

分子性モット絶縁体のスピン相関制御

清水 康弘 〈名古屋大学大学院理学研究科 yasuhiro@iar.nagoya-u.ac.jp〉

前里 光彦 〈京都大学大学院理学研究科 maesato@kuchem.kyoto-u.ac.jp〉

量子スピン系は、新しい量子凝縮状態と創発的な準粒子の舞台として、近年再び脚光を浴びている。とりわけ、代表的なトポロジカル量子状態である**量子スピン液体**では、新奇な準粒子の出現やそれをを用いた量子計算システムの構築が期待されている。

スピン本来の量子性を保持し、古典的な秩序を抑制するには、さまざまな秩序状態が拮抗するフラストレーション系が有効である。それでもなお実際の物質では、スピンと格子や軌道自由度との相互作用が引き金となって、低温で多彩な秩序相が現れる。その多様性の中に横たわる普遍性の理解には、フラストレーションや電子間相互作用等を制御パラメータとした系統的な実験・理論的研究が必要である。

有機分子で構成されるフラストレーション系物質の多くは、二次元三角格子を有し、非磁性の対イオンの大きさや形状に応じて、さまざまな幾何学性とスピン相関をもつ物質を作製することができる。伝導と磁性を担う π 分子軌道間の重なり積分は、化学置換や外部圧力で敏感に変化する。そのため、電子間クーロン反発で電子が局在したモット絶縁体相の磁性から、金属・超伝導に至る広範囲の電子相を同一物質で一挙に調べることが可能である。

二次元三角格子を有する κ -(ET)₂X (ET = BEDT-TTF, X: 陰イオン) とよばれる分子性結晶は、さまざまな二次元フラストレーション系電子系を提供してきた。なかでも最も正三角格子に近い κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃は、モット絶縁体相において量子スピン液体状態、高压下の金属相において超伝導を示す。近年、私たちの研究チームは、より広範囲の電子相関を制御すべく三角格子物質の探索を進め、数々の新物質を開発してきた。その結果、従来の物質では狭い電子相関と

フラストレーション領域に限られてきた電子相を大幅に拡張し、理論研究との比較が可能となった。

そのひとつは、平松らによって合成された正三角格子物質の κ -(ET)₂Ag₂(CN)₃であり、化学置換による負の圧力効果によって、広い圧力域でギャップレスの量子スピン液体相が見出された。 κ -(ET)₂Cu₂(CN)₃では、モット転移の臨界圧がわずか0.3 GPa程度であったのが、Ag置換によって1 GPaにまで拡張された。それによって、絶縁体領域において静水圧や一軸圧によるスピン相関の制御が可能となった。正三角格子を保ったまま交換相互作用を静水圧で連続的に変えることで、量子スピン液体状態の静的および動的帯磁率のスケールリングが観測された。これは、量子臨界的な領域で現れる量子スピン液体に普遍的なスピン相関を特徴づける結果である。

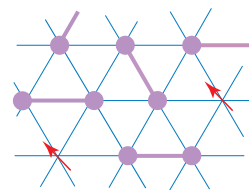
もうひとつの新物質は、吉田らが見出した一次元性の強い三角格子物質 κ -(ET)₂B(CN)₄である。磁気秩序の代わりに、スピンギャップを伴う非磁性化が磁化およびNMR測定で観測され、二次元三角格子では珍しい**Valence bond solid**を基底状態にもつ。スピンギャップは磁場に対して線形に減少し、臨界磁場 H_c 以上で不整合の反強磁性秩序相が出現する。スピンドイマー系に共通した磁気相図で理解できるが、磁場に対して臨界的な磁気相関を示す。

これらの量子スピン系の比較により、スピンギャップや並進対称性の破れの有無が、低エネルギー励起や基底状態の磁場依存性に顕著な違いを生み出すことが明らかになった。今後も新物質開発と外場による物性制御（スピン相関制御）の両輪によって、フラストレーションした量子スピン系の全容が明らかになるものと期待する。

用語解説

量子スピン液体：

対称性の破れのない多体スピン系の量子もつれ状態。基底状態は、スピンシングレット対(●-●)を敷き詰めた状態の重ね合わせで表され、素励起としてスピノンとその位相自由度(ゲージ場)のゆらぎ(バイゾン)が生成する。スピンギャップの有無とゲージ場の対称性で分類され、ギャップレスの非束縛スピノン(↑)は中性電荷の自由フェルミ粒子として振る舞う。ギャップのある場合は、トポロジカル秩序を伴う。



Valence bond solid (VBS)：

並進対称性の破れを伴う $S=1/2$ のダイマー秩序状態。励起される準粒子はスピンギャップを有する $S=1$ のトリブロンもしくは強束縛スピノンであり、高磁場下でボース凝縮(反強磁性秩序)が起きる。ただし、三角格子などのフラストレーション系では、トポロジカルな縮退により非束縛スピノンが準粒子となり、量子臨界的な振る舞い(deconfined quantum criticality)が期待される。

