

平成 31 年 4 月 24 日

報道機関 各位

国立大学法人東北大学金属材料研究所
国立大学法人 神戸大学
公立大学法人大阪 大阪府立大学
国立大学法人 東京工業大学

フラストレート磁性体の
量子相転移の圧力・磁場制御を実現
三角格子反強磁性体の新しい量子相の発見

【発表のポイント】

- 三角格子反強磁性体でスピンの最小の $S = 1/2$ の系においては、量子揺らぎ*1と幾何学的フラストレーション*2により、多数の安定状態をもつことが、理論的に予想されてきた。
- この予想を検証するために、高圧力をモデル物質に加えて歪ませることで、安定状態を決定する磁気相互作用を精密に制御し、さらに強い磁場を加えることで量子ゆらぎを変調させたところ、複数の量子相転移*3を発見した。
- 2 ギガパスカルの高圧と 25 テスラの強磁場、電子スピン共鳴*4を組み合わせることにより、新量子相を研究する手法が確立し、様々な系への応用が期待される。

【問い合わせ先】

<研究内容に関して>

東北大学金属材料研究所
附属強磁場超伝導材料研究センター

担当：木村 尚次郎
電話：022-215-2154

E-mail: shkimura@imr.tohoku.ac.jp

<報道に関して>

東北大学金属材料研究所
情報企画室広報班

担当：富松 美沙
電話：022-215-2144

Email: pro-adm@imr.tohoku.ac.jp

【概要】

東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターでは、ドイツ Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf の S. A. Zvyagin 研究員、米国 National High Magnetic Field Laboratory の D. Graf 研究員、神戸大学研究基盤センターの櫻井敬博助教、大阪府立大学理学系研究科の小野俊雄准教授、東京工業大学理学院の田中秀数教授らとの国際共同研究において、圧力によってスピン $S = 1/2$ 三角格子反強磁性体 Cs_2CuCl_4 の結晶を歪ませることで、交換相互作用を精密にコントロールし、25 テスラまでの強磁場下で電子スピン共鳴 (ESR) という手法で調べることで、逐次的に現れる複数の新たな磁気相を発見しました。

三角格子反強磁性体では、全ての磁気相互作用を満足させる安定状態が存在しない幾何学的なフラストレーションと呼ばれる状態を持ち、多数の状態がせめぎ合っていることが知られており、小さな刺激で状態が劇的に変わることが予想されていました。特に、磁気の単位であるスピンが最小の $1/2$ を取る場合は、量子揺らぎが大きく、この効果が増幅されます。しかし、これまで、その予想に対する系統的な実験による検証は殆ど行われていませんでした。本研究では高圧力と強磁場の2つの物質を制御するパラメータを組み合わせることで、三角格子反強磁性体に複数の逐次的な量子相転移を発現させることに成功しました。本研究成果は、2019年3月6日付けで英オンライン科学誌「Nature Communications」にオンライン掲載されました。

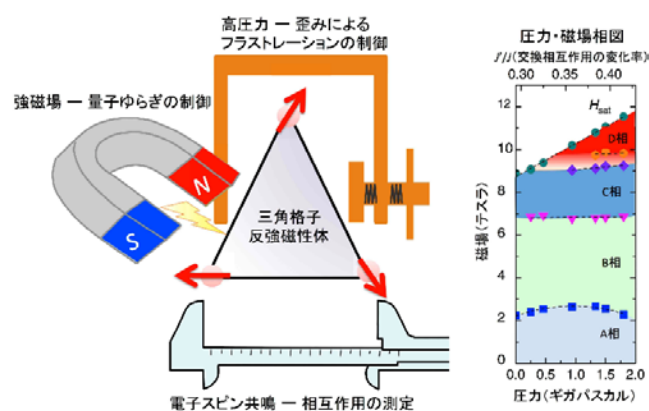


図 1. 三角格子に歪みを生じさせてフラストレーションを制御する高圧力と量子揺らぎを制御する強磁場を組み合わせることで新たな量子相転移を発見し、電子スピン共鳴によって歪みによる交換相互作用の変化を精密に決定した。右は実験から得られた温度・圧力相図と交換相互作用の変化率。

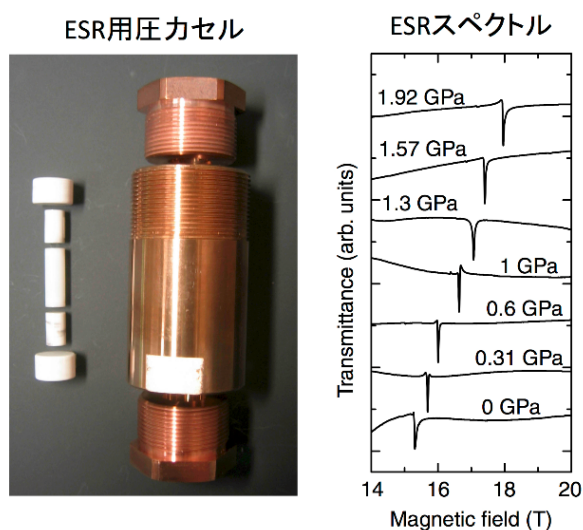


図 2. (左) 電子スピン共鳴 (ESR) 用圧力セル。試料に圧力を加えるためのピストンが電磁波を透過するジルコニアで作製されている。(右) 330 GHz の電磁波を用いて観測された高圧下での ESR スペクトル。

【詳細な説明】

◆背景

三角格子上に配置した電子スピンの互いに反強磁性的な交換相互作用を及ぼしあう三角格子反強磁性体は、幾何学的フラストレーションが働く典型的な系です。なかでもスピン量子数 $S = 1/2$ の場合、量子揺らぎの効果とフラストレーションが相俟って、多彩な量子相が現れることが期待されてきました。具体的には、正三角形の形から歪みを加えてずらすことにより、スピン間の交換相互作用の比を変えると、量子相転移が引き起こされると予想されています。さらに磁場を加えると量子ゆらぎの大きさも制御出来るため、出現する相はさらに多様になります。この予想を検証するためには、交換相互作用の制御とスピンの偏極の制御の 2 つを同時に行う必要がありますが、実験が難しいため研究が進んでいませんでした。

◆成果

今回、スピンの最小の値である $1/2$ を有し、正三角形から歪んだ構造をもつ三角格子反強磁性体 Cs_2CuCl_4 に高圧を加え、同時に強磁場を加えることにより、ほぼ連続的な交換相互作用の比の変化と磁気偏極の大幅な制御に成功しました。さらに、この状態での磁気的な性質を決定するために、電子スピン共鳴測定という方法を利用して、逐次的な量子相転移を発見しました。この研究では、歪みにより交換相互作用がどの程度変わったかを決定する事が必要ですが、高圧と強磁場の複合極限下でこれが可能なのは、電子スピン共鳴だけになります。さらに、相境界の決定には共鳴トンネルダイオード測定も用いられました。

◆展望および意義

日本、ドイツ、米国における高圧、強磁場、試料合成の専門家が協力して初めて得られた成果です。25 テスラの強磁場を液体ヘリウムなしに発生可能な無冷媒型超伝導磁石と高圧セルを用いた電子スピン共鳴実験が、この研究を成功させる上で重要な役割を担いました。高圧の印加によって相互作用を精密に制御し、これに強磁場を加えることで新たな磁気相を発見した今回の成果は、極限環境下でのフラストレート磁性体における量子相転移の研究に新しい可能性をもたらしました。

発表論文

雑誌名: *Nature Communications*

英文タイトル: Pressure-tuning the quantum spin Hamiltonian of the triangular lattice antiferromagnet Cs_2CuCl_4

全著者: S.A. Zvyagin, D. Graf, T. Sakurai, S. Kimura, H. Nojiri, J. Wosnitza, H. Ohta, T. Ono, and H. Tanaka

DOI: 10.1038/s41467-019-09071-7

◆専門用語解説(注釈や補足説明など)

※1 量子揺らぎ

量子力学的な不確定性関係に由来して、スピンの古典的なベクトルと考えた場合の安定構造から揺らぐ効果。フラストレーションを持つ系では量子揺らぎが特に大きくなることが知られています。

※2 幾何学的フラストレーション

三角形の各頂点に位置したスピン間に反強磁性的相互作用が働く場合、全ての最近接スピン対を反平行に配置することができないため、安定な状態に落ち着くことができません。これを幾何学的フラストレーションと呼びます。

※3 量子相転移

固・液体間の相転移のような通常の温度変化によるものとは異なり、絶対零度で磁場、圧力、化学組成の変化などによって起こる相転移で量子揺らぎによって支配されます。

※4 電子スピン共鳴(ESR)

周波数一定の電磁波を物質に照射しながら静磁場を掃印すると、物質の磁気的なエネルギー準位の差と電磁波のエネルギーが等しくなる磁場で電磁波の共鳴吸収が生じる現象。この測定によって交換相互作用の精密な見積もりが可能になります。今回、ESR 測定用に特別に開発された電磁波が透過できるジルコニアをピストンに用いた圧力セルを用い、これと 25 テスラ無冷媒型超伝導磁石を組み合わせることで、 Cs_2CuCl_4 の高圧強磁場下での交換相互作用の決定に成功しました。

○共同研究機関および助成

本研究は、東北大学金属材料研究所の共同利用・共同研究拠点および ICC-IMR Visitor Program と科学研究費助成事業の支援を得て実施されました。