

MERIT 長期海外派遣報告書

理学系研究科物理学専攻 博士 3 年

高木研究室 今田絵理阿

派遣先: Max Planck Institute for Solid State Physics

派遣期間: 2023 年 6 月 2 日～2024 年 6 月 30 日

研究課題: 有機三角格子反強磁性体の極低温物性

概要

2023 年 6 月 2 日から、ドイツのマックスプランク固体物理研究所(Max Planck Institute for Solid State Physics, MPI)にて研究活動を行っている。本レポートでは 2024 年 6 月 30 日までの研究成果を報告する。滞在中は指導教員である高木英典教授の Department of Quantum Materials に所属し、量子スピン液体(QSL)の候補物質である有機三角格子反強磁性体に関して磁化測定を行った。

研究内容

通常の磁気秩序を持たない QSL 状態が初めて理論的に提唱されたのは、反強磁性相互作用を持ったスピン 1/2 の三角格子系である[1]。QSL 研究の候補物質として着目されているのが有機物質 κ -(BEDT-TTF)₂X (X: アニオン分子)である。この物質では伝導層の BEDT-TTF 分子ダイマーが三角格子を作り、強い電子相関のために低温でダイマー 1 つに電子が局在する Mott 絶縁体転移を示し、スピン間に反強磁性的な交換相互作用が働く。

MPI ではファラデー法を用いた極低温における磁化の精密測定が可能である。また Stuttgart 大学の Dressel グループおよび鹿野田教授とも共同研究を行い、電子スピン共鳴(ESR)を利用した微視的な磁化測定を行った。以上から κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃および κ -(BEDT-TTF)₂Ag₂(CN)₃の低温における磁気状態の観測を目指した。

アニオン分子 X が Cu₂(CN)₃ の系では、Mott 絶縁体状態にもかかわらず 32 mK まで磁気秩序が観測されておらず、QSL 状態の存在が期待されてきた[2]。SQUID 磁化測定を利用して κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ の単結晶試料の磁化測定を行ったところ、1 T の磁場下において 6 つの試料で高温領域の温度依存性の再現性が確認された。磁化率の温度微分係数は 6 K で異常なピークを示し、この結果は先行研究のものと整合する。ファラデー法を利用した極低温における磁化測定では、最低温度 50 mK で有限の磁化率を示し、スピンの低エネルギー励起を示唆する結果となった(図 1(a))。極低温領域での磁化率の温度・磁場依存性は先行研究のトルク磁化測定で得られたものとは異なっており、今回の測定で

磁化を直接観測することに成功した。また、外部磁場に対する磁化の応答は、磁場に対して直線的な変化を示し、一般的に不純物スピンの見られるような磁化の飽和は 7 T までの磁場下では観測されなかった(図 1(b), (c))。

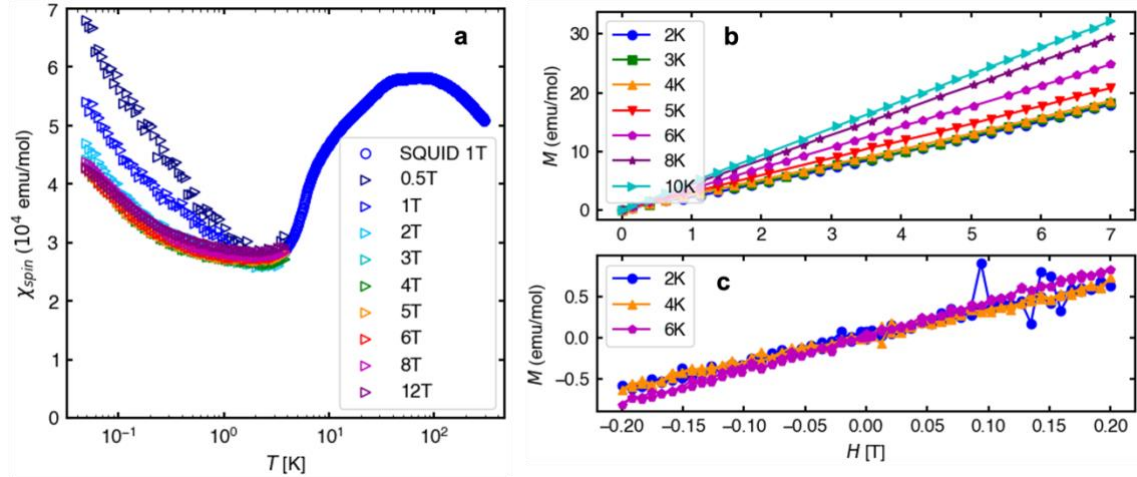


図 1 (a) Faraday 法磁化測定による磁化率の温度依存性。(b), (c) 磁場印加による磁化の変化。

一方で Stuttgart 大学の共同研究者による ESR 測定からは、3 K 以下でスピンの g 因子異方性が大きくなることがわかった。さらに核磁気共鳴測定から、3 K 程度の低温において内部磁場の分布に非自明な広がりが見られ[3]、スピン状態が通常の常磁性状態とは異なることが示された。先行研究の μ SR においても磁場の印加から非線形な磁場応答を示す内部磁場の存在が指摘されている。

以上の結果を踏まえると、 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ では磁場誘起の磁気秩序的な不均一内部磁場が出現していると考えられる。また相転移は確認できていないのでまだ QSL の可能性は残っており、今後極低温での比熱測定や ESR を行うことで検討する予定である。

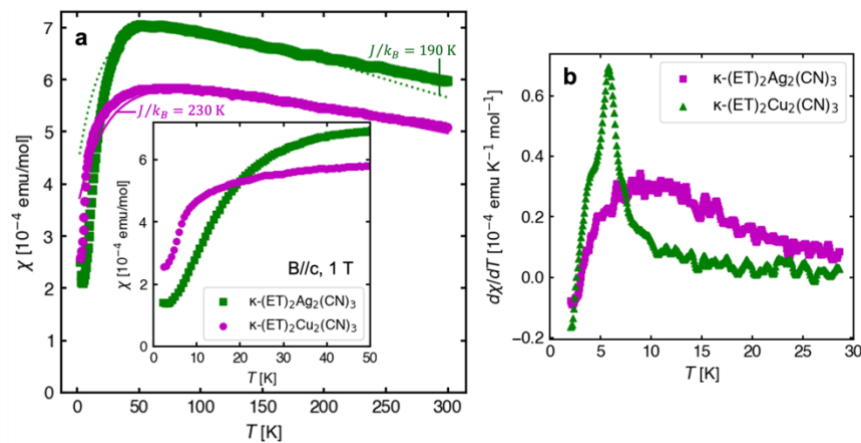


図 2 SQUID 磁化測定による磁化率(a)とその温度微分(b)。

またアニオン分子 X が $\text{Ag}_2(\text{CN})_3$ の物質は $\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ の系よりも電子相関が強く、同じく QSL 候補物質として考えられている。SQUID 磁化測定の結果、2 K まで有限の磁化率(ただし $\text{Cu}_2(\text{CN})_3$ より小さい)が得られたが磁化率の温度微分に異常は見られないことを再

現性を見て確立した。 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Ag $_2$ (CN) $_3$ に関しても、内部磁場の磁場依存性を調べるため ESR 測定を行う予定である。

[1] P.W. Anderson, Mater. Res. Bull. **8**, 153 (1973).

[2] Y. Shimizu *et. al.*, PRL**91**, 107001(2003).

[3] K. Kanoda, private communication.

研究生活

研究所は Stuttgart の中心から 10 km ほど離れており、森に囲まれた自然豊かな土地にある。実験で徒歩 20 分ほどの距離にある Stuttgart 大学に行くことも多い。研究所から大学までは森を抜ける小道になっていて、移動が良い気分転換にもなる。研究を進める上では、技術者の方と関わることが多い。実験に必要なパーツを作成してもらうために、学生自身が技術者と直接やりとりしてオーダーする必要がある(中にはドイツ語のみ話す方もいる)。

滞在を始めた最初の 2 ヶ月は研究所から徒歩 10 秒のゲストハウスに住んでいたが、現在は研究所から 30 分ほどのところに部屋を借りて住んでいる。部屋にはエアコンがないが夏の朝晩は涼しく快適な気候で、室内は気密性が高いため冬は暖房があれば十分暖かい。食に関して、ドイツ料理は肉とじゃがいもばかり出てくるので、自宅では主に野菜を調理して胃を休める必要がある。



図 3 ドイツ料理の一例。

謝辞

滞在にあたり、多くの方々にご指導ご鞭撻を賜りました。高木先生には、今回の滞在を受け入れていただき、また現地で直接ご指導いただきました。感謝申し上げます。ESR 測定には Stuttgart 大学の Sudip、Faraday 法磁化測定には松本さんにご協力いただき、鹿野田先生と関根さんには議論にご参加いただきました。厚く御礼申し上げます。本研究に用いた κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$ のサンプルは東北大の佐々木先生にご提供いただきました。また、この MERIT 長期海外派遣に関わっていただいた副指導教員の関先生、MERIT 事務局の皆様感謝申し上げます。今回の滞在は、Max-Planck-Institute の経済的支援により実現いたしました。心より感謝申し上げます。