

磁気モノポールの量子ダイナミクスが発見

1. 発表者：

木村健太（日本学術振興会特別研究員 現・大阪大学大学院基礎工学研究科 助教）

中辻 知（東京大学物性研究所 准教授）

Jiajia Wen (Johns Hopkins University, Ph.D. Student)

Collin Broholm (Johns Hopkins University, Professor)

Matthew Stone (Oak Ridge National Laboratory, Instrument Scientist)

西堀英治（名古屋大学 大学院工学研究科 マテリアル理工学専攻 准教授 現・理化学研究所 RSC-リガク連携センター連携センター長）

澤 博（名古屋大学 大学院工学研究科 マテリアル理工学専攻 教授）

2. 発表ポイント：

◆スピナイスと呼ばれる磁性体において、磁気モノポールの量子ダイナミクスを発見した。

◆今回発見した磁気モノポールは、熱拡散的なランダム運動を行う従来型スピナイスのモノポールとは異なり、量子力学のルールに従ってコヒーレントに運動する新しい磁気モノポールである。

◆電流を必要とせずにスピン情報の輸送が可能であり熱の損失が生じないため、より省エネルギーなスピントロニクスへの応用が期待される。

3. 発表概要：

電子は“スピン”と呼ばれる微小な磁石としての性質を有しており、その性質を活かした“スピントロニクス”が次世代デバイスのキーテクノロジーとして注目を集めています。このスピンは、必ずS極とN極がペア（磁気双極子）を形成していることが古くから知られてきましたが、近年、スピナイスと呼ばれる特殊な磁性体において、熱揺らぎの効果としてN極またはS極のどちらかのみを持つ磁石（磁気モノポール）として振る舞うことが理論と実験の両面から明らかになってきました。この磁気モノポールは、電流を必要とせずにスピンを運ぶことが出来るため、それを自在に制御できればより低損失なスピントロニクスの構築に繋がると考えられます。しかし、この磁気モノポールの運動は熱拡散的でランダムであり、その制御は困難と考えられてきました。

今回、東京大学物性研究所（所長 瀧川 仁）の中辻 知准教授を中心とする研究グループは、名古屋大学、ジョンス・ホプキンス大学、オークリッジ国立研究所と共同で、スピナイス関連物質の $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ という新しい磁性体において、磁気モノポールが半導体中の電子のように量子力学的運動（注1）を行うことを見出しました。これは、磁気モノポー

ルの持つ N 極、S 極の情報を無散逸に伝送できることを意味しています。さらに、こうした量子力学的運動は特定の法則に従うため、この法則を解き明かすことで磁気モノポールを自在に制御できるようになると考えられます。本研究では、磁気モノポールを利用した省エネルギーのスピンエレクトロニクスの可能性を実験的に提示することに成功しました。この成果は、スピンのナノ立体構造の制御による新しい不揮発性メモリ材料の開発等に新たな指針を与えると期待されます。

本研究成果は、JST 戦略的創造研究推進事業さきがけの一環として行われ、2013 年 6 月 17 日（英国時間）の英国科学誌『Nature Communications』オンライン版で掲載されます。

4. 発表内容：

①研究の背景と経緯

現代社会を支える半導体エレクトロニクスは、電子の持つ“電荷”という属性を巧妙に操ることで実現しています。一方、電子は“スピン”と呼ばれる微小な磁石としての性質も兼ね備えており、その性質を活かした“スピンエレクトロニクス”が次世代デバイスのキーテクノロジーとして注目を集めています。このスピンは、必ず S 極と N 極がペア（磁気双極子）を形成していることが古くから知られてきましたが、21 世紀に入り、パイロクロア構造（注 2）を持つスピナイスと呼ばれる磁性体（注 3）において、スピンの熱励起があたかも N 極と S 極のみを持つ磁石、すなわち磁気モノポール（注 4）のように振る舞うことが明らかになってきました。この磁気モノポールは、固体における新種の素励起であるだけでなく、高エネルギー物理におけるモノポールとの関連からも、大きな学問的関心が寄せられてきました（注 5）。さらに、電流を必要とせずにスピンを運ぶという磁気モノポールの性質により、従来のスピンエレクトロニクスで課題となっていたスピン輸送に伴う熱の損失が発生しないため、より低損失なスピンエレクトロニクスの構築に繋がると考えられます。しかし、従来型のスピナイスでは、磁気モノポールの運動はランダムであり、その制御は困難と考えられてきました。こうした背景から、モノポールの運動を規定するマイクロなルールを内包する新しいスピナイス物質の発見が強く望まれてきました。

②研究内容

東京大学物性研究所・中辻 知准教授を中心とする研究グループは、これまで、スピンのナノ立体構造を制御することで現れる新しい量子現象、特にメモリ効果を伴う量子伝導効果の研究を進めてきました。そのなかで、パイロクロア磁性体 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の磁性を担う 3 価のプラセオジウムイオン (Pr^{3+}) がアイスルールに従うスピン配列を示すこと、さらには、従来型スピナイスには無いスピンの量子的な揺らぎにより、不揮発メモリ効果を持つホール効果を発現することを見出してきました。ごく最近の理論は、量子揺らぎによりモノポールが電子のように量子力学的運動をすることを予言しています。 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ はこの予言を

検証する良い候補物質と言えますが、精密な物性測定に必要な大型単結晶が得難いという問題を抱えていました。そこで本研究では、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ という新しい Pr ベースのパイロクロア磁性体に着目し、2000 度を超える超高温環境を作り出すことにより大型の人工単結晶の合成に成功しました。そして、この単結晶を特殊な冷凍機を用いて絶対零度近傍まで冷却し、磁気的な性質を詳細に調べました。

その結果、磁性を担う Pr イオンは、従来型スピンアイスと同様に正四面体の内側と外側のいずれかを向くイジング的磁気モーメント（スピン）を持つことが分かりました。また、外部振動磁場に対するスピンの振る舞いも従来型スピンアイスと良く似ており、その温度依存性は磁気モノポール密度の温度変化という観点で説明できます。こうした結果を踏まえて、より詳細かつ直接的にスピンの性質を検出するため、ジョンズ・ホプキンス大学（米国）ブロホルム教授グループとの共同研究により絶対零度近傍での中性子散乱実験を行いました（図 4）。この測定では、スピン集団の時間平均的な配列情報（弾性散乱）と集団運動の様子（非弾性散乱）を得ることができます。測定の結果、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ のスピンは、スピンアイスで期待されるアイスルール（注 3）と呼ばれる規則に従って配列していることが分かりました（図 4A）。大変興味深いことに、従来型スピンアイスとは異なり、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ のスピンは絶対零度低温近傍にも関わらず凍結せず、量子的に揺らいでいることを突き止めました。さらに、励起状態ではアイスルールが破れており、磁気モノポールが存在していることを見出しました（図 4B）。以上から、励起状態におけるモノポールは、量子揺らぎを駆動力としたコヒーレントな集団運動を行っていると考えられます。今回の発見は、東京大学物性研究所、名古屋大学、ジョンズ・ホプキンス大学、米国オークリッジ国立研究所の共同研究によるもので、2013 年 6 月 17 日（英国時間）の英国科学誌『Nature Communications』オンライン版に掲載されます。

なお、本研究は、JST 戦略的創造研究推進事業 個人型研究（さきがけ）の「新物質科学と元素戦略」研究領域（研究総括：細野 秀雄 東京工業大学 フロンティア研究センター／応用セラミックス研究所 教授）における研究課題「スピンのナノ立体構造制御による革新的電子機能物質の創製」（研究代表者：中辻 知）の一環として行われました。

③今後の展開

今回、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ という新しい磁性体を用いて、マイナス 273 度という絶対零度近傍において磁気モノポールがコヒーレントな量子運動を行うことを突き止めました。これは、磁気モノポールの持つ N 極、S 極の情報を無散逸に伝送できることを意味しています。このモノポールは、熱拡散的なランダムな運動を行う従来型スピンアイスのモノポールとは異なり量子力学のルールに従って運動するため、その運動法則を解き明かすことで自在に制御することが可能と考えられます。今後は、量子モノポールの詳細を明らかにするために、伝達距離や伝達速度、さらには、磁場などの外部刺激に対する応答を精密に調べる必要があります。量子モノポールの形成メカニズムと制御方法が解明できれば、磁気モノポール

を利用したスピントロニクスの可能性が拓けます。さらに、今回の成果は、東京大学物性研究所・中辻 知准教授を中心とする研究グループが以前発見した姉妹物質 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ における省エネルギー不揮発メモリ効果を持つホール効果を解明するうえでも、さらには、それを発展させたスピンのナノ立体構造の制御による新しいホール効果の発現機構の解明をするためにも重要な知見を与えるものと期待されます。

5. 発表雑誌：

英国科学誌『Nature Communications』オンライン版 6月17日掲載。

DOI:10.1038/ncomms2914. <http://www.nature.com/naturecommunications>.

論文タイトル：Quantum fluctuations in spin-ice-like $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$

著者：K. Kimura, S. Nakatsuji, J. -J. Wen, C. Broholm, M. B. Stone, E. Nishibori, and H. Sawa

6. 問い合わせ先：

東京大学物性研究所 准教授 中辻 知

TEL: 04-7136-3240 FAX: 04-7136-3241

E-mail: satoru@issp.u-tokyo.ac.jp

<http://satoru.issp.u-tokyo.ac.jp/>

7. 用語解説：

(注1) 量子力学的運動

電子は量子力学的に波動としての性質を持っており、その運動は波動のもつ波数とそのエネルギーの関係で記述できる。モノポールも量子的な場合は、このような波数とエネルギーの関係に従う（コヒーレントな）運動により記述される。

(注2) パイロクロア構造

図1のように、正四面体が頂点共有して3次元ネットワークを形成した構造をパイロクロア構造と呼ぶ。パイロクロア磁性体では、磁性イオンが各正四面体の頂点に位置する。

(注3) スピンアイスとアイスルール

常圧において氷はパイロクロア格子構造をとり、 H^+ イオンが正四面体の頂点から少し変位する。その変位の向きは、図2Aに示すように2-in 2-outの構造をとりアイスルールと呼ばれる。これは共有する2つの正四面体の中心に位置する O^2- イオンのうち、どちらの向きに水素結合を形成するかによって決まっている。同様な状況は、 H^+ イオンの変位を上下方向にしか向かないイジングスピンに置き換えたスピンアイスと呼ばれる磁性体にも現れる(図2B)。すなわち、四面体の各頂点にその重心方向に向いたイジングスピンを配置し、それらの間に強磁性の相関を考えると、イジングスピンは上記の2-in 2-outの構造をとりアイス

ルールを満たす。

(注4) スピンアイスの磁気モノポール

スピンアイスでは、スピントリップによりアイスルールが破れると正四面体内にプラス (N 極) とマイナス (S 極) のモノポールペアが生じる。スピンアイスにおける最低エネルギー励起はこのペアの分離化であり、これらは磁気的なクーロン引力を感じながら、磁気モノポールとして独立に運動する (図3)。従来型スピンアイスにおける磁気モノポールは、熱拡散によるランダム運動を行うことが知られている。一方、今回我々が発見したスピンアイス $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ における磁気モノポールは、量子揺らぎにより、電子のようにコヒーレントな量子力学的運動 (注1) を行っていると考えられる。

(注5) 高エネルギー物理における磁気モノポール

電場と磁場の対称性から、電荷に対応する磁荷、すなわち磁気モノポールが存在するはずだという考えは古くからあった。現在の大統一理論によると、宇宙初期の高エネルギー状態では磁気モノポールが存在していたと考えられており、その名残を観測しようという試みが長年なされてきたが、成功には至っていない。スピンアイスにおける磁気モノポール (注4) は、高エネルギー物理分野で長年探索されてきた素粒子と酷似した性質を持つ素励起であり、それゆえ固体物理学者や高エネルギー物理学者を中心に大きな注目を集めている。

8. 添付資料 :

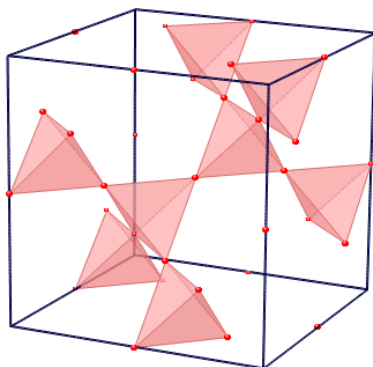


図1. パイロクロア構造。

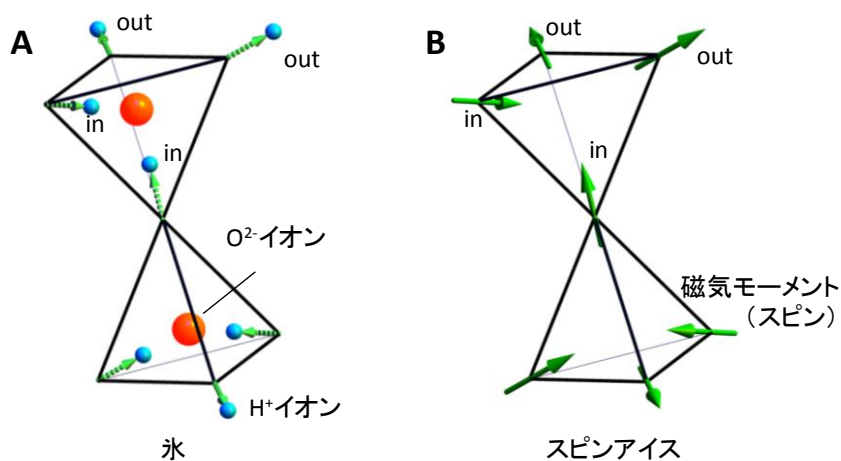


図2. (A) 氷 (アイス) と (B) スピンアイスの図。氷におけるプロトン変位とスピンアイスにおける磁気モーメントは1対1に対応しており、ともに2-in 2-outのアイスルールを満たす。

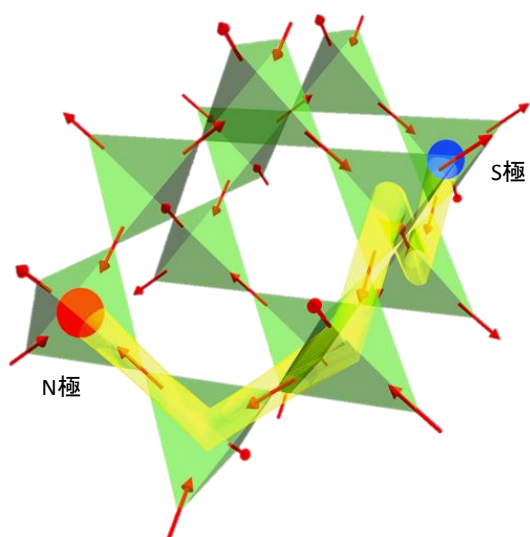


図3. スピンアイスにおける磁気モノポール。ゆらぎの効果によるスピントリフリップによって生成されたモノポールペアが独立に運動し、磁気モノポールとして振る舞う。

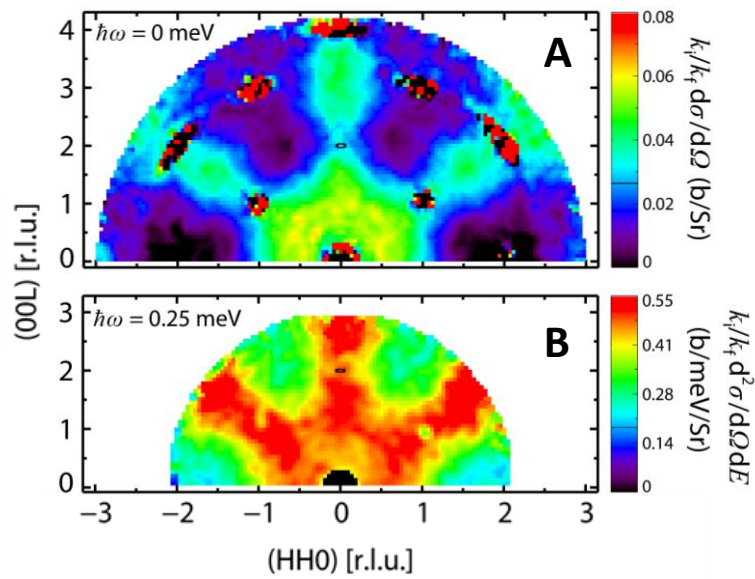


図4. 絶対零度近傍（約マイナス 273 度）における (A) 弾性中性子散乱および (B) 非弾性中性子散乱の波数空間強度マップ。弾性散乱マップの(002)や(111)で見られる特徴的パターンはピンチポイントと呼ばれており、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ においてアイスルールが存在する証拠を与える。一方、非弾性散乱マップではピンチポイントが消失しており、励起状態においてアイスルールが破れ、磁気モノポールが出現していることを示している。こうした非弾性散乱成分は量子揺らぎを持たない従来型スピンアイスでは存在せず、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ が量子揺らぎを持つ新しいスピンアイスであることを直接的に示している。