

スピン液体相の近くに現れる「隠れた秩序」

京都大学 高津 浩

はじめに

結晶構造の幾何学的フラストレーションを背景に現れる新奇な物性が注目されている。中でも三角格子の三次元版であるパイロクロア格子 (図 1a) は強いフラストレーションが働く系として注目されて研究されている。スピンの残留エントロピーや磁気モノポールの素励起、そして量子スピン液体など多彩でエキゾチックな物性研究の舞台である[1]。本稿で取り上げる $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ も量子スピン液体の候補物質として 1999 年の発見[2]以来、精力的に研究されてきた物質である。しかし、いくつかの試料に度々観測される「隠れた秩序」と呼べる謎の秩序の問題が、その本質的な理解を困難にしてきた。最近、我々は「隠れた秩序」がスピン液体相の近くに現れる四極子秩序であることを見出した[3]ので、この場をお借りしてその研究を紹介したい。興味深いことに、この秩序は、強いスピン軌道相互作用と結晶場の影響を受けたテルビウムイオン (Tb^{3+} , $4f^8$, $J = 6$) の波動関数が示す量子多体状態であり、それが電気四極子の秩序となって現れたものである可能性が分かった (図 1)。

研究の背景

パイロクロア磁性体 $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ はキュリーワイス温度 -19 K より十分低温の 0.07 K まで磁気長距離秩序を示さないことが報告されて以来、「スピン液体」の候補物質として精力的に研究されてきた物質である。スピン同士の交換相互作用のみを考えた最も簡単な理論モデルによると、この物質は $1\sim 2 \text{ K}$ 程度の温度で反強磁性秩序を示すと予想されるが[5]、そのような磁気秩序はこれまでに観測されていない。このため、これに変わる様々な理論モデルが提案されている[4,6]。一方、これまでの実験結果には興味深いものと一見して不可解なものが混在している。例えば、スピン液体の性質を支持する相転移のない試料と $T_c = 0.4 \text{ K}$ 付近に相転移のある試料といった全く異なる報告がある。いくつかの試料には磁気秩序とは異なる謎の「隠れた秩序」が観測されるのである。特に、その大きな試料依存性の傾向は単結晶試料に強く現れるため、 $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の基底状態の理解を困難にしてきた。この秩序状態は一体何なのか? $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ は本当にスピン液体なのか? という問題は、スピン液体と隠れた秩序が共に観測し

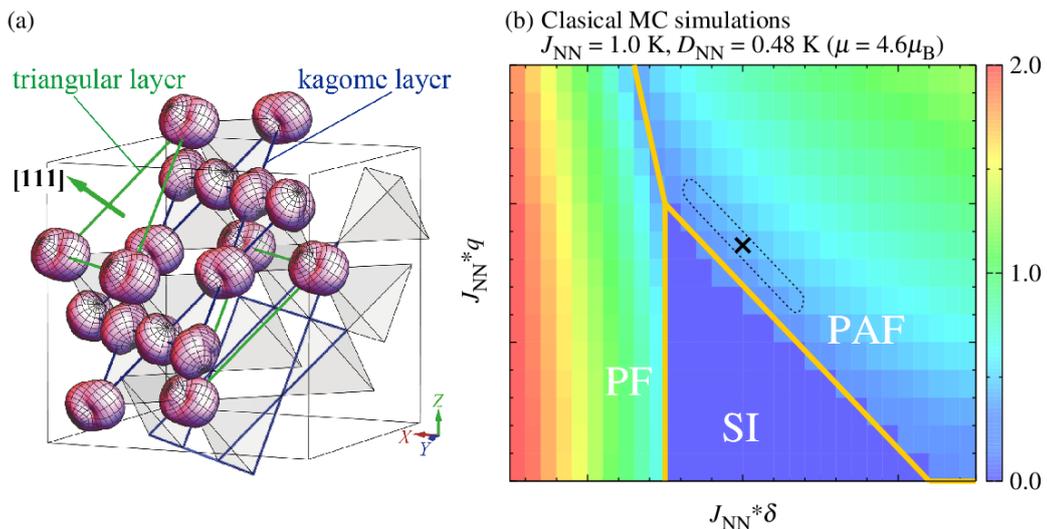


図 1. (a) パイロクロア格子構造と $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の四極子秩序構造。四面体頂点にある紫色の歪んだ球が四極子秩序後の Tb^{3+} イオンの電荷分布を表し、それらの周期構造が四極子秩序の構造を表す。(b)古典近似で計算した量子スピンアイス模型[4]のパラメータ相図。中心のスピンアイス (SI, 量子論的に扱くと量子スピンアイスになる) の相とそれに隣接して PAF、PF と呼ばれる 2 つの四極子秩序相がある。PAF、PF では四極子の秩序構造が異なる。長距離秩序を示す $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の様々な実験結果は点線で囲んだ PAF 領域のパラメータで表せることが分かった。×印はパラメータの代表的な一点 (δ, q) = (0, 0.85) で図 3(b) の計算パラメータである。カラー強度は計算から算出された相転移温度を表す。

こなかった $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の「隠れた秩序」の問題は、純良な単結晶を得て実験ができたこと、そして新しい視点に立ってその理論的解釈ができたことにより、 Tb^{3+} イオンの波動関数が示す量子多体状態が電気四極子の秩序となって現れたものであることが明らかとなった。

結び／今後の展望

今回の研究成果は、幾何学的フラストレーションを持つ磁性体に電気四極子の自由度が絡むことを示した初めての例であり、“frustrated quadrupolar system”と呼べる新しい量子多体状態を研究できることを浮き彫りにしたものである。また、秩序相の近くに現れるスピン液体は、量子スピニアイスというスピニアイスが量子力学的に重ね合わさった状態と言えるエキゾチックな量子液体状態である。四極子秩序は格子のひずみと結合することが良く知られているため、今後は、微小な格子変形を観測すること、そして共鳴X線散乱実験のような少し特別な手法などを使って直接的な方法で四極子秩序の様子を明らかにすることが重要な課題のひとつと考えられる。また、秩序相の近くにあるスピン液体の性質を実験的に明らかにすることも興味深い研究の課題である。

謝辞

本研究は以下の方々（門脇広明、谷口智洋、脇田美香、小野田繁樹、加藤康之、橘高俊一郎、笠原聡、河野洋平、榊原俊郎、B. Fåk、J. Ollivier、J. W. Lynn 各氏）の協力をもとに行われました。また日本学術振興会による科学研究費補助金事業（KAKENHI 24740253, 25400345, 26400336, 26800199, 15H01025, 16K05426）の支援を受けました。極低温までの比熱や磁化の実験は東大物性研の共同利用のサポートを受けて行いました。中性子散乱実験の一部は東大物性研附属中性子科学研究施設の ILL 支援枠のサポートを受けて行いました。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- [1] C. Lacroix, P. Mendels, and F. Mila, *Introduction to Frustrated Magnetism* (Springer, Berlin, Heidelberg, 2011).
- [2] J. S. Gardner *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1012 (1999).
- [3] H. Takatsu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **116**, 217201 (2016).
- [4] S. Onoda and Y. Tanaka, Phys. Rev. Lett. **105**, 047201 (2010).

- [5] M. J. P. Gingras and P. A. McClarty, Rep. Prog. Phys. **77**, 056501 (2014).
- [6] 興味のある方は次の論文やその中の参考文献を参照されたい : H. Kadowaki *et al.*, SPIN **5**, 1540003 (2015)., H. Takatsu *et al.*, J. Phys. Conf. Ser. **683**, 012022 (2016)., M. Wakita *et al.*, J. Phys. Conf. Ser. **683**, 012023 (2016).
- [7] T. Taniguchi *et al.*, Phys. Rev. B **87**, 060408(R) (2013).

