

過剰にホールドープした Bi-2201 系銅酸化物における 強磁性ゆらぎに対する不純物置換効果 Impurity-Substitution Effects on Ferromagnetic Fluctuations in Heavily Hole-Doped Bi-2201 Copper Oxides

足立匡¹，大西柊成¹，川端公貴¹，桑原英樹¹，黒江晴彦¹，渡邊功雄²
倉嶋晃士³，川股隆行³，小池洋二³

1 上智大学理工学部, 2 理研仁科センター, 3 東北大学大学院工学研究科

La 系銅酸化物超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) の超伝導が消失する超過剰ホールドープ領域におけるミュオンスピン緩和(μSR)や電気抵抗率等の測定から，遍歴電子強磁性ゆらぎが存在すると報告され[1]，過剰ドープ領域での超伝導との関連が注目されている。以前，我々は，Bi-2201 系銅酸化物の過剰ドープ領域と超過剰ドープ領域における電気抵抗率，比熱，磁化， μSR の測定から，2 次元の強磁性ゆらぎが発達することを明らかにした[2]。そこで，強磁性ゆらぎについて更なる知見を得るために，非磁性不純物 Zn と磁性不純物 Fe をそれぞれ置換した Bi-2201 の単結晶試料において， μSR などの測定を行った。

その結果，超過剰ドープ領域において，Zn を置換するとミュオンスピン緩和率が減少することがわかった。これは，Zn によって強磁性ゆらぎが抑制されたためと思われる。一方，Fe を置換するとミュオンスピン緩和率は増大した。すなわち，Fe 置換によって強磁性ゆらぎが強められたと思われる。また，Fe を置換した試料では，6 K 付近で緩和率が極大を示した。磁化率では 6 K 以下でヒステリシスが見られたことから，低温でスピングラスが実現していることがわかった。このスピングラス的振る舞いは，Fe を置換した Bi-2201[3]と LSCO[4]の過剰ドープ領域でも観測されており，RKKY 相互作用による Fe のスピングラス状態が実現していると思われる。すなわち，Fe のスピングラスと強磁性ゆらぎが共存している可能性がある。

[1] J. E. Sonier *et al.*, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **107**, 17131 (2010).

[2] K. Kurashima *et al.*, Phys. Rev. Lett. **121**, 057002 (2018).

[3] H. Hiraka *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 144501 (2010).

[4] K. M. Suzuki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 124705 (2016).

特異な磁性状態を示す LaCoO_3 の電子構造の研究

Electronic structure of LaCoO_3 showing unique magnetic states

金井大輔¹, 高柳亮平¹, 大川万理生¹, 小林義彦², 保井晃³,
池永英司⁴, 齋藤智彦¹

¹ 東理大理, ² 東医大, ³ JASRI/SPRING-8, ⁴ 名大 IMASS

ペロブスカイト型 Co 酸化物 LaCoO_3 は d^6 電子配置を持ち、Co 3d 準位の結晶場分裂と Hund 則の競合により、 ~ 100 K 以下の低スピン状態 (LS: $t_{2g}^3 e_g^3$) から ~ 500 K 以上の高スピン状態 (HS: $t_{2g}^4 e_g^2$) へのスピncrossオーバーを示す物質として盛んに研究されてきた[1, 2]. しかし、これが LS $\rightarrow$ HS 転移なのか[1], 中間スピン状態 (IS: $t_{2g}^4 e_g^1$) を介して 2 段階で転移するのか[2] 等の磁性状態の完全な理解については議論が続いている.

我々は、この特異な磁性の起源を電子構造の観点から明らかにするために、10 -300 K の幅広い温度領域でバルク敏感かつ高分解能である HAXPES を行った. 図 1 に価電子帯光電子分光スペクトルの温度依存性を示す. 基底状態で t_{2g} の Anti-Bonding 軌道を表す構造 A が温度上昇に伴い、シャープな形状からブロードになっていることがわかる. これは、LS 状態から IS あるいは HS 状態への変化に対応すると考えられる. 当日は、Co 2p 等の内殻スペクトルも併せて詳細に報告する.

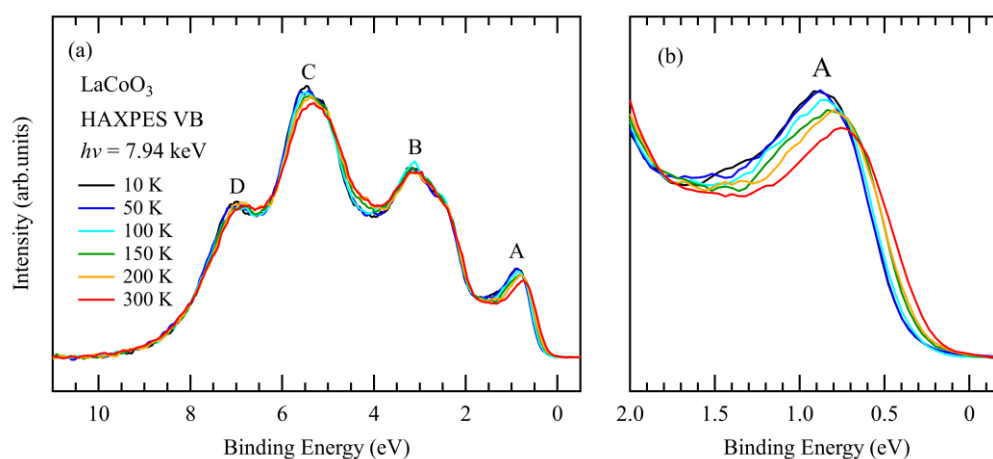


図 1. (a) LaCoO_3 における価電子帯スペクトルの温度変化 (b) A の拡大図

References

- [1] M. Abbate *et al.*, Phys. Rev. B **47**, 016124 (1993).
- [2] T. Saitoh *et al.*, Phys. Rev. B **55**, 4257 (1997).

CrNb₃S₆ におけるカイラルソリトン格子の 共鳴軟 X 線磁気イメージング Resonant Soft X-ray Imaging of Chiral Soliton Lattice in CrNb₃S₆

田端千紘¹、山崎裕一²、横山優一²、高木里奈³、本田孝志⁴、中尾裕則⁵
京大複合研¹、NIMS-MaDIS²、理研 CEMS³、
KEK 物構研 KENS⁴、KEK 物構研 PF⁴

CrNb₃S₆ は空間群 P6₃22 (No. 182, D₆⁶) に属したカイラルな結晶構造をとり、零磁場では $T_N \sim 130$ K で約 480 Å という長周期のヘリカル磁気秩序を起こす[1]。スピンのらせん軸に垂直な磁場を印加すると、らせんの一部がほどけてスピンの磁場と平行になった領域が結晶中で周期的に配列したカイラルソリトン格子 (Chiral Soliton Lattice: CSL) を形成することが知られている[2-3]。我々は共鳴軟 X 線コヒーレント回折イメージングの手法により、CrNb₃S₆ の CSL の微視的な観察を行った。この手法は、コヒーレントな X 線を試料に入射して得られる回折像に対して、反復フーリエ変換による位相回復アルゴリズムを適用することで、実空間イメージングを行うものである。特に、磁性を担う 3d 遷移金属の吸収端エネルギーの X 線を用いることで、実空間磁気イメージングが可能であり、ユニークな手法として注目されている。実験は Photon Factory の BL-16A にて、Cr の L_3 吸収端 (577 eV) 付近の放射光 X 線と電磁石搭載の小角散乱装置を用いて行った。実験の結果、 T_N 以下で共鳴磁気散乱による回折像を観測することに成功し、磁場印加に伴い秩序がヘリカル秩序から CSL に変化する振る舞いも明瞭に観測された。講演では、ヘリカル秩序および CSL の実空間イメージの温度・磁場依存性を報告し、本系での CSL 形成過程について議論する。

- [1] T. Miyadai *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **52**, 1394 (1983).
- [2] J. Kishine *et al.*, Prog. Theor. Phys. Suppl. **159**, 82 (2005).
- [3] Y. Togawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **108**, 107202 (2012).

**ブリージングパイロクロア格子系 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の
中性子散乱実験**
**Neutron Scattering Study on Breathing Pyrochlore
Lattice $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$**

東大物性研、総合科学研究機構^A、東大新領域^B、高工研^C
菊地 帆高、浅井 晋一郎、松浦 直人^A、木村 健太^B、浅見 俊夫、
萩原 雅人^C、益田 隆嗣

パイロクロア格子において、隣接する正四面体の大きさが交替的となる格子は、ブリージングパイロクロア格子と呼ばれ実験理論両面から注目を集めている。希土類化合物 $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ [1]は、 $\text{Yb}^{3+}(4f^{13}, J=7/2)$ イオンに有効スピン $S=1/2$ が局在する歪みのないブリージングパイロクロア反強磁性体である[1]。 $T=1.5\text{ K}$ の中性子非弾性散乱スペクトルは、XXZ 相互作用と DM 相互作用を有する四面体クラスタモデルで説明された[2]。クラスタモデルの基底状態は二重縮退しているが、極低温までの比熱測定において 63 mK にブロードなピークが観測されたことから、非縮退な基底状態と 10 μeV 程度のエネルギーギャップの存在が明らかとなった。縮退開放機構として、スピニャーエンテラー効果による四面体歪みモデルや、四面体間相互作用による部分二量体化モデル[3]などが提案された。

今回我々は $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ の基底状態を明らかにするために、10 μeV 程度のエネルギー分解能を有する J-PARC の DNA 分光器を用いて中性子スペクトル測定を行った。その結果、22 μeV を第一励起エネルギーとする励起状態が観測された。この第一励起状態は 20 K でも観測された。したがって 20 K 以上の高温で発生するスピニャーエンテラー歪みが縮退開放機構と考えられる。スペクトルを再現するために、様々な歪み方をした四面体モデルで中性子散乱プロファイルの計算を試みた。その結果、四面体の力学系の基準振動の一つがソフト化したモデルがもっともよく実験を再現した。

[1] K. Kimura *et al.*, Phys. Rev. B **90**, 060414(R) (2014).

[2] T. Haku *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 220407(R) (2016).

[3] H. Tsunetsugu, Phys. Rev. B **65**, 024415 (2001).

XMCD による W を挿入した Fe/MgO 界面の垂直磁気異方性の研究

Perpendicular magnetic anisotropy in tungsten-inserted Fe/MgO heterostructures studied by XMCD

飯田裕希^{1,2}、Qingyi Xiang²、岡林潤³、Thomas Scheike²、Xiandong Xu²、
宝野和博^{1,2}、介川裕章²、三谷誠司^{1,2}

1. 筑波大学 2. 物質・材料研究機構 3. 東京大学

垂直磁気異方性(Perpendicular magnetic anisotropy : PMA)は磁気トンネル接合の磁化状態の熱安定性を決める重要な特性である。単結晶 Fe/MgO 界面では 2 mJ/m^2 の巨大な界面 PMA エネルギーが報告されている [1]。近年では、W や Ir のような重元素を多結晶 Fe/MgO 界面に挿入することで PMA エネルギーがさらに増大することが報告されている[2,3]。W と Fe の界面では、近接効果による W の induced 磁気モーメントが異方性を決定することが知られており[4,5]、W が Fe/MgO の界面で格子定数を合わせて歪んだ場合には 3 mJ/m^2 を超える巨大な界面 PMA が期待できる[6]。

本研究では、MgO 基板上に Cr(30 nm buffer)/Fe(0.7 nm)/MgO(2 nm cap) の積層構造の Fe/MgO 界面および Fe 層中に膜厚の異なる W を挿入し、界面での格子間隔を歪ませることで大きな PMA を得ることを目標としている。そのため、今回は、Fe $L_{2,3}$ 吸収端の X 線磁気円二色性(X-ray magnetic circular dichroism : XMCD)測定により、軌道磁気モーメントの異方性が W 挿入でどのように変化するかを調べることを目的とした。

Fe/MgO 界面に W を挿入した場合には PMA が減少する一方で、Fe 中に W をドーピングした場合には PMA が増大した。また、Fe(0.7 nm)/W(0.15 nm)/MgO(2 nm)多層膜の XMCD 測定では、垂直磁化膜であるにも関わらず、軌道磁気モーメントは垂直方向より面内方向の成分が大きくなった。これらの結果は、Fe により W に誘起された induced 磁気モーメントが PMA に関与していることを示唆している。

本研究の一部は JSPS 科研費(16H06332)および内閣府革新的研究開発推進プログラム(ImPACT)の助成のもとで進められた。

参考文献

1. J. W. Koo *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 192401 (2013).
2. T. Nozaki *et al.*, NPG Asia Mater. **9**(12), e451 (2017).
3. T. Nozaki *et al.*, APL Mater. **6**, 026101 (2018).
4. Y. Matsumoto *et al.*, IEEE Trans. Magn. **51**, 2100704 (2015).
5. Y. Matsumoto *et al.*, Appl. Phys. Express **10**, 063005 (2017).
6. K. Masuda and Y. Miura, Phys. Rev. B **98**, 224421 (2018).

マルチフェロイックス RMn_2O_5 ($R = \text{Sm}, \text{Y}$) における 酸素磁性の μSR 研究

μSR study on magnetic ordering at oxygen sites in multiferroic RMn_2O_5 ($R = \text{Sm}, \text{Y}$)

石井祐太¹, 木村宏之¹, 佐賀山基², 平石雅俊², 岡部博孝²,

竹下聡史², 幸田章宏², 小嶋健児³, 門野良典²

¹東北大多元研, ²KEK物構研, ³TRIUMF

反強磁性秩序が強誘電性を誘起するマルチフェロイック物質 RMn_2O_5 (R : 希土類元素) は、希土類元素により多彩な誘電性や磁性を示すことが知られている。これまで、中性子散乱等により Mn のスピン配列に起因した強誘電性発現機構が提唱されてきた。一方で、電気分極はイオンが変位するイオン分極 ($\mathbf{P}_{\text{ion}}$) と電子雲の偏りに起因する電子分極 ($\mathbf{P}_{\text{ele}}$) の機構が存在するが、マルチフェロイック系においてこれらの微視的機構はほとんど観測されていない。このうち $\mathbf{P}_{\text{ele}}$ に関しては近年 RMn_2O_5 系において Mn-O 間の共有結合を介した電子移動により、酸素サイトにも磁気モーメントが存在することが確かめられ、これを観測することで $\mathbf{P}_{\text{ele}}$ の寄与を捉えることが可能になると提唱された [1]。しかしながら、マルチフェロイック系における $\mathbf{P}_{\text{ele}}$ の詳細を理解するためには、どの酸素サイトが磁気モーメントを有しているのかを観測する必要がある。

そこで、本研究では μSR 測定を用いて酸素磁性の観測を試みた。ミュオンは、水素の同位体であり O-H 結合により酸素近傍に捉われることが知られている。この性質を利用して、 RMn_2O_5 ($R = \text{Sm}, \text{Y}$) に対して μSR 測定を行い、酸素磁性の観測を行った。最近、我々の研究グループは共鳴軟 X 線散乱により、 YMn_2O_5 では観測された Mn-O 混成由来の酸素磁性が SmMn_2O_5 では消失していることを明らかにしている [2]。発表では、これらの物質に対する μSR 測定の詳細を議論する。

[1] S. Partzsch, et al., Phys. Rev. Lett. 107, 057201 (2011).

[2] Y. Ishii, et al., Phys. Rev. B 98, 174428 (2018).

$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ の超音波印加下での中性子散乱実験 Neutron scattering study on $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ under ultrasound irradiation

社本真一^A, 松浦直人^B, 赤津光洋^C, 安井幸夫^D, 伊藤孝^A, 家田淳一^A,
遠藤仁^E, 小田達郎^F, リージェン チャン^G, 根本祐一^H, 柴田薫^I
原子力機構先端^A, CROSS^B, 新潟大理^C, 明大理工^D, KEK 物構研^E,
京大複合原子力^F, 成功大学^G, 新潟大院自然質^H, J-PARC セ^I

$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG)では超音波によるスピンプンピングが知られている[1]。我々はYIG のマグノンへの超音波効果に興味を持ち、エネルギー分解能の高い中性子非弾性散乱装置 DNA や VIN-ROSE を用いて調べたところ、磁気ブラッグピークの増大が観測された。図1のようにその増大率に顕著な温度変化が見つかった。室温では磁気ブラッグ強度の増大はわずかにしか観測できなかったが、低温 8 K では超音波の印加電圧の上昇に伴い磁気ブラッグ強度の大きな増大が観測され、非弾性散乱でも散乱強度の増大が観測されたので報告する。

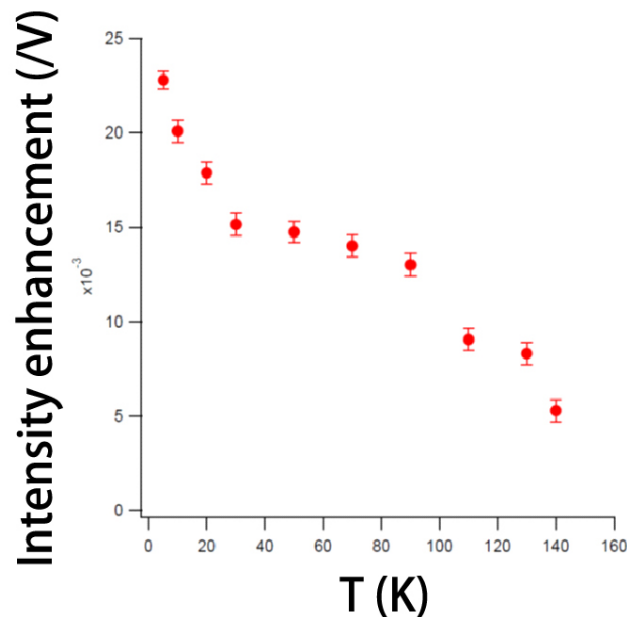


図 1. Magnetic Bragg-peak (220) enhancement
by ultrasound irradiation as a function of temperature.

参考文献

[1] K. Uchida, H. Adachi, T. An, T. Ota, M. Toda, B. Hillebrands, S. Maekawa and E. Saitoh, Nature Mater. 10, 737 (2011).

ミュオンスピン緩和実験による T*構造 $\text{La}_{1-x/2}\text{Eu}_{1-x/2}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の磁性研究 Study of magnetism in T*- $\text{La}_{1-x/2}\text{Eu}_{1-x/2}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ investigated by muon spin relaxation measurements

浅野駿^{1, 2}、鈴木謙介²、渡邊功雄³、幸田章宏⁴、野地尚⁵、藤田全基²

1 東北大院理、2 東北大金研、3 理研仁科セ、4 KEK 物構研、5 東北大工

近年、銅酸化物高温超伝導体の研究において、銅イオンの配位数に依存する物性や超伝導発現機構が注目されている。銅イオンが平面 4 配位を取る T' 構造銅酸化物では、還元アニールによる局所構造変化と超伝導発現の関係が活発に議論されている。一方、 CuO_5 のピラミッド構造を有する T* 構造銅酸化物では高酸素圧アニールによる超伝導発現が知られているが、アニールによる局所構造と磁性の変化、及び、これらと超伝導の関係は、これまで系統的に調べられてこなかった。

我々は、T* 構造銅酸化物の磁性に対するアニール効果を明らかにするため希土類イオンが磁気モーメントを持たない T* 構造 $\text{La}_{1-x/2}\text{Eu}_{1-x/2}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($0.14 \leq x \leq 0.28$) に対するミュオンスピン緩和(μSR)実験を行っている。試料の超伝導化のため、400 atm の高酸素圧下で 500 °C、60 時間アニールを行った。アニールを施す前の(as-sintered)試料とアニールを施した(annealed)試料を用い、J-PARC の MLF にある D1 とラザフォード・アップルトン研究所にある理研 RAL ミュオン施設で μSR 実験を行った。

$x = 0.14$ の as-sintered 試料では、低温で Cu スピンの短距離磁気秩序の形成を示唆する結果を得たが、 $x = 0.14$ の annealed 試料では、磁気秩序の徴候は見られず、アニールによって低温での磁性の発達が抑制されることがわかった。さらに、as-sintered 試料ではホールドープを施してもこの磁性相が強固に存在した。従って、アニールによる磁性の抑制は、ホールドープの効果とは異なっており、頂点酸素欠損の有無が起因となっている可能性が高い。

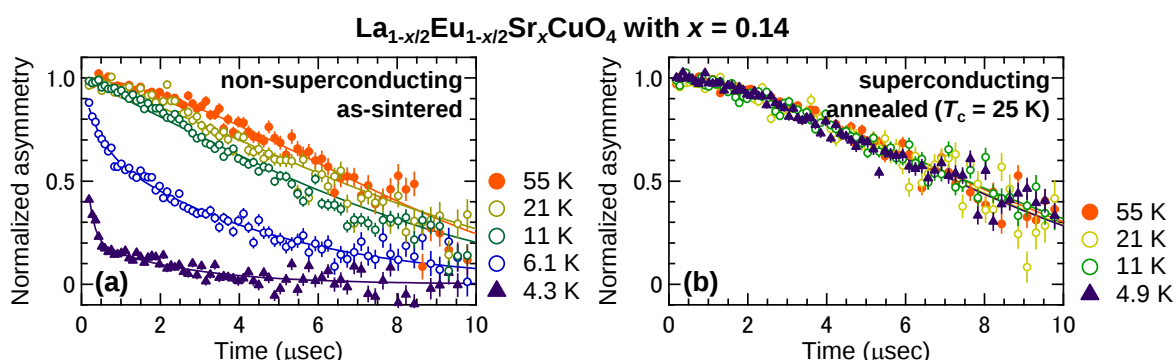


図 1 T* 構造 $\text{La}_{1-x/2}\text{Eu}_{1-x/2}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x = 0.14$) の (a) as-sintered 試料と (b) annealed 試料における零磁場ミュオンスピン緩和時間スペクトル。実線は、 $A_1 e^{-\lambda_1 t} + A_2 e^{-\lambda_2 t}$ による fitting 結果である。また、 $G(\Delta, t)$ は久保—鳥谷部関数である。

マグノンモードヘリシティがスピン流に与える影響 Role of magnon mode helicity in the spin current

南部雄亮¹、川本陽²、沖野夕貴²、
藤田全基¹、加倉井和久³

1 東北大金研、2 東北大院理、3 CROSS

スピントロニクス研究において、スピンゼーベック効果(SSE)[1]は熱的なスピン流生成の観点から注目を集めている。SSEは、強磁性体およびフェリ磁性体と金属の接合系に温度勾配を印加した際に、誘起されたスピン流が逆スピンホール効果を通して電圧として観測される現象である。熱的にスピン流を制御することは、電流・磁場を使用しない省スペースな磁気源を製造することにつながり得るため、応用面からも研究されている。

磁性絶縁体において、スピン流はスピン波(マグノン)によって運ばれる。SSEは絶縁体の単純な静的磁性ではなく、動的磁性とより関連することが知られている[2]。ガーネットフェリ磁性体 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG) はギルバート減衰定数が既知の磁性体の中で最も小さいことから SSE に頻繁に使用される。スピントロニクス研究の高まりから、YIG の初の中性子実験[3]が行われてから 40 年を経て、再びその磁気励起に注目が集まっている。

そこで我々は、YIG の磁気励起の温度変化を調べるため、オークリッジ国立研究所のチョッパ分光器 HYSPEC を用いて非偏極・偏極中性子非弾性散乱を行った。実験から YIG には主要な音響モード、および光学モードが存在[4]し、それらが反対符号のヘリシティを保持することを明らかにした。YIG における SSE の温度依存性は、低温で活性化される音響モードに加えて、反対のヘリシティを持つギャップで隔てられた光学モードが高温で次第に熱活性化することで説明できる。さらに、二つの磁気励起モードに関する詳細なヘリシティを調べるため、ILL の三軸分光器 IN20 を用いて σ_x 偏極測定を行った。本発表では、SSE 信号の温度変化が二つの磁気励起モードのヘリシティによって説明できることを示す。

本研究は吉川貴史、塩見雄毅、齊藤英治、社本真一、J. Barker、G. E. W. Bauer、森道康、前川禎通、各氏との共同研究に基づく。また、中性子散乱実験は B. Wynn、V. Ovidiu Garlea、M. Graves-Brook、J. M. Tranquada (HYSPEC)、M. Enderle、M. Böhm、T. Weber (ILL) と共同で行った。

[1] K. Uchida et al., Nature **455**, 778 (2008).

[2] K. Uchida et al., Nat. Mat. **9**, 894 (2010).

[3] J.S. Plant, J. Phys. C **10**, 4805 (1977).

[4] J. Barker and G.E.W. Bauer, Phys. Rev. Lett. **117**, 217201 (2016).

中性子非弾性散乱実験に向けた $\text{Tb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ の単結晶試料育成 Single crystal growth of $\text{Tb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ for inelastic neutron scattering experiment

川本陽¹, 吉川貴史², 藤田全基³, 南部雄亮³

1 東北大院理, 2 東北大材料高等研, 3 東北大金研

近年スピントロニクス分野において、鉄ガーネット系物質のスピンゼーベック効果（SSE）が大きな注目を集めている。SSE は、温度勾配を付けた強磁性体あるいはフェリ磁性体と金属の接合系に、マグノンspin流を媒介とした伝導電子spin流が誘起される現象で、金属中のspin軌道相互作用を起源とする逆spinホール効果によって電圧として観測される。先行研究では、 $\text{Gd}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (GdIG)において SSE 電圧の温度変化が二度の符号反転を示すこと[1]が報告されている。この符号反転は、GdIG の磁気励起の温度変化が起源であると考えられており、これを検証するためには磁気励起の分散関係をマグノンモードのヘリシティも含めて詳細に調べる必要がある。

GdIG の磁気励起の分散関係を調べるには単結晶試料を用いた中性子非弾性散乱を行う必要があるが、Gd は非常に大きい中性子吸収断面積を持つため実験が難しい。他の希土類について系統的に SSE 測定を行ったところ、 $\text{Tb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (TbIG)が GdIG と同様の符号反転を示すことを見出した。そこで、中性子実験がより容易な TbIG の磁気励起を調べ、SSE の符号反転の機構を探ることを目指して、traveling solvent floating zone 法による TbIG 単結晶試料の作成に取り組んだ。

本発表では、作成において生じた、融体の破裂や不純物生成といった問題点とその改善策、および、その結果得られた TbIG 単結晶に対して行う中性子実験(2019 年 1 月末に実施予定)で予想される結果について議論を行う。

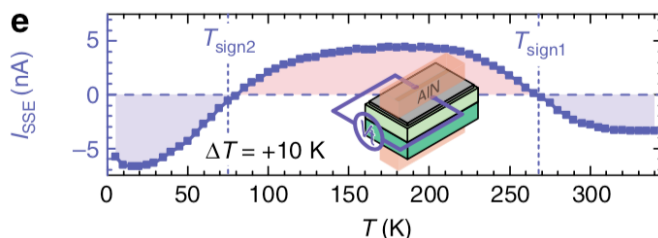


図 1: GdIG の SSE 電圧の符号反転[1]。

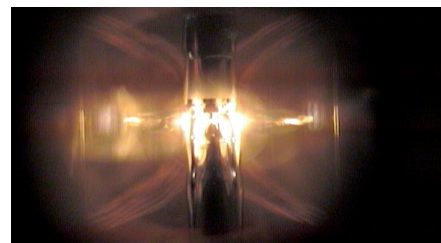


図 2: TbIG の単結晶育成の様子。

[1] S. Geprägs *et al.*, Nat. Commun. 7, 10452 (2016).

$R_3T_4Sn_{13}$ ($R = \text{La, Ce}; T = \text{Ir, Ru}$) の構造相転移と 磁性の量子ビーム散乱研究

Quantum-beam scattering studies on structural phase transition and magnetism of $R_3Ir_4Sn_{13}$ ($R = \text{La, Ce}; T = \text{Ir, Ru}$)

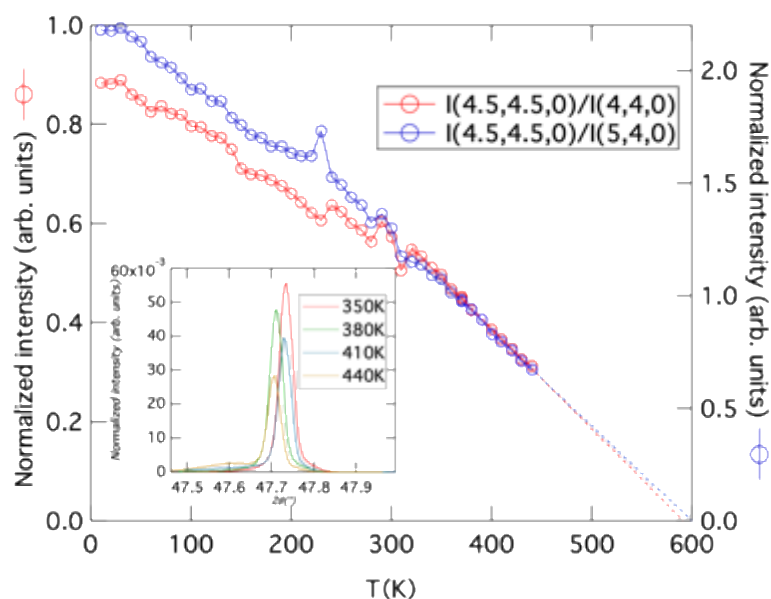
中里晟也, 岩佐和晃^A, 狩野遼河^B, 宮川貫伍^B, 塩澤真未^B, 橋本大輔^B, 桑原慶太郎, 中尾裕則^C, 河村聖子^D, 中島健次^D, Jean-Michel Mignot^E
茨大院理工, 茨大フロンティアセンター^A, 茨大理^B, KEK^C, J-PARC センター^D, LLB^E

$R_3T_4Sn_{13}$ ($R =$ 希土類元素; $T =$ 遷移金属元素) のうち、多くの $R = \text{La}$ 系は超伝導体であり、一方で $R = \text{Ce}$ 系には半金属的な振る舞いを示す物質が報告されている。本発表では、Sn フラックス法で合成した $R_3T_4Sn_{13}$ ($R = \text{La, Ce}; T = \text{Ru, Ir}$) の構造相転移と磁性を量子ビームで調べた結果を報告する。

$R_3T_4Sn_{13}$ ($R = \text{La, Ce}$) は、 $T = \text{Co, Rh}$ それぞれ 160, 350 K 以下で波数ベクトル $q = (1/2, 1/2, 0)$ に X 線超格子反射が現れ、高温相 $Pm\bar{3}n$ から低温相 $I2_13$ のカイラル対称構造に相転移する[1, 2]。今回、 $R_3Ir_4Sn_{13}$ ($R = \text{La, Ce}$) でも同じ超格子反射を観測した[3]。図に示した $R = \text{Ce}$ の放射光 X 線回折ピークの積分強度を基本反射で規格化した温度依存性から、構造相転移温度が 600 K 付近と見積もられ、かなり高温までカイラル対称構造である可能性がある。また $\text{Ce}_3\text{Ir}_4\text{Sn}_{13}$ は 1.9 K まで常磁性磁化率を示し、過去の報告[4]にある 2.1 K での反強磁気転移は本研究では観測されなかった。しかし 1.5 K での中性子非弾性散乱で $Q = (1\ 0\ 0)$ 付近に 0.2 meV 程度の反強磁気ゆらぎを観測した。

一方、 $R_3Ru_4Sn_{13}$ ($R = \text{La, Ce}$) には明確な構造相転移は見られず、低温まで $Pm\bar{3}n$ の結晶構造を保つと考えられる[5]。一方、 $\text{Ce}_3Ru_4Sn_{13}$ の磁化率は約 4 K にピークを示す。中性子非弾性散乱においても 1 meV の磁気励起が観測され、その Q 依存性から 1 次元反強磁性スピン鎖に類似した相関が発達することを見出した。

[1] Y. Otomo et al., PRB 94, 075109 (2016). [2] K. Suyama et al., PRB 97, 235138 (2018). [3] C. Nagoshi et al., Physica B 359–361, 248 (2005). [4] S. Takayanagi et al., Physica B 199&200, 49 (1994). [5] 岩佐和晃ほか, 日本物理学会 2018 年秋季大会 11pPSB-19.



$S=1/2$ 異方的三角格子反強磁性体 **Cs_2CuCl_4 の磁気励起の再検証****Reinvestigation of magnetic excitations in the $S=1/2$ anisotropic triangular lattice antiferromagnet Cs_2CuCl_4** 村崎遼¹、那波和宏¹、中島健次²、河村聖子²、Tao Hong³、佐藤卓¹

1 東北大 多元研、2 J-PARC センター、3 ORNL

幾何学的フラストレート系である三角格子反強磁性体は、興味深い磁気励起の舞台となってきた。特に $S=1/2$ の等方的三角格子反強磁性体の基底状態である 120 度構造は非共線的な磁気構造であるため、動的スピン構造因子を単純なスピン波描像で評価することは適切ではない。線形スピン波理論を超えた高次の相互作用項によってマグノン間の相互作用まで評価することが必要であり、分散の再規格化やマグノンが有限寿命となることによる動的スピン構造因子のぼやけなどが予測されている[1]。また、低エネルギーの分散を束縛されたスピノン対によるものとして、高エネルギー領域ではスピノンによる連続的散乱が観測されるという理論研究[2]が存在する。

Cs_2CuCl_4 は Cu^{2+} ($S=1/2$) が異方的三角格子を組む反強磁性体である。本物質は 0.6 K でらせん磁気転移をおこす。先行の非弾性中性子散乱実験[2,3]では、マグノンの分散に加えて連続的な励起スペクトルが観測されている。この連続スペクトルについては、二次元由来の新奇な磁気励起へのクロスオーバーによるものであるとする提案[3, 4]、弱く相互作用する一次元鎖由来のスピノンによるものであるという提案[5]などがされてきた。

本研究では以上の提案を再検証すべく、J-PARC MLF の冷中性子ディスクチョッパ型分光器 AMATERAS を用いて磁気励起を測定した。3 個の軸をそろえた単結晶試料に対して a 軸方向から中性子を入射させて測定を行った。図は 0.3 K で測定した非弾性中性子散乱スペクトルである。入射エネルギーは 1.7 meV であり、散乱スペクトルは Q_a 方向に積分している。先行研究と同様に 2 本のマグノンの分散と、連続的散乱スペクトルが観測された。発表では、さらに転移温度以上での測定データを交えて先行研究との相違点を示し、本物質の磁気励起について議論する。

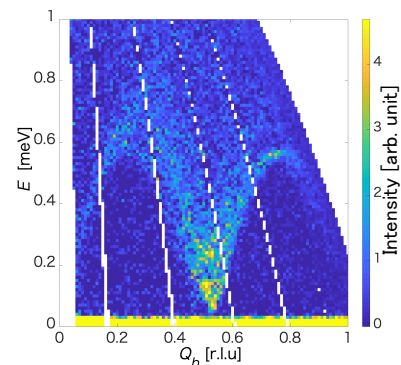


図 Cs_2CuCl_4 の非弾性中性子散乱スペクトル $Q_c = [-0.1, 0.1]$ r.l.u.

- [1] M. Mourigal *et al.*, PRB **88**, 094407 (2013).
- [2] E. A. Ghioldi *et al.*, PRB **98**, 184403 (2018)
- [3] R. Coldea *et al.*, PRL **86**, 1335 (2001).
- [4] R. Coldea *et al.*, PRB **68**, 134424 (2003).
- [5] M. Kohno *et al.*, Nat. Phys., **3**, 790 (2007).

中性子・X 線散乱によるトポロジカル磁気秩序の研究 Neutron and x-ray scattering studies on topological spin orders

中島多朗・理研 創発物性科学研究センター

近年、磁気スキルミオンに代表される非共線・非共面的なスピン配列を持つ秩序状態が注目を集めている。磁気スキルミオンは長周期らせん磁性体等において現れるナノスケールの渦状のスピン構造であり、磁化分布を連続場とみなした際のトポロジカル欠陥と解釈することができる。そのためスキルミオンはトポロジーで特徴付けられる粒子としての性質を持ち、その粒子の配列（スキルミオン結晶）やダイナミクス、電流等の外場に対する応答等が盛んに研究されている [1]。

我々はこのようなトポロジカル磁気秩序を対象として中性子散乱を用いた研究を進めている。磁気スキルミオンは典型的には 10～100 nm のスケールであるため、その周期性を探索するためには中性子小角散乱が適している。我々は 2017 年度 B 期より MLF の中性子小角・広角散乱装置「大観(BL15)」を用いてこのテーマについての長期課題研究を行っており、本発表ではそこでこれまでに得られた成果を発表する。また、一部の物質においては PF における放射光 X 線共鳴散乱も相補的に利用して研究を進めている。

(1) MnSi と MnGe の混晶系における多彩な磁気秩序の発現

MnSi は古くから知られるらせん磁性体であり、転移温度近傍の磁場誘起相において、スキルミオン相の存在が報告された最初の物質である。一方 MnGe はスキルミオンとは異なり3次元的にスピンの方向が変調されたヘッジホッグ・反ヘッジホッグ格子を示すことが知られていた。この両者の混晶系試料を作成し、Ge/Si 比を系統的に変えながら大観の小角・広角検出器を相補的に用いた中性子散乱実験を行ったところ、中間組成で新たな磁気相が現れることが明らかになった。

(2) Breathing kagome 磁性体 $Gd_3Ru_4Al_{12}$ におけるスキルミオン相

磁気スキルミオンはその多くが反転対称性を持たないカイラルな結晶構造の物質において発見されている。しかし理論的には磁氣的相互作用の競合によってらせん磁性を生じる系においてもスキルミオン相が現れる可能性があることが示唆されていた。我々はその候補物質として反転対称性を持つカゴメ磁性体 $Gd_3Ru_4Al_{12}$ に注目し、Gd 同位体を用いた中性子散乱と放射光 X 線共鳴散乱によりその磁気秩序を探索した[2]。

参考文献:[1] S. Muhlbauer et al., Science 323, 915 (2009), N. Nagaosa and Y. Tokura, Nat. Nanotech. 8, 899 (2013). [2] M. Hirschberger, T. Nakajima et al., arXiv:1812.02553.

μ SR から見た Pr_2CuO_4 の磁性に対する還元アニール効果 Reduction anneal effects on magnetism for Pr_2CuO_4 studied by μ SR

工藤康太¹, 鈴木謙介¹, 浅野駿¹, 岡部博孝², 幸田章宏², 門野良典², 藤田全基¹
¹ 東北大学金属材料研究所, ² 高エネルギー加速器研究機構

銅酸化物超伝導体は、反強磁性モット絶縁体にホールまたは電子をドーピングすることによって超伝導が発現と考えている。しかし、近年、 T' 構造銅酸化物超伝導体の母物質 $R_2\text{CuO}_4$ (R は希土類)において、適切な還元アニール処理をすることで超伝導が発現することが薄膜試料で報告された。そこで、磁性に対する還元アニール効果を調べ、 T' 構造母物質の真の基底状態を明らかにするため、希土類がスピンをもたない Eu_2CuO_4 の焼結体試料において、ミュオンスピン回転 (μ SR) 実験を行った。その結果 as-sintered 試料では $T_{N1} = 265$ K 以下の広い温度範囲で指数関数的な緩和に加えて振幅の小さい振動成分を観測した。振動成分は還元アニールにより消失した。この特異な磁性が T' 構造銅酸化物に普遍的かを調べるため、今回、 Pr_2CuO_4 で μ SR 実験を行った。

図に Eu_2CuO_4 と Pr_2CuO_4 の振動周波数の温度依存性を示す。as-sintered の Pr_2CuO_4 では 70–90 K と 150–160 K で複数成分の振動が現れるなど複雑なスペクトルを示した。また振動が消失する温度範囲がないことも Eu_2CuO_4 とは異なるが、110 K 以下で周波数が増大し始める点に Eu_2CuO_4 と類似性が見られる。一方還元アニールをした Pr_2CuO_4 では 110 K 以上で振動が消失し指数関数的な緩和スペクトルとなった。これは還元アニールした Eu_2CuO_4 と定性的に同じ振る舞いである。この類似性は、還元した試料では Cu^{2+} スピンが共通した性質を持つことを示唆しており、 T 構造 La_2CuO_4 と比べて低い温度から周波数が増大することは、 T' 構造 $R_2\text{CuO}_4$ の本質である可能性を示している。一方、as-sintered 試料に見られる違いは希土類イオンの磁気モーメントによるものではないかと考えている、発表では $R_2\text{CuO}_4$ における特異な μ SR スペクトルの起源についても議論する。

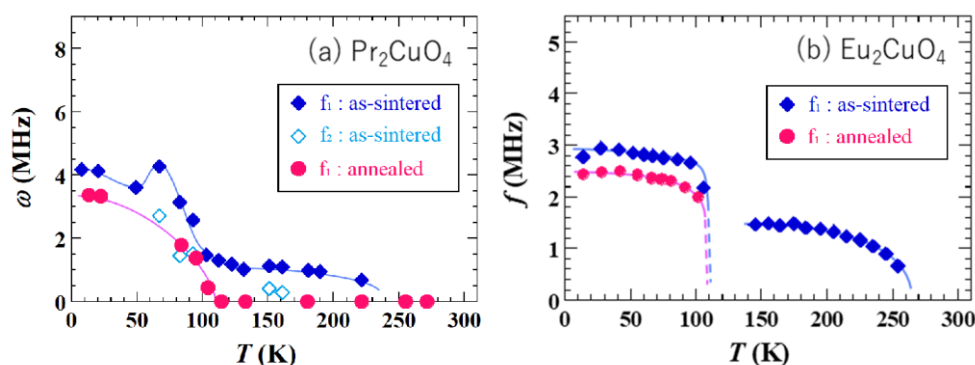


図: (a) Pr_2CuO_4 と (b) Eu_2CuO_4 のゼロ磁場 μ SR スペクトルの振動周波数 (2 成分ある場合は $f_1 > f_2$) の温度依存性. 実線はガイドライン.

少数キャリアー半金属 $\text{Yb}_3\text{Ir}_4\text{Ge}_{13}$ における磁気ゆらぎ Magnetic fluctuation in low-carrier density semimetal $\text{Yb}_3\text{Ir}_4\text{Ge}_{13}$

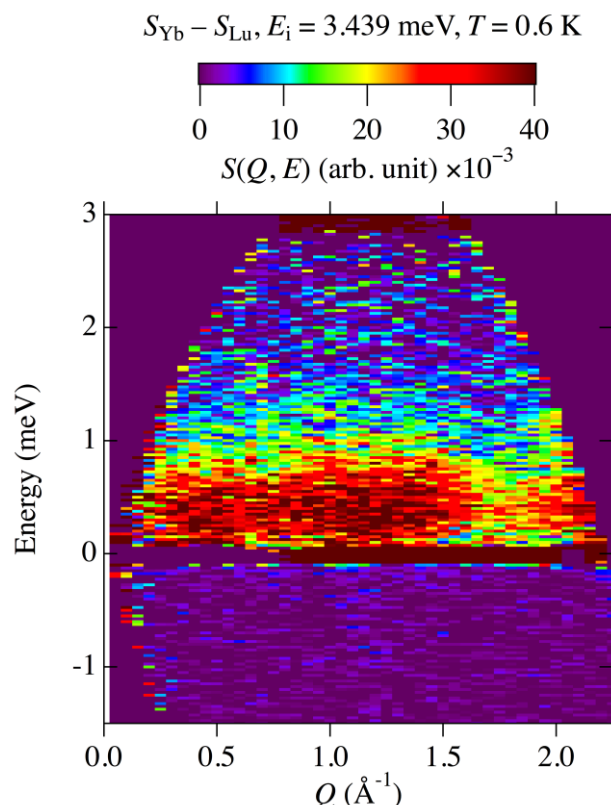
岩佐和晃¹, C.-L. Huang², Binod K. Rai², E. Morosan², 河村聖子³, 中島健次³

1 茨城大フロンティアセンター, 2 Rice University, 3 J-PARC センター

希土類イオン R の $4f$ 電子を含む $R_3T_4X_{13}$ (T : 遷移金属元素, X : Sn, Ge, Pb) において半金属または半導体特性を示す物質が報告されている[1, 2]。 $\text{Ce}_3\text{T}_4\text{Sn}_{13}$ (T : Co, Rh) では、カイラル対称の低温相(立方晶 $I2_13$)における電気抵抗の温度依存性が小さい。これらは 1 K 未満の極低温まで常磁性状態であるが、15 K 以下での電気抵抗増大をもたらすスピン励起が 1 meV 以下に発達するに発達するという特徴を示す[3-5]。今回、類型物質 $\text{Yb}_3\text{Ir}_4\text{Ge}_{13}$ (正方晶 $I4_1/amd$) を対象として、電気抵抗が 20 K までプラトーを示したあとに低温で増大する現象[6]の起源を探るために中性子非弾性散乱実験を行った[7]。

自己フラックス法で合成された $\text{Yb}_3\text{Ir}_4\text{Ge}_{13}$ と $\text{Lu}_3\text{Ir}_4\text{Ge}_{13}$ の中性子非弾性散乱を J-PARC MLF BL14 (AMATERAS) で測定し、両物質の差から磁気励起を抽出した。60 meV までに Yb の結晶場分裂励起ピークはほとんど観測されず、Yb $4f$ 電子は伝導電子と強く混成していると考えられる。一方、図に示したように、20 K 以下で増大する 3 meV 以下の励起スペクトルを見出した。これまでに $\text{Ce}_3\text{T}_4\text{Sn}_{13}$ (T : Co, Rh) で観測したスピン励起と電気抵抗増大の相関に類似するが、そのエネルギースケールは $\text{Yb}_3\text{Ir}_4\text{Ge}_{13}$ の方が大きい。さらにスペクトルの散乱ベクトル依存性から、常磁性ながら動的に反強磁性相関を持つことを見出した。これにより $\text{Yb}_3\text{Ir}_4\text{Ge}_{13}$ は反強磁気転移臨界点に近い常磁性状態にあり、スピンゆらぎが少数キャリアー散乱をもたらす。

[1] A. Ślebarski et al., PRB 88, 155122 (2013). [2] E. L. Thomas et al., J. Solid State Chem. 179, 1642 (2006). [3] Y. Otomo et al., PRB 94, 075109 (2016). [4] K. Suyama et al., PRB 97, 235138 (2018). [5] K. Iwasa et al., PRB 95, 195156 (2017). [6] B. K. Rai et al., arXiv:1805.01918. [7] K. Iwasa et al., arXiv:1810.11238.



S=1/2 擬一次元反強磁性体 BaCu₂Si₂O₇ の 中性子非弾性散乱 Inelastic Neutron scattering in S = 1/2 quasi-one-dimensional antiferromagnet BaCu₂Si₂O₇

東大物性研、高工研^A

岩崎 友優、浅井 晋一郎、伊藤 晋一^A、益田 隆嗣

スピン 1/2 ハイゼンベルグ一次元反強磁性鎖の基底状態は、スピン相関がべきで減衰するラッティンジャー液体であり、励起状態はスピノンであることが知られている。BaCu₂Si₂O₇ は Cu²⁺ イオンに局在した S=1/2 スピンが c 軸方向に強く相互作用する擬一次元反強磁性体として知られている。磁化率は 150 K にブロードなピークをもち $J = 24.1$ meV の Bonner-Fisher 曲線により説明された。9.2 K で反強磁性転移を有し[1]、コリニアな反強磁性秩序が基底状態となっている。転移温度以下における、中性子三軸分光器による低エネルギー領域の磁気スペクトル研究では、鎖間相互作用、相互作用の異方性、縦揺らぎ連続励起などが大きく着目されていた。一方、中性子源の性質上高エネルギーの測定は困難であったため、c 軸方向の主要な相互作用は 10 meV までの測定から 19.8 meV と見積もられた。今回我々は J-PARC のチョッパー分光器 HRC を用い、3 K から 100 K までの温度領域において、51 meV までの磁気スペクトルを測定した。

図 1 は転移温度以上の $T = 15$ K で測定された磁気スペクトルである。 $\mathbf{q} = (0, 0, -1)$ からスピノン励起が立ち上がっている様子が観測される。スピノン励起の下限曲線は、磁化率から見積もられた $J = 24.1$ meV とした場合の白実線でよく説明された。一方、三軸分光器の見積られた $J = 19.8$ meV の曲線は白破線で示されているが、実験データから、ややずれている。今回、高エネルギー領域のスピノン励起を測定することにより、主要な相互作用を中性子非弾性散乱により正しく見積もることができた。

[1] I.Tsukada *et al.*, Phys. Rev. B **60**, 6601 (1999).

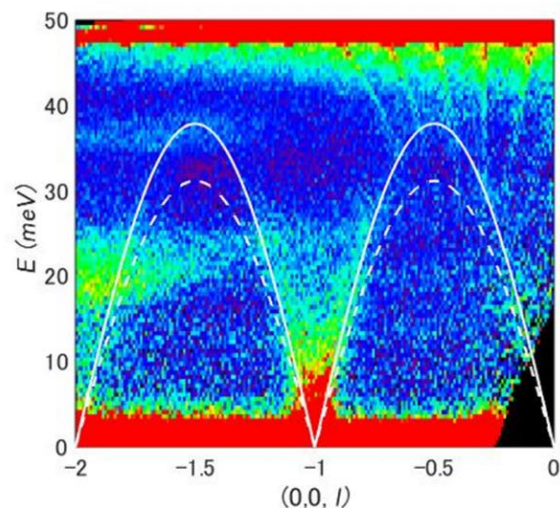


図 1 磁気スペクトル

**PrRu₄P₁₂ の秩序相における *p-f* 混成の変調構造の
共鳴 X 線散乱による観測**
**Modulation of *p-f* hybridization in unconventional
ordered phase of PrRu₄P₁₂ studied by resonant X-ray
scattering**

中尾 裕則¹, 田端 千紘², 岩佐 和晃³
KEK 物構研¹, 京大複合研², 茨城大フロンティアセンター³

充填スクッテルダイト MT₄X₁₂ (希土類 M、遷移金属 T、プニクトゲン X) は、重い電子状態、金属・絶縁体 (MI) 転移、多極子秩序、超伝導といった多彩な物性を示し、多くの研究がなされてきた。結晶構造は X₁₂ の 20 面体の中の空間に M が充填されたカゴ状構造をもち、カゴを形成している X の *p* 軌道からなる分子軌道とカゴの中の *f* 電子が強い混成を示すのが特徴である。この *p-f* 混成の強さが1つのパラメータとなり、スクッテルダイトにおける多彩な物性が発現すると考えられている。PrRu₄P₁₂ は、 $T_M \sim 63$ K という比較的高温で MI 転移を示し、相転移の起源として反強多極子秩序、電荷密度波などが提案されている。また、中性子非弾性散乱により強い *p-f* 混成状態が観測されるとともに、 $T < T_M$ で非等価となった2つの Pr サイトの結晶場の特異な温度依存性が報告された。[1] この結果は、*p-f* 混成状態が2つの Pr サイトで異なることを示唆しているものの、これまでに *p-f* 混成状態の観測例はない。

共鳴 X 線散乱は、原子の吸収端を利用することで、元素・電子軌道を選択的に観測できる実験手法である。そこで PrRu₄P₁₂ の秩序相における *p-f* 混成状態の観測を目指し、Pr や P の吸収端における共鳴 X 線散乱実験を行ってきた。[2] 今回、Pr *M*_{4,5} 吸収端 (~930 eV) で 100 反射における共鳴信号の観測にも成功した。これらの結果をまとめると、Pr *L*_{2,3} 吸収端 (2*p* → 5*d* 遷移) での共鳴信号と比較して、非常に強い共鳴信号が Pr *M*_{4,5} 吸収端 (3*d* → 4*f* 遷移) と P *K* 吸収端 (1*s* → 3*p* 遷移) で観測された。この結果は、2つの PrP₁₂ サイトで Pr 4*f* と P 3*p* の電子状態が大きく異なること、つまり *p-f* 混成状態の違いを直接的に観測したものと期待される。このように共鳴 X 線散乱によりスクッテルダイトの物性を担っている *f* 電子と X の *p* 軌道を直接的に観測することが示せ、強相関電子系の混成軌道が支配する様々な物性を理解する上で重要な情報が得られる手法と期待できる。

[1] K. Iwasa et al., Phys. Rev. B 72 (2005) 024414, J. Phys. Soc. Jpn. 74, 1930 (2005).

[2] H. Nakao et al., J. Phys.: Conf. Ser. 969 (2018) 012118.

高エネルギー分解能分光器 DNA で見る $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ の磁気励起

Magnetic Excitation in $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ by using High Energy Resolution Spectrometer DNA

長谷川舜介¹，林田翔平¹，浅井晋一郎¹，松浦直人²，益田隆嗣¹

¹ 東京大学物性研究所， ² 総合科学研究機構

$\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ は軌道角運動量 $L = 0$ 、スピン $S = 5/2$ を有する Mn^{2+} イオンが ab 面内で正方格子を形成する古典ハイゼンベルグ反強磁性体である。4K 以下で反強磁性秩序を示し、 ab 面を容易面とした collinear な磁気構造をとる[1]。また 4K 以下で[110]方向へ磁場印加した場合に生ずる c 軸方向の電気分極はスピン依存 d - p 軌道混成機構によって説明される[2]。この機構では局所的に電気分極と磁気モーメントが結びつくために、電場によって局所的な磁気モーメントの制御が可能であり、その制御性は磁気異方性の大きさに関係している[3]。最近、類似物質である $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ において磁気異方性の大きさと同様に電場による磁気モーメントの制御性に関する一連の研究が行われた[4, 5]。そこでは ab 面内の磁気異方性がスピンネマティック相互作用で説明されること、さらにそれが分極間相互作用と等価であることが明らかにされた。一方で、磁気異方性が大きい場合電場により磁気モーメントを十分に制御することが困難であり、異方性の小さい物質での研究が求められていた。

本研究では、異方性が小さい $\text{Ba}_2\text{MnGe}_2\text{O}_7$ において、磁気異方性エネルギーの温度依存性及び ab 面内の磁気異方性項を含むスピンハミルトニアン¹の解明を目的とし非弾性中性子散乱実験を行った。期待される異方性ギャップの大きさは μeV オーダーであるため、背面反射型逆転配置 TOF 分光器 DNA を用いて高エネルギー分解能な実験を行った。その結果、過去の報告と一致するエネルギー幅 0.6meV 程度のスピン波励起を観測した。新たに 0.05 K では $Q = (1, 0, 0.5)$ で 36 μeV と 112 μeV の磁気異方性ギャップを観測した。このギャップエネルギーは温度の上昇とともに小さくなり、 $T = 2.5\text{K}$ では 8 μeV と 99 μeV にまで減少した。研究会ではこの温度依存性と、スピン波励起を説明するスピンハミルトニアンについて議論する。

[1] T. Masuda *et al.*, Phys. Rev. B. **91**, 100402(R) (2010). [2] H. Murakawa *et al.*, Phys. Rev. B. **85**, 174106 (2012). [3] J. S. White *et al.*, Phys. Rev. Lett. **113**, 107203 (2014). [4] M. Soda *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 127205 (2014). [5] M. Soda *et al.*, Phys. Rev. B. **94**, 099418 (2016).

異方的三角格子反強磁性体 $\text{Ca}_3\text{ReO}_5\text{Cl}_2$ における 連続励起の検証

Interpretation of continuous excitations in the anisotropic triangular lattice antiferromagnet $\text{Ca}_3\text{ReO}_5\text{Cl}_2$

那波和宏¹、平井大悟郎²、古府麻衣子³、中島健次³、廣井善二²、佐藤卓¹

1 東北大多元研、2 東大物性研、3 J-PARC センター

磁気的なフラストレーションが強く働く系では磁気相関が発達するが磁気秩序は抑制され、分数励起を伴ったスピン液体状態が実現すると期待される。中でも異方的三角格子反強磁性体は、 Cs_2CuCl_4 においてスピノンに類した連続的な励起スペクトルが観測された点において注目を集めた[1]。鎖間のフラストレーションによって次元性が強くなりスピノンの特徴が生き残るという解釈がなされている[2]。しかし磁気励起を検証できる物質が Cs_2CuCl_4 とその類縁物質に限られており、さらなる実験的検証が必要となっている。

$\text{Ca}_3\text{ReO}_5\text{Cl}_2$ は Re^{6+} ($S = 1/2$) が異方的三角格子を組む反強磁性体である(図 1、[3])。磁化率の温度変化から $J = 41$ K、 $J'/J = 0.32$ と見積もられ、連続励起の存在が期待される。これを検証すべく、J-PARC MLF の冷中性子チョッパー型分光器 AMATERAS を用いて磁気励起を調べた。

図 2 に 3 K で測定した非弾性中性子散乱スペクトルを示す。その磁気励起はスピノン励起と同様に連続的である。一方で L (鎖間) 方向にわずかに分散を持ち、 K (鎖内) 方向には 0.5 に関して非対称となる Cs_2CuCl_4 と共通の特徴も示す。講演では 0.3 K ($< T_N = 1.1$ K) における磁気励起スペクトルを合わせて示し、一次元系を出発点として鎖間の相互作用を RPA により取り扱った近似的なシミュレーションとも比較しながら、スピノン描像の是非を議論する。

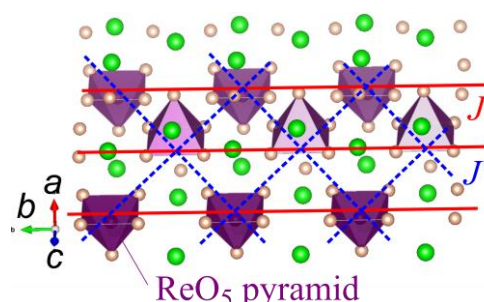


図 1 $\text{Ca}_3\text{ReO}_5\text{Cl}_2$ における異方的三角格子

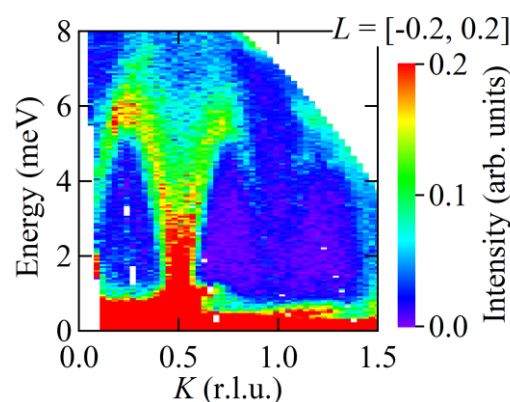


図 2 3 K における非弾性中性子散乱スペクトル。
 $E_i = 9.705$ meV。

- [1] R. Coldea et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 1335 (2001); Phys. Rev. B **68**, 134424 (2003).
- [2] M. Kohno et al., Nat. Phys., **3**, 790 (2007).
- [3] D. Hirai et al., J. Am. Chem. Soc., **139**, 10784 (2017); submitted (2018).

マルチフェロイック物質 MnWO_4 のスピン揺らぎ Spin fluctuation of the multiferroic material MnWO_4

佐賀山基^{A,B}, 岡部博孝^A, 阿部伸行^C, 有馬孝尚^C, 平石雅俊^A,
幸田章宏^{A,B}, 石井祐太^D, 小嶋健児^E, 門野良典^{A,B}

KEK 物構研^A, 総研大^B, 東大新領域^C, 東北大多元研^D, TRIUMF^E

マルチフェロイック物質の磁気強誘電転移は、磁気秩序と強誘電秩序のどちらが主体であるのか議論に決着がついておらず、さらなる研究が望まれている。 MnWO_4 は一種類の磁性イオン (Mn^{2+}) からなる比較的単純な構造であり、マルチフェロイックにおける磁性と強誘電性の結合に関する研究に適した物質である。 MnWO_4 は温度が下がると、高温の常磁性相から共線的な不整合スピン密度波相 (AF3), 非共線的な不整合らせん磁気秩序相 (AF2), 共線的な整合反強磁性相 (AF1) へと逐次相転移を示す。このうちで強誘電性を示すのは、AF2 のみである。

BaTiO_3 等の従来型の変位強誘電体では、強誘電転移の前駆現象として、転移温度近傍で逆空間の広い領域にフォノンのソフト化が観測される。ところがマルチフェロイック物質では、磁気強誘電転移の前後でソフト化は観測されず、従来型と異なる振舞いを示す[1]。我々は磁気強誘電転移の前駆現象が、磁気的なスピン揺らぎの変化に現れると予想し、 μSR 法により MnWO_4 の局所磁気状態を測定した。

図 1 に、AF3 近傍のゼロ磁場スペクトルを拡張型指数関数 [$A(t) = A\exp(-\lambda t)^\beta$] で解析した結果を示す。ミュオンスピン緩和率 λ^β には、 $T_N = 13.5$ K で常磁性-AF3 の転移を示す鋭いピークが、 $T_2 = 12.7$ K で AF3-AF2 の転移に相当するピークが見える。AF3 における指数のべき β は約 0.5 であり、この緩和が電子スピンの揺らぎによるものである場合、その揺らぎはマルコフ過程に基づく単一の相関時間では表せないことが判明した。当日は縦磁場下の実験結果も併せて、 MnWO_4 の強誘電転移と Mn 電子スピンの揺らぎの相関について議論する。

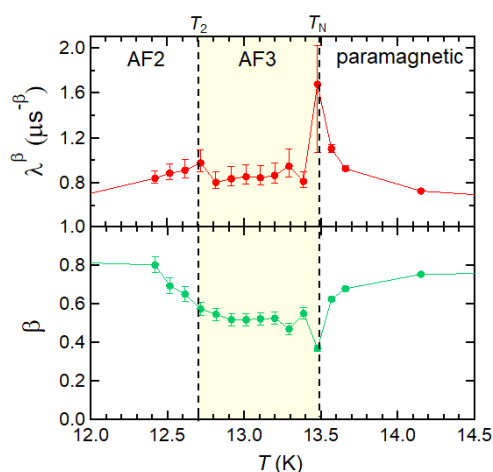


図 1 拡張型指数関数で解析した MnWO_4 のゼロ磁場 μSR の緩和率 λ^β および指数 β の温度依存性。

[1] R. Kajimoto, H. Sagayama et al., PRL 102, 247602 (2009).

偏極中性子回折で見るゼオライトA中の カリウムクラスターの強磁性 Polarized Neutron Diffraction Studies on Ferromagnetism of Potassium Clusters in Zeolite A

中野岳仁¹, 大石一城², 松浦直人²

1 茨大理工, 2 CROSS

アルミノ珪酸塩のゼオライト A では, 内径約 11 Å の α ケージが単純立方構造で配列している(図1). 単位格子には 8 個の α ケージが含まれ, 格子定数は約 24.6 Å である. K^+ イオンを含むもの (α ケージ当たり: $K_{12}Al_{12}Si_{12}O_{48}$) に K 原子を吸蔵させると α ケージ中に K クラスターが形成される. そして, 吸蔵原子数 $n(=s$ 電子数) が $2 < n < 7$ の時に自発磁化が発現する. T_C も n に依存し, 最高で約 8 K である. 本研究では, 中性子回折によりこの系の磁気構造やスピン密度の空間分布の情報を直接得ることを目的としている.

$n = 4.0$ の粉末試料について, 偏極中性子を用いたいわゆる flipping ratio 法の実験を MLF の BL15 で行った. 図 2 は温度 2.3 K, 外部磁場 100 Oe での, (磁化と中性子スピンの向きが) 平行・反平行における差分プロファイルである. これらの回折線は長距離秩序した磁気モーメントの強磁性成分に由来する. 200 反射と 220 反射で符号が逆転しているのは, この間の q で磁気形状因子の符号が逆転していることに起因する. 実空間でのスピン密度の広がり大きさは 15 Å 程度と見積もられ, ナノクラスターに広がった s 電子スピンの起因する磁気散乱を観測できたと考えられる. さらに 111 反射も有意に観測されている. この結果から強磁性磁気モーメントの大きさが, 図1の赤と青の矢印で示したように周期変調していることが直接的に言える. この系では隣接クラスター内の K^+ イオン数が異なるという構造的変調(空間群: $F23$)が存在するが, それと磁性との関連が示唆される.

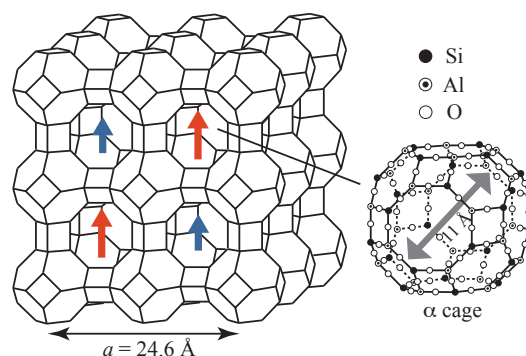


図 1 : ゼオライト A の結晶構造の模式図. 赤と青の矢印は, ordered moment の強磁性成分を模式的に表している.

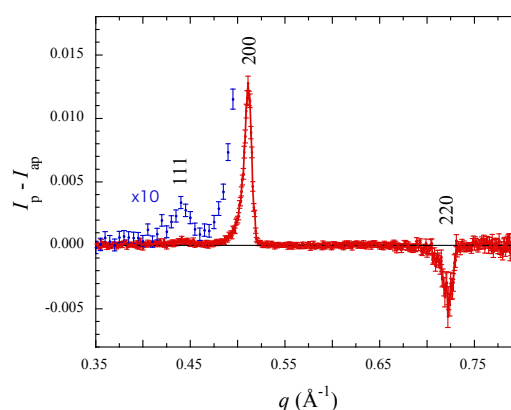


図 2 : ゼオライト A 中の K クラスターの偏極中性子回折パターンの差分プロファイル.

μSR 法を用いた $\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{IrO}_4$ の磁気相図の決定

Magnetic Phase Diagram of $\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{IrO}_4$ determined by μSR method

町田一樹¹、堀金和正²、藤井政徳¹、岡部博孝³、小林夏野^{1,2}、堀江理恵²、
石井博文⁴、久保園芳博^{1,2}、幸田章宏³、門野良典³、秋光純²
岡山大学自然科学研究科¹、岡山大学異分野基礎研究所²、J-Parc/KEK³、
台湾国立放射光科学研究センターNSRRC⁴

Sr_2IrO_4 はスピン $S=1/2$ を持つ反強磁性体であり、強いスピン軌道相互作用と電子相関によりモット絶縁体で実現する。さらに、理論計算[1]により電子ドーピングによる超伝導化が期待されている。La をドーピングすると、 $T_N(=240\text{K})$ は減少し、さらに中性子散乱の手法により反強磁性秩序は $x=0.08$ 付近において長距離的から短距離的に変化することが報告された[2]。しかし、Ir は中性子吸収断面積が大きいいため中性子散乱の手法を用いて Ir の磁性を議論することは難しい。そこで我々は内部磁場に対して非常に敏感なプローブである μSR の手法を用いることにより La をドーピングした試料 $\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{IrO}_4 (x=0.05, 0.1, 0.15)$ の磁氣的性質の解析を試みた。

図 1 に $\text{Sr}_{1.9}\text{La}_{0.1}\text{IrO}_4$ のゼロ磁場時間スペクトルを示す[3]。電子ドーピングを施した本系では長距離秩序に伴う回転成分は観測されずスペクトルの強い緩和が観測された。この結果は $x=0.1$ において長距離秩序が実現していないことを示している。時間スペクトルの大きな緩和を明らかにするため、我々は $\exp(-\lambda t)^\beta$ を用いて解析したところ磁気点付近の 180K において β の減少が観測され 0.5 付近に近づくことが分かった。 β

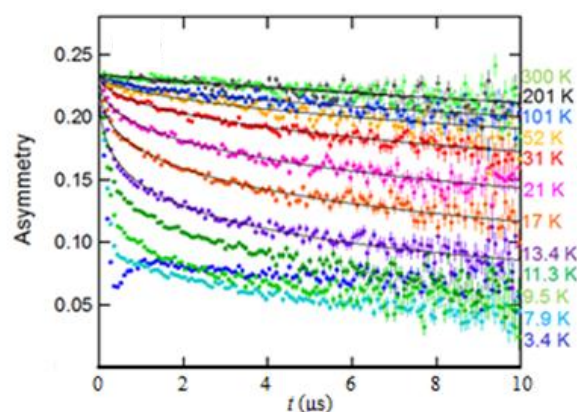


図 1. $\text{Sr}_{1.9}\text{La}_{0.1}\text{IrO}_4$ におけるゼロ磁場 μSR 時間スペクトル

$=0.5$ という値は Griffiths 相と呼ばれる局所的に反強磁性秩序が実現している相であり、このことから 180K 以下では短距離秩序が実現しているものと思われる。当日は La 置換量を 0.05, 0.15 ドーピングしたものについても μSR 法により解析し、その結果判明した磁氣的性質について報告する。

[1] H. Watanabe *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 027002 (2013).

[2] Xiang Chen *et al.*, Phys. Rev. B **92**, 075125 (2015).

[3] K. Horigane *et al.*, Phys. Rev. B **97** 064425 (2018).

ペロブスカイト $\text{CaMn}_{1-x}\text{Sb}_x\text{O}_3$ の結晶構造と磁気構造 Crystal and magnetic structure of perovskite $\text{CaMn}_{1-x}\text{Sb}_x\text{O}_3$

東北大学多元研、岩手大学理工^A、東工大 MSL^B、KEK 物構研^C
関川 暁、山本 孟、石井 祐太、木村 宏之、谷口 晴香^A、松川 倫明^A、
東 正樹^B、佐賀 山基^C、本田 孝志^C、大友 季哉^C

ペロブスカイト型マンガン酸化物 $\text{RMnO}_3(\text{ABO}_3)$ は、 Mn^{3+} と Mn^{4+} の混合原子価数状態において強磁性金属相や電荷秩序相、絶縁体反強磁性相など多彩な電子相を作ることが知られている。本研究では $\text{CaMn}^{4+}\text{O}_3$ の B サイトへ Sb^{5+} を置換する ($\text{CaMn}_{1-x}\text{Sb}_x\text{O}_3$) ことで電子ドーピングを行い、結晶構造や磁気構造の変化を調べた。過去の報告より、 $x \geq 0.20$ で Mn-O 八面体回転パターンの変化による直方晶(空間群 $Pnma$) から単斜晶(空間群 $P2_1/m$) への構造相転移[1]や、 $x = 0.05, 0.08$ での磁場中冷却過程での起源不明の磁化反転を示すことが知られている[2]。

結晶構造の詳細を調べるため、KEK-PF BL-8B において放射光粉末 X 線回折実験を行った。上記の直方晶から単斜晶への転移が Sb 置換量の増加に加えて、温度変化によっても起こることが分かった。この結果から $\text{CaMn}_{1-x}\text{Sb}_x\text{O}_3$ についての温度-組成の詳細な相図が得られた。

J-PARC MLF NOVA において粉末中性子回折実験を行い、 $x = 0.05, 0.10, 0.20$ の3試料の磁気構造について調べた。いずれの試料においても、Néel 温度以下で $Pnma$ や $P2_1/m$ では説明できないピークが観測された(図 1)。現在、これらを磁気反射と考えて、粉末回折データ解析ソフトウェア Z-Code を用いた磁気構造解析を進めており、詳細は当日発表する。

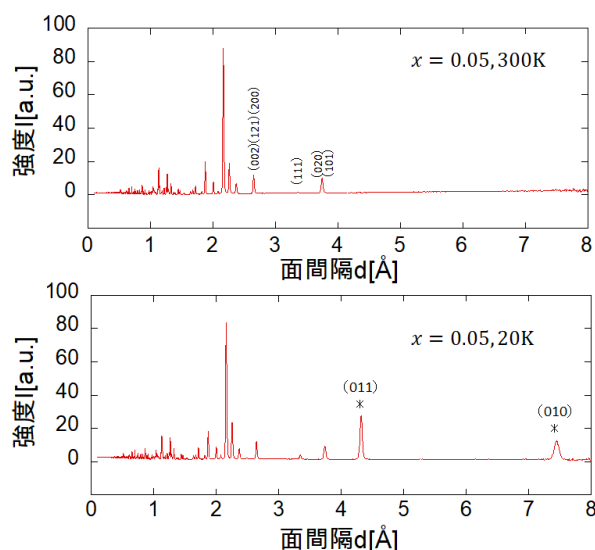


図 1. $\text{CaMn}_{0.95}\text{Sb}_{0.05}\text{O}_3$ の粉末中性子回折パターン(300 K, 20 K)。* 印は $Pnma$ や $P2_1/m$ では説明できないピーク。

[1] V. Poltavets J. Solid State Chem. 177, 1285 (2004).

[2] Y. Murano et al., Phys. Rev. B, 83, 054437 (2011).

ホールドーピング系超伝導体 $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ における磁気励起 High-energy spin excitations in hole doped $\text{Ca}_{1-x}\text{Na}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$

堀金和正¹、中野将太郎²、木方邦宏³、梶本亮一⁴、池内和彦⁵、
秋光純¹、李哲虎³
岡山大基礎研¹、岡山大自然²、AIST³、J-PARC⁴、CROSS⁵

鉄系超伝導体において磁性と超伝導の相関関係を明らかにすべく、中性子散乱を用いたスピン揺動の研究が盛んになされている。これまで $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ [1]に代表される Ba122 系において研究が行われてきた。一方、Ca122 系はこれまで研究があまりなされておらずホールドーピングに対する磁気励起の全体像は未解明であった。そこで本研究では最適ドーピング領域に近いホールドーピング系超伝導体 $\text{Ca}_{0.44}\text{Na}_{0.56}\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($T_c=34\text{K}$)の単結晶試料を作成し、J-PARC 中性子実験装置『四季』を用いることにより、これまで明らかにされていなかった高エネルギー領域にわたる磁気励起の全体像を明らかにすることを目的として研究を進めてきた。

図 1 に 4K における各エネルギー領域で (H,K)マップの結果を示す。Q=(0.5,0.5)で観測される磁気シグナルはエネルギーの増加とともにピーク幅が増大し、160meV まで磁気励起スペクトルを観測した。また、Ca122 系特有の 3 次元磁気相関を反映して L 方向は明確な分散関係を持ち(図 2)、少なくとも 20meV まで強い L 依存性を有することも明らかになった。更に T_c 以下で磁気シグナルが顕著に増大するレゾナンスピークを観測し、レゾナンスピークのエネルギー $E_{\text{res}}=13.3\text{meV}$ と見積もった。過去に報告された ARPES 測定から $2\Delta/k_B T_c=5.5$ と見積もられており[2] 2Δ は約 16meV と見積もられるが今回得られた E_{res} はそれよりも小さいことからスピン揺らぎを媒介とした $S_{\pm}$ 波を支持する結果が得られた。

参考文献

- [1] K. Horigane et al., Sci. Rep. **6**, 33303 (2016)
[2] D. V. Evtushinsky et al., Phys. Rev. B **87**, 094501 (2013)

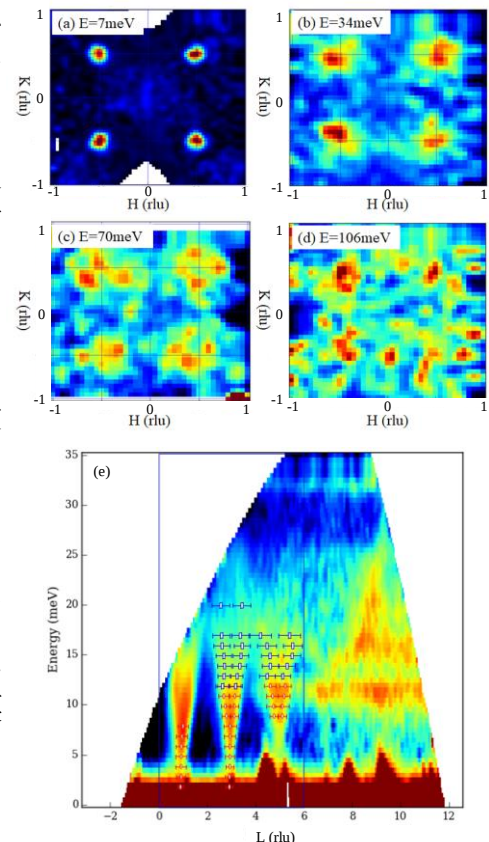


図 1 $\text{Ca}_{0.44}\text{Na}_{0.56}\text{Fe}_2\text{As}_2$ における(a-d) 各エネルギーにおける(H,K)マップ および(e)L 方向の分散関係

単結晶 X 線回折による T'-Pr_{1.3-x}La_{0.7}Ce_xCuO_{4+δ} (x = 0.10) の還元アニールによる構造変化の研究

Study of reduction effect on T'-Pr_{1.3-x}La_{0.7}Ce_xCuO_{4+δ} (x = 0.10) via single crystal X-ray structure analysis

御手洗誠^{1,2}、坂倉輝俊²、木村宏之²、浅野駿^{1,3}、藤田全基³、
洲村拓哉⁴、石本奨⁴、足立匡⁴、小池洋二⁵、岸本俊二⁶

1 東北大院理、2 東北大多元研、3 東北大金研、4 上智大理工、
5 東北大工、6 KEK 物構研

T'型銅酸化物超伝導体は、as-grown 状態では超伝導特性を発現せず、還元雰囲気中でアニールすることではじめて超伝導体になるとされている。しかしながら、還元前後の構造変化は未だ十分に理解されておらず、その解明が重要視されている。先行研究では、主に以下の二点が述べられている。ひとつは、伝導面である CuO₂ 面の上下に頂点酸素と呼ばれる過剰酸素が存在し、それが還元によって除去されるというものである[1]。もうひとつは、還元によって母相とは異なる構造を持った第二相 RE₂O₃ が出現し[2]、as-grown 状態で観られた Cu 欠損を補償することで超伝導に最適な CuO₂ 面が形成されるというものである[3]。以上を踏まえ、過去に我々は母物質である Pr_{2-x}La_xCuO_{4+δ} (x = 0, 0.6) (以下 PCO, PLCO) の還元前後における構造変化を単結晶 X 線構造解析により調査し、as-grown では 2 %前後の Cu 欠損が観られ、還元後には第二相 RE₂O₃ (RE = Pr, La)の析出と共に補償されていることが確認できた。更にこれらの試料では、as-grown 状態で 2 種類の REO (RE = Pr, La) ブロック層が二層共存状態になっていたものが、還元後に単一相になることが新たに分かり、CuO₂ 面だけでなく単位胞全体が超伝導に最適な状態になっていることが分かった。

また、不活性ガス中で行われた従来の還元アニール方法とは別に、低酸素分圧中でアニールすることで今まで超伝導特性が発現しなかったノンドープ領域での発現が薄膜試料において確認された[4]。これを踏まえ、同組成粉末で試料を覆い、真空中でアニールするプロテクトアニールという手法を使うことで、単結晶においてもアンダードープ領域での超伝導発現が確認された[5]。またプロテクトアニールのみの場合 T_c = 24.5 K であったが、これに加え低温アニールとダイナミックアニールという手法を用いることで(以下ダイナミックアニール試料)、T_c = 27.2 K に上昇することが確認されている。これらの還元手法の違いによる構造変化と従来の結果とを比較することで、より本質的な構造変化を理解できると考える。

以上を踏まえ、本研究では T' - Pr_{1.3-x}La_{0.7}Ce_xCuO_{4+δ} (x = 0.10) (以下 PLCCO)のダイナミックアニールについて単結晶 X 線構造解析により調べると共に、過去に測定したプロテクトアニール試料や母物質である PCO, PLCO の結果とも比較した。測定は東北大多元研木村研究室と KEK-PF BL-14A にある 4 軸回折計を使用した。

母物質で観られた還元による REO ブロック層の単一相化、as-grown で観られた Cu 欠損の補償と第二相の析出は PLCCO でも観られた。更に還元後でも母相の酸素席占有率は減少していないにも関わらず、BVS 法で見積もった Cu の結合価数はプロテクトアニール、ダイナミックアニールの順で減少しており、電子ドープされていることが示唆された。これには、還元の強さに比例して体積が増加する第二相が関与していると考えられる。詳細に関しては現在解析中である。

[1] P. G. Radaelli *et al.*, Phys. Rev. B **49**, 15322 (1994). [3] H. J. Kang *et al.*, Nature Mat. **6**, 224 (2007).

[2] H. Kimura *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 2282 (2005). [4] O. Matsumoto *et al.*, Physica C **469**, 924 (2009).

[5] T. Adachi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 063713 (2013).

PrTr₂Al₂₀ (Tr = Ti, V)の精密結晶構造と結晶場の解析 Crystal structural and crystal electric field analyses in PrTr₂Al₂₀ (Tr = Ti, V)

奥山大輔¹, 辻本真規², 佐賀山基³, 志村恭通^{2,4}, 酒井明人², 眞方篤史²,
中辻知², 佐藤卓¹

1 東北大多元研, 2 東大物性研, 3 高エネ機構、物構研, 4 広島大学

PrTr₂Al₂₀ (Tr = Ti, V)は基底状態が非磁性 Γ_3 であると考えられている。PrV₂Al₂₀では、磁化と電気抵抗に2チャンネルアンダーソンモデルの予想と同様な $\sqrt{T}$ の温度依存性が低温で観測されている[1]。比熱測定では0.6 K付近で相転移が観測されており、反強的な四極子秩序が考えられている[1,2]。PrTi₂Al₂₀では電気抵抗の温度変化は T^2 の振る舞いを示している。また、2 Kで強四極子秩序による異常が観測されている[2,3]。PrTi₂Al₂₀の結晶場レベルは中性子非弾性散乱より Γ_3 (基底) - Γ_4 (5.61 meV) - Γ_5 (9.30 meV) - Γ_1 (13.5 meV)と報告されている[3]。一方PrV₂Al₂₀では、中性子非弾性散乱による結晶場解析は行われておらず、PrTr₂Al₂₀ (Tr = Ti, V)の輸送特性の違い議論する情報が不足している。我々は放射光回折実験を行い、得られた精密結晶構造パラメータを用いてPrV₂Al₂₀の結晶場レベルを決定することを試みた。

実験はKEK-PFの単結晶構造解析ラインBL-8Aで行った。得られたデータよりPrTi₂Al₂₀及びPrV₂Al₂₀の室温での結晶構造解析を行った(図1(a,b))。点電荷モデルで結晶場レベル計算を行い、PrTi₂Al₂₀で報告されている中性子非弾性散乱スペクトルを説明するAlの価数を求めた。このAlの価数とPrV₂Al₂₀構造パラメータを使用し結晶場レベル計算を行うと、 Γ_3 (基底) - Γ_4 (5.6 meV) - Γ_5 (11.1 meV) - Γ_1 (13.5 meV) となった[4]。[1] M. Tsujimoto *et al.*, Phys. Rev. Lett. **113**, 267001 (2014). [2] A. Sakai *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 063701 (2011). [3] T. J Sato *et al.*, Phys. Rev. B **86**, 184419 (2012). [4] D. Okuyama *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **88**, 015001 (2019).

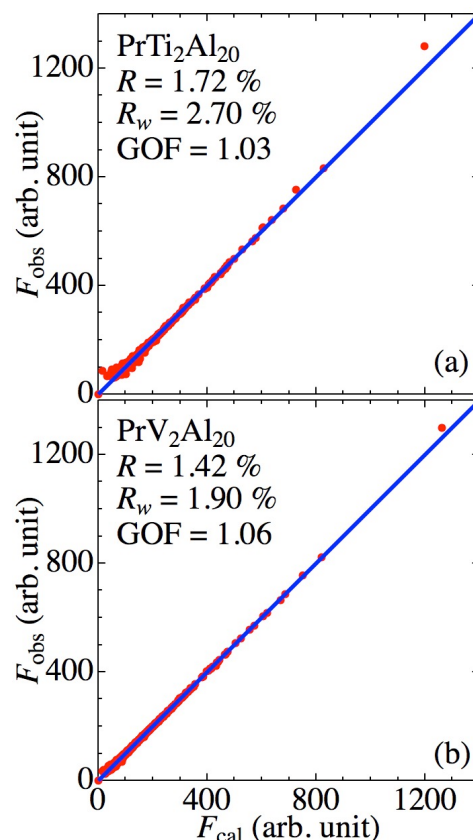


図 1: PrTi₂Al₂₀ (a) と PrV₂Al₂₀ (b)の観測構造因子と計算構造因子の比較。

金属二重鎖系 $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-d}$ の 結晶構造と超伝導への圧力効果

Pressure effect on the crystal structure and superconductivity
of the metallic double chain system $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-d}$

谷口晴香¹, 高橋陸¹, 村上真俊¹, 熊谷凌¹, 中山敦子¹, 松川倫明¹,
中野智志², 萩原亮³, 佐々木孝彦⁴, 大野義章⁵, 佐野和博⁶

1 岩手大理工, 2 NIMS, 3 京都工芸繊維大工, 4 東北大金研,

5 新潟大理, 6 三重大工

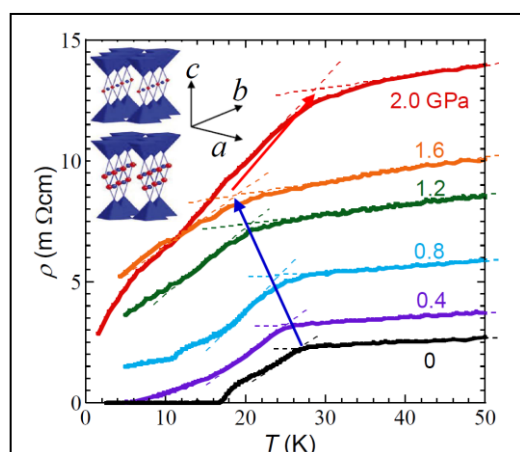


図 1: $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-d}$ の電気抵抗率の温度依存性[2]。圧力媒体はフッリナート。破線の交点は超伝導転移温度のオンセットを示す。

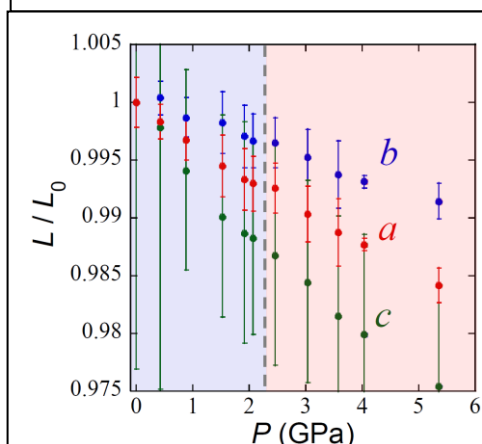


図 2: $\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-d}$ (斜方晶 Amm) の格子パラメータの圧力依存性。圧力媒体は He ガス。エラーバーはメインピークの反値幅をもとに評価した。低压と高压ではデータ点が異なる曲線上に乗って見える。その相境界の目安を破線で示す。

$\text{Pr}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15-d}$ (Pr247) はペロブスカイト結晶構造を有し、真空還元処理によって超伝導を発現する[1]。他の銅酸化物超伝導体とは異なり、Pr247 では CuO_2 面がキャリア層、 CuO 二重鎖が伝導層を担う点が特徴である。これまで我々は Pr247 の電気抵抗の圧力依存性を調べ、超伝導オンセット温度 T_c のリエントラント性(図 1)[2]を発見した。一般には、圧力によって鎖方向より鎖間の原子間距離が顕著に縮み、二重鎖モデルの相図[3]において t_{pp}/t_{pd} が上昇して超伝導は抑制されると予測される。しかし、 T_c リエントラントはこのシンプルな予想に反するため、起源解明には圧力下の格子パラメータの情報が不可欠である。

そこで本研究では放射光を用いて室温で高压粉末X線回折実験を行った。メインピーク的位置から格子パラメータを見積もったところ(図 2)、 a , b , c いずれの圧力依存性も 2.3 GPa 付近にキックを持つことを見出した。この室温構造解析の結果は、低温での T_c リエントラントとの対応が示唆される。 b , c の顕著な収縮はそれぞれ t_{pp}/t_{pd} の抑制、キャリア数の増大によって T_c を上昇させうる。また、 a の収縮は次元クロスオーバーによって二重鎖モデルの相図自体を変化させうる。

[1] M. Matsukawa *et al.*, Physica C **411**, 101 (2004).

[2] Y. Nakarokkaku *et al.*, JPS 72nd Annual Meeting, 18aK-PS-48 (2017).

[3] K. Sano *et al.*, JPSJ, **74**, 2885 (2005).

軟 X 線 ARPES によるトポロジカル半金属の 3次元バルク電子構造の研究

3 dimensional bulk band structure of topological semimetals by soft-xray ARPES

相馬清吾・東北大学 CSRN/AIMR

トポロジカル絶縁体の存在が実証されて以降、トポロジによる物質の指数付けは、準粒子の励起スペクトルにエネルギーギャップのある系に集中しており、ここ数年の短い間に、トポロジカル結晶絶縁体やトポロジカル超伝導体などの新物質が報告された。近年、励起スペクトルにギャップのない半金属においてもトポロジカル物質相の存在が予測され、大きく注目されている。トポロジカル半金属は、伝導帯と価電子帯が交差するエネルギー縮退点の電子構造により、3つの物質相「ディラック半金属」「ワイル半金属」「線ノード半金属」に分類される。トポロジカル半金属は、異常ホール伝導、カイラル量子異常など、数々の巨視的量子効果を引き起こす。その一方で、フェルミ準位近傍における線形なバンド分散は、超高キャリア移動度、非飽和巨大磁気抵抗などの特異な物性をもたらす。このような新たな物質相を実現する物質の探索・開発は、世界的に熾烈な競争状態にある。このトポロジカル半金属の物質開発と探索には、3次元運動量空間におけるバルク電子状態のエネルギー縮退の電子構造を精密に決定する必要がある、放射光を駆使した高精度の ARPES が重要な役割を果たしている[1-5]。

例として、図1にミラー対称性により縮退線が保護された CaAgAs のフェルミ面の計算と SX-ARPES の結果を示す。この物質はディラック型の線形バンド分散がフェルミ近位近傍で交差するノードをもち、これがブリルアンゾーン中で1次元のリングを構成する。この物質では、ディラック型のバンド分散の他にフェルミ面を作るバンドがないため、環状の線ノードの物性を、輸送実験などで直接測定できることが期待される。本講演では、幾つかのトポロジカル半金属の候補物質について、放射光施設を用いて行った研究結果について議論する。

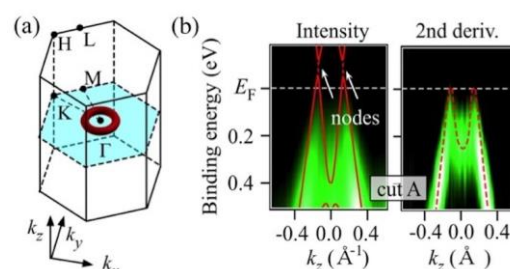


図1 (a)第一原理計算によるCaAgAsのフェルミ面, (b)ARPESスペクトルの強度プロットと二回微分強度プロット[4].

[1] S. Souma *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 161112R (2016). [2] D. Takane *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 121108R (2016). [3] K. Nakayama *et al.*, Phys. Rev. B **95**, 125204 (2017). [4] D. Takane *et al.*, npj Quantum Materials, **3**, 1 (2018). [5] D. Takane *et al.*, Phys. Rev. B **98**, 041105R (2018).

使用ステーションなし

軟磁性体薄膜におけるヒステリシス損とマトリクス相交換相互作用

Effects of exchange interaction of matrix phase on hysteresis losses in magnetic thin film

塚原宙、小野寛太

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所

軟磁性体は磁気シールド材料や電磁鋼板に使用されている。これらの磁性材料は交流磁場下で使用するため着磁および減磁過程を繰り返す。その際エネルギー損失が発生しデバイスの高性能化を妨げる原因となっている。エネルギー損失の一因は保持力による磁化応答速度の外部磁場からの遅延である。よって軟磁性体の高性能化では保持力の減少が求められる。

Herzer によると等方的ナノ結晶磁性体材料では結晶粒間に働く交換相互作用により保持力が減少する。磁壁幅が結晶粒径を超えると各結晶粒の異方性磁場が平均化され結晶磁気異方性が減少する。結晶粒間はアモルファスで構成されるマトリクス相で構成される。よってマトリクス相における交換相互作用は保持力において重要な役割を持つと予想される。

我々はマトリクス相における交換相互作用と軟磁性体におけるエネルギー損失との関係を調べるためマイクロマグネティックシミュレーションを実行し計算結果を解析した。シミュレーションでは粒径が約 80nm と約 580nm の結晶粒から構成される2つのモデルを使用した。結晶粒を構成する物質は鉄を想定した。またマトリクス相における交換相互作用の大きさを変化させ磁化ダイナミクスの変化を調べた。シミュレーションは有限差分法を使用し、磁化ダイナミクスは Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を用いて計算した。

シミュレーション結果から軟磁性体内における磁化ダイナミクスは粒径およびマトリクス相の交換相互作用に大きく依存することが明らかになった。粒径が小さいモデルでは反転核が多数生成し磁化反転した領域が結合することで着磁する。これに対し粒径が大きい結晶粒から構成されるモデルでは反転核の密度が小さく磁壁が結晶粒内を移動する。磁壁の移動速度は外部磁場の変化(100MHz)に比べ遅いため大きな結晶粒を持つモデルのエネルギー損失は大きくなる。本発表では粒径サイズと保持力と関係および磁化ダイナミクスの詳細について発表する。

金属反強磁性体 CeRh_2Si_2 の磁気励起の観測

Magnetic excitation on metallic antiferromagnet CeRh_2Si_2

齋藤 開¹、横尾哲也¹、羽合孝文²、益田隆嗣³、
今布咲子⁴、日高宏之⁴、網塚浩⁴、伊藤晋一¹

1 KEK-KENS、2 KEK-PF、3 東大物性研、4 北大理

近年、複数の磁気イオンサイトを一つのクラスターとして考え、その持つ対称性から特定の多極子秩序とみなせる、とする理論が注目を集めている[1]。私たちはこの理論を基に、候補物質と提案された UNi_4B のほか、 CeRh_2Si_2 、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ において電流誘起の磁化現象を発見した[2]。電気磁気効果（ME効果）の発現はこれまで金属系においては報告が殆どない奇パリティ多極子の秩序を期待させる。しかし、 CeRh_2Si_2 、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10}$ については結晶の対称性からME効果が発現しえないはずであることが未解決の課題として残っている。そこで私たちは磁化とは異なるプローブを用いて系の対称性を改めて確認し、それがもたらす物性を観測することを目指している。本講演ではJ-PARC/MLFのBL12HRCで行われた単結晶 CeRh_2Si_2 における非弾性中性子散乱実験について報告する。

速水らの一次元鎖における理論計算[3]によれば、局所的な空間反転対称性の破れに由来して系が交代的なDM相互作用を持つ場合は、反強磁性秩序に伴いマグノンバンドのスピンの依存のない非対称なシフトが生じる。本研究の目標はこの磁気励起の変調を観測することである。

CeRh_2Si_2 の結晶構造は ThCr_2Si_2 型の正方晶（空間群： $I4/mmm$ ， D_{4h}^{17} ，No.139）である。この構造では、Ceイオン位置は空間反転中心である。本系は $T_{N1} = 36 \text{ K}$ と $T_{N2} = 25 \text{ K}$ で逐次の反強磁性相転移を示す。各相はそれぞれ、秩序波数ベクトル $\mathbf{q} = [1/2, 1/2, 0]$ と $[1/2, 1/2, 1/2] + [1/2, 1/2, 0]$ で特徴づけられる。どちらの相においても、Ceが磁気モーメントを持ち、c軸を向いて整列している。ME効果は T_{N1} と T_{N2} の間の中間相でのみ観測されている。測定に用いた単結晶試料は、北大網塚研究室においてCzochralski法により作製された。複数試料の軸立て、軸揃えには東大物性研益田研究室の大強度Laue装置を使用した。本講演ではまず T_{N2} 以下の低温相におけるデータを紹介し、過去の粉末における先行研究[4]と比較する予定である。

[1] S. Hayami *et al.*, Phys. Rev. B 90 (2014) 024432 など. [2] H. Saito *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 87, 033702 (2018). [3] S. Hayami *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 85, 053705 (2016). [4] T. Willers *et al.*, and A. Severing, Phys. Rev. B 85, 035117 (2012).

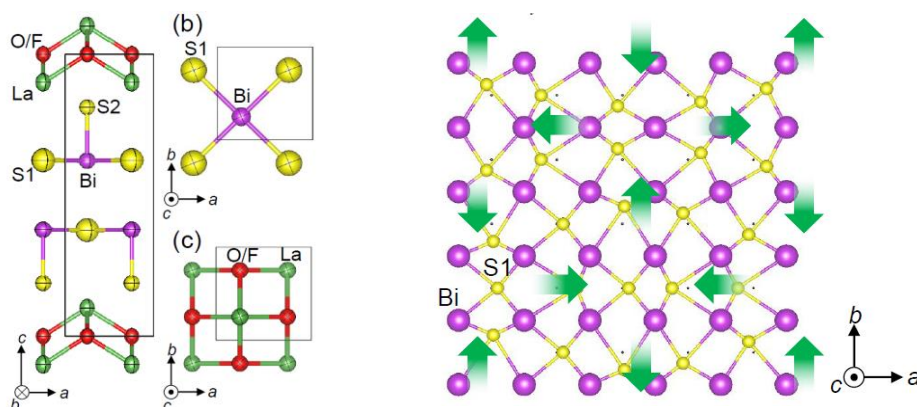
放射光 X 線を用いた $\text{LaO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$ の 格子変調パターンの決定

Determination of long-period lattice modulation in $\text{LaO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$ using synchrotron radiation x-ray

佐賀山遼子¹ 佐賀山基¹、梶谷丈²、
長谷川巧³、熊井玲児¹、村上洋一¹、東中隆二²、松田達磨²、青木勇二²
1 高エネ機構物構研、2 首都大院理、3 広大総合科

層状 BiS_2 系超伝導体 $\text{REO}_{1-x}\text{F}_x\text{BiCh}_2$ (RE:希土類元素、Ch:カルコゲナイド) はブロック層 $\text{REO}_{1-x}\text{F}_x$ と伝導層 BiCh_2 が c 軸方向に積層した構造を有する[1]。Bi6*p* 軌道と S3*p* 軌道が混成して一次元性が強い伝導バンドを形成し、その強いネスティング条件により電荷密度波秩序が期待されている[2]。希土類を変えることにより伝導層面内に異方的な化学圧力を印加できるため、超伝導転移温度に大きな影響を与えることが報告されている[3]。我々はこれまでに大きな化学的圧力効果が期待される $\text{LaO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$ の単結晶放射光 X 線回折実験を行い、 $T^* \sim 260\text{K}$ 以下において非整合長周期変調構造($q = (z \quad z \quad 0.5)$, $z \sim 0.207$) が現れることを報告した。

本研究ではその変調パターンを決定するために T^* 以下において平均構造を決定し、超格子反射の消滅則を調べた。その結果、BiS 面において S が横波型で変調していることが明らかになった。これは予想されていた電荷密度波秩序による変調構造とは対称性が異なる。その発現メカニズムについて議論する。



[1] Y. Mizuguchi, J. Phys. Chem. Solids **84**, 32 (2015).

[2] H. Usui, K. Suzuki, and K. Kuroki, Phys. Rev. B **86**, 220501(R) (2012).

[3] Y. Mizuguchi, *et al.*, Sci. Rep. **5**, 14968 (2015).