

KCuF₃における軌道波

名古屋大学 理学部 川瀬 聡,¹ 水貝 俊治²

KCuF₃ は 3 次元結晶構造にも関わらず $S = 1/2$ の 1 次元反強磁性を示す。この磁性を説明するために Kugel and Khomskii [1] は 30 年近く前に、正孔の $3d_{x^2-y^2}$ と $3d_{y^2-z^2}$ の e_g 軌道が反強磁性的に規則的に配列するモデルを提案した。スピン波のニュートロン散乱より決められた c -軸方向の交換相互作用は $J_c = 53.5 \times 2/\pi$ meV ($= 273$ cm⁻¹) である [2]。温度を下げていくと $T_N = 39$ K 以下で 3 次元磁気秩序が発生し、 a -型反強磁性体になる。それにともない $S = 1/2$ のスピン鎖間相互作用によって新しい縦波の磁気励起が $k \approx 0$ に発生する事がニュートロン散乱により示された [3]。また 3 次元磁気秩序の発生に先だって軌道が変化することが共鳴 X 線散乱の実験から見つかり、軌道とスピンの自由度の強い結合が示された [4]。縮退した e_g 軌道の励起はスピン波、軌道波、スピン軌道混成波を形成する [5]。この軌道波をラマン散乱で検出することを試みた。

KCuF₃ 単結晶試料はフローティングゾーン法で作製し、5145 Å のレーザ光を用いて擬後方散乱条件でラマン散乱の測定を行った。第 1 図に (xx) 偏光のラマンスペクトルの温度変化、第 2 図に低エネルギー領域の拡大図を示す。5 K のラマンスペクトルに現れる 500, 2100, 4650 cm⁻¹ の非常に幅の広いピークは軌道波であると考えられる。これらのピークは量子揺らぎが大きいために幅が広がっていると考えられる。温度を上げていくと、ピーク強度は減少して行く。4650 cm⁻¹ のピークは T_N 以上で消失するので、これは共鳴 X 線散乱で見つけられたような、3 次元磁気秩序下で形成される軌道秩序 [4] と関係していると考えられる。500, 2100 cm⁻¹ のピークは 150 K 以上で緩やかに減少する。これは軌道のゆらぎが増大するためであると考えられる。

1 次元系の 2-マグノン散乱はラマン散乱不活性であるので T_N 以上では磁気励起のラマンスペクトルは現れない。第 2 図で、 T_N 以下のスペクトルに出現する 151 cm⁻¹ のピークは 3 次元磁気秩序の形成にともなう $S = 1/2$ のスピン鎖間の相互作用によるモードで、Lake ら [3] によるニュートロン散乱の結果と一致する。266 cm⁻¹ B_{2g} 、374 cm⁻¹ A_{1g} 、563 cm⁻¹ B_{2g} モードは 150 K 以上で急速に散乱強度が低下する。374 cm⁻¹ モードは逆位相 2 次元四重極モード、266 cm⁻¹ モードは逆位相 3 次元四重極モード、563 cm⁻¹ モードは逆位相ブリッジング・モードである [6]。これらのフォノンの強度の温度変化は軌道波と同様で、フォノンの緩和が軌道の揺らぎと強く関係していることを示している。

¹ E-mail: f020215m@mbox.media.nagoya-u.ac.jp

² E-mail: sugai@nucc.cc.nagoya-u.ac.jp

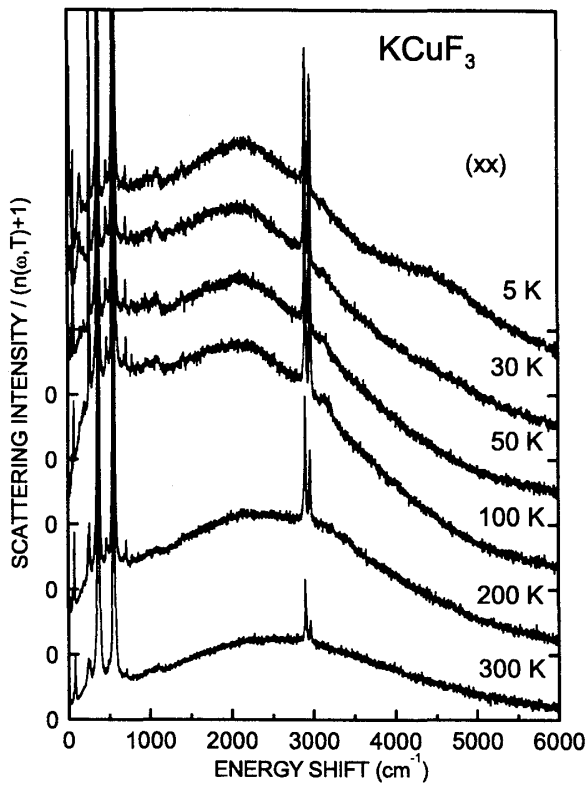


図 1: KCuF_3 の (xx) ラマンスペクトルの温度変化

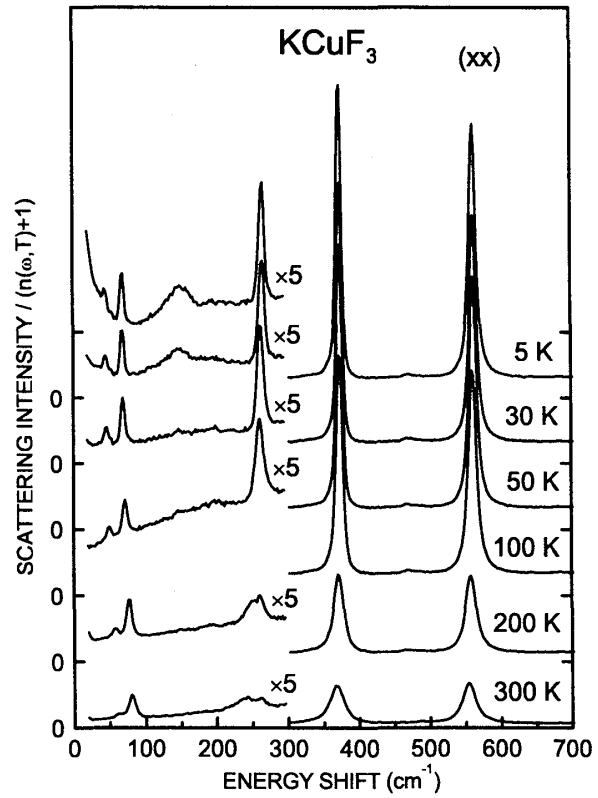


図 2: KCuF_3 の低エネルギー・ラマンスペクトル

参考文献

- [1] K. I. Kugel and D. I. Khomskii Sov. Phys.-JETP, **37**, (1973) 725.
- [2] S. K. Satija, J. D. Axe, G. Shirane, H. Yoshizawa, and K. Hirakawa, Phys. Rev. B **21**, (1980) 2001.
- [3] B. Lake, D. A. Tennant, and S. E. Nagler, Phys. Rev. Lett. **85**, (2000) 832.
- [4] L. Paolasini, R. Caciuffo, A. Sollier, P. Ghigna, and M. Altarelli, Phys. Rev. Lett. **88**, (2002) 106403.
- [5] A. M. Oleś, L. F. Feiner, and J. Zaanen, Phys. Rev. B **61**, (2000) 6257.
- [6] T. Ueda, K. Sugawara, T. Kondo, and I. Yamada, Solid State Commun. **80** (1991) 801.