

## 有機超伝導体の隣接絶縁相のゼロ磁場下磁気構造と特異なスピントロップ現象

ここ20年あまりの期間で最も研究された有機伝導体である $\kappa$ 型BEDT-TTF塩の磁性相のゼロ磁場下磁気構造を明らかにした。また、すでに知られていた磁化のとびが、磁化容易軸による古典的なスピントロップ現象ではなく、Dzyaloshinskii–Moriya 相互作用によって誘起されたキャントモーメントの反転現象であることを明らかにした。

$\kappa$ 型 BEDT-TTF 塩と呼ばれる有機物質は、結晶の層状構造に由来する擬二次元電子系、単純なバンド構造、half-filled のバンド充填、異方的三角格子又は純三角格子と見なせる分子配列、電子相関効果を併せ持ち、Hubbard 模型が良く成り立つモデル物質として、強相関電子系の中で重要な地位を確立している。この系は、圧力印加や構成元素の置換により、磁性、モット転移、unconventional な超伝導、スピン液体の候補など電子相関を舞台とした様々な重要物性を示す。これらの物性を示す物質の中でも、常圧下における $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl (図1) は、モット絶縁体であり、低温で反強磁性転移を示すが、これらの物質の(もしくは状態の)母物質であると思なせる。これは、モット転移や超伝導がこの物質を加圧したときに現れるためであり、スピン液体候補物質も、この物質(異方的三角格子)の特殊型(純三角格子)と思なせるためである。したがって、この物質の物性理解は特段に重要である。

当然、この物質の物性は、古くから研究されており、すでに多くの物性が判明している。最近においても、誘電異常や、量子臨界性、X線照射効果など新現象の報告が後を絶たない。しかしながら、最も基本的な物性である「ゼロ磁場下の磁気構造」が判明していなかった。これは、この系では中性子回折実験が困難であるという事情に起因するが、これほどまでに研究された物質であるにもかかわらず、そのような基本的なことが判明していないという状況は、無機磁性体の分野では見られない異常な状況である。最近、埼玉大学大学院理工学研究科のメンバーを中心とする研究グループは、詳細な磁化測定と古典スピンモデルに基づく数値シミュレーションにより、ゼロ磁場下磁気構造をつきとめた。また、すでに知られていた磁化曲線における磁化のとびが、古典的なスピントロップ現象ではなく、Dzyaloshinskii–Moriya 相互作用によって誘起されたキャントモーメントの反転現象であることを明らかにした。この成果は、日本物理学会が発行する英文誌 Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ)の2018年6月号に掲載された。

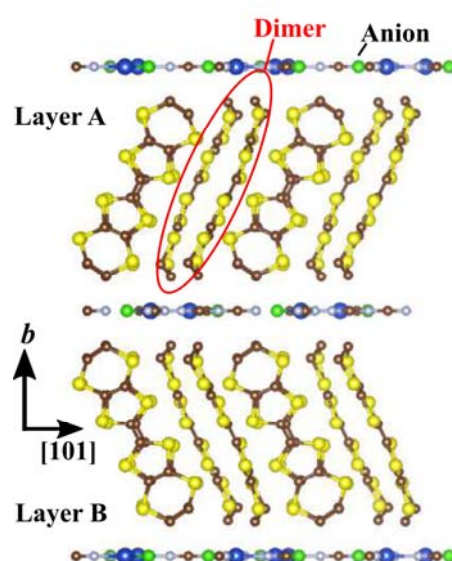


図 1. 傾角反強磁性体  $\kappa$ -(BEDT-TTF)<sub>2</sub>Cu[N(CN)<sub>2</sub>]Cl の結晶構造

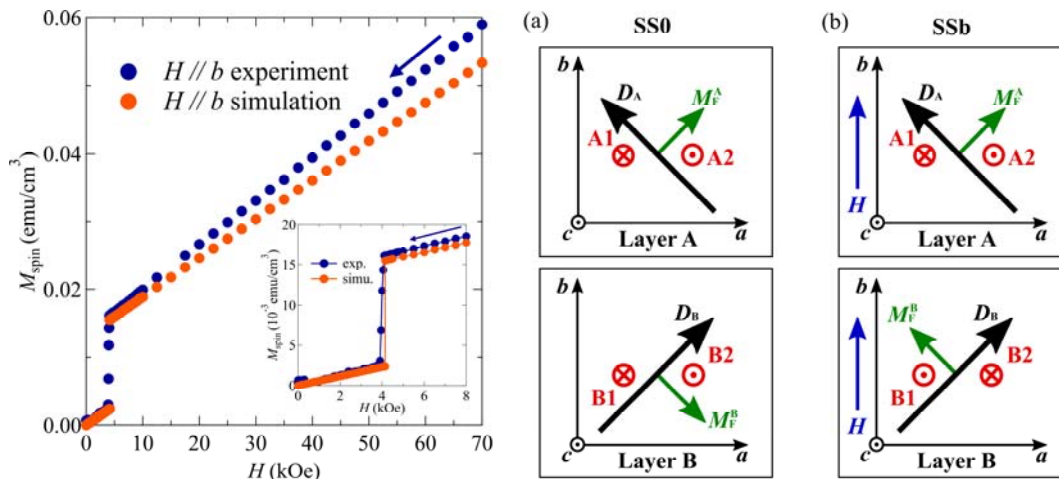


図 2. 左図： $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$ ]Cl の磁化曲線の実験結果とシミュレーション結果の比較（印加磁場は  $b$  軸に平行である）。右図：ゼロ磁場下[(a)]と  $b$  軸磁場下[(b)]の A1～B2 副格子におけるスピンの局所磁気モーメントとキャントモーメント ( $M_F^A, M_F^B$ )。  $D_A$  と  $D_B$  は Dzyaloshinskii–Moriya ベクトルである。

この物質には、Dzyaloshinskii–Moriya 相互作用が存在することが指摘されており、この効果による傾角反強磁性体であることはすでに判明していた。しかし、根本的な問題である磁化容易軸の方向が誤解されていた。それは、磁場を結晶軸の  $b$  軸方向（層状構造の面間方向）に印加したときにスピンプロップ現象と見られる明瞭な磁化のとび（図 2 左図）が観測されていたからである。また、弱強磁性の方向が  $c$  軸方向であると主張する論文もあり、概ね、磁化容易軸が  $b$  軸であり、 $c$  軸にキャントした磁気構造であろうと推測されていた。この磁気構造は、結晶対称性の解析と角度回転  $^{13}\text{C}$ -NMR の実験から決定された Dzyaloshinskii–Moriya ベクトルと整合することから、矛盾なく受け入れられていた。しかし、最初のはころびは弱強磁性の方向が  $c$  軸ではなく  $a$  軸であるということが判明したところから始まる。なぜなら、この弱強磁性の方向は、 $b$  軸磁化容易軸と  $c$  成分を持たない Dzyaloshinskii–Moriya ベクトルと矛盾してしまうためである。この事実を出発点として、より深く考察した結果、磁化容易軸は、実は  $c$  軸であり、 $b$  軸磁場で出現した磁化のとびは、図 2 右に示したような磁場印加によるキャントモーメントの反転現象であることがわかった。これは、半分のスピン（Layer B のスピン）が  $180$  度回転するという、古典的なスピンプロップ現象とは全く異なる現象である。実際、図 2 左図で示したように、この主張は、シミュレーションと実験結果の良い一致から支持される。また、この一致は、ここで提案したゼロ磁場磁気構造を強く支持するものである。

Dzyaloshinskii–Moriya 相互作用は、近年、スキルミオンなどのカイラル磁性体で注目を浴びている。今回の物質は、カイラル磁性体ではないものの、この相互作用が引き起こす特異な磁性現象を示しており、 $\kappa$ 型 BEDT-TTF 塩の磁性体としての新たな研究軸を提供している。この系の低磁場下の磁性の研究は、類縁体などでのさらなる展開が期待される。

## 原論文

[Zero-Field Spin Structure and Spin Reorientations in Layered Organic Antiferromagnet,  \$\kappa\$ -\(BEDT-TTF\) \$\_2\$ Cu\[N\(CN\) \$\_2\$ \]Cl, with Dzyaloshinskii–Moriya Interaction](#)

Rui Ishikawa, Hitoshi Tsunakawa, Kohsuke Oinuma, Shinji Michimura, Hiromi Taniguchi, Kazuhiko Satoh, Yasuyuki Ishii, and Hiroyuki Okamoto: J. Phys. Soc. Jpn. 87, 064701 (2018)

問合せ先：谷口 弘三（埼玉大学大学院理工学研究科）