

Magnetic ground state of a pyrochlore niobate

パイロクロア型ニオブ酸化物の磁氣的基底状態

京都大学大学院理学研究科¹, 京都大学国際融合創造センター²

深澤 英人¹, 前野悦輝^{1,2}

本研究において我々は、現実の物質における量子スピン液体状態の実現の可能性について吟味した。量子スピン液体状態は、反強磁性量子ハイゼンベルグスピン ($S = 1/2$ が好ましい) をパイロクロア格子にもつ磁性体の基底状態として、理論的にその実現の可能性が予測されてきている [1, 2, 3, 4]。パイロクロア格子のもつ幾何学的フラストレーションのため、最近接スピンの間に反強磁性相互作用が働く場合、系はスピン一重項の対の組み合わせで記述され、さらにその状態は巨視的に縮退している。そのため、低温において、従来の反強磁性長距離秩序状態とは異なる、磁気無秩序状態が実現すると予測されている。

実際の物質群として、我々はパイロクロア型酸化物 $A_2B_2O_7$ を研究した。 $A_2B_2O_7$ では、 A イオンと B イオンそれぞれが独立に入り組む形でパイロクロア格子を形成している。その中で、我々は絶縁体 $Y_2Nb_2O_7$ (Y^{3+} : 非磁性; Nb^{4+} : $4d^1$) を合成することに成功した [5]。この物質に対しては、各サイトあたりひとつ存在する t_{2g} 軌道の $4d$ 電子が $S = 1/2$ スピンとしてふるまうことを期待できる。したがって、我々はこの物質を“ $S = 1/2$ ” のパイロクロア型酸化物と見なすことができる。さらに、最近接スピン間の相互作用が反強磁性的であれば、この物質は反強磁性量子ハイゼンベルグスピンをパイロクロア格子にもつ磁性体の有力候補になりうる。我々の知る限り、 $Y_2Nb_2O_7$ の磁性に関して今までに報告はない [5]。

図 1 に、 $Y_2Nb_2O_7$ の磁化率の温度変化を示す。磁化率は、約 250 K 以上でやや増加するものの、それ以外は低温でキュリー・ワイス成分を示すのみで、磁気相転移の兆候は 0.35 K と 800 K の間では観測されなかった。さらに、低温におけるキュリー・ワイス成分は、この物質における Nb の価数が 4 ($4d^1$, $S = 1/2$) であると考えられるにもかかわらず、各 Nb サイトに $S = 1/2$ スピンが 100% 存在した場合に対して、約 0.3% 程度のものではあった。これに対応した実験事実、その他の物理量 (低温における磁化曲線および磁場中における磁気比熱) でも確認された。例として、図 1 の挿入図に、 $Y_2Nb_2O_7$ の磁場中における磁気比熱 (C/T) を示した。この磁気比熱は、二準位系のショットキー比熱を用いて解析することができ、その特徴的な温度スケールは、測定磁場強度である 5 T における $S = 1/2$ スピンのゼーマンエネルギーとよく一致した。さらに、この磁気比熱の大きさも、各 Nb サイトに $S = 1/2$ スピンが 100% 存在した場合に対して、約 0.3% の量であることがわかった。すなわち、 $Y_2Nb_2O_7$ における $S = 1/2$ スピンは、よく定義されたものではあるが、その量はほとんど無視できるほどでしかないことが明らかになった。

¹ E-mail: hideto@scphys.kyoto-u.ac.jp

以上の実験事実は、この物質における量子スピン液体状態の実現を示したことにはなっていない。今後定量的な理解を必要とするものの、 $Y_2Nb_2O_7$ における非磁性基底状態は、むしろ d 電子系パイロクロア型酸化物の特徴的なバンド構造に由来するものと考えられる。

本研究は、東中隆二氏、坂井修氏、社本真一助教授、石田憲二助教授、菊川直樹博士、柳島大輝氏によるご助力、ご助言のおかげで遂行することができたものです。ここに深く感謝いたします。また、藤本聡博士、播磨尚朝助教授、山田耕作教授、矢口宏助手、出口和彦氏には大変有意義な議論をしていただき、理解をすすめることができました。感謝いたします。深澤は、日本学術振興会特別研究員として研究奨励費による支援を受けています。本研究は、文部科学省・特定領域研究「遷移金属酸化物における新しい量子現象」の科学研究費による支援を受けて遂行されたものです。

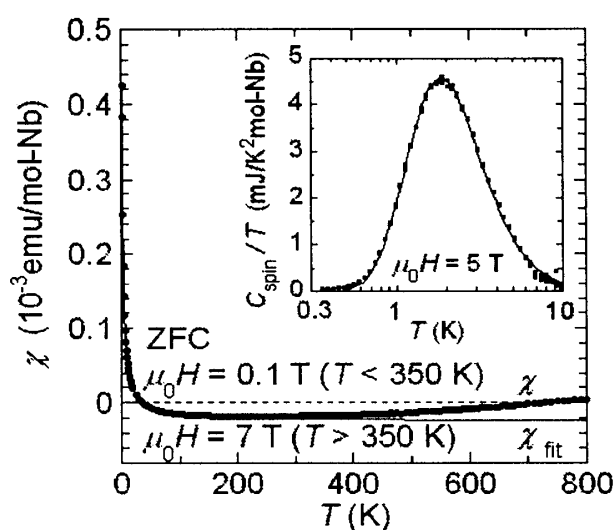


図 1: $Y_2Nb_2O_7$ の磁化率の温度変化。データは零磁場冷却 (ZFC) 後に測定したものを示した。挿入図に、磁場中における磁気比熱を示した。

参考文献

- [1] A. B. Harris, A. J. Berlinsky and C. Bruder, J. Appl. Phys. **69** (1991) 5200.
- [2] B. Canals and C. Lacroix, Phys. Rev. Lett. **80** (1998), 2933.
- [3] A. Koga and N. Kawakami, Phys. Rev. B **63** (2002), 144432.
- [4] H. Tsunetsugu, Phys. Rev. B **65** (2002), 024415.
- [5] H. Fukazawa and Y. Maeno, to be published in Phys. Rev. B (2003).