

令和 6 年 6 月 3 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2023

課題番号：20K14409

研究課題名（和文）新規酸素分子磁性体の探索と中性子散乱研究

研究課題名（英文）Investigation and Neutron Scattering Study on Novel Oxygen Molecule Magnets

研究代表者

浅井 晋一郎 (Asai, Shinichiro)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：00748410

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題では、酸素分子磁性体におけるスピンと格子の強い相関によって起こる新たな現象を発見、解明することを目的に、新規酸素分子磁性体の探索、及び中性子散乱実験を行うものである。主な成果としては、酸素分子磁性体CPL-1における散乱強度の温度変化が特徴的な磁気励起に対する格子との相関を調べるため、重水素化された酸素分子磁性体CPL-1についていくつかの偏極非弾性中性子散乱実験を行った。まず、この励起に関して核磁気干渉項の寄与がないことを確認した。続いて、散乱の磁気成分と核成分を分離して測定し、低温ではこの励起が磁気的な成分のみをもつことを発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

細孔性錯体は気体吸蔵の観点から主に無機化学の分野で精力的に研究されているが、吸着酸素の構造や酸素分子のもつ磁性に着目した研究は少ない。本研究によって、吸着した酸素のダイナミクスを調べるのに重水素化錯体を用いた中性子散乱を行う手法が有効であることが分かった。これによって、今後酸素分子磁性体において発見される新たな磁性を同様の手法によって調べ、その起源を明らかにすることができると期待される。また、さらに中性子散乱によって吸着された酸素分子のダイナミクスへの理解がさらに進めば、錯体の気体吸蔵特性の向上にも寄与する可能性がある。

研究成果の概要（英文）：In this research project, we performed the neutron scattering study on the oxygen molecule magnets in order to investigate the novel phenomena caused by the strong correlations between the lattice and spins in these magnets. In fact, we carried out the polarized neutron scattering experiments on the deuterated porous complex CPL-1 to understand the origin of the excitation which has characteristic temperature dependence. We found that there is no contribution from the nuclear-magnetic interference term, and that magnetic contribution only exists at low temperatures for this excitation.

研究分野：磁性

キーワード：磁性 中性子散乱 酸素分子 細孔性錯体

1. 研究開始当初の背景

酸素分子は大気中に多く存在する分子であり、 $S = 1$ のスピンをもつ。それらのスピンの間には直接交換相互作用に起因した相互作用が働く [1]。実際、固体酸素は 24 K 以下で反強磁性秩序を示す [2]。また、いくつかの物質ではファンデルワールス力によって物理吸着された酸素分子が規則的に配列し、結晶を形成する [3, 4]。例えば、細孔性金属錯体に酸素が吸着すると、細孔内で規則的に配列し酸素分子の三次元的な超結晶(酸素分子磁性体)が形成される。

細孔性錯体 CPL-1 では、酸素分子が二量体的に吸着しその磁化率の振る舞いは $S = 1$ の二量体モデルでよく説明される [5, 6]。一方で、中性子非弾性散乱実験で観測された磁気励起の温度変化は単純な二量体モデルでは説明できず、酸素分子間のファンデルワールスポテンシャルとスピンの交換相互作用を考慮することで定性的に理解された [7]。これは酸素分子磁性体がスピンと格子(吸着構造)が強く結びついた”やわらかい磁性体”であることを示し、温度変化や磁場印加などの外部因子に対して新奇な応答を示す磁性体として興味もたれる。酸素分子磁性体はホストとなりうる細孔性錯体が数多く発見されている。今後、様々なスピン系をもつ酸素分子磁性体が発見され、その磁性について多角的に研究が行われると期待されるが、研究報告例はまだ少なく未開拓である。

2. 研究の目的

中性子非弾性散乱実験は他の実験プローブに比べて広い運動量-エネルギー空間を探索できるため、本研究によって吸着された酸素分子のダイナミクスに関する詳細な知見を得ることができる。そこで本研究は錯体試料を重水素化し、中性子散乱におけるバックグラウンドの要因となる非干渉性散乱を大きく低減させた上で中性子散乱研究を行い、磁気励起の外部因子による変化を調べることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、重水素化錯体に酸素分子を吸着させた状態で中性子非弾性散乱実験を行い、酸素分子磁性体に期待される強い格子とスピンの相関に起因したダイナミクスを調べることを目的とする。本研究課題では上記の CPL-1 と呼ばれる錯体に着目した。この錯体に吸着した酸素分子の中性子散乱研究は行われているが、実験には軽水素試料が用いられ、定量的な解析は低温のみに限られていた。本研究では重水素試料を用いて高温まで励起の変化を詳細に測定し、また偏極中性子散乱実験を行い、その励起の詳細を調べた。高温までの詳細な温度変化の測定はオークリッジ国立研究所に設置された HYSPEC 分光器を用いて行った。偏極中世散乱実験は JRR-3 に設置された PONTA 分光器、及びオークリッジ国立研究所に設置された PTAX 分光器を用いて行った。酸素分子の吸着・脱離が可能な試料インサート及びシステムは本研究課題の予算を用いて作成、構築した。

4. 研究成果

本研究では、先行研究 [7] によってその存在が報告された $\hbar\omega = 8.2$ meV の磁気励起に着目した。これは第一励起状態への励起であると予想されているが、その温度変化は低温までしか観測されていなかった。そこで、80 K までの温度変化を詳細に調べたところ、その散乱強度の温度変化は先行研究で提案された二量体モデルでは説明できないことが分かった。そこで我々は磁気的成分以外の寄与の存在を期待し、偏極中性子散乱実験によってその起源を明らかにしようと試みた。JRR-3 に設置された PONTA 分光器で行った実験では入射中性子を散乱面に垂直方向に偏極するセットアップを用い、スピンフリップ散乱とノンフリップ散乱の違いを調べた。これは核磁気干渉項の観測に対応する。測定温度は 3 K と 60 K で行った。どちらの条件でも 8.2 meV

近傍に磁気励起が観測されたが、一方、誤差の範囲内でフリップの有無による散乱強度の違いは見られなかった。これはこの励起に核磁気干渉項の寄与がないことを示唆する結果である。

オークリッジ国立研究所では入射・反射中性子を散乱ベクトル方向に偏極するセットアップで実験を行った。この条件ではフリップ散乱とノンフリップ散乱によって散乱の磁気成分と核成分を分離して測定可能である。測定の結果、1.5 K ではスピNFLリップ散乱の場合のみ励起が観測されたことが分かった。これは、低温ではこの励起が磁気的な成分のみをもつことを示唆する結果である。一方で、スピンと格子の相関が強いことが期待される高温領域に関しては中性子散乱強度が足りず調べることができなかった。これは今後の課題とする。

参考文献

- [1] M. C. van Hemert *et al.*, Phys. Rev. Lett. **51** (1983) 1167. [2] M. F. Collins, Proc. Phys. Soc. **89** (1966) 415. [3] M. Hagiwara *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **83** (2014) 113704. [4] J. P. mcTangu and M. Nielsen, Phys. Rev. Lett. **37** (1976) 596. [5] R. Kitaura *et al.*, Science **298** (2002) 2358. [6] A. Hori *et al.*, J. Phys. Conf. Series **200** (2010) 022018. [7] T. Masuda *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) 083703.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計11件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 浅井晋一郎, 中島多朗, 松田雅昌, 北川進, 益田隆嗣
2. 発表標題 CPL-1に吸着した酸素分子の偏極中性子散乱
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 浅井晋一郎, 中島多朗, 松田雅昌, 北川進, 益田隆嗣
2. 発表標題 CPL-1に吸着した酸素分子の偏極中性子散乱研究
3. 学会等名 日本中性子科学会第23回年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 浅井晋一郎, Songxue Chi, 益田隆嗣
2. 発表標題 励起子絶縁体候補物質Pr _{0.5} Ca _{0.5} CoO ₃ の中性子散乱
3. 学会等名 日本物理学会 2024年春季大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 浅井晋一郎, 原口裕哉, 香取浩子, 池田陽一, 益田隆嗣
2. 発表標題 新規キタエフ模型候補物質CaCo ₂ TeO ₆ の中性子回折
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 浅井晋一郎、原口裕哉、香取浩子、池田陽一、益田隆嗣
2. 発表標題 新規キタエフ模型候補物質CaCo ₂ TeO ₆ の磁気構造
3. 学会等名 第22回日本中性子学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 浅井晋一郎、藤原美幸、山神光平、黒田健太、近藤猛、岡田佳憲、伊藤晋一、益田隆嗣
2. 発表標題 ファンデルワールス強磁性体Fe ₅ -xGeTe ₂ の中性子散乱
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 浅井晋一郎、藤原美幸、山神光平、黒田健太、近藤猛、岡田佳憲、伊藤晋一、益田隆嗣
2. 発表標題 ファンデルワールス強磁性体Fe ₅ -xGeTe ₂ の中性子非弾性散乱
3. 学会等名 第21回日本中性子学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 浅井晋一郎、藤原美幸、山神光平、黒田健太、近藤猛、岡田佳憲、伊藤晋一、益田隆嗣
2. 発表標題 ファンデルワールス強磁性体Fe ₅ -xGeTe ₂ の中性子非弾性散乱研究
3. 学会等名 2021年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 浅井晋一郎、藤原美幸、山神光平、黒田健太、近藤猛、岡田佳恵、Matthias. D. Frontzek, 益田隆嗣
2. 発表標題 ファンデルワールス強磁性体Fe ₅ -xGeTe ₂ の磁気構造
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 浅井晋一郎、木村晃典、山本貴史、中埜彰俊、谷口博基、寺崎一郎、益田隆嗣
2. 発表標題 ダイマー反強磁性体Ba ₃ Ca ₁ -xZnxRu ₂ O ₉ の スピンダイナミクス
3. 学会等名 日本中性子科学会第20回年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 浅井晋一郎、木村晃典、山本貴史、中埜彰俊、谷口博基、寺崎一郎、益田隆嗣
2. 発表標題 S=3/2ダイマー反強磁性体Ba ₃ Ca ₁ -xZnxRu ₂ O ₉ の磁気励起
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------