

A-22 課題番号 2010A-A52、2010A-11 利用装置名 LTAS、TAS-1  
 粉末中性子非弾性散乱データ解析法の開発と1次元スピン系のスピン励起の研究

Development of data manipulation in powder inelastic  
 and study of spin excitations in one-dimensional spin systems

軌道角運動量磁性体KCoF<sub>3</sub>における軌道波の偏極中性子非弾性散乱による研究  
 Inelastic polarized neutron scattering study of orbital wave in KCoF<sub>3</sub>  
 with unquenched orbital angular momentum

利用者 安倍弘<sup>1)</sup>、富安啓輔<sup>1)</sup>、金子耕二<sup>2)</sup>、脇本秀一<sup>2)</sup>、長壁豊隆<sup>2)</sup>  
 Hiromu Anbai, Keisuke Tomiyasu, Koji Kaneko, Shuichi Wakimoto, Toyotaka Osakabe

所属 <sup>1)</sup>東北大学、<sup>2)</sup>日本原子力研究開発機構

キーワード スピンプラストレーション、量子スピン系、一次元スピン系

1. 目的

フラストレーション系や一次元スピン系などの物質は量子揺らぎが大きくなり、古典的には考えられない新しい状態が出現する。例えば、スピンパイエルス状態、ハルデン状態、スピン液体状態、カイラル秩序などがあげられる。Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>はフラストレーションを持つ S=1/2 一次元量子スピン系物質と考えられており、フラストレーションと一次元性の相乗効果により大きな揺らぎが期待される。

Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>は図1に示すようなCu<sup>2+</sup>(S=1/2)ジグザグ鎖をもつ[1]。長谷らの研究によって、フラストレーションと一次元性が示された[2]。第一近接相互作用  $J_1 = -138$  K、第二近接相互作用  $J_2 = 51$  Kと見積もられ、 $\alpha = J_2/J_1 = -0.37$ より基底状態は理論的に非整合一重項状態と

期待される[3]。また基底状態と励起状態のエネルギーギャップは観測できないほど小さいと予想される[4]。富安らによる同物質の粉末中性子散乱実験により非整合的な磁気励起が解析から見られ、長谷らの予想と一致した[5]。ここで解析に用いられたのは、同じく富安により開発された一次元系物質の粉末中性子非弾性散乱データを単結晶散乱データに変換する数学的手法である。また加えて解析結果から強磁性的な磁気励起の存在も伺える。もしそれが確かならば非整合一重項に強磁性が共存することになる。

本研究ではさらに広い (Q, E) 空間の情報を得るために、再度中性子散乱実験を行った。また中性子散乱の解析で見られた強磁性的な磁気励起を検証するため、偏極中性子実験を行った。粉末X線回折により力を加えるときにb軸が倒れるような配向が確認された。そこで配向を利用してb軸が円面に対して平行になるようなペレットを作製し磁化測定を行った。

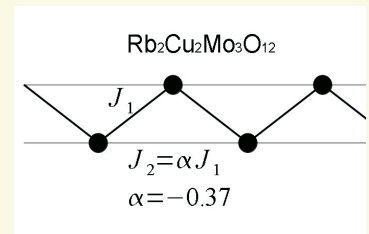


図1: 結晶構図模式図。黒丸はCu<sup>2+</sup>(S=1/2)を表す。

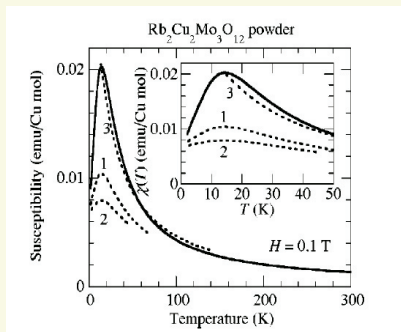


図2: Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>の磁化率(点線1:  $J_1=AF, J_2=0$ ) (点線2:  $J_1=AF, J_2=AF$ ) (点線3:  $J_1=F, J_2=AF$ )。Fは強磁性、AFは反強磁性を表す。

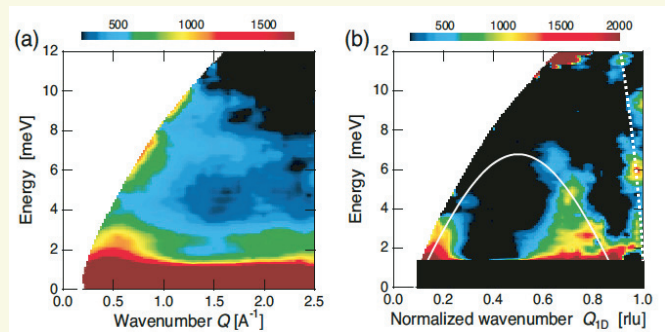


図3: (a) (Q, E)空間における強度分布。磁気励起成分を取り出すため、300 Kのデータからフォノンを見積もり、20 Kのデータから引いている。(b) (a)の解析結果。2.5 Å<sup>-1</sup>=1 rlu。1 rluに強磁性的な磁気励起が見られる(白点線)。E<sub>f</sub>-E<sub>i</sub>=Energy。

2. 方法

中性子散乱実験をJAEA、JRR-3、に設置されたLTASで行い、偏極中性子散乱実験をJAEA、JRR-3に設置されたTAS1で行った。ペレットの実験に関しては、粉末試料の配向は粉末X線回折を用いて検証し、磁化測定はSQUIDを用いた。図4のように磁化測定を行った。

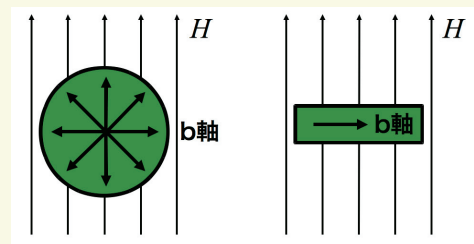


図2: Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>ペレットの磁化測定。

### 3. 実験結果

**結果** 図6にLTASでの実験結果を示す。磁気散乱成分を取り出すために、3 Kのデータから40 Kのデータを差し引いた。基底状態から励起状態に0.6 meV程度エネルギーギャップがあるように見える。エネルギーギャップは異方性を示唆する。またこれはギャップレスな理論予想と反する。

図7にペレットの磁化測定の結果を示す。b軸が磁化困難軸であるような磁化の異方性が見られる。 $\chi(\parallel)/\chi(\perp)$ のように比をとると、10 K程度で比の値が温度の減少とともに上昇する。これは、中性子散乱で観測されたエネルギーギャップのエネルギーと同程度である。

図8にTAS1での偏極中性子散乱により求められたフォノンを示す。フォノンはノンスピントリプルからスピントリプルを差し引くことで求めた。3 Kと290 KではフォノンのQ依存性が異なる。比較できるように290 Kのフォノンをボーズ因子で3 Kにおけるフォノンに補正し、さらに差を取った。

**考察** 中性子散乱で得られた磁気励起はらせん磁性であるとする、異方性はb軸に進行方向をもつサイクロイド型らせん磁性であるならば説明できる。らせん磁性では回転面に対して平行に磁場をかけたとき、 $T_N$ 以下で磁化率は減少する。するとペレットに平行に磁場をかけたときのほうが磁場に対して平行であるb軸の数が多いので、磁化が小さくなる。

図3で示した磁気散乱は、実際の磁気散乱の上に図8にあるようなフォノンの見積りの誤差が足されたものだと考えられる。しかも $Q=2.5 \text{ \AA}^{-1}=1 \text{ rlu}$ 以降で差が大きくなっている。これは、1 rlu付近に見られる(図3(b)白点線)強磁性的な磁気励起がフォノンの見積りの誤差から生じた可能性が高いことを示唆する。

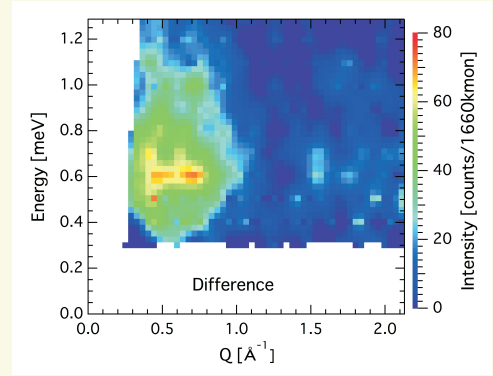


図5:  $(Q, E)$ 空間における強度分布(LTAS)。 $E_i - E_f = \text{Energy}$ 。

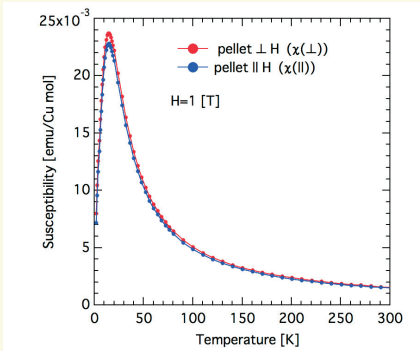


図6: ペレットの帯磁率。

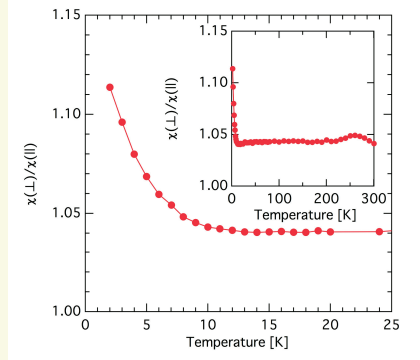


図7: ペレットの磁化率の比。  $\chi(\perp)/\chi(\parallel)$ 。

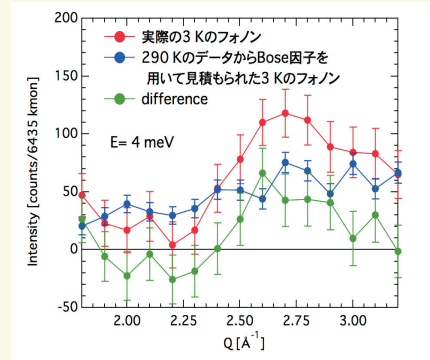


図8: 偏極中性子により観測された  $E_i - E_f = 4 \text{ meV}$ におけるフォノン(TAS1)。

### 4. まとめ

磁化測定から一重項基底が示されていること、らせん磁性であること、強磁性的な磁気構造がないことを考慮すると、 $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$ の磁気基底状態はサイクロイド型らせん磁性的な一重項であると考えられる。ただし磁化の異方性から、サイクロイド型らせん磁性として磁気モーメントも残る部分もあると考える。

### 5. 引用(参照)文献等

- [1]S. F. Solodovnikova and Z. A. Solodovnikova, Zh. Strukt. Khim. 38 914 (1997) [J. Struct. Chem. 38, 765 (1997)].
- [2]M. Hase, H. Kuroe, K. Ozawa, O. Suzuki, H. Kitazawa, G. Kido, and T. Sekine, Phys. Rev. B 70, 104426 (2004).[3]T. Tonegawa and Harada, J. Phys. Soc. Jpn. 58, 2902 (1989).
- [4]C. Itoi and S. Qin, Phys. Rev. B 63, 224423 (2001)
- [5]K. Tomiyasu, M. Fujita, A. I. Kolesnikov, R. I. Bewley, M.J. Bull, and S. M. Bennington, Appl. Phys. Lett. 94, 092502 (2009).