



量子スピン液体のデカップリング現象の発見

～極低温・強磁場でスピンの格子から孤立する～

国立研究開発法人 物質・材料研究機構
国立大学法人 東京大学大学院工学系研究科

概要

1. 物質・材料研究機構（以下、NIMS）は東京大学と共同で、磁性体の新奇な磁気状態として注目されている量子スピン液体状態において、電子スピン系と格子系の相互作用が極めて弱くなり、スピンの格子から孤立してしまう「スピン-格子デカップリング現象」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。その例外である量子スピン液体は、電子のスピンの極低温でさえ整列せずにふらふらしている不思議な状態です。理論的には量子スピン液体状態では、スピノンと呼ばれる特異な粒子が物質内部を自由に動き回り、そのために、様々な興味深い物理現象を引き起こすと考えられています。実際に、量子スピン液体になる有機物質 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ は、電気を全く流さない（電子は動けない）絶縁体であるにもかかわらず、比熱や磁化率の実験結果は、物質内部をスピンの自由に動き回っていること示しています。その一方で、熱伝導率の実験は、スピンのまったく動けないかのような結果を示しており、この相違は長年の謎でした。
3. 本研究において、上記共同研究グループは、 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ の純良単結晶を育成し、0.1 ケルビンという極低温、17 テスラという高磁場領域まで、磁気熱量効果を精密に測定しました。その結果、極低温・磁場中において、電子スピン系から格子系へ、熱が急激に流れなくなることを発見しました。これは、量子スピン液体状態において、電子スピン系と格子系の相互作用が極めて弱くなる、すなわち、スピンの格子から孤立して、エネルギーをやり取りできなくなる現象、「スピン-格子デカップリング現象」が生じていることを意味しています。この結果は、長年未解決であった、量子スピン液体になる有機物質の比熱、磁化率、および熱伝導率といった性質の間に見られる相違点に統一的な解釈を与えるものです。
4. 本研究で発見した「スピン-格子デカップリング現象」は、現象自体も非常に興味深く、今後、デカップリング現象の全容を解明することによって、新たな磁気冷凍技術の確立や、磁場により ON/OFF できる熱伝導フィルターなどの応用への可能性も開けると期待できます。
5. 本研究は、国立研究開発法人物質・材料研究機構の磯野貴之（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、および国立大学法人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の共同で行われました。
6. 本研究成果は、英国科学誌 Nature Communications のオンライン版に平成 30 年 4 月 17 日発行号に掲載されました。

研究の背景

水（液体）を冷やすと、水分子の空間的な並進対称性が破れて、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。この有機物では、有機分子が作る三角格子点上に電子スピンの1つがあります。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（スピンプラストレーション）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。理論研究によると、量子スピン液体状態では、スピノンと呼ばれる特異な粒子が物質内部を自由に動き回り、そのために、様々な興味深い物理現象をもたらすと提案されています。実際に κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ は、電気を全く流さない（電子は動けない）絶縁体であるにもかかわらず、比熱や磁化率の実験結果は、物質内部でスピンの自由に動き回っていること示しています。その一方で、熱伝導率の実験は、スピンのまったく動けないかのような結果を示しており、この相違は長年の謎でした。

研究内容と成果

本研究において共同研究グループは、量子スピン液体になる有機物質 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ の純良単結晶を育成し、0.1 ケルビン^[1]までの極低温領域、17 テスラ^[2]までの強磁場領域において、試料の磁気熱量効果^[3]を精密に測定しました。電子スピン系から格子系への熱緩和現象を、様々な温度・磁場において調べた結果、図2左に示すように、温度の減少および磁場の増加に伴って、熱緩和時間^[4]が急激に長くなることを発見しました。この結果は、量子スピン液体状態において電子スピン系と格子系の相互作用が極めて弱くなる、すなわち、スピンの格子から孤立して、エネルギーをやり取りできなくなる現象、「スピン-格子デカップリング現象」が生じていることを示しています。

図2左において、緩和時間が長くなり始める温度を定義することができます（図中の矢印）。この温度を、図2右に示す温度-磁場相図中にプロットすると（図中の丸印）、赤色で示した量子スピン液体領域でデカップリング現象が生じることが分かりました。この結果は、量子スピン液体が発現するためには、スピンの格子から孤立しないといけないことを示唆しています。また、スピンの格子から孤立すると、スピンは動き回って熱を運べるのに、その物質全体では熱伝導率が消失する（熱が流れなくなる）ように見えてしまいます。これが長年未解決であった、量子スピン液体になる有機物質の比熱、磁化率、および熱伝導率といった性質の間に見られる相違点の原因となっています。ただ、この特異な「スピン-格子デカップリング現象」がなぜ起こるのか、その詳細なメカニズムは不明であり、さらなる研究が進行中です。

今後の展開

本研究で発見した「スピン-格子デカップリング現象」は、今まで予期しなかった非常に興味深い現象です。今後、デカップリング現象の全容を解明することによって、新たな磁気冷凍技術の確立や、磁場によりON/OFFできる熱伝導フィルターなど、応用への可能性も開けるかもしれません。

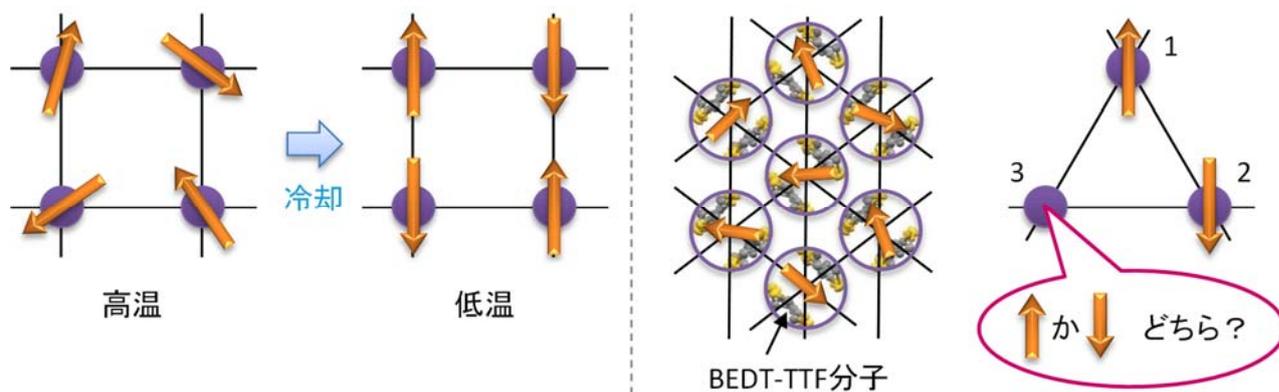


図1. (左) 磁性体内部での電子スピンの様子。紫色の丸が原子を、橙色の矢印がその原子の電子のスピンを示しています。原子上にいる電子のspinは、高温では熱的に揺らいでおり、バラバラな方向を向いています (スピン液体状態)。磁性体を冷却して熱揺らぎを小さくすると、spinは向きを揃えて整列して秩序を作ります (スピン固体状態)。この図では、隣り合うspin同士を反対向きに揃えようとする相互作用 (反強磁性的相互作用) を想定しています。

(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。紫色の丸で囲んだ二つの平板状のBEDT-TTF有機分子 (二量体) 上に1つのspin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、spinを三角形の頂点に配置したとき、1, 2番目のspinの向きを決めると、3番目のspinの向きが決まらなくなります。このspinの三角関係 (spinフラストレーション) により、極低温でさえspinの向きが揃わず、spinが自由に動き回れる不思議な液体状態 (スピン液体状態) が生じると考えられています。

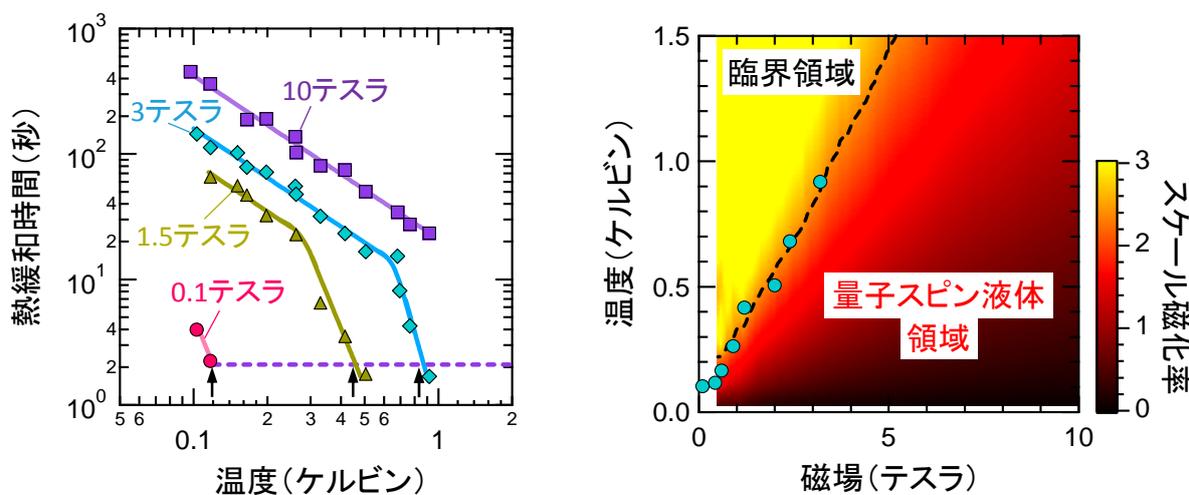


図2. (左) 電子スピン系から格子系への熱緩和時間の温度依存性。極低温・磁場中において、温度減少に伴って熱緩和時間が急激に長くなるのが分かります。(右) 温度—磁場相図。共同研究グループが、以前、磁化率測定によって決定した相図中の赤色の領域 (量子スピン液体領域) で、熱緩和時間が急激に長くなるのがわかりました。このメカニズムは現在不明であり、研究が進行中です。

掲載論文

題目: "Spin-lattice decoupling in a triangular-lattice quantum spin liquid"

日本語訳題名: 「三角格子を有する量子スピン液体物質におけるスピン—格子デカップリング現象」

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

雑誌: Nature Communications

掲載日時: 2018年4月17日

用語解説

[1] 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、0.1 ケルビンという極めて低い温度で実験を行っています。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。

[2] 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。

[3] 磁気熱量効果

磁性体に外部から磁場を加えたときに、物質の温度が変化する現象。 κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃では、極低温まで電子のスピンが整列せずにふらふらしていると考えられます。この状態に磁場を加えると、スピンは磁場の向きに揃おうとします。このとき、スピン系のエントロピーが減少し、物質の温度が上昇します。これとは逆に、磁場を加えた状態から徐々に減少させていくと、物質の温度を減少させることもできます。磁気熱量効果は、温室効果ガスを排出しない環境に優しい冷却技術としても注目されており、磁気冷凍技術への応用研究も進められています。

[4] 熱緩和時間

物質の一部に熱を加えると、その熱は温度の低いところに流れていきます。この時、熱の流れの速さをあらわす指標を熱緩和時間と呼びます。一般に、金属（電子やスピンが自由に動きまわっている状態）では熱緩和時間は短く、絶縁体では熱緩和時間は長くなります。

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 物理工学科

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