

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 4月 3日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540348

研究課題名（和文） 高エネルギー中性子を用いたスピンギャップの研究

研究課題名（英文） Study of Spin Gap System Using High Energy Neutron

研究代表者

横尾 哲也（YOKOO TETSUYA）

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・研究機関講師

研究者番号：10391707

研究成果の概要（和文）：本課題は量子効果を示す低次元スピン系の中で、特に軌道秩序を伴ったスピンパイエルズ転移を示すと考えられるTiOBrにおける磁気励起を明らかにすることを目的とした。TiOBrは大型単結晶を得ることが困難であり、多結晶試料における中性子非弾性散乱測定を行った。ロスアラモス研究所で行った測定では、磁気ピークと考えられるシグナルは反強磁性のゾーン中心、エネルギーが10meV程度の領域で観測することに成功した。さらに、J-PARCで測定を行ったところ、E = 6meV程度の低エネルギー領域に明瞭な新しいシグナルの観測に成功した。

研究成果の概要（英文）： It is proposed that spin-Peierls transition, where 1-dimensional (1D) magnetic correlation is only dominant, takes place accompanied by an orbital ordering of Ti t_{2g} in TiOBr. In this research program, we performed inelastic neutron scattering experiments in order to investigate the magnetic dynamics involving the spin gap. In the experiment at LANCSE, it is observed a magnetic signal at 10 meV, whose momentum dependence is well explained by 1D structure factor. In more precise measurement at J-PARC, we successfully observed a new signal at lower energy of 6 meV.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2010年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：数理系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：磁性・量子スピン

1. 研究開始当初の背景

本研究で取り上げたTiO X (X: Cl, Br)は軌道整列の発現によりスピンパイエルズ転移が起こる新しい系であることが提唱され、そ

の状況証拠がいくつか報告されていた。しかしながら、軌道秩序の発生とスピンパイエルズ転移の直接的な強い証拠の報告はまだなされておらず、この物性に対する包括的な理解

が得られていなかった。進んだ研究を妨げた要因の一つに単結晶の育成が大変困難であったことが挙げられ、特に中性子散乱による実験研究はその進捗が非常に遅れていた。また、潮解性を有する系であったため、試料の慎重な取り扱いが要求された。

TiOXはFeOC1型の結晶構造(斜方晶Pmmn)を有するTiOとXの層が2枚ずつ積層するbilayer構造を有する。Bilayer間のBr-Br結合は弱いvan der Waals結合であるため非常に良い2次元性を示すことが期待される。また非常に小さい磁化しか示さないことから、その基底状態はRVB状態を実現していることが期待された。熱力学的な諸量からX=C1の場合、転移点 $T_{c1}=66\text{K}$ 、 $T_{c2}=96\text{K}$ 、交換相互作用 $J=66\text{K}$ 、スピンギャップエネルギー $\Delta=44\text{K}$ 程度と見積もられていた。一方、X=C1よりも順良な試料が得られるX=Brでは、転移点 $T_{c1}=27\text{K}$ 、 $T_{c2}=47\text{K}$ 、 $J=36\text{K}$ 程度が報告されていた。X=Brのギャップの大きさは知られていなかった。ギャップの情報としてはNMRによる測定が報告されており、2次元面内における格子の不安定性を伴った相互作用とスピン揺らぎが観測され、スピン・格子緩和時間 T_1 の温度依存性からギャップ的な振舞いが報告された。しかし、X=C1およびBrいずれの場合もスピンの量子状態(スピンパイエルス転移)の直接的なギャップの観測には至っていなかったのが現状である。

2. 研究の目的

本研究ではそこに杭を打つべく、中性子散乱を用いて、直接的にスピンパイエルス転移に伴い発生するスピンギャップを観測することを目的とした。反強磁性相関では動的構造因子のスペクトラルウェイトは磁気的なゾーン中心が支配的であるため、ゾーン中心の励起状態(スピンギャップ)およびその近傍の分散関係にたいする知見を得ることが最大の目的である。

3. 研究の方法

上述したように本系では(大型)単結晶試料の育成が非常に困難である。そこで我々は、多結晶試料の中性子散乱実験を行った。多結晶試料の場合、粉末平均の運動量遷移を観測するが、一般的に磁気単位方では小さい運動量遷移かつ高い中性子エネルギーが求められるため実験が難しくなる。我々は高エネルギー中性子利用が可能なパルス中性子を用い、LANSCEおよびJ-PARCにおいて非弾性散乱実験を行った。LANSCEではPharos分光器、J-PARCでは高分解能チョッパー分光器(HRC)を利用したが、ともに低角での測定が可能である(かつ試料-検出器間距離L2が長い)非常にユニークな分光器である。本系の場合、期待される磁気的なゾーン中心は $Q=0.8-0.9$

\AA^{-1} である。また、期待されるスピンギャップのエネルギーはX=C1で得られている物理量から外挿するとおおよそ $\Delta=20\text{meV}$ 程度である。これらの測定領域をカバーするのは実はそれほど単純なことではなく、low-Qかつhigh-Eiのコンディションで比較的良い分解能を有することが条件となる。前述のPharosおよびHRCはこの条件での測定が可能である。

4. 研究成果

明瞭な磁気励起を観測するには困難を極めたが、LANSCEの実験では 10meV のエネルギーにシグナルを観測した。このシグナルは転移点より低温で発達すること(図1)、また運動量遷移の強度依存性から一次元の磁気構造因子でよく説明できること(図2)などからパイエルス転移に伴うシグナルであることが明らかになった。

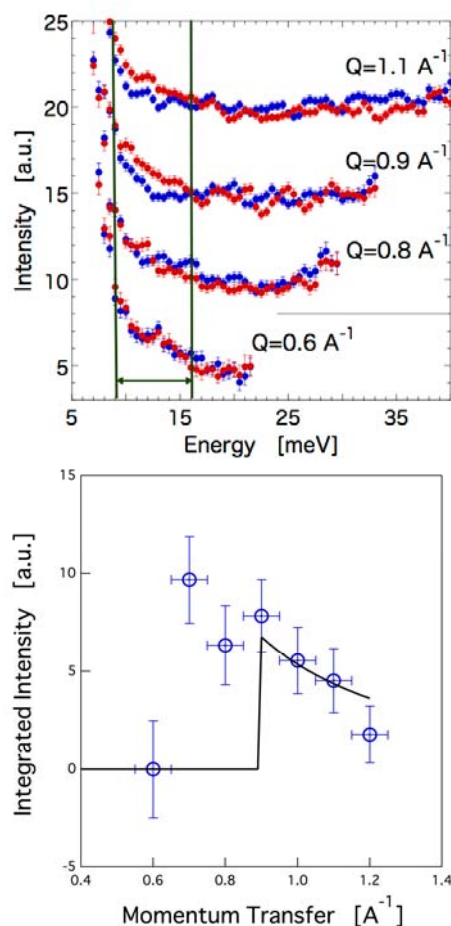


図1(上図): 得られた動的構造因子の運動量一定スペクトル(高温と低温)。

図2(下図): 図1矢印の領域の積分強度。フィッティングは一次元スピンモデルによる。

J-PARCでの測定ではより分解能の高い測定を行い、 6meV に新しいシグナルを観測することに成功した(図3)。これは磁気分散の全体像を捕らえることができたと考えている。

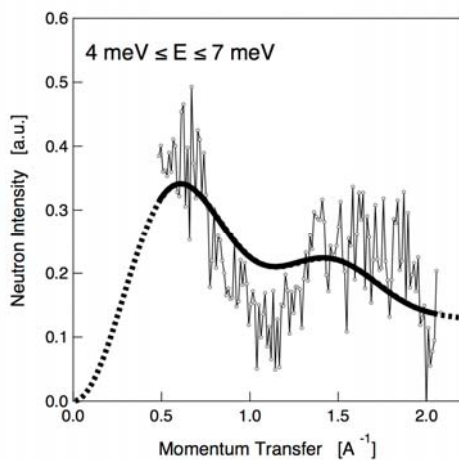
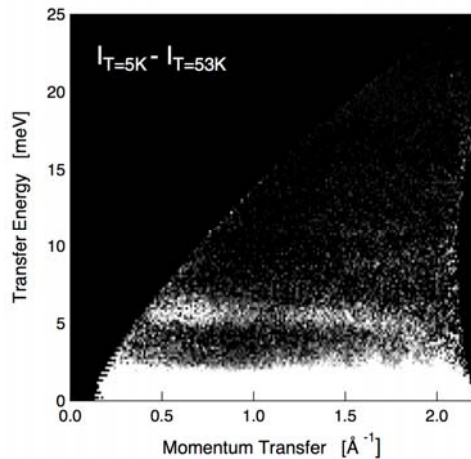


図3 (上図): 観測された運動量-エネルギー空間における動的構造因子。

図4 (下図): 4meV-7meVにおける積分強度。フィッティングはダイマースピンモデルによる。

観測された強度のQ依存性を調べるために、4meVから7meVの遷移エネルギー強度のQ依存性をプロットしたものが図4である。この振動はスピンドイマーのモデルで再現することができ、ダイマー間の距離が 7\AA^{-1} で良くフィッティングできることが明らかとなった。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計14件)

- ① T. Yokoo, S. Itoh, D. Kawana, and J. Akimitsu, *Neutron Inelastic Scattering on Spin-Peierls System TiOBr*, J. Korean Physics Society, 査読有、to be published
- ② T. Yokoo, S. Itoh, F. Trouw, A. Llobet-Megias and J. Akimitsu, *Magnetic Excitations in Possible Spin-Peierls System TiOBr*, J. Phys. Conf. Series, 査

読有、to be published

- ③ S. Itoh, K. Ueno and T. Yokoo, *Fermi Chopper Developed at KEK*, Nucl. Instr. and Meth. A, 査読有、661、2012、58-63
- ④ S. Itoh, K. Ueno, R. Ohokubo, H. Sagehashi, Y. Funahashi, and T. Yokoo, *TO Chopper Developed at KEK*, Nucl. Instr. and Meth. A, 査読有、661、2012、86-92
- ⑤ S. Itoh, T. Yokoo, K. Ueno, J. Suzuki, T. Teraoku, and M. Tsuchiya, *Large Area Window on Vacuum Chamber Surface for Neutron Scattering Instruments*, Nucl. Instr. and Meth. A, 査読有、670、2012、1-5
- ⑥ S. Itoh, T. Yokoo, S. Satoh, S. Yano, D. Kawana, J. Suzuki and T.J. Sato, *High Resolution Chopper Spectrometer (HRC) at J-PARC*, Nucl. Instr. and Meth. A, 査読有、631、2011、90-97
- ⑦ T. Yokoo, N. Kaneko S. Itoh, T. Otomo, K. Suzuya, Y. Suetsugu and M. Shirai, *Examination of Gas Desorption by B₄C Resin for Use in Neutron Scattering Experiment*, Review of Scientific Instruments, 査読有、82、2011、095109
- ⑧ K. Iwano, T. Yokoo, M. Oguro, and S. Ikeda, *Propagating Librations in Ice XI: Model Analysis and Coherent Inelastic Neutron Scattering Experiment*, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有、79、2010、063601
- ⑨ M. Nakamura, R. Kajimoto, Y. Inamura, F. Mizuno, M. Fujita, T. Yokoo and M. Arai, *First Demonstration of Novel Method for Inelastic Neutron Scattering Measurement Utilizing the Multiple Incident Energies*, J. Phys. Soc. Jpn., 査読有、78、2009、093002

[学会発表] (計27件)

- ① 2011年11月20-24日 1st. Asia-Oceania Conference on Neutron Scattering (Tsukuba)
Singlet-Triplet Excitation of Possible Spin-Peierls TiOBr
- ② 2011年8月22-30日 XXII Congress and General Assembly IUCr2011 (Madrid, Spain)
Magnetic Dynamical Structures of Possible Spin-Peierls System TiOBr
- ③ 2011年8月10-17日 26th International Conference on Low Temperature Physics (Beijing, China)
Magnetic Excitation of Possible Spin-Peierls System TiOBr
- ④ 2011年3月25-28日 日本物理学会 年次大会 (新潟大学五十嵐キャンパス)
TiOBrにおける磁気励起

⑤ 2011年1月17-18日 第二回MLFシンポジウム (KEK、つくば)

HRCにおける多結晶試料TiOBrの測定

⑥ 2010年3月8-12日 The 19th meeting of the International collaboration on Advanced Neutron Source (ICANS-XIX) (Grindelwald, Switzerland)

Gas Desorption Examination of B₄C Resin for Neutron Vacuum Chamber

⑦ 2010年10月8日 高分解能チョッパー分光器研究会 (KEK 東海1号館・東海村)

一次元ギャップ系の磁気励起

⑧ 2010年12月7-8日 物構研国際シンポジウム'10 -量子ビーム科学の展望-(つくば国際会議場エポカル・つくば市)

Magnetic Excitation of Possible Spin-Peierls System TiOBr

6. 研究組織

(1) 研究代表者

横尾 哲也 (YOKOO TETSUYA)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・研究機関講師

研究者番号：10391707

(2) 研究分担者

伊藤 晋一 (ITO SHINICHI)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・准教授

研究者番号：00221771

(3) 連携研究者

該当無し