

ブリージングパイロクロア磁性体における新しい量子状態の観測

中性子科学研究施設 益田 隆嗣

研究背景と経緯

物質の振る舞いを支配する熱力学第三法則は、絶対零度でのエントロピーは0であり、基底状態は非縮退であることを教えている。一方、歪みのない完全な正四面体の頂点上にハイゼンベルグスピンの配置した系を仮想的に考えた場合、基底状態は二重縮退となることが知られているが、これは熱力学の法則と矛盾する。この仮想的な正四面体スピンを現実の物質の中に置いたら何が起こるのか興味もたれるところだが、これまで歪みのない正四面体スピン物質はほとんど報告されてこなかった。この点、ブリージングパイロクロア磁性体 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ は、スピン 1/2 を有する Yb イオンが正四面体を形成し(図 1)、幅広い温度領域で歪みが観測されていない稀有な物質である。Yb 四面体は Zn イオンによって隔てられているため、それぞれは、ほぼ孤立した正四面体スピンとなっている。数多くの原子から構成されることを前提とし、熱力学の法則に支配される自然界において、少数のスピンからなる孤立したプラストレート磁性体を現実物質の中に実現させることは、いわば熱力学への挑戦ともいえることであり、この挑戦を受けて立つ自然界がどのような新しい状態を見せるのか興味深い。

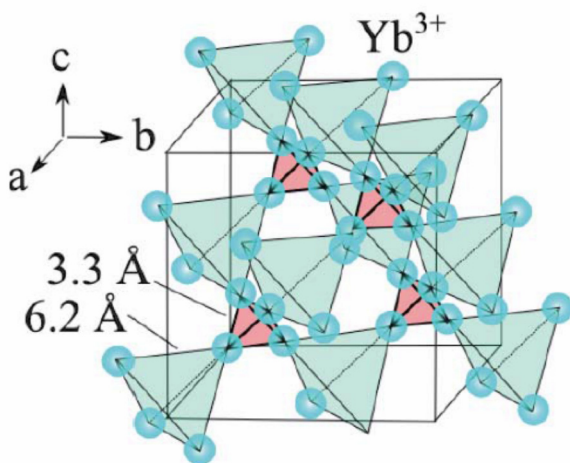


図 1:ブリージングパイロクロア磁性体 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の結晶構造

実験結果

物質のスピンダイナミクスは中性子磁気散乱実験により調べることができる。そこで我々はオーストラリア ANSTO の研究用原子炉 OPAL に設置されている高分解能中性子分光器 PELICAN を用いて、 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の中性子スペクトルを測定した。その結果、4 種類の異なるエネルギーを持つ励起状態が観測された(図 2(a))。励起は非常にシャープで、正四面体の中で相互作用がある場合に生じるぼやけは観測されず、理想的な孤立スピン系であることが分かった。さらに、Yb 間の相互作用を含んだ正四面体スピンモデルによりスペクトルの解析を行ったところ、1.5K で得られたスペクトルは計算により完全に再現された(図 2(b))。相互作用パラメータは $J_x = -0.57 \text{ meV}$, $J_z = -0.56 \text{ meV}$, $J_{DM} = 0.11 \text{ meV}$ と見積もられ、大きな Dzyaloshinskii-Moriya(DM)相互作用が存在していることが分かった(負符号は反強磁性的であるように定義されている)。高温では励起状態からの遷移も観測されるため、モードの数は増えスペクトルは複雑になるが、高温のデータも上記のパラメータで完全に再現された。DM 相互作用は基底状態の非磁性二重項と磁氣的励起状態とを混ぜる効果はあるが、二重縮退を解く効果はない。もしこの状態が実現しているとすれば、四面体 1 つあたりの基底状態は二重縮退となっており、エントロピーは絶対零度でも有限な値となり熱力学第三法則と合致しないことになる。そこで、極低温比熱の測定を行いエントロピーの見積もりを行ったところ、図 2(c) のように、1 K 以下で徐々にエントロピーがゼロに向かい、ついに一つの安定状態が選択される様子が観測された。スピンの秩序化を示唆するような、比熱の急激な変化は観測されなかった。このことから自然界は、何らかの摂動的相互作用を通じて、新しいスピン液体状態を出現させていることが明らかになった。理論的には、弱い四面体間相互作用により部分ダイマー秩序やカイラル秩序を有するスピン液体が実現することが予想されている。また、スピンと格子の間の相互作用が強い場合には、格子が動的に歪むことによるスピン液体が実現されている可能性も考えられている。

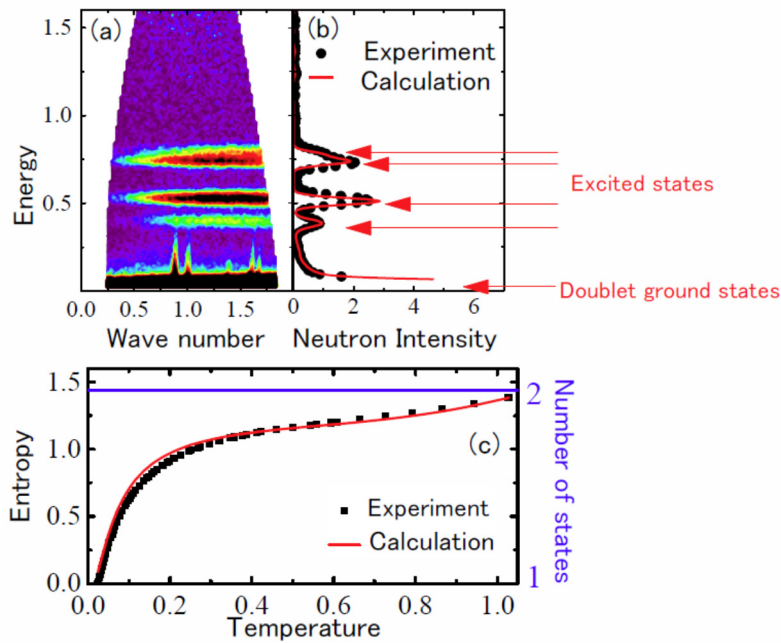


図 2: Ba₃Yb₂Zn₅O₁₁ の中性子スペクトルとエントロピー。
(a) 温度 1.5K で測定された中性子スペクトル。
(b) 基底状態と励起状態のエネルギー分布。
(c) エントロピー変化の様子。絶対温度 0 度に向かってエントロピーが 0 に向かい、状態の数が 2 つから 1 つに減っていく様子が観測された。

今後の展開

本研究では、ブリージングパイロクロア磁性体において、中性子散乱実験と極低温比熱測定を組み合わせることで、新しいスピン液体が実現していることを明らかにした。このスピン液体の詳細をさらに知るためには、極低温高分解能中性子実験や、現実物質に即したさらなる理論研究が重要である。

なお本研究の詳細な内容は、T. Haku, K. Kimura, Y. Matsumoto, M. Soda, M. Sera, D. Yu, R. A. Mole, T. Takeuchi, S. Nakatsuji, Y. Kono, T. Sakakibara, L.-J. Chang, and T. Masuda, Phys. Rev. B **93**, 220407(R) (2016). で閲覧することができる。

謝辞

本研究成果は、白椽大博士(東大物性研、現横河電機)、松本洋介博士(物性研、現 MPI)、左右田稔博士(物性研、現理化学研究所)、中辻知教授(物性研)、河野洋平氏(物性研)、榭原俊郎教授(物性研)、木村健太博士(大阪大学)、世良正一氏(大阪大学)、竹内徹也博士(大阪大学)、

Richard Mole 博士(オーストラリア ANSTO)、Dehong Yu 博士(オーストラリア ANSTO)、Lieh-Jeng Chang 博士(台湾成功大学)との共同研究によるものである。オーストラリア ANSTO での実験を行うにあたり、物性研中性子施設の海外実験支援プログラムにより旅費支援をいただいた。

参考文献

- [1] T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, T. Arima and Y. Tokura. Nature **426**, 55–58 (2003).
- [2] S. Seki, Y. Onose and Y. Tokura. Phys. Rev. Lett. **101**, 067204 (2008).
- [3] H. Katsura, N. Nagaosa, and A. V. Balatsky. Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
- [4] C. Jia, S. Onoda, N. Nagaosa, & J. H. Han. Phys. Rev. B **76**, 144424 (2007).
- [5] H. Murakawa, Y. Onose, S. Miyahara, N. Furukawa, and Y. Tokura. Phys. Rev. Lett. **105**, 137202 (2010).
- [6] J. Romhányi, M. Lajkó, and K. Penc. Phys. Rev. B **84**, 224419 (2011).