

## スピン液体状態が実現する正三角スピントラップの発見

正三角形の三つの頂点にスピンを置き、スピン間相互作用を全て同じ大きさの反強磁性結合にすると、スピンは三すくみ状態（スピンプラストレーション状態と呼ばれる）になる。このスピン正三角形が二次元的に配列された例が三角格子スピン系やカゴメ格子スピン系であり、一次元的にねじれなく積み上げられたのが正三角スピントラップである。これらのプラストレーション系では、十分低温においてスピンの長距離秩序が出現するかどうか、それに伴う新奇な磁気状態とはどのようなものかに関して精力的な研究が展開されている。しかし正三角形の三辺のうち一辺でも短く（長く）なると、スピンプラストレーション状態が解消する傾向にあるため、古くから知られている単純な反強磁性磁気秩序状態が実現し易くなり、新奇な磁気状態の実験的な検証は困難になる。これまでにカゴメ格子スピン系とほぼ見なせる物質が見出されているが、正三角スピントラップに対応する物質は見出されておらず、最適なモデル物質の発見・合成は緊急の課題となっていた。

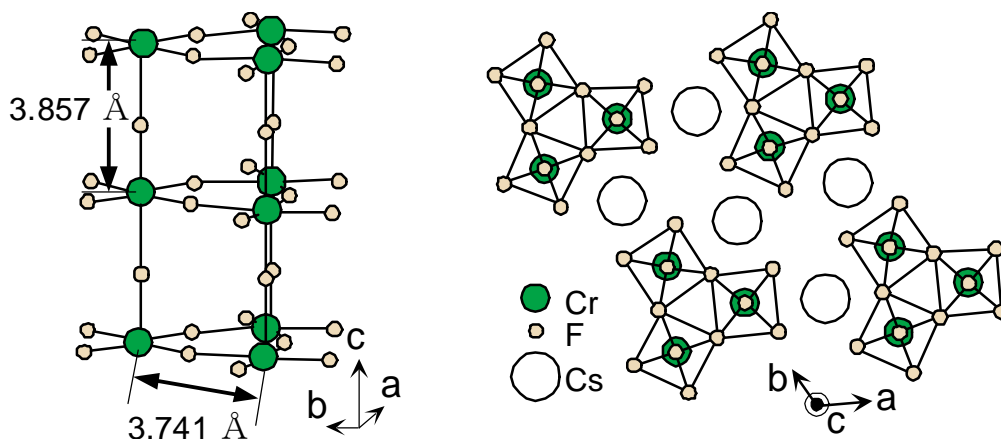


図 1.  $\text{CsCrF}_4$  の結晶構造。 $\text{Cr}^{3+}$  イオンが  $S=3/2$  を担い、 $ab$  面内の 3 個の  $\text{Cr}$  によって正三角形が形成される。

最近、鹿児島大学真中浩貴氏の研究グループでは、長年に亘るフッ素化合物磁性体の作製経験を生かして、図 1 に示すような正三角スピントラップ  $\text{CsCrF}_4$  の合成に成功した。 $\text{CsCrF}_4$  では  $\text{Cr}^{3+}$  イオンが大きさ  $S=3/2$  のスピンを担う。Cs 原子はスピントラップ間に入り込み、トラップ間に大きなスペースが存在するため、 $\text{CsCrF}_4$  は互いにほぼ独立したスピントラップの集まりであることも分かった。さらに、 $\text{CsCrF}_4$  の低温磁性を実験的に調べた結果、この正三角スピントラップは十分低温でスピン液体状態にあることを見出した。この結果は、日本物理学会が発行する英文誌「Journal of the Physical Society of Japan」の 2009 年 9 月号に掲載される。

これまでの理論的研究では、スピンの大きさが  $S=1/2$  の正三角スピントラップ（トラップ方向のスピン間相互作用も反強磁性）において、カイラルスピン状態と呼ばれる状態が低温で出現すると考えられている。この状態（基底状態）における個々のスピンの期待値はゼロであるという点では常磁性状態と同じであるが、隣接するスピン間の相対的角度（位相）

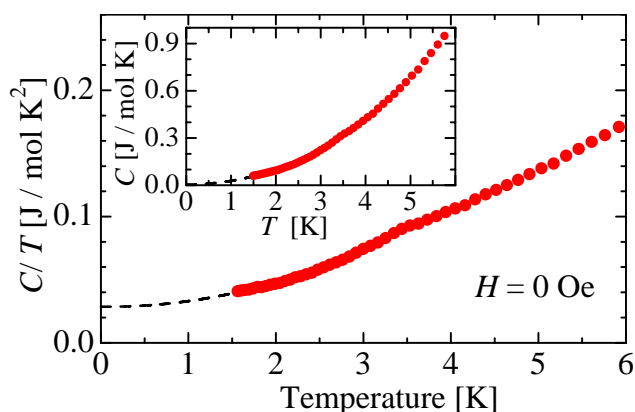


図 2. CsCrF<sub>4</sub> のゼロ磁場中での比熱  $C$  (挿入図)、および  $C/T$  の温度依存性を示す。比熱  $C$  に異常はない。一方、 $C/T$  は絶対零度において有限値に収束する傾向が現れている。丸印は実験値を示し、波線は外挿線を示す。

の期待値は有限に残る。さらに基底状態と励起状態との間には有限なエネルギーギャップが存在する(ギャップフル)との結果が導かれている。

本研究では、合成した CsCrF<sub>4</sub> 試料を 1.3 K まで温度を下げて帯磁率・比熱と電子スピン共鳴の測定を行った。高温の帯磁率測定から求めたこの試料のキュリーワイス温度は -143 K であった。一方、三種類の測定結果には、測定した温度範囲内において磁気相転移の兆候はなかった。図 2 には低温、ゼロ磁場中での比熱( $C$ )の温度依存性を示す。 $C/T$  の値が絶対零度において有限値に収束する傾向が見て取れる。この結果は、励起状態が基底状態から連続的に存在し、エネルギーギャップがゼロ(ギャップレス)であることを示している。すなわち絶対零度においてもスピンの量子力学的に強く揺らいでおり、スピン液体状態が実現していることを強く示唆している。さらに本論文では、この強いスピン揺らぎが正三角形内のスピンフラストレーションに起因していることを電子スピン共鳴の測定結果より論じている。

本研究では、 $S=3/2$  の正三角スピントラップのほぼ理想的なモデル物質 CsCrF<sub>4</sub> の合成に成功し、詳細な実験測定から、この系が低温でスピン液体状態にあることを見出した。この成果はフラストレートスピン鎖における新奇な磁気状態の実験的発見・解明として、多くの研究者の注目を集めている。先行の理論的研究の結果と詳細で不一致な点や、スピンカイラリティの自由度によって引き起こされる現象は未解明のままであるが、現時点ではそれらの研究は緒に着いたばかりであり、今後、正三角スピントラップの立体的な幾何学効果に関する実験・理論両面からの研究進展が大いに期待される。

論文掲載誌： J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) No. 9, p.093701

電子版： <http://jpsj.ipap.jp/link?JPSJ/78/093701/> (8月25日公開済)

<情報提供： 真中浩貴 (鹿児島大学大学院理工学研究科) >