

強磁性-反強磁性ジグザグ鎖  $\text{LiCuVO}_4$  の磁気励起Magnetic excitation in ferromagnetic-antiferromagnetic zig-zag chain  $\text{LiCuVO}_4$ 益田隆嗣<sup>1)</sup> 近藤洋右<sup>2)</sup> 金子耕士<sup>3)</sup> 目時直人<sup>3)</sup>

Takatsugu MASUDA, Yousuke Kondoh, Kohji KANEKO, and Naoto METOKI

<sup>1)</sup> 東京大学 <sup>2)</sup> 横浜市立大学 <sup>3)</sup> 原子力機構

## (概要)

強磁性フラストレート鎖  $\text{LiCuVO}_4$  の単結晶磁場下中性子実験を行った。H<7.5T の低磁場では、磁気相互作用のフラストレーションによるスパイラル秩序が観測された一方、H>8.5T の高磁場下においては、新規な不整合磁気秩序状態が観測された。不整合ベクトルは磁化の大きさに比例して  $q=\pi/2$  からずれていく振る舞いを示していることから、スピン・ネマティック状態におけるスピン縦成分の準長距離相関が、弱い鎖間相互作用により長距離秩序化した新しい磁気状態が磁場により誘起されていることが明らかにされた。

## キーワード：

フラストレート磁性体、スピン・ネマティック状態

## 1. 目的

強磁性-反強磁性のジグザグ鎖では高磁場下で、ネマティック相関関数  $\langle S_j^+(t)S_{j+1}^+(t)S_0^-(0)S_1^-(0) \rangle$  がべき的に減衰するような準長距離秩序が出現することが知られている[1]。このネマティック状態では、2スピンの縦相関がべき減衰することと、スピン横相関が指数関数的減衰することが理論的に予想されている[2]。中性子動的構造因子においては、 $S^{zz}(q,w)$  では格子不整合な波数からのギャップレス励起が、また  $S^+(q,w)$  では  $\pi/2$  からのギャップ励起が存在することが示唆されている。現実の物質では弱い鎖間相互作用のために、ネマティック状態を色濃く反映した秩序状態が出現している可能性がある。

$S=1/2$  ジグザグ鎖  $\text{LiCuVO}_4$  の結晶構造は  $\text{Cu}^{2+}(S=1/2)$  が酸素を辺共有するように、b 方向に次元鎖を形成しており、強磁性-反強磁性フラストレート鎖のモデル物質として知られている[3]。低磁場ではスパイラル秩序、高磁場ではコリニアな秩序相が存在することが報告されている[4]。我々は、後者のコリニア相がネマティック状態に近い秩序状態、すなわち、 $q_{\parallel c}=(1/2-\langle S \rangle)\pi$  を伝播ベクトルとした格子不整合秩序状態であり、 $q=q_{\parallel c}$  から立ち上がるギャップレス励起および  $q=\pi/2$  におけるギャップ励起を有していると予想した。そこで、本課題では  $\text{LiCuVO}_4$  の高磁場低温における新規な磁気状態を明らかにするために、中性子散乱実験を行った。

## 2. 方法

低温高磁場環境を実現するために、10T 超伝導マグネットと希釈冷凍機を用いた。試料は、二つの結晶の軸を揃えたものを用いた。分光器は TAS2 および LTAS を用いた。LTAS では  $E_f=3.5\text{meV}$  とし、弾性散乱実験では guide-80'-sample-Be-Radial collimation – Flat analyzer-open とし、非弾性散乱実験では、アナライザを水平集光に変更して行った。TAS2 では  $E_i=14.7\text{meV}$  での非弾性散乱実験を行った。

## 3. 研究成果

LTAS での弾性散乱実験で、H<7.5T の低磁場では、伝播ベクトルを  $q=(0\ 0.47\ 0)$  とする格子不整合磁気秩序が観測された。これは、過去の報告と一致しており、磁気相互作用のフラストレーションに起因したスパイ

ラル秩序によるものと考えられる。一方  $H > 0.85\text{T}$  では、 $q=(1\ 0.47\ 0)$  の磁気ピークが弱くなると同時に、 $q=(1\ k\ 0)$  (ただし  $k=(1-2\langle S \rangle)/2$ ,  $\langle S \rangle$  は磁化測定より見積もられたスピンの大きさ) において、磁場に依存する不整合ベクトルを有する磁気ブラッグピークが観測された。  $8.5\text{T} < H < 9\text{T}$  では二つのピークが両方観測され、  $H > 10\text{T}$  では後者のみが観測された。高磁場で観測された磁気ピークの波数ベクトルの磁場依存性は、ネマティック状態で予想されている準長距離不整合スピン相関と一致している。このことから、  $H > 8.5\text{T}$  では、スピン・ネマティック状態が弱い鎖間相互作用により長距離秩序化した状態が実現していることが明らかとなった。また、中間磁場で二つの磁気ピークが共存していることから、低磁場のスパイラル秩序から高磁場のネマティック的秩序への相転移は1次的であることも明らかとなった。

非弾性散乱実験に関しては、残念ながらLTAS、TAS2両分光器ともに意味のある結果は得られなかった。LTASの実験では、格子不整合な波数ベクトルからのギャップ励起を観測することを目的としていたが、電氣的ノイズと散乱強度の不足により磁気励起を観測することができなかった。TAS2の実験では、理論で予想されている  $q=\pi/2$  でのギャップ励起観測を目指したが、観測出来なかった。定性的に、ギャップ励起モードの強度は、低磁場では弱くなると予想されているため、今回の実験条件の  $H=10\text{T}$  が十分な磁場ではなかったことが予想された。

#### 4. 結果・考察

強磁性フラストレート鎖  $\text{LiCuVO}_4$  の高磁場下中性子回折実験により、スピンネマティック状態を色濃く反映した新規な磁気秩序状態を見出した。

#### 5. 引用(参照)文献等

[1] T. Hikihara et al., PRB 78, 144404 (2008). [2] M. Sato et al., PRB 79, 060406 (2009). [3] M. A. Lafontaine et al., Acta Crystallogr. C 45, 1205 (1989). [4] F. Schrettle et al., PRB 77, 144101 (2008). [5] M. Enderle et al., Europhys. Lett. 70, 237 (2005). [6] M. G. Banks, J. Phys. Condens. Matt. 19, 145227 (2007).