

C-7

スピントラスト系スピネル MgCr_2O_4 の超音波音速測定 Ultrasound velocity measurements in the spin-frustrated spinel MgCr_2O_4

○鈴木春樹¹, 石川慎一², 渡辺忠孝³, 富安啓輔⁴, 秋光純⁵, 高坂勇輔⁶, 原茂生⁷, 池田伸一⁸
*Haruki Suzuki¹, Shin-ichi Ishikawa², Tadataka Watanabe³, Keisuke Tomiyasu⁴,
Jun Akimitsu⁵, Yusuke Kosaka⁶, Shigeo Hara⁷ and Shin-ichi Ikeda⁸

Abstract: We performed ultrasound velocity measurements in single crystal of the spin-frustrated spinel MgCr_2O_4 . Anomalously huge softening of elastic modulus was observed in all the symmetrically independent elastic modes of C_{11} , C_{44} and $(C_{11} - C_{12}) / 2$. Such an isotropic and huge softening of the elastic modulus should be attributed to the strong coupling of crystal lattice to the spin molecules (a typical geometrical frustration effect) in the paramagnetic phase.

1. はじめに

近年、磁性物理学の分野では幾何学的フラストレート磁性体とよばれる物質群が注目を集め活発に研究が行われている。幾何学的フラストレーションとは、磁性体において磁性イオン間に強い磁気相互作用が働くにも関わらず、結晶構造の幾何学的制約により磁気相転移ができない状況を指す。最も簡単な例は、三角格子上で反強磁性相互作用が働く場合で、この場合は 1 つ目のスピンを up, 2 つ目を down と反強磁性的に配置したとき、3 つ目のスピンの配列が up/down どちらの向きでも反強磁性秩序を形成することができない、いわば「あちらが立てばこちらが立たず」の状況に陥る。このような幾何学的フラストレート磁性体では、非常に強いスピン揺らぎが生じるため新奇かつ多彩な量子現象と基底状態が現れる。

スピネル酸化物 AB_2O_4 は、このような幾何学的フラストレート磁性体の中でも特に注目を集めている物質群である。我々のグループでは、スピネル酸化物における幾何学的フラストレーション効果の研究を行っている^[1-3]。今回我々は、スピン自由度のみを有する典型的なスピントラスト系スピネル MgCr_2O_4 について、超音波測定という新しい測定手法を適用して研究を行ったので報告する。

スピネル酸化物 MgCr_2O_4 は $T_N = 13 \text{ K}$ で反強磁性転移を示すが、磁性を担う Cr^{3+} が正四面体から構成されるパイロクロア構造を組むため(Figure 1), 最近接原子同士でスピンの向きを決定できず反強磁性転移を妨げるスピントラストレーションが生じていると考えられている。 MgCr_2O_4 については最近の非弾性中性子散乱実験から、代表的な幾何学的フラストレーション効果の一つであるスピン分子(幾何学的な特殊形状をもつスピんクラスター)の形成が確認されている^[4]。本研究では、 MgCr_2O_4 について超音波を用いた音速(弾性率)測定を行い、スピン分子由来の弾性異常の検出を試み、スピン分子形成の格子自由度への影響を考察する。

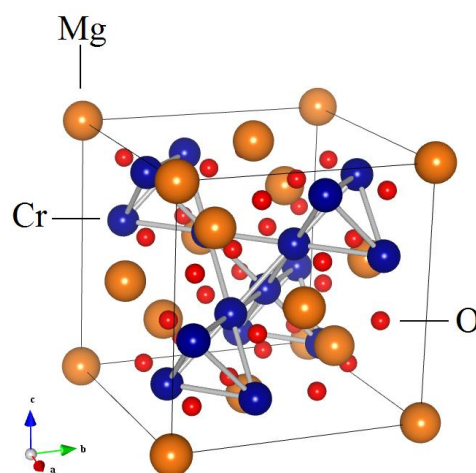


Figure 1. Spinel-type crystal structure of MgCr_2O_4

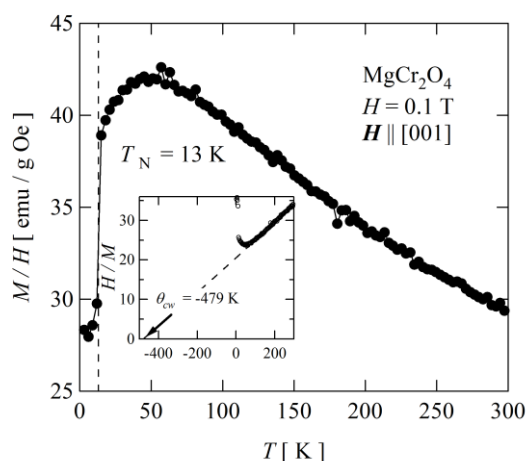


Figure 2. Temperature dependence of magnetic susceptibility. Inset shows the inverse magnetic susceptibility.

1:日大理工・学部・物理 2:日大理工・院(前)・物理 3:日大理工・教員・物理 4: 東北大学理学部・教員・物理 5: 青山学院大学理工学部・教員・物理 6:青山学院大学理工学部・研究員・物理 7:中央大学理工・教員・物理 8:AIST 研究員

2. 実験方法

超音波測定には、フローティング・ゾーン法で作製された大型の MgCr_2O_4 単結晶を $1.85 \times 2.90 \times 3.12 \text{mm}^3$ の直方体の形状に成型したものを用いた。Figure 2 に今回用いた MgCr_2O_4 単結晶の磁化率の温度依存性を示す。 MgCr_2O_4 は $T_N = 13 \text{ K}$ で反強磁性転移を示すが、 Cr^{3+} 間に働く磁気相互作用の強さの目安となるワイス温度は $\theta_w = -479 \text{ K}$ と見積もられ非常に強い反強磁性相互作用が働いていることがわかる。このように、強い反強磁性相互作用 (θ_w が負に大) の割りに低い T_N を示す物質は、典型的なスピンプラストレート系であるといえる。超音波音速測定は、立方晶である MgCr_2O_4 の独立な 3 種の弾性率テンソル全てにおいて 3K から 300K の温度範囲で行った。Table 1 に MgCr_2O_4 (立方晶) の独立な 3 種の弾性テンソル、およびその測定が可能な超音波の種類と伝播・変位方向をまとめる。超音波の発生・検出は、鏡面研磨した単結晶試料の表面に LiNbO_3 トランスデューサーをスタイキャストで接着して行った。音速測定は、位相比較法という音速の相対変化を ppm の超高分解能で測定することが可能な手法を用いて行った。

Table 1. Elastic modulus and the corresponding ultrasound mode in the cubic crystal.

弾性定数 C_{ij}	音波	伝播方向 k	変位方向 u
C_{11}	縦波	[100]	[100]
C_{44}	横波	[100]	[010]
$(C_{11} - C_{12})/2$	横波	[110]	[-110]

3. 実験結果

Figure 3 に圧縮弾性率 C_{11} (対称性: A_{1g}) および傾き弾性率 C_{44} (対称性: T_{2g}) での音速の温度依存性を示す。通常、固体物質の弾性率は、降温とともに硬くなる (ハード化する) 性質を示すのだが、 MgCr_2O_4 の場合は、常磁性相において巨大なソフト化の弾性異常を示していることがわかる。このようなソフト化は、軌道自由度をもつ磁性体ではヤーン・テラー効果による結晶構造不安定性を反映してしばしば観測される。しかし MgCr_2O_4 は、軌道自由度をもたずスピン自由度のみをもつ磁性体であるので、ヤーン・テラー効果由来のソフト化ではないことは明らかである。我々はごく最近、 MgCr_2O_4 以外のスピネル酸化物の超音波測定で、スピン-格子相互作用が強い場合にはスピン分子由来のソフト化の弾性異常が観測されることを実証済みである^[2]。今回観測された MgCr_2O_4 の常磁性相でのソフト化もスピン分子由来の弾性異常であると考えられる。一方で MgCr_2O_4 の反強磁性相では、反強磁性転移温度 T_N の近傍で相転移による不連続な弾性率の異常がみられるものの、 $T < T_N$ では通常の固体物質と同様のハード化を示している。この結果は、幾何学的フラストレーションによるスピン揺らぎが強い常磁性領域のみにおいて、格子が非常に不安定であることを示している。

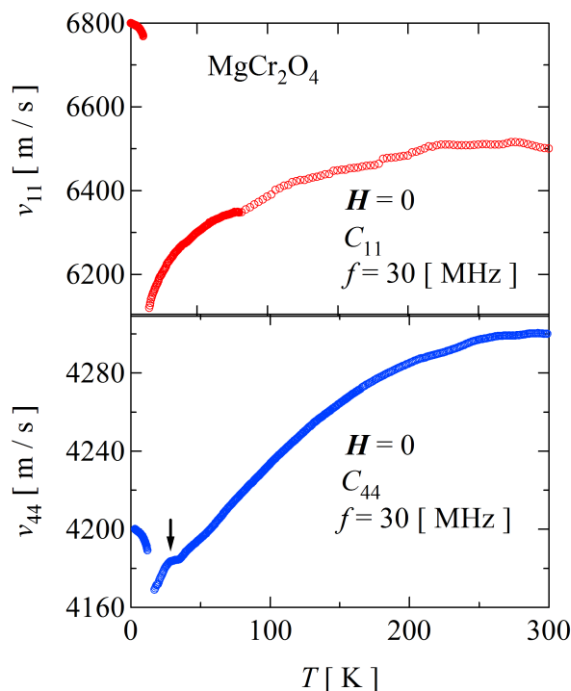


Figure 3. Temperature dependence of ultrasound velocities in C_{11} (upper panel) and C_{44} (lower panel).

5. 参考文献

[1] T. Watanabe, S. Hara, and S.I. Ikeda, Physical Review B **78**,094420 (2008)
 [2] T. Watanabe, S. Hara, S.I. Ikeda, and K. Tomiyasu, Physical Review B **84**,020409 (R) (2011)
 [3] K. Tomiyasu, M.K. Crawford, D.T. Adroja, P. Manuel, A. Tominaga, S. Hara, H. Sato, T. Watanabe, S.I. Ikeda, J.W. Lynn, K. Iwasa, and K. Yamada, Physical Review B **84**,054405 (2011)
 [4] Tomiyasu K, H. Suzuki, M. Toki, S. Itoh, M. Matsuura, N. Aso, and K. Yamada, Physical Review Letters **101**,177401 (2008)