結合スピン鎖物質の量子性を圧力によって能動的に制御する

~カイラル磁性体 CsCuCl₃の磁化過程における量子-古典クロスオーバー~

日本大学文理学部 山本 大輔

研究背景・概要

量子数の極めて大きい極限において、量子物理学の結果 は古典物理学の結果に帰着すべしという「対応原理」は、 量子論と古典論との整合性のために量子力学の黎明以来広 く尊重されてきた[1]。実際、量子重ね合わせや量子相関 のような量子現象は、そのような"古典極限"が近づくに つれて失われていくことになる。量子と古典の間のクロス オーバーは、近年の量子情報や量子テクノロジー分野のい わゆる第2次量子革命の時代にあっても、多自由度("環 境")との相互作用による量子デコヒーレンスの問題とし てなお重要性を高めている。特に量子-古典クロスオー バーを外的にコントロールすることはただ面白いというだ けでなく、基礎理論的にも実験応用的にも重要な課題であ る。これまでにフォトニック系やオプトメカニクスにおい て一定の成功が得られているが[2.3]、本研究はより柔軟 性に劣る固体物質における量子-古典クロスオーバーの能 動的コントロールについて議論したものである[4]。

固体物質、とりわけ磁性体において重要となる量子数は 磁性イオンの持つスピン量子数*S*である。通常、*S*の値が 大きいときには古典スピンベクトル近似による解析が妥当 な結果を与え、Sが小さくなるほど量子力学的にスピンを 取り扱う必要が出てくる。特にスピン間の相互作用が強く 複数競合している場合、古典的な解析では多数の状態が (準)縮退してしまい、相対的にスピンの量子性の効果が重 要になる。そのようなフラストレート磁性体と呼ばれる物 質群の典型的な例の一つ、容易面異方性のある三角格子反 強磁性体の面直磁場下基底状態相図を図1に示す。ゼロ磁 場では三副格子上の磁気モーメントが互いに 120°の相対 角を取る"120°Néel 秩序"が容易面内に現れることが知ら れており、そこに面直磁場を印可すると 120°構造がその まま磁場方向に立ち上がった"umbrella"状態になること が古典スピンベクトル解析によって示される。しかし、こ れまでの多くの理論的・実験的研究によって、Sの値が小 さい場合には古典解析結果とは異なる Y, UUD, V, Ψ と いった多彩な磁気状態が現れることが分かっている。特に 三副格子上の磁気モーメントが磁場に並行にアップ、アッ プ、ダウンの配置を取る UUD 相は、磁化曲線の飽和磁化



図 1:容易面異方性のある 2 次元三角格子反強磁性体の理論相 図。縦軸は容易面に垂直な磁場の強さを飽和磁場で規格化したも の。奥の面は等方的な Heisenberg 模型の場合に対応しており、 実線とドットの相境界はそれぞれ 1/S 展開法[5]および結合クラ スター法[6]による計算結果を示している。量子極限面(右面)お よび飽和磁場直下(上面)はクラスター平均場+スケーリング理論 による最近の結果[7,8]のスケッチである。

の 1/3 の場所に特徴的なプラトー構造を形成するため、実験において量子性の強さの観測指標となる。

実際の物質においては、磁性イオンの持つスピン量子数 Sの値は化学組成によって整数もしくは半奇数の中のいず れかの値に決まっているため、図1の横軸(1/Sの軸)方向 の変化を外的に行うことは通常不可能である。一方でスピ ン間相互作用や磁気異方性の大きさに関しては数 GPa 程 度以上の圧力を試料に印加することで、物質の磁気相を変 える範囲で変化させる実験が近年盛んに行われている [9,10]。2017年に報告された広島大学らの実験では、カイ ラル磁性体 CsCuCl₃ に対する圧力下磁気測定が行われた [11]。CsCuCl₃は強く1次元的に強磁性結合したスピン鎖 が三角格子を組んで弱く反強磁性結合した構造を持ってい る(図 2a)。スピン量子数 S は 1/2 であるが、鎖内の強い強 磁性相関によって量子揺らぎが抑えられ、常圧での低温磁 化曲線には umbrella 相から V 相への 1 次転移のみ観測さ れる[13]。しかし広島大学らの実験では、0.7GPa 程度以 上の静水圧の印加によって強い量子効果の証拠となる磁化 プラトーが現れることが示された[11]。我々はこの結果を



図 2: (a)CsCuCl₃の磁性イオン配置の模式図。実際は c 軸方向にらせん構造を持つが、理論模型としては適切なユニタリー変換の下で DM 相互作用を打ち消すことができる[12]。(b)面直磁化率の温度依存性。(c)低温磁化曲線(磁化の値 M を飽和磁化 M_sで規格化したもの)。圧力の値は上から 0, 0.14, 0.34, 0.49, 0.82, 1.05, 1.21GPa。

受けて、図1のような2次元磁性体相図における1/S軸方 向の変化(量子-古典クロスオーバー)に対応した研究が、 結合スピン鎖物質への圧力印加実験によって可能になるの ではないかと考え、以下に述べる圧力下磁気測定および理 論考察を行った。

圧力下磁気測定と磁気パラメータの圧力変化

ピストンシリンダー型圧力セルを用いて CsCuCl₃ 単結 晶試料に常圧から 1.21GPa までの圧力を印加した際の面 直磁化率の温度依存性および面直磁場下での低温磁化曲線 を図 2b, 2c にそれぞれ示す(詳細は文献[4]参照)。これら の結果および先行実験[11]で観測された磁気相転移点を再 現するように理論模型パラメータのフィッティングを行っ た。理論模型には鎖内の強磁性相互作用の強さ J_0 、その 容易面型異方性 Δ_0 、鎖間の反強磁性相互作用の強さ J_1 の3 つのパラメータを仮定した。ハミルトニアンはS = 1/2 ス ピン演算子を用いて

$$\hat{\mathcal{H}} = -2J_0 \sum_{i,n} \left(\hat{S}_{i,n} \cdot \hat{S}_{i,n+1} - \Delta_0 \hat{S}_{i,n}^z \hat{S}_{i,n+1}^z \right) + 2J_1 \sum_{\langle i,j \rangle, n} \hat{S}_{i,n} \cdot \hat{S}_{j,n} - H \sum_{i,n} \hat{S}_{i,n}^z,$$
(1)

と書ける(*i,j* はスピン鎖の番号で、*n* は c 軸方向に積層した各三角格子面を指定する番号)。磁化率の計算には10次の高温展開を行い、低温磁化曲線の計算には1/*S* 展開法 [5,12]を用いた。*g* 因子の値は、室温 ESR 実験の結果[14] から圧力の値に依らず *g*=2.11 とした。

図3にパラメータフィッティングの結果を示す。圧力の 増加に伴い、鎖内の強磁性相互作用 J₀が急激に小さくな り、一方鎖間の反強磁性相互作用 J₁は増加する。異方性 Δ₀の値は緩やかに増加する。つまり、常圧ではスピン鎖 が弱く結合する擬1次元系と見なせていたが、1GPa 程度 の圧力下ではかなり3次元性が強くなることが分かった。



図3:理論模型とのフィッティングで得られた各パラメータの圧力依存性。



図 4: 図 3 で得られたパラメータを用いて計算した理論磁化曲 線と実験結果(本研究、Sera *et al.* [11]、Miyake *et al.* [15]) と の比較。Sera *et al.* のデータの圧力値は本研究で用いた較正式 で再評価したもの(文献[4]参照)。

各圧力値でフィッティングしたパラメータを圧力の関数と して線形もしくは2次関数で表したものが図3中の式であ る。これをハミルトニアン(1)に代入して1/S展開法[5,12] で計算した理論磁化曲線は、これまでに計測された実験値 とよく一致していることが図4からわかる。

2次元有効模型を用いた考察

結合スピン鎖において鎖内相互作用が強く強磁性的な 場合、鎖内のスピンたちが 1 つの大きなスピンを形成し、 それが弱く相互作用していると現象論的に捉えることが できるかもしれない。そこで有効スピン*Ŝ*の2次元模型に

$$\tilde{\hat{\mathcal{H}}} = 2J \sum_{\langle i,j \rangle} \hat{\boldsymbol{\mathcal{S}}}_i \cdot \hat{\boldsymbol{\mathcal{S}}}_j + A \sum_i \left(\hat{\mathcal{S}}_i^z\right)^2 - H \sum_i \hat{\mathcal{S}}_i^z \quad (2)$$

"押しつぶし"マッピング(図 5a)することで、上述して きた結合スピン鎖三角格子磁性体 CsCuCl₃の磁化過程の 圧力変化を図1の2次元三角格子反強磁性体の相図を用い て解釈したい。有効反強磁性相互作用*J*と有効単一イオン 異方性Aは、飽和磁化の表式が元の模型のときと一致する ように以下のように対応付ける。

$$J = \frac{S}{\tilde{S}}J_1, A = \frac{4S}{2\tilde{S}-1}J_0\Delta_0$$

有効スピン量子数 *Š*の値は元の模型(1)の持つ量子性の 強さを反映するように決めるべきである。三角格子反強磁 性体における量子効果の最も顕著な役割は、umbrella 相 に対して Y/UUD/V 相を安定化することである。そこで、 umbrella 相と Y/UUD/V 相の(スピンあたりの)零点振動 エネルギーの差を 2 つのハミルトニアン(1)と(2)に対して それぞれ線形スピン波近似の範囲で計算し、その磁場依存 性に関して(2)の計算結果が(1)のものをよく再現するよう に*Š*の値を決める(詳細は文献[4]参照)。そのように決め た*Š*の値と元の*S*の値の比は、図 5b に示すように鎖内/鎖 間相互作用の比 *J*₀/*J*₁に対する増加関数になる。この結果 を用いると、例えば *J*₀/*J*₁ = 5 程度の結合スピン鎖物質は、



図 5: (a)結合スピン鎖から 2 次元模型への押しつぶしマッピン グ。(b) J₀/J₁と*Š/S*の値の関係。

元のスピンSを2倍程度にした有効スピン \tilde{S} の値を持つ2 次元三角反強磁性体と同等の量子性を持つと換算できる。

実際にこの J₀/J₁と Š/S の値の関係を用いて元の結合ス ピン鎖模型(1)と有効 2 次元模型(2)の基底状態相図を CsCuCl₃のパラメータに対して作成し比較したものが図 6 である。それぞれで計算された相境界が良い一致をしてい ることが分かる。したがって CsCuCl₃ における磁化プラ トー(UUD 相)の出現は、スピン量子数 Š が圧力によって 準古典的な値から量子的な値に向かって減少したことに起 因すると有効 2 次元模型の言葉では解釈できる。見方を変 えると、図 1 で示した 3 軸相図の 1/S 軸方向の変化(古典 -量子クロスオーバー)を、結合スピン鎖物質 CsCuCl₃ に 対する圧力印加実験によって"量子シミュレーション"で きたと言い換えることもできる(図 6 右の挿絵)。

注意すべきこととして、有効模型(2)へのマッピングは もちろん現象論的なものであり、図 5b で示した J_0/J_1 の 変化に伴う \tilde{S}/S の"連続的"変化はあくまでも $1/\tilde{S}$ 展開法 の見方の中でだけ成り立つ。とはいえ \tilde{S} の値は結合スピ ン鎖物質の量子性に対する良い指標となると期待される。



図 6:結合スピン鎖模型(1)および有効 2 次元模型(2)で計算された相境界(それぞれ実線および破線)。

まとめと展望

本研究では、CsCuCl₃に対する圧力下磁気測定および 理論解析を行い、結合スピン鎖物質への圧力印加によって 量子-古典クロスオーバーの能動的コントロールが可能で あることを示した。1/S 展開法や Schwinger ボソン平均 場理論といったスピン系の標準的な理論解析では、しばし ばスピン量子数Sを連続量として扱う。これまでに様々 な2次元スピン模型に対してSの関数としての理論相図 が与えられているが、本研究で導入した"押しつぶし" マッピングの見方を通して、それらの相図を結合スピン鎖 に対する圧力印加実験によって"直接的に"実現するという新たな研究方法の道が開かれた。

本研究では CsCuCl₃ の場合を取り扱ったが、六方晶 ABX₃型の化合物には多様性があり、他にも三角格子以外 の格子幾何を持つ結合スピン鎖物質も多数存在する。本研 究成果を刺激とし、今後様々な結合スピン鎖物質への圧力 印可実験によって、2 次元量子フラストレートスピン模型 における量子スピン液体相やその励起スペクトルなどの難 題の解決に資するような成果が生まれることを期待する。

なお本研究内容は、"Continuous control of classicalquantum crossover by external high pressure in the coupled chain compound CsCuCl₃", Nature Communications, DOI: 10.1038/s41467-021-24542-6、に掲載済みである。

謝辞

本研究は神戸大学研究基盤センターの櫻井敬博助教、 神戸大学大学院理学研究科物理学専攻博士前期課程(当時) の奥藤涼介さん、神戸大学分子フォトサイエンス研究セン ターの大久保晋准教授と太田仁教授、東京工業大学理学院 物理学系の田中秀数教授および物性研究所附属物質設計評 価施設の上床美也教授との共同研究です。また、神戸大学 分子フォトサイエンス研究センターの共同利用研究、科研 費 18K03525、19K03746、19K21852、17H01142、 19H00648 および青山学院大学アーリーイーグル研究支援 制度の支援を受けて行われました。

参考文献

- [1] N. Bohr, Z. Physik 2, 423-469 (1920).
- [2] Y.-S. Ra *et al.*, Proc. Natl Acad. Sci. USA **110**, 1227– 1231 (2013).
- [3] C.-H. Bai et al., Sci. Rep. 7, 2545 (2017).
- [4] D. Yamamoto et al., Nat. Commun. 12, 4263 (2021).
- [5] T. Coletta et al., Phys. Rev. B 94, 075136 (2016).
- [6] O. Götze et al., J. Magn. Magn. Mater. 397, 333 (2016).
- [7] D. Yamamoto *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 127203 (2014).
- [8] D. Yamamoto et al., Phys. Rev. B 96, 014431 (2017).
- [9] T. Sakurai et al., J. Phys. Soc. Jpn. 87, 033701 (2018).
- [10] S. A. Zvyagin et al., Nat. Commun. 10, 1064 (2019).
- [11] A. Sera et al., Phys. Rev. B 96, 014419 (2017).
- [12] T. Nikuni and H. Shiba, J. Phys. Soc. Jpn. 62, 3268 (1993).

- [13] H. Nojiri et al., J. Phys. 49, 1459 (1988).
- [14] T. Sakurai et al., J. of Magn. Reson. 280, 3-9 (2017).
- [15] A. Miyake et al., Phys. Rev. B 92, 100406(R) (2015).

9 物性研だより第61巻第3号