

# フラストレートした一次元量子スピン系(Rb,Cs)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> の多彩な磁気特性と誘電特性

明大理工； 安井幸夫

## Magnetic and dielectric behavior of one-dimensional frustrated quantum spin system (Rb,Cs)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>

Dept. of Phys. Meiji Univ., Yukio Yasui

スピン間の相互作用に競合がある量子スピン系では、量子効果によって特異な物性現象を示したり、新奇な量子磁性状態の出現が期待される。ここでは CuO<sub>2</sub> リボン鎖と呼ばれる一次元絶縁体量子スピン系を取り上げる。CuO<sub>2</sub> リボン鎖系はスピン  $S=1/2$  をもつ Cu<sup>2+</sup> イオンが一次的に連なった構造をしており、最近接交換相互作用  $J_1$  が強磁性的で、次近接交換相互作用  $J_2$  が反強磁性的という特徴をもつ。具体的な物質例としては、LiVCuO<sub>4</sub>, PbCuSO<sub>4</sub>(OH)<sub>2</sub> があるが、これらはヘリカル型磁気構造への反強磁性転移があり、そこでは強誘電転移を伴うマルチフェロイック現象(磁気秩序と強誘電性が共存)が観測された[1-2]。

一方、CuO<sub>2</sub> リボン鎖系 A<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>(A=Rb, Cs)は相互作用の競合、量子ゆらぎ、低次元性等により少なくとも 2K までは長距離磁気秩序を示さないと先行研究により報告されていたが[3]、我々のグループにより A<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>(A=Rb, Cs)の様々な物性測定を行った結果、多彩な磁気特性と誘電特性を示すことがわかったので紹介する。

A<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>(A=Rb, Cs)のゼロ磁場下での基底状態は、A=Rb では spin gap energy が  $\Delta \sim 1.7\text{K}$  の非磁性状態であり、A=Cs では  $T_N=1.85\text{K}$  の反強磁性状態となっており、両物質で異なっている。一方、磁場下での物性を見ると、両物質とも 0.05T の磁場を印加しただけで、約 8K 付近に磁場誘起の強誘電転移が出現する。比熱・中性子回折・中性子非弾性散乱の結果より 8K 付近では長距離磁気秩序は起きていないことがわかり、ヘリカル型の短距離磁気秩序による新しいタイプの強誘電転移と考えられる[4]。A=Rb では、3T 程度の磁場印加で非磁性状態が消失し、長距離磁気秩序状態と考えられる相が 2K 以下で現れる。Fig.1 と Fig.2 に A<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub>(A=Rb, Cs)の温度-磁場相図を示すが、両物質とも多彩な相図を示すことがわかる。

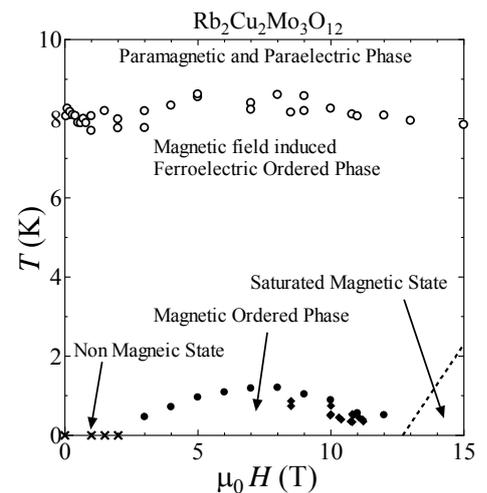


Fig.1: Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> の温度-磁場相図

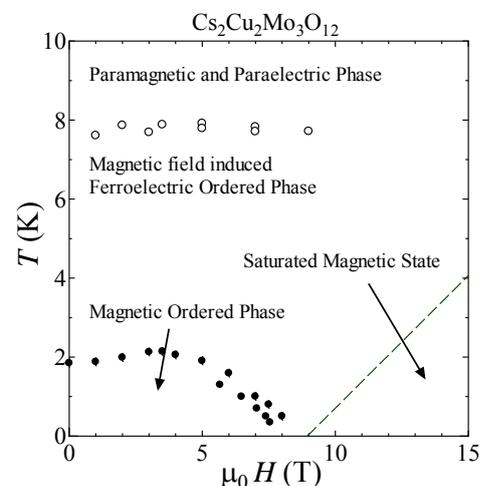


Fig.2: Cs<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> の温度-磁場相図

最近、磁気比熱の振る舞いと、 $A=\text{Cs}$  の  $T_N$  以下での磁気構造に関して興味深い結果が得られたので紹介する。Fig.3 に Cu サイトを非磁性の Mg で置換した  $A_2\text{Mg}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  ( $A=\text{Rb}, \text{Cs}$ ) の比熱データを利用して抽出した  $A_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  の磁気比熱の温度依存性を示す。 $A=\text{Cs}$  では  $T_N=1.85\text{K}$  において、磁気相転移に伴う明瞭なピーク構造があるが、 $T_N$  付近のエントロピー変化を見積もると、理論値のわずか 5%以下しかない。95%以上のエントロピーは 30K 以上から少しずつ現れており、磁場誘起強誘電転移の転移温度に相当する 8K 付近にブロードピークを持つことがわかった。様々な要因により長距離磁気秩序形成が阻害されながらも、短距離磁気秩序が高温から成長している様子を明瞭に表している。 $A=\text{Cs}$  の  $T=0.58\text{K}$  での磁気反射 ( $=I(0.58\text{K})-I(12\text{K})$ ) を Fig.4 に示す。磁気反射は全て核反射上の  $d$  値で観測され、超格子反射は観測されなかった。unit cell 内に  $\text{Cu}^{2+}$  イオンが 16 個存在しており、collinear な反強磁性構造(いわゆる Neel 状態)であることがわかった。 $T_N$  以上の温度域ではヘリカル型の短距離秩序があるにもかかわらず、この結果は意外であった。ただし、相互作用の磁気異方性と  $J_1/J_2$  をパラメータとした既報の理論相図[5]では、Chiral order 相と Neel 相は接して存在しており、わずかなパラメータの違いや外場の印加により相が入れ替わる可能性が考えられる。最近、 $\text{CuO}_2$  リボン鎖系については理論的にも活発に研究されており、 $J_1/J_2$  や磁場、交換相互作用の磁気異方性等を parameter にして各種の理論的相図が提案されている[例えば 5,6]。本講演では  $A_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  ( $A=\text{Rb}, \text{Cs}$ ) の多彩な物性について実験結果を中心に紹介し、理論的な理解については小野田繁樹氏の講演で主に紹介される。

これらの研究は、寺崎一郎、岡崎竜二、佐藤正俊、木村剛、井口敏、佐々木孝彦、長谷正司、益田隆嗣、萩原雅人、榊原俊郎、橘高俊一郎、井川直樹、星川晃範、石垣徹、佐藤正寛、上田宏、小野田繁樹各氏や、大学院生の柳沢雄大君、岡村卓真君、藤村明央君他、多くの方々の協力のもとに行なわれてきたものである。

- [1]Y. Yasui *et al.*, JPSJ **77** (2008) 023712.
- [2]Y. Yasui *et al.*, JPSJ **80** (2011) 033707.
- [3]M. Hase *et al.*, PRB **70** (2004) 104426.
- [4]Y. Yasui *et al.*, JAP **113** (2013) 17D910.
- [5]S. Furukawa *et al.*, PRL **105** (2010) 257205.
- [6]H. Ueda *et al.*, PRB **89** (2014) 024407.

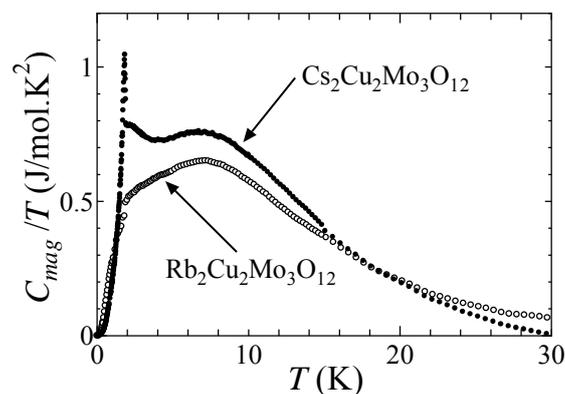


Fig.3:  $A_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  ( $A=\text{Rb}, \text{Cs}$ ) の磁気比熱を温度で除した  $C_{\text{mag}}/T$  の温度依存性

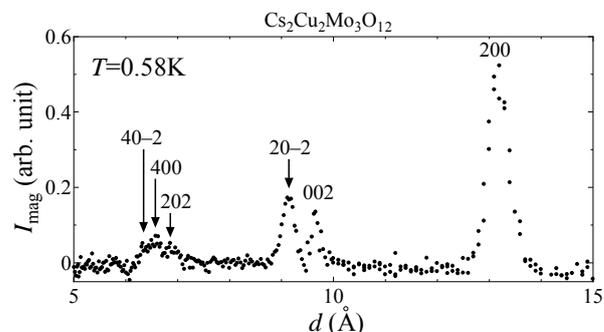


Fig.4:  $\text{Cs}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  の  $T=0.58\text{K}$  での磁気反射