

# 利用課題名 低次元量子スピン系における隠れたエネルギーギャップの観測

英文利用課題名 Observation of a hidden energy gap in a low-dimensional quantum spin system

長谷 正司<sup>1)</sup> 松田 雅昌<sup>2)</sup> 加倉井 和久<sup>2)</sup> 黒江 晴彦<sup>3)</sup> 浜崎 智彰<sup>3)</sup>

Masashi HASE Masaaki MATSUDA Kazuhisa KAKURAI Haruhiko KUROE Tomoaki HAMASAKI

<sup>1)</sup> 物材機構 <sup>2)</sup> 原子力機構 <sup>3)</sup> 上智大学

$\text{Cu}_3(\text{P}_2\text{O}_6\text{OD})_2$  については、常磁性散乱を意味する準弾性散乱を観測した。 $\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$  については、エネルギーギャップの存在によると思われる磁気励起を観測した。

**キーワード** :  $\text{Cu}_3(\text{P}_2\text{O}_6\text{OD})_2$ 、3 倍周期鎖、常磁性散乱、 $\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$ 、エネルギーギャップ、反強磁性長距離秩序

## 1. 目的

$\text{Cu}_3(\text{P}_2\text{O}_6\text{OD})_2$  には、スピン 1/2 を担う 2 種類の  $\text{Cu}^{2+}$  サイト (Cu1, Cu2) が存在し、この物質の磁性は  $J_1$ - $J_2$ - $J_2$  というパターンを持つスピン 1/2 の 3 倍周期鎖で説明することができる[1]。磁化曲線には 1/3 磁化プラトーが現れるが、これは磁気励起にエネルギーギャップが存在することを意味している。2006 年下期の施設共用(2006B-A11)の実験において、エネルギーギャップの直接観測に成功した[2]。中性子非弾性散乱と磁化について、実験と計算の結果を比較することで、 $J_1 = 111 \text{ K}$  と  $J_2 = 30 \text{ K}$  という値が得られた。上述のエネルギーギャップは、 $J_1$  で結ばれた 2 つの Cu2 スピンが反強磁性ダイマーのような状態を作ることから生じる。一方、鎖内で隣接する Cu1 スピン間 (距離 8.36 ) には、このダイマーを媒介とした、 $J_{\text{eff}} = J_2^2 / J_1 = 8.1 \text{ K}$  程度の交換相互作用が働き、Cu1 スピンだけを考えると、 $J_{\text{eff}}$  を持つ反強磁性 uniform 鎖が形成される。この描象が正しければ、その鎖が作る常磁性散乱が存在するはずである。今回は、粉末試料について、その常磁性散乱の観測を目的として実験を行った。

$\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$  には、2 種類の  $\text{Cu}^{2+}$  サイト (Cu1, Cu2) が存在する。磁化の結果から、以下のようなスピン状態が実現していると考えられている[3]。 $J_1$  (160 K) で結ばれた 2 つの Cu1 スピンが反強磁性ダイマーのような状態を作り、ほぼ非磁性な状態となる。一方、Cu2 スピンは、 $T_N = 9.8 \text{ K}$  以下で反強磁性長距離秩序を示す。このスピン状態が正しければ、反強磁性ダイマーが起因となるエネルギーギャップが存在するはずである。また、低温で磁気ブラッグピークが現れるはずである。そこで我々は、 $\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$  の粉末試料の中性子散乱を測定した。

## 2. 方法

JRR-3 の TAS-2 分光器を用いて実験した。クローズド・サイクルの冷凍機を用いて、4.4 K から室温の間で温度を調整した。なお、 $\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$  の作製においては、 $^{114}\text{Cd}$  と  $^{11}\text{B}$  の酸化物を原料として用いた。

### 3. 研究成果

#### 3.1. $\text{Cu}_3(\text{P}_2\text{O}_6\text{OD})_2$

Fig. 1 に、 $Q = 1.0 \text{ \AA}^{-1}$ 、 $T = 149 \text{ K}$  において測定した、 $\omega = 0 \text{ meV}$  付近の散乱強度の $\omega$ 依存性を示す。赤線は全体を 1 つの Gaussian に合わせた結果であるが、 $2 \text{ meV}$  付近に実験結果からのずれが見られる [Fig. 1(b)]。このずれは常磁性散乱の存在を意味していると考えられる。 $2 \text{ meV}$  以上では、常磁性散乱の強度と比較して、赤線の値はほぼ一定となるので、 $2 \text{ meV}$  以上の強度を別の Gaussian で合わせた結果を Fig. 1(c) の青線で示す。この常磁性散乱の FWHM (Full width at half maximum) は  $2.72 \text{ meV}$  である。

Fig. 2 に、 $\omega = 2.0 \text{ meV}$ 、 $T = 149 \text{ K}$  において測定した、常磁性散乱の FWHM(a) と強度(b) の  $Q$  依存性を示す。実線は理論計算の結果 [4] で、(a) では  $A\{1 - \sin(8.36Q)/(8.36Q)\}$  と、(b) では  $Bf(Q)^2/\{1 - \sin(8.36Q)/(8.36Q)\}^{0.5} + I_{\text{BG}}$  と表される。ここで、 $f(Q)$  は  $\text{Cu}^{2+}$  イオンの磁気形状因子、 $A$  と  $B$  は規格化定数、 $I_{\text{BG}}$  はバックグラウンド強度である。 $8.36$  は鎖内で隣接する  $\text{Cu1}$  スピン間距離 ( ) である。実験結果とは合わない。この不一致に関しては、今後検討する。FWHM から交換相互作用の値は、 $5.5$  から  $8.4 \text{ K}$  程度と評価され (ただし、resolution の影響は考慮していない)、実験前の予想である  $8.1 \text{ K}$  と同程度の値となった。

#### 3.2. $\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$

Fig. 3 に、 $Q = 1.6 \text{ \AA}^{-1}$ 、4 つの温度において測定した、散乱強度の $\omega$ 依存性を示す。 $4$  から  $15 \text{ meV}$  の間では、温度上昇に伴い、強度が増加する。フォノンが存在すると考えられる。一方、 $19 \text{ meV}$  付近の励起強度の温度依存性は弱い。この付近に、エネルギーギャップの存在を意味する磁気励起が存在していると考えられる。磁気励起は温度上昇とともに小さくなるはずであるが、このエネルギー域にもフォノンが存在し、その強度増加と打ち消しあって、 $19 \text{ meV}$  付近の温度依存性は弱いと推察している。現時点では、フォノンの存在のため、磁気励起の定量評価はできなかった。今後、偏極中性子を使った測定も行い、解析していく必要がある。

中性子弾性散乱においては、低温で磁気ブラッグピークが見られた。Fig. 4 に、 $2\theta = 14.8^\circ$  での強度の温度依存性を示す。 $T_N = 9.8 \text{ K}$  付近から現れ、磁気ブラッグピークに典型的な温度依存性が見られた。

### 4. 結論・考察

$\text{Cu}_3(\text{P}_2\text{O}_6\text{OD})_2$  においては、常磁性散乱を意味する準弾性散乱を観測した。線幅と強度の  $Q$  依存性は理論予測とは一致しなかったが、交換相互作用の値から予測される値と近い線幅が得られた。 $\text{Cu}_2\text{CdB}_2\text{O}_6$  においては、エネルギーギャップの存在によると思われる磁気励起を観測した。また、中性子弾性散乱においては、磁気ブラッグピークも観測した。

### 5. 引用(参照)文献等

- [1] M. Hase et al., Phys. Rev. B 73, 104419 (2006).
- [2] M. Hase et al., Phys. Rev. B 76, 064431 (2007).
- [3] M. Hase et al., Phys. Rev. B 72, 172412 (2005).
- [4] P. G. de Gennes, J. Phys. Chem. Solid 4, 223 (1958).

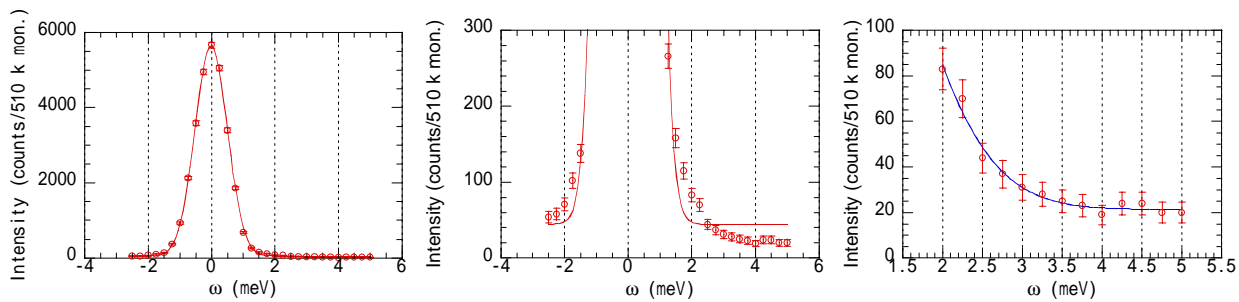


Fig. 1 (a) (b) (c)

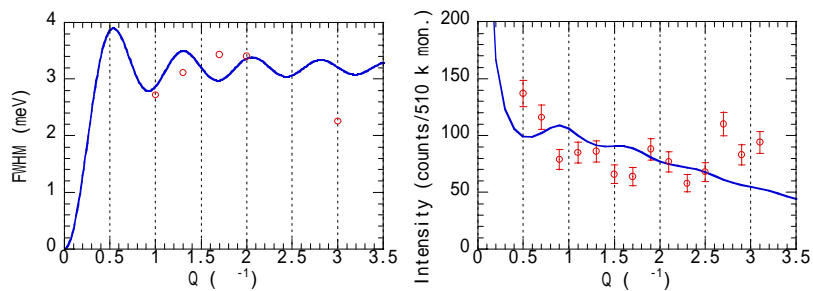


Fig. 2 (a) (b)

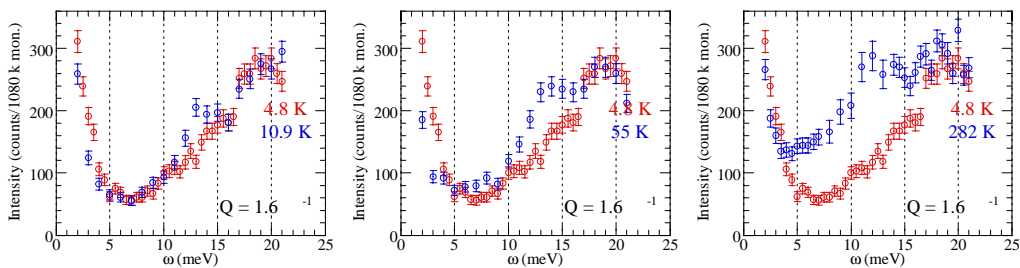


Fig. 3 (a) (b) (c)

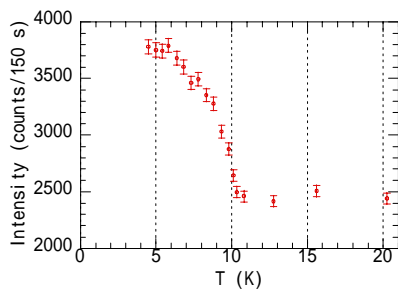


Fig. 4