



量子スピン液体の臨界現象の発見

～極低温まで凍らないスピン液体状態の普遍的性質の解明～

配布日時：平成28年11月11日14時

国立研究開発法人物質・材料研究機構

国立大学法人東京大学

概要

1. 国立研究開発法人物質・材料研究機構（以下 NIMS）の磯野貴之（NIMS ポスドク研究員）と宇治進也（機能性材料研究拠点、副拠点長）らの研究グループは、東京大学大学院工学系研究科の鹿野田一司 教授らの研究グループと共同で、三角格子を有する有機物質が極低温で示す量子スピン液体状態において、磁化率の量子臨界現象[1]を世界で初めて観測しました。

2. 水を冷やすと氷になるように、一般的に物質の温度を下げると、原子や分子は整列して安定な状態（秩序のある状態）へと転移します。量子スピン液体は、その例外であり、電子のスピンが極低温でも整列せずにふらふらしている状態（液体のような状態）です。いくつかの物質で量子スピン液体状態が実験的に発見されてきましたが、極低温まで液体のままえられるその起源は分かっていません。量子スピン液体の本質を明らかにするためには、物質の詳細（構成元素など）によらない普遍的な性質を調べる必要があります。

3. 本研究において、上記共同研究グループは、量子スピン液体になる有機物質 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ の高品質単結晶を育成し、0.03 ケルビンという極低温まで、17 テスラという高磁場まで、磁化率を精密に測定しました。その結果、磁化率が低温に向けて発散する傾向を持ち、非常に広い温度・磁場範囲で単一の曲線に乗る（スケールされる）ことを発見しました。この結果は、 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ のスピン状態が、ゼロ磁場の量子臨界点[1]に向かって量子臨界現象を示していることを意味します。さらに、物質の対称性や空間次元性といった、物質の詳細によらない基本的な性質のみで決まる量（普遍量）である臨界指数[1]を決定することに成功しました。

4. 本研究で決定した臨界指数は、この不思議な液体状態の理論モデルを仕分ける強固な指標となります。実験で得られた臨界指数は、これまでの理論では説明できない値でした。今後、この指数を基に、量子スピン液体の発現機構を説明する理論モデルの構築・詳細な理解が進むと期待されます。また、量子スピン液体は、高温超伝導（例えば、銅酸化物高温超伝導体）の発現機構との強い関連が注目されており、スピン液体の理論の発展が、高温超伝導発現機構の理解にも繋がる可能性を秘めます。

5. 本研究成果は、英国のオンライン科学雑誌 Nature Communications に現地時間 2016 年 11 月 14 日午前 10 時（日本時間同日 19 時）に掲載されます。

研究の背景

水（液体）を冷やすと、水分子の動きが止まり、整列して氷（固体）になります。身近にある磁石（磁性体）では（図 1 左）、原子核の周りにある電子のスピンが、高温ではバラバラな方向を向いていますが（スピンの液体状態）、冷却するとある方向に揃って整列します（スピンの固体状態）。このように、すべての物質は十分に温度を下げると、液体から固体へと転移します。ところが、近年、極低温まで冷却してもスピンの揃わない“量子スピン液体”と呼ばれる不思議な状態が見つかっており、大変注目されています。本研究対象は、図 1 右のような有機物質 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ です。この有機物質では、有機分子 BEDT-TTF が作る三角格子点上に電子スピンの 1 つあります。お互いにスピンは反対方向に整列しようとしませんが、3 つのスピンを三角形の頂点に配置した時、2 つのスピンの向きを決めると、3 番目のスピンの向きが定まらなくなります（図 2 右）。このスピンの三角関係（スピンプラストラーション）が、量子スピン液体の実現に重要な役割を果たすと考えられていますが、極低温まで液体状態のままである原因は未だに理解されていません。この原因を突き止めるには、物質の詳細によらない量子スピン液体の普遍的な性質を知る必要があります。

研究内容と成果

本研究において共同研究グループは、量子スピン液体を示す有機物質 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ の高品質単結晶を育成し、0.03 ケルビン[2]という極低温領域、17 テスラ[3]という強磁場領域まで、試料の磁化率を精密に測定しました。磁化率の温度や磁場に対する変化を詳しく調べた結果、図 2 左に示すように磁化率が広い温度・磁場範囲で単一の曲線に乗る（スケールされる）ことを発見しました。

この結果から、図 2 右に示すような温度—磁場相図を決めることができました。温度と磁場が極めて小さい時に、磁気的な秩序を示すような状態が現れます。そこがこの物質の量子臨界点であり、その点に向けて、磁化率が広い温度・磁場範囲でスケールされます。本研究において発見した磁化率の臨界スケーリングは、 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ のスピン状態が、ゼロ磁場の量子臨界点[1]に向かって量子臨界現象を示していることを明確に意味しています。このような臨界現象は、量子スピン液体になる他の有機物質では観測されていませんでした。

さらに、スケーリングから、臨界現象を特徴付ける臨界指数を得ることができます。臨界指数は、物質の詳細（構成元素など）にはよらず、物質の持つ対称性や物質の置かれた空間の次元性といった基本的な性質のみで決まる普遍的な量です。本研究では、量子スピン液体を示す有機物質 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ において、磁化率の臨界指数（磁化率の温度依存性の冪数）を世界で初めて決定することに成功しました。

今後の展開

本研究で得られた量子スピン液体状態が示す臨界指数は、これまでの理論的予測と異なることから、今までに予測されてきたものとは違う現象であることが明らかとなりました。この臨界指数は、量子スピン液体の発現機構を明らかにするための理論モデルを構築する上で、重要な指標となります。また、量子スピン液体は、高温超伝導（例えば、銅酸化物高温超伝導体）の発現機構との関係が指摘されており、スピン液体の理論の発展は、高温超伝導発現機構の理解にも繋がる可能性を秘めています。

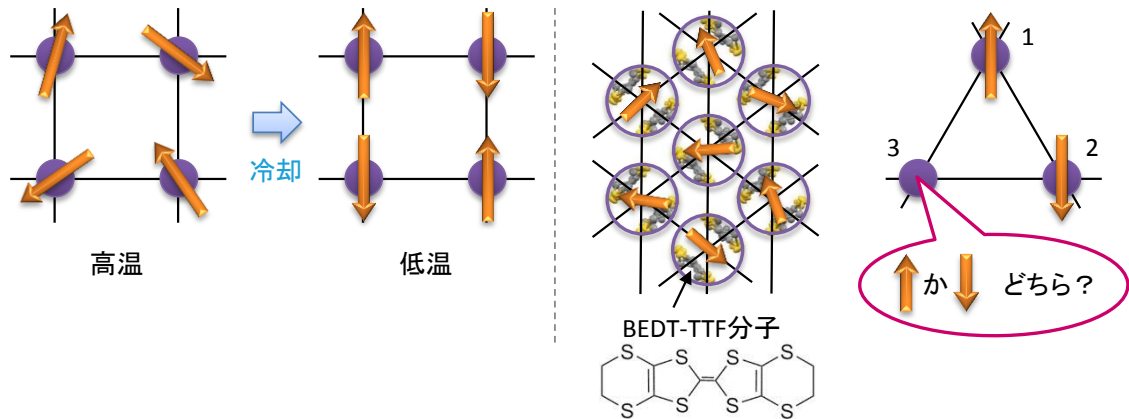


図1. (左) 磁性体内部での電子スピンの様子。丸(紫色)が原子核を、矢印(橙色)が電子のスピンを示しています。原子核周辺にいる電子のスピンは、高温では熱的に揺らいでおり、バラバラな方向を向いています(液体状態)。磁性体を冷却して熱揺らぎを小さくすると、スピンは向きを揃えて整理して秩序を作ります(固体状態)。この図では、隣り合うスピン同士を反対向きに揃えようとする相互作用(反強磁性的相互作用)を想定しています。

(右) 量子スピン液体になる有機物質 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ の結晶構造の模式図。有機分子 BEDT-TTF は炭素C、硫黄S、水素Hで構成される平面上の分子です。紫色の丸で囲んだ二つの BEDT-TTF 分子(二量体)上に1つのスピンがあり、二量体が三角形の幾何学的配置をとっています。単純に、スピンを三角形の頂点に配置したとき、1, 2番目のスピンの向きを決めると、3番目のスピンの向きが決まらなくなります。このスピンの三角関係(スピンフラストレーション)により、極低温でさえスピンの向きが揃わない不思議な液体状態が生じると考えられています。

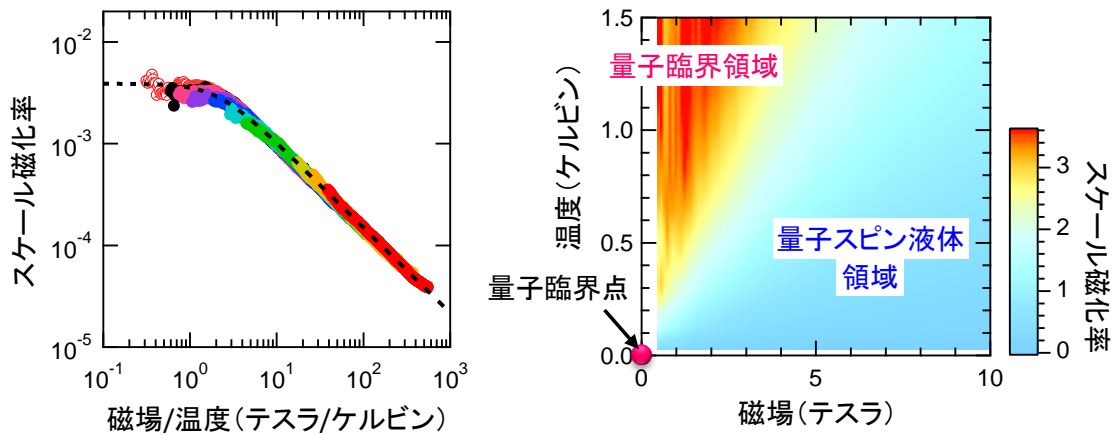


図2. (左) 磁化率のスケーリングプロット。縦軸はスケールされた磁化率を表し、曲線の色は測定した条件の違いを表します。広い温度・磁場範囲で磁化率が単一の曲線(点線)に乗ることが分かります。(右) 温度—磁場相図。図の赤い領域(量子臨海領域)で、磁化率が絶対零度、ゼロ磁場に向けて臨界挙動を示します。この磁化率の振る舞いを特徴付ける臨界指数は、今までの理論では説明できないものです。

掲載論文

題目：” Quantum criticality in an organic spin-liquid insulator κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃”

日本語訳題名：「スピン液体状態になる有機物質 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃における量子臨界性」

著者：T. Isono, T. Terashima, K. Miyagawa, K. Kanoda, and S. Uji

雑誌：Nature Communications

掲載日時：2016年11月14日10時（日本時間同日19時）

用語解説

[1] 量子臨界点、量子臨界現象、臨界指数

様々な物質は、低温で秩序をもつ状態に移りますが、その転移する温度が絶対零度となる時、その点を「量子臨界点」と呼びます。その臨界点に向かって、物性（磁性など）が発散的挙動をしめす時、その挙動を「量子臨界現象」と呼びます。この量子臨界現象（発散的挙動）を表す特徴的な指数は、物質の詳細によらない基本的な性質のみで決まる量（普遍量）で、それを「臨界指数」と言います。

[2] ケルビン

絶対温度の単位。水が氷になる温度（摂氏0度）が273.15ケルビンに相当します。窒素が液体になる温度がおおよそ77ケルビン（摂氏-196度）、ヘリウムが液体になる温度が4.2ケルビン（摂氏-269度）です。これに対し本研究は、0.03ケルビンという極めて低い温度範囲まで行っています。このような極低温環境は、希釈冷凍機と呼ばれる特殊な冷凍機を使うことで実現できます。

[3] テスラ

磁場の単位。本研究は、17テスラという強磁場まで行っています。このような強磁場環境は超伝導マグネットと呼ばれる磁石により実現できます

本件に関するお問い合わせ先

(研究内容に関すること)

国立研究開発法人物質・材料研究機構 機能性材料研究拠点
副拠点長 宇治 進也 (うじ しんや)

国立研究開発法人物質・材料研究機構 機能性材料研究拠点 量子輸送特性グループ
NIMS ポスドク研究員 (研究当時) 磯野 貴之 (いその たかゆき)
(現 国立研究開発法人 理化学研究所 特別研究員)

国立大学法人 東京大学大学院工学系研究科 物理工学専攻
教授 鹿野田 一司 (かのだ かずし)

(報道・広報に関すること)

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 経営企画部門 広報室
〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

東京大学大学院工学系研究科 広報室
〒113-8654 東京都文京区本郷 7 丁目 3-1