



型スピンアイスには無いスピンの量子的な揺らぎにより、スピン液体状態で自発的ホール効果を発現することを見出してきました[8-11]。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[12,13]。 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ はこの予言を検証する良い候補物質と言えますが、大型単結晶が必要な中性子散乱実験等の実験を行うことはできませんでした。そこで本研究では、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ という同じ Pr ベースのパイロクロア磁性体に着目しました。これまで単結晶の育成方法は知られていましたが[14]、それをさらに改良することで物性研究所物質設計評価施設が所有する単結晶合成装置を用いて純良な大型単結晶の合成を行いました。得られた単結晶については、名古屋大学の澤研究室と共同で放射光を用いた結晶構造解析を行い、パイロクロア構造を確認しました。その純良結晶を用いて物性研究所にて希釈冷凍機を用いた様々な実験を行い、低温物性を明らかにしました。

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の磁気モーメントを持つことを明らかにしました。また、外部振動磁場に対するスピンの応答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ることが分かりました。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、日米協力事業「中性子散乱分野」の一環として、ジョンズ・ホプキンス大学(米国)プロホルム教授グループと共同で米国国立標準研究所(NIST)の新しい分光器 MACS を用いて中性子散乱実験を行いました(図4)。極低温において中性子散乱の波動ベクトルとエネルギー依存性を詳細に調べた結果、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ のスピンは、予想通りスピンアイスで期待されるアイスルールに従って配列していることが分かりました(図4A)。さらに大変興味深いことに、0.1 Kにおける95%以上のスペクトル強度が0.1 meV程度を中心として1 meVまでのエネルギー範囲に広がっていることを見つめました。このことは完全に凍結し弾性散乱しか見せない従来型スピンアイスとは明らかに異なります。すなわち、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ 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示しております。さらに、非弾性散乱の波動ベクトル依存性から、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。

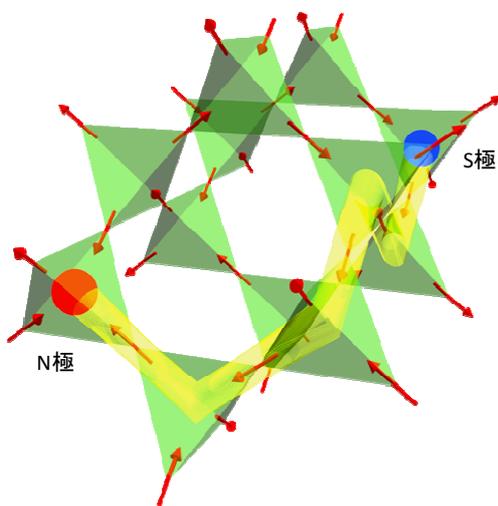


図3. スピンアイスにおける磁気モノポール。熱ゆらぎ、あるいは量子ゆらぎの効果によるスピンフリップによって生成されたモノポールペアが独立に運動し、磁気モノポールとして振る舞う。

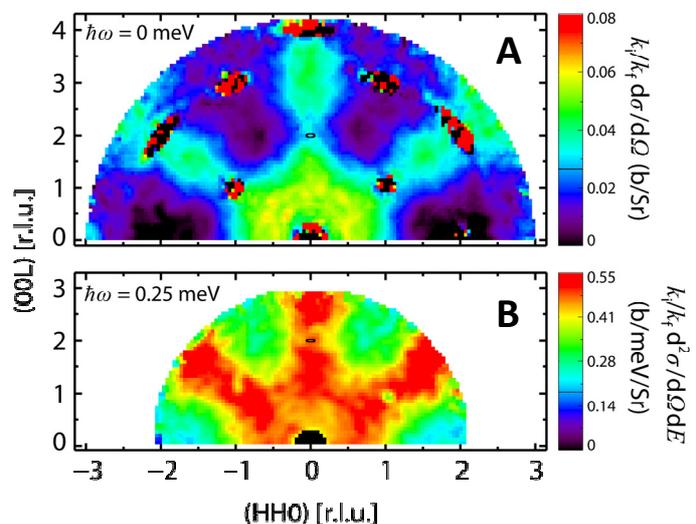


図4. 絶対零度近傍 (0.1 K) における(A)弾性中性子散乱および(B)非弾性中性子散乱の波数空間強度マップ。弾性散乱マップの(002)や(111)で見られる特徴的なパターンはピンチポイントと呼ばれており、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ においてアイスルールが存在する証拠を与える。一方、非弾性散乱マップではピンチポイントが消失しており、励起状態においてアイスルールが破れ、磁気モノポールが出現していることを示している。こうした非弾性散乱成分は従来型スピンアイスでは存在せず、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ が量子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。