

 <b>MLF Experimental Report</b>		提出日 Date of Report 2010年4月12日
課題番号 Project No. 2009A0060		装置責任者 Name of responsible person 三宅 康博
実験課題名 Title of experiment $\mu$ SR study of magnetic properties of CaFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub> -type NaMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub> and LiMn <sub>2</sub> O <sub>4</sub>		装置名 Name of Instrument/(BL No.) D1
実験責任者名 Name of principal investigator 常盤 和靖		実施日 Date of Experiment 2009年11月13日～16日
所属 Affiliation 東京理科大学基礎工学部電子応用工学科		

試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、結論等を、記述して下さい。(適宜、図表添付のこと)  
 Please report your samples, experimental method and results, discussion and conclusions. Please add figures and tables for better explanation.

1. 試料 Name of sample(s) and chemical formula, or compositions including physical form.

CaFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>型 NaMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> および LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>

2. 実験方法及び結果 (実験がうまくいかなかった場合、その理由を記述してください。)

Experimental method and results. If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons.

CaFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>型の結晶構造を有する NaMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> および LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> はキュービックアンビル型超高圧装置を用いて 4.5GPa、1050～1150°Cで合成を行った。CaFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 構造はスピネルの高圧相と考えられ、高密度相であり、辺共有した MnO<sub>6</sub> 八面体が一次元方向に積み重なった構造をしている。いずれの試料も X 線回折測定の結果からは明確な不純物が見られず単一相試料として得られている。これらの試料を用いて ZF- $\mu$ SR 測定を行つた。SQUID を用いた静的磁化率の測定結果からは、NaMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> では、約 13Kで反強磁性転移が確認されているが、LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> では、ZFC と FC に履歴をもつスピングラス的な振る舞いが確認されている。

図1には、今回の ZF- $\mu$ SR 測定実験で得られた NaMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の緩和率測定の結果を示している。緩和率は約 60K から急激に増大

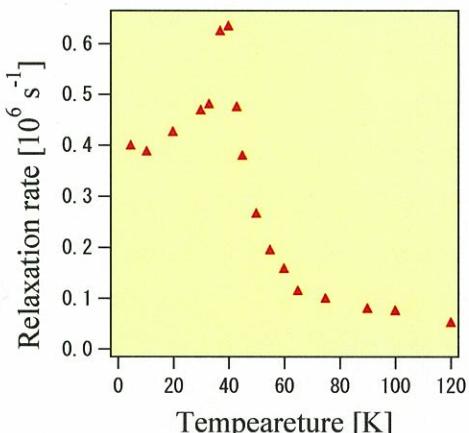


図1. ZF- $\mu$ SR 測定結果から得られた NaMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> の緩和率の温度依存性

## 2. 実験方法及び結果(つづき) Experimental method and results (continued)

し、鋭いピークが 40K 付近で見られた。この 40K 付近に見られる転移は、静的磁化率で観測されている反強磁性転移温度( $T_N=13K$ )とは大きく異なっている。この理由として、2つの測定法のタイムスケールの違いや、ミュオンが局所的な情報を引き出せる事に由来しているものと考えられる。すなわち、 $\text{CaFe}_2\text{O}_4$  構造の低次元構造に起因して、40K 付近では短距離の磁気相関が発達し始めるが、マクロには動的に揺らいでおり、より低温で長距離秩序が発達する事によって静的磁化率に変化が見られたものと考えられる。しかしながら、異なるプローブで見られる磁気的な変化の特徴的な温度の差が約 25K もあり、今後、タイムスケールの異なる NMR や中性子線回折測定のより相補的な実験を行ったり、Mn サイトの置換を行って相関強度を変化させるなどして、磁気相関の詳細を明らかに必要があると考えられる。また、Mn の大きな磁気モーメントによる速い緩和のため最低温(5K)においても振動は観測されていない。

図2には、 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  の ZF- $\mu$ SR 測定による緩和率の温度依存性を示している。定性的には  $\text{NaMn}_2\text{O}_4$  の場合と同様の振る舞いを示している。約 40K にピークが見られ、 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  でも 40K 付近に短距離の反強磁性秩序が現れ始めているものと考えられる。しかしながら、 $\text{NaMn}_2\text{O}_4$  と  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  の静的磁化率の温度依存性には振る舞いの違いが見られており、40K 付近での短距離秩序の形成から、系全体への長距離秩序形成過程に違いがあるためかもしれない。二つの系における磁気的な振る舞いの違いが生じる一つの理由として考えられるのは、Mn の価数状態の違いによるものである。中性子線回折による結晶構造解析の結果から見積もった Mn の価数状態は、 $\text{NaMn}_2\text{O}_4$  では 2 種類ある Mn のサイトで一方は+4 値、他方では+3 値にオーダーしているが、 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  では、2 つのサイトの Mn 価数が+3～+4 値の中間的な値をとっているものと考えられる。二つの系でのスピニ状態の違いは、今のところ ZF- $\mu$ SR 測定の結果に反映しているものとは考えられない。今後、詳細な検討が必要であると考えられる。

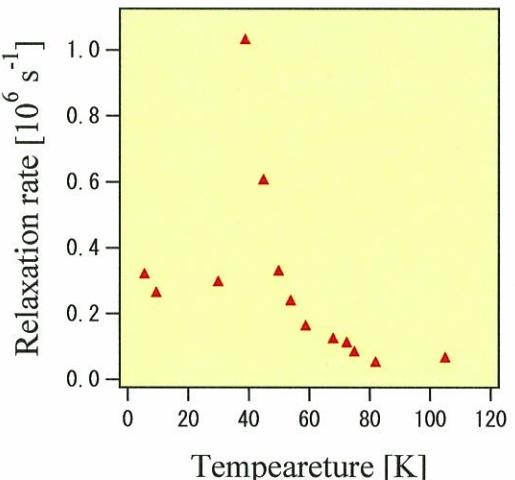


図 2. ZF- $\mu$ SR 測定結果から得られた  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  の緩和率の温度依存性