新規反強磁性ダイマー物質 Yb_2SiO_5 のスピン・ギャップ励起の観測

Observation of spin-gap excitation in the new antiferromagnetic dimer compound Yb_2SiO_5

長谷　正司[1)]　　金子　耕士[2)]

Masashi HASE　　Koji KANEKO

[1)]物質・材料研究機構　[2)]原子力機構

（概要）

帯磁率の結果から、擬似スピン 1/2 を持つ Yb_2SiO_5 の基底状態はスピン 1 重項状態でスピン・ギャップが存在することが分かっていた。そのスピン系を決定するために、粉末の中性子非弾性散乱（INS）測定を行った。0.7、1.2、1.9 meV において、クラスター的励起が見られ、温度依存性から磁気励起であることが分かった。スピン系は、反強磁性ダイマーではなく、$J_2(S_1S_2+S_3S_4)+J_1S_2S_3$ というハミルトニアンで表される反強磁性テトラマーであることが分かった。$J_1=0.74$、$J_2=0.95$ meV とすると、励起エネルギー、帯磁率、磁気比熱を再現できた。また、J_1とJ_2がそれぞれ、第 2 と第 3 近接 Yb-Yb に存在すると考えると、INS 強度の Q 依存性[I(Q)]を説明することが出来た。

キーワード：Yb_2SiO_5、反強磁性テトラマー、スピン 1 重項状態、スピン・ギャップ、中性子非弾性散乱

１．目的

低次元量子スピン系物質の多くが d 電子系だが、最近、f 電子系、特に Yb^{3+}（$4f^{13}$）を含む物質が量子スピン系物質として注目されている。スピン軌道相互作用によって、J ＝ 7/2 の J 多重項が基底状態になるが、更に、結晶電場によって、最低エネルギーのクラマース 2 重項が基底状態になることがある。よって、擬似スピン 1/2 のスピン系が実現する。

我々は Yb_2SiO_5 に注目した[1]。帯磁率には低次元反強磁性体であることを示す極大が T_{max} = 5.8 K 付近に見られる。また、T_{max} 以下で、帯磁率は急激に減少する。これは、基底状態がスピン 1 重項状態でスピン・ギャップが存在することを意味する。比熱では 2 K までに磁気転移は見られなかった。Yb_2SiO_5 のスピン系を決定するために INS 測定を行った。

２．方法

LTAS 分光器にトップロード式冷凍機を設置し、Yb_2SiO_5 粉末の INS 測定を行った。散乱された中性子のエネルギーを 2.6 meV とした。試料の前に冷却した Be フィルターを置いて、高次ビームの混入を防いだ。試料の非干渉性散乱から、エネルギートランスファー0 meV でのエネルギー分解能は 0.1 meV であると評価した。8.7 g の粉末試料を用いた。

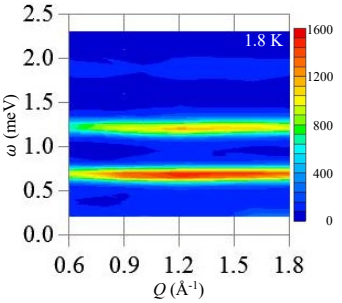

Fig. 1。Yb_2SiO_5 の 1.8 K での INS 強度マップ。

３．結果及び考察

Fig. 1 に示す 1.8 K の INS 強度マップでは、0.7、1.2、1.9 meV において、クラスター的励起が見られた[2]。励起幅は分裂能よりも少し広い。温度依存性から磁気励起であることが分かった。I(Q)では、$Q\sim1.25$Å^{-1}付近に極大が見られた。よって、これらの励起は Yb^{3+}の結晶場励起ではないことが分かった。

Yb_2SiO_5 ではせいぜい 2 種類の反強磁性ダイマーしか存在しないので、3 つの磁気励起を説明することは出来ない。よって、結晶構造も考慮して、$J_2(S_1S_2+S_3S_4)+J_1S_2S_3$ というハミルトニアンで表される反強磁性テトラマーを仮定した。$J_1=0.74$、$J_2=0.95$ meV とすると、励起エネルギー、帯磁率、磁気比熱を再現できた。また、J_1とJ_2がそれぞれ、第 2 と第 3 近接 Yb-Yb に存在すると考えると、I(Q)を説明することが出来た。

４．引用(参照)文献等

[1] Y. I. Smolin, Sov. Phys. Crystallogr. 14, 854 (1970).

[2] M. Hase et al., Phys. Rev. B 111, 094403 (2025).