

量子磁性

中性子科学研究施設 菊地 帆高、益田 隆嗣

1. 研究の背景

物質のミクロなダイナミクスは、フォノンやマグノンなど1準粒子描像で近似的に説明されることが多い。しかし現実には、運動量及びエネルギー保存則を満たす条件下では、1つの準粒子は2つの準粒子に崩壊し、不安定化し得ることが知られており、準粒子構造研究の重要なテーマの一つとなっている。さらにこの現象は、バルク物性にも影響を及ぼすことが知られている。たとえばイットリウム鉄ガーネットは、マイクロ波によりマグノンスピン流が誘起される物質として知られている。強磁性共鳴条件を満たすように磁場とマイクロ波周波数を変えながらマグノンスピン流を測定すると、あるマイクロ波周波数以下(あるいは対応する磁場以下)で、スピン流の増大が観測された[1]。この現象は、その磁場領域のマグノン分散関係において、波数0、周波数 f のマグノンが、波数 $+q$ 周波数 $f/2$ と波数 $-q$ 周波数 $f/2$ の2つのマグノンに崩壊し、結果的に周波数 $f/2$ のマグノンが多くのスピン流を運ぶためと理解された。また熱電材料 PbTe では、縦波音響フォノンが低エネルギー領域で不安定化することが中性子スペクトルで観測された[2]。熱を運ぶフォノンが不安定化した結果、熱伝導率が低くなり、高い熱電性能が実現されると理解された。このように、準粒子の安定性の研究は、準粒子構造解明という基礎科学的な知的好奇心を満たすのみならず、次世代デバイス開発にとっても重要である。

準粒子構造の研究には、幅広い波数-エネルギー空間でのスペクトル測定が必要であることから、中性子非弾性散乱が重要な役割を果たしてきた。先行研究を俯瞰すると、準粒子の不安定化現象は、2つのケースに分類される。1つ目は、たとえばトリプロンを準粒子とする量子磁性体、**piperazinium hexachlorodidcuprate** (以下 PHCC と略す) で報告されている [3]。当該物質の中性子スペクトルの低エネルギー領域では、トリプロンで説明される明瞭な励起が観測されたものの、高エネルギー領域では不明瞭となり、トリプロンは不安定化する。これは、高エネルギー領域に2トリプロン連続励起が存在し、そこでは1つのトリプロンが2つのトリプロンに崩壊するためと説明された。2つ目のケースは、液体ヘリウムのフォノンスペクトルにおい

て報告されている[4,5]。フォノンのエネルギーは波数とともに増大するが、ある波数で2フォノン連続励起領域の下端エネルギーに到達すると、スペクトルが途切れたかのように不安定化する。これは、1つ目のケースと同様、連続励起領域内でフォノンが崩壊するためと理解されている。PHCCの場合と異なるのは、線形近似で計算された液体ヘリウムのフォノンエネルギーと比べて、実測されたエネルギーが低くなっている点である。あたかもフォノンスペクトルが2フォノン連続励起領域よりも下に押し下げられることで崩壊をまぬがれ、計算より幅広い波数領域で安定的に存在しているようにみえた[3]。

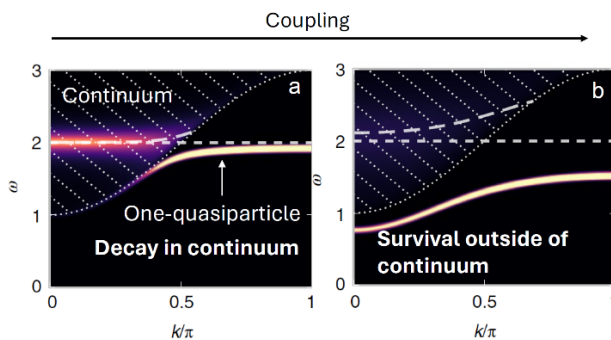


図1: 準粒子と連続励起の関係 ([6]より引用)。a, 1 準粒子励起と 2 準粒子連続励起の相互作用が弱い場合。1 準粒子励起は連続励起に侵入し、不安定化する。b, 相互作用が強い場合。1 準粒子励起は連続励起との斥力相互作用により、連続励起の外側に押し出され、不安定化をまぬがれる。

最近、準粒子スペクトルと 2 準粒子連続励起との間に斥力相互作用を導入することで、準粒子の不安定性を議論する現象論が提案された[6]。相互作用が弱いときは(図 1a)、準粒子スペクトルは連続励起領域に入り込むことが可能であり、そこで不安定化する。これが PHCC のケースである。相互作用が強いとき(図 1b)は、準粒子スペクトルは連続励起から反発力を受けて連続励起領域の外に押し出される。その結果、準粒子は連続励起領域外で崩壊をまぬがれ、安定に存在する。これが液体ヘリウムのケースである。これまで個々の物質における準粒子の安定性については多く研究されてきた。しかし、単一の物質において、準粒子

と連続励起との間の相互作用を変化させて、準粒子の安定性を制御する試みはされていない。そこで我々は、磁場により相互作用を変化させ、マグノンの安定性を磁場で制御することを試みたところ、それに成功した[7]。

2. 研究の内容と成果

中性子非弾性散乱実験は、大強度陽子加速器施設 J-PARC 物質・生命科学実験施設 MLF の HRC 分光器、日本原子力研究開発機構研究用原子炉 JRR-3 の HER 分光器、および米国オークリッジ国立研究所の HYSPEC 分光器を用いて行われた。

図 2a-2f に、様々な磁場下で測定された量子磁性体 RbFeCl_3 の中性子非弾性散乱スペクトルを示す。測定温度は 0.1 K である。横軸は波数、縦軸はエネルギーである。高輝度の輝線が観測されたマグノンである。 $H = 0$ T では、全波数-エネルギー領域でスペクトルが観測されたが、 $h = 0.5$ の波数(図 2g 点)ではややブロード(赤矢印)になっている。0 T で 1 本であったモードが 1 T でゼーマン分裂し、2 T まではモードが観測されている。しかし 3 T では、本来モードが存在するであろう 2 meV 近傍でモードは非常にブロードとなり、マグノンが不安定化していることがわかる。さらに 4 T ではブロードな強度の下に白矢印で示したシャープなモードが出現する。5 T ではより明瞭になりマグノンが安定することが分かる。このように磁場印加によってマグノンの安定性を制御することに成功した。5 T の 2 meV 近傍のモードの形状は、低磁場から推察するともう少し曲率の小さい曲線になると考えられるが、実際には曲率が大きくほぼフラットな曲線となっている。またモードは下に押し下げられているように見える。

図 1g-1l に RbFeCl_3 の磁場下 2 マグノン連続励起の状態密度の計算結果を示す。ここでは 1 マグノンと 2 マグノン連続励起の相互作用は無視している。青色から黄色に着色されている領域では状態密度は有限となっており、そこではマグノン崩壊が保存則により許容されている。つまり、ほぼすべての領域で、マグノンは崩壊し得る。

黄色領域は 2 マグノン連続励起の状態密度が大きな領域を示している。図 1g の 0 T の Γ 点近傍では、白実線で示したマグノンのモードと黄色領域が近い。このために図 1aの実験スペクトルでは、赤矢印で示されたようにマグノンがややブロードになっている。図 1g-1l において、白実線のマグノンと 2 マグノン連続励起の状態密度の極大エネルギーとの関係を見ると、磁場を印加していくと少しずつ近づいている。このため、図 1a-1d において、磁場増大に

よりマグノンが不安定化したと考えられる。

Γ 点の高エネルギー領域のマグノンと 2 マグノン連続励起の相互作用を計算し、磁場に対してプロットすると、図 3 の黒シンボルで示されるように単調増加していることが明らかになった。さらに、マグノンのエネルギーの計算値と実測値の差を、磁場に対して赤シンボルでプロットした。すると、2 T までは計算値と実測値は一致するものの、3 T 以上では実測値が計算値よりも小さくなっていることが明らかになった。このことから、2 T 以下の低磁場では、本稿 1 節で述べた相互作用が弱いケースが実現しており、 Γ 点近傍の高エネルギーマグノンは、線形スピン波理論で計算されたエネルギーで不安定化している。一方 3 T 以上では相互作用が臨界値を超え、強い相互作用のケースが実現し、マグノンのエネルギーが下に押し下げられマグノンが安定化する。このように、磁場によりマグノンと連続励起の間の相互作用が変化し、マグノンの安定性が制御されたことが分かる。

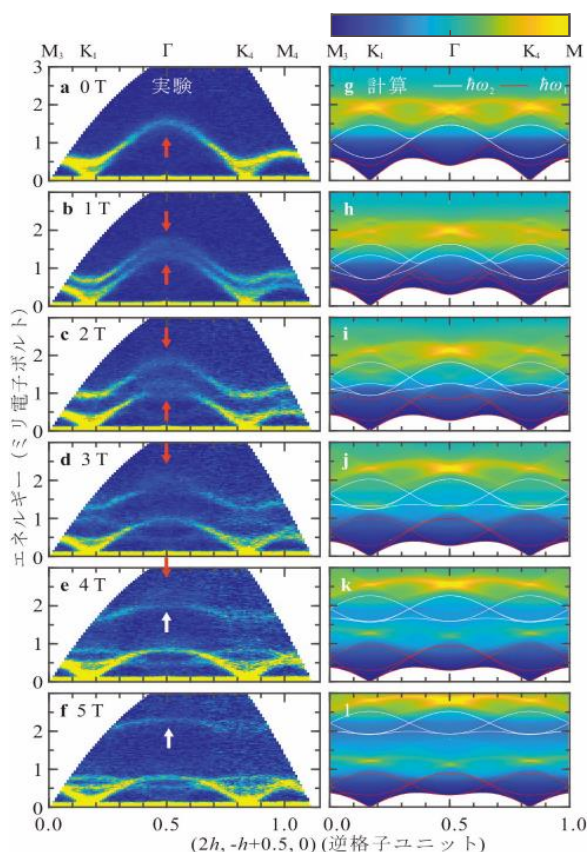
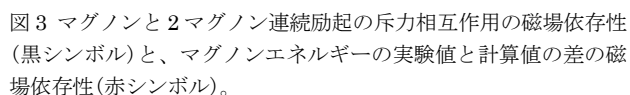


図 2 a-f, 磁場下 RbFeCl_3 の中性子非弾性散乱スペクトル[7]。磁場は c 軸に平行に印加した。測定温度は 0.1 K。g-l, 計算された 2 マグノン状態密度。白実線と赤実線は線形スピン波理論で計算された 1 マグノンのモード。



本研究では、量子磁性体 RbFeCl_3 において、 Γ 点近傍の $1.5 \sim 2.0 \text{ meV}$ に存在するマグノンの安定性を、磁場で制御することに成功した。このエネルギーは 20 K 程度であるので、もしもこの温度域においてもマグノン制御が可能であれば、当該マグノンが運ぶマグノンスピン流を磁場によりオンオフ制御可能、ということになる。すなわち、マグノンが不安定な 2 T では、スピン流のキャリアであるマグノンが存在せず、スイッチはオフと見なされる。一方マグノンが明瞭に観測された 5 T では、スイッチはオンと見なされる。将来的に、室温程度のエネルギーのマグノンの安定性を磁場制御可能な磁性体が見いだされれば、スピン流を制御するスイッチデバイスが現実のものとなり得る。今後、より多くの量子磁性体における準粒子構造の外場制御の研究が期待される。

本研究は、日本学術振興会・科学研究費[課題番号:19KK0069, 20K20896, 21H04441]の助成を受けて行われた。

- [1] H. Kurebayashi *et al.*, Nat. Mater. **10**, 660 (2011).
- [2] O. Delaire *et al.*, Nat. Mater. **10**, 614 (2011).
- [3] M. B. Stone *et al.*, Nature **440**, 187 (2006).
- [4] A. D. B. Woods and R. Cowley, Rep. Prog. Phys. **36**, 1135 (1973).
- [5] H. Glyde, Rep. Prog. Phys. **81**, 014501 (2017).
- [6] R. Verresen, *et al.*, Nat. Phys, **15**, 750 (2019).
- [7] S. Hasegawa *et al.*, Nat. Commun. **15**, 125 (2024).