

# Shastry-Sutherland 系 $TbB_4$ における強磁場 NMR 測定

## NMR study on Shastry-Sutherland system $TbB_4$

上智大理工 大沢明, 浦野萌美, 風間吉則, 高木広平, 後藤貴行  
 東北大 CINTS 吉居俊輔  
 東北大金研 佐々木孝彦, 小林典男  
 広大院先端物質 道村真司, 伊賀文俊, 高島敏郎

A. Oosawa<sup>1</sup>, M. Urano<sup>1</sup>, Y. Kazama<sup>1</sup>, K. Takagi<sup>1</sup>, T. Goto<sup>1</sup>, S. Yoshii<sup>2,3</sup>, T. Sasaki<sup>2</sup>, N. Kobayashi<sup>2</sup>,  
 S. Michimura<sup>4</sup>, F. Iga<sup>4</sup> and T. Takabatake<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Faculty of Science and Technology, Sophia University

<sup>2</sup>Institute for Materials Research, Tohoku University

<sup>3</sup>Center for Integrated Nano Technology Support, Tohoku University

<sup>4</sup>Institute for Advanced Materials Research, Hiroshima University

### 1. はじめに

Shastry-Sutherland 格子とは反強磁性相互作用  $J'$  で形成された二次元正方格子に、幾何学的に反強磁性対角相互作用  $J$  を導入した格子である。特に  $S=1/2$  の場合においては、交換相互作用の比  $J'/J$  が小さい領域で、 $J$  で結ばれた  $S=1/2$  二量体(ダイマー)がスピン三重項を形成し、系の基底状態が厳密にそれらスピン三重項の直積として表せることが示されている[1]。近年これを実現した初めての系として  $SrCu_2(BO_3)_2$  が発見され、Shastry-Sutherland が示した通りの基底状態が確認されたことで良く知られるようになった[2]。また、Shastry-Sutherland 格子では、ダイマー間に強いフラストレーションが働いているためにダイマーが強く局在することを反映して、印加磁場によって誘起されたスピン三重項が Wigner 格子を形成することに伴う磁化プラトーが発現することが期待される。実際、 $SrCu_2(BO_3)_2$  において多数の磁化プラトーが観測され[3]、また強磁場 NMR 測定によって実際にスピン三重項の Wigner 格子が形成されていることが観測された[4]。

最近、 $RB_4$  ( $R$ =Rare-Earth)の系においても磁性イオンが Shastry-Sutherland 格子を形成していることが見いだされ、盛んに研究が行われている。特に本研究で対象とする  $TbB_4$  では強磁場磁化過程において9段ステップの磁化ジャンプが観測され、非常に興味を持たれている系である[5]。しかしながら、 $4f$  電子系  $RB_4$  では軌道角運動量が残るために磁気モーメントは大きくなり( $Tb^{3+}$  では  $J=6, g_J=3/2, M_{sat}=9 \mu_B$ )、また磁気相互作用も伝導電子を介した RKKY 相互作用によるものと考えられるので、観測された9段の磁化ジャンプは  $SrCu_2(BO_3)_2$  で観測された多数の磁化プラトーとは異なる起源であることが考えられる。一つの可能性として、Shastry-Sutherland 格子が持つフラストレーションに起因していることが期待される。実際に  $TbB_4$  では  $T_{N1}=44$  K 及び  $T_{N2}=24$  K で逐次の磁気相転移を起こし、フラストレーションの存在を示唆している。しかしながら、零磁場での磁気構造は Matsumura らによる中性子散乱実験で容易面型のノンコリニア構造であることが示されている[6]ものの、磁場中での磁気構造の変化は全くわかっていない。

我々は  $TbB_4$  における磁化ジャンプに伴う磁気構造

の変化を探るために、単結晶試料を用いた強磁場 NMR 測定を始めた。

### 2. 実験

試料は FZ 法によって作製された約  $3 \times 3 \times 0.5$  mm の単結晶を用い、磁場を  $c$  面に垂直に印加(磁化困難軸方向)して、東北大金研強磁場センター20T 超伝導マグネットを用い、第一磁化ジャンプの見られる  $H_C \approx 16.5$  T

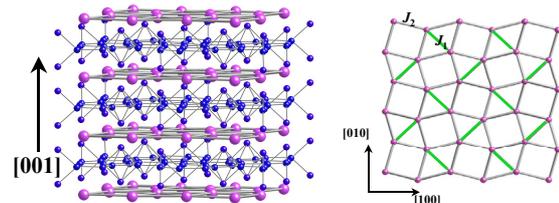


図 1  $TbB_4$  の結晶構造(左)と Shastry-Sutherland 格子(右)

の前後 14~17T において  $^{11}B$ -NMR スペクトル及びスピンスピン緩和時間  $T_2$  の測定を行った。

本試料はシュベニコフ・ド・ハース振動が観測されるほど純良であり、伝導性が高いため、単結晶試料では

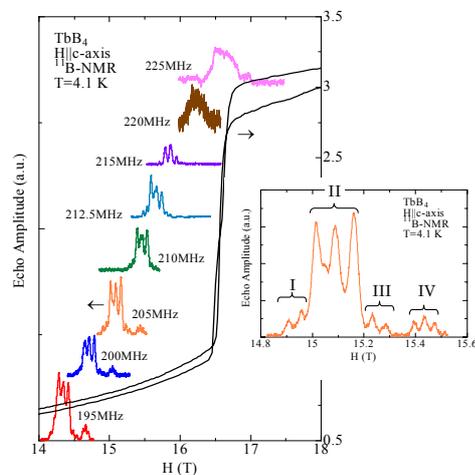


図 2 各共鳴周波数における NMR 磁場掃引スペクトル及び拡大図(インセット)。

表皮効果によってNMR 励起パルスが排除されてしまい、S/N 比は著しく劣化する。本研究では十分な積算時間を

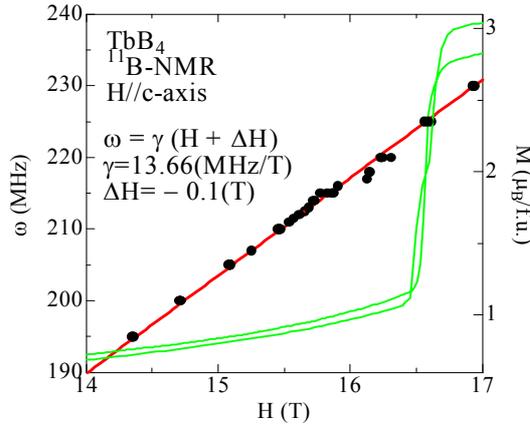


図3 スペクトルの重心位置シフト(サイトIIの中心線位置)の磁場依存性。

を取ることでこれに対処した。

### 3. 結果

各共鳴周波数を195~230MHzまで変えて測定した磁場掃引スペクトルを図2に示す。磁化ジャンプの磁場  $H_C$  よりも低磁場では  $^{11}\text{B}$  核の電気四重極相互作用 ( $I=3/2$ )を反映した  $^{11}\text{V}_Q/^{11}\gamma=500$  Oe 程度の三本のピーク分裂(強度比 3:4:3)を一つのセットとすると、異なる超微細場を受けた4つのサイト(I~IV)が分離して観測された(図2挿入図)。磁場を上げて行くと、 $H_C$  近傍ではこれらの構造は消え、ブロードな単一ピークとなる。しかしながら、スペクトルの重心位置(サイトIIの中心のピーク)は、臨界磁場の上下で大きな変化はなく、小さな一定のシフト( $K<1\%$ )に留まる(図3)。

なお、スピンスピン緩和時間  $T_2$  は印加磁場と共に急

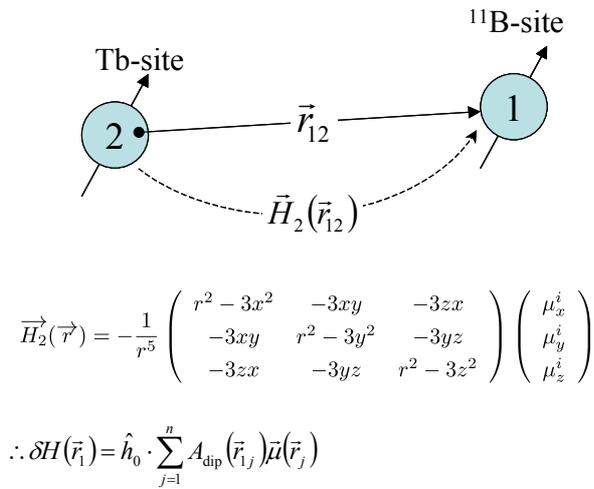


図4 古典的雙極子-雙極子相互作用による  $^{11}\text{B}$  サイトにおける  $\text{Tb}^{3+}$  の作る磁場。  $r_{12} < 40\text{\AA}$  の範囲で和を計算した。但し、  $\hat{h}_0$  は印加磁場方向の単位ベクトル。

激に短くなる。 $H_C$  近傍ではサイトIIの  $T_2$  は  $10\mu\text{s}$  以下となり信号強度は著しく減少する。特にサイトIVでは  $15.5\text{T}$  で  $5\mu\text{s}$  を切り、それ以上の磁場ではI~IIIのサイトのみが観測される。

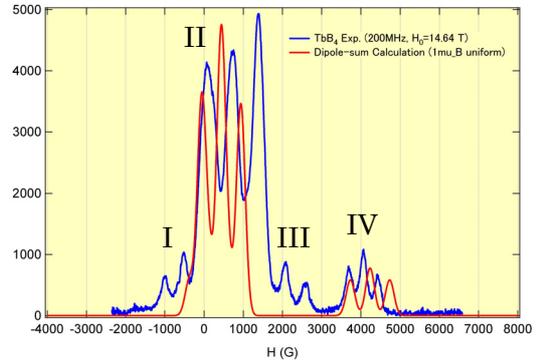


図5 Matsumura らによる容易面型ノコリニア構造をベースに uniform に  $1\mu_B$  の磁化( $//c$ -axis)が出ているスピン構造を仮定して双極子磁場を計算した結果(赤線)。観測スペクトルは青線。サイトI, IVのみが再現されている。

これらのスペクトルの振る舞いを説明するために、 $\text{Tb}^{3+}$  の磁気モーメントが  $^{11}\text{B}$  サイトに作る dipole 磁場を計算した。古典的な雙極子-雙極子相互作用テンソルを仮定した上で、 $\text{Tb}^{3+}$  の磁気構造についてはいくつかのパターンについて、図4に示すような“dipole-sum”を計算し、得られた共鳴線位置のセットに対して、四重極相互作用による分裂を  $^{11}\text{V}_Q/^{11}\gamma=500$  Oe と仮定して、さらに適当なガウシアン( $\text{FWHM}\approx 260\text{Oe}$ )でコンボリュートすることで、観測スペクトルとの一致を調べた。

まず、Matsumura らによる零磁場での中性子散乱によって提唱された容易面型ノコリニア構造[6]を仮定すると、サイトI, II, IIIのみが再現された。一方、NMRの測定磁場における一様磁化の値 ( $M\approx 1\mu_B$ ) を考慮して、スピンを  $c$  軸方向に一様に傾かせた構造を考えると、図5に示すようにサイトI, IVのみが再現される。以上の結果を単純にまとめると、 $H//c$  の磁場中 ( $H < H_C$ ) における磁気構造は、空間的に一様ではなく、二つの構造の重ね合わせとなっている可能性がある。

### 参考文献

- [1] B. S. Shastry and B. Sutherland: Physica B 208 (1981) 1069.
- [2] H. Kageyama *et al.* Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 3168.
- [3] K. Onizuka *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. 69 (2000) 1016.
- [4] K. Kodama *et al.* Science 298 (2002) 395.
- [5] S. Yoshii *et al.* J. Mag. Mag. Mater. 310 (2007) 1282.
- [6] T. Matsumura *et al.* J. Phys. Soc. Jpn. 76, 015001 (2007).