

実験実施報告書

研究者名：白樺大、左右田稔

課題番号、研究課題名：

14522, $S=1/2$ 正四面体をもつ $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の磁気励起

利用期間：

2014年7月15日～7月23日

利用施設：ISIS, MARI

実験経過及び成果の概略：

2014年度7月に ISIS の MARI 分光器を用いてブリージングパイロクロア磁性体 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の中性子非弾性散乱実験を行った。結晶場・磁気励起を観測し、当該物質の詳細な磁気モデルを決定することを目的とした。

$\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の粉末試料を用い、 $E_i = 6\text{meV}, 150\text{meV}$ とした。それぞれの elastic position におけるエネルギー分解能は $0.204\text{ meV}, 7.60\text{meV}$ である。当初磁化率・比熱測定実験の結果から磁気励起は 0.5meV 程度、結晶場励起は $30 \sim 100\text{meV}$ 程度であると期待しており $E_i = 6\text{ meV}, 150\text{meV}$ はそれぞれの測定に対して適切なエネルギー スケールであると考えていた。 $E_i = 6\text{meV}$ における測定温度は最低温である 2K および $8\text{K}, 30\text{K}, 60\text{K}$ である。 $E_i = 150\text{ meV}$ においては 5K で実験を行った。

中性子非弾性散乱スペクトルにおいて $\hbar\omega = 38.2\text{ meV}, 54.9\text{ meV}, 68.3\text{ meV}$ に分散のない励起が観測された。中性子強度の Q 依存性と温度依存性からこれらの励起は結晶場励起であると考えられる。当該物質の内部では Yb^{3+} イオンは C_{3v} の対称性を有する結晶場中に存在する。そのため自由イオンにおいては縮退していた $J = 7/2$ の 8 本の結晶場準位はそれぞれクラマース縮退によって二重縮退した 4 本の準位に分裂しており、本実験で観測された 3 本の分散のない励起は結晶場準位の基底状態から第一励起状態、第二励起状態、第三励起状態への遷移エネルギーに対応する。結晶場基底状態と第一励起状態の励起エネルギーは 38.2meV であり低温においては Yb^{3+} の結晶場基底状態のクラマース二重項が擬スピン $1/2$ と働くものと考えられる。

さらに低エネルギー領域に注目したところ、 $\hbar\omega = 0.47\text{ meV}, 0.76\text{ meV}, 1.30\text{ meV}, 1.79\text{ meV}$ 近傍にもほぼ分散のない磁気励起が観測された。中性子強度の温度依存性はこれらの励起はフォノンや古典的スピン波に代表されるボーズ統計に従う準粒子からの励起ではないことを示す。励起エネルギーは異方的交換相互作用を持つ $S=1/2$ 正四面体スピンクラスタモデルのエネルギー準位に対応しており、 Yb_4 四面体が擬スピン $S = 1/2$ のスピンクラスタを形成すると示唆された。しかし、実験において得られた励起エネルギーや散乱強度の波数依存性は純粋な正四面体スピンクラスタでは説明し難く、当該物質の磁性は正四面体スピンクラスタに対して摂動的なクラスタ間相互作用が働くモデルで記述されることが期待される。