

ほぼ完全なフラストレーションをもつ磁性体で起こるマグノンの結晶化

2つのスピンの交換相互作用で結合した状態をスピンダイマーという。大きさが $1/2$ の2つのスピンを量子力学的に合成すると、磁気をもたない1つの一重項と磁気をもつ3つの三重項ができる。交換相互作用が反強磁性的な場合には一重項のエネルギーが下がり、三重項との間にエネルギーギャップができる。このようなスピンダイマーを磁場下に置くと、3つの三重項の中で、2つのスピンの共に上向きの三重項は磁場と共にエネルギーが下がるので、強い磁場中ではこの三重項の振舞が系の磁氣的性質を決める。スピンダイマーが周期的に配列した実際の物質においては、図1(a)の細い実線と波線のように、隣接するダイマー間に弱い交換相互作用があると、交換相互作用の xy 成分には2つのスピンの向きを同時に反転する作用があるので、三重項と一重項の位置が入れ代わる。これによって三重項は粒子のようにダイマー上を移動し、運動エネルギーをもつ(図1(b)参照)。この磁気をもつ準粒子はボース粒子の性質をもち、マグノンとよばれている。ダイマー間の交換相互作用が反強磁性的な場合に、2つのマグノンが隣り合うと、交換相互作用の z 成分のエネルギーが上がるので、マグノンは互いに避け合おうとする。すなわち、斥力を及ぼし合う。このように、強い磁場中に置かれたスピンダイマー磁性体は相互作用をするボース粒子の集団として記述される。このとき、磁化は粒子数に、磁場はマグノンの化学ポテンシャルに対応する。この粒子系による記述は単なる数学的な変換ではなく、対応する磁性体の性質を、従来の伝統的な方法よりの確に説明できることが近年の研究で明らかになってきた。

ダイマー間交換相互作用には、図1(a)の細い実線のようにダイマーの同じ側のスピン間に作用するものと、破線のように異なる側のスピン間に作用するものがあるが、これらの相互作用の大きさが同じ程度である場合マグノンの動きを妨げるような効果をもつ。この状況をダイマー間交換相互

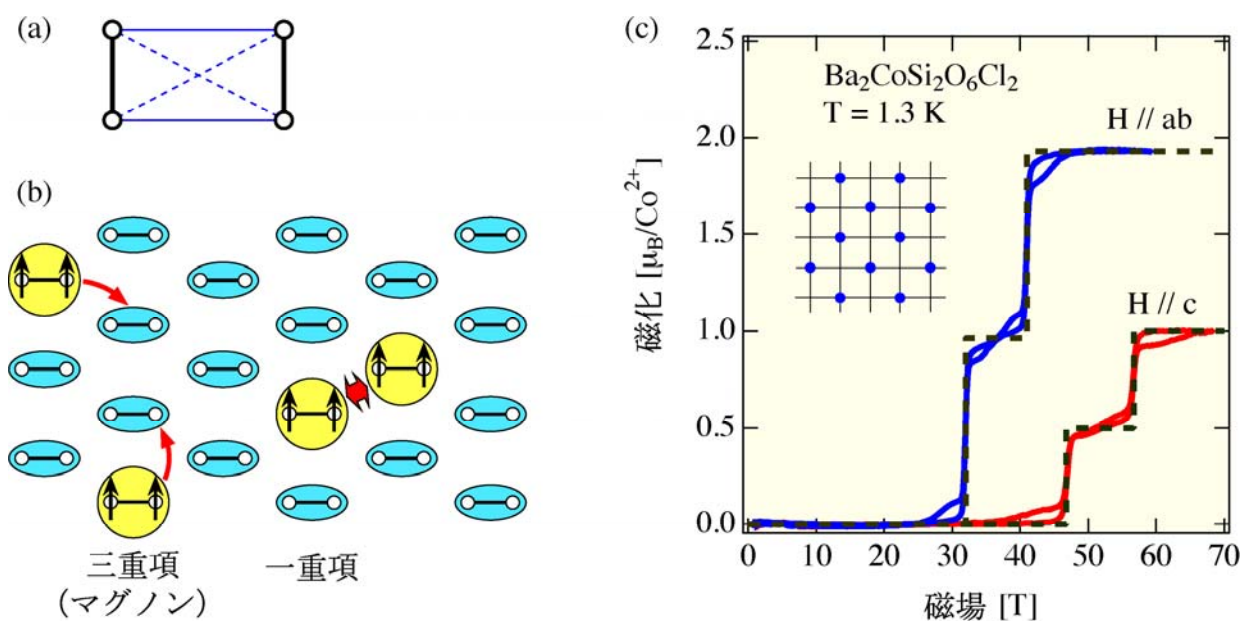


図 1. (a)スピンダイマーの模式図。太い実線がダイマー内の交換相互作用を、細い実線と波線がダイマー間の交換相互作用を表す。(b)強い磁場中でのマグノン(黄色の円)の運動と相互作用を表す模式図。水色の楕円は一重項を表す。(c) $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ で観測された磁化曲線(実線)とその理論(破線)。挿入図は $1/2$ 磁化プラトー状態で起こるマグノンの結晶化の模式図。丸がマグノンの位置を表す。

作用のフラストレーションという。したがって、2種類のダイマー間交換相互作用の大きさに開きのあるフラストレーションの弱い場合には、マグノンは動き易く、その逆に両者の大きさが接近するフラストレーションが強い場合には、マグノンは動きにくくなる。そして、両者の大きさが等しいフラストレーションが完全な場合には、マグノンは静止する。このような場合の基底状態は化学ポテンシャルに対応する磁場のゼーマンエネルギーとマグノン間の斥力のバランスで決まる。このように磁場中のスピンドイマー磁性体は相互作用をするボース粒子系の舞台となり、適当な物質さえあれば、相互作用が弱い場合から強い極限まで、様々な状況を実現できる。そして、アクセス可能な磁場範囲で理論が予言する種々の量子力学的状態や量子臨界現象を観測できる可能性がある。スピンドイマー磁性体を研究する意義はここにあり、そのために精力的な物質開拓と精密な強磁場実験が行われている。

スピンドイマー磁性体は TlCuCl_3 をはじめとして、多くの物質が知られている。しかし、ダイマー間交換相互作用のフラストレーションが弱い場合がほとんどである。このような場合には、臨界磁場以上でダイマー上に一重項とマグノンのコヒーレントな重ね合わせ状態（ボース・アインシュタイン凝縮）ができ、これによって、磁場に垂直なスピンの巨視的整列が起こる。

一方、マグノンの運動エネルギーが強く抑制されると、マグノン間の斥力相互作用が基底状態を決定する重要な要因になる。磁場を増加し臨界磁場に達すると、ダイマー上にマグノンが生成される。しかし、全てのダイマー上を一度にマグノンが占めると互いに及ぼし合う斥力のためにエネルギーが急激に増加してしまう。そこで、互いの斥力が及ばないように、あるいは斥力を軽減するように、周期的にマグノンがダイマー上を占める結晶状態が出現する。一般にこの過程は相互作用の及ぶレンジによって何段階にもなる。さらに磁場を増加するとゼーマンエネルギーを得るように全てダイマー上をマグノンが占める。これにより、磁化曲線は磁場の向きに関係なく階段状になる。このような機構による量子磁化過程は、これまでスピンドイマーが幾何学的に直交して配列する $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ において観測されたのみである。2種類のダイマー間交換相互作用の強いフラストレーションによるマグノンの結晶化は実験的に観測されていなかった。

最近、東京工業大学、東京大学、東北大学の研究グループは、コバルトイオンが有効スピン $1/2$ を担う新規スピンドイマー磁性体 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2$ を合成し、その結晶構造を決定するとともに、パルス強磁場を用いた精密磁化測定と電子スピン共鳴実験を行った。そして、図 1(c)に示されたような、フラストレーションが完全な場合に現れる典型的な鋭い階段状の磁化曲線を得た。この物質の結晶構造から、ダイマーは2次元正方格子に近い配列をすることが分かるので、飽和磁化の $1/2$ の位置に現れる磁化プラトー状態では、挿入図に示したようなマグノンが格子点の半分を占める結晶化が起こっている。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 2014 年 10 月号に掲載された。

原論文

[Almost Perfect Frustration in the Dimer Magnet \$\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_6\text{Cl}_2\$](#)

[H. Tanaka, N. Kurita, M. Okada, E. Kunihiro, Y. Shirata, K. Fujii, H. Uekusa, A. Matsuo, K. Kindo, and H. Nojiri: J. Phys. Soc. Jpn. **83** \(2014\) 103701.](#)

問合せ先：田中秀数（東京工業大学大学院理工学研究科）

金道浩一（東京大学物性研究所）