

図2のようなハニカム格子が形成されていると予想された。さらに、A-type と B-type の分子の存在と分子間の対称性を考慮することで、各磁気相関には3つのパターンが存在していると考えられた。結果として、ハニカム格子を形成する磁気相関には9(=3×3)パターンが存在して、それらがランダムにつながることで磁気相関にランダムネスが構築される。

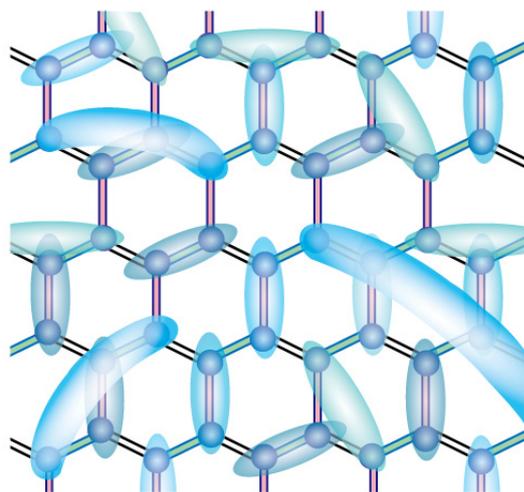


図2 : $Zn(hfac)_2(A_xB_{1-x})$ のハニカム格子上的のランダムシングレット状態. 囲まれたスピ対はシングレットを表す. 高次の反強磁性磁気相関によって、空間的に離れたスピ対でもシングレットが形成される.

スピン 1/2 が反強磁性的に結合した場合には、量子的なシングレット状態が形成されてスピが消失する。本系におけるハニカム格子上のランダムな磁気相関においては、温度低下に伴って強い反強磁性相関を持つスピのペアから順次シングレットを形成していく。その際、シングレットを形成して消失したスピ対を飛び越えた高次の反強磁性相関も有効になる。従って、ハニカム格子をつくる磁気相関は9パターンであるが、シングレットを形成する磁気相関のエネルギーはほぼ連続的に分布することになる。この乱れによって形成されるランダムシングレット(valence bond glass)においては、図2に示すようにそれぞれのスピが空間的にランダムにシングレットを組み、ギャップレスの非磁性状態となっている。それ故に量子スピン液体として報告されている振る舞いと同等な物性が観測されると予想されている。非常に弱い高次の反強磁性相関によってシングレットを組んでいるスピは、有限の磁場でトリプレット状態へと励起されるため、低温での磁化率には常磁性的なスピの寄与が現れる。また、連続的なエネルギー準位の分布を反映して、磁化曲線は線形的になり、磁気比

熱は低温で温度に比例した振る舞いを示す。本研究では乱れの大きな $x = 0.64$ と 0.79 の試料の合成に成功し、低温での物性検証を進めた。その結果、磁化率、磁化曲線、磁気比熱の全ての実験結果において、明瞭にランダムシングレットで予想されている量子スピン液体的な振る舞いが再現された。

3. 今後の展望

乱れを導入することによって実現した量子スピン液体は、従来の量子スピン液体のモデルとは異なる発現機構を備えている。現実の物質で観測されている量子スピン液体の理解に一石を投じるとともに、その本質に迫る重要な知見となった。さらに、空間的に離れたシングレットを持つランダムシングレット状態では長距離のスピ輸送も期待できる。反強磁性絶縁体をベースとしたスピデバイスの開発につなげていきたい。

我々が取り組んできた有機ラジカルを用いた一連の物質開発では、無機物による磁性体の合成と比較すると、圧倒的に早いペースで多種多様な新規磁性体を生み出すことが可能である。分子の自由度を活用した量子磁性体のデザインは、量子物性の制御を可能にし、新たな量子現象を取り込んだ新材料の開発にもつながる。

謝辞

本研究成果は、東京大学物性研究所の河野洋平研究員、橘高俊一郎助教、榊原俊郎教授、大阪府立大学の岡田将孝氏、岡部俊輝氏、岩崎義己研究員、細越裕子教授との共同研究によるものです。

参考文献

[1] H. Yamaguchi, M. Okada, Y. Kono, S. Kittaka, T. Sakakibara, T. Okabe, Y. Iwasaki, and Y. Hosokoshi, *Sci. Rep.* **7**, 16144 (2017).