

## eV 領域中性子による電子励起観測の可能性

高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所中性子科学研究系

伊藤 晋一

1 eV 程度の高いエネルギーを持つパルス中性子による電子励起の測定を目指した分光法が実用化されたとすると、物質中の電子状態や電荷のダイナミクスに焦点をあてた研究を、このエネルギー領域での中性子散乱実験として、はじめて実現できる。この中性子分光法は中性子スピンと物質の電子スピンの相互作用をとおして、eV 領域中性子によって電子自身を励起させる散乱断面積を利用したものであり[1]、従来の弱いパルス中性子源では不可能であった。しかし、我が国では J-PARC 計画において、大強度パルス中性子源の実現が間近かとなり、eV 領域中性子分光法の実現性が具体化してきた。

電子状態の研究は、これまで、光の独壇場であった。特に、フェルミ面の観測では角度分解光電子分光がそのエネルギー分解能の向上に伴い大きな成果をあげている。それは角度分解光電子分光が占有状態からの光電子を極めて精密に観測できることによる。物性に寄与する電子が主にフェルミ面近傍のエネルギー準位であることを考えると、角度分解光電子分光は電子状態の研究に威力の高いプローブであることは疑いもない。しかし、光電子分光をはじめとする光を用いた実験方法では種々の原理的な制約がある。これに対して中性子は、エネルギー空間と運動量空間を同時に探査できるほぼ唯一のプローブである。また、中性子分光では、占有準位に限らず、二つの状態間（バンド間）での直接的なエネルギー遷移を捉えるため、非占有準位を含む電子バンドのエネルギーを特定することが可能である。さらに、厳しい選択則に支配された光学的遷移に比較して、軌道間の遷移に対する禁制則がないため、どのような遷移でも観測可能である。具体的には、2eVのエネルギーの入射中性子を用いて、入射中性子エネルギーの1%のエネルギー分解能の中性子非弾性散乱装置が実現したとすると、低エネルギー領域でも20meV、1eVの高エネルギー領域では10meVのエネルギー分解能での観測が可能になる。このとき、運動量分解能は $0.1 \text{ \AA}^{-1}$ 程度にでき、素励起の分散関係がブリルアンゾーン内で決定可能となる。従って、eV領域中性子は電子状態に探査において理想的なプローブである。

にもかかわらず、中性子はこれまで電子状態に対するプローブとしては全く役割を果たして来なかった。その理由は、中性子は電荷を持たないため電子との相互作用が極めて小さいこと、また、eV 領域の中性子を必要な精度で制御することが困難であったことである。中性子の持つスピンと電子のスピンあるいは軌道角運動量との相互作用は厳然と存在し、この相互作用を通して電荷励起も観測できることが理論的には明示されているが、従来の中性子源では、電荷励起を検出できるほどの中性子強度はなかった。そのため、中性子は、数 meV オーダーの低エネルギー領域でのみ有効なプローブであると認識され、その役割が過小評価され、フォノンやマグノンの素励起に対してのみ用いられてきた。しかし、現在は、大強度パルス中性子源の実現が間近かとなり、小さな散乱断面積をもつ散乱過程も検出できる可能性がでてきた。J-PARC のパルス中性子源に建設がすすめられている高分解能チョッパー分光器[2]に、高性能化のオプションを付加することにより eV 領域中性子分光が実現する可能性がある。

中性子による電子励起を直接的に観測する手法が確立されれば、強相関電子系で問題となっている複数の物理自由度（電荷、スピン、格子等）が引き起こす新奇な物理現象解明の本質に迫るプローブとなることが期待される。物理自由度間の結合や分離は、例えば、高温超伝導発現機構においても重要で、スピン電荷分離が起きている場合、スピノン-ホロンの運動でクーパーペアの形成や超伝導の対称性を説明する理論が提唱されている等、現代の固体物理学における統一的な問題となっている。eV 領域中性子分光はこのような問題を解決できる決定的な手法と考えられる。ここに、期待される強相関電子系における電子励起研究の一例を述べる。

ハロゲン架橋型金属錯体では複数の相互作用の競合により多彩な物性が出現しているが、中でもハロゲン架橋型ニッケル錯体  $[\text{Ni}(\text{chxn})_2\text{Br}]\text{Br}_2$  (chxn=1R, 2R-cyclohexanediamine) は、光反射等により eV オーダーの反強磁性交換相互作用を持つ一次元電荷移動型絶縁体であることが明らかになっている [3]。この系に対して、一次元拡張ハバードモデルによる理論的考察が進展している [4-6]。絶縁体のギャップに相当する電荷励起を測定した光学伝導度スペクトルには、通常の電荷励起とは異なり、スピンの関与が示唆されている [4]。またこの系は、一次元銅酸化物 [7] で観測されているような明瞭なスピン電荷分離が観測されていない [8]。こういった振舞いは、サイト間のクーロン斥力が摂動となってサイト上のクーロン斥力が中間的な大きさとなることにより、電荷励起エネルギーが磁気励起エネルギーと同程度になり、スピンと電荷に結合が生じたためではないかと考えられている。その結果、低エネルギー領域のマグノンのほかに、それよりも高いエネルギー領域で磁気励起と同時に誘起される電荷励起が予想されている [5]。この励起は非占有状態への d-d 遷移であり、十分な分解能で検出しようとするならば eV 領域中性子分光が唯一の測定手段である。また、この励起は、これまでの実験でも理論でも知られていない新奇な磁気励起であり、このような励起を観測したならば、スピンと電荷の結合性に新たな解釈を加える直接的実験となる。

- [1] J. F. Cooke and J. A. Blackman, Phys. Rev. B 26 (1982) 4410.
- [2] S. Itoh et al., J. Neutron Research 13 (2005) 59.
- [3] H. Okamoto et al., Phys. Rev. B 42 (1990) 10381; Phys. Rev. B 54 (1996) 8438.
- [4] N. Tomita and K. Nasu, Phys. Rev. B 56 (1997) 3779.
- [5] N. Tomita and K. Nasu, Phys. Rev. B 61 (2000) 2488.
- [6] N. Tomita and K. Nasu, Phys. Rev. B 63 (2001) 085107.
- [7] C. Kim et al., Phys. Rev. Lett. 77 (1996) 4054; Phys. Rev. B 56 (1997) 15589.
- [8] S. Fujimori et al., Phys. Rev. Lett. 88 (2002) 247601.