

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：32621

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540350

研究課題名(和文) 一次元競合系におけるスピネマチックラッティンジャー相のNMR・ $\mu$ SRによる探索研究課題名(英文) NMR and  $\mu$ SR study on the spin nematic phase in the competing spin chain

研究代表者

後藤 貴行 (Goto, Takayuki)

上智大学・理工学部・教授

研究者番号：90215492

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：最近接相互作用が強磁性、次近接相互作用が反強磁性である一次元スピン競合鎖では強磁場中において、ネマチック相が出現することが予想されている。これは、隣接する二つのスピンのペアとなった励起であり、スピンでありながら、方向を持たず、空間反転対称性を有する状態である。本研究では強磁場Rb-NMRを用いてRb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>及びCs<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>磁性体の縦緩和率 $1/T_1$ の測定を行い、ネマチック相が出現している可能性が高いことを示した。さらに、後者では中間磁場領域で磁場誘起磁気転移が存在することを示した。

研究成果の概要(英文)：The high-field ground state of the competing-spin-chain compound Cs<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> and Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> with the ferromagnetic nearest-neighbor  $J_1$  and the antiferromagnetic second-nearest-neighbor  $J_2$  were investigated by <sup>133</sup>Cs or <sup>85</sup>Rb-NMR. In Cs system, a divergence of  $1/T_1$  and a peak-splitting in spectra were observed at  $T_N = 1.85$  K, indicating the existence of a field-induced long range magnetic order. In the paramagnetic region above 4 K,  $1/T_1$  showed a power-law temperature dependence  $T^{-\alpha}$ .

研究分野：低温物性実験

キーワード：スピネマチック相 NMR 一次元競合鎖

1. 研究開始当初の背景

シングレットの基底状態を持つ量子スピン磁性体において、磁場、圧力、と言った様々な外場によって誘起されたトリプレットは、『singlet = vacuum, triplet = magnon』というマッピングを行うと、マグノン BEC と見なすことができ、多くの研究がなされてきた。当初は、温度のべきで示される相図のみが BEC の証拠として挙げられていたが、最近、BEC 凝縮相のミクロな実体 (スピンの xy 成分による非対角秩序) や、マグノンの実体 (マグノンの分散や質量、易動度) など、多くのミクロスコピックな実像が明らかになった。

以上は全て、1 マグノン状態の研究であり、マグノン間には斥力のみが働くとしている。もし、マグノン間に引力が存在したらどうなるか。本申請では 1 マグノンの凝縮ではなく、複数マグノンの束縛状態に焦点を当てたい。これは 2 つの近接マグノンがコヒーレントな束縛状態を作る状態であり、例えば は の固有状態で、x 軸方向に関して反転対称 ( $S_x=0$ ) であることから、ネマチック (液晶) と呼ばれる。ここでのマグノンとは、『強磁場での完全偏極状態 = vacuum, 1 スピンのチルト = magnon』というマッピングで定義されるものであり、最近接の強磁性ボンドを持つ競合系スピン鎖で出現する可能性が指摘されており、そこでは強磁性ボンドの存在によって隣接 2 マグノンが誘起される。密度行列くりこみ群による理論 (Hikihara, PRB78, 144404) では、特定の競合比でネマチック相が基底状態となることが示されている。モデル物質としては一次元競合系  $\text{LiCuVO}_4$  の磁化飽和付近でスピンネマチック相が出現する可能性が、理論 (Zhitomirsky, EPL92) と、実験 (Svistov, JETP Lett. 93) によって指摘されている。

2. 研究の目的

これまでの研究は、いずれもマクロ磁化に関する考察のみであり、ミクロな実体は全く明らかになっていない。 $\text{LiCuVO}_4$  の飽和磁場は 40T 付近であり、ネマチック秩序が指摘される磁化飽和磁場域での、NMR・中性子な

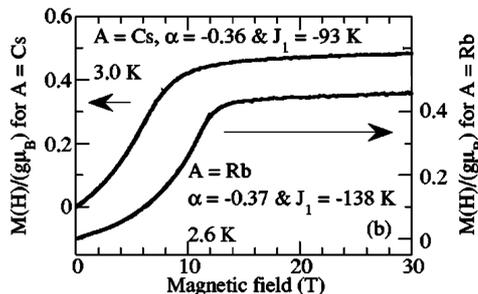


図1 長谷らによる一次元競合鎖  $\text{A}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  の磁化曲線。飽和磁場付近でネマチック相の出現が期待される。PRB70, 104426

どミクロスコピックな測定は極めて困難である。そこで我々は、より低い飽和磁場を持つ競合系 (図1)  $\text{A}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  ( $\text{A}=\text{Cs}, \text{Rb}$ ) を取り上げる。この系は連携研究者の長谷らによって磁化が調べられており (図1) 飽和磁場が 10T ~ 14T 程度と低く、ネマチック秩序相が期待される磁場域において NMR 測定を行える。これを利用して以下の二項目を明らかにする。

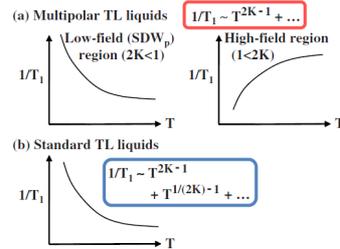


図2 ネマチックラッティンジャー液体(a)と、通常のラッティンジャー液体(b)とでの、 $T_1$  の温度依存性の差異 (Sato, PRB79, 060406)

1) Sato らは最近、スピンの横成分相関が、通常のラッティンジャー液体と、ネマチックのそれとで異なることを利用した、ネマチックラッティンジャー液体状態の同定法 (図2) を提案しており、これによって、本系でネマチック・ラッティンジャー液体の存在を確かめる。

2) 低次元フラストレート系や、量子スピン系で良く見られる、磁場誘起磁気転移を探索する。

3. 研究の方法

実験は固相反応法で作製した粉末試料を用い、5 ~ 12T の磁場範囲で NMR スペクトルと縦緩和率の温度依存性を測定した。スペクトル結晶学的に異なる 3 つの Rb サイト (4e, 8f, 4d) からの寄与が、それぞれ、Rb 核 ( $I=3/2$ ) の電気四重極分裂によるパウダーパターンを呈し、重なっている。中心線ピークは、パウダーパターンによる構造がその他の原因による不均一幅によって、完全にスミアアウトされており一本のピークとして見えている。このため、3 つのサイトの Rb 核は一つのリザーバーとして振る舞うと期待され、実際、緩和曲線は単純に四重極分裂した単一の  $T_1$  を与えるものとなった。

4. 研究成果

(1) Rb 系: 縦緩和率  $1/T_1$  の磁場・温度依存性

磁場掃引スペクトルパウダーパターンの Center 遷移 90° ピークに対応する磁場にあわせて T1 測定を行った結果が、図 3 である。印加磁場によって、温度依存性が大きく異なっている。ここでまず、温度域 5-10K での振る舞いを、低磁場から見て行くと、磁場域 5-10T では、磁場増加とともに、緩和率は増大する。温度依存性は、図 1 に示すように T のべきで表わされ、TLL としての振る舞いと一致する。しかし、磁化飽和 11.5T よりも低磁場、すなわち、図 1 で 10.77T のデータにおいて、既に発散傾向は弱くなり、低温まで殆ど温度依存しなくなる。この振る舞いは、TL パラメタの値が高磁場で  $K < 1/2$  となったことより、低温での発散項が消えた可能性を示している。つまり、磁化飽和直前のごく狭い磁場域においてネマチック-TLL が実現している可能性があると考えられる。

さらに磁場を上げて磁化飽和させると、T1 は熱活性型の温度依存性を示すようになる。ギャップの値は、 $H - \Delta / \mu_B$  に近いと思われるものの、図 1 のプロットでは誤差が大きく、明瞭ではない。

次に低温での振る舞いに目を向けると、飽和磁場よりも低磁場において、4 K 以下の低温における  $1/T_1$  の発散傾向は著しく、温度のべきでフィットしても TLL としては説明出来ない値となる。これは、三次元長距離秩序の臨界発散である可能性を示しており、有限磁場下で、2 K 以下において磁場誘起磁気転移が存在することを示すものである。

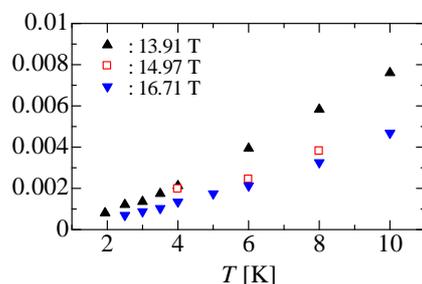
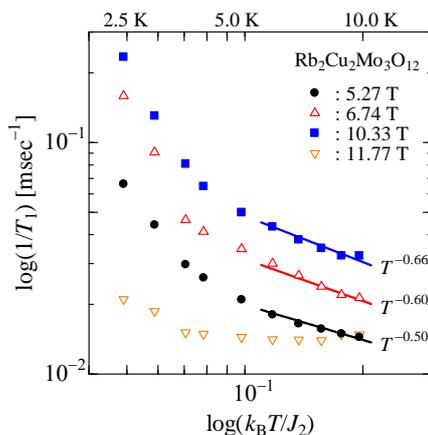


図 3 . 様々な磁場下で測定した Center 遷移 90° ピークにおける核磁気緩和率  $1/T_1$  の温度依存性

## (2) Cs 系

飽和磁場が Rb 系に比べて若干低い、Cs 系においても、NMR (Cs 核) の測定を行い、2K 程度の低温で T1 の臨界発散とスペクトルの分裂を観測し、有限磁場中での磁気転移を確認した。さらに、最近、零磁場中で  $\mu$ SR の測定を行い、零磁場でも有限温度で磁気転移が存在することを確認した。この結果は、Cs 系の温度・磁場相図が、Rb 系とは異なり、磁気転移相境界線が、有限温度を保ったまま零磁場まで延びていることがわかった。これは最近の安井らの、誘電率測定による報告と一致する。

## ・まとめ

一次元競合系  $Rb_2Cu_2Mo_3O_{12}$  の Rb-NMR 縦緩和率を広磁場域において測定した。5-10T 程度の有限磁場下において、2K 以下の低温で、磁場誘起磁気転移の存在を示す臨界発散の存在が認められた。さらに、磁化飽和に近い磁場域でネマチック TLL の可能性を示唆する磁場依存性が観測された。また、Cs 系についても同様な測定を行ったところ、数テスラの磁場領域において有限温度で磁気転移の存在が明らかになった。

## 5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

(雑誌論文)(計 8 件)

NMR study on kagome-lattice antiferromagnet  $Cs_2Mn_3LiF_{12}$ , S Moriya, Y Usui, H Tanaka, K Matsui, Y Mori, H Kuroe, T Sasaki and T Goto, J. Phys.: Conf. Ser. 568 (2014) 042008 (5 pages) doi:10.1088/1742-6596/568/4/042008

$\mu$ SR study on quantum spin system  $NH_4CuCl_3$ , K Matsui, T Suzuki, A Oosawa, M Fujisawa, K Yoshizawa, H Tanaka, T Goto, P K Biswas and A Amato, I Watanabe, J. Phys.: Conf. Ser. 551(2014) 012007 (5 pages) doi:10.1088/1742-6596/551/1/

Disappearance of Gapped Mott Insulating Phase Neighboring Bose Glass Phase in  $Tl_{1-x}K_xCuCl_3$  Detected by Longitudinal-Field Muon Spin Relaxation, Takao Suzuki, Hanjie Guo, Ikuto Kawasaki, Isao Watanabe, Takayuki Goto, Kazuya Katayama, and Hidekazu Tanaka, J. Phys. Soc. Jpn. 83 (2014) 084703 (5 Pages). doi/abs/10.7566/JPSJ.83.

Gradual evolution in spin dynamics of  $TlCu_{1-x}Mg_xCl_3$  probed by muon-spin-

relaxation ( $\mu$ SR) technique, Takao Suzuki, Isao Watanabe, Fumiko Yamada, Yasuyuki Ishii, Kazuki Ohishi, Takayuki Goto, and Hidekazu Tanaka, J. Phys.: Conf. ser. **502** (2014) 012041 (5pages).

doi:10.1088/1742-6596/502/1/

Ground state of the competing spin chain  $Cs_2Cu_2Mo_3O_{12}$ , Yukihiro HOSHINO, Soichiro ATARASHI, Takayuki GOTO, Masashi HASE, Takahiko SASAKI, J. Phys. Soc. Conf. Proc. **3**, 014012 (2014) (5 pages).

doi/abs/10.7566/JPSCP.3.014012

Ground state of bond-disordered quasi-one-dimensional spin system  $(CH_3)_2CHNH_3Cu(Cl_xBr_{1-x})_3$  with  $x = 0, 0.25$  and  $0.3$ , Takayuki Goto, Takao Suzuki, Isao Watanabe, Hirotaka Manaka, Hubertus Luetkens and Alex Amato, J. Phys. Soc. Conf. Proc. **2**, 010207 (2014) (5 pages).

doi/abs/10.7566/JPSCP.2.010207

Ground state of the spin-1/2 chain of green diopside at high fields, Kazuki Matsui, Masashi Fujisawa, Kenta Hagiwara, Yukihiro Hoshino, Takayuki Goto, Takahiko Sasaki, Hidekazu Tanaka, Susumu Okubo, Hitoshi Ohta, J. Phys. Soc. Conf. Proc. **3**, 014011 (2014) (5 pages).

doi/abs/10.7566/JPSCP.3.014012

Microscopic Phase Separation in Triangular-Lattice Quantum Spin Magnet  $\kappa$ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (CN) $_3$  Probed by Muon Spin Relaxation; Saori Nakajima, Takao Suzuki, Yasuyuki Ishii, Kazuki Ohishi, Isao Watanabe, Takayuki Goto, Akira Oosawa, Naoki Yoneyama, Norio Kobayashi, Francis L. Pratt, and Takahiko Sasaki, J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 063706 (4 pages).

doi /10.1143/JPSJ.81.063706

[学会発表](計6件)

擬一次元競合鎖  $A_2Cu_2Mo_3O_{12}$  (A=Rb or Cs) における NMR/ $\mu$ SR、松井一樹、渡邊功雄、Sungwon Yoon、星野侑宏、細谷陽介、後藤貴行、長谷正司、佐々木孝彦 (2014年3/21~3/24 日本物理学会年次大会、早稲田大/東京都新宿区)

擬一次元競合鎖  $A_2Cu_2Mo_3O_{12}$  (A=Rb or Cs) における 87Rb-NMR および 133Cs-NMR、星野侑宏、細谷陽介、後藤貴行、長谷正司、佐々木孝彦 (2013年3/27~3/30 日本物理学会年次

大会、東海大学湘南/神奈川県平塚市)

擬一次元競合鎖  $A_2Cu_2Mo_3O_{12}$  (A=Rb or Cs) における 87Rb-NMR および 133Cs-NMR、星野侑宏、新聡一郎、後藤貴行、長谷正司、佐々木孝彦 (2013年3月18-21、日本物理学会年次大会、広島大/広島県広島市)

擬一次元競合鎖  $Rb_2Cu_2Mo_3O_{12}$  における 87Rb-NMR 星野侑宏、新聡一郎、後藤貴行、長谷正司、佐々木孝彦 (2013年9月18-21、日本物理学会秋季大会、徳島大/徳島県徳島市)

擬一次元競合鎖  $Cs_2Cu_2Mo_3O_{12}$  における 133Cs-NMR、星野侑宏、新聡一郎、後藤貴行、長谷正司、佐々木孝彦 (2012年9月18-21、日本物理学会秋季大会、横浜国大/神奈川県横浜市)

擬一次元競合鎖  $Rb_2Cu_2Mo_3O_{12}$  における 87Rb-NMR 星野侑宏、新聡一郎、後藤貴行、長谷正司、佐々木孝彦 (2012年9月18-21、日本物理学会秋季大会、横浜国大/神奈川県横浜市)

[その他]

ホームページ等

<http://www.ph.sophia.ac.jp/~goto-ken>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

後藤 貴行 (GOTO TAKAYUKI)

上智大学・大学院理工学研究科・教授

研究者番号: 90215492

### (2) 研究分担者

鈴木 栄男 (SUZUKI TAKAO)

芝浦工業大学・工学部・準教授

研究者番号: 40327862

### (3) 連携研究者

長谷 正司 (HASE MASASHI)

独立行政法人物質・材料研究機構・主席研究員

研究者番号: 40281654