

結晶構造の乱れによる量子スピン液体状態の安定化

量子物質研究グループ 酒井 明人、中辻 知

研究の背景と経緯

水を高温から冷却していくと、熱エネルギーによるH₂O分子の運動は徐々に抑制され、気体(水蒸気)から液体(水)、そして最終的には固体(氷)へとその状態を変えます。同様に、通常の磁性体を絶対零度まで冷やすと、スピンは向きの決まった固体状態となります。一方、最近の磁性体の研究において、スピンを特殊な配置に並べることにより、低温までスピンの向きが決まらずにいつまでも液体の状態が保持されるという特異な状態が現れることが理論的に予言され、量子スピン液体として大きな注目を集めています。その有力な探索の舞台として知られているのが、スピニアイスと呼ばれる磁性体の関連物質です。スピニアイスは、パイロクロア格子に配置されたイジングスピンの、スピンに平行方向の強磁性相互作用のみを持つ場合に現れる古典的な磁気状態(図1)で、巨視的縮退を残したままスピンの凍結するという特異な性質を持ちます。さらに最近では、何らかの方法(例えばスピン垂直方向の交換相互作用)で量子揺らぎを増強しアイス状態を融解することで量子スピン液体が実現するという理論的提案がなされ、これを検証する実験的研究が世界各国で精力的に展開されています。しかし、これまでにスピニアイスをベースとした量子スピン液体の候補物質はいくつか見出されてきましたが、どのような起源で量子スピン液体的な振る舞いが生じているのかは分かっていませんでした。

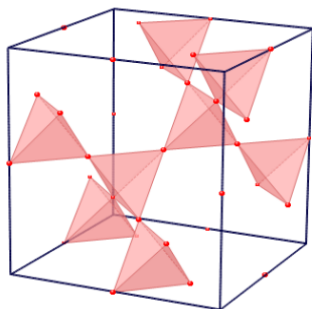


図1. パイロクロア格子

研究内容

本研究グループは、パイロクロア格子上のスピンの示すトポジカルな量子相の開拓を進めてきました。そのなかで、パイロクロア磁性体 Pr₂Zr₂O₇の磁性を担う3価のプラセオジウムイオン(Pr³⁺)が、アイスルール(図2(a))に従うスピン配列を示すこと(図2(b))、さらには、強い量子揺らぎにより最低温においてもスピンの完全凍結せず量子スピン液体的に振る舞うこと(図2(c))を見出してきました。

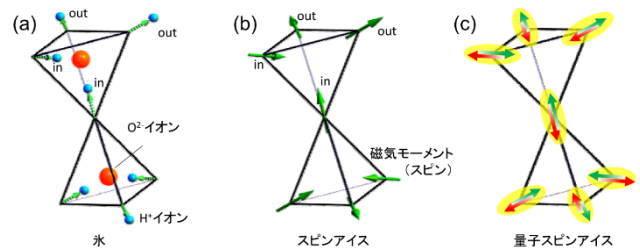


図2. (a)氷(アイス)、(b)スピニアイス、(c)量子スピニアイスの図氷におけるプロトン変位とスピニアイスにおける磁気モーメントは1対1に対応しており、ともに2-in 2-outのアイスルールを満たす。この古典的に凍結した状態に量子力学的横磁場が加わることで量子揺らぎが増強された状態は量子スピニアイスと呼ばれ、異なる2-in 2-out状態が重ね合った量子スピン液体状態になると期待される。今回の研究で、実は乱れが量子力学的横磁場を加えることが明らかになった。

そこで本研究では、スピニアイス関連物質 Pr₂Zr₂O₇における強い量子揺らぎの起源を調べるため、大型の単結晶試料を合成し、これを用いて絶対零度近傍(50 mK)に至るさまざまな温度および磁場下における高分解能非弾性中性子散乱実験を行いました。その結果、低エネルギー領域において、図3(a)に示すような波数に依存する非弾性中性子散乱パターンが観測されました[1]。過去の研究においても観測されたこのパターンは、本実験で用いた単結晶においてもスピンの強磁性相互作用によるスピニアイス相関が存在していることを意味しています[2]。一方、図3(c)に示すように、より高いエネルギー領域においては、波数に依存しない非弾性中性子散乱成分が存在することが新たに判明しました。本物質の磁性を担う Pr³⁺イオンはノンクラマースイオンであるため、その磁氣的性質は結晶構造の

乱れに極めて敏感です。その結果、理想的なパイロクロア構造における Pr^{3+} イオンは磁気的な二重項としての性質を有する一方、構造の乱れがある場合はこの二重項が2つの非磁性一重項状態に分裂すると考えられます。波数に依存しない非弾性中性子散乱の存在は、構造の乱れによる二重項の分裂が生じていることを強く示唆しています。一方、我々の実験とほぼ時期を同じくして、新しい理論が定式化され、この構造の乱れによる二重項の分裂は、 Pr^{3+} に量子揺らぎを促す実効的な横磁場がかかっていることに対応するため、この乱れによる2重項の分裂が量子スピ液体を安定化することが示されました[3]。そこで、古典スピアイス状態をもたらす強磁性相互作用に、乱れに起因する実効的横磁場を加えたスピモデルを用いて実験結果を解析したところ、全ての実験結果を合理的に説明可能であることが分かりました(図 3(b)(d))。このことは、今回用いた試料中に存在する結晶構造の乱れが、量子スピ液体状態を安定化している可能性を強く示唆しています。

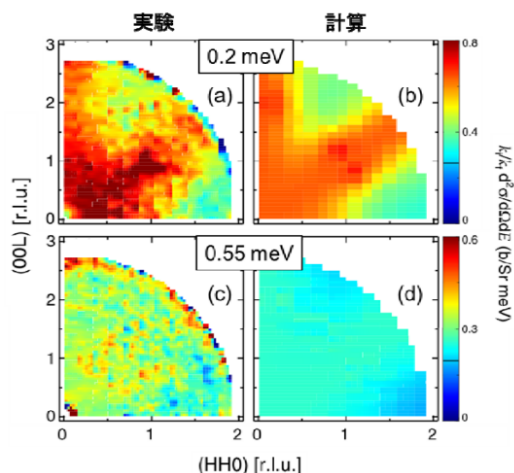


図 3. 絶対零度近傍(50 ミリケルビン)における非弾性中性子散乱強度マップ
(a)(b)低エネルギー領域(0.2meV)における実験および計算結果。散乱強度は波数に強く依存し、またそのパターンはスピアイス相関を持つ磁性体に特有のものである。(c)(d)高エネルギー領域(0.55meV)における実験および計算結果。散乱強度は波数に依存しない。

今後の展開

今回、スピアイス関連物質 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ において、結晶構造の乱れにより量子スピ液体状態が安定化している可能性を実験的に見出しました。従来の研究では、構造の乱れはスピンのガラス状態への凍結を引き起こし、量子スピ液体の形成を阻害するものと考えられてきました。この

定説に一石を投じる今回の成果は、量子スピ液体を示す磁性材料の開発に新たな指針を与えるものと期待できます。今回見出した乱れによる量子スピ液体と、純良試料で期待される量子スピ液体の相違点を明らかにすることは、量子スピ液体の全容を解明する上で大変重要です。最近の研究により、Pr と Zr の組成比を制御することによって、パイロクロア構造の乱れを広範囲に制御できることが分かってきました。組成比の精密制御により乱れのより少ない試料を合成し、これを用いた詳細な物性測定を行うことで、量子スピ液体の理解が飛躍的に向上すると考えられます。これにより、将来的には、量子スピ液体のエンタングルメントを利用したスピントロニクス、量子コンピュータの次世代デバイスへの応用などに繋がるものと期待されます。

- [1] J.-J. Wen, S. M. Koohpayeh, K. A. Ross, B. A. Trump, T. M. McQueen, K. Kimura, S. Nakatsuji, Y. Qiu, D. M. Pajerowski, J. R. D. Copley, and C. L. Broholm, Phys. Rev. Lett. 118, 107206 (2017).
- [2] K. Kimura, S. Nakatsuji, J.-J. Wen, C. Broholm, M. B. Stone, E. Nishibori & H. Sawa, Nature Communications 4, 1934 (2013).
- [3] Lucile Savary and Leon Balents Phys. Rev. Lett. 118, 087203 (2017).