

スピネル型酸化物 MnV_2O_4 におけるスピン軌道混成励起の観測

松浦 慧介

東京大学大学院新領域創成科学研究科

対称性の破れを伴った巨視的な秩序状態からの励起は、準粒子描像によって理解される。一般に、物理現象は、準粒子の生成、消滅、変換あるいは移動によって説明することができるため、素励起の理解は物性機能の発現に重要な役割を果たす。フォノンやマグノンなどの基本的な準粒子は、それぞれ格子やスピンといった単一の自由度からなる。近年では、単一の自由度の重ね合わせではない、2 つあるいはそれ以上の複数自由度からなる準粒子が注目を集めている。例えば、電気磁気効果を示す物質におけるエレクトロマグノン [1]は、マグノンと光学フォノンからなる連成準粒子であると考えられる。本研究では、強相関電子物質におけるスピンと軌道自由度の動的な結合に着目した。スピンと軌道自由度の間には、inter-site では Kugel-Khomskii 型相互作用、on-site では相対論的スピン軌道(LS)相互作用が働くことが知られている。3d 電子系では、遷移金属イオンと周囲の配位子による電子-格子相互作用が強く、基底状態ではしばしば軌道角運動量が凍結する。そのため、LS 相互作用があらわに基底状態に影響することは珍しい。しかしながら、励起状態では、結晶場で分裂した d 軌道のうち、 t_{2g} 軌道間で LS 相互作用によって軌道混成することで、軌道自由度および軌道角運動量が回復する。したがって、 t_{2g} 軌道に軌道自由度を有する系では、Kugel-Khomskii 型および LS 相互作用によって、スピン-軌道混成励起波の存在が期待される。軌道励起波の報告例の多くはペロブスカイト型酸化物に限られているが、軌道-格子結合が大きく、スピン-軌道混成励起波はこれまで観測されていない。

本研究では、スピネル型酸化物 MnV_2O_4 に注目した。 MnV_2O_4 では、酸素四面体に $\text{Mn}^{2+}(d^5, S=5/2)$ が囲まれ、酸素八面体(O_h)に $\text{V}^{3+}(d^2, S=1)$ が囲まれている。 O_h 対称場のもとで、 V^{3+} イオンは、 t_{2g} 軌道に軌道自由度を有する。 $\langle 110 \rangle_c$ 方向に辺共有の酸素八面体が連なることで、 V^{3+} サイト間に σ 結合が形成される。このため、点共有のペロブスカイト構造に比べて、大きな Kugel-Khomskii 型スピン軌道相互作用が期待される。実際に、磁気秩序($T_N=58\text{K}$)と軌道秩序($T_{Oo}=53\text{K}$)が近接した温度領域で存在することからもわかる。

我々は、 MnV_2O_4 単結晶試料を用いた中性子非弾性散乱実験を J-PARC の 4SEASONS で行い、スピン-軌道混成励起波の観測を試みた。Chung らの先行研究[2]では、指摘されていなかった 10-20 meV の領域に大きな分散を示す散乱を観測した。Heisenberg 型相互作用と磁気異方性項を取り込んだハミルトニアンを用いてスピン波解析を行い、実験結果との比較を行った。その結果、10-20 meV の領域はほぼ再現できるが、20 meV の散乱は単純なスピン波では再現できないことが分かった。Gleason らのラマン散乱の結果によると、20 meV の領域の散乱は、磁気弾性結合に由来する 2 マグノン励起であることが指摘されている [3]。我々は、スピン波モードのスピン揺らぎ δS を具体的に考察することによって、 Γ 点での 20 meV の励起は、Heisenberg 型のスピン波励起にスピン軌道相互作用が影響することで説明できるのではないかと考えた [4]。さらに、このスピン自由度と軌道自由度が混成した励起状態は、混成励起波として結晶中を伝搬する可能性がある。発表では、実験結果およびスピン波解析の結果と照らし合わせながら励起の起源について議論する。

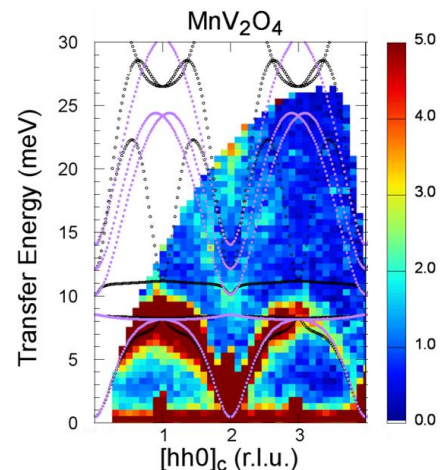


図: $T=5\text{ K}$, $[\text{hh}0]$ 方向の実験結果

[Reference]

- [1] A. Pimenov, *et al.* Nat. Phys. **2**, 97 (2006), [2] J.-H. Chung, *et al.* Phys. Rev. B **77**, 054412 (2008)
[3] S. L. Gleason, *et al.* Phys. Rev. B **89**, 134402 (2014), [4] K. Matsuura, *et al.* submitted.