

極低温でも凍結しないスピンの動的性質の観測

[1] 要旨

量子スピン液体は、高温超伝導発現機構との関連性や量子コンピューティングへの応用の可能性などが指摘されており、その実現と解明は物理学における重要課題の一つとなっている。本論文はスピン液体の実現が有力視される量子カゴメ反強磁性体のモデル物質として $\text{CaCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2 \cdot 0.6\text{H}_2\text{O}$ に注目し、 μSR 法によって 82 mK という極低温下までスピンの動的性質を詳細に調べたものである。その結果、この物質は 7.2 K で磁気相転移を示すにも関わらず、最低温度まで「ゆらゆら」とスピンの揺らぎ続ける動的な性質を示すことを初めて明らかにした。

[2] 本文

よく知られているように、水は常圧では温度によって気体(水蒸気)-液体(水)-固体(氷)の三態をとる。0 °C以下で水は凍結して氷となり、多数の分子が規則正しく並んだ結晶を形成する。物質の磁性を担う電子スピンにも同様の性質があり、一般の磁性体では高温では電子スピンのランダムな方向を向く常磁性(気体)状態が安定であり、温度を下げていくとある臨界温度で電子スピンの規則正しく配列した磁気秩序(固体)状態へと相転移する。磁気秩序(固体)状態は例えば全てのスピンの一方向に揃った強磁性状態(いわゆる磁石)や隣り合うスピンの互いに反対方向を向く反強磁性状態であり、このような磁気状態を制御・利用することで現代のエレクトロニクスは大きな発展を遂げてきた。近年、このような電子スピンの固体化を阻む「磁気フラストレーション」効果の研究が盛んに行われ、それによってもたらされる「電子スピンの液体状態(スピン液体)」の実現とその応用可能性に注目が集まっている。

磁気フラストレーションは図1に示すような三角形を基本構造とする磁性体において生じる。三角形上のスピン間に反強磁性相互作用(スピンを反対向きに揃える力)が働く時、全てのスピン間の相互作用を満たすスピン配置をとることができない。このことを磁気フラストレーションと呼ぶ。磁気フラストレーションがある特殊な磁性体では、強磁性や反強磁性などの典型的な磁気秩序は抑制され、絶対零度においてもスピンの凍結せずにゆらゆらと揺らぎ続けるスピン液体と呼ばれる液体状態(スピン系の量子多体状態)が実現すると期待される。スピン液体状態の最も有名なモデルは、ノーベル物理学賞を受賞した P.W. Anderson が 1973 年に提案した Resonant Valence Bond (RVB) 状態であり、高温超伝導発現機構との関連性や、分数励起とそれに伴う量子エンタングルメントを利用した量子コンピューティングの実現可能性などが指摘されている。したがって、スピン液体の実現と解明は現代物理学における重要課題の一つとなっている。

最近、北海道大学大学院理学研究院、高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所のメンバーを中心とする研究グループは、スピン液体の実現が有力視される量子カゴメ反強磁性体のモデル物質として、Ca-Kapellasite ($\text{CaCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2 \cdot 0.6\text{H}_2\text{O}$) に注目し、ミュオンを用いた μSR 法によって 82 mK という極低温下までのスピンの動的性質を詳細に調べた。その結果、この物質は 7.2 K で磁気相転移を示すにも関わらず、最低温度まで「ゆらゆら」とスピンの揺らぎ続ける動的な性質を示すことを初めて明らかにした。この成果は、JPSJ の 2022 年 1 月号に掲載された。

Ca-Kapellasite は、量子カゴメ反強磁性体のモデル物質(図1(a))であるが、これまでの磁気測定から 7.2 K で反強磁性磁気秩序を示すことが明らかになっていた。そのため、一見すると古典スピ

ン系の平均場近似で説明されるような磁性体に見えるが、mSR法でその動的性質を詳細に調べたところ、磁気秩序状態にあってもスピンの揺らぎが顕在化しており、磁気フラストレーションによって（温度によらない）量子ゆらぎが顕在化していることが明らかになった。このようなスピン揺らぎは、通常の磁性体における磁気秩序状態では観測されない特異なものであり、量子カゴメ反強磁性体の動的な性質の一端を示すものである。今後の研究において化学修飾試料や関連物質の開発、精密物性計測が行われることで、カゴメスピン液体の解明が大きく進展すると期待される。

原論文（2021年12月3日公開済）

[μSR Study of Kapellasite-type Quantum Kagome Antiferromagnet \$\text{CaCu}_3\(\text{OH}\)_6\text{Cl}_2 \cdot 0.6\text{H}_2\text{O}\$](#)

H. K. Yoshida, H. Okabe, S. Takeshita, H. Luetkens, A. Koda, and R. Kadono, J. Phys. Soc. Jpn. **91**, 013701 (2022).

<情報提供：吉田 紘行（北海道大学大学院理学研究院）>

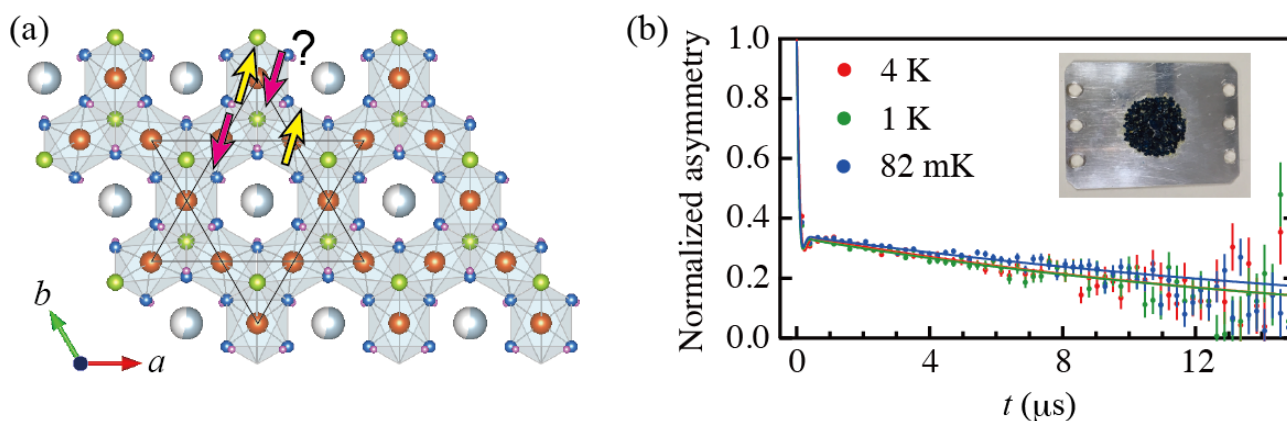


図 1 (a) Ca-Kapellasite の結晶構造。実線は磁性イオンのカゴメネットワークを示す。(b) 極低温下で測定したμSR スペクトル。長時間にわたりスピン偏極が減少（緩和）しており、このことはスピンの揺らぎを示している。