

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 28 日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740223

研究課題名(和文) 中性子散乱を用いた三角格子反強磁性体におけるスピン依存量子状態の解明

研究課題名(英文) Neutron scattering study of spin-dependent quantum states in triangular antiferromagnets

研究代表者

南部 雄亮 (Nambu, Yusuke)

東北大学・多元物質科学研究所・助教

研究者番号：60579803

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：新奇な量子状態に至る手段として幾何学的フラストレーションが注目を集めている。本研究では中性子散乱を通して、スピンに依存した巨視的な量子状態の解明を目的として研究を行った。その結果、スピンが1と2の三角格子反強磁性体において、例えば磁気四重極子相関など通常の二体スピン間相互作用では説明できない現象を突き止めた。また、二種類のスピン1/2籠目格子反強磁性体についても中性子非弾性散乱を行った。詳細に磁気励起を測定し、三重項励起の磁場応答や量子効果による線形スピン波理論の補正などを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Geometrical frustration has attracted a lot of interest because of a potential emergence of novel quantum states. To elucidate spin-dependent macroscopic quantum states, neutron scattering measurements were performed on frustrated magnets. In triangular antiferromagnets with spin-1 and 2, inelastic and polarized elastic neutron scattering measurements reveal the possible existence of magnetic quadrupole interactions. Indeed, our experimental findings cannot be explained by simple spin-spin exchange interactions. In addition, we have applied inelastic neutron scattering on spin-1/2 Kagome antiferromagnets. Through detailed study of magnetic excitations, singlet-triplet excitations and its magnetic field evolution, and renormalization of excitation energy predicted by the linear spin wave theory due to quantum effects are clarified.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：フラストレート磁性体 中性子散乱 三角格子反強磁性体 籠目格子反強磁性体 巨視的量子状態

1. 研究開始当初の背景

従来型の磁気秩序を何らかの方法で抑えることができた際に出現する新しい量子状態に興味が集まっている。それを可能にする要因として低次元性と幾何学的フラストレーションが注目されている。低次元性と幾何学的フラストレーションを同時に兼ね備えた系の中では二次元三角格子が構造的に最も単純である。二次元三角格子反強磁性体ではRVB スピン液体状態を端緒として興味深い理論予想がなされてきたが、現実の物質では理想的な二次元性を持つ物質が稀有であるため、その磁性は長らく未開拓のままであった。その実験的解明のためには中性子散乱を含む総合的・多角的な研究が必要であるが、これまでの二次元物質は薄膜であったことや単結晶試料の大型化が困難なことから中性子散乱が不可能であった。

磁気秩序を抑える方法の一つである低次元性について、その極限はもちろん一次元である。一次元反強磁性鎖ではスピンのサイズに応じて基底状態が異なることが知られており、スピンサイズに依存した巨視的量子状態が実現している。それではこの巨視的量子現象は一次元に限った話なのだろうか？実は我々の研究を通して、二次元三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 においてもスピンサイズ依存性が存在する事実を初めて実験的に確認した。Ni サイトを Mn ($S = 5/2$)、Fe ($S = 2$)、Co ($S = 3/2$)、Zn ($S = 0$) で置換した場合、置換するスピンが整数か半整数かによって低温磁気比熱の温度の冪乗が異なるというものである。

スピンサイズ依存性は一次元では理論的・実験的に確立しているものの、高次元の物質での存在の可能性についてはこれまで否定的な意見が多かった。しかしながら、最近理論家からはハミルトニアンにおける双二次項 ($S \cdot S$)² が発現機構の有力な候補であることが示唆された。これらは特にスピンネマティック状態と呼ばれ、スピンの秩序(通常は磁気秩序)は存在しないが磁気四重極子が秩序している状態を表す。しかしながら、その相関の存在は傍証に留まっており、今のところ磁気四重極相関の直接的な解明には至っていない。

2. 研究の目的

本研究の目的はこのような二次元三角格子反強磁性体において観測される巨視的なスピン依存量子状態について、その起源を中性子散乱を通して探ることにある。

我々は最低温まで三角格子を保つ $S = 1$ の系 NiGa_2S_4 の開発に成功し一貫して研究を行ってきた。この物質は高い二次元性を持つもののバルクの大型試料の作成、純良化に成功しており、中性子散乱が適用可能な稀有な例である。

その他にも、二次元において最もフラストレーションが強い系である籠目格子反強磁

性体では磁気励起のギャップ形成についてスピンに依存する巨視的量子状態が理論的に提案されている。まずは $S = 1/2$ のモデル物質について、長距離磁気秩序を示す場合と示さない場合を中性子非弾性散乱により詳細に調べる。

3. 研究の方法

二次元三角格子反強磁性体については粉末、単結晶試料を合成し、x 線回折などを用いて評価した。また磁化率測定などで試料の純度を確認した。籠目格子反強磁性体については東京工業大学田中研究室から試料の提供を受けた。

中性子散乱実験は J-PARC、アメリカ標準技術研究所、オークリッジ国立研究所など国内外の施設において、三軸分光器、チョッパー分光器、後方散乱、スピンエコー法、全散乱装置などを用いて行った。

4. 研究成果

以下に本研究で得られた成果を物質ごとにまとめる。

(1) $S = 1$ 三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4

NiGa_2S_4 は低温でも長距離磁気秩序を示さず、新奇な磁性を示す。これまでに行った三軸分光器による中性子非弾性散乱、後方散乱、スピンエコー法、ミュオンスピン緩和 (μSR) の実験結果を詳細に解析し、この物質の動的挙動の温度変化を解明した(図 1)。温度減少につれて単調に増大する相関距離とは対照的に、スピンの時間相関の温度変化は異常を示す。8.5 K に向けてスピンの揺らぎが抑えられていくものの、この緩和は完全には達成されず、代わりに MHz 程度の遅い揺らぎが 4 K 程度まで保持されることがわかった。8.5 K の異常はスピンの担うカイラリティが引き起こす Z_2 渦で定性的に説明できる。MHz 程度の揺らぎが単純なスピン相関で説明できないことや、これまでの不純物効果の結果から磁気四重極子相関など新奇な起源が考えられる。この成果については現在論文投稿中である。

中性子実験を効率的に行うべく、単結晶試料 150 個 (2.6 g) を合成し、軸立てを行った。J-PARC において高エネルギー非弾性中性子散乱を行い、磁気散漫散乱からのコンティナム励起の存在を明らかにした。この励起の起源の候補として磁気四重極相関が考えられる。また、フォノンの温度依存性が $T^* = 8.5$ K において異常を示すことも突き止めた。さらには、粉末試料を合成して全散乱実験を行い、局所構造の乱れの有無を調べた。装置分解能の範囲において乱れは存在しないことから、コンティナム励起が乱れ由来では説明できない可能性が高い。また、磁気四重極相関の可能性を探るべく、ごく最近三軸分光器を用いて偏極中性子散乱を行った。その結果、 T^* を境にしたスピンの揺らぎの空間変化を

突き止めた。これらの成果については現在論文投稿準備中である。

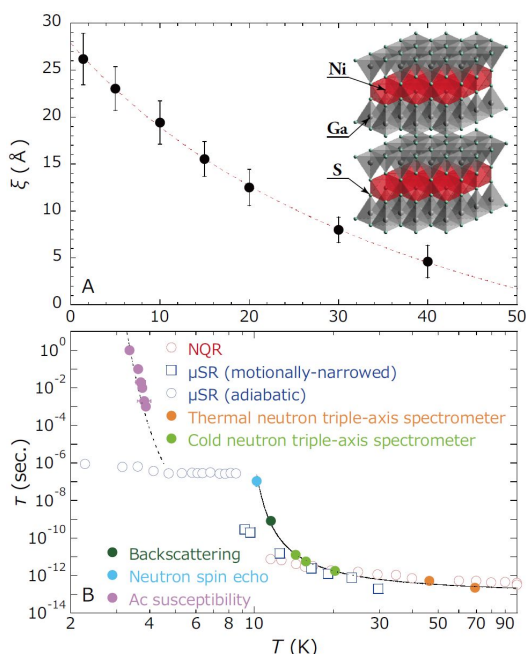


図 1: (A)スピンの相関距離 と(B)特徴的なスピンの揺らぎ時間の温度依存性。

(2) $S = 2$ 三角格子反強磁性体 FeGa_2S_4

FeGa_2S_4 について μSR 測定を行った。 $T^* = 31\text{ K}$ 以下においても緩和率は発散せず有限に留まり、何らかの動的挙動が保持されることを明らかにした(図 2)。この機構として、 Z_2 渦による転移、あるいはスピンネマティック状態における不純物スピンの起源が考えられる。この成果は〔雑誌論文〕の 1 に出版済である。

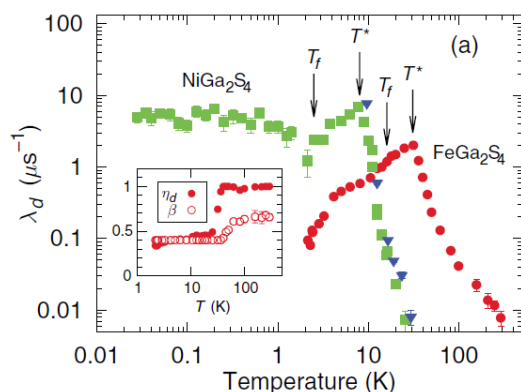


図 2: FeGa_2S_4 におけるミュオンスピン緩和率の温度依存性。

(3) $S = 1/2$ 籠目格子反強磁性体 $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$

$\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ はスピンの一重項対が固化した基底状態を取ることが知られている。チョッパー分光器を用いた中性子散乱により、その三重項励起を詳細に調べた。その結果、単位格子の拡大に伴う新たな磁気励起やコンテナ励起の観測に成功した。この成果は

〔雑誌論文〕の 2 に出版済である。

さらに、チョッパー分光器、三軸分光器を用いて一重項・三重項励起の磁場依存性を調べた。励起ギャップは磁場印加に伴って Zeeman 項で予想されるように減少するが、完全な消失には至らない。さらに磁場を印加すると新たな機構によってギャップが誘起される。この機構としては、結晶構造に由来する Dzyaloshinskii-守谷相互作用の面内成分、及び g テンソルの非対角項に起因すると考えられる。この成果については現在投稿準備中である。

(4) $S = 1/2$ 籠目格子反強磁性体 $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$

$\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ は $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ とは異なり、基底状態として長距離磁気秩序を持つ。三軸分光器を用いた中性子非弾性散乱から、その磁気励起を調べた。その結果磁気励起は、幅広い波数領域にまたがって線形スピン波理論から予想される磁気励起エネルギーの 60% 程度しかないことがわかった(図 3)。これは線形スピン波理論で見落とされている量子効果の存在を示唆している。この成果は〔雑誌論文〕の 3 に出版済であり、JPSJ の Editors' Choice に選ばれた。

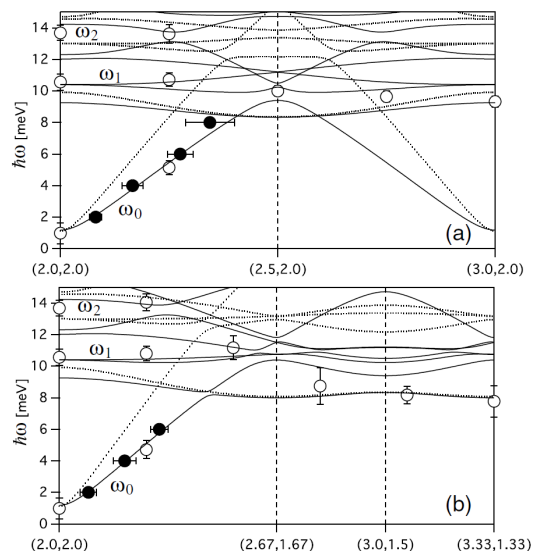


図 3: 実験データとスピン波分散関係の計算値(点線)との比較。

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 10 件)

T. Ono, K. Matan, Y. Nambu, T.J. Sato, K. Katayama, S. Hirata, H. Tanaka, "Large Negative Quantum Renormalization of Excitation Energies in the Spin-1/2 Kagome Lattice Antiferromagnet $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ " J. Phys. Soc. Jpn. **83**, 043701 (2014). DOI: <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83>

3.043701 査読有

K. Matan, Y. Nambu, Y. Zhao, T.J. Sato, Y. Fukumoto, T. Ono, H. Tanaka, C. Broholm, A. Podlesnyak, G. Ehlers, "Ghost modes and continuum scattering in the dimerized distorted kagome lattice antiferromagnet $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ " Phys. Rev. B **89**, 024414 (2014). DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.89.024414> 査読有

南部雄亮, "三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 の二次元磁性" 波紋 **23**, 23-28 (2013). 査読有

S. Zhao, P. Dalmás de Réotier, A. Yaouanc, D.E. MacLaughlin, J.M. Mackie, O.O. Bernal, Y. Nambu, T. Higo, S. Nakatsuji, "Spin dynamics and spin freezing in the triangular lattice antiferromagnets FeGa_2S_4 and NiGa_2S_4 " Phys. Rev. B **86**, 064435 (2012). DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.86.064435> 査読有

南部雄亮, "中性子散乱による磁気構造解析" 表面科学 **33**, 302-307 (2012). 査読有

Y. Nambu, K. Ohgushi, S. Suzuki, F. Du, M. Avdeev, Y. Uwatoko, K. Munakata, H. Fukazawa, S. Chi, Y. Ueda, T.J. Sato, "Block magnetism coupled with local distortion in the iron-based spin-ladder compound BaFe_2Se_3 " Phys. Rev. B **85**, 064413 (2012). DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.85.064413> 査読有

[学会発表](計 23 件)

(招待講演) 南部雄亮, "FullProf を用いた粉末試料の磁気構造解析" 平成 25 年度茨城県中性子利用促進研究会 磁石材料のその場構造解析分科会, 2013 年 10 月 22 日, エッサム神田ホール

Y. Nambu, K. Matan, Y. Zhao, T. Ono, Y. Fukumoto, A. Podlesnyak, G. Ehlers, J.W. Lynn, T.J. Sato, C. Broholm, H. Tanaka, "Excitations under fields of the pinwheel valence bond solid state in the Kagomé antiferromagnet $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ " International Conference on Neutron Scattering 2013, 2013 年 7 月 11 日, Edinburgh International Conference Centre, Edinburgh, UK

南部雄亮, K. Matan, Y. Zhao, 小野俊雄, 福元好志, A. Podlesnyak, G. Ehlers, J. Lynn, 佐藤卓, C. Broholm, 田中秀数, "籠目格子反強磁性体 $\text{Rb}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$ における一重項・三重項励起の磁場依存性" 日本物理学会第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 26 日, 広島大学東広島キャンパス

(招待講演) 南部雄亮, "SENJU におけるこれからの磁気構造解析" 第 5 回 CROSSroads 研究会「J-PARC の単結晶回折計による構造物性研究」, 2013 年 2 月 25 日, KEK 東海キャンパス

(招待講演) Y. Nambu, "Spin Dynamics of the 2D Magnet NiGa_2S_4 " Nikko Joint Conference between 10th International Conference on Quasielastic Neutron Scattering (QENS) and 5th Workshop on Inelastic Neutron Spectrometers (WINS), 2012 年 10 月 4 日, Nikko Public Meeting Hall

南部雄亮, "三軸分光器 CTAX @ ORNL の現状と一次元構造をもつ鉄系化合物の磁性" 中性子セミナー, 2012 年 6 月 15 日, 東京大学物性研究所

[その他]

ホームページ等

<http://www.jps.or.jp/books/jpsjselectframe/2014/files/14-04-2.pdf>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

南部 雄亮 (NAMBU, Yusuke)
東北大学・多元物質科学研究所・助教
研究者番号: 60579803