

## 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 6 月 14 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010 ～ 2011

課題番号：22740234

研究課題名（和文） 中性子散乱による新規量子現象の観測

研究課題名（英文） Study of novel quantum phenomenon by neutron scattering

研究代表者

益田 隆嗣（MASUDA TAKATSUGU）

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：90313014

研究成果の概要（和文）：

2次元ハイゼンベルグ反強磁性体  $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$  のスピン・ダイナミクスの研究を、バルク磁性測定、中性子回折、中性子非弾性散乱実験など様々な手法を総合的に用いて、多角的に行った。実験データは面内相互作用  $J_1=27.8\mu\text{eV}$ 、面間相互作用  $J_2=1.0\mu\text{eV}$  で合理的に説明された。高磁場での非弾性散乱実験から、理論的に予想されてきた磁場誘起マグノン崩壊現象を観測することに成功した。

研究成果の概要（英文）：

Spin dynamics of the square lattice Heisenberg antiferromagnet,  $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ , is studied by a combination of bulk measurements, neutron diffraction, and inelastic neutron-scattering techniques. Easy plane type antiferromagnetic order is identified at  $T=4.0$  K. The exchange interactions are estimated as  $J_1=27 \mu\text{eV}$  and  $J_2=1.0\mu\text{eV}$ , and the saturation field  $H_c$  is 9.75 T. Magnetic excitation measurements with high experimental resolution setup by triple axis neutron spectrometer reveals the instability of one magnon excitation in the field range of  $0.7H_c < H < 0.85H_c$ .

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2011 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：物理学

科研費の分科・細目：物性 II

キーワード：中性子散乱・磁性・量子スピン・量子現象

## 1. 研究開始当初の背景

量子力学に基づいた準粒子という概念は、凝縮系物理の現象を説明するうえで大変便利なものである。しかし、エネルギー保存則と運動量保存則が満たされる条件下では、一つの準粒子は二つ以上の準粒子に分解することが可能となり、安定に存在しえなくなる場

合がある。有名な例としては、液体ヘリウムのフォノン励起が高エネルギーで突然途絶える現象が挙げられる[1]。図1に示されるように、音響フォノン励起は  $1.5\text{meV}$  以上で消失しているが、このエネルギーは  $q=2\text{\AA}^{-1}$  のロトンのエネルギーのちょうど2倍となっ

ている。フォノン間相互作用を考えない場合、音響フォノンは高エネルギー側にもモードが存在するはずであるが、実際にはフォノン間相互作用の存在により、 $q=Q_c$ ,  $\hbar\omega=1.5\text{meV}$ のフォノンは二つのロトンに崩壊し（エネルギー保存則の要請を満たしている）、安定には存在しえない。このような現象は、実はボゾン粒子に一般的な現象であり、磁性体のマグノンでも起こり得る。実際、1マグノン励起が高エネルギーで消失する様子は、いくつかのスピンのギャップ磁性体で観測されている[2]。最近では、二次元反強磁性体において、高磁場印可によりマグノン励起が不安定化することが予想されており、数多くの理論的興味を集めている[3]。

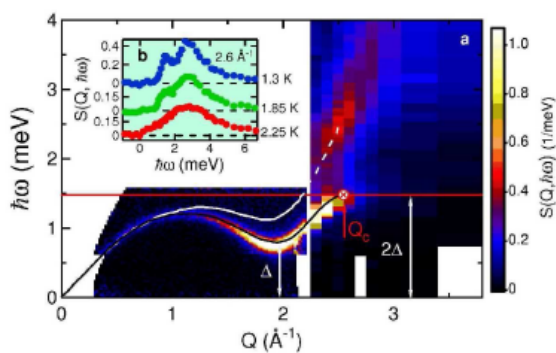


図1：液体ヘリウムの素励起スペクトル

マグノンの崩壊が起こるためには、崩壊前後での運動量（波数）およびエネルギーが保存していることが必要条件である。このことは、ある波数において、2マグノン連続励起の領域に、1マグノンのブランチが侵入していることと同意味である。そして、このようなマグノン崩壊のチャンネルが開くためには、1マグノンブランチの極小において曲率が下に凸であることが必要条件であることが、数学的に示されている[4]。したがって、常に上に凸な1マグノン励起を示す二次元ハイゼンベルグ反強磁性体においては、ゼロ磁場ではマグノンの崩壊は起こりえない。しかし、

高磁場下では、全てのスピンは揃うため、強磁性的な下に凸なマグノン励起となることは明らかである。したがって、ある程度の高磁場下で、マグノンの崩壊チャンネルが開くはずである。実際、多くの理論で、飽和磁場の70～80%程度でマグノンの不安定化が起こることが予想されている[3]。

## 2. 研究の目的

本研究課題では、中性子散乱により新規量子現象を観測することを目的としている。本報告書では、その一例として、2次元ハイゼンベルグ反強磁性体の磁場誘起マグノン崩壊現象の観測を取り上げる。

## 3. 研究の方法

モデル物質の探索と合成、磁化率・磁化測定、中性子回折、中性子非弾性散乱を総合的に用いて研究を行った。

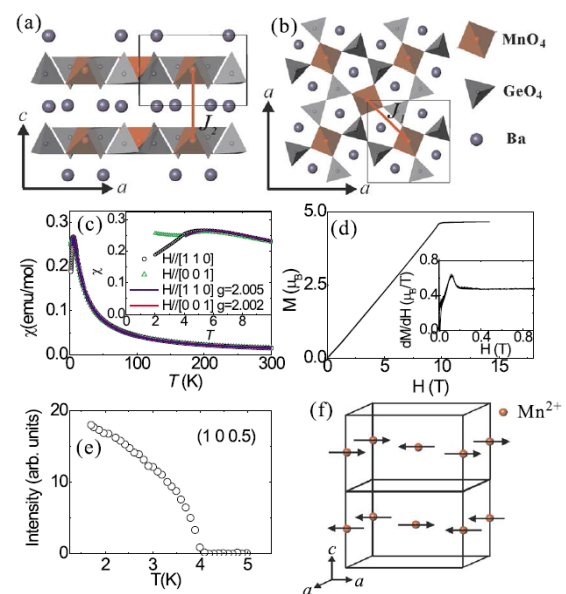


図2： $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ の結晶構造、磁化率、磁化、中性子散乱強度、磁気構造。

## 4. 研究成果

本研究では飽和磁場近傍での中性子非弾性散乱が必要となる。このためには、10T程度の飽和磁場を有するモデル物質を探す必要があった。磁性イオン間距離が比較的長い物質として2次元反強磁性体  $\text{Ba}_2\text{CuGe}_2\text{O}_7$  や

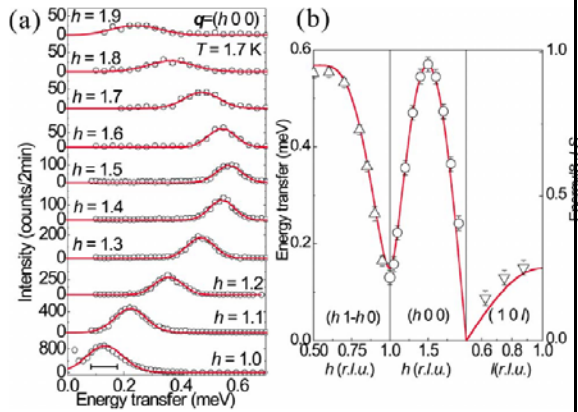


図 3 :  $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$  のゼロ磁場中性子非弾性散乱データと分散関係

$\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  などが既知物質として報告されていたが、飽和磁場はいずれも 20T を超えており、超伝導マグネットで実現するには困難な磁場であった。そこで我々は、新物質  $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$  の単結晶を合成した。本物質は、図 2(a),(b) に示されるように、 $\text{MnO}_4$  四面体が  $\text{Ba}^{2+}$  と  $\text{GeO}_4$  四面体で隔てられた 2 次元構造を有している。磁化率測定を行ったところ、図 2(c) に示されるように、4K 以上のデータは 2 次元ハイゼンベルグ反強磁性体により説明された。異方性はほとんど存在せず、 $g$  値もほぼ 2 であった。4K で反強磁性転移に伴う異常が観測された。中性子回折実験により、磁気構造は図 2 (f) に示されるような Neel 秩序であることが明らかとなった。図 2 (d) に示される磁化測定から、飽和磁場は 10T 程度であることが明らかとなった。さらに、ゼロ磁場における中性子非弾性散乱実験を行ったところ、図 3(a) に示されるような明瞭なスピン波励起を観測することが出来た。分散関係は図 3 (b) のように得られており、実験データは擬 2 次元ハイゼンベルグ反強磁性体を仮定したスピン波計算で再現された。面内相互作用  $J_1$  は  $27.8\mu\text{eV}$ 、面間相互作用  $J_2$  は  $1.0\mu\text{eV}$  と見積もられた。以上により、 $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$  は高磁場下におけるマグノンの測定モデル物質として最適であることが

明らかとなった。

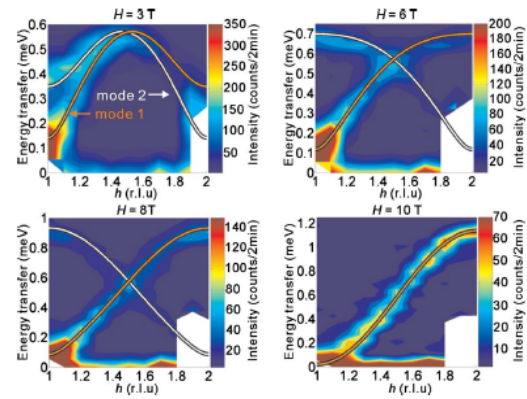


図 4 :  $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$  の磁場下中性子非弾性散乱データ

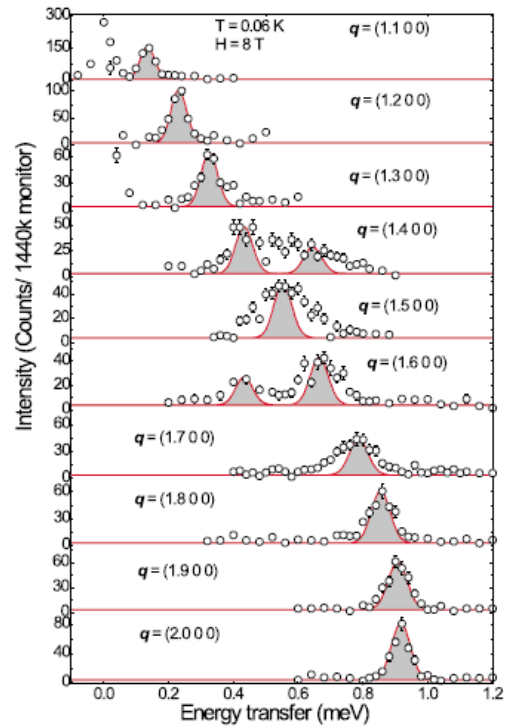


図 5 : 高エネルギー分解能条件下での非弾性散乱プロファイル

10T までの磁場下での中性子非弾性散乱スペクトルを図 4 に示す。飽和磁場以下では、2 副格子を反映して 2 つのモードが存在しており、飽和磁場以上の 10T ではすべてのスピンのため、1 つのモードのみが存在している。この実験結果は、ゼロ磁場の分散関係から得られた  $J_1=27.8\mu\text{eV}$ ,  $J_2=1.0\mu\text{eV}$  を用

いたスピン波計算(実線)によりよく再現されている。

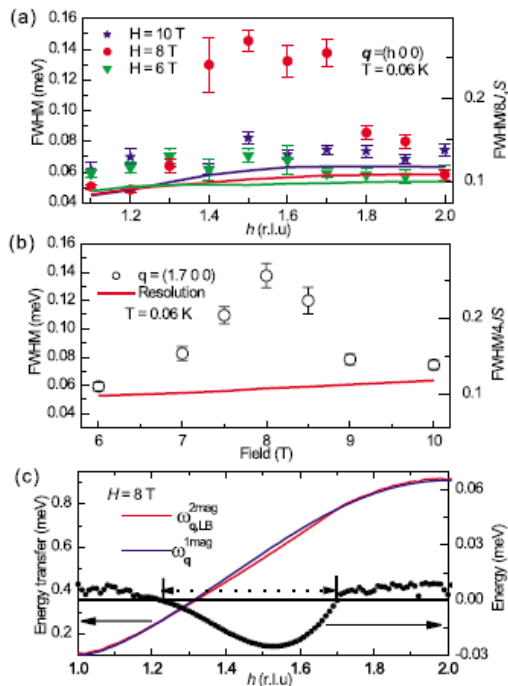


図6 : (a)エネルギー線幅の波数依存性、(b)エネルギー線幅の磁場依存性、(c)マグノンの崩壊チャンネル

図5に、エネルギー分解能を高めた条件で測定された8Tにおける非弾性散乱プロファイルを示す。グレイで示された領域がエネルギー分解能であり、赤線はスピン波計算である。 $q=(1.4\ 0\ 0)$ ,  $(1.5\ 0\ 0)$ ,  $(1.6\ 0\ 0)$ ,  $(1.7\ 0\ 0)$ でエネルギー線幅は明らかに分解能より広がっており、スピン波の寿命が短くなっていることが分かる。同じ分光器条件下で、6T, 10Tにおいても非弾性散乱プロファイルを測定し、エネルギー線幅を波数に対してプロットしたものが図6(a)である。8Tの限られた波数空間でスピン波が不安定化している様子が分かる。また、 $q=(1.7\ 0\ 0)$ におけるエネルギー線幅の磁場依存性をプロットしたものが図6(b)である。7T ~ 8.5Tの領域でスピン波が不安定となっていることが分かる。

マグノン崩壊チャンネルが開いている領域

を調べるために、2マグノン連続励起領域を計算し、そのエネルギー下端と1マグノン励起エネルギーを比較したものが図6(c)である。波数が $q=(h\ 0\ 0)$   $1.3 < h < 1.7$ の領域で、1マグノンエネルギー(青線)が連続励起の下端(赤線)を上回っており、この領域で崩壊チャンネルが開いていることが分かる。この領域は、図6(a)のマグノンが不安定化している領域と一致している。以上により、2次元ハイゼンベルグ反強磁性体において、高磁場下ではマグノン間相互作用の存在により1マグノンが安定に存在できなくなることが、実験的に明らかとなった。

[1] sM. B. Stone, I. A. Zaliznyak, T. Hong, C. L. Broholm, and D. H. Reich, *Nature London* **440**, 187 (2006).

[2] tT. Masuda, A. Zheludev, H. Manaka, L.-P. Regnault, J.-H. Chung, and Y. Qiu, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 047210 (2006).

[3] rM. E. Zhitomirsky and A. L. Chernyshev, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4536 (1999).

[4] E. Lifshits and L. Pitaevskii, *Statistical Physics II* (Pergamon, Oxford, 1980).

## 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 5件)

- ①. T. Masuda, M. Hagihala, Y. Kondoh, K. Kaneko, and N. Metoki, "Spin Density Wave in Insulating Ferromagnetic Frustrated Chain  $\text{LiCuVO}_4$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 113705 (2011).
- ②. M. Matsumoto H. Kuroe, T. Sekine and T. Masuda, *J. Phys. Conf. Ser.* **200**, 022034 (2010). "Theory of magnetic excitation for coupled spin dimer and spin chain system  $\text{Cu}_2\text{Fe}_2\text{Ge}_4\text{O}_{13}$ ".
- ③. J Kikuchi, J Kikuchi1, S Nagura1, H Nakanishi1 and T Masuda, *J. Phys.: Conf. Ser.* **200** 022024 (2010). "Nuclear magnetic and quadrupole resonances of Cu in the low-dimensional magnets  $\text{Cu}_2\text{M}_2\text{Ge}_4\text{O}_{13}$  (M = Fe, Sc)"
- ④. T. Masuda, K. Kitaoka, S. Takamizawa,

N. Metoki, K. Kaneko, K.C. Rule, K. Kiefer, H. Manaka, and H. Nojiri, Phys. Rev. B **81**, 100402 (2010). "Instability of magnons in two-dimensional antiferromagnets at high magnetic fields" **Selected as Editors' suggestion.**

⑤. M. Matsumoto H. Kuroe, T. Sekine and **T. Masuda**, J. Phys. Conf. Ser. **200**, 022034 (2010). "Theory of magnetic excitation for coupled spin dimer and spin chain system  $\text{Cu}_2\text{Fe}_2\text{Ge}_4\text{O}_{13}$ "

[学会発表] (計 16 件)

①. 発表者名：左右田稔, S. N. Gvasaliya, M. Mansson, A. Zheludev, **益田隆嗣**  
発表タイトル：マルチ フェロイック物質  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ におけるエレクトロマグノンの中性子散乱研究

学会等名：日本物理学会第67回年次大会

発表年月日：2012年3月27日

発表場所：関西学院大学西宮上ヶキャンパス

②. 発表者名：萩原 雅人, **益田隆嗣**, 真中浩貴<sup>A</sup>

発表タイトル：三角スピントラップ  $\text{CsCrF}_4$ の中性子散乱

学会等名：日本物理学会第67回年次大会

発表年月日：2012年3月25日

発表場所：関西学院大学西宮上ヶキャンパス

③. 発表者名：白椽大, 萩原弘幸, 佐藤博彦, **益田隆嗣**

発表タイトル：正四面体スピ

$\text{Co}_{4}\text{B}_{6}\text{O}_{13}$ の非弾性中性子散乱

学会等名：日本物理学会第67回年次大会

発表年月日：2012/3/24

発表場所：関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス

④. 発表者名：**益田隆嗣**

発表タイトル：強磁性フラストレート鎖の磁場中中性子散乱

学会等名：量子スピン系研究会

発表年月日：平成24年2月17日

発表場所：福井大学 遠赤外領域開発研究センター

⑤. 発表者名：**益田隆嗣**、萩原雅人、近藤洋右、金子耕士、目時直人

発表タイトル：Spin Density Wave in Insulating Ferromagnetic Frustrated Chain  $\text{LiCuVO}_4$

学会等名：アジア・オセアニア中性子散乱会議

発表年月日：2011年11月24日

発表場所：エポカルつくば

⑥. 発表者名：M. Hagihara, M. Soda, T. Haku, Y. Honma, and **T. Masuda**

発表タイトル：High energy Laue X-Ray imaging system

学会等名：アジア・オセアニア中性子散乱会

議

発表年月日：2011/11/22

発表場所：エポカルつくば

⑦. 発表者名：M. Soda and **T. Masuda**

発表タイトル：Nanomagnetism in Triangular Lattice System  $\text{LuFeMeO}_4$

( $\text{Me}=\text{Co}$  and  $\text{Mg}$ ) having Relaxor Property

学会等名：アジア・オセアニア中性子散乱会議

発表年月日：2011/11/22

発表場所：エポカルつくば

⑧. 発表者名：**益田隆嗣**

発表タイトル：Spin nematic correlation in frustrated ferromagnetic chain

学会等名：ICC-IMR Workshop on Novel Material Science by Neutron Scattering - Polarization Analysis & Cross-Correlation Method

発表年月日：平成23年11月18日

発表場所：東北大学金属研究所

⑨. 発表者名：**益田隆嗣**、

発表タイトル：低次元磁性体にみられる量子現象

学会等名：一般財団法人総合科学研究機構

発表年月日：平成23年10月17日

発表場所：茨城量子ビームセンター

⑩. 発表者名：**益田隆嗣**、萩原雅人、近藤洋右、金子耕士、目時直人

発表タイトル：強磁性フラストレート鎖  $\text{LiCuVO}_4$ の磁場中中性子散乱

学会等名：日本物理学会秋季大会

発表年月日：平成23年9月21日

発表場所：富山大学

⑪. 発表者名：**益田隆嗣**、真中浩貴

発表タイトル：三角スピントラップ  $\text{CsCrF}_4$ の中性子散乱

学会等名：JRR-3改造20周年記念シンポジウム

発表年月日：平成23年2月28日

発表場所：日本未来館

⑫. 発表者名：**益田隆嗣**

発表タイトル：Neutron scattering study of 2D square lattice antiferromagnet

$\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$

学会等名：Neutron Application on Strongly Correlated Electron System 11

発表年月日：平成23年2月23日

発表場所：茨城量子ビームセンター

⑬. 発表者名：**益田隆嗣**、真中浩貴

発表タイトル：Neutron scattering study of triangular spin tube  $\text{CsCrF}_4$

学会等名：International Conference on Frustration in Condensed Matter

発表年月日：平成23年1月12日

発表場所：仙台国際センター

⑭. 発表者名：**益田隆嗣**

発表タイトル：Inelastic Neutron Scattering in

## Low Dimensional Spin Systems by Triple Axis Spectrometer

学会等名：第11回日韓中性子科学研究会

発表年月日：平成23年1月20日

発表場所：Korean University

⑮. 発表者名：益田隆嗣、真中浩貴

発表タイトル：正三角スピントラップCsCrF4  
の中性子散乱

学会等名：中性子科学会

発表年月日：平成22年12月10日

発表場所：東北大学金属研究所

⑯. 発表者名：益田隆嗣、真中浩貴

発表タイトル：三角スピントラップCsCrF4の  
中性子散乱

学会等名：日本物理学会

発表年月日：平成22年9月23日

発表場所：大阪府立大学

[その他]

ホームページ

<http://masuda.issp.u-tokyo.ac.jp/>

### 6. 研究組織

#### (1) 研究代表者

益田隆嗣 (MASUDA TAKATSUGU)

東京大学物性研究所・准教授

研究者番号：90313014

#### (2) 研究分担者

なし

#### (3) 連携研究者

なし