

磁化プラトーを示す量子スピン磁性体 NH_4CuCl_3 における局在マグノンの配置

NMR studies of triplet localization in the quantum spin system NH_4CuCl_3

上智大・理工 後藤貴行, 大沢明
東工大・理 田中秀数
東北大・金研 佐々木孝彦, 小林典男
T. Goto¹, A. Oosawa¹, H. Tanaka², T. Sasaki³ and N. Kobayashi³
¹ Faculty of Science and Technology, Sophia University
² Faculty of Science, Tokyo Institute of Technology
³ Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

均質なスピンギャップ磁性体において磁場誘起されたトリプレットサイトは、近接スピンとの相互作用の横成分によって系内を動き回り、ボース粒子とみなされる。動き回るトリプレットサイトは、結晶内にシングレットとトリプレット波動関数のコヒーレントな混じり込みを生じさせ、これはボゾンによるボースアインシュタイン凝縮(BEC)とみなすことが出来ると言われている。

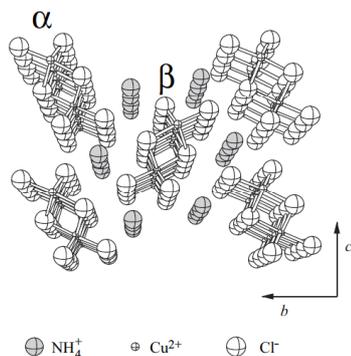


図1 NH_4CuCl_3 の結晶構造($P2_1/c$)。

一方、乱れたスピンギャップ系や、交換相互作用の縦成分が強い場合は、トリプレットサイトは結晶内で局在化し Wigner 結晶化する。良く知られているように TlCuCl_3 はマグノン BEC を引き起こす典型的なスピンギャップ磁性体であるが、これと同形の結晶構造を持つ NH_4CuCl_3 は磁気的性質は全く異なり、磁化曲線に二段のプラトーを示す。このプラトーの発生原因について様々なモデルが提唱されているが、未だ解決に至っていない。

図1に NH_4CuCl_3 の結晶構造を示す。単位胞内に方

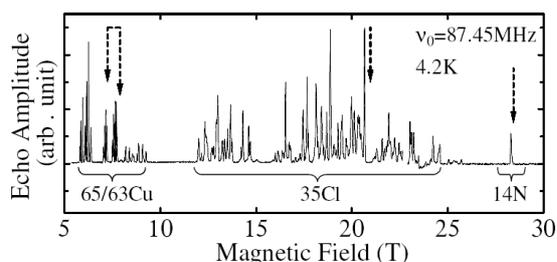


図2 強磁場 Cu-NMR スペクトル。破線矢印は左から $^{65/63}\text{Cu}$, ^{35}Cl , ^{14}N 核のゼロシフト位置[1]。

向の異なる二種のダイマー α 、 β が存在している。Rüeggらによるモデルでは低温で b 軸が二倍長となった単位胞内に三種類の磁氣的に非等価なダイマーが個数比1:2:1で存在し、それらが異なる飽和磁場を持つために二段のプラトーが生ずるとされている。この三種類のダイマーの方向は α 、 β 、 α あるいは β 、 α 、 β のいずれかである。

本研究では強磁場 NMR によって、 NH_4CuCl_3 において低温で局在したトリプレットサイトの結晶内の配置についての知見を得ることができた[2]。

2. 実験方法

蒸発法によって作製した単結晶試料について、試料回転型 NMR プローブを用いて、超伝導マグネット内で磁場方位を変えながらスペクトルの測定を行った。

3. 結果・考察

まず、以前に測定した強磁場 Cu-NMR スペクトルを図2に示す[1]。30T までの測定で、Cu 核の信号は、シングレットサイトからのみのもが観測され、高磁場での信号は全て塩素核からのものである。トリプレットサイトの Cu 核の信号はオンサイトでの大きな超微細場の揺らぎのため、核スピン緩和時間が短くなり過ぎて観測されない[1]。

シングレットサイトの信号についてダイマー α 、 β のいずれかからのものであるか帰属を調べるため、強磁場中で単結晶を回転させながらスピンエコー強度をプロットする測定を行った。図3に示すように、各同位体、各遷移の信号をダイマー α 、 β について別々に観測することが出来た。ここで、測定磁場は第一、第二プラトーの間であるため、三種類の非等価ダイマーのうち最も低い飽和磁場を持つものは完全に磁化飽和しており、信号は観測されないはずである。よって、NMR で観察されるシングレット状態の α と β の個数比は異なるものと考えられる。しかしながら実験結果は、 α 、 β のダイマーが同数観測されている。以上のことはマグノンの配置に関する理論モデルについて強い束縛条件を課する結果となったと言える[2]。

最後に、これらの磁場誘起マグノンが結晶内空間において局在していることが NMR によって明らかになったことを記す。通常、マクロ磁化と NMR によって測定される局所磁化の温度依存性は超微細結合定数を比例定数としてスケールする。

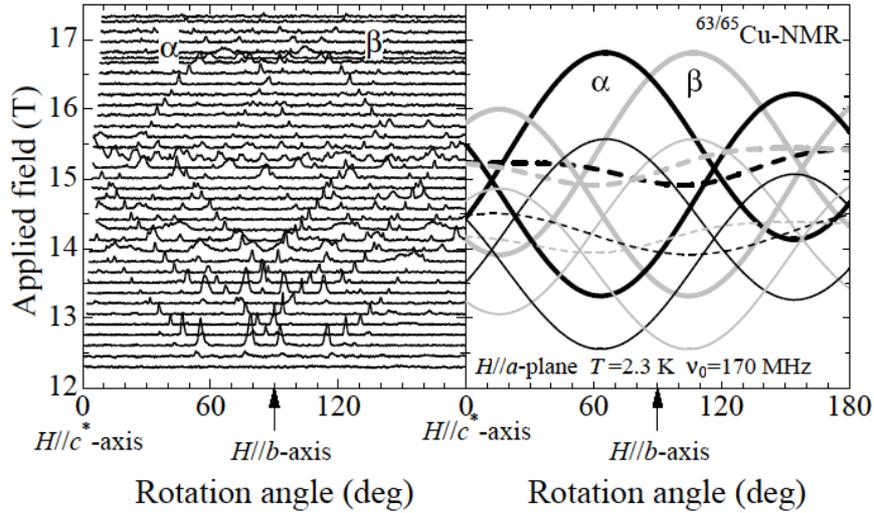


図3 強磁場での単結晶試料回転スペクトル(左)。右は、電気四重極定数 ${}^{63}\nu_Q=39.2\text{MHz}$ (主軸は Cu_2O_6 面に垂直)、ナイトシフト $K=0$ として得られた計算曲線。

しかし、本系の場合、塩素核のNMRピークに、両者の温度依存性がスケールするものと、全くしないものの二種類が現れた。

これは図4に示すように、マグノンが局在するダイマーサイト(A)とそうでないダイマー(B)からの信号に対応するものと解釈できる[2]。マクロ磁化はマグノンによって支配されるため、局在位置の局所磁化とはほぼ一致する。一方、局在しないサイト(B)の局所磁化は、低温でマグノンの局在長が縮まるに連れて単調減少することが見て取れ、実際に実験結果と一致している[2]。この局在化現象は、中性子非弾性散乱等でも分散が極めて小さいダイマー励起として報告されている結果ともコンシステントである。

4. まとめ

磁化プラトーを示す量子スピン磁性体の強磁場 Cu/Cl-NMR によって、磁場誘起マグノンの局在化現象と、その空間配置に関する知見を得た。

参考文献

- [1] Hosoya *et al.*, *Physica* **B329-333** (2003) 977-978.
- [2] Inoue *et al.*, *Phys. Rev.* **B79**, 174418 (2009)

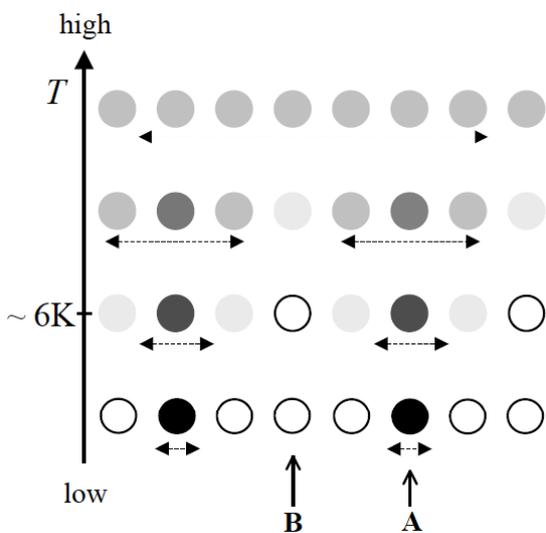


図4 低温で磁場誘起マグノンが局在するようす。円はダイマーを、濃度はトリプレットの混成分率に対応している。水平矢印はマグノンの局在長を表す。