

1. はじめに

低次元量子スピン系 $ACuCl_3$ ($A=K, NH_4$) は Cu-3d スピンが二重鎖構造をなす物質であり、基底状態はダイマーのスピンがシングレットを組み、励起状態との間にスピンギャップを持つことが期待される。これまでに磁化曲線や非弾性中性子散乱の測定から、確かに $KCuCl_3$ の基底状態は励起状態との間にスピンギャップを持ったシングレット状態で、強いダイマー内相互作用と弱いダイマー間相互作用を持つモデルで記述出来ることが分かっている。一方、 NH_4CuCl_3 は室温での結晶構造が $KCuCl_3$ と同じでありながら、基底状態がギャップレスで低温での磁化曲線に二段のプラトーが現れるなど特異な振る舞いを示す。そこで本研究ではこの系のプラトー上でのギャップの大きさや励起トリプレットの配置を調べるために Cu-NMR を行った。Cu-NMR のスピン-格子緩和率及びスピンスピン緩和率は局所的な磁気励起や核スピン間の局所的な相互作用を調べることの出来る有効的なプローブである。

これまで強磁場下において有限の磁化が現れた状態においてもシングレットサイトからの NMR 信号のみが検出されており、励起トリプレットサイトからの信号は全く観測されていない。この原因を調べるのことも本研究の目的である。

2. 実験方法

スピン-格子緩和率 T_1^{-1} は飽和回復法を用い、核磁化の回復曲線を $I_z = +1/2 \leftrightarrow I_z = +3/2$ の遷移に対応した理論曲線 $0.3e^{-t/T_1} + 0.5e^{-3t/T_1} + 0.2e^{-6t/T_1}$ でフィッティングさせることで求めた。スピンスピン緩和率 T_2^{-1} はスピンエコー法を用い、得られたスピンエコー強度を振動をともなった指数関数でフィットさせて求めた。

3. 実験結果

①スピン-格子緩和率 T_1^{-1}

NH_4CuCl_3 の第一プラトー上で、 T_1^{-1} の温度依存性はギャップを反映して熱活性型の振る舞いを示した。低温側のデータから求めたプラトー上でのギャップの大きさは約 10K 程度となり、田中らが行った ESR の結果と比べて大きさが 2 倍で、ESR とは異なる磁場依存性が見られた (図 1 参照) [1]。これは ESR が $q=0$ または π についての励起を見ているのに対して、NMR で見ているのはスピンの揺らぎの全波数成分 q について積分したものであるためと解釈出来る。

また、プラトーから外れた高磁場側のギャップレスな領域では、遅い成分と速い成分の 2 種類の緩和成分が現れた。速い成分は温度依存しないが、遅い成分は熱活性型の振る舞いをする。これは系が空間的に不均一で 2 つの相に分離していることを表しており、磁気転移の影響によると考えられる [2]。この磁気転移は $TlCuCl_3$ で見られているボース・アイン

シュタイン凝縮に類似しており、今後詳しく調べる必要がある。

②スピンスピン緩和率 T_2^{-1}

T_2^{-1} 緩和曲線は NH_4CuCl_3 、 KCuCl_3 ともに単純な指数関数で減衰するのではなく、明瞭な振動を伴うことが分かった (図 3)。このような振動は低次元系ではしばしば見られるものであり、 $3d$ 電子を介した二つの核スピン間の強い間接結合に起因するものと考えられている。この場合、観測されるスピンエコー信号強度の振動数 a_{12} は A を超微細結合定数、 J をダイマー内相互作用とすると、

$$\hbar a_{12} = A^2/2J$$

で表されることが知られており、 a_{12} から A や J を見積もれることになる [3]。 KCuCl_3 の零磁場での結果 $a_{12}/2\pi = 76.4 \text{ MHz}$ 、非弾性中性子散乱実験で得られている $J \cong -4.3 \text{ meV}$ を用いると $A \cong 18 \text{ T}$ となった。このためトリプレットサイトからの信号を観測するには、シングレットサイトの信号位置に対してさらに 18 T 以上上の高磁場で探索する必要があると考えられる。

また図 3 に示すように NH_4CuCl_3 のエコー強度の振動数には著しい磁場依存性があるのが分かる。このことは孤立ダイマーモデルでは説明出来ず、各磁場において多体効果を考慮した J_{eff} を取り入れる必要があると思われる。

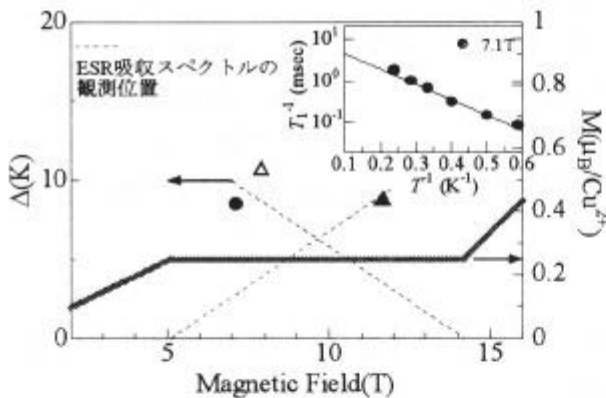


図 1 第一プラトー上でのギャップの大きさと ESR の結果 [1] との比較。挿入図は $H = 7.1 \text{ T}$ での T_1^{-1} の温度依存性。

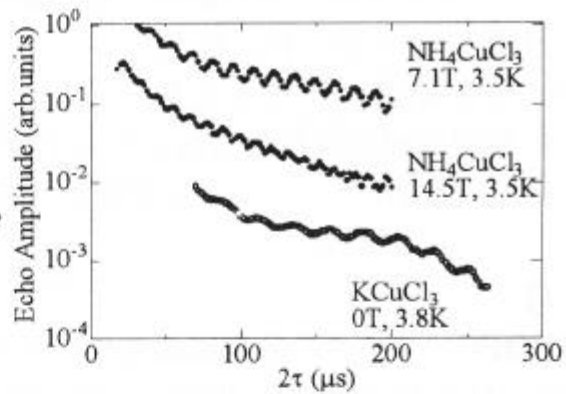


図 2 T_2^{-1} 緩和曲線の一例。顕著な振動をともなっている。

参考文献

- [1] B. Kurniawan, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **82**, 1281 (1999).
- [2] B. Kurniawan, *et al.*, J. Phys.: Condens. Matter **11**, 9073 (1999).
- [3] M. Takigawa, Phys. Rev. B **57**, 1124 (1998).

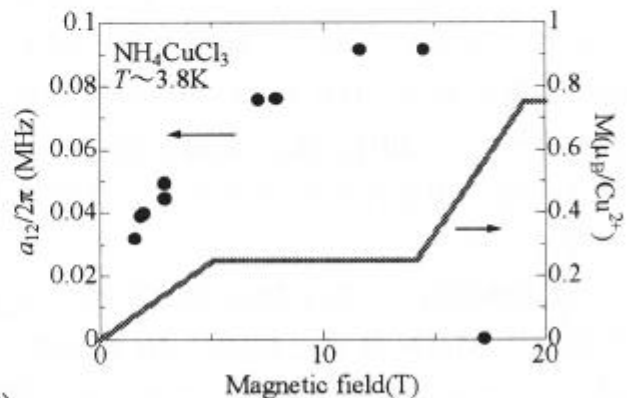


図 3 エコー振動の磁場依存性。太線は NH_4CuCl_3 の磁化曲線。