

銅鉱物に由来するカゴメ磁性体の磁気構造を特定

～フラストレーションが作り出す渦巻構造の起源解明に貢献～

ポイント

- ・ 中性子回折実験と核磁気共鳴実験の長所を組み合わせることで、渦巻状の磁気構造を特定。
- ・ フラストレーション効果の大きいカゴメ磁性体において磁気秩序が安定化される仕組みを解明。
- ・ 量子効果を示す次世代磁性材料開発の進展に貢献。

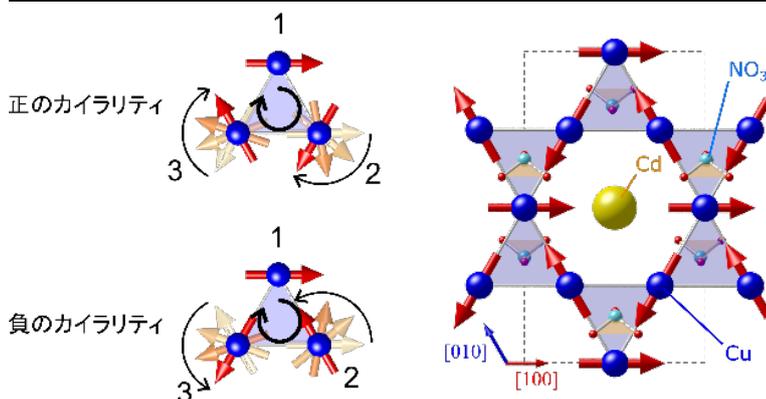
概要

北海道大学大学院理学研究院の井原慶彦講師らの研究グループは、オックスフォード大学クラレンドン研究所の大熊隆太郎博士、東京大学物性研究所の広井善二教授らとの共同研究により、カペラサイト鉱¹と呼ばれる銅鉱物に由来するカゴメ反強磁性体²においてベクトルカイラリティ³がそろった磁気秩序構造が実現していることを発見しました。

カゴメ反強磁性体では磁性の担い手である銅イオンが3角形の頂点に配置されているために、銅イオンが持つ磁気モーメント⁴が互いに反平行を向く基本的な反強磁性構造を取ることができません。これによりフラストレーション⁵を感じた磁気モーメントは極低温までふらふらと揺らぎ続けるため、量子効果が強く表れた不思議な磁気状態が出現することが期待されます。しかし、量子効果を反映した多様な磁気構造を実験的に特定することは困難であり、これまでに磁気構造を明らかにした研究はわずか数例しかありません。本研究では、整列した磁気モーメントの周期的パターンを捉えることができる中性子回折実験と、磁気モーメントの局所的な配置を観測できる核磁気共鳴実験を相補的に用いることで、非常に低い温度で安定化される磁気秩序構造の決定に成功しました。

今回、カペラサイト鉱において観測された磁気構造では、局所的な磁気モーメントの渦巻構造が試料全体にわたって一様にそろっています。このような渦巻状の磁気構造では、熱流の方向を磁場で曲げる熱ホール効果⁶や低エネルギーでの磁気情報伝達など、量子効果を反映した磁気特性が現れます。カペラサイト鉱の磁気構造を特定したことで、基礎科学研究の観点からこの磁気構造に由来する量子磁性の起源解明を促進するだけでなく、量子磁性材料としてスピントロニクス分野や量子情報分野への応用研究に貢献することも期待されます。

なお、本研究成果は、2022年7月1日（金）公開のPhysical Review B誌に掲載されました。



カペラサイト鉱のカゴメネットワーク上で実現している磁気構造。1→2→3の順番に磁気モーメント（赤矢印）を見ていくと、正のカイラリティでは磁気モーメントが時計回りに、負のカイラリティでは反時計回りに回転するという違いがある。右に示す磁気構造では全ての3角形上で負のカイラリティが実現している。

【背景】

量子コンピュータが現実の計算機として利用可能となったことで、これまでは基礎科学的な興味の対象であった量子性が、社会・産業への応用が可能な新しい物質の特性として再注目されています。

従来の磁性材料の多くは、近接する磁気モーメントの間の相互作用により、量子性が現れる極低温領域よりはかなり高い温度で磁気モーメントの整列が起こってしまいます。

ところが、磁気モーメントが3角形の頂点に配置された結晶構造を持つ磁性体では、近接する磁気モーメント間の相互作用に競合が生じます。これによりフラストレーションを感じた磁気モーメントが非常に低い温度まで整列できなくなるため、量子性を反映した磁気特性が現れます。銅鉱物においてしばしば見られるカゴメ状の結晶構造では、特に磁気モーメントがフラストレーションを強く感じるため、量子磁性材料候補として研究が行われてきました。しかし、最低温度でどのような磁気構造が安定化されるのか、という基本的な情報は明らかにされていませんでした。

【研究手法】

量子磁性体が最低温度で取る磁気構造は、磁気モーメント間の複雑な相互作用に強く関係しているため、非常に多彩なパターンが可能であり理論的にも予想が難しい問題でした。様々な可能性から実際に実現している磁気構造を1つに同定するために、本研究では磁気モーメントの周期的パターンを決定することができる中性子回折実験と、局所的な磁気モーメントの向きを決定できる核磁気共鳴実験を相補的に利用した研究を行いました。

【研究成果】

中性子回折スペクトルと核磁気共鳴スペクトルの詳細な解析の結果、カペラサイト鉱においては磁気モーメントが1つの3角形上で渦巻状の配置を取り、この局所構造が試料全体にわたって一様にそろった磁気構造 (p1 図右) が実現していることを解明しました。磁気モーメントを渦巻状に並べる場合、渦の巻き方によって正と負のベクトルカイラリティが現れます (p1 図左)。負のベクトルカイラリティが一様にそろった磁気構造の実験的観測に成功したことは大きな進展と言えます。

同様の磁気構造は、他のカペラサイト鉱においても提案されていましたが、今回の結果では結晶中に含まれる硝酸イオンの向きがそろったことで、磁気モーメントの向きが結晶の方位に固定されていることまで明らかにすることに成功しています。これによりカペラサイト鉱に見られる量子磁性を理解する上での土台が確立されました。

【今後への期待】

カペラサイト鉱では、熱流の方向を磁場により制御できる熱ホール効果が観測されるなど、量子性が引き起こす特異な機能性が発見されています。このような量子磁性の源となる磁気構造を明らかにしたことで、その発現原理を理解すると共に、応用化の促進に貢献することが期待されます。

また、今回明らかにした磁気構造では非常に小さなエネルギーで磁気情報の伝達が可能です。このような磁気特性はスピントロニクス分野や量子情報分野への応用が期待されます。

論文情報

論文名 Negative-chirality order in the $S = 1/2$ kagome antiferromagnet $\text{CdCu}_3(\text{OH})_6(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$
($S=1/2$ カゴメ反強磁性体 $\text{CdCu}_3(\text{OH})_6(\text{NO}_3)_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ における負のカイラリティ秩序)
著者名 Yoshihiko Ihara¹、Ryoga Hiyoshi¹、Masakazu Shimohashi¹、Kaoru Hayashi¹、Ryutaro Okuma^{2, 3}、Fabio Orlandi⁴、Pascal Manuel⁴、Gøran J. Nilsen⁴、and Zenji Hiroi³ (¹北海道大学大学院理学研究院、²オックスフォード大学クラレンドン研究所、³東京大学物性研究所、⁴ISIS 中性子ミュオン科学研究所)
雑誌名 Physical Review B (磁性物理学の専門誌)
DOI 10.1103/PhysRevB.106.024401
公表日 2022年7月1日(金)(オンライン公開)

お問い合わせ先

北海道大学大学院理学研究院 講師 井原慶彦 (いはらよしひこ)

T E L 011-706-4426 F A X 011-706-4926 メール yihara@phys.sci.hokudai.ac.jp

U R L <https://www2.sci.hokudai.ac.jp/faculty/researcher/yoshihiko-ihara>

配信元

北海道大学社会共創部広報課 (〒060-0808 札幌市北区北8条西5丁目)

T E L 011-706-2610 F A X 011-706-2092 メール jp-press@general.hokudai.ac.jp

【用語解説】

- *1 カペラサイト鉱 … 銅鉱物の一種。銅イオンが形成するカゴメネットワークの中心に非磁性イオンが入っているという特徴を持つ。非磁性イオンの種類によってカドミウムカペラサイト(本研究)のほか、カルシウム、亜鉛、などが入った類縁物質が見ついている。
- *2 カゴメ磁性体 … 竹細工の籠の網目のような星形の結晶構造のこと (p1 図右参照)。3角形が頂点を共有した構造であるため、磁気構造の自由度が大きく多彩な磁気構造が出現する可能性を秘めている。
- *3 ベクトルカイラリティ … 渦巻状の磁気モーメントの配置において渦の巻き方を特徴づけるパラメータのこと。P1 図左に示すように磁気モーメントが時計回りの配置を正、反時計回りを負、と定量化することができる。
- *4 磁気モーメント … 磁性の起源となるミクロな磁石の性質のこと。磁性体では電子スピンの磁気モーメントを持つ。
- *5 フラストレーション効果 … 磁気モーメント間の相互作用に競合が生じ、安定な磁気構造が決められなくなる効果のこと。例えば、近接する磁気モーメントを互いに反平行にそろえようとする相互作用がある場合、4角形の配置では上一下一上一下という安定な磁気構造を形成することができるのに対し、3角形の配置では上一下一上と並べたときに1番目と3番目の磁気モーメントが共に上向きになる平行の配置になってしまい、相互作用の競合が生じる。
- *6 熱ホール効果 … 磁場により伝導電子の進行方向が曲げられるホール効果のように、熱流の方向が磁場で曲がる効果のこと。通常、物質中で熱を伝えるのは格子振動などであり磁場との相関は弱いため、熱ホール効果は見られない。磁場により熱流の方向を制御することで、熱の磁場スイッチなどへの応用可能性がある。