

本実験は平成 23 年度に東京大学物性研究所の共同利用に採択された課題（課題番号：11533、課題名：マルチフェロイック Mn_3O_4 の高磁場領域におけるスピン配列の変化）が平成 23 年 3 月 11 日の東日本大震災の影響を受けて実施不可能となり、ILL からの協力申し出により実現したものである。実験は装置担当者である Dr. Eric Ressouche の全面的なサポートの下に佐賀山が行った。ビームタイムは 2012/6//25 から 2012/6//29 までの 4 日間である。

本研究の対象物質である Mn_3O_4 はスピネル型結晶構造をもち、酸素が四面体配位した A-site を Mn^{2+} が、酸素が八面体配位した B-site を Mn^{3+} が占有している。 Mn^{3+} の d 軌道に占有自由度があるために、協力的ヤーンテラー歪みにより室温では大きく歪み正方晶となっている。その結果、 Mn^{3+} のスピンの一次元チェーンを構成し、交互に垂直に走る一次元鎖が c 軸方向に stack していると見なすことができる（図 1 参照）。実際、中性子非弾性散

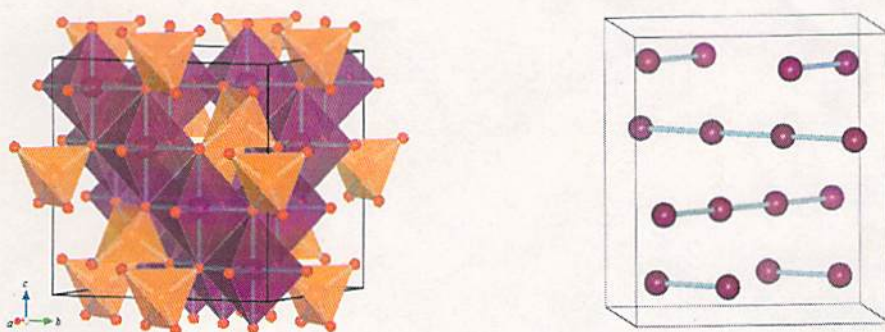


図 1 Mn_3O_4 の結晶構造と Mn^{3+} が作る一次元鎖の模式図

乱実験からチェーン内では強い反強磁性相互作用が、チェーン間は弱い強磁性相互作用が働いていることが確認されている。その結果として一次元鎖間の位相に関して縮退が生じているスピンプラストレーションシステムであると考えられる。スピンプラストレーション系に共通する特徴の一つは外部から摂動に対して敏感に応答することである。我々は FZ 法により良質の単結晶を育成することに成功し、磁化、電気容量、電気分極、磁気歪みの磁場 H // (110) に対する応答を観測したところ、微少磁場で大きな応答が観測された。これらの観測から得られた磁気相図を図 2 に示す。2010 年に JRR-3、5G の三軸分光器を用いて行った測定ではゼロ磁場最低温相で観測される磁気反射、 $q=(0 \ 1/2 \ 0)$ と $q=(0 \ 0 \ 0)$ が磁場印加により大きく変化することが確認され、磁気的な相転移が起きていることが明らかになった。

本研究の目的は特殊なプラストレーション系である Mn_3O_4 において弱磁場で誘起される

物性異常の起源を解明することである。そのために磁場下において磁気反射をなるべく多く観測し、最小二乗法により磁場誘起相におけるスピン配列を決定することを目指した。測定はILLのD23に設置されている回折計を用いて行った。磁場は超伝導マグネットにて[110]方向に4T印加し、温度を変化させて各相における磁気散乱強度の観測を行った。今回測定した条件を図2に赤い×で示した。Detectorが鉛直方向に移動可能であるために磁場を印加した状態で三次元的に測定を行うことができた。ゼロ磁場にて観測される $q=(0\ 1/2\ 0)$ の磁気反射は磁場誘起相で消失し、非整合構造を示す新たな磁気反射は観測されなかった。一方、 $q=(0\ 0\ 0)$ 反射では明らかな増大が観測され、磁気変調波数は $q=(0\ 0\ 0)$ と決定した。ただし 4_1 螺旋による消滅則は破られており、単純な強磁性ではない。T = 10Kにおいて観測可能な全ての反射を観測し、ゼロ磁場の常磁性相における反射強度との差をとることで磁気反射強度を得た。磁気構造を決定できるだけの反射数を充分得られたので、現在解析中である。

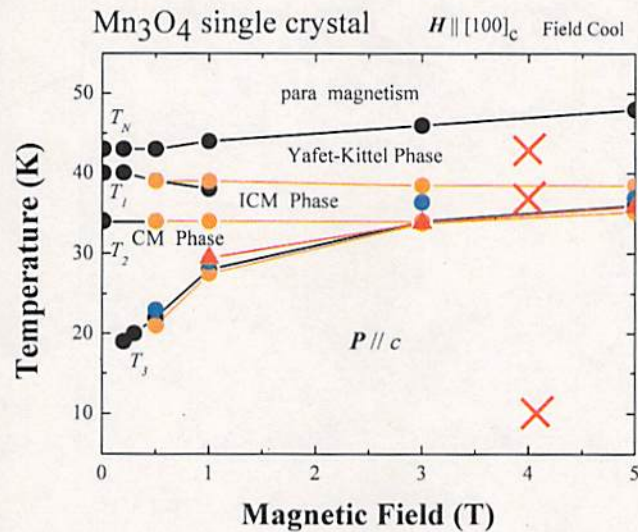


図2 Mn₃O₄の磁気相図