

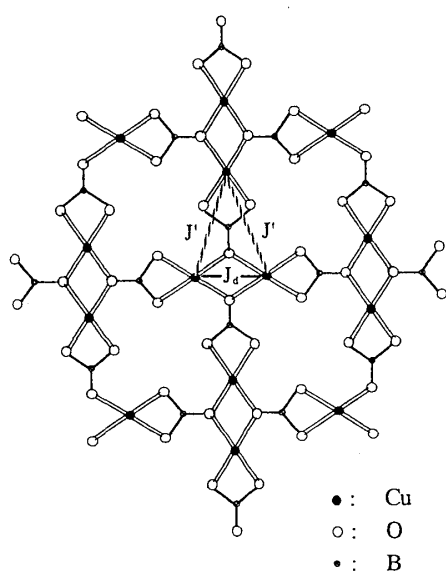
フラストレートしたダイマー系 $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ における中性子散乱実験

東京大学物性研究所附属中性子散乱研究施設 加倉井和久

概要

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ は隣接するダイマーが直交しておりダイマー間の相互作用 ($J=68\text{K}$) がダイマー内の相互作用 ($J=100\text{K}$) に比べ比較的大きいため比較的強く結合している、フラストレートした二次元ダイマー系としてみなすことが出来る。この系はダイマーの直交性から有限のダイマー間相互作用があるにもかかわらず、基底状態が厳密にダイマーの基底状態の積として理論的に記述できる。中性子非弾性散乱実験によりこの系のスピン・ダイナミクスがダイマーの直交性を反映して極端に局在するトリプレット励起 ($\Delta=3\text{meV}$) により形成されることが明らかになった。また磁場中高分解能中性子散乱実験により波数によっては零磁場中でトリプレットの縮態がすでに解けていることが明らかになった。

古典スピン系としては記述できない量子スピン揺らぎを持つ基底状態の研究が近年盛んに行われている。これは主に銅酸化物高温超伝導体において検出された二次元スピン相関の発見によるところであることは明らかで、この研究にともない数々の新しいシングレット基底状態を持つ低次元磁性系が発見された。ハルデー、スピン・パイエルス、梯子、ブラケット系等がその例である[1]。これ等の系のスピン・ダイナミクスの特徴は非磁性シングレット基底状態から第一次励起状態へのエネルギー・ギャップを持つことであり、量子スピン揺らぎの現象の典型的なものとして解釈できる。しかしこのような量子スピン系におけるフラストレーションの効果については理解が深いとは言い難い。例えばスピン・パイエルス物質 CuGeO_3 の最隣接相互作用と競合する第二次隣接相互作用がシングレット基底状態の形成にどの程度重要な役割を果たすのかは現在でも論争的である[2]。そこで競合量子スピン系におけるスピン・ダイナミクスが興味の対象となってくる。

図1: CuBO_3 面の模式図。

$\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ はSrと CuBO_3 面から構成される正方単位格子を持つ物質で、図1に模式的に示すようにa-b面上に投影した CuBO_3 面内では最隣接の二つの CuO_4 がダイマーを形成し、隣のダイマーと直角に BO_3 で結合している[3]。図1中の実線はダイマー内相互作用 (J)、点線はダイマー間相互作用 (J') を現わす。この図から明らかなように隣接したダイマーの直交配置により J' がフラストレーションの原因となる。宮原と上田[4] はこのa-b面内の相互作用ネットワークが Shastry-Sutherland 格子 [5] にマップ出来ることを指摘した。この格子の特徴は有限のダイマー間相互作用が存在するにもかかわらず、基底状態が厳密にダイマーの基底状態の積として理論的に記述

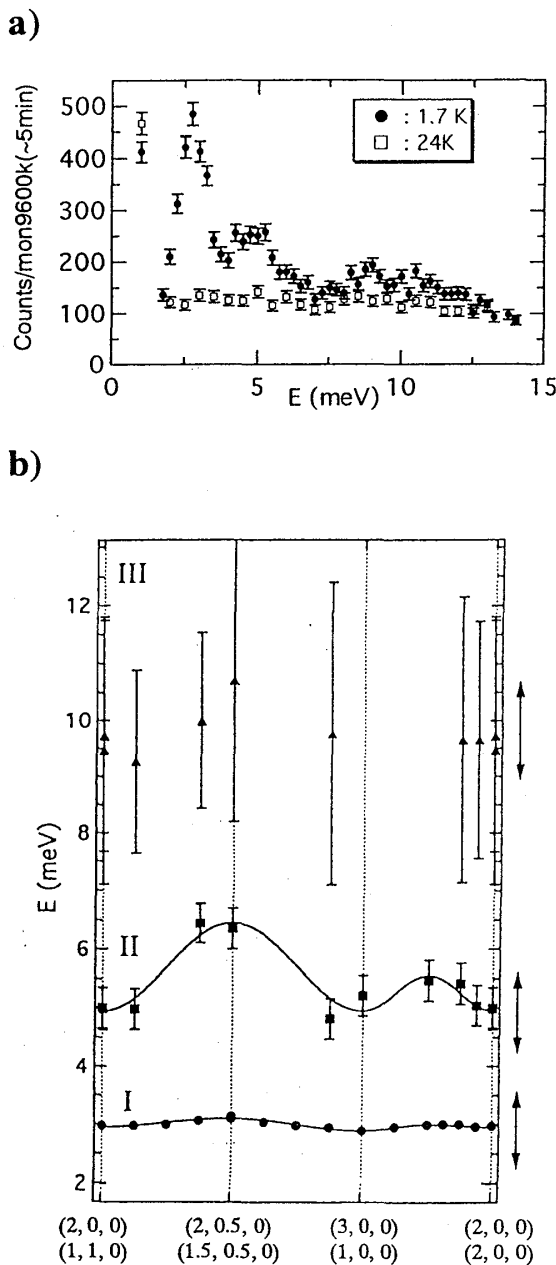


図2： ゼロ磁場中熱中性子非弾性散乱実験結果 ($k_f=2.67\text{\AA}^{-1}$)。

- a) $Q=(2,0,0)$ におけるスペクトラ。
- b) ピーク・エネルギーの波数依存性。縦棒は観測された線幅を表す。

この高分解能で観測しても分散幅は0.2meV以下であることが明瞭である。これはフラストレートしたダイマー直交系の特徴的な局在化した第一トリプレット励起状態を反映するもので、理論的には第一トリプレット励起状態が第6次項までを含んだ摂動計算で初めて隣のサイトに移動できる事実を反映している。そしてダイマー内相互作用 $J=100\text{K}$ から予想さ

できることである。宮原と上田は数値対角化によりこの系の帯磁率実験結果が $J=100\text{K}$ と $J=68\text{K}$ の両相互作用を持つ Shastry-Sutherland 格子で理解できることを示した。この結果は $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ が顕著な競合量子スピン系としてみなせることを意味する。

中性子非弾性散乱実験は日本原子力研究所改3号炉に設置された熱中性子三軸分光器 ISSP-PONTA 及び Laue Langevin 研究所高束研究炉に設置された冷中性子三軸分光器 IN12 で行われた。図 2 a) に熱中性子三軸分光器 (エネルギー分解能約 1meV) で得られた典型的な低温スペクトル (白丸) と高温スペクトル (黒丸) を示す。低温では 3meV のエネルギー遷移に分解能と同じ幅を持つ鋭い励起ピーク、5meV のエネルギー遷移にやや分解能より幅の広い励起ピーク、そして 6meV から 12meV に幅広く広がる励起群が見える。高温ではこれ等のスペクトル構造は無くなっていることから上記の励起は磁気的励起であることが明らかである。図 2 b) はこれらの励起の波数依存性を纏めたものである。3meV の励起ピークはほとんど分散を持たないが、5meV の励起ピークは約 1.5meV 程度の分散幅を示し、6meV から 12meV の幅広い励起は全領域で観測される。ダイマー非磁性基底状態から第一トリプレット励起状態への遷移であると考えられる 3meV の励起ピークの波数依存性を冷中性子三軸分光器 (エネルギー分解能約 0.2meV) でさらに詳細に調べた結果が図 3 に示してある。図 3 の挿入図はスペクトラのピーク位置及び線幅を gaussian fit により求めた結果で、縦棒はエラーではなく線幅を表わす。

れる8.6meVよりも小さいギャップ・エネルギー $\Delta=3\text{meV}$ ($\Delta/J=0.35$)はこのShastry-Sutherland格子系がダイマー相と秩序相の臨界点 (J/J_c) 近傍に位置することを示唆する。5meV及び6から12meVの励起の考察は文献[6]を参照されたい。

ここでは高分解能測定による線幅の波数依存性の詳細を議論する。図3の挿入図に示された線幅は同図に示してある分解能と比較して(1.5,0.5,0)ではそれと同じであるのに、(1,0,0)から(2,0,0)方向に関してはそれよりも50%程広いことが明らかである。この線幅の起源を探るため散乱面に垂直な磁場中における実験を行った。図4に(1,0,0)及び(1.5,0.5,0)における6Tesla磁場中のスペクトルを示す。前者の波数ではZeeman分裂したモードが二つに分裂しているのに対し、後者では単独ピークになっているのが明らかである。そして更に(1,0,0)の磁場に依存しない3meVのピークの線幅は分解能のそれと同じになっている。この結果は(1,0,0)において零磁場中で観測された有限の幅はZeeman分裂する以前に磁場依存する0.3meV離れた二つのピークと磁場依存しない単独ピークにすでに分裂していることを明らかにしている。この結果は野尻等による磁場中ESR実験結果[7]とも整合している。(1.5,0.5,0)の結果はこの零磁場中における分裂が波数依存性を持つことを明らかにしており、この分裂がsingle site効果では解釈できないことを示唆している。Cepas等によりダイマー間のDzialoshinski-Moriya相互作用導入によりこのような波数依存性を理解できることが指摘されており[8]、この解釈を検証する詳細な波数依存性の実験は近い将来予定されている。この研究は東大物性研物質設計評価施設の蔭山、上田(寛)両氏、フランスCENGのRegnault, Grenier, Føk各氏、東大物性研中性子散乱研究施設の阿曾、温井、中島、西各氏との共同研究である。

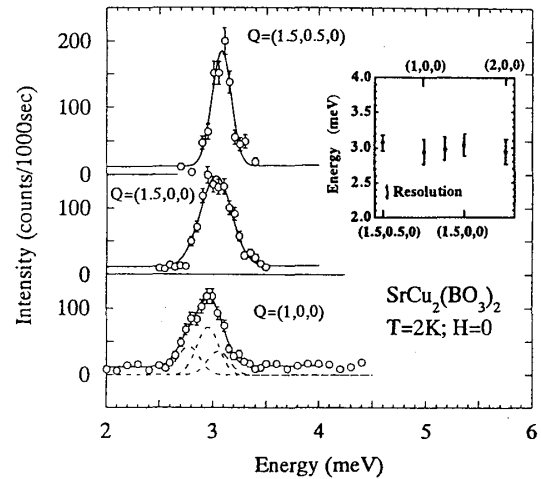


図3：ゼロ磁場中冷中性子非弾性散乱実験結果 ($k_i=1.55\text{\AA}^{-1}$)。Q=(1,0,0), (1.5,0,0), (1.5,0.5,0)における第一トリプレット励起のスペクトル。挿入図：第一トリプレット励起エネルギーの波数依存性。縦棒はsingle gaussian fitにより求められた線幅を示す。

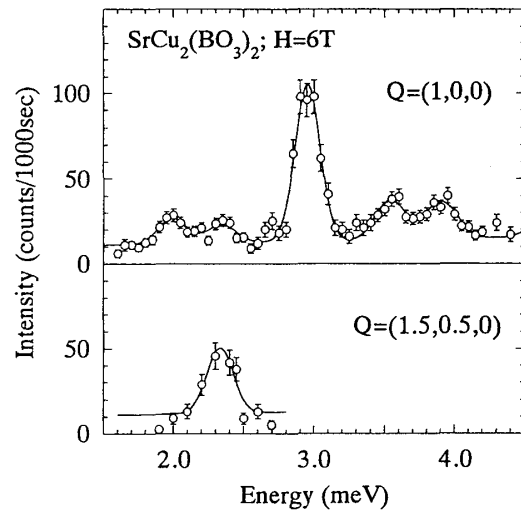


図4：6T磁場中の冷中性子非弾性散乱実験結果 ($k_i=1.55\text{\AA}^{-1}$)。Q=(1,0,0), (1.5,0.5,0)におけるZeeman分裂した第一トリプレット励起。

References

- [1] See e.g. M. Hase et al., Phys. Rev. Lett. 70 (1993) 3651; J. Darriet and L.-P. Regnault, Solid State Commun. 86 (1993) 409; M. Azuma et al., Phys. Rev. Lett. 73 (1994) 3463; S. Taniguchi et al., J. Phys. Soc. Jpn. 64 (1995) 2758.
- [2] G. Castilla et al., Phys. Rev. Lett. 75 (1995) 1823; J. Riera and A. Dobry, Phys. Rev. B51 (1995) 16098.
- [3] H. Kageyama et al., Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 3168.
- [4] S. Miyahara and K. Ueda, Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 3701.
- [5] B.S. Shastry and B. Sutherland, Physica 108B (1981) 1069.
- [6] H. Kageyama et al., Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 5876.
- [7] H. Nojiri et al., J. Phys. Soc. Jpn. 68 (1999) 2906.
- [8] O. Cepas et al., private communication