

Inline Holography による軟 X 線渦波のらせん位相分布の観測

Inline holography measurement for extraction of spiral phase distribution of soft x-ray vortex wave

石井 祐太¹, 若林裕助¹, 山本航平², 横山優一³, 水牧仁一郎³,

中尾裕則⁴, 有馬孝尚⁵, 山崎裕一⁶

¹東北大理, ²分子研, ³JASRI, ⁴KEK, ⁵CEMS, ⁶NIMS

近年、らせん状に回転する波面を持った光渦と呼ばれる光の状態が注目を集めている。この光渦は、軌道角運動量や、位相が定義できない位相特異点を持つ等、平面波には無い、特殊な性質を持つことが知られており、それらを利用して、超解像イメージング等の、様々な分野における応用が期待されている。波長が 1nm 程度である軟 X 線領域の光に関しても、これまでスパイラルゾーンプレート[1]や光学回折素子[2]、ヘリカルアンジュレータ[3]等を用いた光渦生成が報告されてきた。軟 X 線領域の光は、XMCD や共鳴 X 線散乱等、磁性体研究に広く利用されていることから、軟 X 線領域の光渦は磁性体への新たなプローブになり得ると期待される。

一方で、磁性体研究に応用する際に、光のらせん状の位相分布を可視化することは、極めて重要であることが予想される。しかしながら、通常の X 線散乱では、観測される散乱強度には位相情報が失われているため、観測が困難である。そこで、本研究では、干渉効果を利用した Inline Holography の実験により、光学回折素子から生成される軟 X 線渦波の位相分布の観測を行った[4]。

図 1 は、本研究で用いた Inline Holography の実験配置を示している。X 線はまずフレネルゾーンプレート(FZP)により集光される。光は集光点を過ぎると発散していくが、その途中に、光渦を生成するフォーク型回折格子を設置する。この配置では、下流に設置した二次元検出器により、回折格子より生成された光渦波と FZP から試料周りを通り抜けてくる参照波との干渉を観測することができる。この干渉項には、渦波の位相情報が打ち消されずに残っており、これを取り出すことで、渦波のらせん状の位相を観測が可能になる。本発表では、実験結果の詳細と、本手法を用いた磁性体研究への応用についても議論したい。

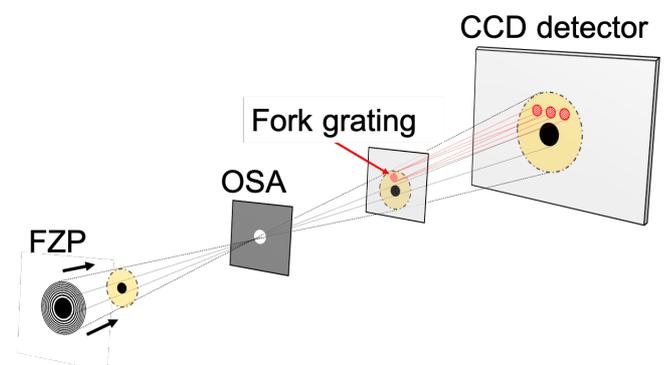


図 1. Inline Holography の実験配置。FZP:フレネルゾーンプレート。OSA:オーダー分離用絞り。

CaMn_{0.95}Sb_{0.05}O₃ における 温度変化に伴うリバーシブルな自発磁化反転 Reversible thermally-controlled spontaneous magnetization switching in CaMn_{0.95}Sb_{0.05}O₃

山本孟¹、関川暁¹、谷口晴香²、松川倫明²、重松圭³、本田孝志⁴、
山内邦彦⁵、池田一貴⁴、大友季哉⁴、坂倉輝俊¹、東正樹³、二森茂樹⁶、
野田幸男¹、木村宏之¹

(¹ 東北大学多元研、² 岩手大学理工、³ 東京工業大学 MSL、
⁴ KEK、⁵ 大阪大産研、⁶ NIMS)

ペロブスカイト型酸化物 CaMn_{1-x}Sb_xO₃ 多結晶において、温度変化によるリバーシブルな自発磁化反転現象(温度変化だけでN極とS極が反転する磁石)を発見した[1](Fig1 左)。この現象は、熱磁気モーターや記憶素子などへの応用が期待される。粉末中性子回折(J-PARC MLF BL21 NOVA)と磁気構造解析、理論計算から、e_g 電子軌道秩序クラスターの成長に起因して物質中に二種類の傾角反強磁性相(G型反強磁性相とA型反強磁性相)が共存し、温度変化によりそれらの分率が変わることがわかった(Fig1 右)。各相の自発磁化は静磁エネルギーを下げるために反対方向を向き、分率の変化に伴って全体の磁化反転が起こったと考えられる。

[1] Hajime Yamamoto *et al.*, *Applied Physics Letters*, 117, 112404, (2020).

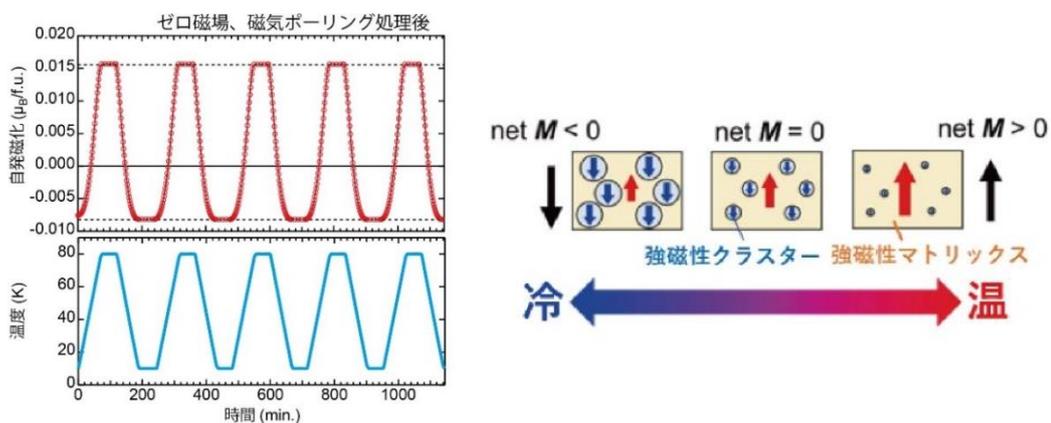


Fig. 1. 温度変化による磁化反転(左)と相分離した磁気相の模式図(右)

中性子非弾性散乱実験による空間反転対称性の破れた CeTSi₃ (T = Rh, Ir)の結晶場準位の研究

Inelastic neutron scattering study of the crystalline electric field level scheme on CeTSi₃ (T = Rh, Ir) with a lack of inversion symmetry

植田大地^{1,2}、小吹智広²、柴田浩貴²、吉田雅洋²、池田陽一³、伊藤晋一¹、
横尾哲也¹、益田隆嗣²、吉澤英樹²

1 KEK 中性子、2 東大物性研、3 東北大金研

空間反転対称性の破れたセリウム系金属間化合物 CeTSi₃ (T = 遷移金属)は、遷移金属元素の違いにより圧力誘起超伝導や多段メタ磁性転移などの興味深い物性の発現が報告されている[1, 2]。空間反転対称性の破れは、反対称スピン軌道相互作用(ASOI)が伝導電子のスピン状態に依存して作用するため、ASOIの効果が物性にどのように影響するのか大きな興味を持たれ盛んに研究されている。我々はこれまでに超伝導の発現は無いが、多段メタ磁性転移を示す CePdSi₃ や CePtSi₃ の単結晶試料を用いて比熱や磁化測定を行うと共に、CePtSi₃ の多結晶試料を用いた中性子非弾性散乱実験を行いこれらの結晶場準位を決定した[2, 3]。改めて圧力誘起超伝導体である CeRhSi₃ や CeIrSi₃ の先行研究で報告されている結晶場準位に注目し、結晶場パラメータや基底状態の波動関数を比較してみると、基底状態の波動関数の違いによって、超伝導発現の有無を区別できる可能性を見出した。しかしながら先行研究で報告されている CeRhSi₃ の結晶場準位の測定は、多結晶試料を用いて三軸分光器により行われた測定であり、非常に限られた運動量空間のウィンドウで観測されているばかりか、フォノンによる強いバックグラウンドと共に観測されたものであり、確実に磁気散乱が分離されているのか再検討の余地を残している。また、CeIrSi₃ に関してはこれまでに中性子実験によって結晶場励起を直接観測した報告は無い。

そこで我々は、J-PARC 内の高分解能チョッパー分光器(HRC, BL-12)を用いて中性子非弾性散乱実験を行い、非磁性参照物質 LaRhSi₃, LaIrSi₃ のフォノンを差し引くことで CeRhSi₃ と CeIrSi₃ の結晶場励起を観測した。発表では中性子実験の結果を示し、この系の結晶場準位についてまとめを行い、物性発現の違いについて議論する。

Y₃Fe₅O₁₂ の八面体サイトおよび四面体サイトを占有する Fe³⁺ の少数スピンの電子密度分布 Minority spin density distribution of Fe³⁺ at octahedral and tetrahedral sites in Y₃Fe₅O₁₂

坂倉輝俊¹、山本孟¹、岸本俊二²、南部 雄亮³、木村宏之¹

1 東北大多元研、2 KEK-IMSS、3 東北大金研

イットリウム鉄ガーネット Y₃Fe₅O₁₂ は空間群 *Ia-3d* に属し、 $T_C=560\text{K}$ のフェリ磁性体である。非磁性の Y³⁺ は 24c 席を占め、磁性を担う Fe³⁺ は八面体サイトの 16a 席(Fe(oct))と四面体サイトの 24d 席(Fe(tet))を占有する。96h 席の O²⁻ は 4 配位であり、2 個の Y³⁺ と Fe(oct)、および Fe(tet)が配位する。Fe(oct)と Fe(tet)の磁気モーメントは主としてハイスピン配列の (3d)⁵ が担うが、超交換相互作用による、O²⁻ からの逆向きスピンの寄与も僅かに含まれる。ハイスピン配列の (3d)⁵ は球対称な密度分布を持つことから、O²⁻ から移動してきた少数スピンは、Fe(oct)と Fe(tet)の両サイトにおいて、電子密度分布の異方性を担う筈である。この考えに基づき、XRD 測定で、各 Fe 席における少数スピンの密度分布の観測を試みた。

計測は PF-BL14A の 4 軸回折計を用い、110K で行った。系統誤差の主要因となる多重回折はこれを回避する事により抑えた。また、高い統計精度を実現するために、APD 検出器を用いた。得られた少数スピンの電子密度を図 1 に示す。図 1 は、球対称なイオンモデルで Y³⁺、Fe⁵⁺、および O²⁻ の散乱因子を構築して解析した後の差フーリエ合成図であり、実測と解析モデルとの差分の電子密度に対応する。故に、少数スピンの電子密度が選択的に抽出されている。図 1 より、少数スピンは、Fe(oct)では e_g 軌道を占有し、Fe(tet)では t_{2g} を占有している事が確認できる。これらは共に、O²⁻ とのクーロン相互作用のみを考える場合にはエネルギーの高い軌道であるが、O²⁻ の作る sp³ 軌道との間の共有結合に由来する電子と考える場合には、寧ろ電荷の移動が許容される対称性を持つ。故に、超交換相互作用を担う電子の密度分布として理に適っていた。

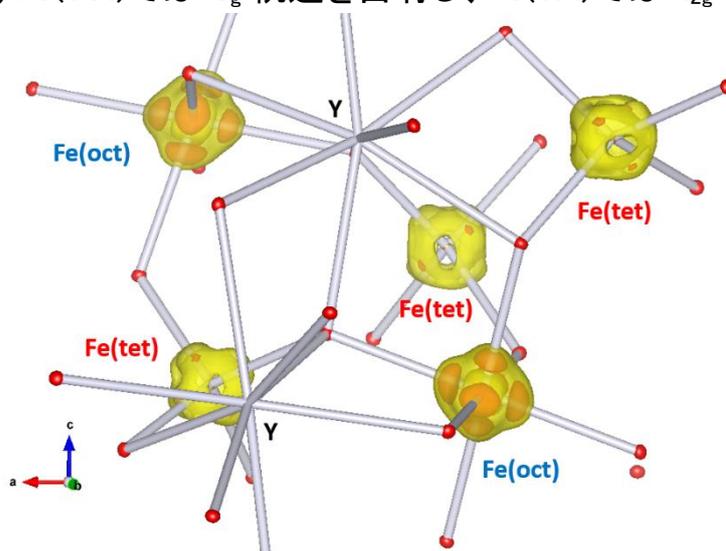


図1 球対称イオンモデルで解析後の残差電子密度等数値面は+0.52eÅ⁻³(赤)、および+0.38eÅ⁻³(黄)

反転対称性の破れた $Ce_5Ru_3Al_2$ の構造相転移と磁性 Structural phase transition and antiferromagnetic ordering in noncentrosymmetric $Ce_5Ru_3Al_2$

奥山大輔¹, 牧野晃也¹, 佐賀山基², 佐藤卓¹
1 東北大多元研, 2 高エネ機構

希土類を含む三元合金 $Re_5Ru_3Al_2$ ($Re = La, Ce, Pr$) は、空間反転対称性の破れた結晶構造が報告されている[1]。我々は空間群が $I2_13$ である $Pr_5Ru_3Al_2$ を合成し、 $T_C \sim 4$ K で反強磁性転移を観測した。中性子粉末回折実験により、転移温度以下では Pr イオンの磁気モーメントが Block helical 構造を形成し、更に中性子回折の干渉項を使い helical 磁気構造の helicity は結晶の chirality と結合していることを明らかにした[2, 3]。一方、 Re が Ce である $Ce_5Ru_3Al_2$ は、室温での空間群は $R3$ であることが報告されているのみである[1]。我々は $Ce_5Ru_3Al_2$ の結晶構造と、低温で出現が予想される磁性を明らかにすべく研究を行った。

粉末放射光回折実験は KEK-PF BL8A で行った。また、 $Gd_3Ga_5O_{12}$ ガーネットを断熱消磁して冷却する

Tiny adiabatic-demagnetization refrigerator(T-ADR)を用い[4]、SQUID 磁束計で 1 K 以下の磁化測定を行なった。図 1(a) に $Ce_5Ru_3Al_2$ の回折線の温度変化を示す。室温より低温では先行研究と同じ空間群 $R3$ で説明できるが、350 K 付近に構造相転移が観測され、それより高温では $La_5Ru_3Al_2$ や $Pr_5Ru_3Al_2$ と同じ $I2_13$ 空間群でよく説明できた。また、低温の磁化測定により、0.9 K 付近に反強磁性的な変化が観測された。当日はこれらの結果を議論する。

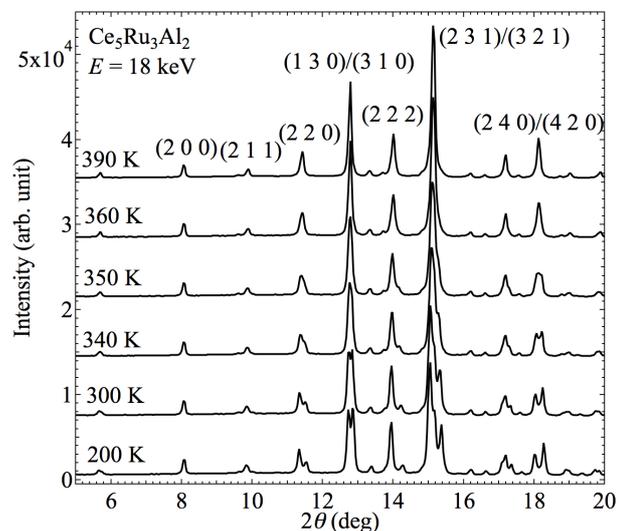


図 1: $Ce_5Ru_3Al_2$ の粉末回折線の温度変化。括弧内の指数は $I2_13$ で指数付したものを示す。

[1] E. V. Murashova et al., Mater. Res. Bull. 45, 993 (2010). [2] K. Makino, D. Okuyama, M. Avdeev, and T.J. Sato, J. Phys. Soc. Jpn. 85, 073705 (2016). [3] D. Okuyama, K. Makino, M. Avdeev, K. Ohishi, K. Yamauchi, T. Oguchi, and T. J. Sato, Acta Crystallogr. Sect. A 73, C1343 (2017). [4] T. J. Sato, D. Okuyama, and H. Kimura, Rev. Sci. Instrum. 87, 123905 (2016).

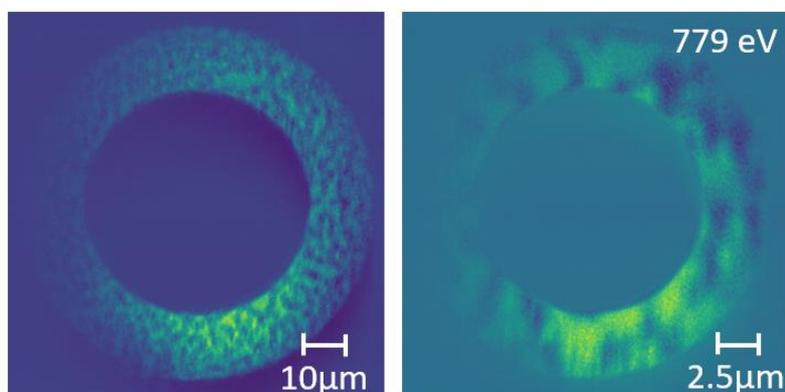
マルチスケール軟 X 線回折顕微鏡による 磁気ドメインの観測 Magnetic domain observed by multi-scale soft x-ray diffraction microscope

中尾裕則¹、石井祐太²、小塚裕介³、山崎裕一³

¹KEK 物構研、²東北大、³NIMS

磁気抵抗効果などの巨大応答現象ではドメイン構造の存在が報告され、単位胞より広がったメソスコピックな構造の観測の重要性が指摘されてきた。これまでに我々は、軟 X 線領域で X 線のコヒーレンスが PF でも利用できることを見出すとともに、メソスコピックな磁気テクスチャのコヒーレント X 線回折イメージング(CDI)に成功した [1]。しかしながら、この CDI 法による実空間イメージングは、高空間分解能であるものの観測できる視野には制限があり、様々な空間スケールを持つ構造を捉えることは容易ではない。

最近 我々は、フレネルゾーンプレート(FZP)を利用することで、(1)低空間分解能だが広い視野の実空間イメージが解析なしで取得できること。(2) FZP の焦点・試料位置をパラメータとして視野・拡大率が可変となること。(3)実空間イメージには回折の寄与があるものの解析により CDI 並の空間分解能が得られること。に気が付いた。特に、簡便に実空間情報が取得でき、注目箇所を拡大し撮像できるメリットは特筆すべき点である。そこで本手法に加え、高空間分解能 CDI が測定可能なマルチスケール軟 X 線回折顕微鏡の開発・立上を進めてきた。その結果、試料走査なしに 1 回の撮像で磁気ドメインの実空間イメージが取得できること、簡単に拡大率を変えられることを実証した(図)。本顕微鏡は、様々な空間スケールの構造を簡便に観測でき、外場に対する系の応答であるダイナミクス・カイネティクス観測を通じて、物性の起源となるメソスコピックな構造を解明する手法として発展することを期待している。



図：磁性薄膜
[Pt(3nm)Co(1nm)Ta(2nm)]₅
の磁気ドメインの2種類の
視野での観測結果。

[1] V. Ukleev et al., Quantum Beam Sci. **2**, 3 (2018); V. Ukleev et al.: Phys. Rev. B **99**, 144408 (2019); C. Tabata et al., JPS Conf. Proc. **30**, 011194 (2020).

$S = 1/2$ 擬一次元反強磁性体 $\text{BaCu}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ の 中性子非弾性散乱 Inelastic Neutron scattering in $S = 1/2$ quasi-one-dimensional antiferromagnet $\text{BaCu}_2\text{Si}_2\text{O}_7$

東大物性研^A、高工研^B

岩崎 友優^A、浅井 晋一郎^A、伊藤 晋一^B、益田 隆嗣^{A,B}

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。 $\text{BaCu}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ は Cu^{2+} 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。また、鎖間相互作用のために、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、20 meV 以上のスペクトル研究の報告は存在しない。今回我々は J-PARC のチョッパー分光器 HRC を用い、3 K と 15 K の温度領域において、80 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。 $l = -1$ 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。スピノン励起の上限・下限曲線は、磁化率から見積もられた $J = 24.1$ meV とした場合の白破線によく説明された。そして、 $S = 1/2$ ハイゼンベルグ一次元反強磁性鎖の励起状態における近似式であるミュラー仮説との比較を行い、これに従って計算した中性子の動的構造因子は図 1 をよく再現していた^[2]。

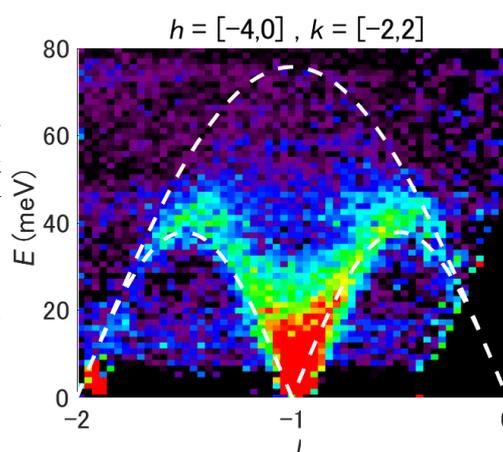


図 1 磁気スペクトル

さらに今回は、15 K での平衡状態における結果だけでなく、試料の両端に 7.5 K の温度差をつけた熱的な非平衡状態における中性子非弾性散乱の結果もあわせて報告する。

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

[2] G. Müller *et al.*, Phys. Rev. B **24**, 1429 (1981).

マグネタイトの蛍光X線ホログラフィー X-ray fluorescence holography on Magnetite

八方直久¹、細川伸也²、木村耕治³、林好一³
1 広島市大院情報、2 熊本大院先端、3 名工大院工

蛍光X線ホログラフィー(XFH)は、物質中、特定元素周辺の局所原子配列を、EXAFS(広域X線吸収微細構造法)よりも広範囲に3次元で見ることができる結晶構造解析手法である。様々な機能性材料の活性サイトを探ることにより、機能発現のメカニズム解明が期待され、最近は何数選択 XFH が試みられている。昨年度、マグネタイト Fe_3O_4 の何数選択 XFH について紹介した。しかし、1ホログラムからの原子像再生のため、不明瞭な部分が多かった。本講演では、 Fe_3O_4 の通常の XFH の結果について紹介する。

図(a)に回折実験によって得られた Fe_3O_4 の結晶構造を示す。正四面体配置を持つ A サイトには Fe^{2+} のみが、正八面体配置を持つ B サイトには Fe^{2+} と Fe^{3+} の双方が存在すると考えられている。図(b)に 11.5 keV で測定したホログラムを示す。また、図(c)に実験で得られたホログラムより再生した中心原子を含む(001)面の原子像を示す。7.5 keV から 17.5 keV を 0.5 keV 刻みで測定した21枚のホログラムからの再生像のため、虚像の少ない鮮明な原子像が得られた。XFH 実験の原理上、A サイトと B サイトの合成

が観測される。図の◎と○は、それぞれ回折実験から予想される A と B が重なるサイト、B サイトだけの周辺の Fe の位置を示す。図(d)に回折実験の結果より計算した再生像を示す。ほぼ全ての位置に原子像が見られるのに対して、実験では AB が重なる位置にだけ原子像が観測された。詳細は講演で報告する。

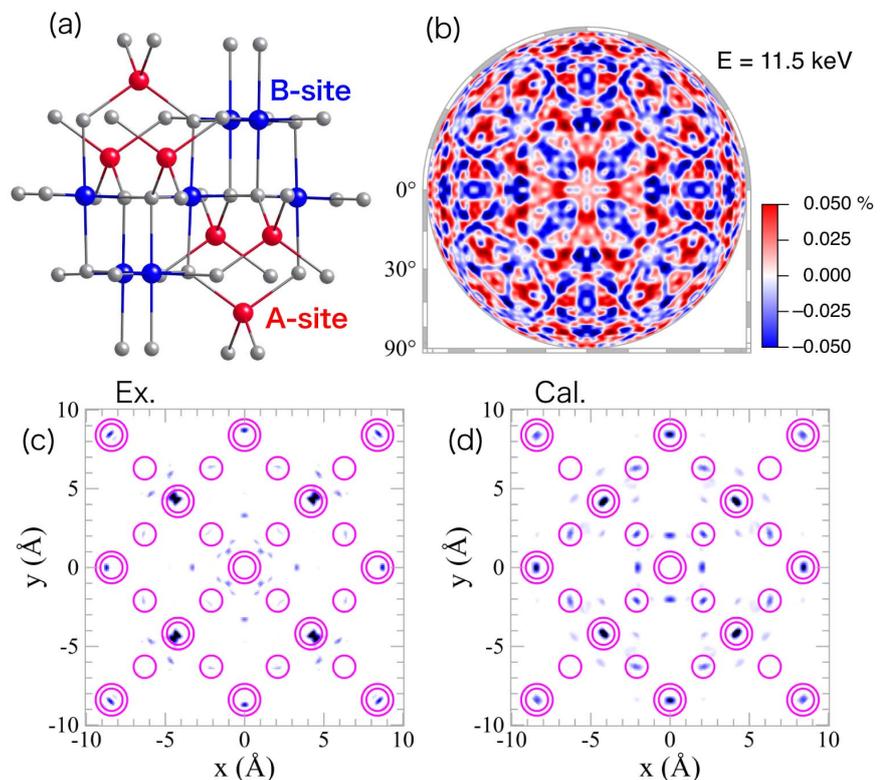


図 Fe_3O_4 の結晶構造(a)、ホログラム(b)、再生原子像: 実験(c)、計算(d)

クロミック物質 CoMoO_4 の不整合-整合磁気秩序相転移 Incommensurate-Commensurate Magnetic Phase transition in Chromic Material CoMoO_4

岩佐和晃¹、星川晃範¹、松川健¹、石垣徹¹、
浅野貴行²、稲垣祐次³、河江達也³

1 茨城大フロンティアセ、2 福井大院工、3 九大院工

CoMoO_4 は、触媒[1]やキャパシタ電極材料[2]への応用が報告されているとともに、温度や圧力に依存して色調が変化するクロミック材料としても注目されている[3]。このクロミック現象は、室温をまたぐ大きな温度ヒステリシスを示す一次構造相転移(低温 α 相、高温 β 相)による発光機能の変化とされる。また 6 K と 12 K での磁気相転移が見いだされ、最低温度相での Co の磁気モーメントによる整合反強磁気秩序が報告されていた [4]。しかし中間相の磁気構造、低温相結晶構造との対応、さらに最近に明らかにされた多段磁化過程[5]との関係は不明である。

本研究にて新たに合成された CoMoO_4 粉末試料の中性子回折実験を J-PARC MLF BL20 iMATERIA で行い、図に示す回折パターンの温度依存性を得た。20 K 以下の測定温度領域では α 相が主要であるが、わずかながら β 相も残存しており、一次構造相転移のヒステリシスの低温側が 233 K までとする先行研究[3]の結果よりも低温まで両相が共存している。12 K 以下で α 相での非整合磁気秩序を示す回折ピークが成長し、6 K で整合波数ベクトル(1/2, 0, 1/2)にロックインすることを見出した。また 10 K 以下で β 相での整合磁気秩序(0, 0, 1/2)が観測された。これら整合-非整合磁気相転移を含む逐次相転移は先行研究[4]では報告されておらず、かつそこで提案された最低温度での整合反強磁気構造モデルは実験結果を説明できない。以上の結果をもとに新たな磁気構造のモデルを提案し、多段磁化過程などとの関係を報告する。

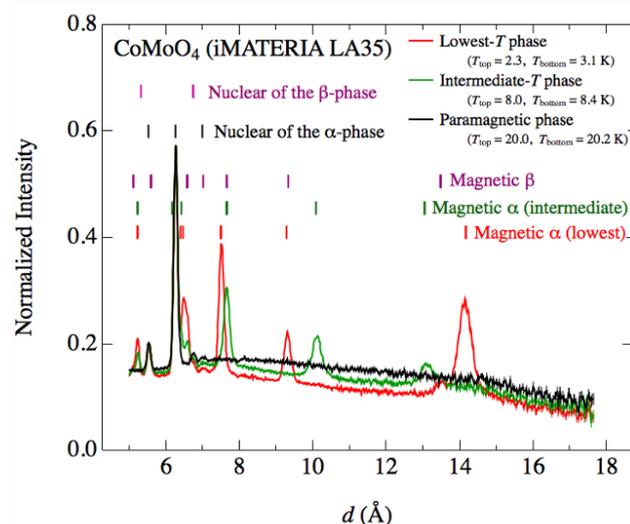
[1] R. A. Ross and M. R. Jeanes, Ind. Eng. Chem., Prod. Res. Develop., 13, 102 (1974).

[2] Y. Chen et al., Nanoscale 7, 15159 (2015).

[3] L. C. Robertson et al., Inorg. Chem. 50, 2878 (2011).

[4] H. Ehrenberg et al., J. Magn. Magn. Mater. 135, 335 (1994).

[5] 浅野貴行ほか, 日本物理学会 2019 年秋季大会, 10aPSA-19.



μ^+ SR で見る BaVSe₃ の強磁性構造 μ^+ SR study on ferromagnetic BaVSe₃

杉山 純¹、太田寛人²、中村裕之²、髭本 亘³、Daniel Andreica⁴、
Ola K. Forslund⁵、Elisabetta Nocerino⁵、Martin Mansson⁵、Yasmine Sassa⁶、
Rustem Khasanov⁷
CROSS¹、京都大学²、原研先端研³、Babes-Bolyai Univ.⁴、KTH⁵、
Chalmers Univ.⁶、PSI⁷

【目的】BaVSe₃ は BaVS₃ と同じ結晶構造で $S=1/2$ の 2 次元 3 角格子を組む
遍歴電子磁性体である。常圧下では 43 K ($=T_C$) で強磁性相に転移する。抵抗
率測定により高圧下の T_C が調べられたが、顕著な圧力依存性は見出されて
いない。そこで、局所内部磁場に敏感な正ミュオンスピン回転緩和(μ^+ SR)測定
で、常圧と高圧下の磁性を調べる。

【実験】固相反応法で合成した BaVSe₃ 粉末を測定に用いた。常圧と高圧
 μ^+ SR スペクトルを PSI(スイス)で測定した。測定温度範囲は 1.6–70 K、圧力範
囲は 0.1 MPa–2.3 GPa だった。

【結果】図 1 に常圧・1.6 K で測定した零磁場
 μ^+ SR スペクトルを示す。強磁性磁気秩序の形
成に伴う明瞭な歳差回転信号が観測された。
周波数スペクトルの解析から、格子内に磁気
的に非等価な 2 つのミュオン位置が存在する
ことが明らかとなった。DFT 計算により予測
したミュオン位置とミュオン位置での局所ス
ピン密度を用いて内部磁場を解析した結果、強
磁性相の V モーメントは c 軸方向に強磁性、
 a 軸方向に反強磁性配列し、1.6 K での V モー
メントは、(0.28, 0, 0.87) μ_B と見積もられた。
高圧下の弱横磁場 μ^+ SR 測定で決めた T_C は、
圧力とともに僅かに減少し、1.6 GPa 以上では
上昇した。1 次元強磁性相互作用と 2 次元反
強磁性相互作用の競合の結果と考えられる。
これは同一結晶構造の BaVS₃ が、常圧下で
は低温で格子非整合の反強磁性相に、高圧
下では低温まで常磁性金属状態を維持する
状況とは大きく異なった。

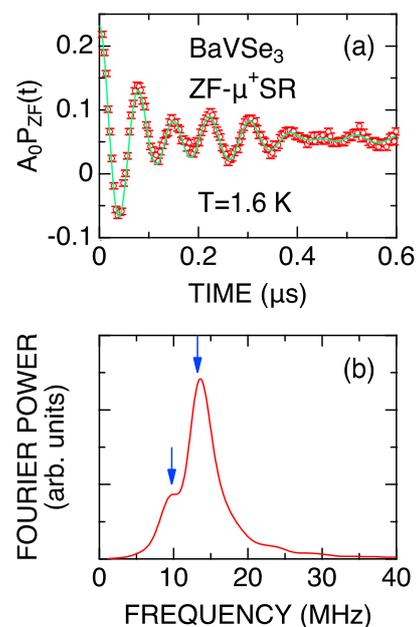


図 1 (a)常圧 1.6 K で測定した BaVSe₃ の零磁場 μ^+ SR ス
ペクトルと(b)そのフーリエ変
換スペクトル。

量子臨界点近傍の三角格子反強磁性体 RbFeCl₃における混成マグノンの観測 Observation of Hybridized Magnon on Triangular Lattice Antiferromagnet RbFeCl₃

長谷川舜介¹、浅井晋一郎¹、松本正茂²、伊藤晋一³、益田隆嗣^{1,3}

1 東大物性研、2 静岡大理、3 KEK

量子臨界点近傍における磁性体では、準粒子励起として秩序変数の位相の揺らぎとともに、強い量子揺らぎにより秩序変数の振幅の揺らぎも観測される。結晶場とスピン軌道相互作用により擬スピン $S = 1$ で記述される磁性体 $A\text{FeCl}_3$ ($A = \text{Rb}, \text{Cs}$)の軌道状態は、容易面型の磁気異方性により一重項状態と二重項状態に分裂する。また ab 面内で形成される三角格子には幾何学的フラストレーションが存在する。イオン半径の大きい $A = \text{Cs}$ の場合は相互作用が小さいため、基底状態は非磁性な一重項状態であり、圧力を 0.9GPa 程度以上印加するとスピンの向きが ab 面内を向いた 120 度構造に量子相転移する[1]。さらに、この非共線的な磁気構造に由来した位相揺らぎと振幅揺らぎの混成モードの存在が CsFeCl_3 の圧力下非弾性中性子散乱実験にて報告された[2]。一方、 Cs をよりイオン半径の小さい Rb に置換することで化学的圧力を加えた RbFeCl_3 では常圧、1.8K 以下で 120 度構造を示す[3]。そのため、 RbFeCl_3 は量子臨界点近傍の磁気秩序相側に位置する物質といえる。よって、 RbFeCl_3 でも CsFeCl_3 と同様に混成モードの観測が予想される。

我々は 120 度構造での RbFeCl_3 の中性子スペクトルを J-PARC MLF の BL-12/HRC にて測定した。その結果、 CsFeCl_3 同様、ギャップレスな励起とギャップを持つ励起が 2meV 以下に観測された。拡張スピン波理論によりこれらはスピンの位相揺らぎと振幅揺らぎが混成したモードであることがわかった。ポスターでは観測された磁気励起及び、解析の詳細について発表する。

[1] S. Hayashida *et al.*, Phys. Rev. B **97**, 140405 (2018).

[2] S. Hayashida *et al.*, Sci. Adv. **5**, eaaw5639 (2019).

[3] H. Yoshizawa *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **49**, 144 (1980).

**μSR で見える Nd₂Ru₂O₇ の磁気秩序と
スピンダイナミクス**
**Magnetic Ordering and Spin Dynamic of Nd₂Ru₂O₇
Investigated by μSR**

Utami Widyaiswari^{1,2}, Hideaki Sakai³, Noriaki Hanasaki³, Budhy Kurniawan²,
Isao Watanabe^{1,2}

1 理研仁科センター, 2 Universitas Indonesia, 3 Osaka University

Pyrochlore systems have the general formula $A_2B_2O_7$, with A and B are trivalent rare-earth metal and tetravalent transition metal ions, respectively. The pyrochlore structure is formed by two corner-sharing tetrahedra lattices of A and B sites that interpenetrate each other. The tetrahedra lattice generates the magnetic frustration that can lead to various novel properties, such as spin-ice, spin-glass, and spin liquid. The ruthenium pyrochlores, $A_2Ru_2O_7$, have been studied extensively over the last few decades. Early studies of ruthenium pyrochlores showed that there was the λ -type jump in the specific heat indicating the second-order magnetic transition of Ru spins. The increase in the ionic radius of A increases the magnetic transition temperature from 80 K ($A = Yb$) to 160 K ($A = Pr$). In $Nd_2Ru_2O_7$, Nd moments are expected to order at lower temperatures as observed in $Nd_2Ir_2O_7$ which show the ordering of Nd moments below 10 K. In preceding studies on $Nd_2Ru_2O_7$, three anomalies of the magnetic susceptibility were observed around 146 K, 21 K, and 1.8 K. The origin of 146 K and 1.8 K anomalies were suggested to be due to the Ru and Nd orderings, respectively, while the anomaly at 21 K is still debatable. Accordingly, we investigated those anomalies by using the muon spin relaxation (μ SR). We observed a sharp decrease in the initial asymmetry at 145 K of the zero-field μ SR time spectra accompanied by the critical slowing down behavior of the spin fluctuation indicating the appearance of a magnetic ordering of Ru moments. Furthermore, we also observed an unusual partial recovery of the initial asymmetry around 30 K accompanied by the slowing down behavior of the spin fluctuations. The dynamic property of the Nd moments is expected to exhibit anomalous behavior in the magnetically ordered state.

中性子非弾性散乱による $Tb_3Fe_5O_{12}$ の磁気励起測定とマグノン極性

Magnetic excitations measured by inelastic neutron scattering and magnon polarizations in $Tb_3Fe_5O_{12}$

川本 陽¹, 蒲沢和也², 池内和彦², 吉川 貴史³
齊藤英治^{3,4}, 藤田 全基⁵, 加倉井和久², 南部 雄亮⁵

1 東北大院理, 2 CROSS, 3 東大物工, 4 原研先端研 5 東北大金研

スピントロニクス分野において、スピン流生成の代表的な手段の一つとしてスピンゼーベック効果 (SSE) が利用されている。温度勾配を印加した強磁性やフェリ磁性の絶縁体内部ではマグノンスピン流が誘起され、常磁性金属との界面で伝導電子スピン流に変換される。この伝導電子スピン流が、金属内におけるスピン軌道相互作用を起源とする逆スピンホール効果を経て SSE 信号として電気的に検出される。

本研究では、 $Gd_3Fe_5O_{12}$ (GdIG)におけるSSE信号の温度変化が示す二度の符号反転に着目した。高温側の符号反転は磁気補償温度点を境とした各副格子磁化の再配列によって理解できるものの、低温側の符号反転は磁気構造だけでは説明できず、磁化の歳差運動の回転方向(マグノン極性[2])を含めたマグノンの機構が寄与していると考えられる[1]。実際、スピン流デバイスの基盤物質である $Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG)においては、偏極中性子非弾性散乱によって音響モードと光学モードのマグノン極性が逆符号であることが示された。この結果から、YIGにおいてキュリー点より遥か低温から生じるSSE信号の抑制は、音響モードと逆方向のスピン流を輸送する光学モードの熱活性によって説明できる事がわかった[2]。

GdIG におけるマグノンの振る舞いを極性も含めて実験的に明らかにするためには、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。そこで本研究では、SSE 信号同様に二度の符号反転を示す $Tb_3Fe_5O_{12}$ (TbIG)を代替物質として、マグノンの研究を進めてきた。

本研究はこれまで中性子非弾性散乱の測定により得られたマグノンの分散関係を基に、線形スピン波計算によるフィッティングから各磁性サイト間の交換相互作用を解析的に求めた。本発表では、上記解析の結果得られた各モードのマグノン極性の計算結果を示し、光学モードの温度依存性と合わせて SSE 信号の振る舞いを議論する。

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

[2] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **125**, 027201 (2020).

ハニカム量子磁性体 α -RuCl₃の低エネルギー磁気励起の 精密測定

Detailed Measurement on Low-Energy Magnetic Excitations in Honeycomb-Lattice Quantum Magnet α -RuCl₃

中島健次¹、児島佑樹²、田中秀数²

1 J-PARCセンター、2 東京工業大学

2次元ハニカム格子上に配置された $S=1/2$ の量子スピンの3つの非等価なイジング型相互作用によって結ばれるキタエフ模型[1]は、基底状態が量子スピン液体となりなおかつ厳密解を持つ唯一の模型である。スピン軌道相互作用が強い d 電子系でこのキタエフ模型を実現する可能性があることが示されたことから[2]、理論、実験共に多くの研究がなされてきた。中でもハニカム格子量子磁性体 α -RuCl₃は、中性子散乱実験による磁気励起の観測とキタエフ模型を元にした理論との比較が多くなされる物質である[3]。一方で、 α -RuCl₃によるキタエフ模型の検証には、いくつかの議論があった。一つは、 d 電子系における強いスピン軌道相互作用で実現したキタエフ物質では、キタエフ型のイジング相互作用の他、ハイゼンベルグ型の相互作用が混在し、両者の分離が難しい。また、試料についても、質の良い大型単結晶試料を育成することが難しく、試料とその取り扱いによって2次元面の積層のスタッキングフォールトが起こる。これらがデータの質を低下させ、この系における議論を困難にさせてきた。今回、我々は、 α -RuCl₃の単結晶試料において、スタッキングフォールトのない純良な単結晶試料(270mg)を得て、J-PARCの中性子分光器の大強度、高分解能を活かし、磁気秩序状態における磁気励起の特に低エネルギー領域における精密測定を行うことを試みた。これまで十分な観測が行われていない基底状態におけるスピン波を精度良く観測することで、系の相互作用、特にハイゼンベルグ項のパラメーターを明らかにし、それによってこの系全体のキタエフ系としての議論を進めることを目指した。実験では、スピン波の詳細な様相をある程度精密に捉えることに成功した。詳細は、当日発表する。

参考文献

[1] A. Kitaev, Ann. Phys. **321**, 2 (2006)

[2] G. Jackeli & G. Khaliullin, PRL **102**, 017205 (2009)

[3] 例えばA. Banerjee *et al.*, Nature Materials **15**, 733 (2016), K. Ran *et al.*, PRL **118**, 107203 (2017), A. Banerjee *et al.*, Science **356**, 1055 (2017), S.-H. Do *et al.*, Nature Phys. **13**, 1079 (2017), A. Banerjee *et al.*, npj Quantum Materials **8**, 3 (2018)など

ミュオンナイトシフトによる $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ のミュオンサイトの研究 Study for the muon site of $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ by muon Knight shift

宮崎正範、川股隆行¹、足立匡²、小池洋二¹、平石雅俊³、岡部博孝^{3,4}、
幸田章宏^{3,4}、小嶋健児⁵、門野良典^{3,4}、戎修二
室工大、東北大院工¹、上智大理工²、KEK 物構研³、総研大⁴、TRIUMF⁵

μSR おいて、ミュオンサイトが問題となることがあるが $\text{La}_2\text{CuO}_{4+\delta}$ はその典型例の1つである。本物質では、これまで多くの μSR 実験から様々なミュオンサイトが提唱されてきた。また、DFT 計算などを用いた理論計算からも提唱されている[1-3]。しかし、数年前に高統計による μSR 実験からこれまで見逃されてきた大きな内部磁場成分が観測された[3,4]が、今のところ、これを説明するミュオンサイトを実験的手法から決定するまでには至っていない。そこで、いくつかの方位で観測したミュオンナイトシフトおよび、ミュオン準位交差共鳴法 ($\mu\text{-LCR}$) から実験的にミュオンサイトを決定することを試みた。

ミュオンナイトシフトの実験は、TRIUMF 研究所の Nu-Time 分光器で行なった。磁化測定での反強磁性転移温度 $T_N \sim 274$ K の試料を用いて、300 K ($> T_N$) の常磁性状態、6 T の磁場条件下で、[100] (//a 軸)、[010] (//b 軸)、[001] (//c 軸)、[011] および [101] (//c 軸から a 軸、b 軸方向にそれぞれ 45°) に、それぞれ磁場を印加しミュオンナイトシフト測定を行なった。[100] (//a 軸)、[010] (//b 軸)、[001] (//c 軸) の測定では、2つのピークが観測された。これは、ユニットセル内に結晶学的に異なる2つのミュオンサイトが存在する可能性が考えられるが、ゼロ磁場 μSR の温度依存性実験から ~ 230 K- T_N の間では、100%の成分が1つの周波数成分しか示していないことからこの可能性は否定される[4]。その他の可能性として、低温において一部の酸素サイト (~ 2 割程度) で磁気モーメントの発生が示唆されているため、その酸素スピン (常磁性) による寄与が考えられる。この場合、結晶学的ミュオンサイトは1つであるが、磁氣的に2つの異なる内部磁場 (ナイトシフト) を観測するサイトがあるということになる。講演では、ミュオンナイトシフトの結果を中心にミュオンサイトの検討をおこなっていきたいと考えている。

[1] B. Adiperdona *et. al.*, AIP Conf. Proc. **1554** (2013) 214.

[2] M. R. Ramadhan *et. al.*, Key. Eng. Mat. **860**, 154 (2020).

[3] B. Adiperdona *et. al.*, RIKEN Accel. Prog. Rep. **47**, 248 (2014).

[4] M. Miyazaki, *et. al.*, KEK-MSL Report 2017 (2018) 101-102.

ブリージングパイロクロア格子系 $Ba_3Yb_2Zn_5O_{11}$ の ミュオンスピン緩和実験

Muon spin relaxation on Breathing Pyrochlore Lattice $Ba_3Yb_2Zn_5O_{11}$

東大物性研^A、高工研^B、東大新領域^C

菊地 帆高^A、浅井 晋一郎^A、幸田 章宏^B、木村 健太^C、益田 隆嗣^{A,B}

フラストレーション系において、隣接する正四面体が交替的なブリージングパイロクロア格子は実験理論両面から注目を集めている。希土類化合物 $Ba_3Yb_2Zn_5O_{11}$ [1]は、 $Yb^{3+}(4f^{13}, J=7/2)$ 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として報告された[1]。中性子非弾性散乱研究から本物質が $S=1/2$ 正四面体クラスタモデル物質であること、大きな DM 相互作用を有することが明らかとなった[2]。さらに最新の報告では、回折実験では検出困難な微小な四面体歪みによる基底二重項の分裂と、微小な四面体間相互作用の存在による励起線幅の広がりが確認された[3]。DM 相互作用が存在するブリージングパイロクロア反強磁性体では、低温で部分ダイマー秩序やカイラル秩序の存在が理論的に予想されており[4]、詳細な実験研究が待たれている。

今回我々は、低温磁気相の知見を得るために希釈冷凍機温度における $Ba_3Yb_2Zn_5O_{11}$ のミュオンスピン緩和実験を行った。その結果、88 mKにおいてアシンメトリーの振動は観測されなかった。このことは、極低温において磁気秩序が存在しないことを意味する。アシンメトリーは2種類の指数関数の和でよくフィッティングされた。ここから、成分比、緩和時間、内部磁場の磁場・温度依存性の見積もりを行った。詳細は当日議論する。

[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. Kikuchi *et al.*, 日本物理学会 2019 年春の年会, 16pF304-4.

[4] H. Tsunetsugu, Phys. Rev. B **65**, 024415 (2001), V. N. Kotov *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 014421 (2005).

ソーダライト中のアルカリ金属クラスタの ミュオンナイトシフト

Muon Knight shift study of alkali-metal clusters in sodalite

馬場洋行¹、中野岳仁¹、大石一城²、Yipeng Cai^{3,4}、
Sungwon Yoon^{3,5}、小嶋健児^{3,4}

¹茨大理工、²CROSS、³TRIUMF-CMMS、
⁴ブリティッシュコロンビア大、⁵チュンアン大

ゼオライトの一種であるソーダライトは内径 7 Å の β ケージを持ち体心立方構造で配列している(図 1(a))。ソーダライト結晶にアルカリ金属を吸蔵させることによりナノクラスターを周期配列させることができ、反強磁性および絶縁体金属転移が起こる。これらの現象は配列ナノ空間に閉じ込められた s 電子に起因する[1]。単一の不対電子を持つアルカリ金属クラスター(図 1(b))が全てにケージに形成されると反強磁性モット絶縁体となる。ネール温度は Na クラスタ、K クラスタ、K-Rb 合金クラスタの順に 50 K から 90 K まで系統的に上昇する。ネール温度以下での均一な局所磁場の存在がゼロ磁場 μ SR において観測され、重いアルカリ金属クラスターほどその値は高い[2]。電子スピンの数密度は各試料中で一定であることから、この系統的な内部磁場の上昇はミュオン-s 電子間のフェルミ接触相互作用の上昇に由来すると考えられてきた[2]。

TRIUMF の NuTime スペクトロメータを用いて 6 T での横磁場 μ SR 実験を行い、常磁性温度域のミュオンナイトシフトを調べた。シフトは顕著な温度依存性を示し、 K - χ プロットから超微細結合定数が正であり、重いアルカリ金属クラスターほど大きな値を持つことが明らかになった。これはフェルミ接触相互作用の系統的な上昇を裏付ける結果である。現在第一原理計算からミュオンの静止位置およびミュオンを含めた電子状態の調査を行なっている。これらの結果とともに、s 電子波動関数の空間的広がりや反強磁性相互作用の増強機構について議論を行う。

現在第一原理計算からミュオンの静止位置およびミュオンを含めた電子状態の調査を行なっている。これらの結果とともに、s 電子波動関数の空間的広がりや反強磁性相互作用の増強機構について議論を行う。

[1] T. Nakano and Y. Nozue, Adv. Phys.: X **2**, 254 (2017).

[2] T. Nakano et al., J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 073707 (2010).

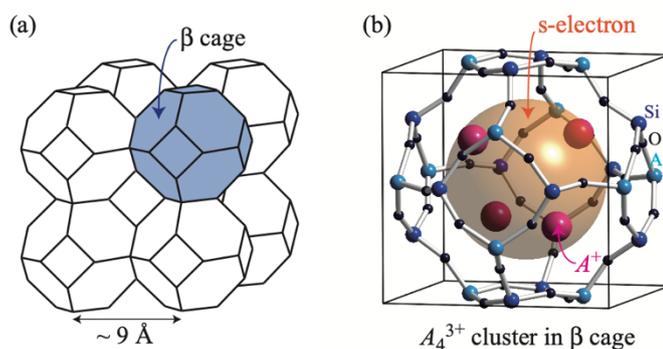


図1 (a) ソーダライトの結晶構造と (b) β ケージ中のアルカリ金属クラスター A_4^{3+} の模式図。

Vortex-induced phase transition in the two-dimensional triangular antiferromagnet: FeGa₂S₄

**Y. Tang¹, M. Kawamata¹, Y. Kawamoto¹, K. Nakajima², M. Fujita³,
and Y. Nambu³**

1 Graduate School of Science, Tohoku University,

2 J-PARC Center, JAEA,

3 Institute for Materials Research, Tohoku University.

It is believed that novel noncolinear magnetic states can appear in geometrically frustrated systems where conventional magnetic long-range orders are suppressed. As the easiest model of such systems, two-dimensional (2D) Heisenberg triangular antiferromagnets (HTAF) is predicted to host thermal fluctuated vortex configuration, Z_2 vortex [1]. Theoretical study reveals a transition induced by the pair annihilation of Z_2 vortices will happen at a finite temperature and yield finite dynamical susceptibility in the elastic channel at the wave-vector slightly displaced from the magnetic wave-vector position [2]. In this research, we focus on a model compound, FeGa₂S₄ ($S = 2$), with an anomaly at $T^* \approx 16$ K [3] possibly accounted for by the Z_2 vortex-induced transition.

Here we show our recent results of neutron scattering on low-temperature magnetism of FeGa₂S₄. FeGa₂S₄ single crystals are grown by the chemical vapor transport method and purified by sulfur-bath annealing to compensate for possible sulfur deficiency. Intensity maps on the horizontal [HK0] scattering plane are obtained from an inelastic neutron scattering experiment on BL14 AMATERAS in J-PARC. As a result, magnetic signals accounted for by a single incommensurate magnetic wave-vector, $\mathbf{q}_{\text{mag}} = (0.186(1), 0.186(1), 0)$ r.l.u. are explained by J_1 - J_2 - J_3 model. Temperature-dependence of the integrated intensity at a slightly off position from \mathbf{q}_{mag} shows a small hump above T^* in the quasi-elastic channel. Such tendency is consistent with the Z_2 theory.

[1] H. Kawamura and S. Miyashita, J. Phys. Soc. Jpn., **53**, 4138 (1984).

[2] T. Okubo *et al*, J. Phys. Soc. Jpn., **79**, 084706 (2010).

[3] S. Zhao *et al*, Phys. Rev. B., **86**, 064435 (2012).