

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540352

研究課題名(和文) 一次元スピン系の動的構造因子における量子効果の検出

研究課題名(英文) Detection of quantum effect in dynamical structure factor in one-dimensional spin system

研究代表者

伊藤 晋一 (Itoh, 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・教授

研究者番号：00221771

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：一次元磁性は固体物理学の中でも最も成熟した研究分野のひとつであるが、未解決の問題もある。中性子非弾性散乱実験はエネルギー・運動量の四次元空間で動的構造因子を測定する実験手法であるが、四次元空間での分解能関数を考慮して、これを補正することにより、一次元反強磁性体CsVCl₃の連続帯励起という量子効果を明瞭に検出することができた。開発した分解能補正を三次元スピン系にも適用した。その結果、測定した粉末試料の金属強磁性体SrRuO₃の磁気励起スペクトルから、スピン波の温度変化を導出することができた。

研究成果の概要(英文)：One-dimensional (1D) magnetism is one of the most mature areas in condensed matter physics, however, there are some unresolved problems. Inelastic neutron scattering is an experimental technique for measuring dynamical structure factor in the four-dimensional (4D) space of energy and momentum. An analysis method using the resolution function in the 4D space was developed, and then, a quantum effect such as continuum excitations in a 1D antiferromagnet CsVCl₃ could be clearly detected by the correction of the resolution function. The developed analysis for the resolution correction was also applied to a study of a three-dimensional spin system. Magnetic excitation spectra in a powder sample of a metal ferromagnet SrRuO₃ were measured, and then temperature dependence of spin waves was successfully detected.

研究分野：強相関電子系・中性子散乱

キーワード：中性子非弾性散乱 パルス中性子 低次元磁性体 強相関電子系 分解能関数

1. 研究開始当初の背景

一次元磁性は固体物理学の中でも最も成熟した研究分野のひとつである。なかでも磁性原子のスピ量子数 S が $1/2$ である一次元ハイゼンベルグ型反強磁性体 (1DHAF) における量子効果は非常によく研究されてきた。 $S=1/2$ の 1DHAF の基底状態は反強磁性ネール状態ではなく、縮退したスピン-重項状態(ベ-テ状態)であり、ベ-テ状態はネール状態よりエネルギーが低いので、ベ-テ状態からの最低励起状態は、ネール状態からの古典的なスピン波励起に比べて励起エネルギーが $\pi/2$ 倍に増大することが明らかにされてきた(再規格化因子 $R=\pi/2$)。さらに、最低励起状態から高エネルギー領域にはバンド状のスピンノンの連続帯がある。これらの理論的予想は、 $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{NC}_5\text{D}_5$ や KCuF_3 において、中性子非弾性散乱実験で確認されてきた。

$S=1/2$ の 1DHAF に現れる量子効果が S が大きくなるときにどのように変化していくかということについては、未解決の問題も多い。この視点で、整数スピン系に対する励起はゾーンセンターでギャップを示すが半整数スピン系では示さないというハルデン予想は、重要なマイルストーンであり、 CsNiCl_3 や $\text{Ni}(\text{C}_2\text{H}_8\text{N}_2)_2\text{NO}_2\text{ClO}_4$ などで確認されてきた。一方で、 $S=5/2$ では古典論でよく記述されることが古くから知られているが、 $S=1$ と $S=5/2$ とをつなぐデータは欠如していた。我々は、 $S=1, 2/3, 2$ の 1DHAF のパルス中性子非弾性散乱実験により、再規格化因子 R が、 S に対して系統的に変化し、各 S に対する量子モンテカルロ法での計算に一致することを示した。 $S=1/2$ で確認されてきた連続帯励起が、これらの系ではどのように観測されるかということが、次の課題になっている。 $S=3/2$ の CsVCl_3 におけるパルス中性子非弾性散乱実験で、ゾーンセンター付近に、連続帯励起の理論的予想に矛盾しない励起を観測したが、解析技術の欠如により、結論に至っていない。

一次元磁性における量子効果の研究のもうひとつの展開方向はランダム性の導入である。交換相互作用の値の分布によってランダムに選ばれたスピン対がシングレットとして結合するランダムシングレット相が出現する。一次元反強磁性体 $\text{BaCu}_2(\text{Si}_{0.5}\text{Ge}_{0.5})_2\text{O}$ において、 $S=1/2$ のランダムシングレット相で理論的に予想されている動的構造因子を示すことが実験的に明らかにされた。 $S=3/2$ では、交換相互作用の分布が小さいと有効スピン $1/2$ のランダムシングレット相が出現し、分布が大きいと有効スピン $3/2$ のランダムシングレット相になると言われている。その上、分布の臨界値で相転移も予想され、動的

構造因子が臨界指数を用いて記述できることが予想されているが確認されていない。

我が国においては、大強度陽子加速器施設 J-PARC において、世界に並び立つ大強度のパルス中性子源の建設が物質・生命科学研究施設 MLF にすすめられ、中性子非弾性散乱装置もいくつか MLF に建設されているが、上述の研究に対して解答を与えるための基本的な解析技術は整備されていない。

2. 研究の目的

パルス中性子源における標準的中性子非弾性散乱装置であるチョッパー分光器において、その解析の基礎となる分解能補正技術を確認し、上述の未解決の一次元スピン系における量子効果の検出を行うものである。また、この分解能補正技術を種々のスピン系の研究で試みるものである。

3. 研究の方法

単結晶試料を用いた中性子非弾性散乱実験では、四次元空間 (Q_x, Q_y, Q_z, ω) における動的構造因子 $S(Q_x, Q_y, Q_z, \omega)$ が観測される。ここで、 (Q_x, Q_y, Q_z) は運動量遷移、 ω はエネルギー遷移である。パルス中性子源に設置されたチョッパー分光器では、中性子源で発生した中性子は単色化され、実験試料に入射・散乱され、検出器で検出されるが、検出した中性子の飛行時間(発生から検出までの時間)と、散乱角(検出器の設置位置で定義される)とを測定することにより、検出した中性子の (Q_x, Q_y, Q_z, ω) を決定する。しかし、チョッパー分光器内の機器が有限の大きさを持ち、かつ、発生するパルス中性子はそのエネルギーに依存した有限の放出時間分布を持つことにより、 (Q_x, Q_y, Q_z, ω) は誤差を持ち、動的構造因子 $S(Q_x, Q_y, Q_z, \omega)$ は有限の分解能で観測される。この幾何学的及び時間的な誤差は (Q_x, Q_y, Q_z, ω) 空間での分解能関数 $R(Q_x, Q_y, Q_z, \omega)$ として表現することができ、観測される中性子散乱強度は、動的構造因子と分解能関数との畳み込みで表わされる。

J-PARC/MLF に設置された高分解能チョッパー分光器(HRC: High Resolution Chopper Spectrometer)の装置パラメーターに基づき、文献(T. G. Perring, Proceedings of 12th Meeting of Internal Collaboration on Advanced Neutron Sources, Rutherford Appleton Laboratory, RAL 94-025 (1994) I-328)のアルゴリズムを参考にして、分解能関数 $R(Q_x, Q_y, Q_z, \omega)$ を実際の測定条件に対して決定する計算プログラムを開発する。

開発した計算プログラムを用いて、HRC で測定した $S=3/2$ の 1DHAF である CsVCl_3 の励

起スペクトルを解析し、連続帯励起の検出を試みる。 CsVCl_3 と CsVl_3 は交換相互作用定数が異なるもののどちらも $S=3/2$ の1DHAFである。この混晶であるランダム一次元反強磁性体 $\text{CsV}(\text{Cl}_{1-c}\text{I}_c)_3$ は $S=3/2$ のランダムシングレット相を示すモデル物質を考えられるので、その動的構造因子を測定して、ランダムシングレット相の検出を試みる。また、この分解能補正技術を一次元系のみならず高次元量子スピン系に対しても試みる。

4. 研究成果

HRCで測定した単結晶試料一次元反強磁性体 CsVCl_3 の磁気励起スペクトルは、そのエネルギー幅が分解能よりも広く、低エネルギー領域では連続帯の存在を示唆するものである。開発した分解能計算プログラムを用いて、古典論的一次元反強磁性スピン波の動的構造因子(エネルギー幅をデルタ関数で表現)が分解能関数でたたみこまれた散乱強度の計算を行い、単結晶試料の CsVCl_3 の磁気励起の測定データと比較した。その結果、実験データは、古典論的計算に比べて明らかに広いエネルギー幅を持つことがわかった。このエネルギーの広がり理論的に提唱されている、 $S=3/2$ の系での量子効果による連続帯励起とコンシステントであることがわかった。

ランダム一次元反強磁性体 $\text{CsV}(\text{Cl}_{0.38}\text{I}_{0.62})_3$ は、 $S=3/2$ のランダムシングレット相を示す候補物質と考えられる。HRCにおいて、この物質の中性子非弾性散乱実験をパルス中性子を用いて行なったところ、交換相互作用定数が一定の $S=3/2$ の1DHAFである CsVCl_3 に比べてブロードな動的構造因子を観測した。また、予想に反して、低温で非整合の磁気励起スペクトルを観測した。これらの振舞がランダムシングレット相の描像で理解できるかどうかは今後の課題である。さらに、ほかの一次元反強磁性体の中性子非弾性散乱実験を行い、粉末試料の TiOBr では、明瞭な磁気励起は観測できず、単結晶試料の $\text{Nd}_{1.965}\text{C}_{0.035}\text{BaNiO}_5$ ではスピングャップを観測した。

HRCでは、前方散乱近傍の中性子非弾性散乱実験である中性子ブリルアン散乱実験が実施できるように整備がすすめられている。この方法によれば、粉末試料の強磁性スピン波が測定可能である。粉末強磁性体のスピン波は、その動的構造因子の粉末平均により、(000)の近傍でしか中性子非弾性散乱強度を持たないが、HRCを用いると中性子非弾性散乱の運動力学的限界に迫ることができて、測定可能となる。まず単結晶試料でスピン波が測定されている立方晶ペロブスカイト型強磁性体 $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ の粉末試料を用いてスピン波の

検出を試みた。観測された磁気励起は、そのエネルギー幅が分解能関数で計算される値に一致するスピン波であることが解析で明らかになった。得られた分散関係は、単結晶試料で得られていたものと一致した。この実験により、HRCにおける中性子ブリルアン散乱実験の正しさを証明した。

立方晶ペロブスカイト型の金属強磁性体 SrRuO_3 では中性子非弾性散乱に必要な大型の単結晶試料は合成されていない。粉末試料を用いてHRCで中性子ブリルアン散乱実験により磁気励起を観測した。 SrRuO_3 は、異常ホール効果を示す物質であり、その異常ホール伝導度は、温度に対して非単調に変化することが知られている。HRCで観測した各温度の磁気励起スペクトルは、強磁性転移温度以下では、そのエネルギー幅が分解能関数で計算される値に一致するスピン波であることが明らかになった。観測したスピン波の分散関係から、スピングャップを持つことが明らかになり、スピングャップの温度変化は温度に対して非単調に変化することを明らかにした。この結果は、スピングャップと異常ホール伝導度の温度依存性との関係が示唆される結果であり、系のペリー位相に起因する量子効果を検出した可能性がある。

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8件)

Neutron Brillouin Scattering Experiments with Pulsed Neutrons on High Resolution Chopper Spectrometer HRC, S. Itoh, T. Yokoo et al., J. Phys.: Conf. Series 502 (2014) 012043, doi:10.1088/1742-6596/502/1/012043.

Dynamical properties of spins and holes in carrier doped quantum Haldane chain, T. Yokoo, S. Itoh et al., J. Phys.: Conf. Series 502 (2014) 012045, doi:10.1088/1742-6596/502/1/012045.

Spin and Hole Dynamics in Carrier Doped Quantum Haldane Chain, T. Yokoo, S. Itoh et al., J. Phys.: Conf. Series 568 (2014) 042035, doi:10.1088/1742-6596/568/4/042035.

Progress in High Resolution Chopper Spectrometer, HRC, S. Itoh, T. Yokoo et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) SA033, doi: 10.7566/JPSJS.82SA.SA033.

Neutron Brillouin Scattering on High Resolution Chopper Spectrometer HRC, S. Itoh, T. Yokoo et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) SA034, doi: 10.7566/JPSJS.82SA.SA034.

Neutrons Brillouin Scattering with Pulsed Spallation Neutron Source - Spin-Wave Excitations from Ferromagnetic Powder Samples -, S. Itoh, Y. Endoh, T. Yokoo et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) 043001, doi: 10.7566/JPSJ.82.

043001.

Magnetic Excitation of Possible Spin-Peierls System TiOBr, T. Yokoo, S. Itoh et al., J. Phys.: Conf. Series 400 (2012) 032123, doi:10.1088/1742-6596/400/3/032123.

Quantum renormalization effects in one-dimensional Heisenberg antiferromagnets, S. Itoh, T. Yokoo et al., J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) 084706, doi: 10.7566/JPSJ.82.043001.

〔学会発表〕(計 19 件)

チョッパー分光器による研究領域拡大の展望、伊藤晋一、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 21- 24 日、早稲田大学(東京)

遍歴電子反強磁性体 -FeMn の高エネルギースピンの励起、井深壮史、横尾哲也、伊藤晋一他、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 21- 24 日、早稲田大学(東京)

HRC の装置開発と中性子ブリルアン散乱実験、伊藤晋一、横尾哲也他、日本中性子科学会第 14 回年会、2014 年 12 月 11-12 日、北海道立道民活動センター(札幌市)

-FeMn 反強磁性体の高エネルギー領域におけるスピンの励起、井深壮史、伊藤晋一、横尾哲也、遠藤康夫、日本中性子科学会第 14 回年会、2014 年 12 月 11-12 日、北海道立道民活動センター(札幌市)

Instrument Developments and Neutron Brillouin Scattering Experiments on HRC, S. Itoh, T. Yokoo et al., 21st Meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources (ICANS XXI), 29 Sep - 3 Oct 2014, 茨城県立県民文化センター(水戸市)

Spin and Hole Dynamics in Carrier Doped Quantum Haldane Chain, T. Yokoo, S. Itoh et al., 27th International Conference on Low Temperature Physics (LT27), 6 - 13 August 2014, Buenos Aires (Argentina)

Science from the initial operation of HRC, S. Itoh, T. Yokoo et al., 2nd International Symposium on Science at J-PARC, 12 - 15 July 2014, つくば国際会議場(つくば市)

金属強磁性体 SrRuO₃ の磁気励起、伊藤晋一、遠藤康夫、横尾哲也他、日本中性子科学会第 13 回年会、2013 年 12 月 12-13 日、さわやかちば県民プラザ(柏市)

高分解能チョッパー分光器の整備状況、伊藤晋一、横尾哲也他、日本中性子科学会第 13 回年会、2013 年 12 月 12-13 日、さわやかちば県民プラザ(柏市)

SrRuO₃ の磁気励起、伊藤晋一、遠藤康夫、横尾哲也他、日本物理学会 2013 年秋季大会、2013 年 9 月 25-28 日、徳島大学(徳島市)

Neutron Brillouin Scattering Experiments with Pulsed Neutrons on High Resolution Chopper Spectrometer, HRC, S. Itoh, T. Yokoo et al., Light and Particle Beams in Materials Science 2013 (LPBMS2013), 29 - 31 August 2013, つくば国際会議場(つくば市)

Dynamical properties of spins and holes in carrier doped quantum Haldane chain, T. Yokoo, S. Itoh et al., Light and Particle Beams in Materials Science 2013 (LPBMS2013), 29 - 31 August 2013, つくば国際会議場(つくば市)

Neutron Brillouin scattering on High Resolution Chopper Spectrometer HRC, S. Itoh, T. Yokoo et al., International Conference on Neutron Scattering (ICNS2013), 8 - 12 July 2013, Edinburgh (UK)

Spin and Hole Dynamics in Carrier Doped Quantum Haldane Chain, T. Yokoo, S. Itoh et al., International Conference on Neutron Scattering (ICNS2013), 8 - 12 July 2013, Edinburgh (UK)

高分解能チョッパー分光器(HRC)の近況、伊藤晋一、横尾哲也他、日本中性子科学会第 12 回年会、2012 年 12 月 10-11 日、京都大学(京都市)

高分解能チョッパー分光器(HRC)における中性子ブリルアン散乱実験、伊藤晋一、横尾哲也他、日本中性子科学会第 12 回年会、2012 年 12 月 10-11 日、京都大学(京都市)

Progress in High Resolution Chopper Spectrometer (HRC), S. Itoh, T. Yokoo et al., Nikko Joint Conference between 10th International Conference on Quasielastic Neutron Scattering and 5th Workshop on Inelastic Neutron Spectrometers (QENS2012/WINS2012), 2012 年 9 月 30 日-10 月 4 日、日光総合会館(日光市)

Magnetic Brillouin Neutron Scattering on High Resolution Chopper Spectrometer (HRC), S. Itoh, T. Yokoo et al., Nikko Joint Conference between 10th International Conference on Quasielastic Neutron Scattering and 5th Workshop on Inelastic Neutron Spectrometers (QENS2012/WINS2012), 2012 年 9 月 30 日-10 月 4 日、日光総合会館(日光市)

Neutron Inelastic Scattering on Spin-Peierls System TiOBr, T. Yokoo, S. Itoh et al., 19th International Conference on Magnetism (ICM2012), 8 - 13 July 2012, Busan (Korea)

6. 研究組織

(1)研究代表者

伊藤 晋一 (ITO, Shinichi)

高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・教授

研究者番号：00221771

(2)研究分担者

横尾 哲也 (YOKOO, Tetsuya)

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：10391707