

低次元量子スピン系 ACuCl_3 ($\text{A}=\text{NH}_4, \text{K}$) の Cu-NMR スペクトル

低温物性研究室 B0076004 細谷茂治

1 はじめに

ACuCl_3 ($\text{A}=\text{NH}_4, \text{K}$) は、 Cu^{2+} イオン ($S = 1/2$) が二重鎖構造をなす量子スピン系物質であり、特に NH_4CuCl_3 は飽和磁化の $1/4$ 、 $3/4$ に磁化のプラトーが見られるなど、特異な振舞いを示す。このプラトーは多体量子効果によって現われ、基底状態では Cu サイトの並進対称性が破れているといわれているが[1][2]、まだ、実験的に磁気構造は明らかにされていない。 KCuCl_3 については、基底状態が非磁性のシングレット状態であるダイマー系物質として理解されている。そこで、 NH_4CuCl_3 のプラトー上における磁気構造を明らかにするために、 KCuCl_3 と比較しながら Cu-NMR スペクトル測定を行ったのでその結果を報告する。

2 実験

核スピンの相互作用には磁氣的なもの（超微細相互作用）の他に電氣的なもの（電気四重極相互作用）があり、電子スピン状態を決定するためにはこれらを分離することが必要となる。共鳴磁場は磁場方向と電場勾配テンソル主軸の相対角度に大きく依存するが、試料を回転させながらスペクトル測定をすることで、これらを分離できる。そして、結果をフィッティングすることにより、各相互作用パラメータの値を求めた。

3 結果および考察

NH_4CuCl_3 における試料回転スペクトル測定の結果を図 1 示す。単位格子内には向きの異なる 2 つの二重鎖があるために、共鳴磁場の角度依存性には 2 つの位相があり、それぞれ、核スピン ($I = 3/2$) の隣接準位間からの遷移に対応して信号三本が見えている。フィッティングの結果、四重極結合定数 $\nu_Q \approx 39\text{MHz}$ 、四重極異方性パラメータ $\eta \approx 0$ 、ナイトシフト $K \approx 1\%$ という結果が得られた。これは、非磁性の KCuCl_3 の結果とほぼ同じ値である。このナイトシフトが小さいという現象はプラトー上でも、プラトー外においても観察された。しかし、測定の磁場範囲では有限の磁化が存在しているため、ナイトシフトの値は通常であれば数十パーセント程度になると考えられる。一般的にナイトシフト K は、超微細結合定数 A 及び一様帯磁率 χ を用いて、

$$K \propto A\chi$$

という関係にあるため、この原因として考えられるのは、超微細結合定数が KCuCl_3 に比べて圧倒的に小さいか、あるいは局所的な帯磁率が小さいサイト、つまり、シングレットサイトからの信号を選択的に観測しているかのどちらかであると考えられる。

この問題を解決する最も良い方法は、高温の常磁性状態で超微細結合定数を見積もってしまうことであるが、 $3d$ スピンの強い揺らぎのために緩和が速く、信号は観測できな

った。そこで、高磁場まで磁場掃引を行い、まだ見つかっていない励起トリプレットサイトの信号がないかどうかを調べることにした。図2はその結果で、ハイブリッドマグネットにより 30T までの磁場掃引を行っている。これまで観測していた Cu の信号の数テスラ高磁場側に多数の信号が見られる。測定周波数を変えて繰り返しスペクトルを測定した結果、共鳴磁場の周波数依存性から、これらは Cu 核の信号ではなく Cl 核の信号であることがわかった。トリプレットサイトの信号は、超微細結合が大きいためにさらに高磁場にあるのか、緩和が速くて見えないのか、あるいはそもそも低磁場ではシングレットサイトに対応する信号を見ていたわけではなく、シングレットとトリプレットが平均化されたような状態に対応する信号を見ており、超微細結合定数が小さくてシフトが小さかったかのいずれかであると思われる。

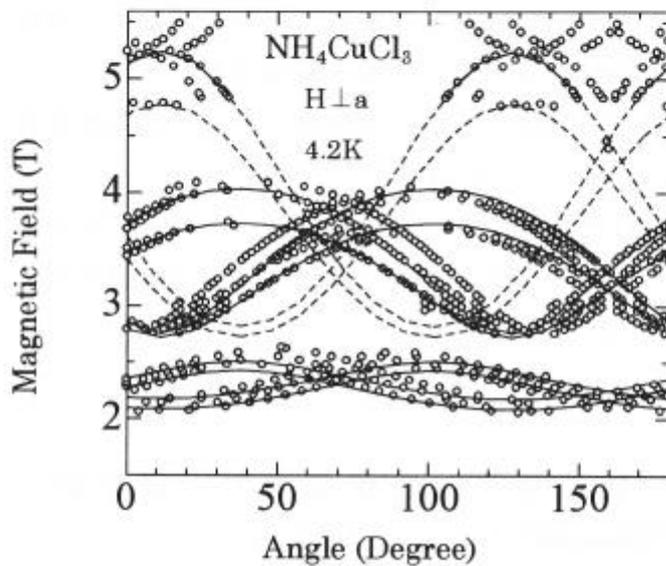
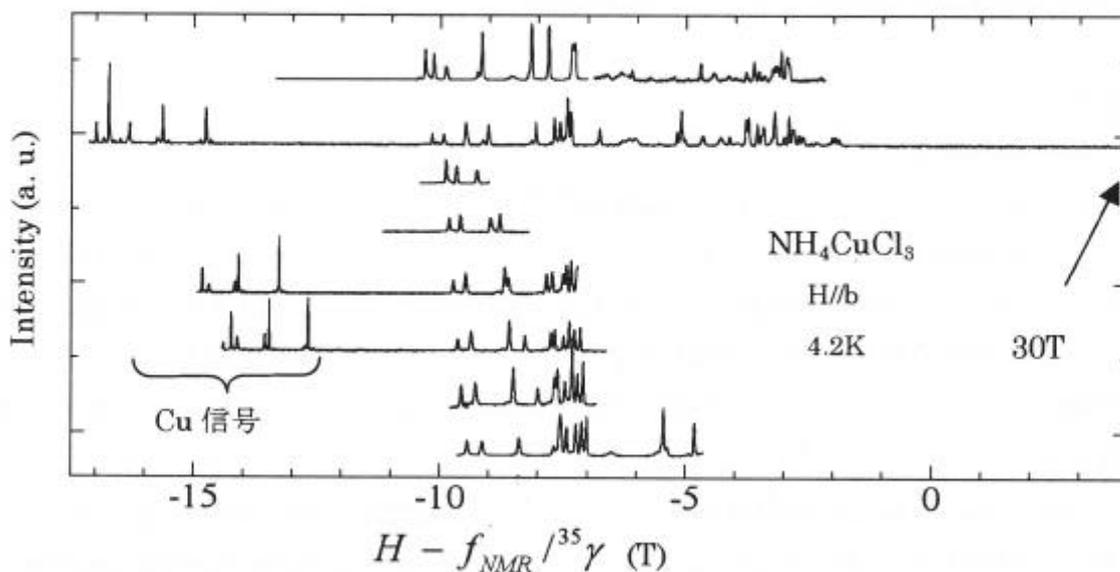


図1

プロットは NH_4CuCl_3 を a 軸周りに回転させた際の信号ピーク (40.4MHz)。実線及び破線は $\nu_Q=39.2 \text{ MHz}$ 、 $\eta=0$ 、 $K_x=0$ 、 $K_y=0$ 、 $K_z=1 \%$ における数値解析結果。

図2

共鳴周波数を変えて磁場掃引測定をした結果を ^{35}Cl 核の共鳴位置を基準にずらしてプロットしたもの。高磁場の信号群はほとんど動かない。



[1] M. Oshikawa, Phys. Rev. Lett. 84, 1535 (2000).

[2] Alexei K. Kolezhuk, Phys. Rev. B 59, 4181 (1999).