

直交ダイマー系のブラケットー重項状態 ——THz領域の高圧下 ESR 測定による観測

櫻井敬博 〈神戸大学研究基盤センター tsakurai@kobe-u.ac.jp〉

肘井敬吾 〈神戸大学分子フォトサイエンス研究センター hijii.keigo@gmail.com〉

太田 仁 〈神戸大学分子フォトサイエンス研究センター hohta@kobe-u.ac.jp〉

近年、代表的な量子磁性体の一つである $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ という物質において、長らく期待されていたブラケットー重項と呼ばれる量子状態への相転移の観測が相次いでなされた。本系は磁性イオンの Cu^{2+} ($S=1/2$) がダイマーを組み、そのダイマーが2次元平面上で互いに直交して配置するという、いわゆる直交ダイマー系物質として大変よく知られている物質である。その特異な構造に起因して種々の興味深い物性を示すが、その一つがブラケットー重項状態である。

本系のスピン格子は、正方格子に更に対角の相互作用を直交するように入れたものと等価になる。対角線で結ばれる二つのスピンのダイマーに対応する。従って、この格子の基底状態は、ダイマー内の反強磁性相互作用 J の強い極限、即ち孤立ダイマーではダイマーー重項状態、そしてこれにダイマー間の反強磁性相互作用 J' を加えていったその極限、即ち正方格子ではネール状態になる。ところが J と J' が拮抗する中間の領域では、スピン間にフラストレーションが強く働き、基底状態は自明ではなくなる。理論研究によれば、ダイマーー重項状態やネール状態とは異なる特殊な状態、即ち4つのスピンの一重項を形成するブラケットー重項状態が基底状態になる。

さて本物質は、ブラケットー重項との相境界近傍のダイマーー重項側にいることから、圧力の印加によってブラケット状態が実現できるのではないかと期待されていた。しかしこの転移は、いわば非磁性から非磁性への転移であるため、観測が難しいことが予想される。この転移を明瞭に観測する一つの有力な方法は、励起状態を観測することである。理論的には本相転移は1次転

移で、励起エネルギーに不連続な変化があることが予言されていた。一方で圧力実験には付き物の、圧力による相互作用パラメータの変化をどう評価するか、という問題がある。本系に対してはこれまでいくつかの圧力実験が行われてきたが、この問題に関しては正しく取り組んだ研究はほとんど無かった。

これらの問題を解決し得る有力な実験手法の一つが、我々が開発した THz 領域における強磁場高圧下電子スピン共鳴 (ESR) である。我々は従来より行っていた単純な透過型 ESR のノウハウを活かし、通常金属が用いられるピストンシリンダー型圧力セルの内部部品を、THz 波が透過するセラミクスに全て置き換えるという方法で、0.05–0.8 THz の周波数領域と 2.5 GPa までの高圧下での ESR 測定を可能にした。これにより本系の低励起状態を圧力下において直接観測し、基底状態から第一励起状態までのエネルギーギャップの圧力依存性に不連続な飛びを観測することに成功した。転移圧力は 1.85 ± 0.05 GPa である。また我々は、観測されたエネルギーギャップに対し、モデル格子の厳密対角化による計算結果を用いて解析することで、相互作用パラメータの圧力依存性を曖昧さなく決定することにも成功した。転移点は $J'/J=0.660 \pm 0.003$ と求められた。エネルギーギャップの J'/J 依存性が既存の理論と大変よく一致し、転移点も理論と矛盾無いことから本系のブラケットー重項への量子相転移を観測していると結論付けられる。

このように本手法は、磁性体の圧力効果を、その低励起状態を通して直接的に観測し得る非常に有効な手法である。

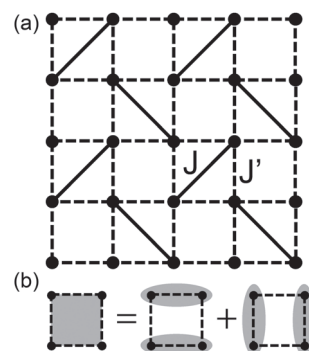
—Keywords—

直交ダイマー：

反強磁性相互作用 J で結合したダイマーが互いに直交するように並んで出来る格子。ダイマー間にも反強磁性相互作用 J' が働く。最初に研究した研究者の名を取って Shastry-Sutherland 格子とも呼ばれる。 J, J' が拮抗する領域ではスピン間にフラストレーションが働き、様々な興味深い現象が現れる。

ブラケットー重項：

4つの $S=1/2$ スピンによって形成される一重項状態。二つずつのダイマーー重項状態の重ね合わせ (共鳴状態) であると考えられる。



(a) ダイマー間、ダイマー内の反強磁性相互作用 J, J' から成る直交ダイマー格子と、(b) ブラケットー重項状態のイメージ。灰色の部分は一重項状態を表す。