

平成 27 年 6 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24340077

研究課題名(和文) 偏極中性子非弾性散乱による新規量子状態の研究

研究課題名(英文) Research on Novel Quantum State by Polarized Inelastic Neutron Scattering Technique

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

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,900,000円

研究成果の概要(和文)：中性子散乱によるダイナミクス測定は、従来非偏極中性子による実験が主流であったが、偏極中性子を用いると、磁気・フォノン励起の分離、磁気・格子ハイブリッド励起の観測などが可能となり、情報量は格段に増える。そこで本研究課題では、既存の分光器に改良を加え、偏極中性子非弾性散乱装置を開発し、これまでとは質の異なるデータ収集を可能とし、新規量子状態の本質に迫ることを目的とした。これまでに、スーパーミラーを用いた偏極システムの実装を行い、現在はJRR3の再稼働を待っている状況である。一方、J-PARC/MLF施設や海外中性子施設を利用した固体物理研究の推進も行った。

研究成果の概要(英文)：Neutron scattering technique is the best probe for the determination of material structures and the observation of microscopic dynamics. It has, thus, been widely used for the observation of spin correlation and elementary excitation in novel quantum states. Though the unpolarized neutron has been the main stream for inelastic neutron scattering, the use of polarized neutron brings much more information such as separation of magnetic and phonon excitations, observation of hybrid magneto-lattice excitation, etc. In this project our goal was to develop the polarized inelastic neutron scattering spectrometer, to make collection of high-quality data possible, and to reveal the nature of novel quantum states. We implemented supermirror polarization device on the existing spectrometer. At present we are waiting for JRR3. Meanwhile we proceed neutron scattering study on quantum spin system, multiferroic materials, and frustration systems by using J-PARC/MLF and neutron facilities abroad.

研究分野：磁性

キーワード：偏極中性子 中性子散乱 フラストレート系 マルチフェロイクス スピン・ダイナミクス エレクトロマグノン 量子スピン系

## 1. 研究開始当初の背景

二点相関関数を直接プローブする中性子散乱(注1)は、物質の構造決定とマイクロなダイナミクスの測定を得意としており、スピン液体やマルチフェロイクスなど新規量子状態のスピン相関(注2)と素励起の観測に大きな威力を発揮してきた。これまでのダイナミクス測定は、非偏極中性子スピンによる実験が主流であったが、偏極中性子を用いると、磁気励起とフォノン励起の分離、磁気・格子ハイブリッド励起の観測、スピン縦揺らぎと横揺らぎの分離などが可能となり、情報量は格段に増える。そこで本研究課題では、既存の偏極弾性中性子散乱分光器に改良を加え、偏極中性子非弾性散乱装置を開発し、これまでとは質の異なるデータ収集を可能とし、新規量子状態の本質に迫ることを目的とした。これまでに、スーパーミラーを用いた偏極システムの設計を行い、システムの実装を行った。現在は、JRR3の再稼働を待っている状況である。一方、J-PARC/MLF施設や海外中性子施設を利用して、量子スピン系、マルチフェロイック系(注3)、フラストレーション系等の研究を推進した。本報告書では、マルチフェロイック物質  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  において観測されたスピン・ネマティック相互作用について述べる。

## 2. 研究の目的

磁性と誘電性が同時に秩序化する現象はマルチフェロイクスと呼ばれ、2003年に  $\text{TbMnO}_3$  (Tb: テルビウム、Mn: マンガン、O: 酸素) が発見されて以降、基礎と応用の両面から大きな注目を集めてきた。理論的には、マイクロな電子状態をスピン・軌道相互作用と物質の対称性を取り入れて考慮することにより、スピンの構造と電気分極(注4)の構造の関係についてのモデルが提唱されてきた。実験面では、数多くのモデル物質で、複雑なスピン構造と電気分極の関係について研究がなされてきた。しかしながら、分極間相互作用と磁気相互作用(注5)の間どの

ような関係があるかについては明らかにされてきていなかった。その中で、最近注目されている二次元反強磁性体  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  は、電気分極がスピン演算子の対称二次テンソル(いわゆるスピン・ネマティック演算子)で表され、磁性と誘電性の関係が非常にシンプルであることが特徴である。図1(a)に示されるように、 $\text{Co}^{2+}$ イオンの周囲には  $\text{O}^{2-}$ イオンが四面体配位しており、反転中心が存在せず、電気分極とスピン・ネマティック演算子(注6)は等価になる。したがって、分極間相互作用をスピン・ネマティック相互作用と結びつけることができ、またこれらは全てスピン演算子により表すこともできるので、磁性と誘電性の両方を、簡単な形でスピン・ハミルトニアンにより記述することが可能になる。また、この物質では、 $\text{Co}^{2+}$ の磁気異方性の主要項は容易面型の単イオン異方性  $D(S^z)^2$  で表されるが、容易面内の向きは決定されないことも、特徴の一つである。

## 3. 研究の方法

中性子散乱実験は、J-PARC/MLFのチョッパー分光器 AMATERAS、スイス PSI の三軸分光器 TASP を用いて行われた。磁化測定には、市販の SQUID 磁束計を用いた。

## 4. 研究成果

我々は、まず、結晶の対称性を考察し、面内の異方性を決める主要項は、 $O_{XY}$  のスピン・ネマティック相互作用項であることを見出した。たとえば、図1(b)のように  $O_{XY}$  相関が反強磁性な場合には、磁気異方性は[100]方向となり、電気分極は反強誘電的となる。このことは、磁気異方性の測定はスピン・ネマティック相関の測定と等価であり、さらに異方性エネルギーの測定によりスピン・ネマティック相互作用定数と誘電エネルギーの測定が可能になることを意味する。そこで次に、中性子非弾性散乱実験による磁気スペクトルの収集と、SQUID 磁束計による磁化率曲線の測定を行った。図1(a)の磁気スペクトルに示されるように、 $Q=(1,0,0)$ から反強磁性スピン

波が立ち上がる様子が観測される。 $Q=(1,0,0)$  近傍を拡大すると、図 2(b)のように、0.1 meV (ミリエレクトロンボルト) 程度の明瞭な異方性ギャップが観測された。このスペクトルを、スピン・ネマティック相互作用を入れたスピン・ハミルトニアンで解析すると、図内の白線のように実験結果がよく説明された。このことから、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  においてスピン・ネマティック相互作用が存在していることが明らかになった。スピン・ネマティック相互作用定数の大きさは  $0.198\mu\text{eV}$  (マイクロエレクトロンボルト) と見積もられた。このエネルギーは、誘電エネルギーでもある。

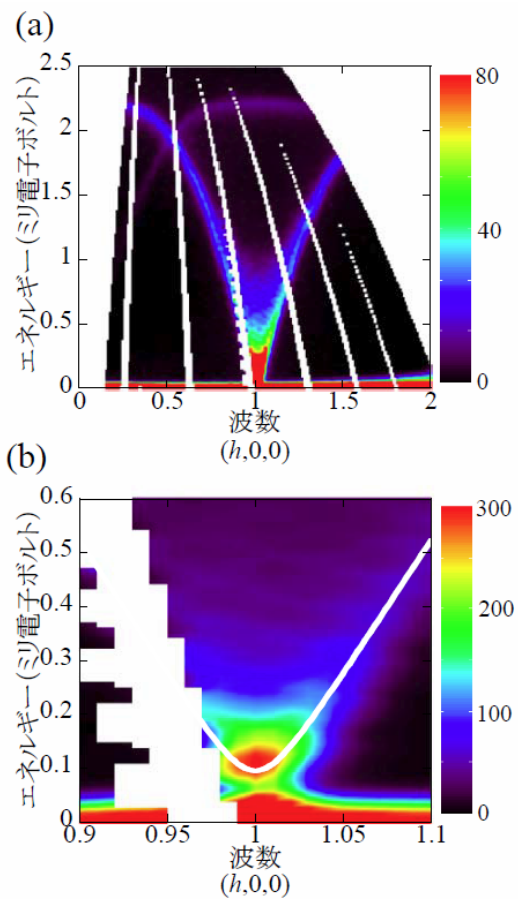


図 1 (a)  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  の結晶構造 (b) スピン、電気分極、スピン・ネマティック演算子の構造

ab 面内のさまざまな方向に磁場を加えた場合の磁化率を表した図 3(a)では、磁場を加えた方向が $[110]$ 及び $[1-10]$ 方向である場合に、スピントラップ転移による磁化率の増大が

$H=3000$  Oe (エルステッド) 近傍で観測されている。この 4 回対称な振る舞いは、磁気異方性項として  $O_{XY}$  相互作用項を用いることにより説明される。また $[110]$ と $[1-10]$ で転移が観測されたことから、相関は反強ネマティック的であることが導かれる。さらに、中性子スペクトルから得られた相互作用定数を用いて磁化曲線を計算すると、図 3(b)のようになり、実験結果を再現することが分かる。以上のように、中性子散乱と磁化率測定を行うことにより、スピン・ネマティック相互作用が存在することが明らかにされ、ネマティックエネルギーと誘電エネルギーを見積もることができた。

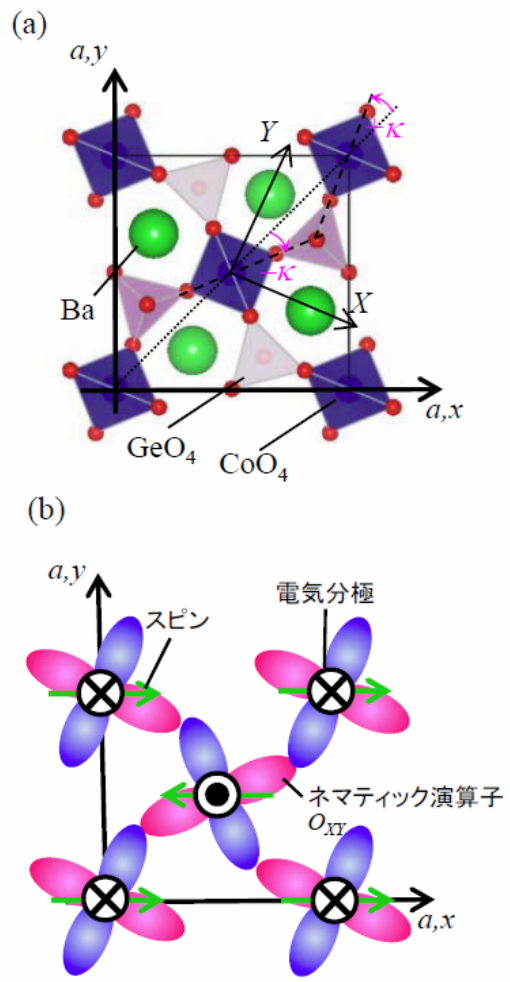


図 2 (a)  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  の中性子磁気スペクトル(注 7) (b) 中性子スペクトルの $(1,0,0)$ 近傍を拡大したもの。

マルチフェロイック物質は、電場を用いてス

ピンを制御できるため、新しいデバイス材料として期待されている。実用化のためには、小さな電場でスピンを制御できる必要があり、誘電エネルギーが小さいマルチフェロイック材料の探索が必要である。今回の研究により、磁性イオンの局所的な対称性に反転中心がなく、かつ結晶の対称性が高い物質では、電気分極がスピン・ネマティック演算子と等価であり、磁気異方性の主要項がスピン・ネマティック相互作用になることが明らかにされた。この場合、誘電エネルギーと磁気異方性エネルギーは等価であるため、小さな磁気異方性の物質では、小さな電場でスピンを制御できることを意味する。つまり、スピン・ネマティック相互作用を起源とする磁気異方性は、マルチフェロイックデバイス実用化のための性能示数となっていることが分かる。今後、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  を用いて電場によるスピン制御の実験や、小さな磁気異方性を有するマルチフェロイック物質の探索などを行っていくことが重要である。

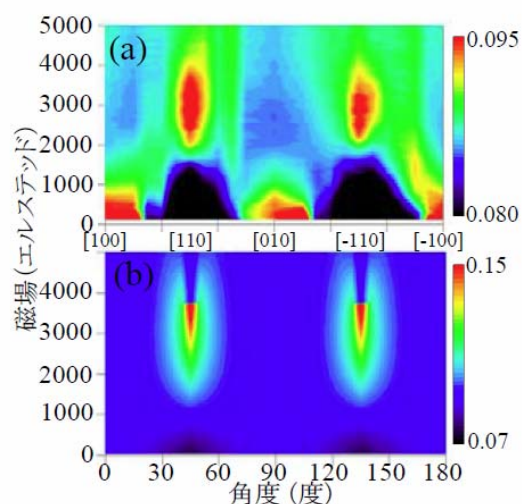


図 3 (a) 結晶 ab 面内の様々な方向に磁場を印加した場合の磁化率。横軸が磁場方向、縦軸が磁場の大きさ (b) 磁化率の計算結果。

(注 1) 中性子散乱

中性子の持つスピンを利用して、物質の磁気状態を探索する実験方法のこと。物性研究所附属中性子科学研究施設では、日本原子力研

究開発機構所有の研究用原子炉 JRR3 に数多くの中性子実験装置を所有し全国共同利用に提供している。しかし、東日本大震災以降 JRR3 は停止している (2015 年 6 月現在)。中性子を利用した物性科学の進展のためには、速やかな再稼働が期待されている。

(注 2) スピン相関

異なる磁性イオン上に存在するスピン間の幾何学的な関係のこと。

(注 3) マルチフェロイック物質

磁気秩序と電気分極秩序が同時に現れる物質のこと。電場によるスピンのコントロールや磁場による分極のコントロールが可能のため新しいデバイス材料として期待されている。

(注 4) 電気分極

プラスとマイナスの電荷の分布が偏ることにより生じる電氣的な分極のこと。

(注 5) 分極間相互作用と磁気相互作用

電気分極の間にはたらく相互作用を分極間相互作用とよぶ。一方、スピンやスピン・ネマティック演算子などの磁気演算子の間にはたらく相互作用を磁気相互作用とよぶ。

(注 6) スピン・ネマティック演算子

磁気演算子の一種。液晶の棒状分子のように、 $180^\circ$  回転させると元の状態に戻るという性質がある。 $O_{XY} = S^X S^Y + S^Y S^X$ ,  $O_2^2 = (S^X)^2 - (S^Y)^2$  などのように、スピン演算子の対称二次テンソルで表現される。

(注 7) 中性子磁気スペクトルの解析

物質中のスピンのミクロな運動を解明するために、中性子散乱実験により得られた 4 次元空間 (エネルギー+3 次元波数空間) 上のデータを解析すること。

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 12 件)

- ① Goran. J. Nilsen, Yoshihiko Okamoto, Takatsugu Masuda, Juan Rodriguez-Carvajal, Hannu Mutka, Thomas Hansen, and Zenji Hiroi, "Complex magnetostructural order in the frustrated spinel LiInCr4O8", Phys. Rev. B, 91 巻、174435(1-8), 査読有、2015.
- ② 益田隆嗣、左右田稔、マルチフェロイック物質 Ba<sub>2</sub>CoGe<sub>3</sub>O<sub>7</sub> におけるスピン・ネマティック相互作用の観測、固体物理、50 巻、111-122、査読無、2015
- ③ M. Thede, T. Haku, T. Masuda, C. Baines, E. Pomjakushina, G. Dhalenne, A. Revcolevschi, E. Morenzoni, A. Zheludev, "Inhomogeneous ordering in weakly coupled Heisenberg S=1/2 chains with random bonds", Phys. Rev. B, 90 巻、144407(1-8)、査読有、2014.
- ④ Masashi Hase, Minoru Soda, Takatsugu Masuda, Daichi Kawana, Tetsuya Yokoo, Shinichi Itoh, Akira Matsuo, Koichi Kindo, and Masanori Kohno, "Experimental confirmation of spin gap in antiferromagnetic alternating spin 3/2 chain substances RCrGeO<sub>5</sub> (R=Y or <sup>154</sup>Sm) by inelastic neutron scattering experiments", Phys. Rev. B, 90 巻、024416 (1-7)、査読有、2014.
- ⑤ Masashige Matsumoto, Minoru Soda, and Takatsugu Masuda, "Theoretical Study on Multiferroic Properties in Integer Spin Systems with Large Single-Ion Anisotropy", JPS Conf. Proc., 3 巻、014033(1-6)、査読有、2014.
- ⑥ 益田隆嗣、三軸分光器入門、波紋、23 巻、223-22、査読有、2013
- ⑦ M. Soda, M. Matsumoto, M. Mansson, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Shiina, and T. Masuda, "Spin-Nematic Interaction in the Multiferroic Compound Ba<sub>2</sub>CoGe<sub>2</sub>O<sub>7</sub>", Phys. Rev. Lett., 112 巻、127205(1-5)、査読有、2014.
- ⑧ S. Itoh, T. Yokoo, D. Kawana, H. Yoshizawa, T. Masuda, M. Soda, T.J. Sato, S. Satoh, M. Sakaguchi, and S. Muto, "Progress in High Resolution Chopper Spectrometer, HRC", J. Phys. Soc. Jpn., 82 巻、SA033(1-6)、査読有、2013.

他 4 件

[学会発表] (計 52 件)

- ① 益田隆嗣、マルチフェロイック物質 Ba<sub>2</sub>CoGe<sub>2</sub>O<sub>7</sub> の中性子散乱、Crossroads 第 1 4 回 スピン系とフラストレーション

ン、2015 年 2 月 3 日、いばらき量子ビームセンター (茨城県東海村)

- ② 益田隆嗣、Neutron Scattering Study in 2-D Antiferromagnets Ba<sub>2</sub>MGe<sub>2</sub>O<sub>7</sub> (M=Cu,Co,Mn)、Coherent Excitation Workshop、2014 年 12 月 5 日、Tainan City (Taiwan)
- ③ 益田隆嗣、Inelastic Neutron Scattering Instrument ~Triple-Axis Spectrometer~、Coherent Excitation Workshop、2014 年 12 月 5 日、Tainan City (Taiwan)
- ④ T. Masuda, M. Hagihara, and H. Manaka, Partial disorder in frustrated triangular spin tube CsCrF<sub>4</sub>, The international conference on strong correlated electron systems (SCES 2013)、2013 年 8 月 6 日、東京大学 (東京都文京区)
- ⑤ T. Masuda, M. Hagihara, and H. Manaka, Partial disorder in frustrated triangular spin tube CsCrF<sub>4</sub>, The 12th Asia Pacific Physics Conference、2013 年 7 月 16 日、幕張メッセ (千葉県千葉市)
- ⑥ 益田隆嗣、安井幸夫、長谷正司、萩原雅人、河村聖子、中島健次、富安啓輔、寺崎一郎、菊地龍弥、稲村泰弘、左右田稔、強磁性フラストレート鎖 Rb<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>Mo<sub>3</sub>O<sub>12</sub> の磁気励起、日本物理学会、2013 年 3 月 27 日、広島大学 (広島県東広島市)
- ⑦ 益田隆嗣、萩原雅人、真中浩、CsCrF<sub>4</sub> の中性子散乱、量子スピン系研究会、2013 年 3 月 3 日、新潟大学 (新潟県新潟市)
- ⑧ 益田隆嗣、真中浩貴、三角スピントラップ CsCrF<sub>4</sub> の中性子散乱、日本中性子科学会年会、2012 年 12 月 10 日、京都大学 (京都府京都市)
- ⑨ 益田隆嗣、一次元フラストレート強磁性鎖物質の新規な磁気相、基研研究会「量子スピン系の物理」、2012 年 11 月 13 日、京都大学基礎物理学研究所 (京都府京都市)

他 4 3 件

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<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

左右田 稔 (SODA, Minoru)  
東京大学・物性研究所・助教  
研究者番号： 40463905