

# 第 10 回 ISSP 学術奨励賞を受賞して

新物質科学研究部門 吉田 誠

2013 年 3 月に、第 10 回 ISSP 学術奨励賞を受賞し、家所長(当時)より賞状と素敵な銀のメダルを賜りました。対象となった研究は、「フラストレートした磁性体ボルボサイトの磁気相転移と異常なゆらぎの観測」というものです。物性研だよりに記事を書く機会を頂きましたので、ここでは本研究の経緯とボルボサイトの面白い点について述べたいと思います。

私は大学院生時代、電子の有効質量を測るサイクロトロン共鳴測定に従事していたので、電気の流れないスピン系にはあまり関心が無かったのですが、ポスドク時代に神戸大学・太田研究室で有限 Haldane 鎖の ESR 測定[1]に関わってから、スピン系に興味を持つようになりました。 $S=1$  反強磁性次元鎖、すなわち Haldane 鎖の基底状態は Valence Bond Solid(VBS)と呼ばれる非磁性状態として理解されますが、この VBS は孤立した非磁性シングレットの集合体というわけではなく、複数サイトにスピン相関が広がった状態であり、その様子が ESR や NMR といったマイクロな測定手法を用いて目で見たように観測できるというのが大変面白いと感じました。同様のことがスピン液体、あるいは Resonating Valence Bond(RVB)と呼ばれるような状態でも可能ではないかと考え、二次元フラストレートスピン系に深入りすることになっていきました。しかし実際に、スピン液体のような状態を目指していくと、なかなか Haldane 鎖のように綺麗にいかないということがわかってきました。Haldane 鎖の VBS は大きなスピンギャップを持ち、スピン相関が指数関数で減衰しますので、ユニークな量子基底状態を実験で安定に実現することが出来ます。それに対し、RVB のような状態がもしも実現しようとしても、スピン相関は空間的に大きく広がっており、スピンギャップは非常に小さいか、あるいはギャップレスと考えられるので、実験では他の効果(磁気異方性、不純物や格子欠陥による乱れ、遠距離相互作用等)に妨げられて、明確な結果を得ることが難しくなるように思われます。

ボルボサイト  $\text{Cu}_3\text{V}_2\text{O}_7(\text{OH})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  は  $S=1/2$  を有する  $\text{Cu}^{2+}$  イオンが歪んだカゴメ格子を形成し、スピン液体候補として有力視された物質ですが、詳細な研究により、カゴメモデルからのずれのためか、低温では何かしらの磁気秩序状態にあるということがわかってきました[2-6]。 $^{51}\text{V}$  NMR 測定において、核磁気緩和率  $1/T_1$  は 1 K でシャープなピークを持ち、それ以下の温度で明確な内部磁場の発生が観測されます。これは少なくともあるスピン成分は 1 K に向かってゆらぎがスローイングダウンし、1 K 以下で格子の対称性を破る反強磁性的スピン配列が生じたと解釈されます。これだけだとボルボサイトはスピン液体のような状態が実現しそうであったけれど、他の効果に妨げられて磁気秩序を示した例の一つに分類されて終わりそうです。しかし詳細に調べてみると、1 K 以下の核磁気緩和率  $1/T_1$  とスピンエコー減衰率  $1/T_2$  の振る舞いが極めて異常であり、単純な磁気秩序状態にあるように見えません[2]。反強磁性的に秩序したスピン成分が存在することは間違いありませんが、同時に  $1/T_1$  及び  $1/T_2$  を異常にする非常に大きくゆらぐスピン成分が存在すると考えられます。 $1/T_1$  及び  $1/T_2$  の異常というだけでは間接的ですが、この共存を強く支持する結果が高磁場相の詳細な研究から得られます。ボルボサイトは、低温で複数の磁化ステップを示す点が大きな特徴です[3]。NMR 測定では磁化ステップに対応した磁気転移が 4.5 T と 25 T で観測されるので、低温の磁気相を低磁場から相 I ( $B < 4.5$  T)、相 II ( $4.5 < B < 25$  T)、相 III ( $25 \text{ T} < B$ ) と名付けます。相 I において、 $1/T_1$  及び  $1/T_2$  から大きなスピンのゆらぎが示唆されますが、これが相 II に入ると、通常の磁気秩序に対応するようなゆらぎが抑えられた成分が明確に出現し、相 I で見られたゆらぎの強い成分と共存して、超構造を形成しているように見えます[4]。さらに相 III では、NMR 測定から一部の秩序スピン成分が強磁性的に揃うと考えられますが、ゆらぎの強い成分も生き残り、奇妙な共存状態を形成しているように見えます[5,6]。すなわち、ボルボサイトの複雑な磁化過程[3]は、通常の磁気秩序成分とゆらぎの強い奇妙なスピン成分の共存及び超構造の形成と密接に関係しており[5,6]、大きなスピンゆらぎの原因を解明することがボルボサイトの磁性を理解するうえで本質的に重要と考えられます。ゆらぎの原因は何か、現時点では分からないのですが、今後、単結晶を用いたさらに詳細な測定で明らかにしていけると考えております。



今回受賞の対象となった研究は、瀧川仁、吉田紘行、岡本佳比古、広井善二、S. Krämer、S. Mukhopadhyay、M. Horvatić、C. Berthier 各氏との共同研究です。また本研究は、物性研の素晴らしい実験環境及びグルノーブル強磁場施設において、多くの方々に支えられ成されたものです。この場を借りて感謝いたします。

- [1] 吉田誠、太田仁、伊藤利充、網代芳民、日本物理学会誌 Vol.61, No.3 (2006) 180-183.
- [2] M. Yoshida, M. Takigawa, H. Yoshida, Y. Okamoto, and Z. Hiroi, Phys. Rev. Lett. 103(2009) 077207.
- [3] H. Yoshida, Y. Okamoto, T. Tayama, T. Sakakibara, M. Tokunaga, A. Matsuo, Y. Narumi, K. Kindo, M. Yoshida, M. Takigawa, and Z. Hiroi, J. Phys. Soc. Jpn. 78(2009) 043704.
- [4] M. Yoshida, M. Takigawa, H. Yoshida, Y. Okamoto, and Z. Hiroi, Phys. Rev. B 84(2011) 020410(R).
- [5] M. Yoshida, M. Takigawa, S. Krämer, S. Mukhopadhyay, M. Horvatić, C. Berthier, H. Yoshida, Y. Okamoto, and Z. Hiroi, J. Phys. Soc. Jpn. 81(2012) 024703.
- [6] 吉田誠、瀧川仁、日本物理学会誌 Vol.67, No.3 (2012) 179-183.