

ブリージングパイロクロア格子反強磁性体
Ba₃Yb₂Zn₅O₁₁における超高分解能中性子散乱研究

物質系専攻 47-176017 菊地 帆高

指導教員：益田 隆嗣 (准教授)

キーワード：中性子散乱、フラストレート磁性体、希土類化合物

[研究背景・目的]

磁性体における幾何学的フラストレーションは低温において非自明な磁気状態を示すために盛んに研究されてきた[1]。四面体が頂点共有している構造を持つパイロクロア格子は代表的なフラストレート格子系の1つである。スピンの間に反強磁性相互作用がはたらく場合、スピンのような向きで配置されようと系の最低エネルギーを持つ状態が一意に定まらない。現実の物質では熱力学第3法則により絶対零度において系の基底状態は唯一であり、系の基底状態を一意に定めるためにDM相互作用やヤーンテラー効果[2]などの摂動が大きな役割を果たす。

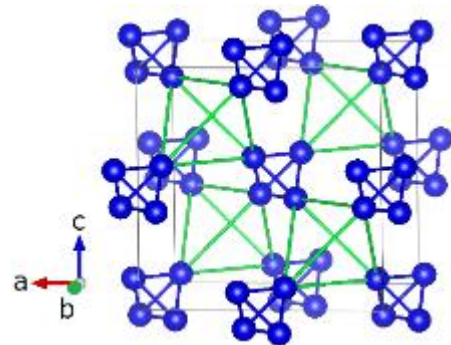


図1 Ba₃Yb₂Zn₅O₁₁の結晶構造。
Yb³⁺イオンのみを描いている。

ブリージングパイロクロア格子系は大小2種の四面体が交互に頂点共有している構造を持つ。ブリージングパイロクロア格子系は四面体クラスター系とパイロクロア系の中間的な磁気状態をとることが予想され、理論計算における摂動展開法の実現という点で興味深い[3]。

最近、希土類化合物のブリージングパイロクロア格子系 Ba₃Yb₂Zn₅O₁₁ が報告された[4]。磁性イオンは Yb³⁺ (4f¹³, J=7/2) である。結晶場基底状態はクラマース2重項であり、基底状態と励起状態のエネルギーギャップが523 Kと大きいことから、十分低温において本物質は擬スピン1/2系とみなすことができる。中性子非弾性散乱(INS)実験から本物質がXXZモデルとDM相互作用を持つ四面体クラスターモデルで説明できることが明らかになったが、1.5 Kでは分光器エネルギー分解能の範囲では基底状態が2重縮退したままであった[5]。一方で極低温までの比熱の温度依存性から1.5 K以下で2重縮退が開放されていき、63 mKにブロードなピークが観測された。ここから、基底状態と第1励起状態のギャップが10 μeV程度であること、縮退開放機構がスピンヤーンテラー効果によるランダムネスな四面体歪みモデルや四面体間相互作用による部分二量体化モデル[3]などが提案された。

そこで本研究ではブリージングパイロクロア格子系 Ba₃Yb₂Zn₅O₁₁ における基底状態の観測及び格子歪みの有無の観測を目的とした。

[実験方法]

中性子非弾性散乱実験はJ-PARC/MLFに設置されたダイナミクス解析分光器DNAを用いて行った。当該分光器ではSi結晶の背面反射によりエネルギー選別を行うため10 μeV以下の超高分解能が実現されている。また、50 mK以下の低温を実現するため希釈冷凍機を用いた。Ba₃Yb₂Zn₅O₁₁の粉末試料を14.45g用いた。また、試料粒子間の熱接触を向上させるため2.4gのD₂Oにより粉末試料を湿らせた。

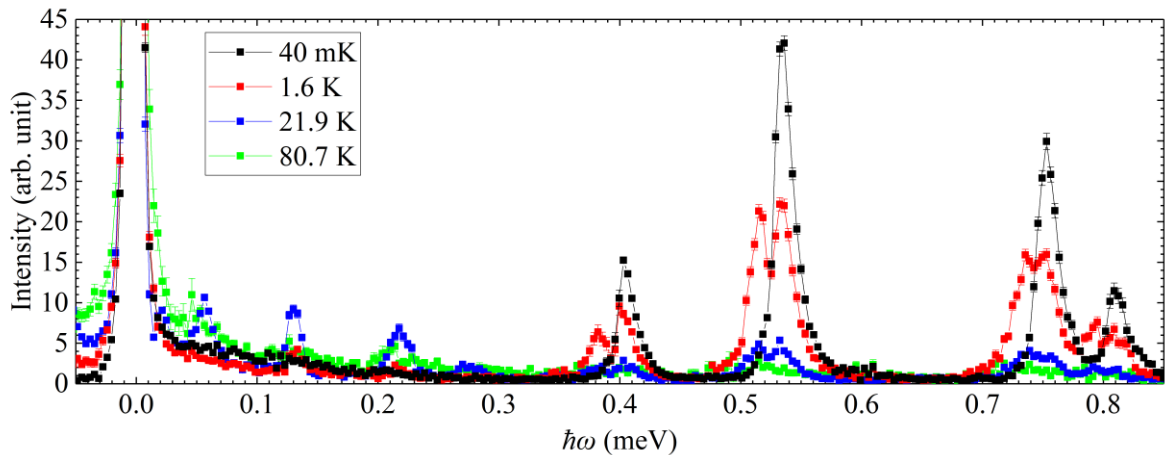


図2 DNA分光器を用いて測定された $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ 粉末試料の中性子散乱強度のエネルギー依存性。 $-0.05 \text{ meV} < E < 0.85 \text{ meV}$ の範囲を描いた。 Q 方向の積算範囲は $0.25 \text{ \AA}^{-1} < Q < 0.95 \text{ \AA}^{-1}$ である。

中性子回折実験は J-PARC/MLF に設置された超高分解能粉末中性子回折装置 SuperHRPD を用いて行った。当該分光器は中性子源から試料までの距離を約 100 m とすることで世界最高分解能が達成されている。冷凍機にはトップローディング型冷凍機を用いた。 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の粉末試料を 1.86g (密度は 2.34 g/cm^3) を用い、He ガスを封入した。

[実験結果・考察]

図2は非弾性スペクトルを $0.25 \text{ \AA}^{-1} < Q < 0.95 \text{ \AA}^{-1}$ の Q 領域で積分し、エネルギーの関数として示したものである。40 mK では 0.3 meV 以上でシャープな磁気励起が4つ観測された。これらの励起エネルギーは先行研究と矛盾しない。一方、高温では 0.3 meV 以下に複数の励起が観測された。加えて 40 mK で観測された磁気励起よりも 22 μeV 低いエネルギーに新しい励起が出現した。これらのダブルピークの励起エネルギーは 1.6 K と 21.9 K とで温度変化していない。

高温のダブルピークは、22 μeV を固有エネルギーとする第1励起状態が存在し、この励起状態と基底状態の双方からより高いエネルギーの励起状態への遷移を検出していると考えられる。一方 40 mK では基底状態のみが占有されているためシャープなシングルピークが観測されている。ダブルピークは 1.6 K と 21.9 K の両方で観測され、それらのエネルギーは温度変化しないことから、22 μeV の第1励起状態はこれらの温度で存在していることが分かる。0.3 meV 以下に高温で現れる励起は、第2励起以上の励起状態間の遷移であると考えられる。

実験結果を矛盾なく説明するエネルギー準位図として図3を提案する。正四面体モデルを仮定した先行研究では基底状態が2重縮退となっていたが、本実験ではその縮退は解けている。第2励起エネルギー以上のエネルギー準位は先行研究と矛盾しない。今回観測された 22 μeV の第1励起状態は、先行研究では実験分解能のために観測されていなかった。21.9 K で第1励起状態が観測されていることから、21.9 K よりも高温でスピニャーンテラー効果による格子歪みが発生して

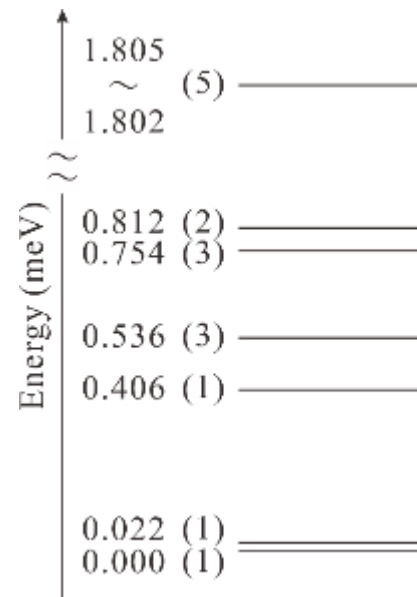


図3 本物質のエネルギー準位。単位は meV である。

おり、正四面体の基底状態の2重縮退は21.9 Kにおいて既に解かれていることが分かる。基底状態から第1励起状態への遷移が観測されない理由は、基底状態と第1励起状態の全スピンの0に近く[5]中性子散乱断面積が小さいためである。

実験結果は、図4(a)挿入図にある2種類の歪んだ四面体が1:1で存在するモデルで説明された。正四面体を内包する立方体について結晶の基本格子ベクトル方向に伸縮させたモデルである。(a)と(b)はそれぞれ1.6 Kと21.9 Kにおける計算結果である。様々な歪み方をした四面体モデルで計算を行ったが、図4(a)の挿入図のモデルが最も実験結果を再現した。

図5に19.2 Kにおける中性子回折プロファイルを示す。先行研究の歪みのない結晶構造で再現された。20-300 Kの温度域で温度依存性も測定したが、対称性の変化を示すピークの分裂は観測されなかった。四面体の歪みは超高分解能粉末中性子回折装置の角度分解能でも検出できなかった。

[まとめ]

本研究では粉末試料 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ を用いて超高分解能中性子散乱実験を行った。非弾性散乱実験から基底状態の観測を行い、その縮退開放機構がスピンヤーンテラー効果によるものであることが分かった。計算結果との比較により、本物質が歪んだ四面体モデルで説明されることが明らかとなった。

[参考文献]

- [1] P. W. Anderson, *Mat. Res. Bull.* **8**, 153 (1973).
- [2] Y. Yamashita and K. Ueda., *Phys. Rev. Lett* **85**, 4960 (2000).
- [3] H. Tsunetsugu, *Phys. Rev. B* **65**, 024415 (2001).
- [4] K. Kimura *et al.*, *Phys. Rev. B* **90** 060414(R) (2014)
- [5] T. Haku *et al.*, *Phys. Rev. B* **93**, 220407(R) (2016).

[論文・学会発表]

- 1, H. Kikuchi, M. Hagihala, S. Asai, and T. Masuda, 「Inelastic neutron scattering for Kagome Triangular lattice CsCrF_4 」, The 16th Korea-Japan meeting on Neutron Science, P6, Chiba, January 2018. (ポスター)
 - 2, 菊地 帆高、真中 浩貴、萩原 雅人、浅井 晋一郎、伊藤 晋一、益田 隆嗣、日本物理学会 2018 年秋季大会 11pC210-8 「カゴメ三角格子 CsCrF_4 の中性子非弾性散乱実験」(口頭発表)
- 他 ポスター4件

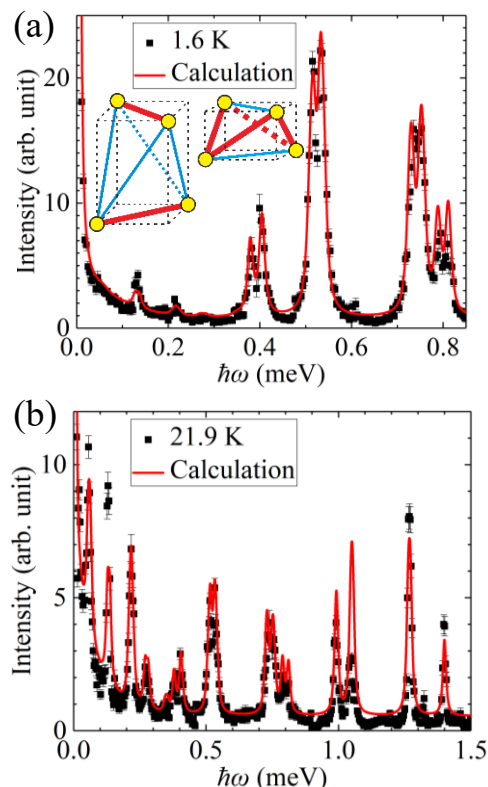


図4 (a) 1.6 K と (b) 21.9 K における計算と実験の比較。(a)の挿入図はスペクトルを再現する四面体である。

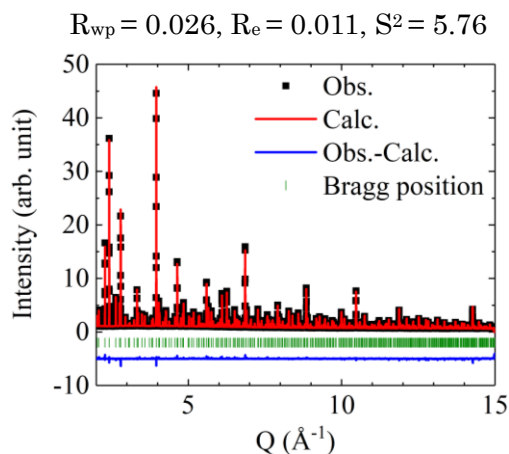


図5 19.2 K における回折パターンの Rietveld 解析。