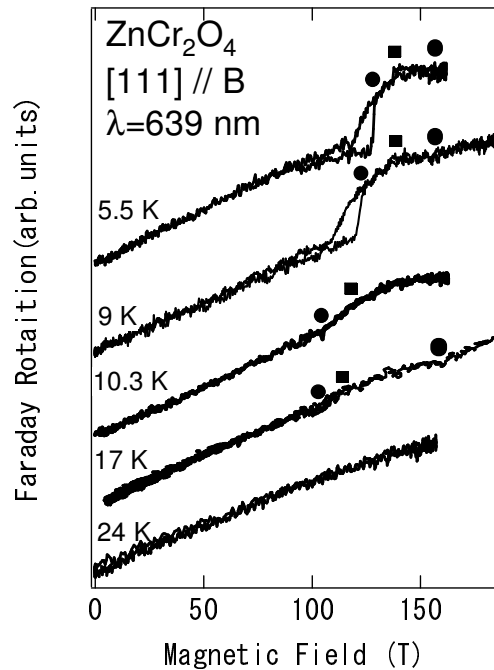


図 3 一巻きコイル法を用いたファラデー回転による  $\text{ZnCr}_2\text{O}_4$  の磁化過程の温度依存性。図中の点は、それぞれの転移磁場を表す。

一巻きコイル法では 190 T まで測定可能だが、160 T を超えると測定が困難となるため、温度によって 160 T 弱までしか測定していない。反強磁性相か

らキャント(2:1:1)相への転移磁場とキャント(2:1:1)相から1/2プラトー相への転移磁場は、低磁場側へシフトしているのがわかり、1/2プラトー相からキャント(3:1)相への転移磁場は、ほぼ変化しないことがわかる。

また、ネール温度12.5 Kより高温の24 Kでの測定では、はっきりした転移は、見えていない。

この温度依存性を温度 - 磁場相図にすると図4のようになる。

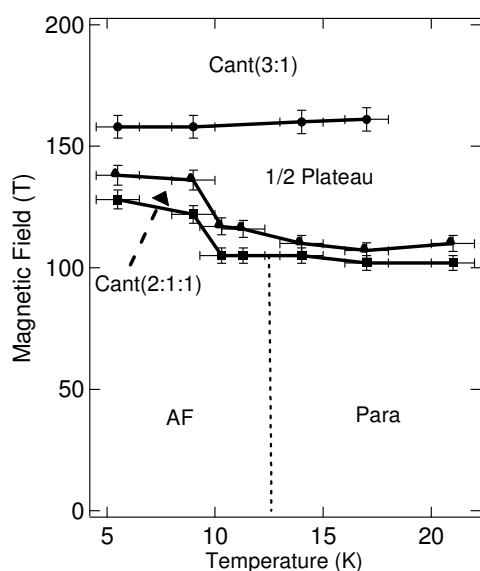


図4 ZnCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の温度 - 磁場相図

ここで、磁場の精度は±3%の誤差があるとし、温度は±1 Kのエラーバーを付けている。温度が高くなるにつれて1/2プラトー相が広がっているのがわかる。これは、熱揺らぎにより共線的な磁気構造が安定化するためであり、order from disorderを観測したことになる。

#### 4. まとめ

一卷きコイル法により190 T、電磁濃縮法により400 T弱まで、ZnCr<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の磁

化測定をファラデー回転法により行い、5.5 Kまでの温度依存性を調べた。この結果を、求等による予備的な計算結果と比較し、強磁場まで定性的な一致を示した。また、温度が上がるにつれてプラトー相が安定化していくorder from disorderが熱揺らぎによって起こっているのを確認した。

#### 5. 謝辞

東京大学工学系研究科物理工学専攻の求幸年准教授には本論文に関して有益な議論と予備的な計算をして頂きました。ここに感謝の意を表したいと思います。

#### 6. 参考文献

- [1] H. Ueda, H. A. Katori, H. Mitamura, T. Goto, and H. Takagi, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 047202 (2005).
- [2] J. Villain, R. Bidaux, J. P. Curton, R. Conte, *J. Physique* **41**, 1263 (1980).
- [3] H. Kawamura and S. Miyashita, *J. Phys. Soc. Jpn.* **54**, 4530 (1984).
- [4] A. V. Chubukov and D. I. Golosov, *J. Phys. Condensed Matter* **3**, 69 (1991).
- [5] M. E. Zhitomirsky, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 057204 (2002).
- [6] Y. Motome, private communication.
- [7] E. Kojima, A. Miyata, S. Miyabe, S. Takeyama, H. Ueda, and Y. Ueda, *Phys. Rev. B* **77**, 212408 (2008).
- [8] K. Penc, N. Shannon, and H. Shiba, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 197203 (2004).