



## 第4回三機関連携「量子複雑現象」研究会 講演集

2010年12月20日(月)：日本原子力研究開発機構  
システム計算科学センター 東京都台東区東上野

Proceedings of the 4<sup>th</sup> Workshop of "Quantum Complex Phenomena"  
under the NIMS-RIKEN-JAEA Cooperative Research Program  
on Quantum Beam Science and Technology

December 20, 2010, Center for Computational Science & e-Systems,  
Japan Atomic Energy Agency, Higashi-Ueno, Tokyo, Japan

---

(編) 社本 真一 樹神 克明  
(Eds.) Shin-ichi SHAMOTO and Katsuaki KODAMA

量子ビーム応用研究部門  
Quantum Beam Science Directorate

本レポートは独立行政法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<http://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

独立行政法人日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2 番地 4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:[ird-support@jaea.go.jp](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department,  
Japan Atomic Energy Agency  
2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:[ird-support@jaea.go.jp](mailto:ird-support@jaea.go.jp)

## 第4回三機関連携「量子複雑現象」研究会 講演集

2010年12月20日(月)：日本原子力研究開発機構  
システム計算科学センター 東京都台東区東上野

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門  
(編) 社本 真一 樹神 克明<sup>+</sup>

(2011年3月7日受理)

平成22年12月20日に日本原子力研究開発機構システム計算科学センターにおいて、第4回三機関連携「量子複雑現象」研究会が開催されました。本研究会は、平成18年12月20日に物質・材料研究機構、理化学研究所および日本原子力研究開発機構の三機関で締結された「量子ビームテクノロジーの先導的研究開発に関する研究協力協定」に基づいて、次世代機能材料開発に向けた量子複雑現象の解明を目的としたものであり、ちょうど4周年を記念する研究会となりました。この4年間の間に三機関の様相は変わっており、原子力機構では、高エネルギー加速器研究機構と共同で取り組んでいる大強度陽子加速器施設(J-PARC:Japan Proton Accelerator Research Complex)の物質・生命科学研究施設(MLF)のプロトントビームの出力が210kWに達し、23のビームラインの内の8台の装置が、外部利用者の利用できるユーザープログラムに入っています。このような状況を踏まえて、ここで改めてそれぞれの機関が有する特徴的な技術や装置、および優れた研究の紹介、さらにつれてこれまでの三機関での共同研究結果等について、今後の方向性を含めて、講演および議論していただきました。

本報告書は本研究会の講演要旨および講演で使用された発表資料を収録したものです。

---

原子力科学研究所（駐在）：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

<sup>+</sup>物質・材料科学研究ユニット

**Proceedings of the 4<sup>th</sup> Workshop of  
“Quantum Complex Phenomena”  
under the NIMS-RIKEN-JAEA Cooperative Research Program  
on Quantum Beam Science and Technology**

December 20, 2010, Center for Computational Science & e-Systems,  
Japan Atomic Energy Agency, Higashi-Ueno, Tokyo, Japan

(Eds.) Shin-ichi SHAMOTO and Katsuaki KODAMA<sup>+</sup>

Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received March 7, 2011)

The 4<sup>th</sup> workshop of the NIMS-RIKEN-JAEA Cooperative Research Program “Quantum Complex Phenomena” was held on December 20, 2010 at Center for Computational Science & e-Systems, Japan Atomic Energy Agency. This workshop is aimed to reveal the mechanism of quantum complex phenomena for the developments of next generation functional materials on the basis of “Joint Research Agreement for the Pioneering R&D with Quantum Beam Technology” concluded by NIMS, RIKEN and JAEA on December 20, 2006. This workshop day was the 4<sup>th</sup> anniversary of this Joint Research Agreement. Each institute has changed in these 4 years. As example, at Materials and Life Science Facility of J-PARC (Japan Proton Accelerator Research Complex) operated jointly by JAEA and KEK, proton beam power reached 210 kW as a steady state last November. Among 23 beamlines, 8 instruments are under operation for the user program.

Based on this circumstance, characteristic technologies, instruments, and distinguished researches of each institute are introduced and discussed in addition to research outcomes of this Joint Research Agreement including a future prospect of this research area.

This report includes abstracts and materials of the presentations in the workshop.

---

Keywords : NIMS-RIKEN-JAEA, Quantum Beam Technology

---

<sup>+</sup> Materials Science Research Division

## 目 次

1. はじめに .....	1
加倉井 和久 (原子力機構)	
2. ゼーベック効果とスピンゼーベック効果 .....	2
前川 祯通 (原子力機構)	
3. 5d遷移金属酸化物の電子構造のX線磁気散乱研究 .....	10
有馬 孝尚 (理研&東北大)	
4. 共鳴非弾性X線散乱によるSr <sub>2</sub> IrO <sub>4</sub> の電子励起 .....	20
石井 賢司 (原子力機構)	
5. パイロクロアIr酸化物における金属絶縁体転移、 磁性とZ <sub>2</sub> 及びU(1)トポロジーの理論 .....	33
小野田 繁樹 (理研)	
6. J-PARC中性子・ミュオン科学の展開 .....	47
新井 正敏 (原子力機構)	
7. 立方晶希土類化合物における多極子揺らぎの研究 .....	61
鈴木 博之 (物材機構)	
8. Yb系重い電子物質の量子臨界点における価数揺動の観測 .....	66
辻井 直人 (物材機構)	
9. 遍歴系4d5dパイロクロアの構造と物性 .....	76
山本 文子 (理研)	
10. 六方晶フェライトにおける磁場誘起電気分極と磁気構造 .....	84
田口 康二郎 (理研)	
11. 中性子と放射光X線によるマルチフェロイクスCuFeO <sub>2</sub> の研究 .....	101
寺田 典樹 (物材機構)	

12. Ga 置換した YMn <sup>4+</sup> (Mn <sub>1-x</sub> Ga <sub>x</sub> ) <sup>3+</sup> O <sub>5</sub> の磁気カイラリティと電気分極 .....	115
脇本 秀一 (原子力機構) 他	
13. 反強磁性トライマー物質 SrMn <sub>3</sub> P <sub>4</sub> O <sub>14</sub> の磁気構造と磁気励起 .....	126
長谷 正司 (物材機構)	
14. 最後に .....	137
社本 真一 (原子力機構)	
謝 辞 .....	146
付 錄 1 研究会プログラム .....	147
付 錄 2 研究会での様子 .....	148
付 錄 3 参加者リスト .....	149

## Contents

1.	Preface .....	1
	Kazuhisa KAKURAI (JAEA)	
2.	Seebeck Effect and Spin-Seebeck Effect .....	2
	Sadamichi MAEKAWA (JAEA)	
3.	Magnetic X-ray Study on Electronic Structure in 5d Transition Metal Oxide Compounds .....	10
	Taka-hisa ARIMA (RIKEN & Tohoku Univ.)	
4.	Electronic Excitation of $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ by Resonant Inelastic X-ray Scattering .....	20
	Kenji ISHII (JAEA)	
5.	Theory on Mott Transition, Magnetism, and $Z_2$ and U(1) Topology for Pyrochlore Iridates .....	33
	Shigeki ONODA (RIKEN)	
6.	Present Status of J-PARC/MLF (Materials Life Science Facility, JSNS, MUSE) .....	47
	Masatoshi ARAI (JAEA)	
7.	Study of Multipole Fluctuation in Cubic Rare Earth Compounds .....	61
	Hiroyuki SUZUKI (NIMS)	
8.	Observation of Valence Fluctuation in Quantum Critical Point of Yb Heavy Fermion System .....	66
	Naohito TUJII (RIKEN)	
9.	Crystal Structure and Physical Properties of Itinerant $4d,5d$ Pyrochlores, $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_6\text{O}'$ .....	76
	Ayako YAMAMOTO (RIKEN)	
10.	Magnetically Induced Polarization and the Magnetic Structure in Hexaferrites .....	84
	Yasujiro TAGUCHI (RIKEN)	

11. Study of a multiferroic CuFeO <sub>2</sub> by Neutron and Synchrotron X-ray .....	101
Noriki TERADA (NIMS)	
12. Polarization and Spin chirality in Ga-doped Y(Mn,Ga) <sub>2</sub> O <sub>5</sub> .....	115
Shuichi WAKIMOTO (JAEA) et al.	
13. Magnetic Structure and Magnetic Excitation of Anti-ferromagnetic Trimer Material SrMn <sub>3</sub> P <sub>4</sub> O <sub>14</sub> .....	126
Masashi HASE (NIMS)	
14. Closing remark .....	137
Shin-ichi SHAMOTO (JAEA)	
Acknowledgments .....	146
Appendix1 Workshop Program .....	147
Appendix2 Workshop Photos .....	148
Appendix3 Participant List .....	149

## 1. はじめに

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門  
加倉井 和久

平成18年12月20日に「量子ビームテクノロジーの先導的研究開発による我が国の科学技術・学術及び産業の振興に資する」ことを目的とする研究協力協定が物材機構、理研、原子力機構の間に結ばれ、その一つのテーマとして「次世代機能材料開発に向けた量子複雑現象の解明」に関する三機関連携協力がスタートして4年になります。この度第4回 三機関連携「量子複雑現象」研究会が4年前の岸物材機構理事長、野依理研理事長、殿塚原子力機構理事長による調印式と同月日に開催されたのは、勿論偶然ではあると思いますが、この連携体制の本質を理解するにあたり象徴的であると考えます。それは三理事長の調印によるトップダウンでスタートしたこの三機関連携協力が、正確に4年後のこの研究会で発表される成果をみるとわかりますように、今やボットムアップの連携協力を基盤とする協力体制に発展したことが明らかになるからです。当初のトップダウンの性格は毎年持ち回りで開催される「研究協力協議会」において維持しつつ、高温超伝導、マルチフェロイックス等の様々なグリーンイノベーション等に直結する新機能材料の探索、評価、解明、高度化が自発的に研究現場の連携で実施され、成果をあげていると言えます。活発な成果および論文発表、そしてJST補助金獲得等がそれを裏付けています。これは物材機構、理研、原子力機構の物質材料設計および開発技術、巨視的および微視的計測技術、量子ビーム応用技術等におけるそれぞれの機関の力を結集して、様々な施設を横断的に利用することにより、量子複雑現象解明という基礎・基盤研究から次世代機能材料開発という応用研究への「橋がけ」が実現できる可能性を明らかにできたと言えます。

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門といたしましては、我々が目指す量子ビームプラットフォームの構築を通して、今後ますますこの三機関連携の取り組みを盛り上げていきたいと考えております。

そしてこの量子ビームテクノロジーを軸とした三機関によるアプローチが新機能材料開発サイクルにとどまらず、広い意味での量子ビーム生命・物質科学開発サイクルの構築につながり、基礎・基盤研究から応用への「橋がけ」のモデルケースとなることを期待しております。

三機関連携上野研究会  
(2010年12月20日)

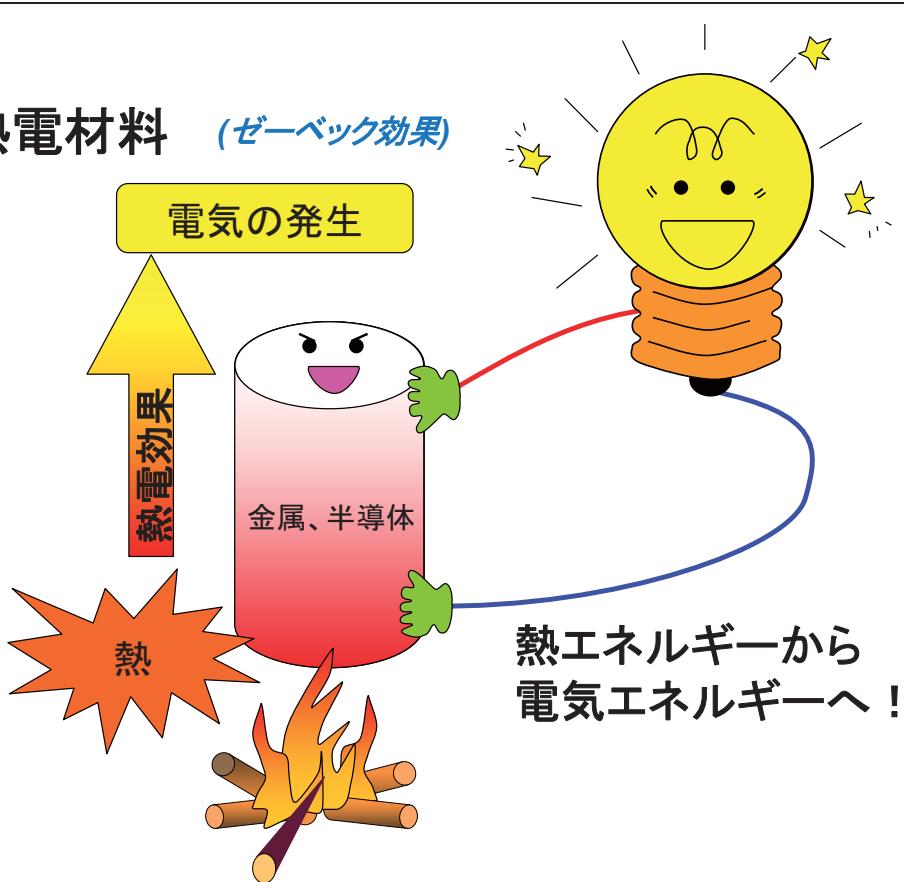
## 2. ゼーベック効果とスピンゼーベック効果

前川禎通  
日本原子力研究開発機構  
先端基礎研究センター  
東海村

1. 热電変換材料(ゼーベック効果)、
2. スピンゼーベック効果。

### 熱電材料

(ゼーベック効果)



## 熱電変換材料

熱→電気



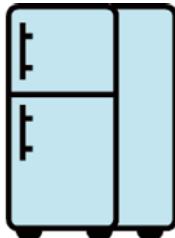
ゴミ焼却場



自動車の排熱

トヨタ,  
BMW, etc.

電気→熱



冷蔵庫

熱電変換材料の利点：  
振動がない(動く部分がない)  
小型化が容易  
環境にやさしい



開発新素材利用の実用化イメージ(核廃熱利用)

**原子炉、核廃棄物処理場の熱を電気に！**

原研(先端基礎研、計算センター、量子ビーム部門)

**The degeneracy induced by  
Spin and Orbital degrees of freedom**

$$Q = -\frac{k_B}{e} \ln \frac{g_e}{g_h} - \frac{k_B}{e} \ln \frac{x}{(1-x)}$$

degeneracy of  
 $\text{Co}^{3+}$  and  $\text{Co}^{4+}$

Charge

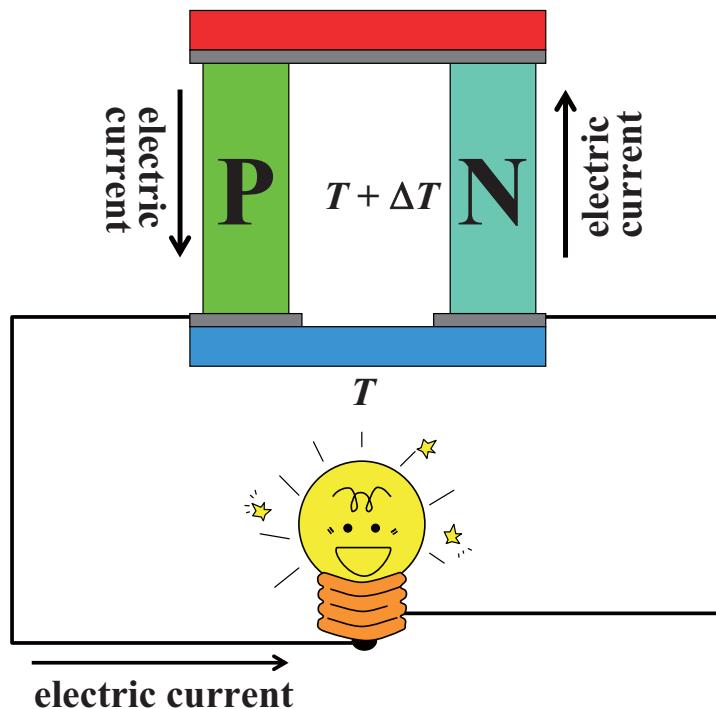
Generalized Heikes Formula

• Other Transition Metal Oxides

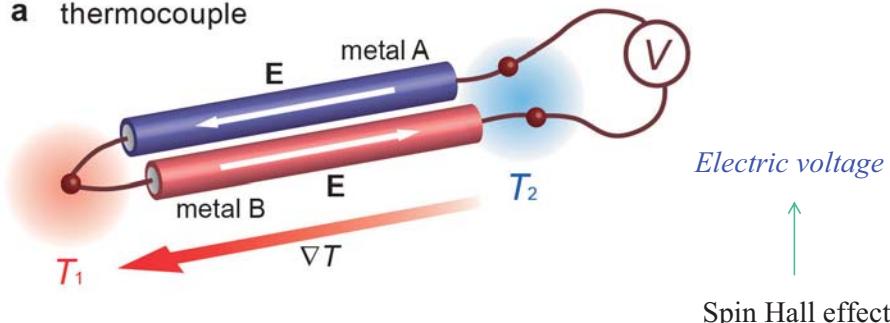
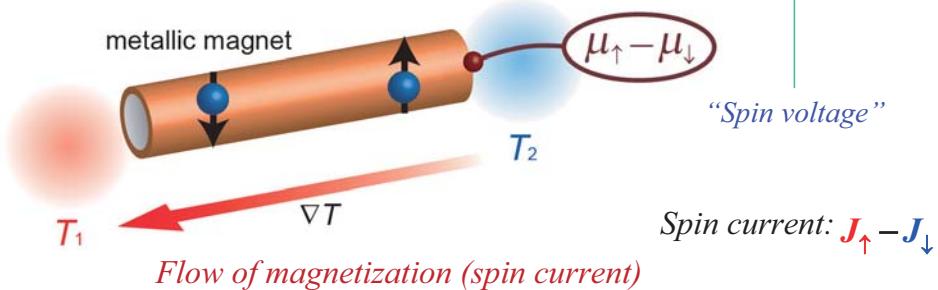
	$g_e/g_h$	$-(k_B/e)\ln(g_e/g_h)$
$\text{Ti}^{3+}(3d^1), \text{Ti}^{4+}(3d^0)$	6 / 1	-154 $\mu\text{V/K}$
$\text{V}^{3+}(3d^2), \text{V}^{4+}(3d^1)$	9 / 6	-35 $\mu\text{V/K}$
$\text{Cr}^{3+}(3d^3), \text{Cr}^{4+}(3d^2)$	4 / 9	70 $\mu\text{V/K}$
$\text{Mn}^{3+}(3d^4), \text{Mn}^{4+}(3d^3)$	10 / 4	-79 $\mu\text{V/K}$
$\text{Rh}^{3+}(4d^6), \text{Rh}^{4+}(4d^5)$	1 / 6	154 $\mu\text{V/K}$

Large thermopower is also expected!

Thermoelectric module

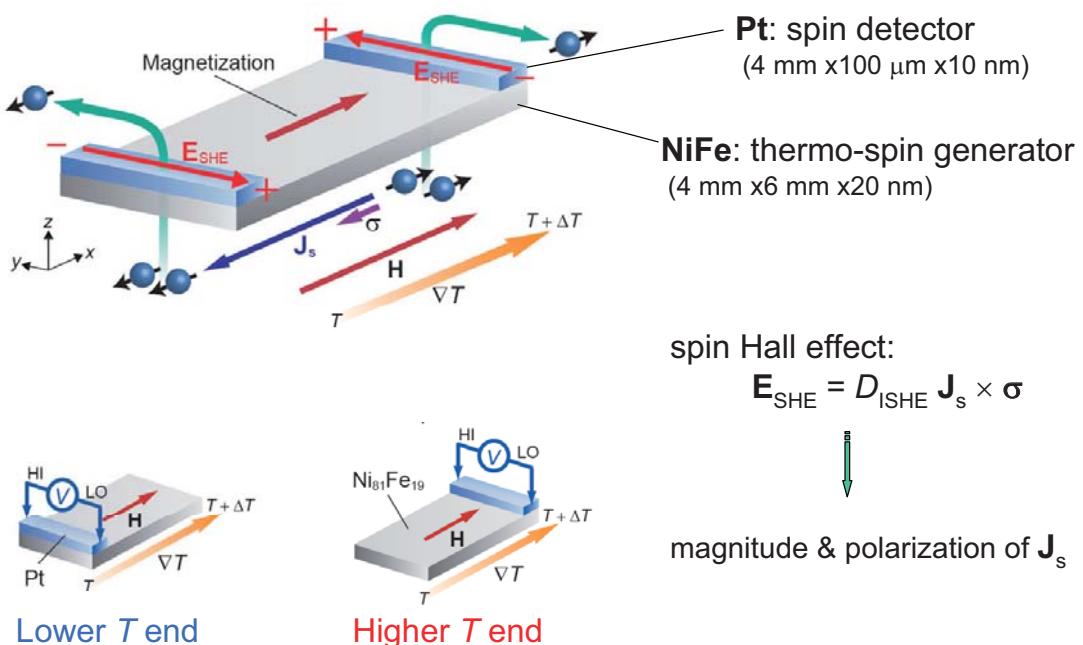


# spin-Seebeck effect

**a** thermocouple**b** spin-Seebeck effect

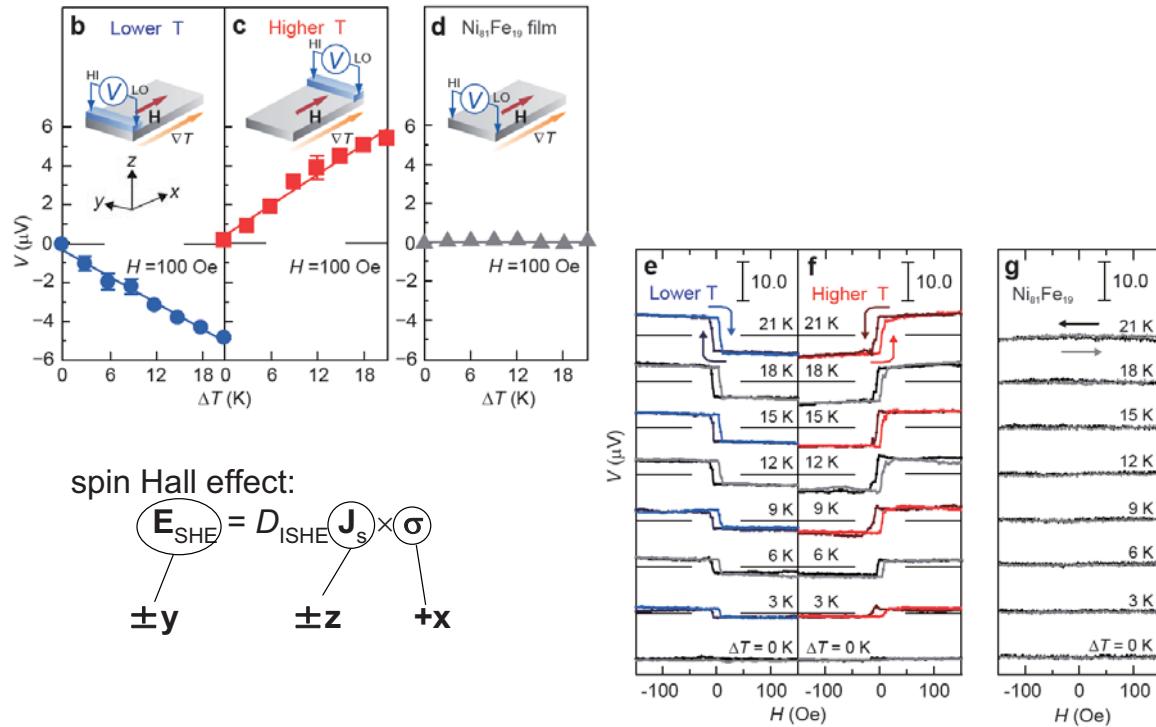
[Tohoku U.]

# measurement system



[Tohoku U.]

# results



*Seebeck effect :*  
*Charge current due to Entropy flow,*

*Spin Seebeck effect :*  
*Spin current due to Entropy flow.*

*Maxwell relation:*

$$\left( \frac{\partial \mu_\sigma}{\partial T} \right)_{N_\sigma} = - \left( \frac{\partial S}{\partial N_\sigma} \right)_T$$

$$\mu_\uparrow - \mu_\downarrow = \left( \frac{\partial \mu_\uparrow}{\partial T} - \frac{\partial \mu_\downarrow}{\partial T} \right) (\nabla T) x, \quad \text{Spin dependent entropy difference}$$

$$\mathbf{J}_s = -\frac{1}{2}(1-p_F^2)\sigma_F (S_\uparrow - S_\downarrow)(\nabla T),$$

### Injected spin accumulation and spin current in Pt:

$$\delta\mu_N(z) \approx \delta\mu_F(x) \frac{\cosh[(z-d_N)/\lambda_N]}{\cosh(d_N/\lambda_N)},$$

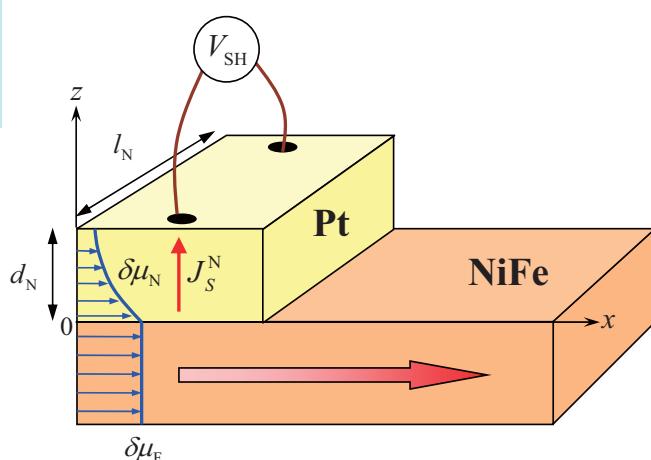
$$J_S^N(z) = -\frac{\sigma_N}{2e} \frac{\partial}{\partial z} \delta\mu_N(z),$$

$$\delta\mu_F(x) \approx S_S(-\nabla T)x,$$

### Inverse spin-Hall effect:

$$\sigma_N E_y = \theta_{SH} \langle J_S^N \rangle,$$

$\theta_{SH}$  : Hall angle



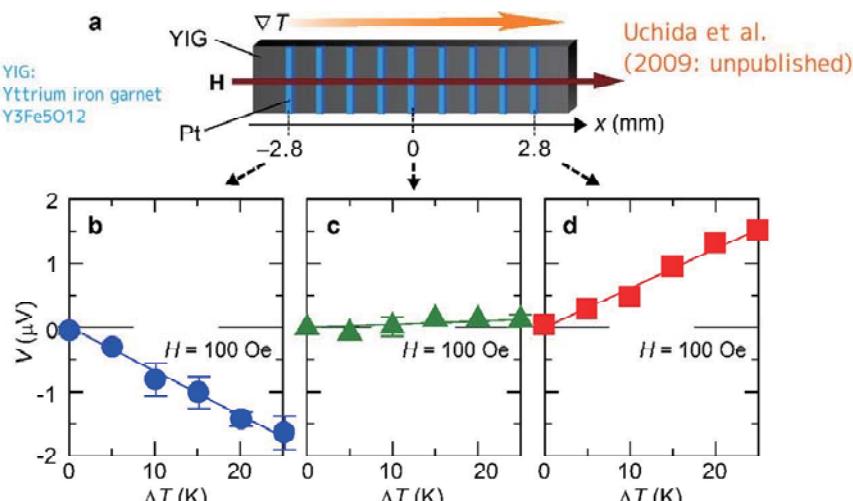
### Spin-Hall voltage:

$$V_{SH} = \frac{1}{2} \theta_{SH} \left( \frac{l_N}{d_N} \right) \left[ \frac{\sinh^2(d_N/2\lambda_N)}{\cosh(d_N/\lambda_N)} \right] S_S \Delta T \sim 3 \mu V,$$

$l_N = 0.4 \text{ cm}$ ,  $d_N = 10 \text{ nm}$ ,  $\lambda_N = 10 \text{ nm}$

$\theta_{SH} = 0.0037$  for Pt (Kimura *et al.*)

### New experiment on YIG



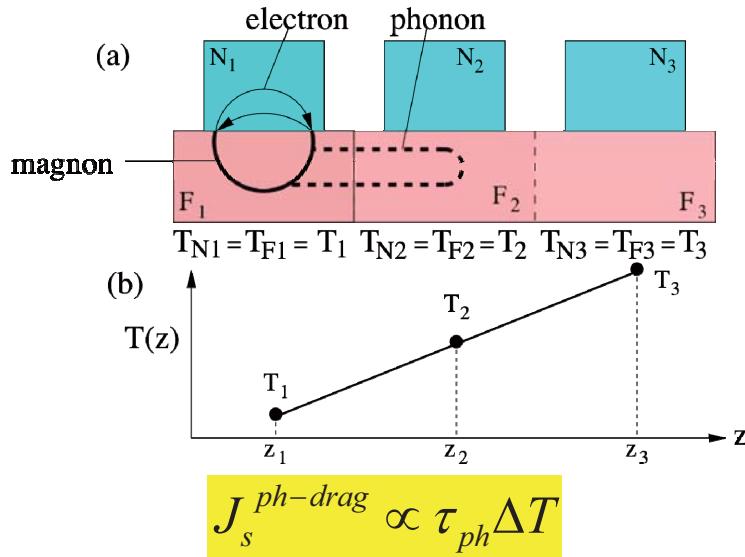
No conduction electrons in YIG  
spin-wave mediated spin current!

K. Uchida *et al.*: *Nature Materials* (Sept. 26, 2010).

### Phonon-drag contribution to SSE

#### Phonon drag process;

Magnons dragged by nonequilibrium phonons → spin injection



Phonon drag gives low-T enhancement of SSE  
due to the rapid suppression of umklapp scatt.

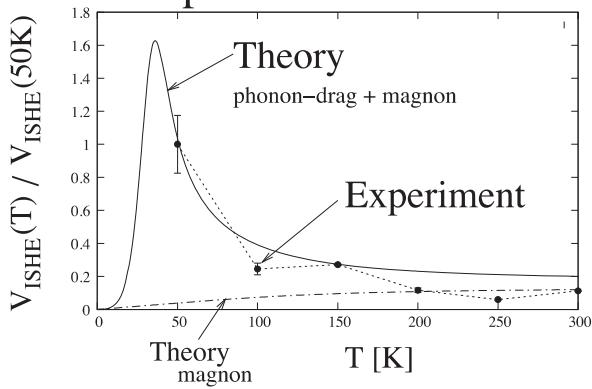
### Fitting of the data by our theory

$$J_s^{ph-drag}(T) = const \cdot B_1(T) B_2(T) \tau_{ph}(T)$$

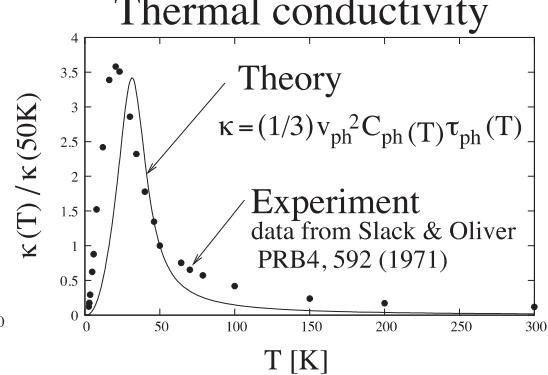
$$\tau_{ph}(T) = \tau_{ph}^{(0)} \left( \frac{1}{1 + (1/a)\exp[-b(T_D/T)]} \right) \left( \frac{1}{1 + (1/c)(T/T_D)} \right)$$

$$B_1(T) = (T/T_D)^5 \int_0^{T_D/T} \frac{du u^6}{sh^2(u/2)} \quad B_2(T) = (T/T_M)^{9/2} \int_0^{T_M/T} \frac{dv v^{7/2}}{th(v/2)}$$

#### Spin Seebeck effect



#### Thermal conductivity



*In conclusion;  
Conversion among charge current, spin current, and heat  
current provides a new paradigm in physics.*



*Seebeck effect and Spin Seebeck effect*

- 1) *Oxide-Thermocouple*
- 2) *Spin Seebeck effect (FeNi, YIG, GaMnAs...)*

References:

- S. Maekawa(ed.)“Concepts in Spin Electronics” (Oxford Press, 2006),  
K. Uchida et al.: **Nature** **455**, 779 (2008),  
J. Ohe et al.: PRB to be published,  
H. Adachi et al.: APL and PRB to be published,  
Y. Kajiwara et al.: **Nature** **464**, 262 (2010),  
**K. Uchida et al.: Nature Materials** (Sept. 26,2010).

第4回 三機関連携「量子複雑現象」研究会, 東京, 20 Dec. 2010

3. Magnetic X-ray Study on Electronic Structure  
in 5d Transition Metal Oxide Compounds  
5d遷移金属酸化物の電子構造のX線磁気散乱研究

**ARIMA Taka-hisa**

*Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials,  
Tohoku University, JAPAN*

*RIKEN SPring-8 Center, JAPAN*

Colleagues and Collaborators

位置づけ:高木先生が主導する理研と原研の共同研究の一部

**X-ray**

H. Ohsumi, T. Komesu, S. Takeshita, M. Takata (RIKEN SPring-8)

**Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub>**

B. J. Kim, S. Fujiyama, H. Takagi (Univ. Tokyo & Riken)

**Cd<sub>2</sub>Os<sub>2</sub>O<sub>7</sub>**

J. Yamaura, K. Ohgushi, Z. Hiroi (Univ. Tokyo)

## Outline

- ❖ Why 5d Transition Metal Compounds?
- ❖ Metamagnetic Transition and Electronic State in  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$
- ❖ Magnetic Structure in  $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$

## Merits and Demerits of X-ray Magnetic Diffraction

In principle, magnetism in matter can be studied by utilizing synchrotron x-ray (M. Blume & D. Gibbs, 1988). The magnetic structures of matters were however almost always determined by neutron diffraction (or sometimes NMR). Can x-ray magnetic scattering be useful in practice?

### Merits

- Spin and orbital moments respond in different ways.
- The focus can be very small.
- Resonant diffraction makes the atomic specific study possible.
- Q-resolution is excellent.

### Demerit

- Interaction with magnetic moments is usually very weak.  
(Low S/N ratio)
- Energy resolution is bad.

## Resonant x-ray diffraction for 5d transition elements

	$E_{2p}$ [eV]	$d_{min}$ [Å]	$E_{3d}$ [eV]	$d_{min}$ [Å]
3d TM	450~900	14~7	-	-
4d TM	2.2k~3.4k	2.8~1.8	-	-
Lanthanides	5.7k~8.9k	1.1~0.7	450~1500	14~4
5d TM	9.6k~11.9k	0.65~0.52	-	-
Actinides	15.9k~	0.39~	3.2k~3.6k	1.9~1.7

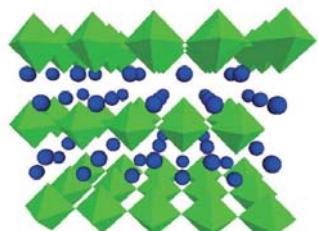
## Interest in $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$

We believe

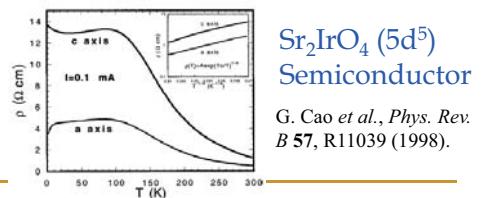
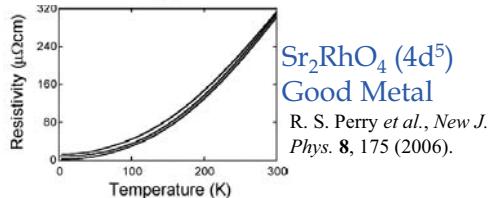
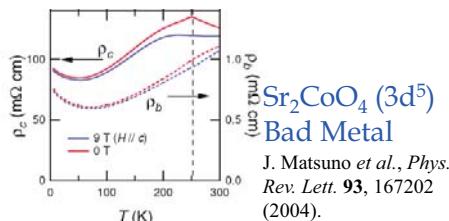
Band Width: 3d<4d<5d

Coulomb: 3d>4d>5d

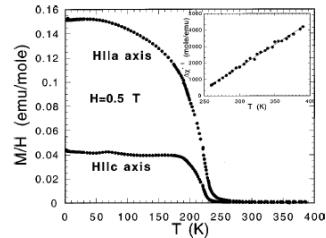
Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu
Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag
(Ln)	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au



Isostructure with  $(\text{La},\text{Ba})_2\text{CuO}_4$



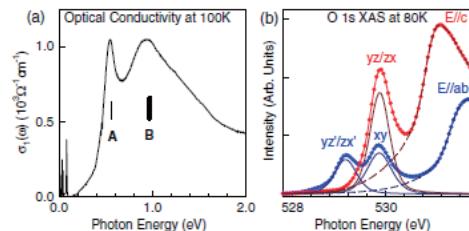
## Magnetism and Spectroscopy



Weak ferromagnetism ( $0.15\mu_B/\text{f.u.}$ )  
below 230K

G. Cao *et al.*, *Phys. Rev. B* **57**, R11039 (1998)

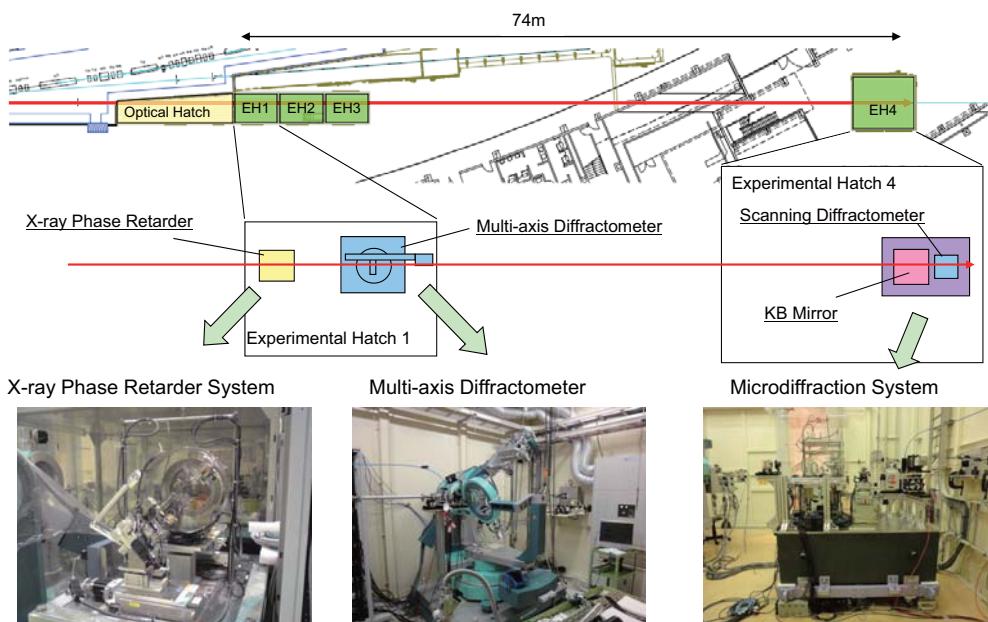
No Neutron Data

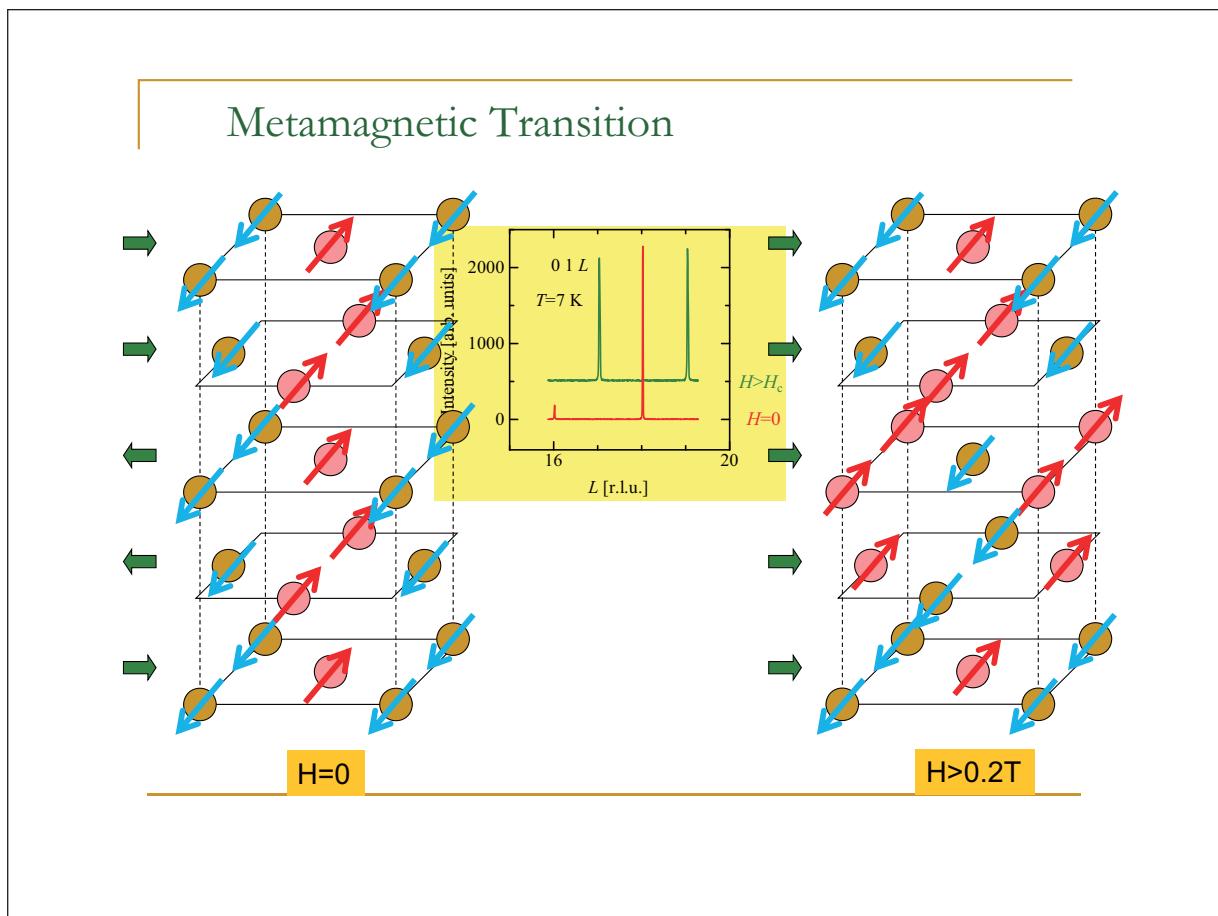
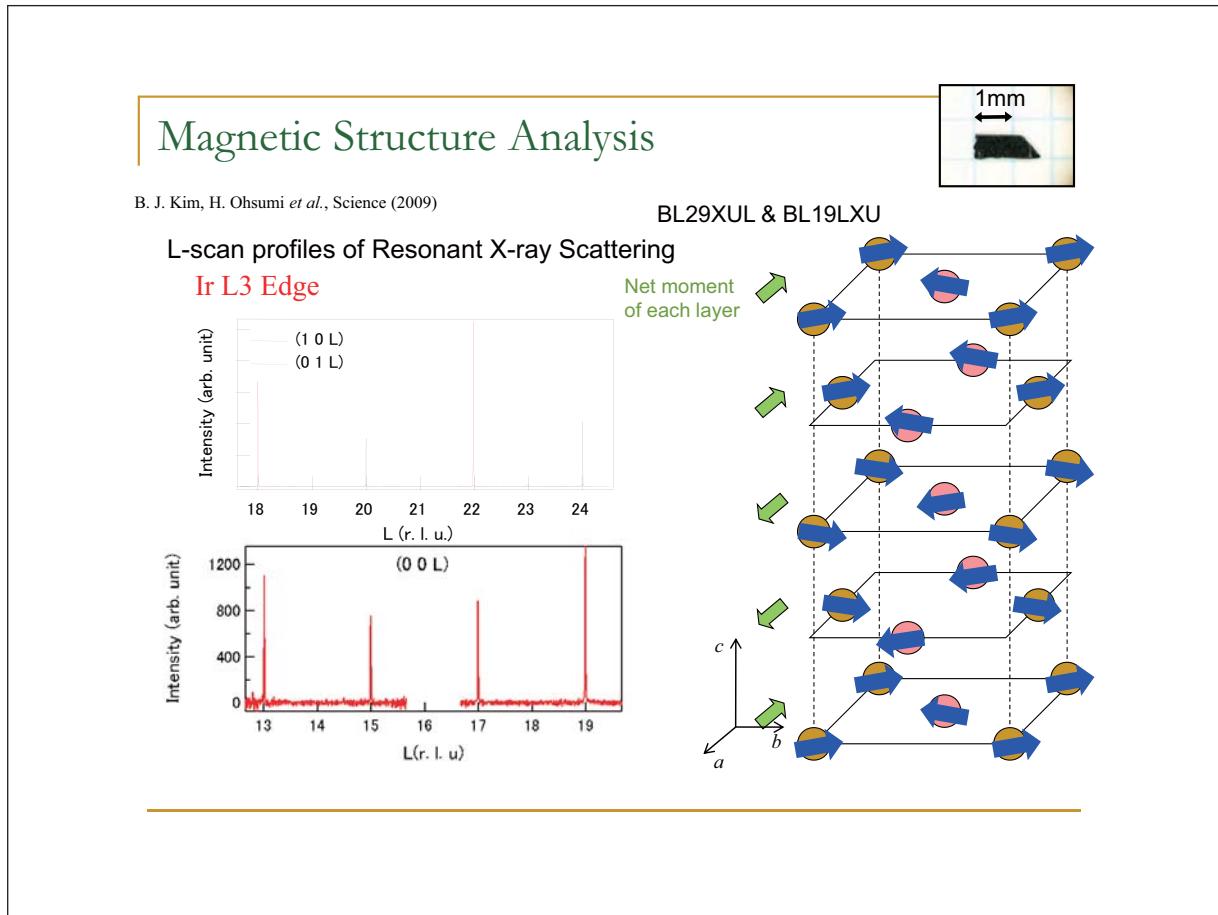


$T_{2g}$  Orbital Not Ordered.  
Novel  $J_{\text{eff}}=1/2$  State?

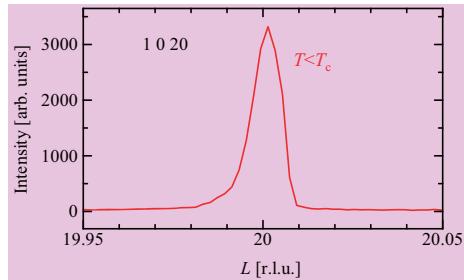
B. J. Kim *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 076402 (2008)

## SPring-8 BeamLine-19LXU (RIKEN-BL) Layout

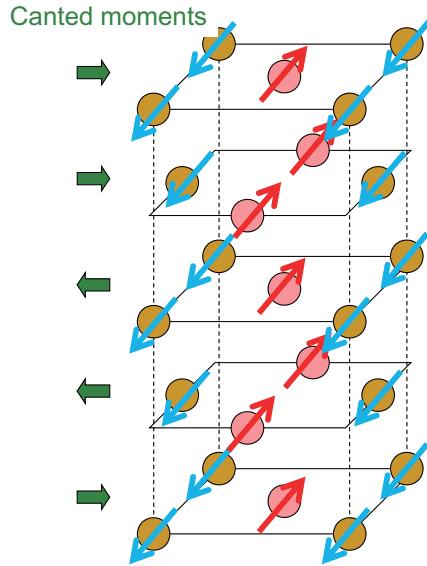




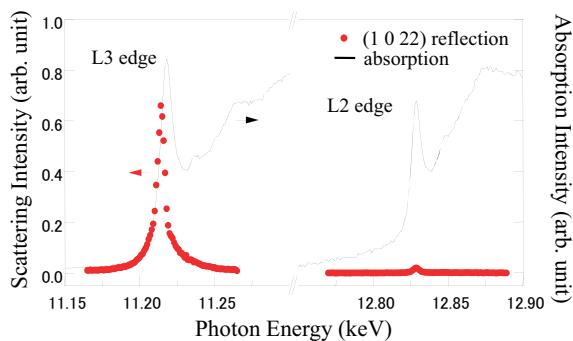
## Correlation Length



$\Delta L \sim 0.01$   
 $\xi_c \sim 100$   $c = 400$  layers!



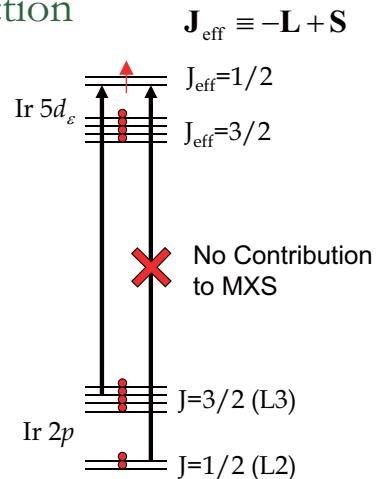
## Resonant Spectrum: Wave Function



B. J. Kim *et al.*, Science 323, 1329 (2009).

Spin-Orbital Coupled State  
with Quantized  $J_{\text{eff}}$

A weak  $L_2$  resonant enhancement can be ascribed to  
a weak tetragonal field.



$$\Psi_1 = -\frac{i}{\sqrt{3}}|xy\uparrow\rangle - \frac{i}{\sqrt{3}}|yz\downarrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}}|zx\downarrow\rangle$$

$$\Psi_2 = \frac{i}{\sqrt{3}}|xy\downarrow\rangle - \frac{i}{\sqrt{3}}|yz\uparrow\rangle - \frac{1}{\sqrt{3}}|zx\uparrow\rangle$$

## Calculation of Intensity of Resonant Scattering

$$\begin{aligned}\Psi_1 &= c_1 |xy\uparrow\rangle + c_2 |yz\downarrow\rangle + c_3 |zx\downarrow\rangle \\ \Psi_2 &= c_1^* |xy\downarrow\rangle - c_2^* |yz\uparrow\rangle - c_3^* |zx\uparrow\rangle\end{aligned}$$

(S//z)

At  $L_3$  edge,

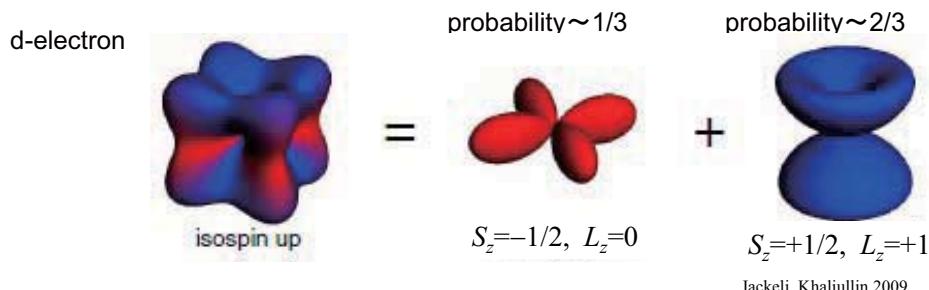
$$I = \frac{A}{9} |\Re[(c_1 - c_2)c_1^*] + \Im[(c_1 + 2c_2)c_3^*]|^2$$

At  $L_2$  edge,

$$I = \frac{A}{9} |\Im[(ic_1^* + c_3^*)(c_1 - c_2)]|^2$$

## Exotic Spin-orbit Coupled State in $\text{Ir}^{4+}$

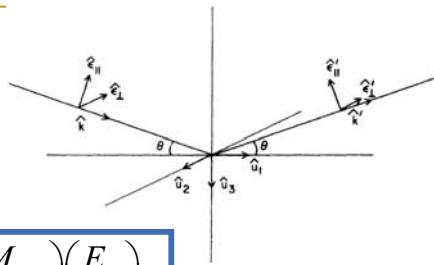
$$\langle S_z \rangle = 1/6, \langle L_z \rangle = 2/3; L/S = 4$$



→ Fractional Charge, Helical Edge Mode, Quantum Spin Hall Effect

## L-S Separation

Non-resonant magnetic scattering



$$\begin{pmatrix} E_\sigma & E_{\pi'} \end{pmatrix} = -A \frac{i\hbar\omega}{mc^2} \begin{pmatrix} M_{\sigma\sigma} & M_{\sigma\pi} \\ M_{\pi'\sigma} & M_{\pi'\pi} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_\sigma \\ E_\pi \end{pmatrix}$$

$$M_{\sigma\sigma} = S_2 \sin 2\theta$$

$$M_{\sigma\pi} = -2 \sin^2 \theta [(L_1 + S_1) \cos \theta - S_3 \sin \theta]$$

$$M_{\pi'\sigma} = 2 \sin^2 \theta [(L_1 + S_1) \cos \theta + S_3 \sin \theta]$$

$$M_{\pi'\pi} = \sin 2\theta [2L_2 \sin^2 \theta + S_2]$$

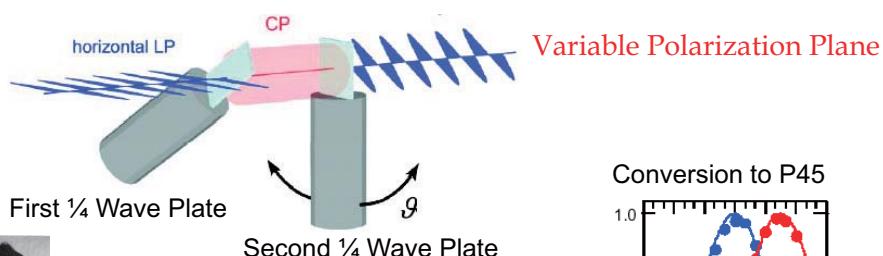
Spin and orbital moments respond in different ways.

M. Blume and D. Gibbs, *Phys. Rev. B*, **37**, 1779 (1988)

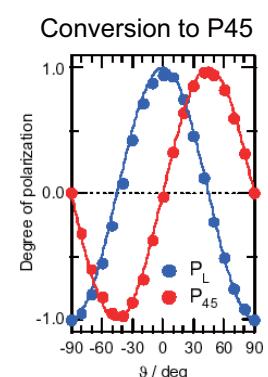
## Double Phase Retarder Method



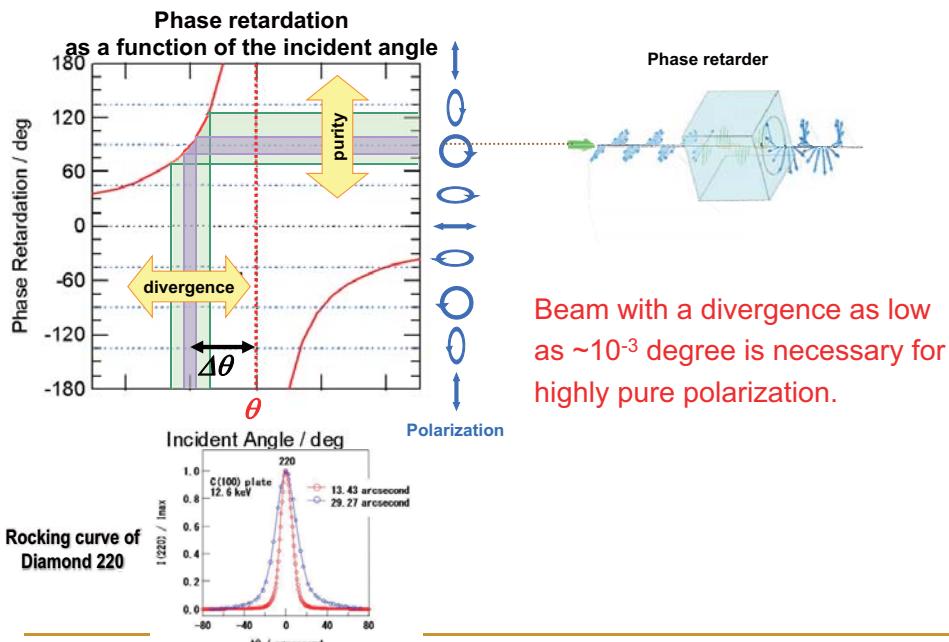
H. Ohsumi



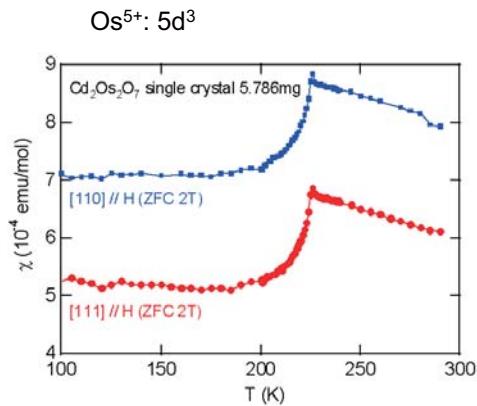
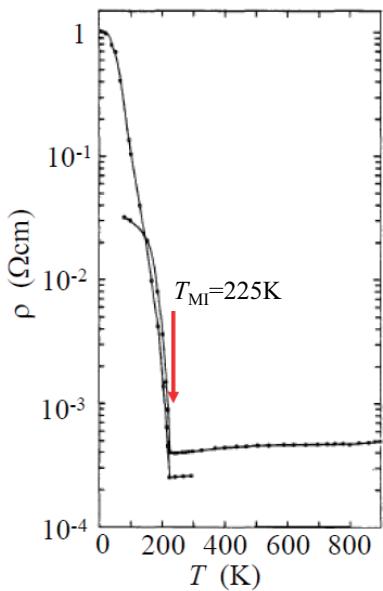
We have developed the double-phase retarder method to control the polarization direction of incident beam.



Purity of polarization depends on the beam divergence



Application to a Pyrochlore System  $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$



Magnetic order at 225K in spite of the geometrically frustrated pyrochlore lattice.

A. W. Sleight et al., Solid State Commun. **14**, 357 (1974)

## Conclusion

X-ray magnetic scattering reveals

- Magnetic structures in 5d TMOs.
  - ◊ Metamagnetic transition in  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$
  - ◊ All-in all-out structure in  $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$
- Wave function of 5d TM ion.
  - ◊  $J_{\text{eff}}=1/2$  state in  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$



## 4. 共鳴非弾性X線散乱による $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$ の電子励起

原子力機構放射光

石井賢司

共同研究者

イニヤスジャリッジ<sup>A</sup>、吉田雅洋<sup>A</sup>、池内和彦<sup>A,B</sup>、水木純一郎<sup>A</sup>

大橋啓<sup>C</sup>、高山知弘<sup>C</sup>、松野丈夫<sup>D</sup>、高木英典<sup>C,D</sup>

<sup>A</sup>原子力機構放射光、<sup>B</sup>KEK物構研、<sup>C</sup>東大新領域、<sup>D</sup>理研

## Outline

### 1. Introduction

- resonant inelastic x-ray scattering (RIXS)
- electronic structure of  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  and related iridium oxides

### 2. Results

### 3. Other topics of RIXS

### 4. Summary

## Resonant inelastic x-ray scattering

- Inelastic version resonant x-ray scattering
- Resonant electronic Raman scattering using x-ray

spectroscopy  
(scan in energy space)

scattering  
(scan in reciprocal space)

momentum-resolved  
spectroscopy

To measure  
electronic excitation in Q- $\omega$  space

## Inelastic x-ray scattering

Non resonant IXS (NIXS)	Resonant IXS (RIXS)
1st order of $A^2$ term	2nd order of $A \cdot p$ term
photon energy is far from absorption edge	photon energy is tuned near absorption edge
dynamical charge correlation function $N(Q, \omega) \sim \text{Im}\chi(Q, \omega)$ (simple)	2nd order optical process (complicated)
all electrons contribute evenly	element selective
good energy resolution $\Delta E \sim \text{sub meV}$	poor energy resolution $\Delta E \sim 100 \text{ meV}$
valence electron excitation across $E_F$ is usually <b>very weak</b> → limited to low Z materials	resonance enhancement of valence electron excitation
phonon excitation (all electron in atom)	
simple polarization dependence	polarization analysis → determination of symmetry

## Advantage and disadvantage of RIXS

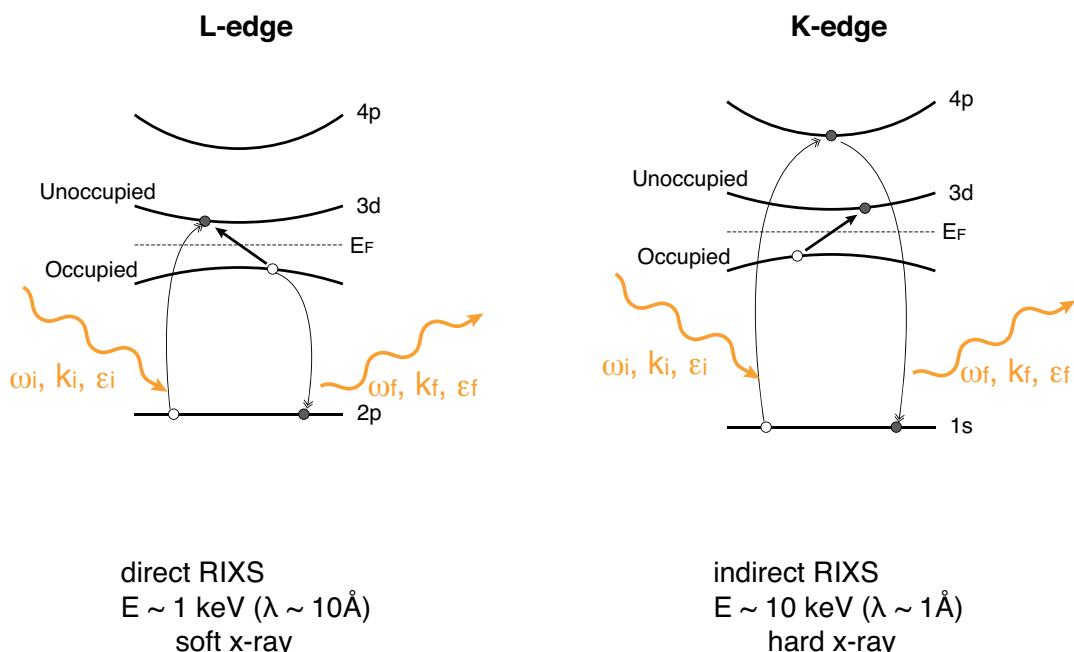
### Advantage

1. Momentum resolution  $\leftrightarrow$  optical conductivity, absorption, ...
2. Element selectivity
3. Bulk sensitivity  $\leftrightarrow$  ARPES, STS
4. Coupling to charge  $\leftrightarrow$  inelastic neutron scattering

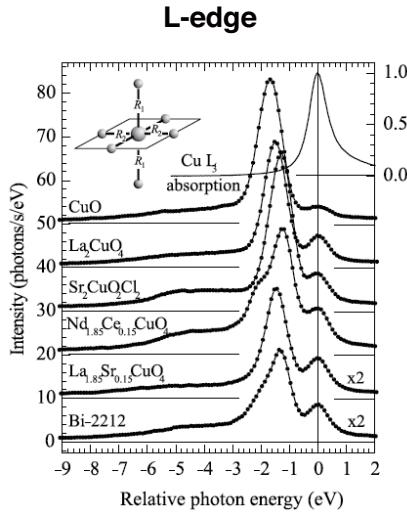
### Disadvantage

- I. Poor energy resolution
- II. Limited resources

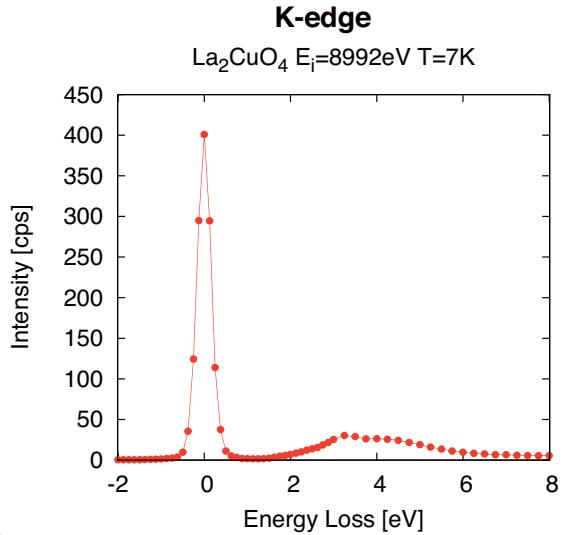
## Two types of resonant inelastic x-ray scattering



## Comparison between L-edge and K-edge



Ghirghetti et al., PRL **92**, 117406 (2004).

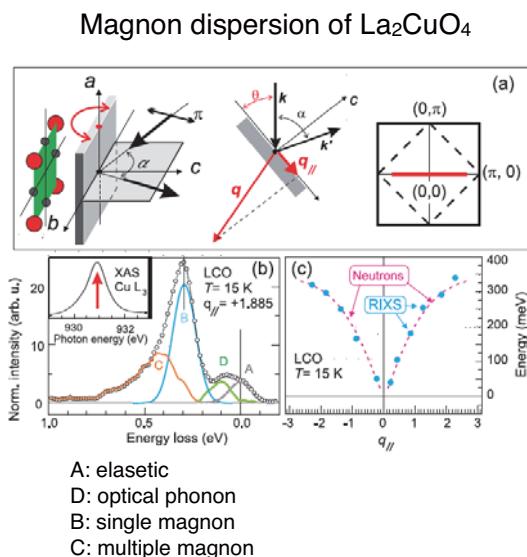


- weak elastic scattering  
→ accessible to low E excitations

- large transmission  
→ high pressure
- polarization analysis  
→ symmetry of excitation

## Magnetic excitation by L-edge RIXS

### Cu L-edge RIXS at Swiss Light Source



L.Braicovich et al., PRL **104**, 077002 (2010).

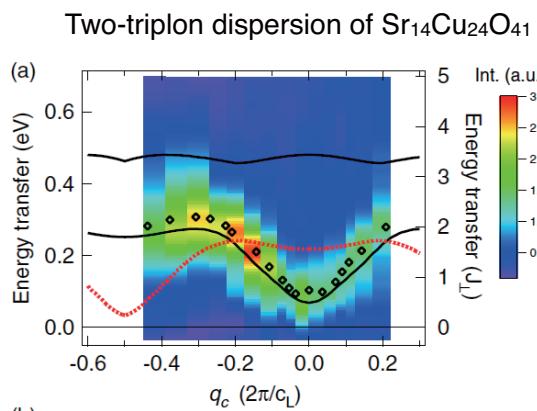
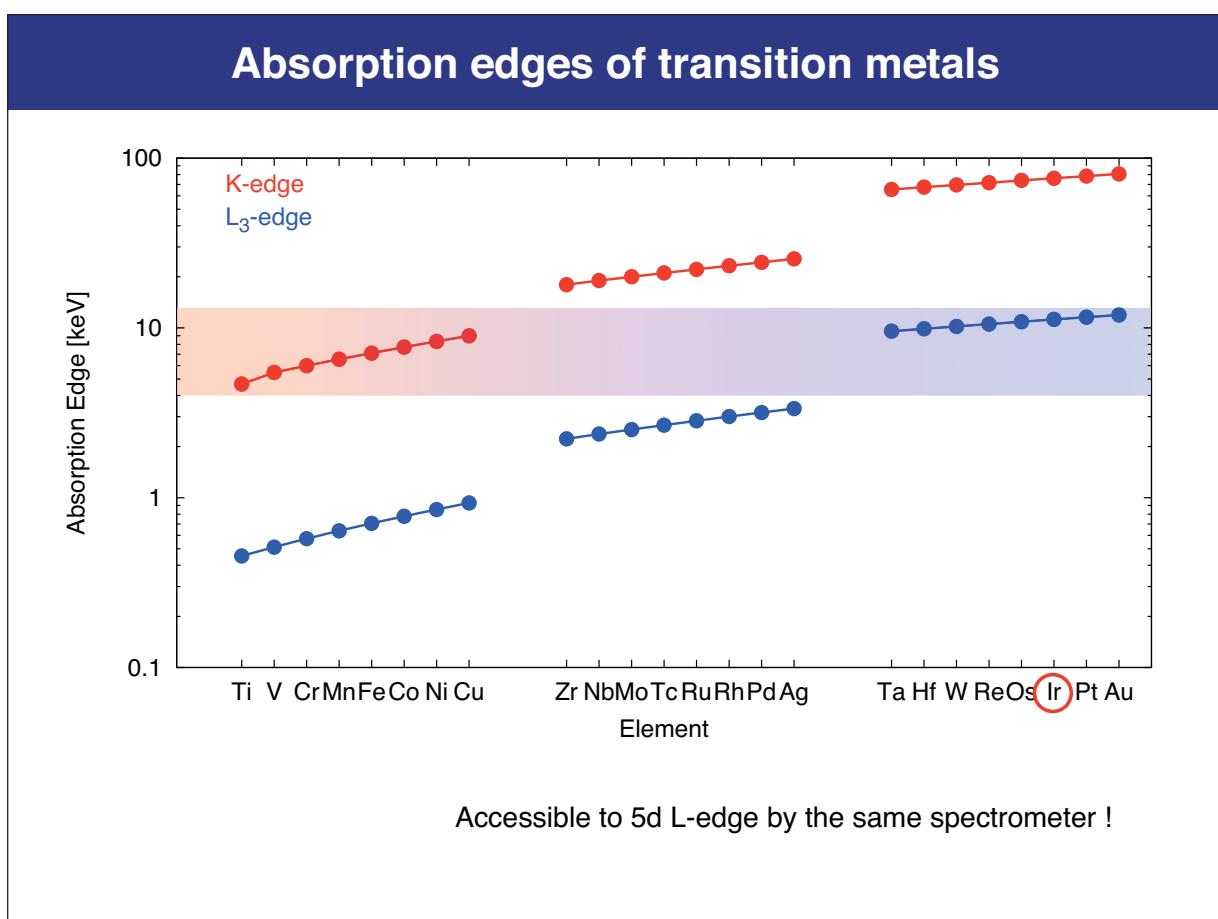
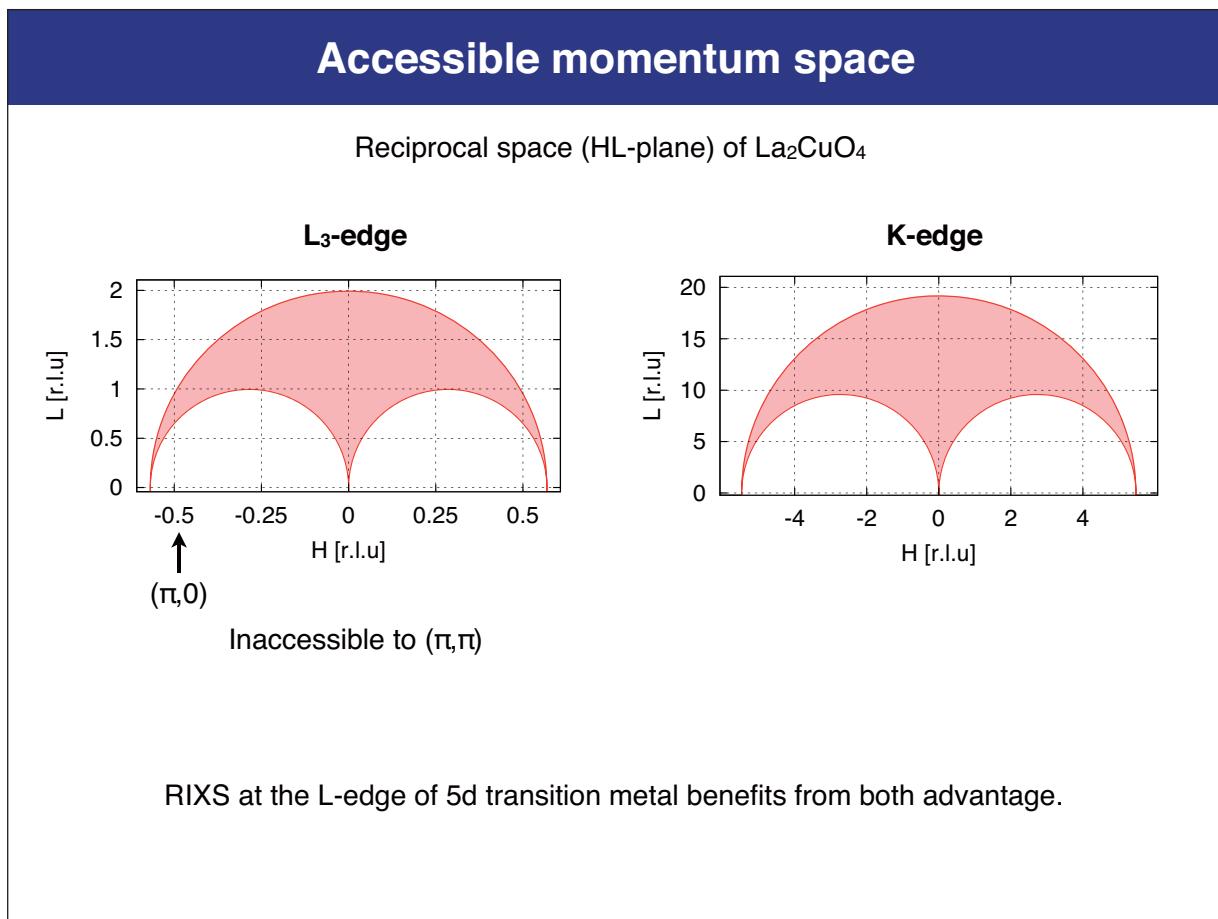
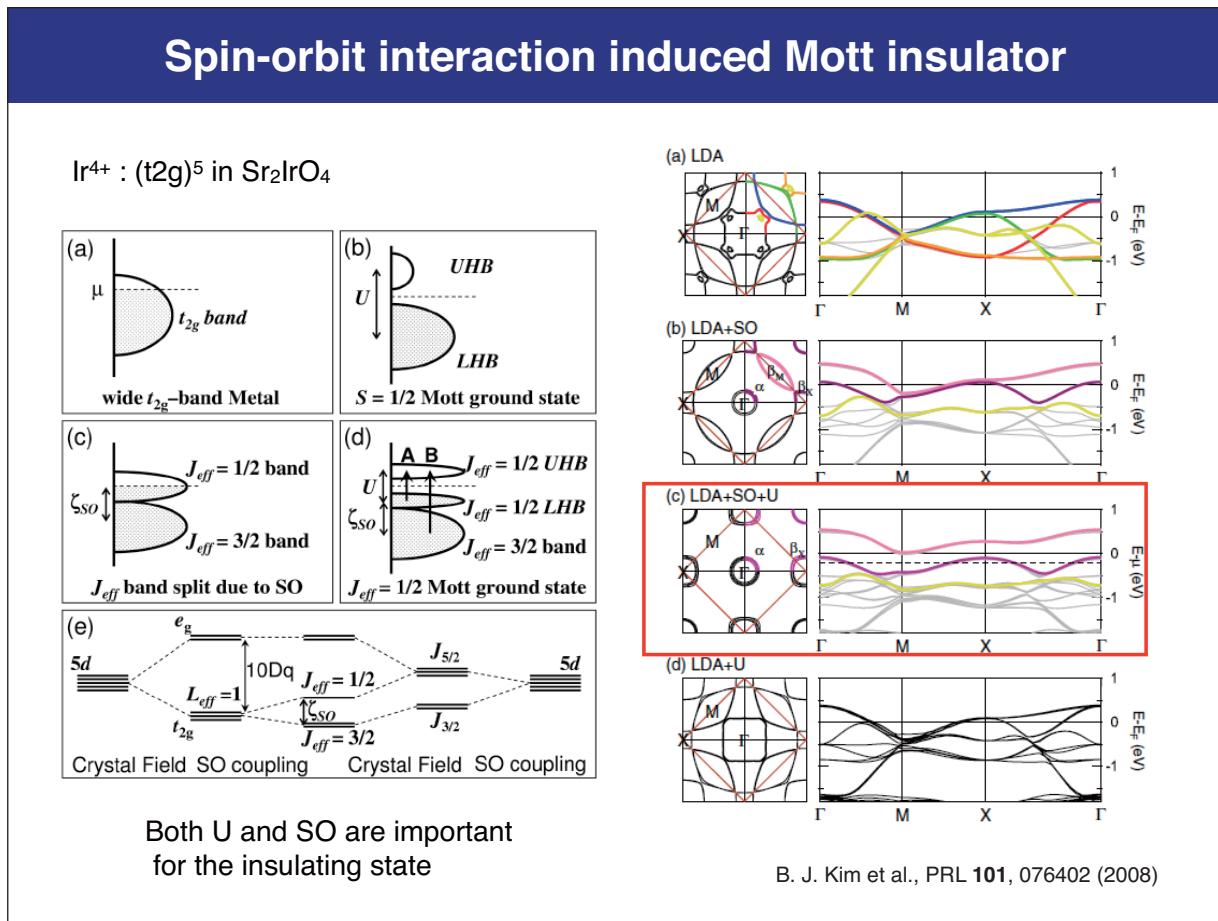
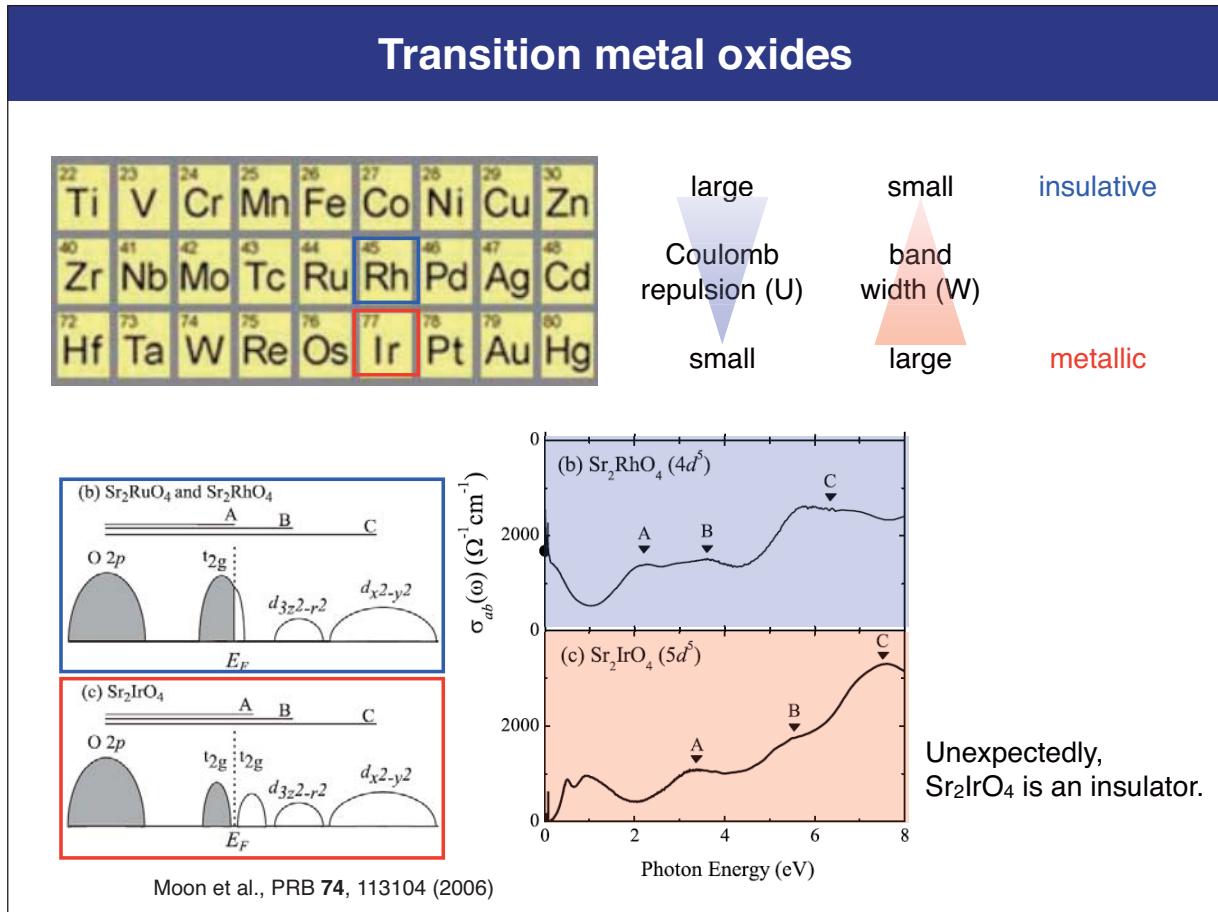
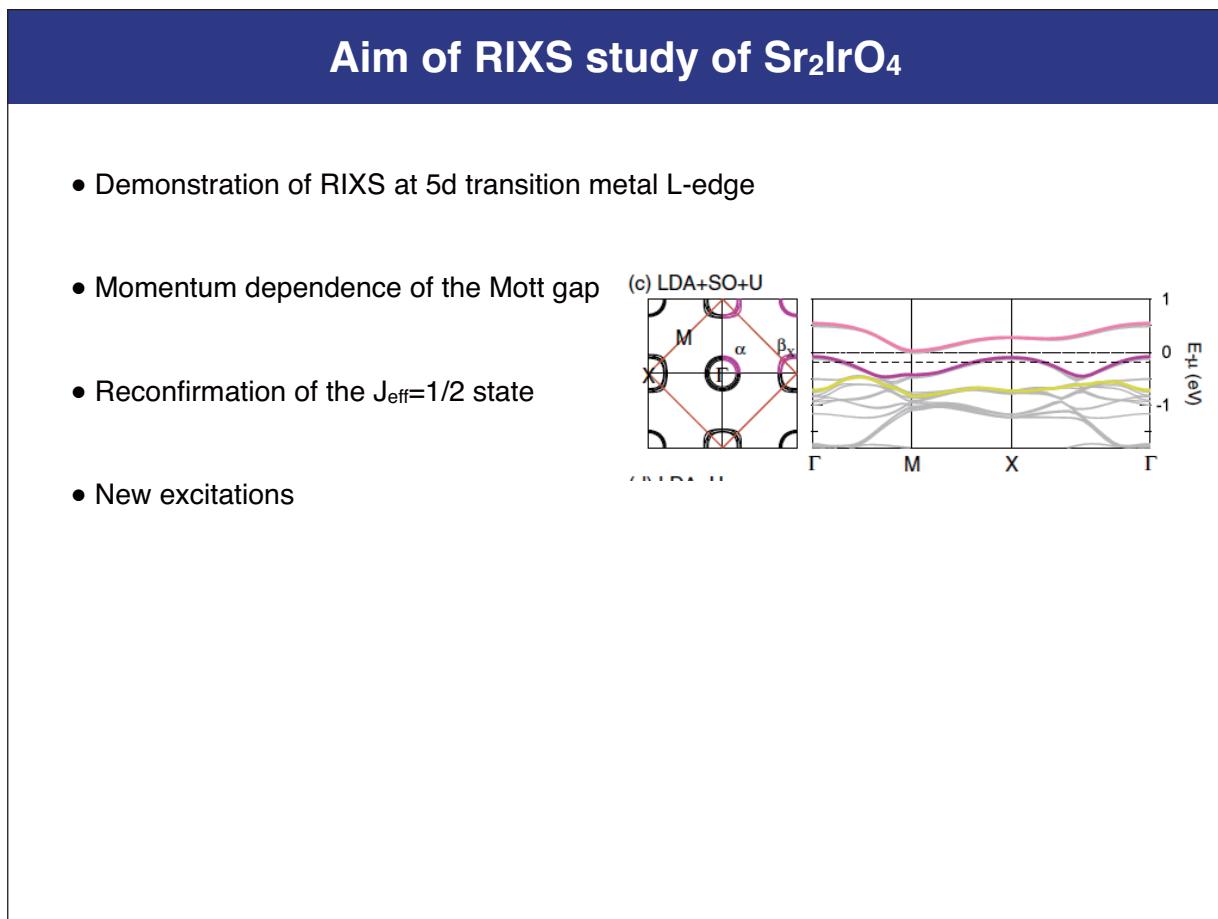
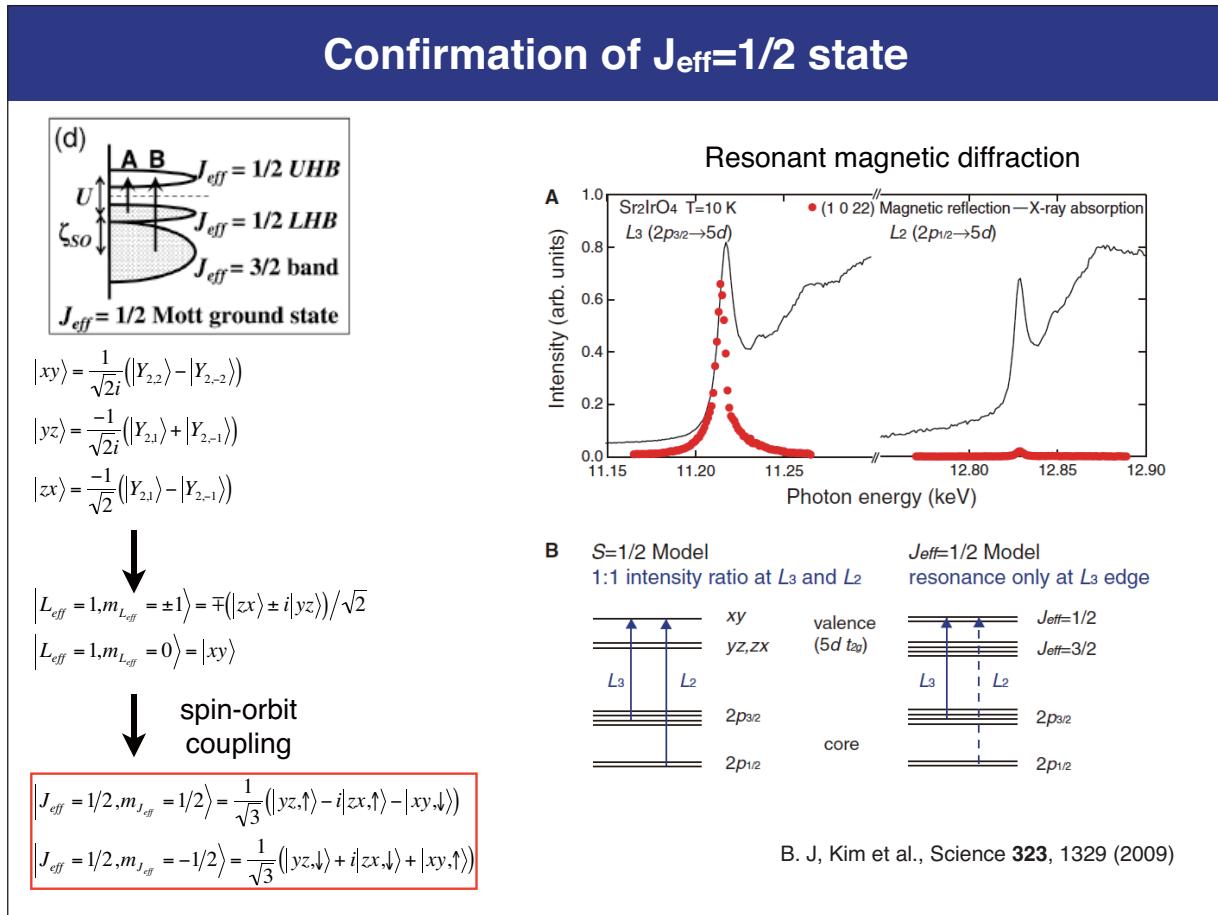


FIG. 3 (color online). (a) RIXS data as intensity map vs momentum and energy transfer after subtraction of the elastic signal. We overlay the extracted dispersion curve of the lower boundary of the two-triplon continuum with open black diamond symbols. For comparison we plot calculated one- (red dashed line) and two-triplon (black full lines) dispersion curves from K. Schmidt et al. [22]. The right axis is scaled in units of  $J$  along the rungs ( $J_{\perp}$ ), extracted from the theoretical model below. (b) RIXS

J. Schlappa et al., PRL **103**, 047401 (2009).





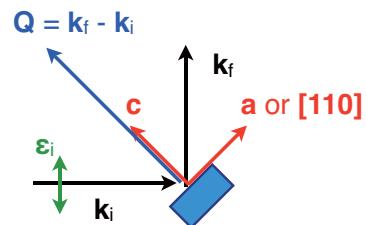


## Experiment

SPring-8 BL11XU (JAEA beamline)

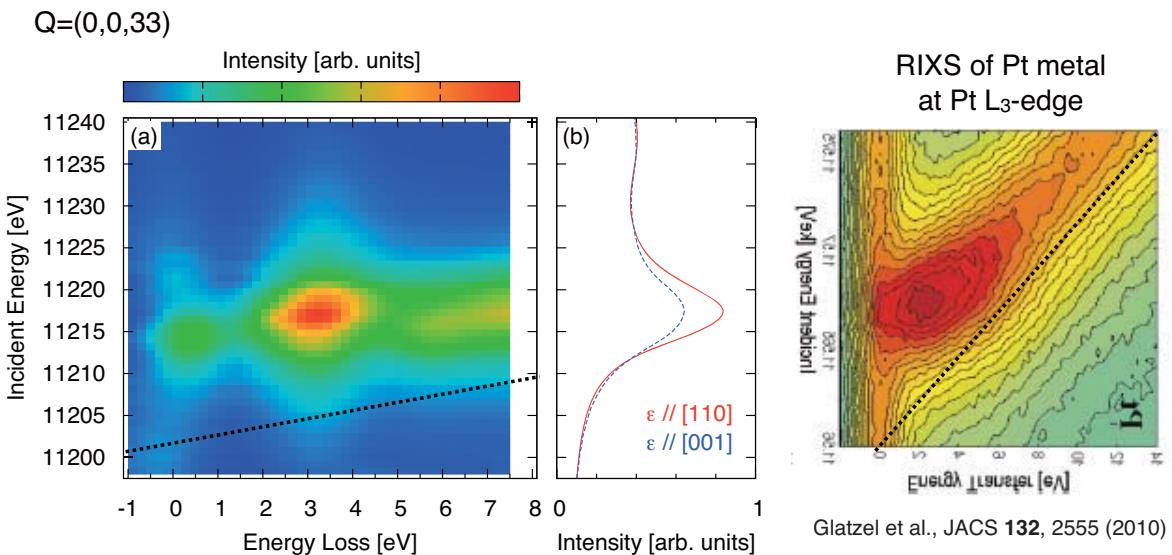


Sample configuration



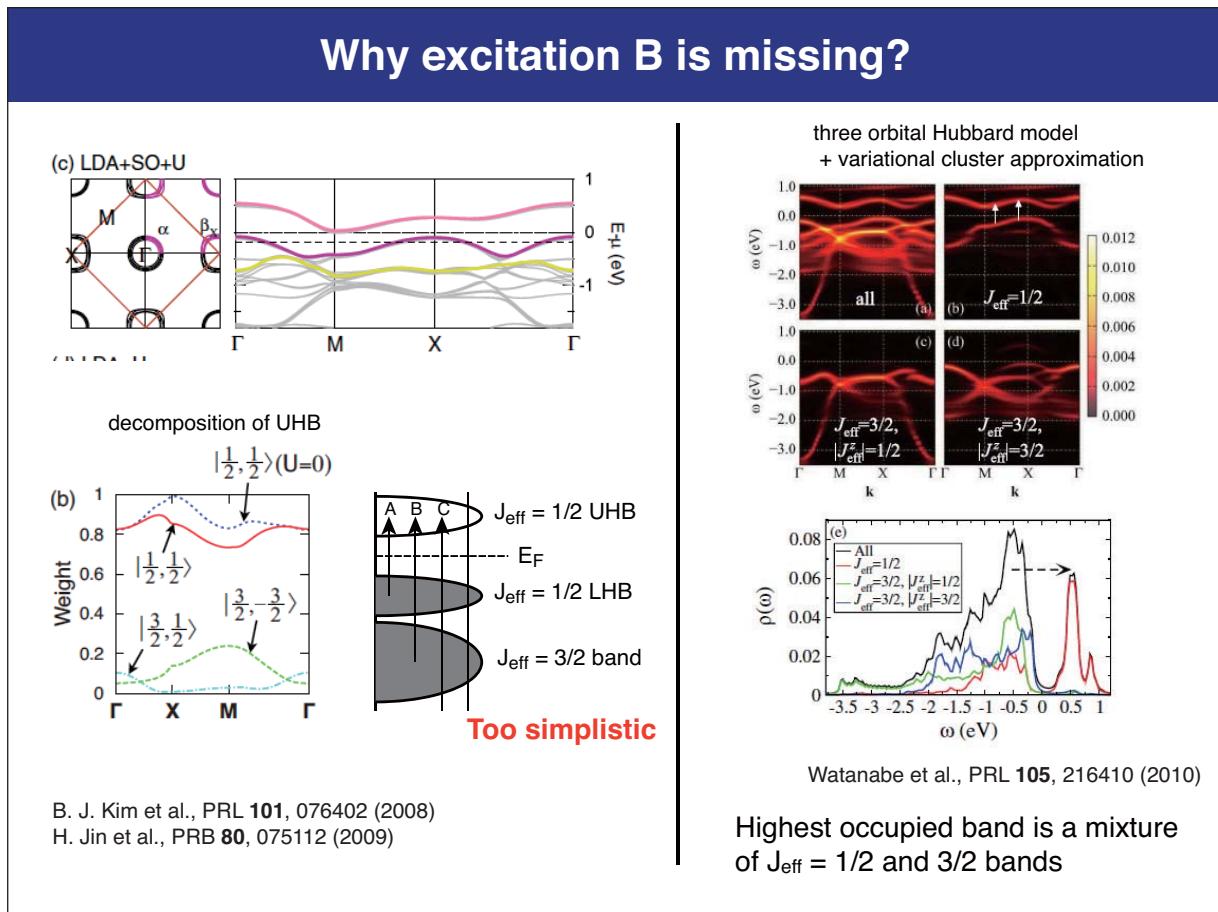
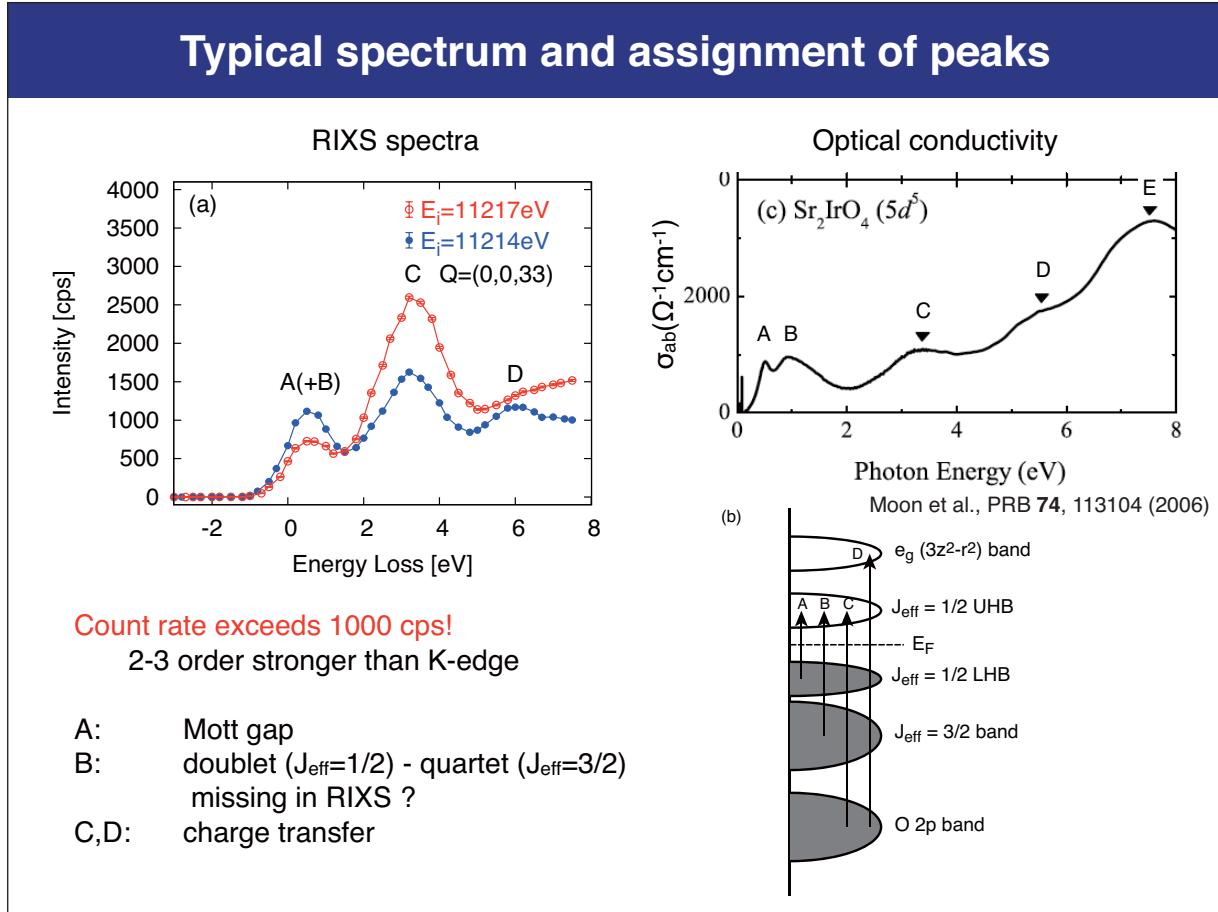
- Si(400) monochromator + Si(844) analyzer  
→ total energy resolution  $\sim 1$  eV
- Measurement at room temperature  
 $T_N = 250$  K for  $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$

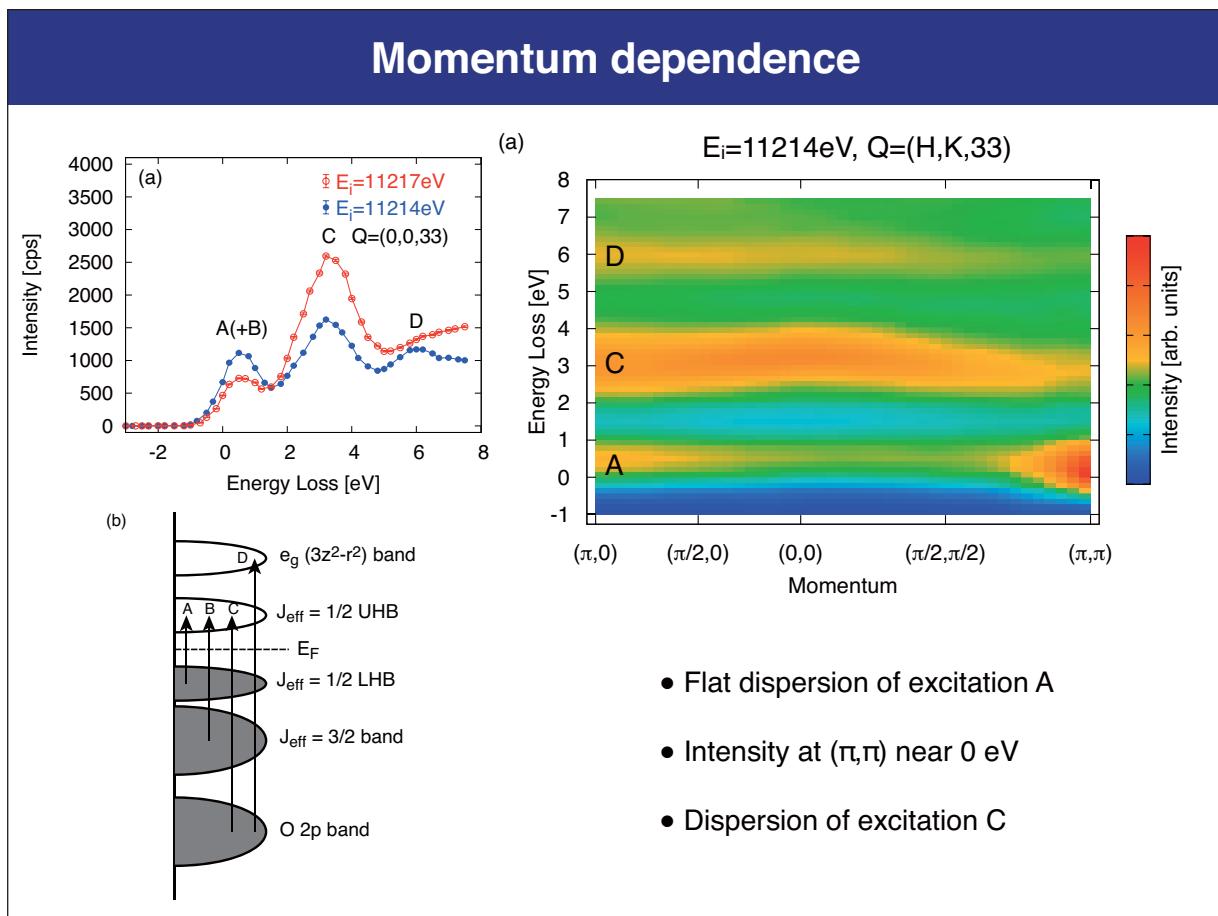
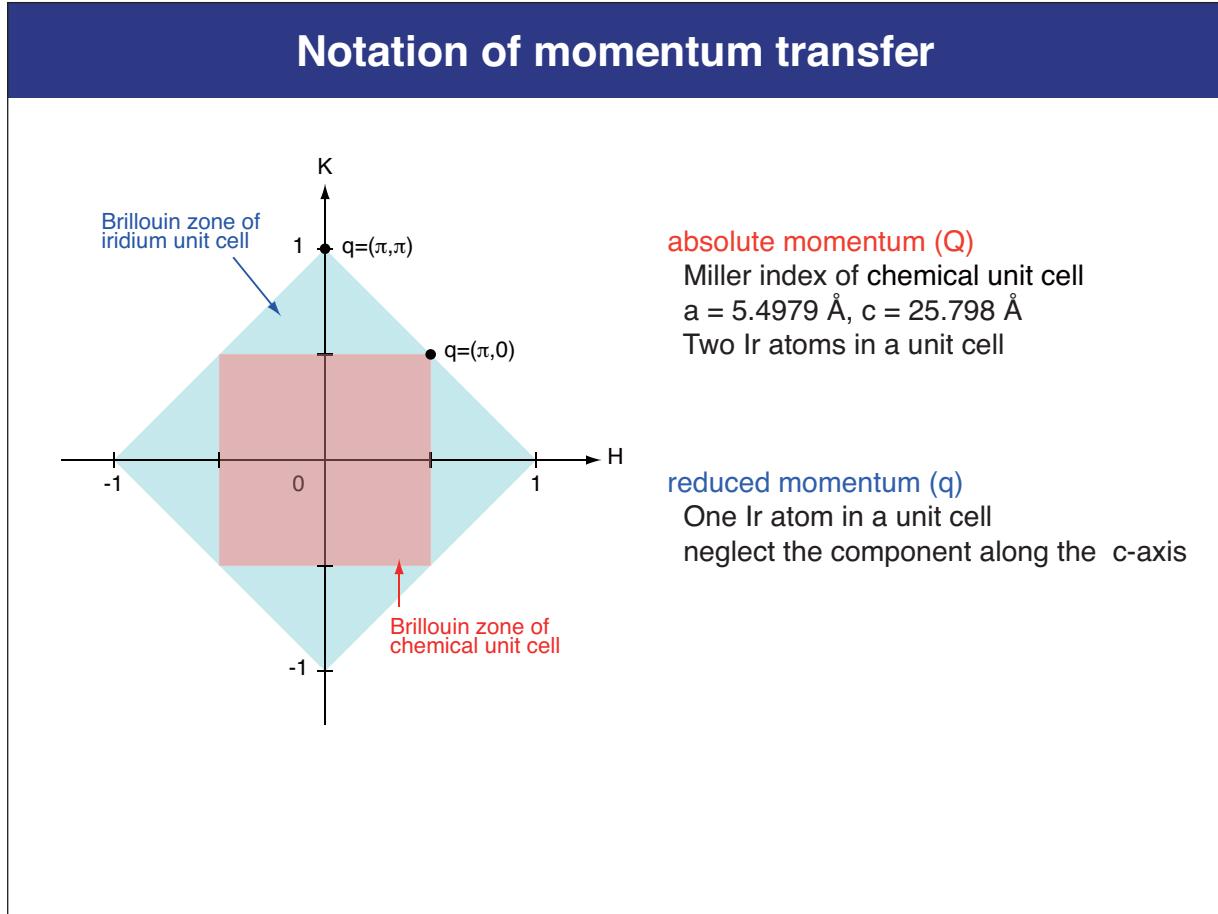
## X-ray absorption and incident energy dependence

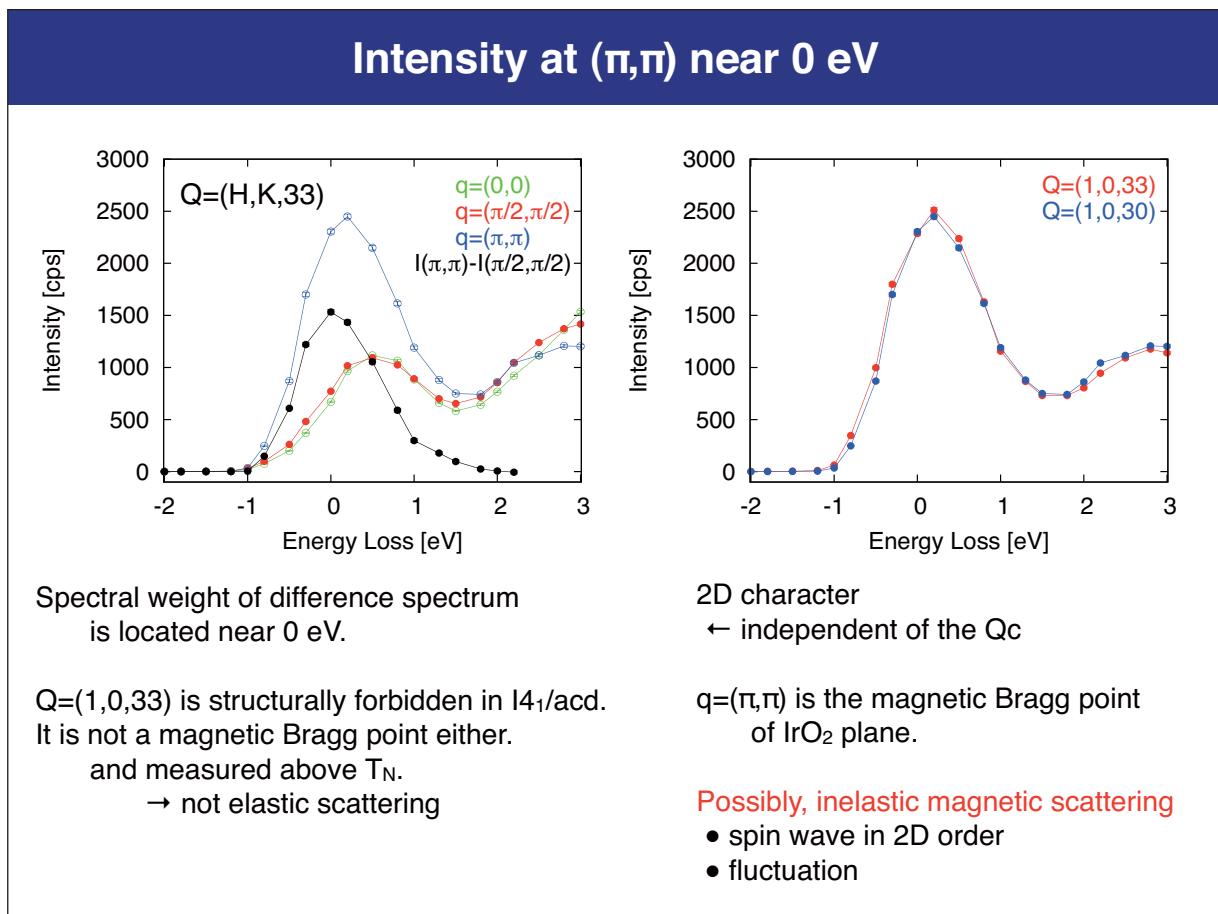
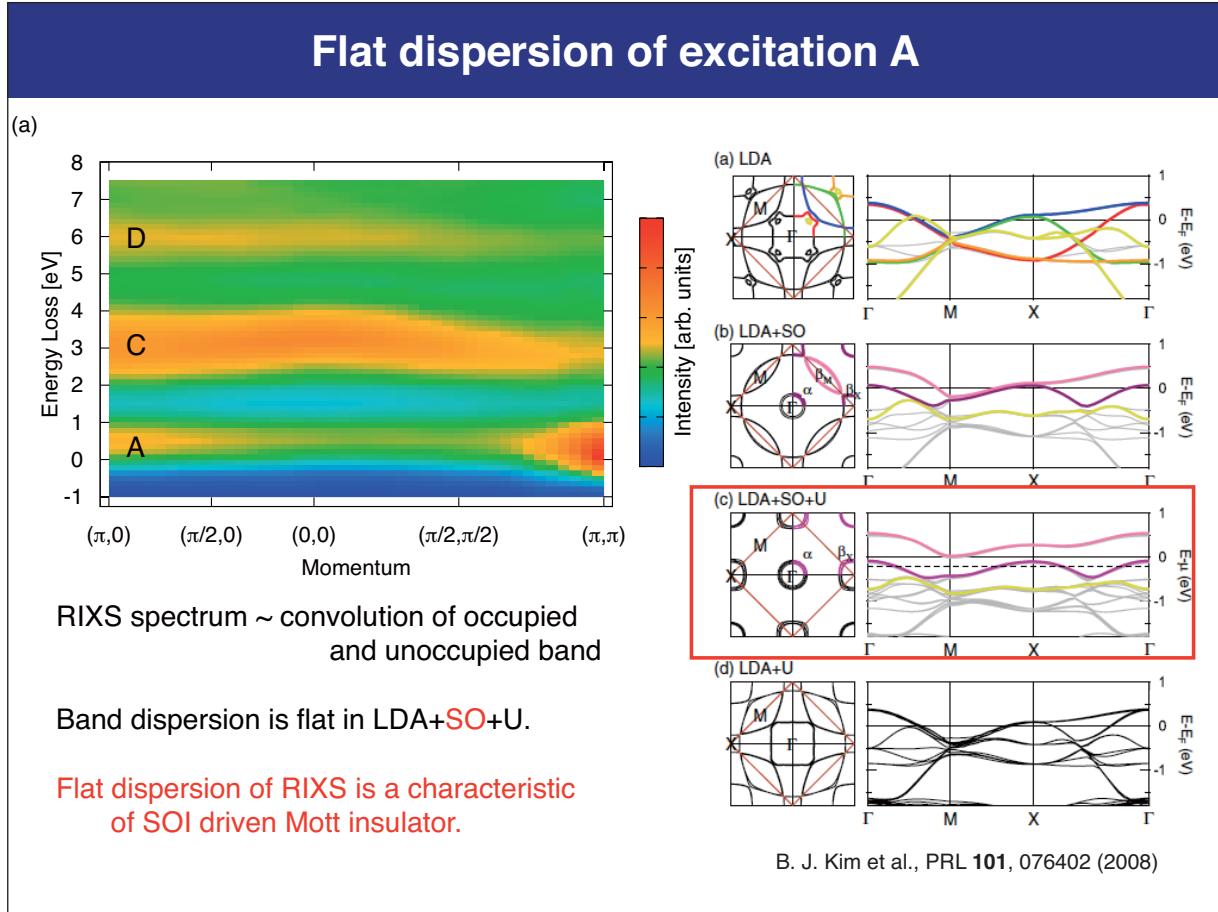


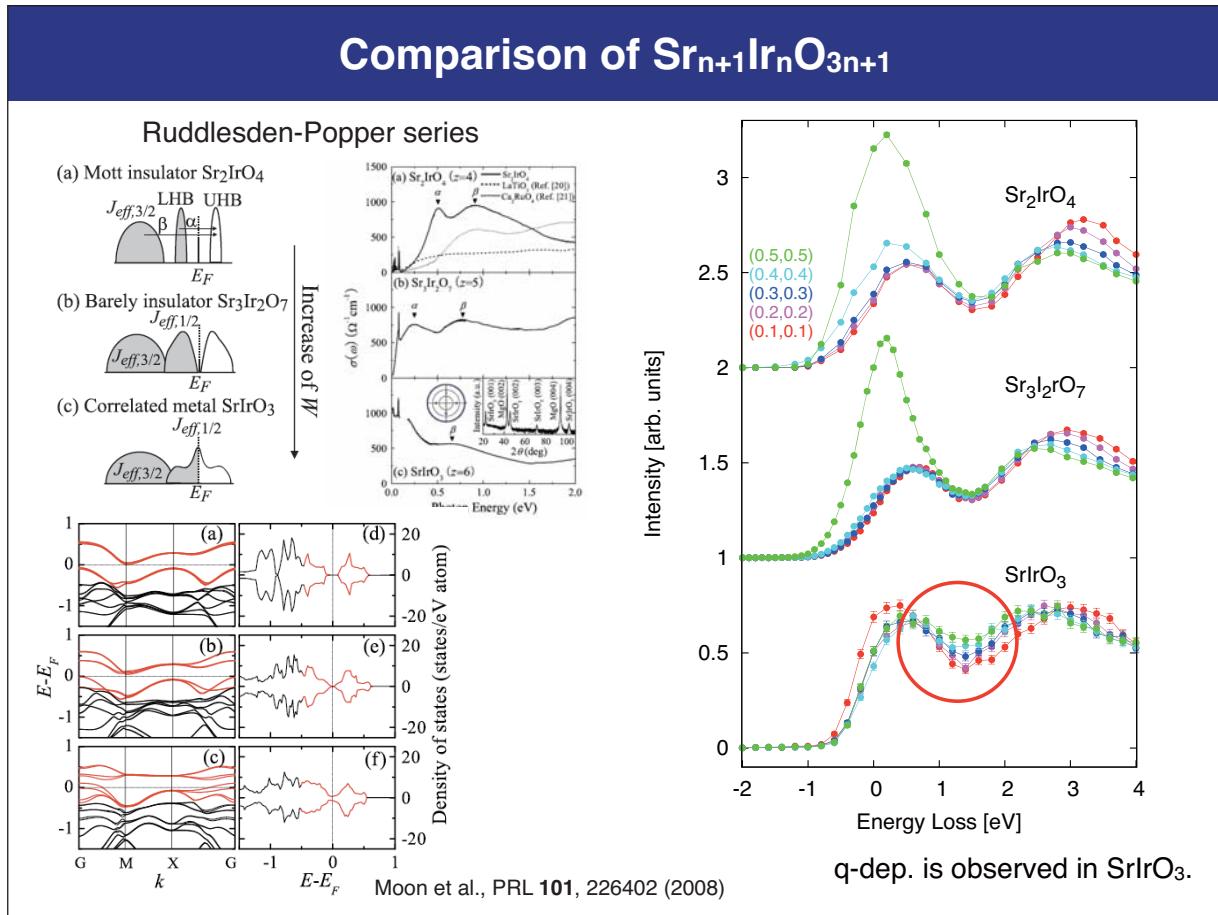
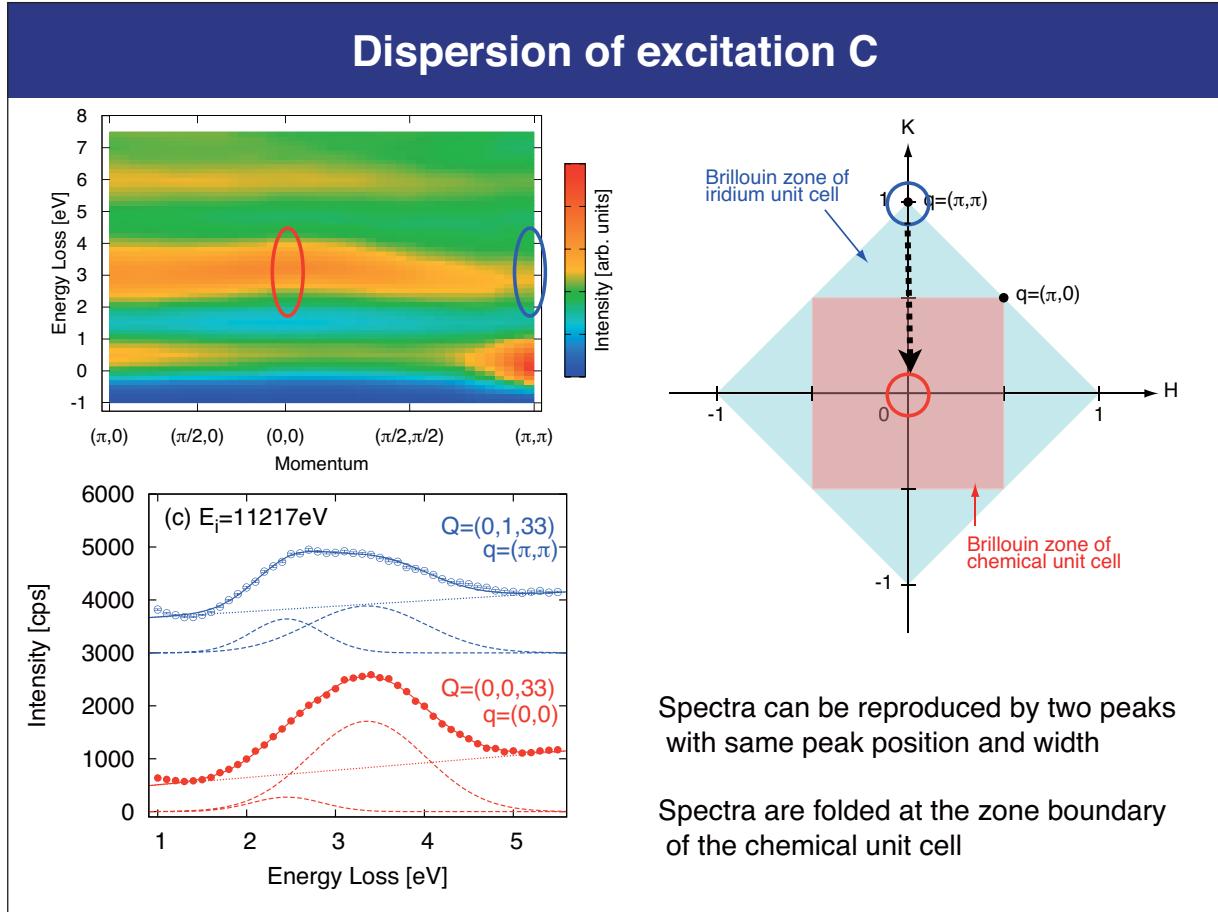
Excitations appear near the peak of XAS.  
Raman features are dominant.

Fluorescence are dominant.









## Summary

Resonant inelastic x-ray scattering of Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub> at the Ir L<sub>3</sub>-edge

- huge inelastic signals  
2-3 order higher intensity than K-edge
- momentum-independent the Mott gap excitation  
flat band by spin-orbit interaction
- possibly magnetic excitation at (π,π)
- band folding effect in charge-transfer excitation

Improvement of energy resolution (in progress)

- upgrade of monochromator system (with Riken)
- good analyzer (with APS)
- new detector (with JASRI)

## 5. Theory on Mott transition, magnetism, and Z2 and U(1) topology for pyrochlore iridates

**Shigeki Onoda**

RIKEN (*The Institute of Physical and Chemical Research*)



## Z2 topological insulator

Time-reversal invariant momenta

$$\Gamma_{i=(n_1 n_2 n_3)} = (n_1 \mathbf{b}_1 + n_2 \mathbf{b}_2 + n_3 \mathbf{b}_3)/2$$

Fu-Kane-Mele 2007

Moore-Balents 2007

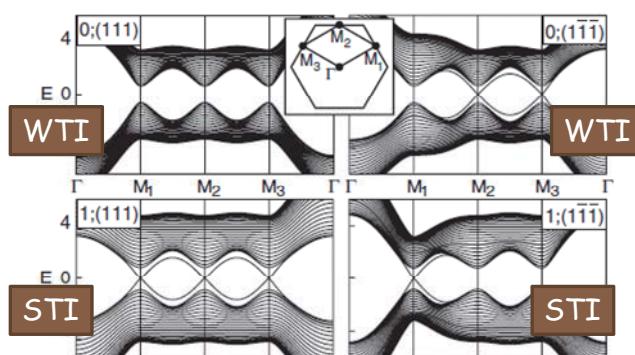
The strongly topological index

$$(-1)^{\nu_0} = \prod_{n_j=0,1} \delta_{n_1 n_2 n_3},$$

3 Weakly topological indices

$$(-1)^{\nu_{i=1,2,3}} = \prod_{n_j \neq i; n_i=1} \delta_{n_1 n_2 n_3}.$$

Diamond lattice with SOI



Surface massless Dirac fermions

Laboratory for a mirror image  
of a magnetic monopole  
S.C. Zhang

Bi2Se3, Bi2Te3, and many others.

Cava, Hasan, ...



# Quantum anomalous Hall effect

In a translation-invariant insulating state,

$$\sigma_{ij}^{AH-int} = -\varepsilon_{ij\ell} \frac{e^2}{\hbar} \sum_n \int \frac{dk}{(2\pi)^d} f(\varepsilon_n(\mathbf{k})) b_n^\ell(\mathbf{k})$$

U(1) Chern number

Nagaosa-Sinova-SO-MacDonald-Ong RMP (2010)  
For QHE, Thouless-Kohmoto-Nightingale-Nijs (1982)

$a_n(\mathbf{k}) = i \langle n, \mathbf{k} | \nabla_{\mathbf{k}} | n, \mathbf{k} \rangle$  Berry-phase connection

$b_n(\mathbf{k}) = \nabla_{\mathbf{k}} \times a_n(\mathbf{k})$  Berry-phase curvature

3D quantum AHE

$$\sigma_{ij} = \varepsilon_{ij\ell} \frac{e^2 K^\ell}{h 2\pi}, \quad \mathbf{K} = \sum_n \mathbf{K}_n, \quad \mathbf{K}_n = -\frac{1}{2\pi} \int_{F.B.Z.} d^3k f(\varepsilon_{nk}) \mathbf{b}_{nk}.$$

It has never been observed either experimentally or theoretically!



# Pyrochlore oxides $A_2B_2O_7$

Possible A-site elements  
and B site elements

Gardner-Gingras-Greedan RMP (2010)

Period	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13/II	14/IV	15/V	16/VI	17/VII
1	Li	Be															
2	Na	Mg															
3	K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	
4	Ca	Sc	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Si	P	S	
5	Rb	Si	Y	Zr	Nb	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	Ge	As	In	Sn	Br	
6	Cs	Ba	La-Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	Xe	
7	Fr	Ra	Ac-Lr	Unq	Unp	Unh	Uns	Uno	Une	.....	.....	.....	.....	.....	.....	.....	.....

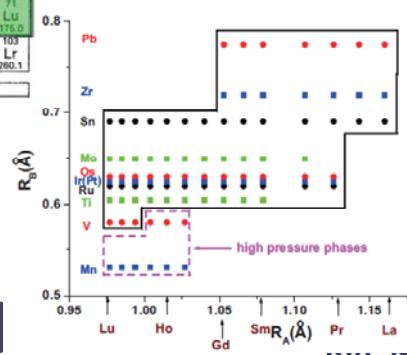
U

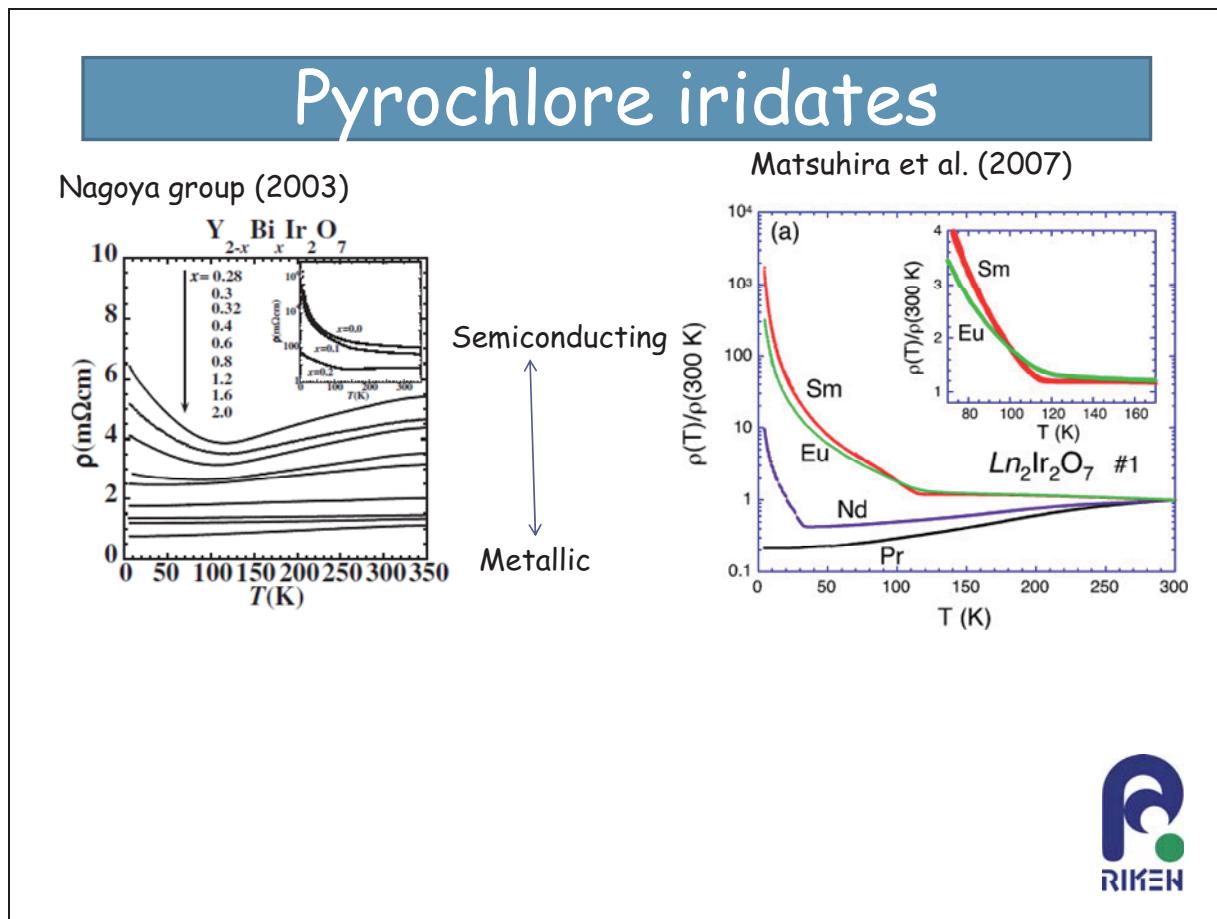
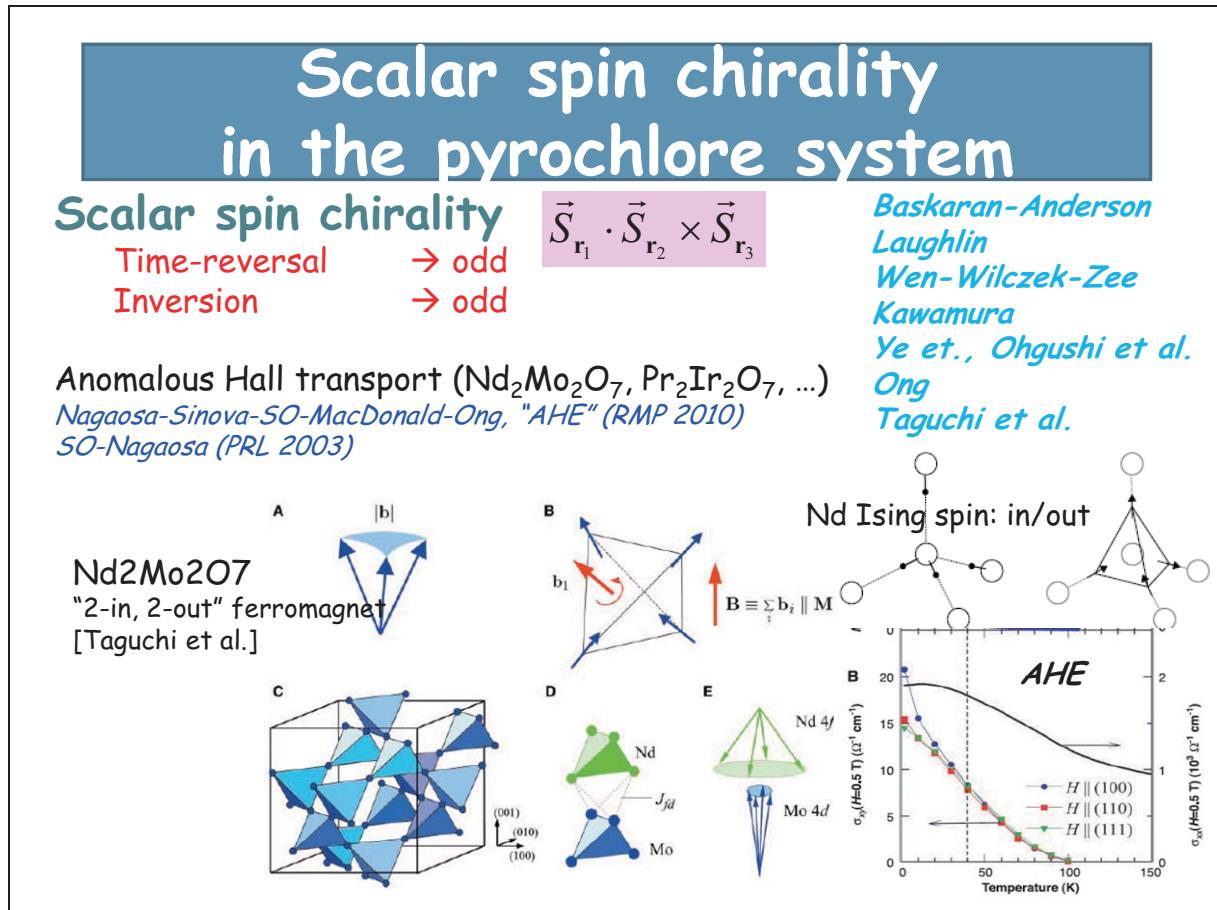
Spin-orbit coupling

U

U

Subramanian and Sleight, 1993





# Strong topological insulator on the pyrochlore lattice

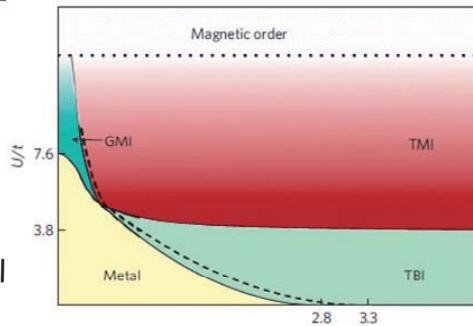
Guo-Franz (2009)

- Single-band Pyrochlore-lattice model

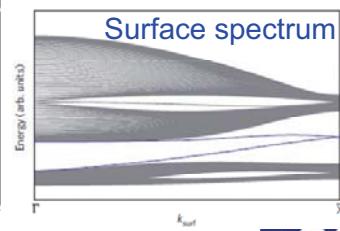
Pesin-Balents, Nature Physics (2010)

- Pyrochlore iridate
- $t_{2g}$  orbitals with a large spin-orbit coupl
- Neglecting the trigonal crystal field
- Slave rotor approximation

$$d_{Ri\alpha} = e^{-i\theta_{Ri}} f_{Ri\alpha}$$

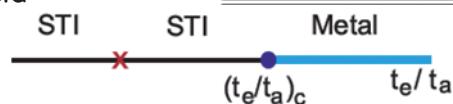


	$E_1$	$E_2$	$E_3$	$E_4$
$\Gamma(0, 0, 0)$	+	+	+	+
$L_0(\pi, \pi, \pi)$	-	-	+	-
$L_1(-\pi, \pi, \pi)$	+	+	-	+
$L_2(\pi, -\pi, \pi)$	+	+	-	+
$L_3(\pi, \pi, -\pi)$	+	+	-	+
$X_1(2\pi, 0, 0)$	$\epsilon$	$\bar{\epsilon}$	$\epsilon'$	$\bar{\epsilon}'$
$X_2(0, 2\pi, 0)$	$\epsilon$	$\bar{\epsilon}$	$\epsilon'$	$\bar{\epsilon}'$
$X_3(0, 0, 2\pi)$	$\epsilon$	$\bar{\epsilon}$	$\epsilon'$	$\bar{\epsilon}'$



Yang-Kim (2010)

- STI (1;000) is stable under a sma
- trigonal crystal field



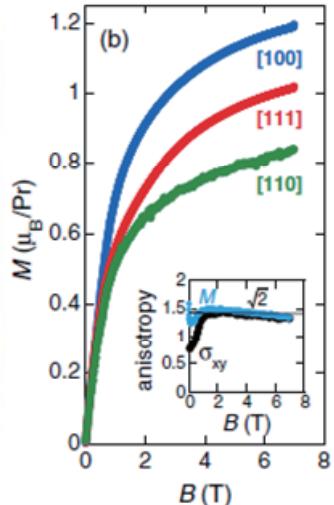
## Role of rare-earth moments



# Chiral spin state in $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$

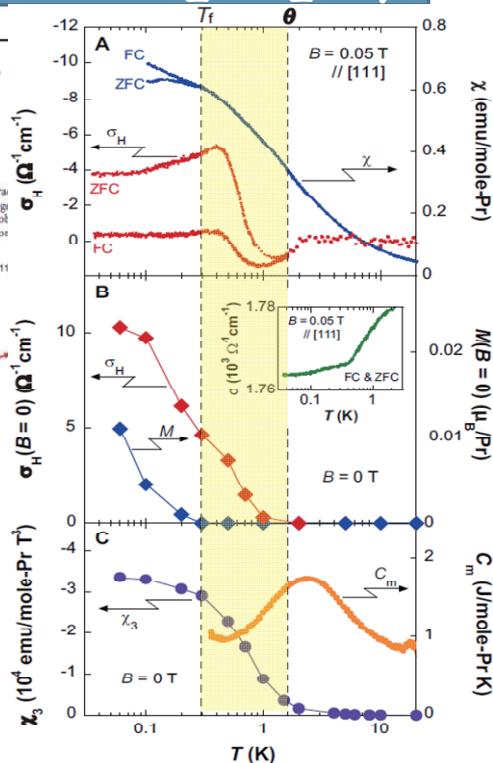
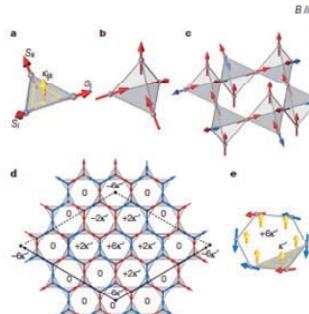
Time-reversal symmetry breaking and spontaneous Hall effect without magnetic dipole order

Yo Machida<sup>1†</sup>, Satoru Nakatsuji<sup>1</sup>, Shigeki Onoda<sup>2</sup>, Takashi Tayama<sup>1†</sup> & Toshiro Sakakibara<sup>1</sup>



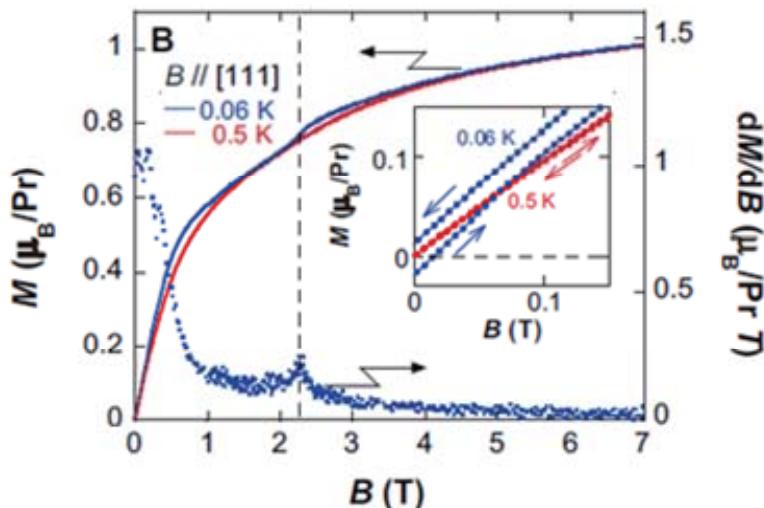
<111> Ising moments  
Machida et al., PRL '07

spins are essentially ordered. However, it is usually difficult to extract the scalar spin chirality  $\chi_{\text{S}}$  reliably unless the spins are long-range ordered<sup>1</sup>. In metallic magnets, on the other hand, a promising probe is available: the anomalous Hall effect (AHE)<sup>2,3,4</sup>, which is the spontaneous Hall effect at zero applied magnetic field.



# 2-in 2-out correlations in $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$

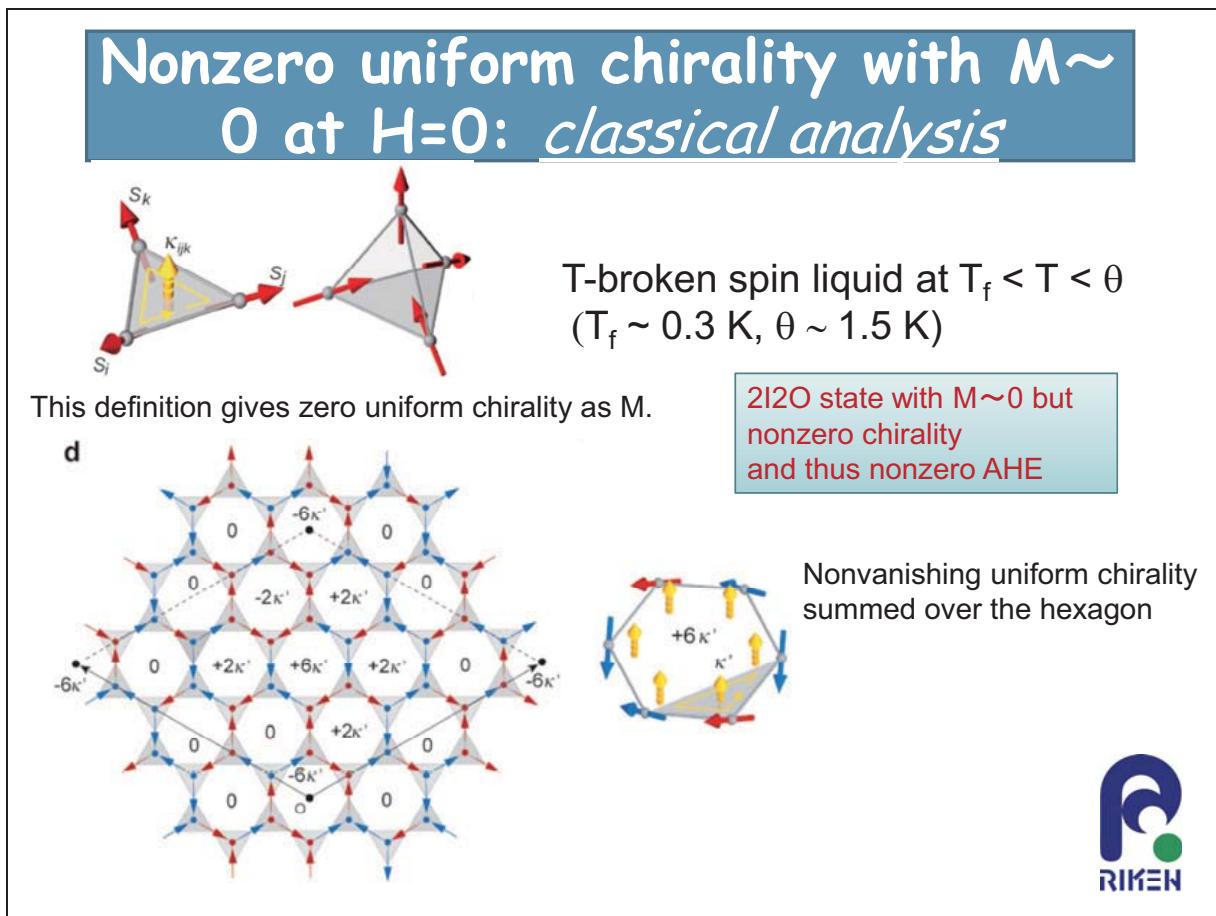
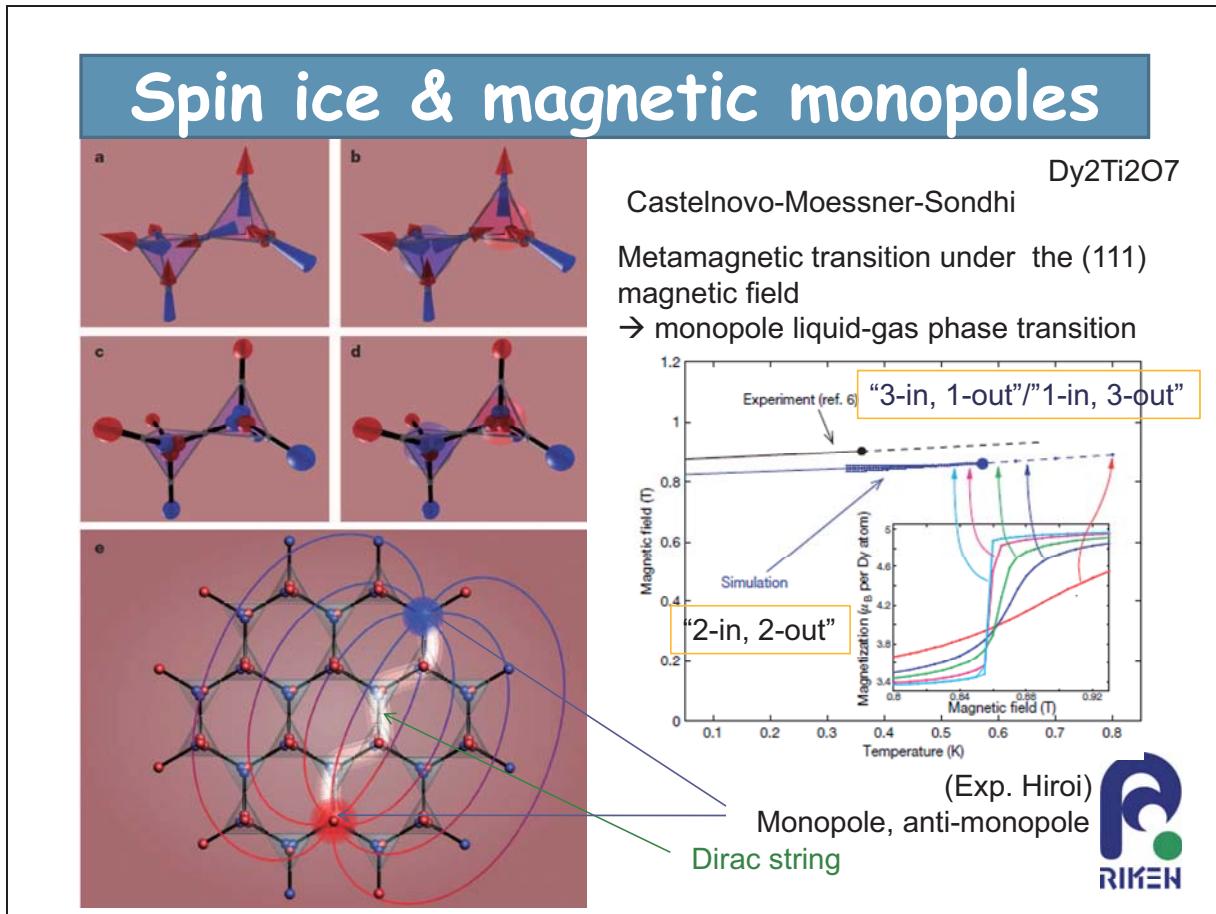
$\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  [Machida et al.]: <111>-Ising Pr moments



Metamagnetic transition only along  $B \parallel (111)$  @  $B_c \sim 2.3$  T  $\rightarrow J_{\text{eff}} \sim 1.4$  K  
 $\rightarrow$  "2-in, 2-out" states are favored

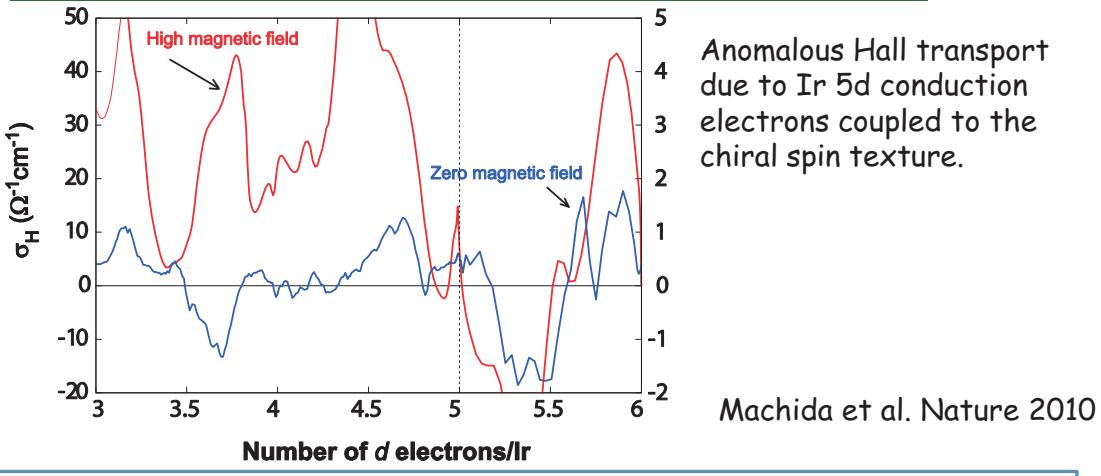
Similarity to dipolar spin ice but without a clear plateau





# Anomalous Hall effect

$$\sigma_{ij} = e^2 \hbar \sum_{n \neq n'} \int \frac{d^d \mathbf{p}}{(2\pi\hbar)^d} f(\varepsilon_n(\mathbf{p})) \frac{\langle \Phi_{nk} | J_k^i | \Phi_{n'k} \rangle \langle \Phi_{n'k} | J_k^j | \Phi_{nk} \rangle}{(E_{nk} - E_{n'k})^2} \neq 0$$



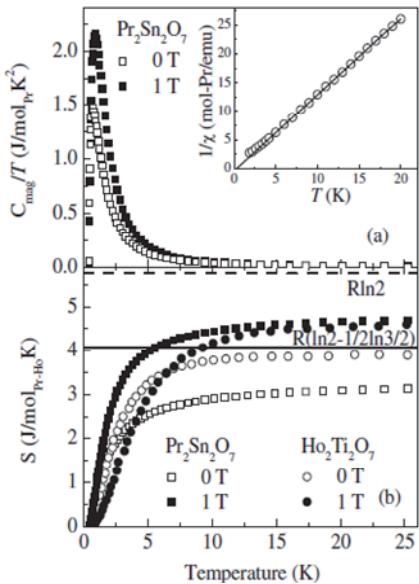
A tiny orbital magnetization due to delocalized motion of conduction electrons

$$L = \frac{m}{\hbar^2} \int \frac{dk}{(2\pi)^3} \sum_{n \neq n'} \theta(\mu - \varepsilon_n(k)) \mathbf{a}_{nn}(k) \times \mathbf{a}_{n'n}(k) (2\mu - \varepsilon_n(k) - \varepsilon_{n'}(k)) \sim 10^{-6} \mu_B / \text{Pr}$$

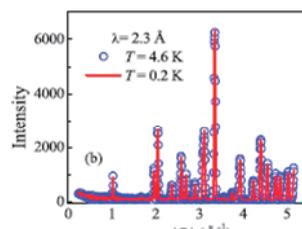
Resta, Vanderbilt



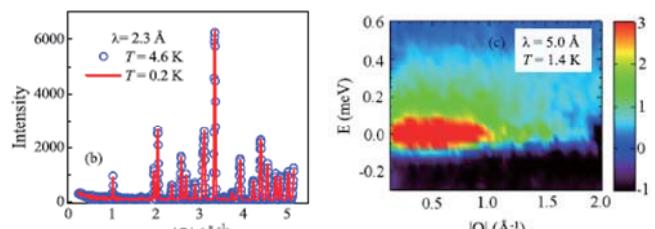
# Quantum nature of Pr moments "Dynamic spin ice" (Zhou et al. 2008) ?



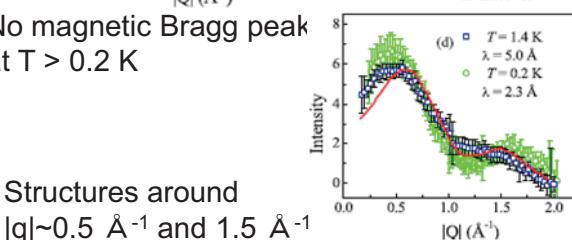
low-energy neutron-scattering intensity  
→ quantum nature



No magnetic Bragg peak  
at  $T > 0.2$  K



Structures around  
 $|q| \sim 0.5 \text{ } \text{\AA}^{-1}$  and  $1.5 \text{ } \text{\AA}^{-1}$



c.f. Dipolar spin ice:  $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ,  $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$

Similar thermodynamic properties in  $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$



# Quantum melting of spin ice

Macroscopic degeneracy → Spin ice freezing

Quantum entanglement among otherwise degenerate states  
 → lifts the degeneracy  
 → suppresses the spin-ice freezing

Spin-1/2 with a strong Ising  $\langle 111 \rangle$  anisotropy → U(1) spin liquid  
 [Hermelé, Fisher, & Balents]

Realistic case → search for smaller rare-earth magnetic moments  
 Pr (J~4)? Nd (J~5/2)?

$\text{Pr}_2\text{TM}_2\text{O}_7$  ( $\text{TM}$  : transition-metal)

Small magnetic dipolar interaction for Pr ( $\mu \sim 2.7\mu_B$ ).

Magnetic dipole interaction  $\sim 0.1\text{K}$

Superexchange interaction is important

SO-Tanaka, PRL 2010, arXiv:1011.4981



## Effective model ( $\text{Pr}_2\text{TM}_2\text{O}_7$ )

$\text{Pr}^{3+}$  ion:  $f^2$  LS multiplet ( $J = 4$ ) + CEF (O ion)

→ Non-Kramers magnetic doublet

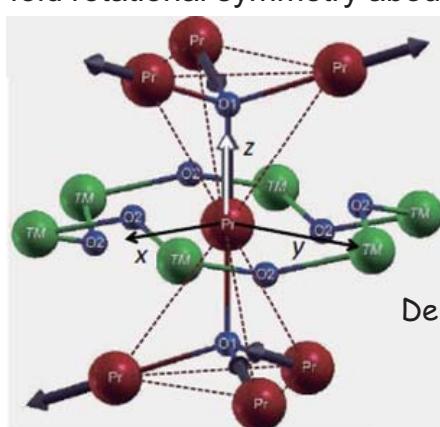
$$|\sigma\rangle = \alpha|M=4\sigma\rangle + \sigma\beta|M=\sigma\rangle - \gamma|M=-2\sigma\rangle$$

$$\begin{aligned} |M_J\rangle &= \sum_{M_L, M_S} C_{M_J, M_L, M_S} |2; 5, M_L; 1, M_S\rangle \\ &= \sum_{M_L, M_S} \tilde{C}_{M_J, m, m', s, s'} f_{m,s}^\dagger f_{m',s'}^\dagger |0\rangle, \end{aligned}$$

Inelastic neutron scattering

D3d crystalline electric field

3-fold rotational symmetry about  $z = \langle 111 \rangle$



5th      1392 K ———  $\Gamma_1$

4th      1218 K ———  $\Gamma_2$

3rd      1044 K ———  $\Gamma_3$

2nd      580 K ———  $\Gamma_3$

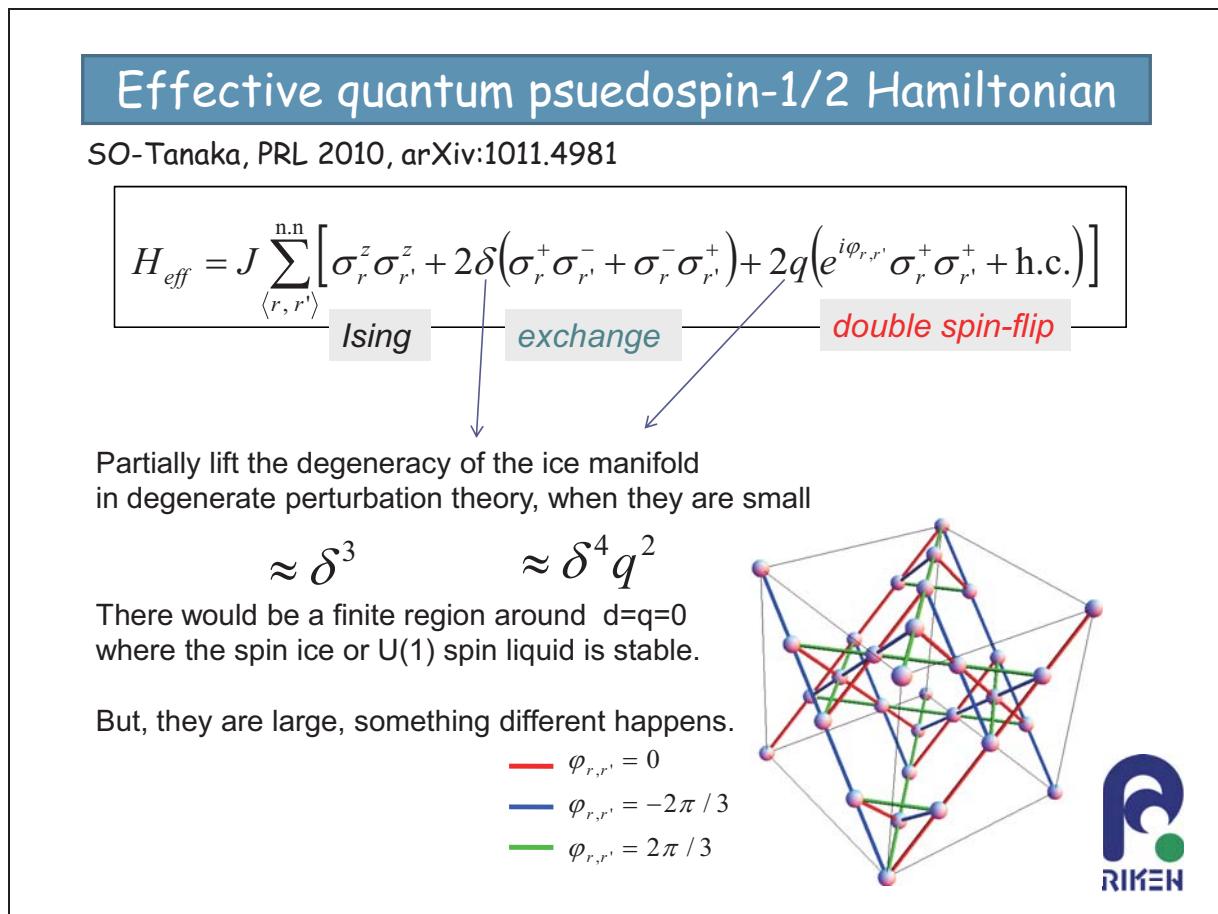
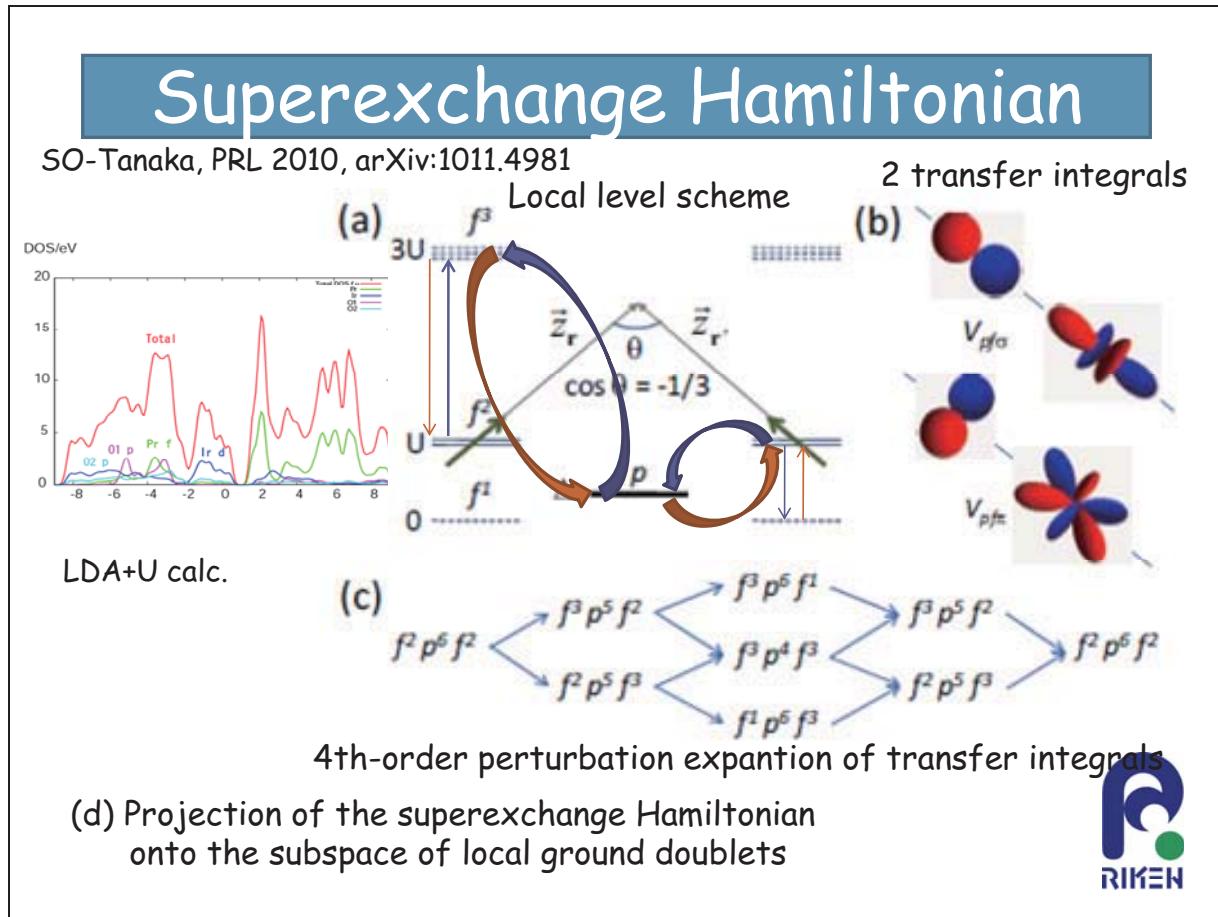
Derive an effective superexchange Hamiltonian for

1st      162 K ———  $\Gamma_1$

ground state      0 K ———  $\Gamma_3$

SO-Tanaka, PRL 2010, arXiv:1011.4981





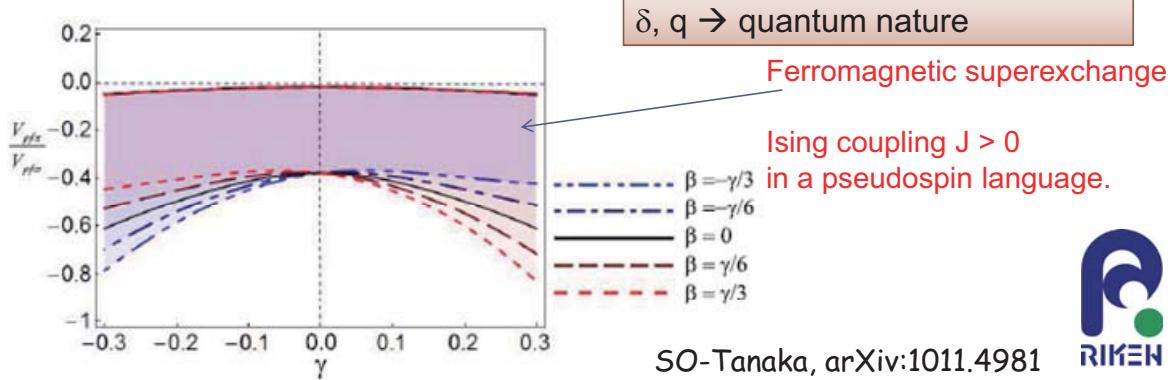
## Physical observables

$\sigma_r^z$  : atomic magnetic dipole moment /  $M_0$ (effective moment)  
 $\langle \sigma | \sigma_r^z | \sigma \rangle \propto \langle \sigma | J_r^z | \sigma \rangle \propto \sigma$

$\sigma_r^{x,y}$ : atomic quadrupole moment  $\langle \sigma | \sigma_r^\pm | -\sigma \rangle \propto \langle \sigma | \{ J_r^\pm, J_r^z \} | -\sigma \rangle$   
(atomic electric quadrupole moment )

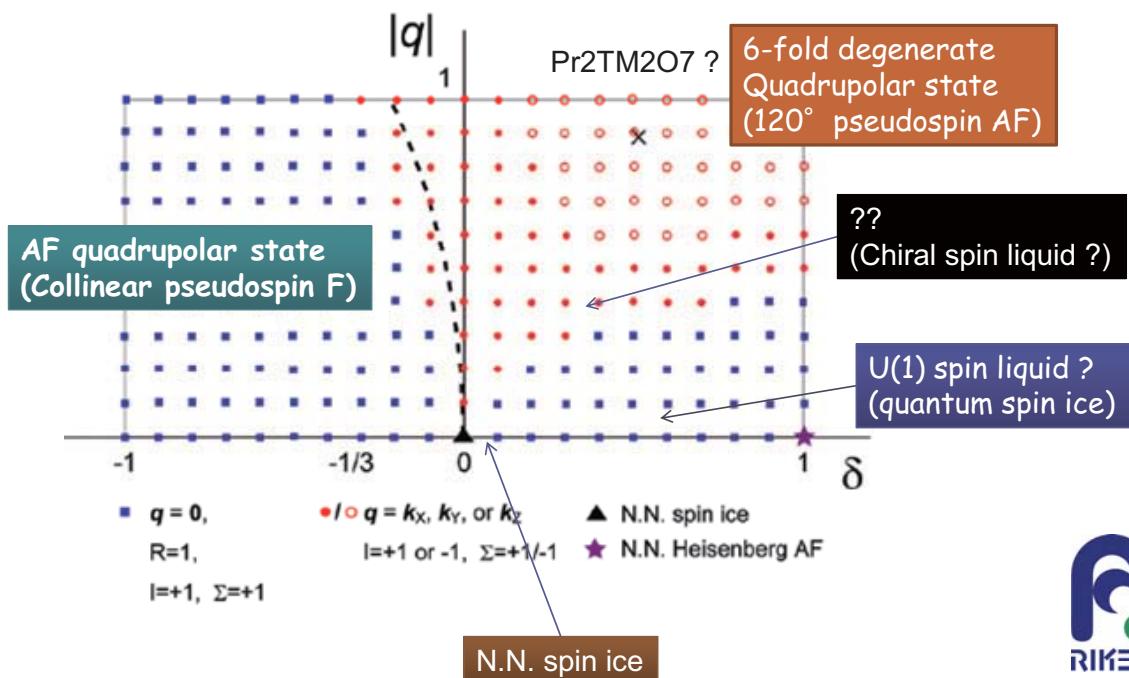
Remember that 4 local frames (x,y,z) are all different!

## Coupling constants

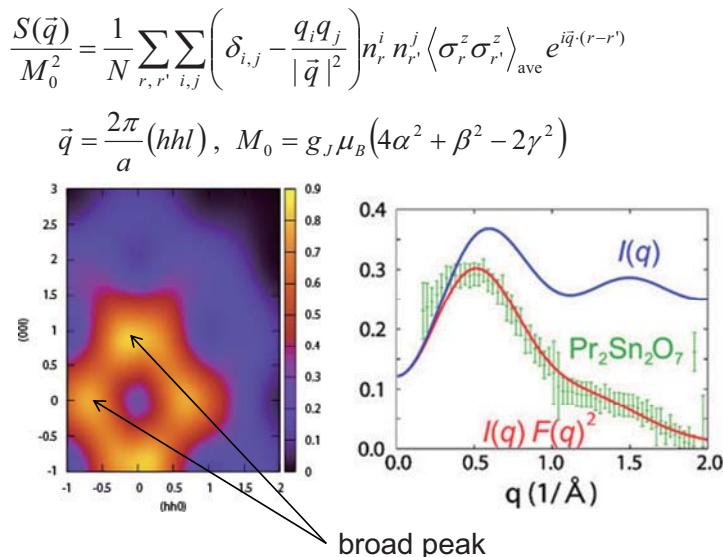


## 16-site cluster calculations

SO-Tanaka, arXiv:1011.4981

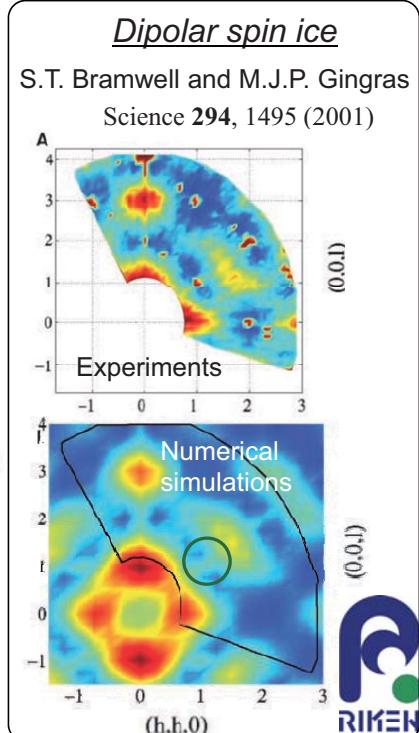


## Neutron scattering profile

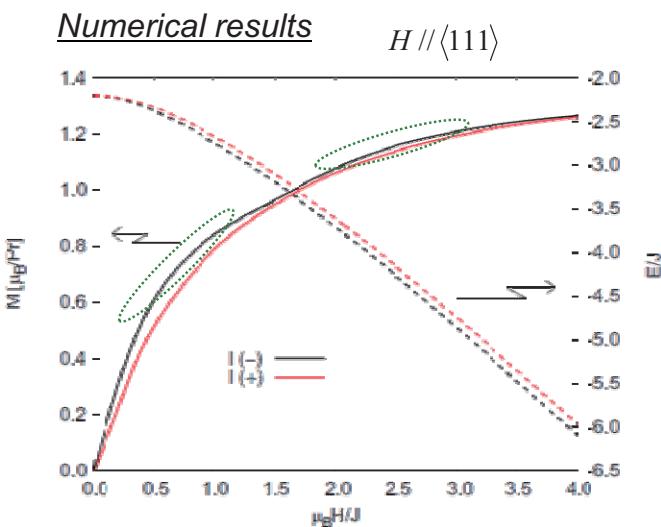


Structures around  $|q| \sim 0.5 \text{ \AA}^{-1}$  and  $1.5 \text{ \AA}^{-1}$   
Consistent with exp. on  $\text{Pr}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$  (Zhou et al.)

Pinch point singularity should be broadened  
because of violation of ice rule

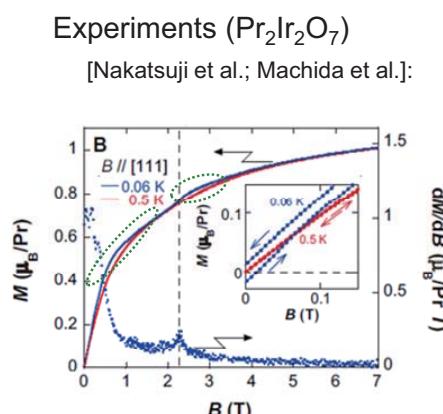


## Magnetization curve



Ground state  $\rightarrow \tau_I = -1$

Excited state  $\rightarrow \tau_I = +1$

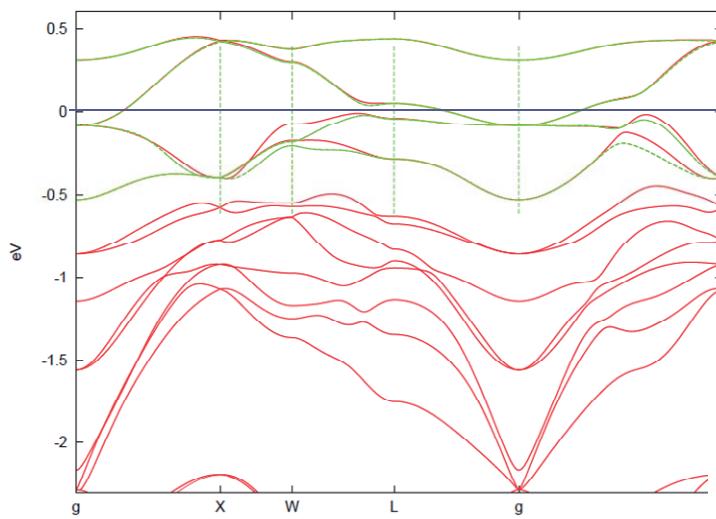


## Role of Ir electrons



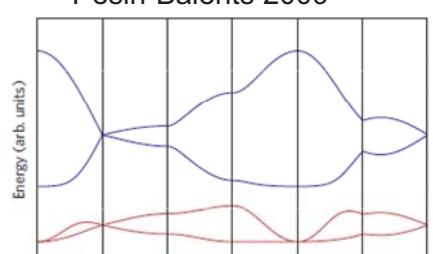
## Band structure

LSDA based on the fully relativistic Dirac equation  
(OPENMX by Ozaki, Yu, et al.)  
SO et al.

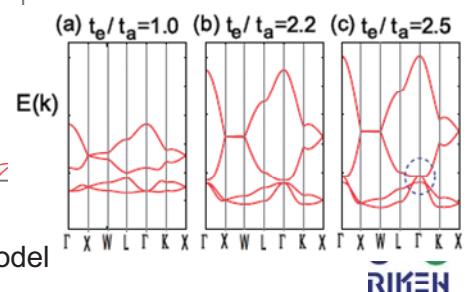


Totally different from the simple N.N. tight-binding model

$j_{eff} = 1/2$  models  
Pesin-Balents 2009



Yang-Kim 2010



## Mott transition

Dynamical mean-field calculation  
for the effective single-band model

SO-SO

Metal

Mott insulator

Properties of spinons in insulators to be clarified!

Gapped or gapless with spinon Fermi surface?

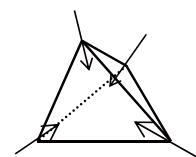


## Hartree-Fock approximation

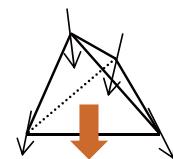
Effective single-orbital tight-binding model  
+ Local Coulomb repulsion

Metastable magnetic structures

4-in, 4-out antiferromagnetic insulator



Ferromagnetic Mott insulator is also possible  
3D quantum AHE!



Sm<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, Eu<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, ... ?

Noncollinear ferromagnet

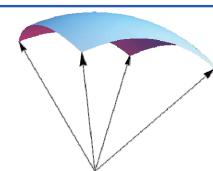


# Summary

- Effective highly quantum pseudospin-1/2 model for  $\text{Pr}_2\text{TM}_2\text{O}_7$ 
  - Ferromagnetic anisotropic superexchange interaction  
→ Incorporates “3-in, 1-out” into otherwise spin-ice states.
- Ferroquadrupolar ground state (Quantum melting of spin ice)
  - Consistent with Magnetization curve
  - Neutron scattering profile

■ *Pseudospin chirality*

$$\kappa_T = \sum_{l,m,n}^T \vec{\sigma}_l \cdot (\vec{\sigma}_m \times \vec{\sigma}_n)$$



*Indication of “chiral spin liquid” and “quantum spin ice”*

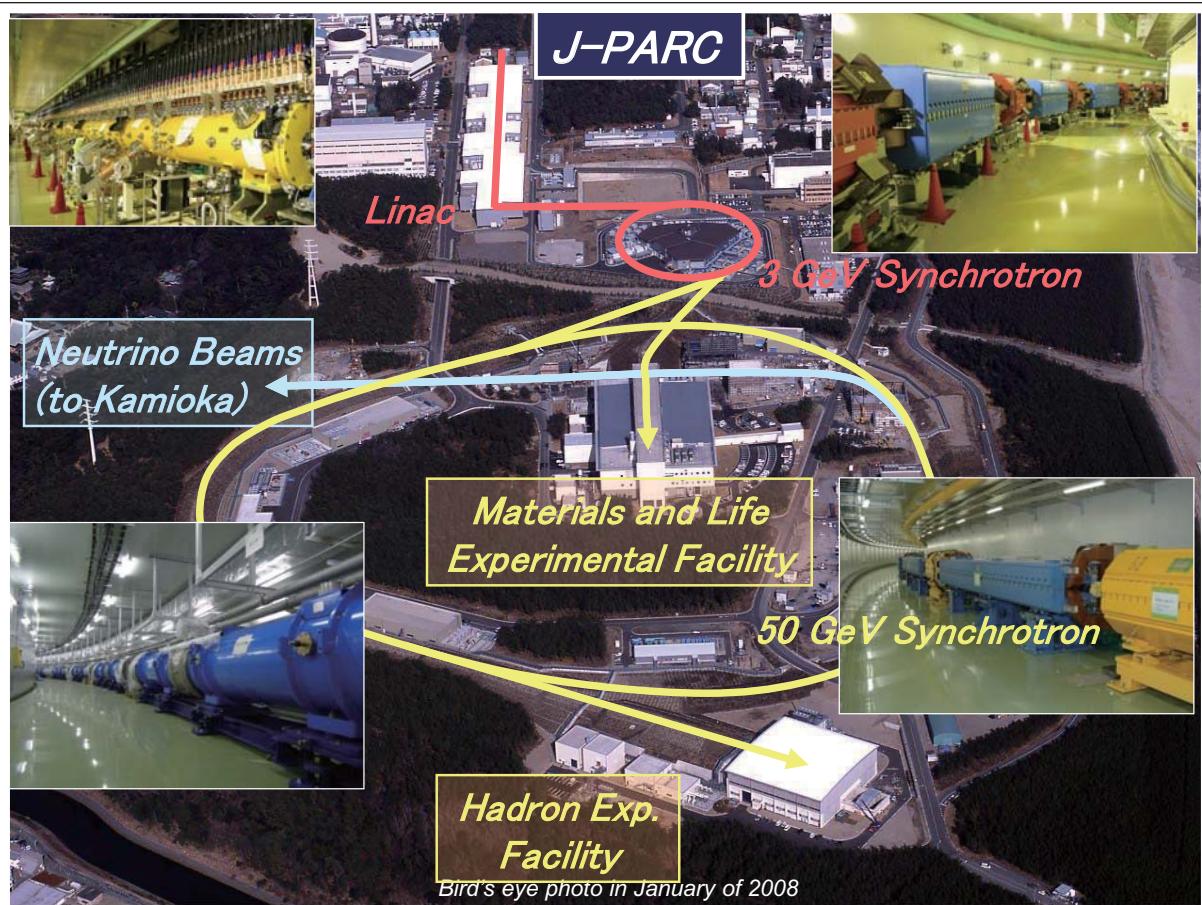
- Possible Mott-insulating 3D quantum AHE
- No indication of time-reversal invariant Z2 STI in a realistic model

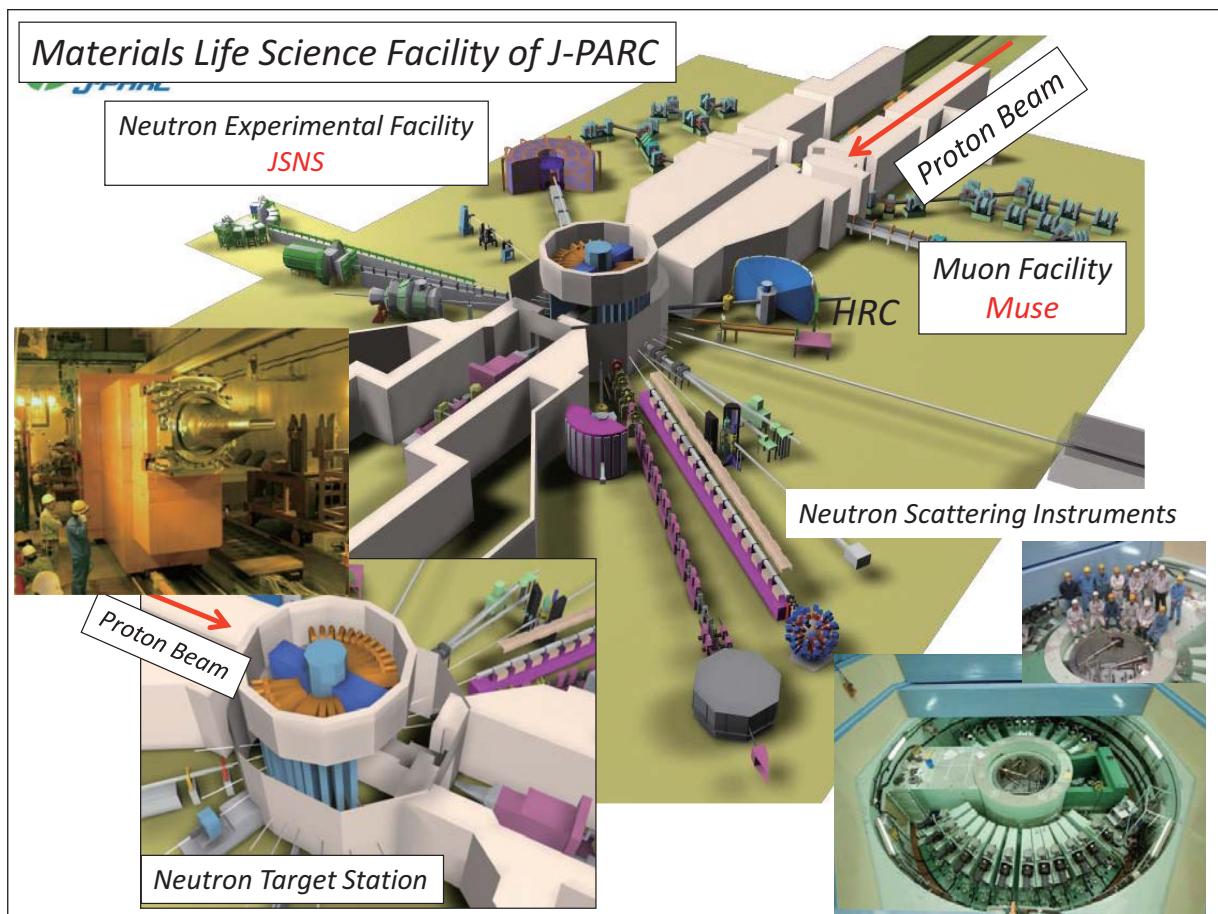
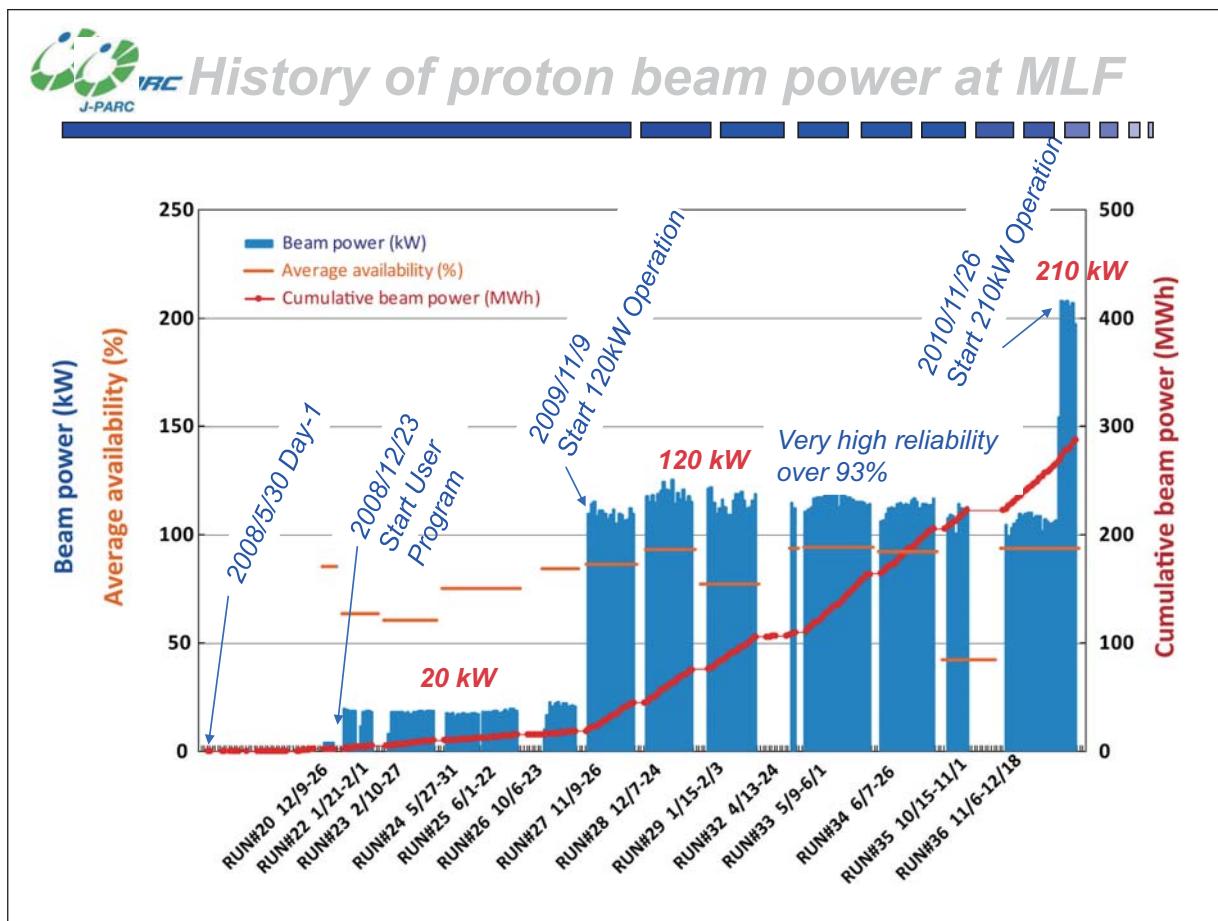


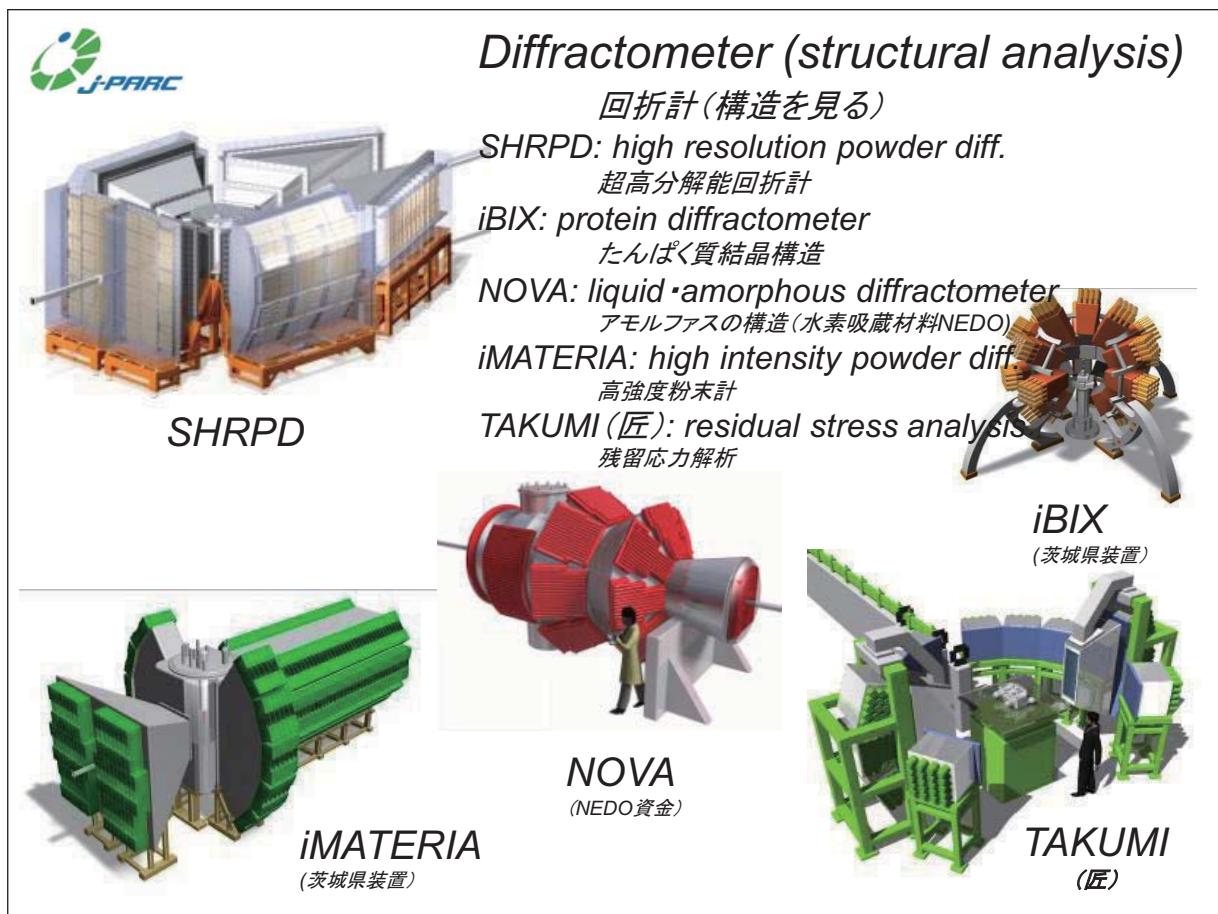


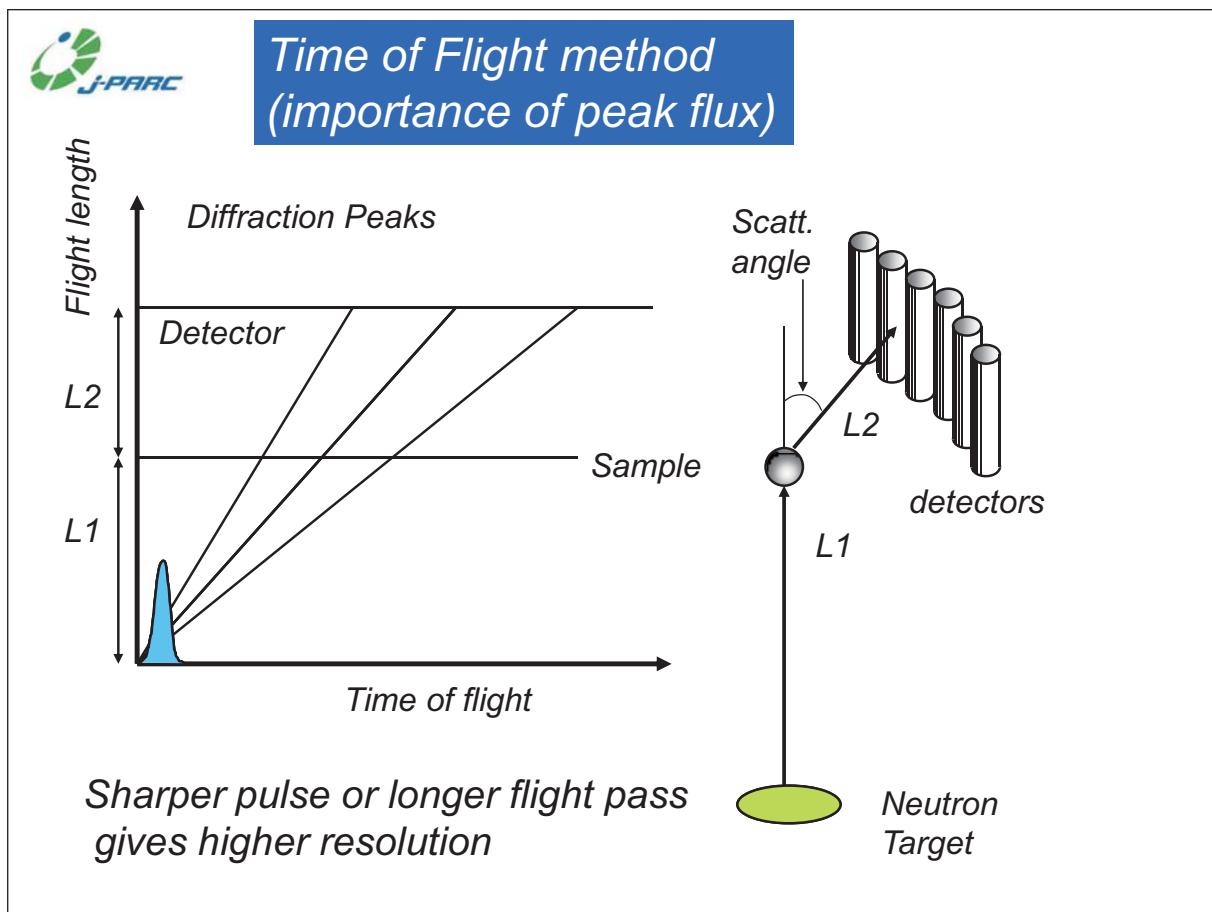
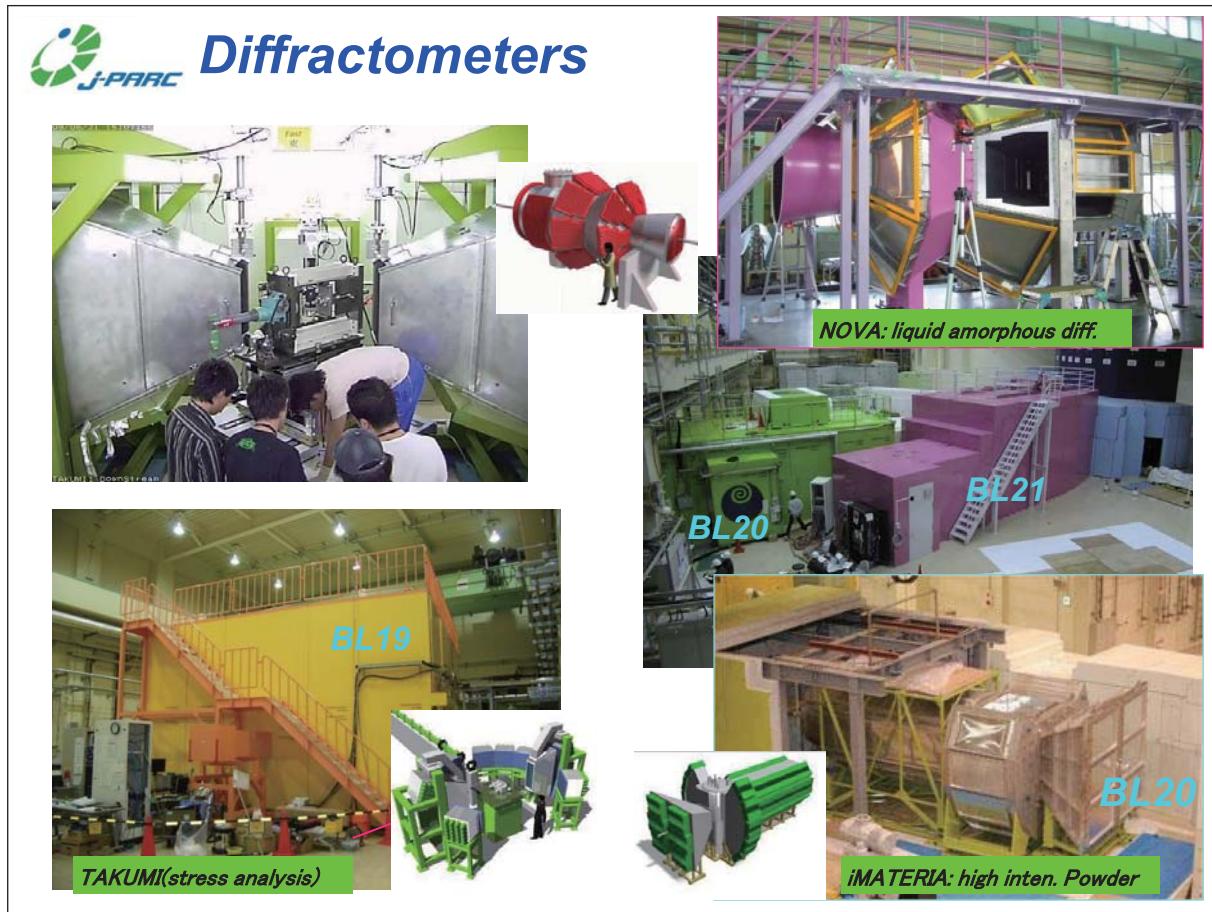
## 6. Present status of J-PARC/MLF (Materials Life Science Facility, JSNS, MUSE)

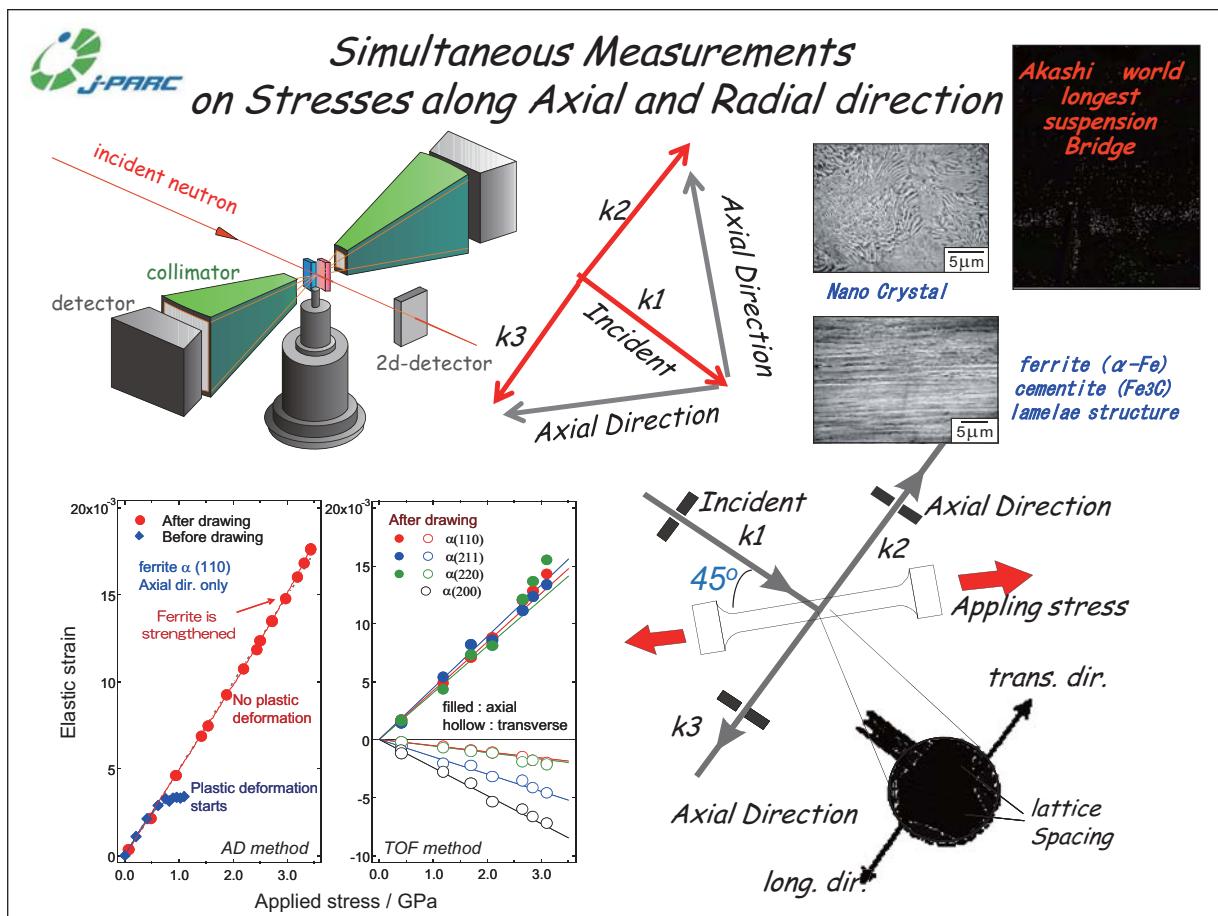
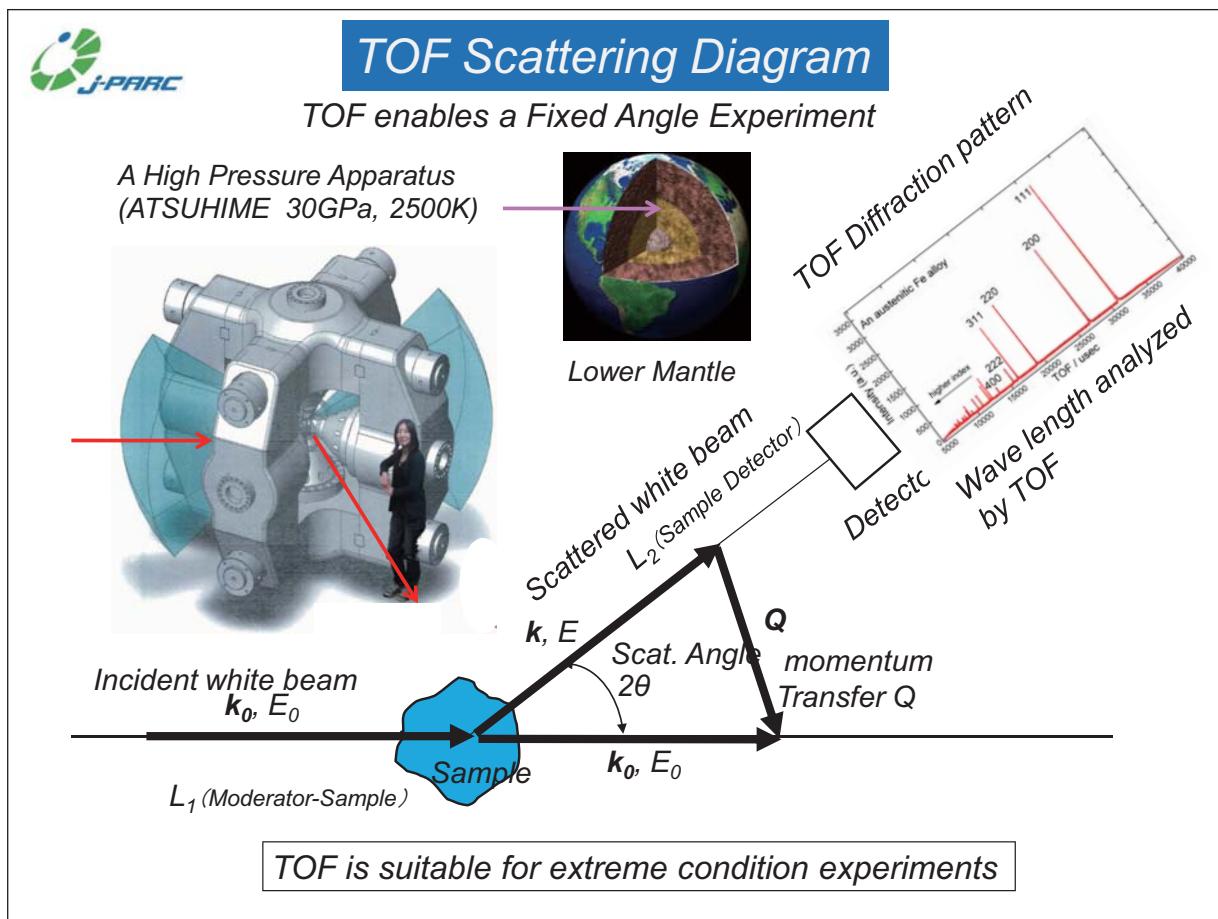
J-PARC Center/ JAEA  
Masatoshi Arai











### Residual Stress in the ITER TF cable

*Superconducting characters are strongly depend on internal stresses in cables.*

*Cable contains only Nb<sub>3</sub>Sn of 6%*

*neutron transmitted length of 60mm*

*good statistics of peaks in several hours at 120kW*

*the observation can bring improvements on Nb<sub>3</sub>Sn filaments*

*Contrac of 0.23% along axial direct.*

11

### Thermo-Mechanical Processing in-situ measurement

#### Importance of Event Recording

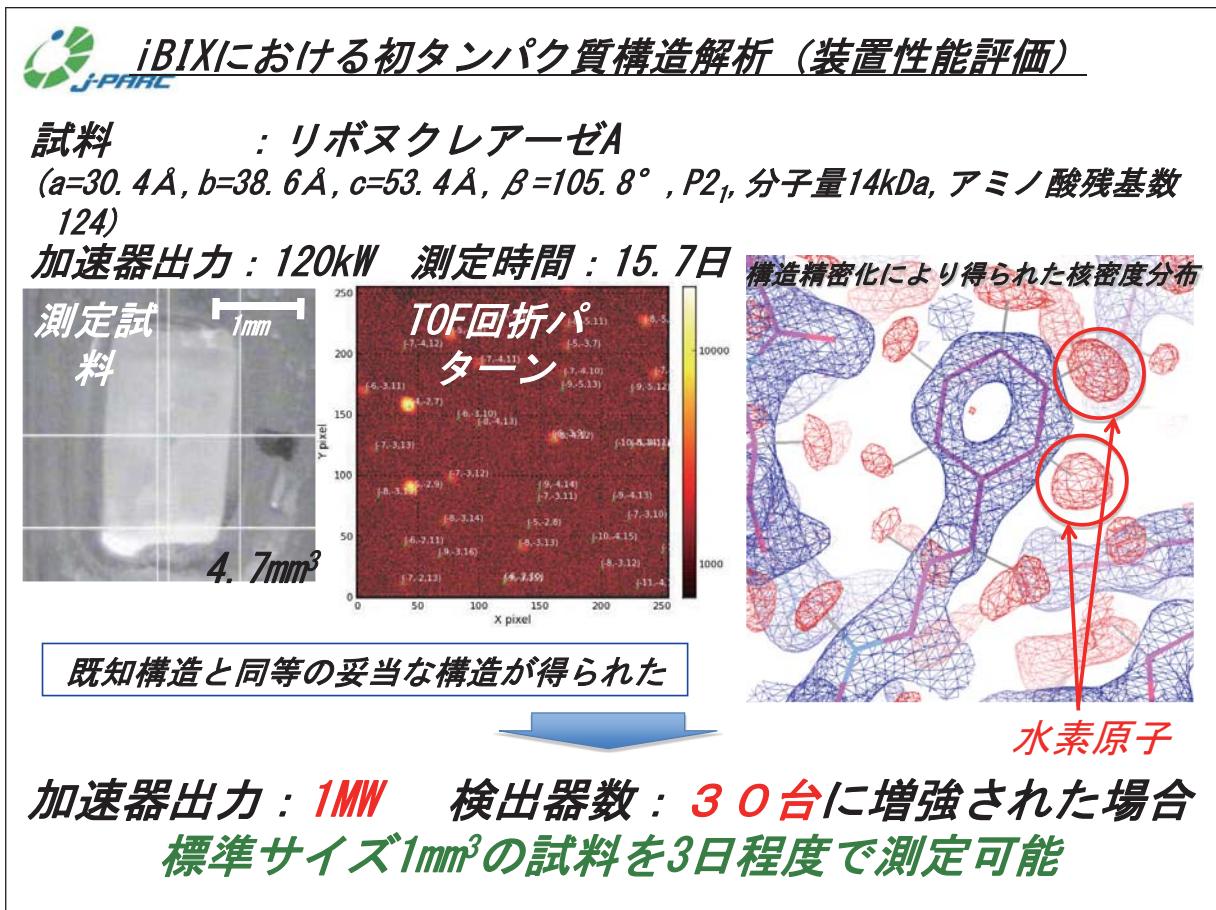
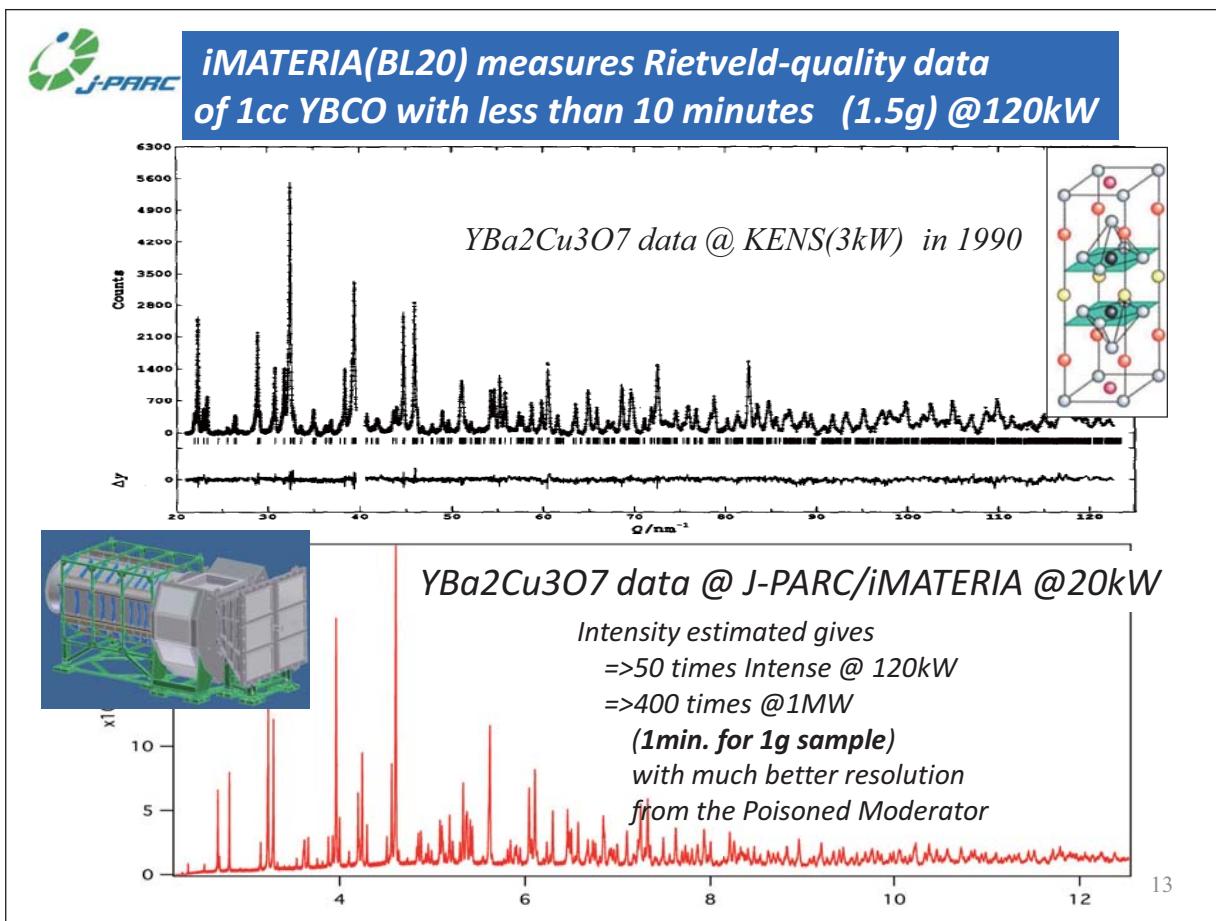
*Finding Optimized Process in-situ to manufacture durable steel*

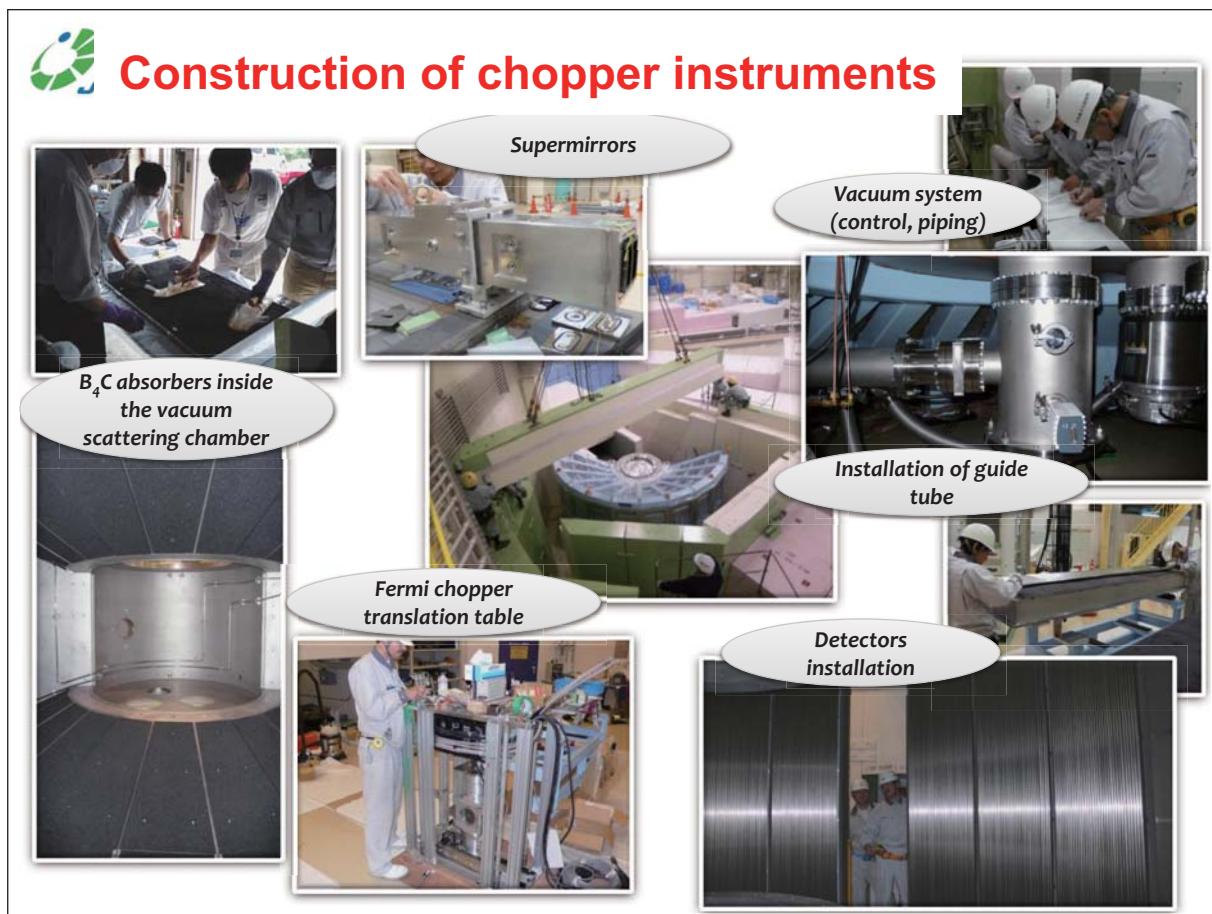
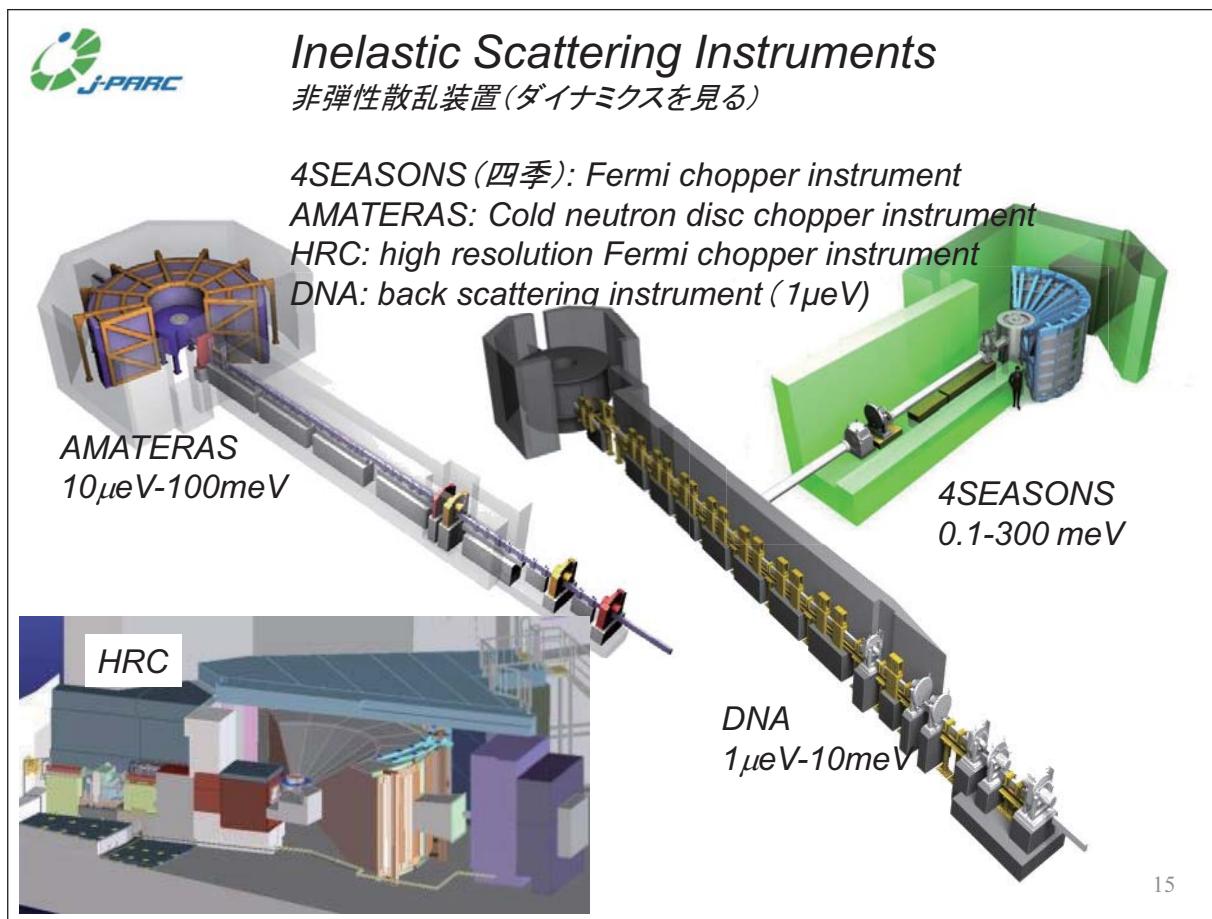
*⇒ Accelerate developments*

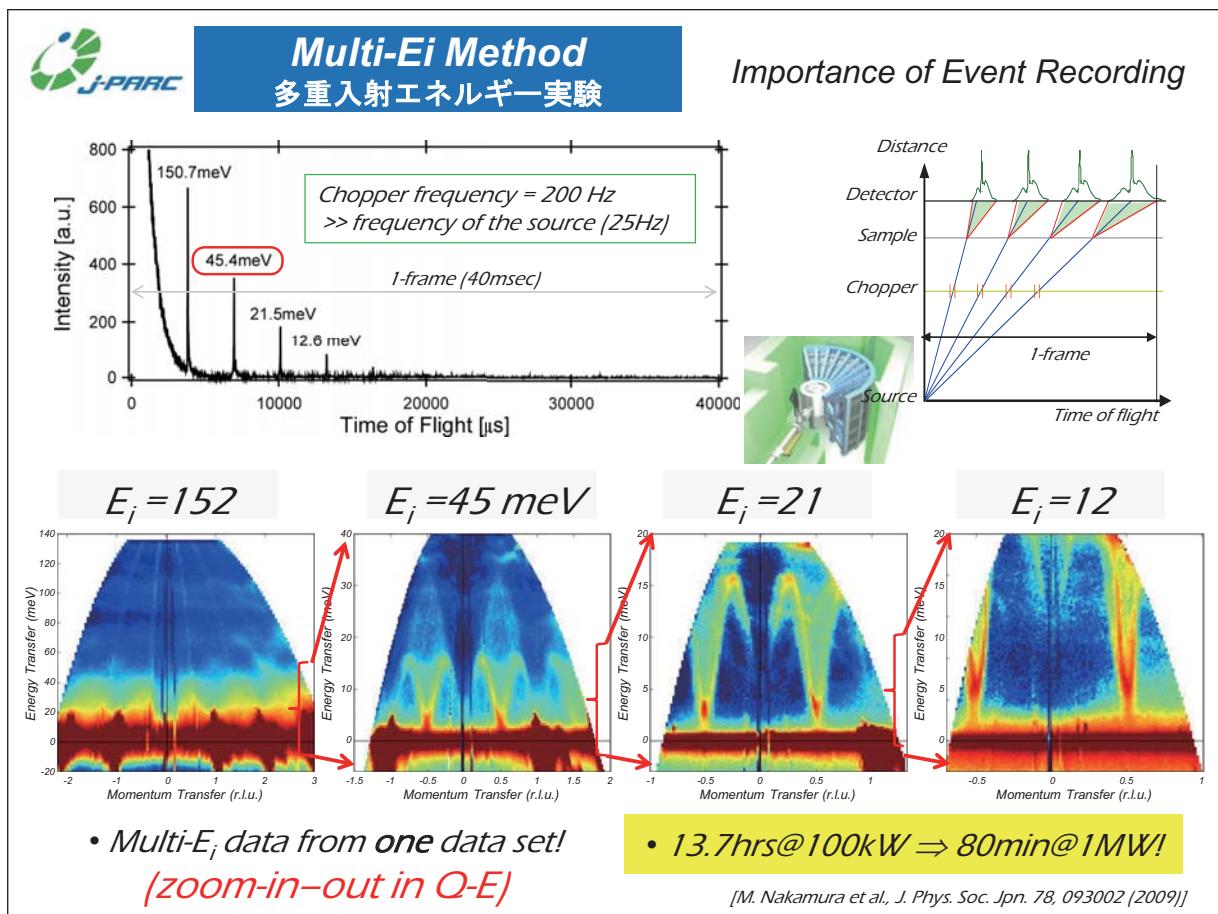
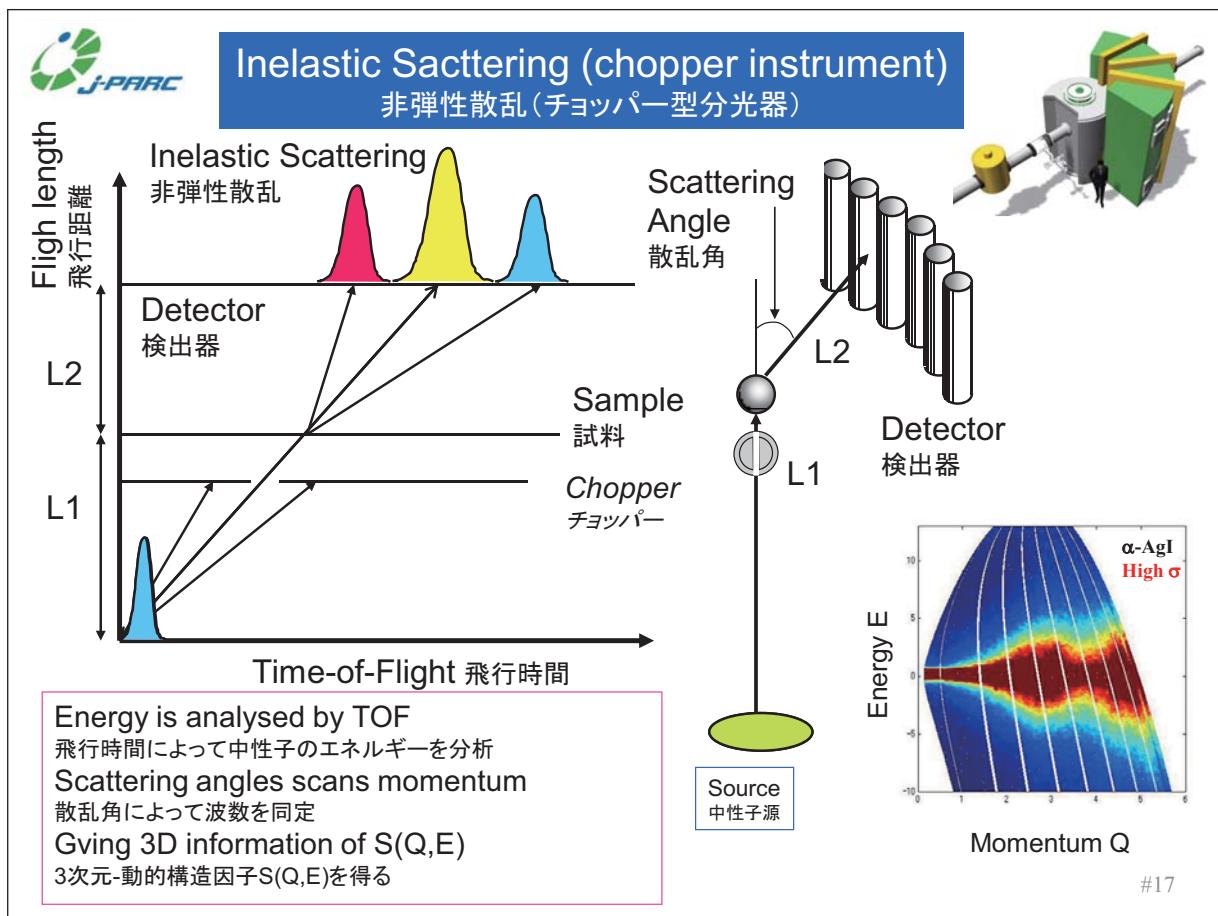
*Sample : 2Mn-0.2C-Steel*  
*Specimen : φ7mm, length 14mm*

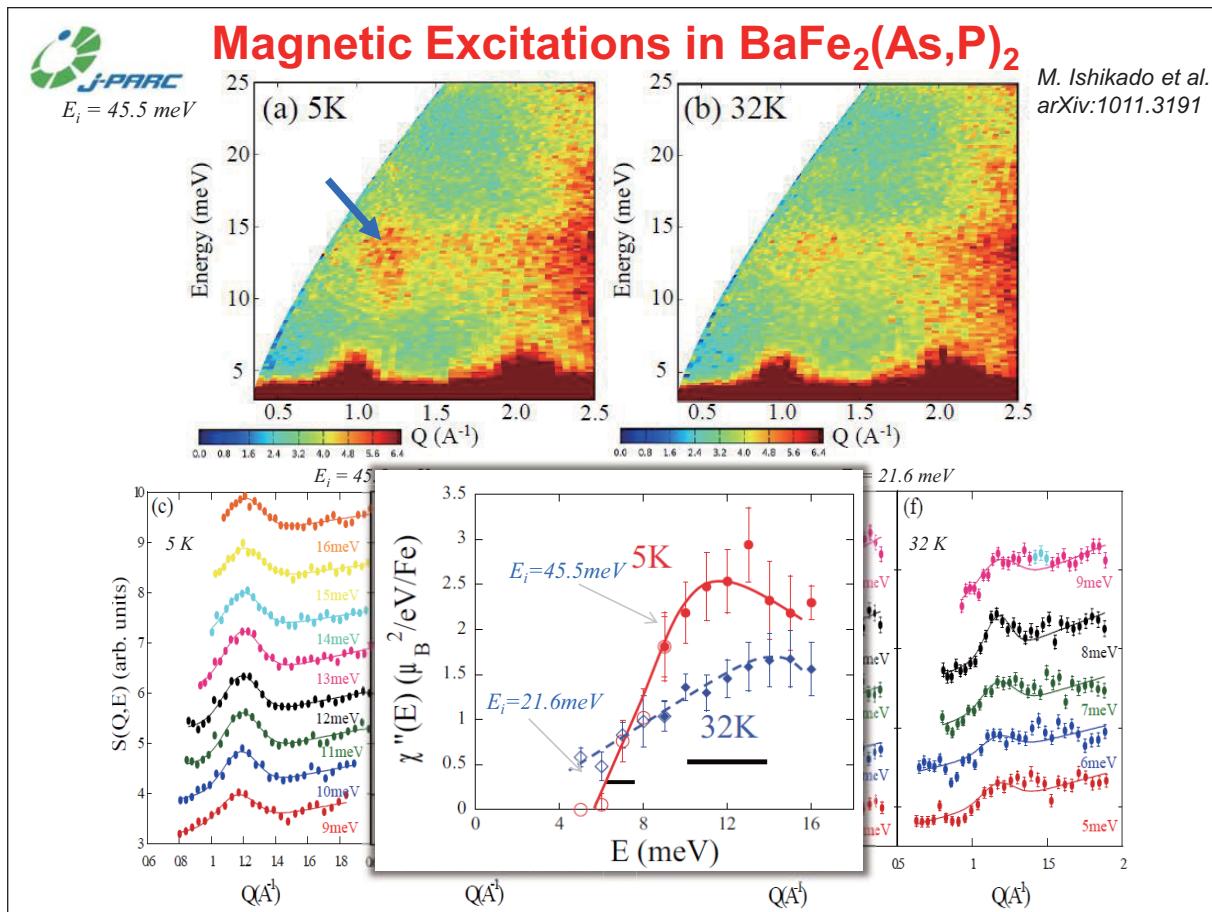
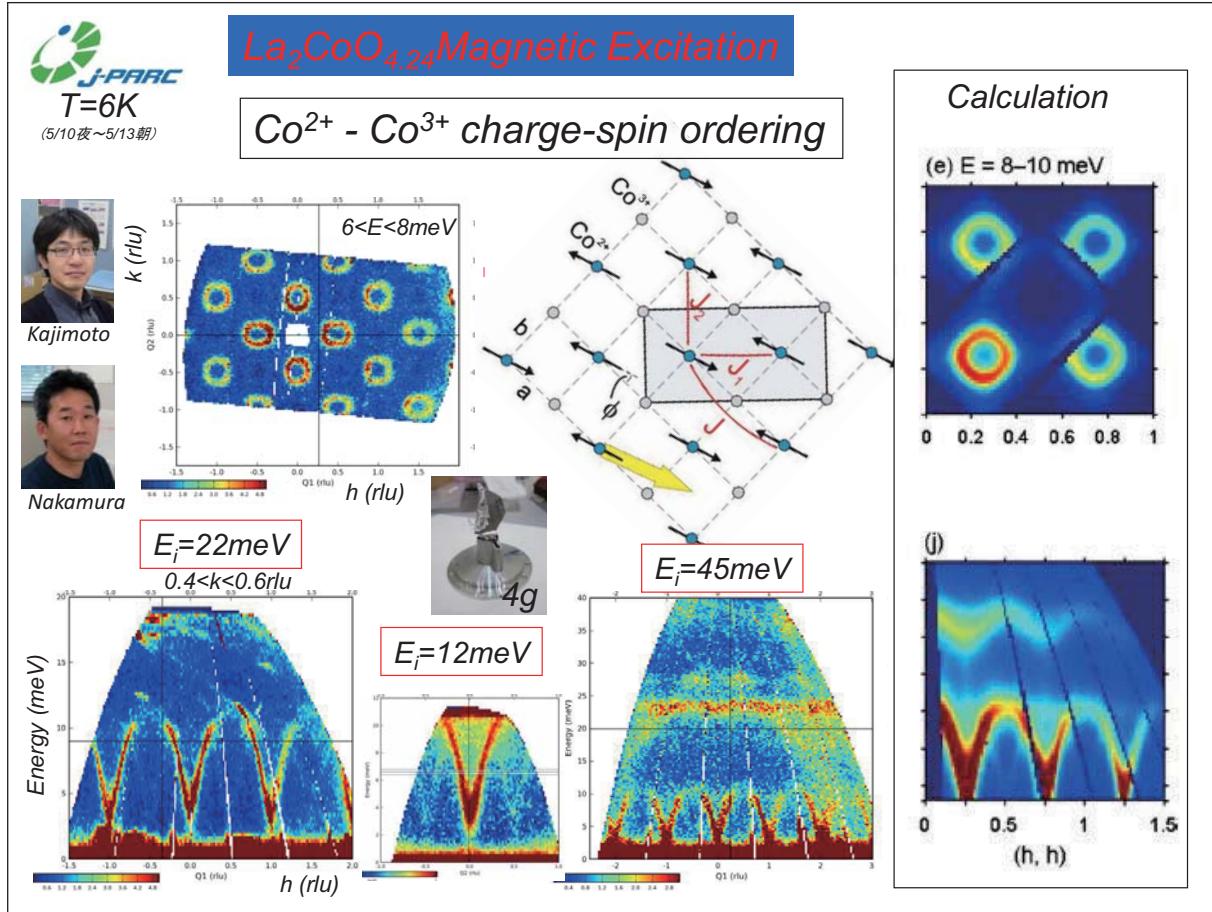
*RT → 900°C, 10°C/s*  
*900°C, 10min hold*  
*900°C → 700°C, 10°C/s*  
*15% compression at 700°C*  
*700°C, 10min hold, cooling*

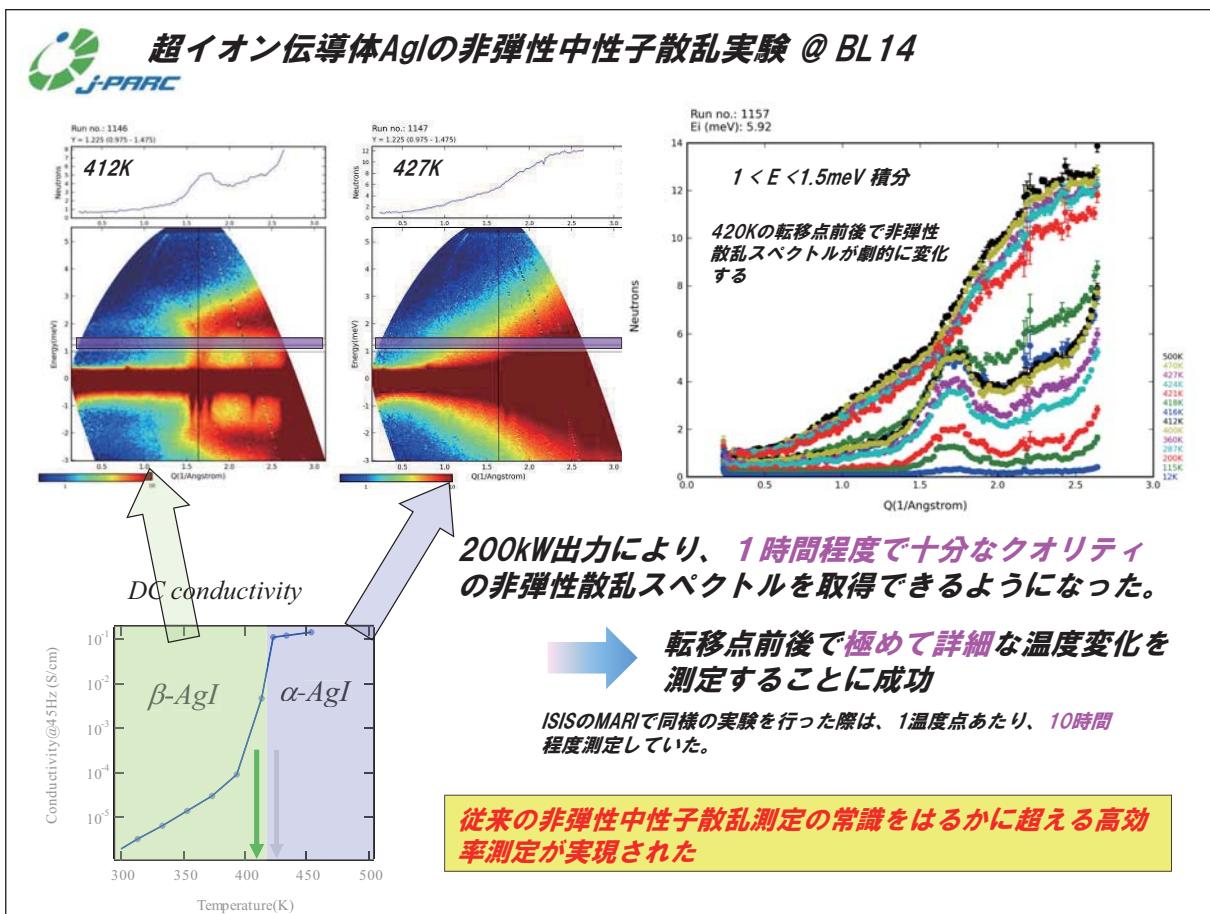
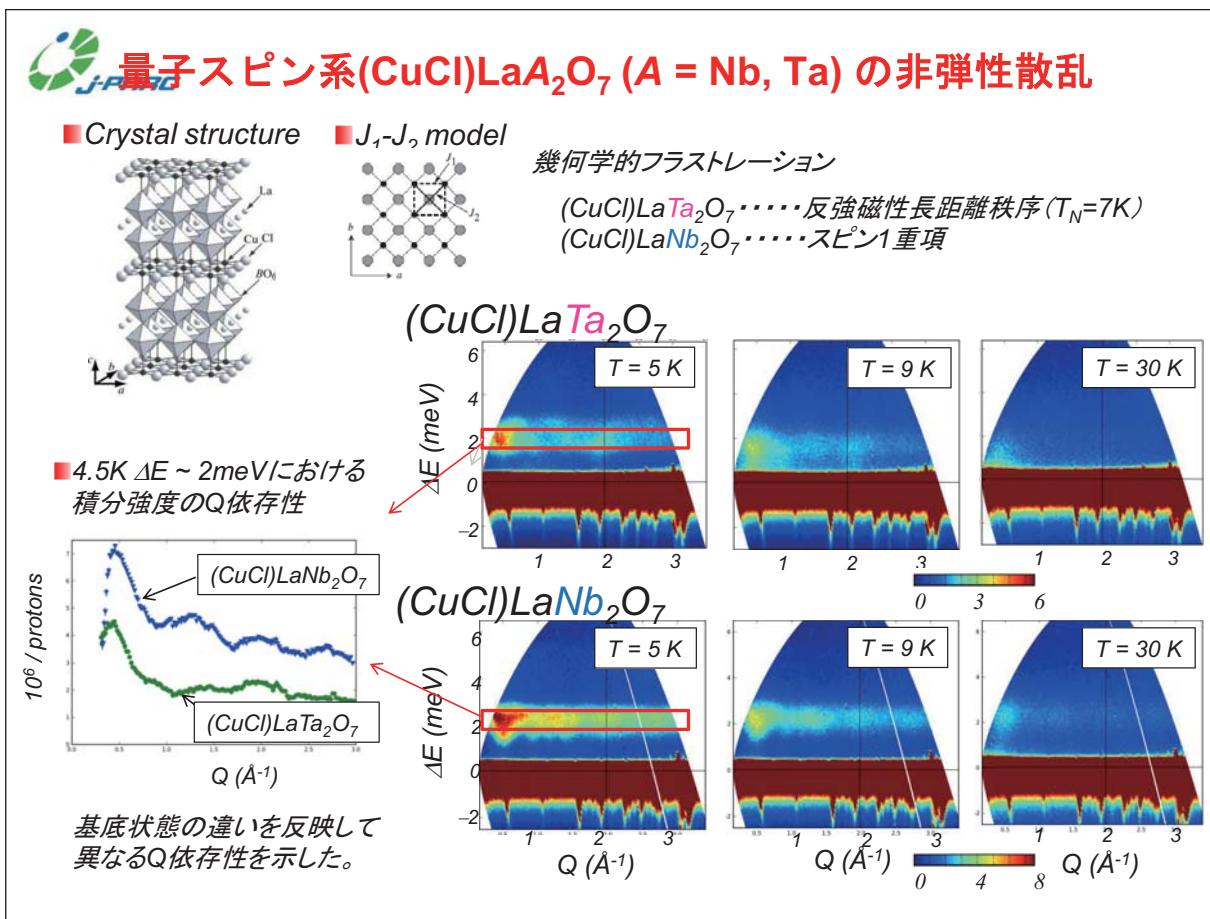
*Diffraction pattern / 30sec*

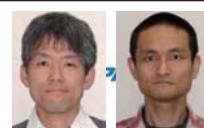






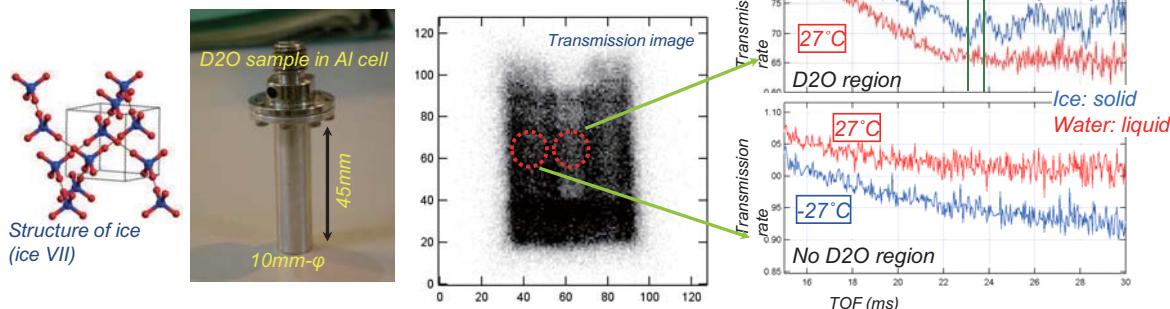




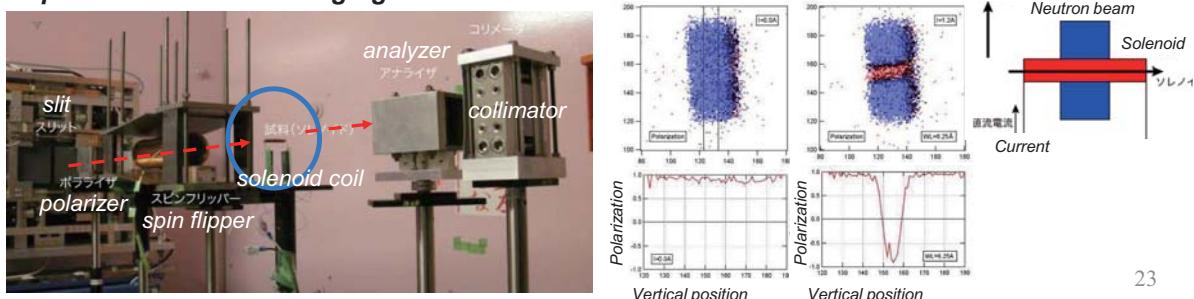


## Imaging technique developments

- A principle to Distinguish ice from water by Bragg-edge imaging was demonstrated.

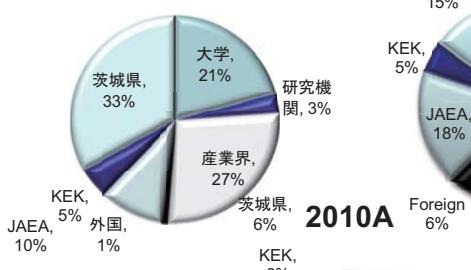


- Succeeded in visualization of magnetic field with polarized neutrons imaging.

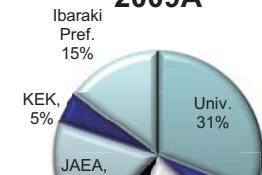


## Proposals from Users to MLF

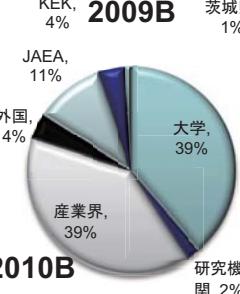
2008



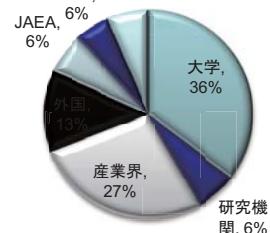
2009A



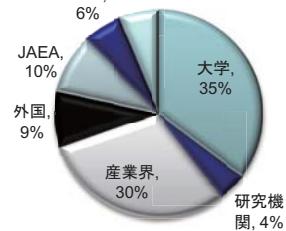
2009B



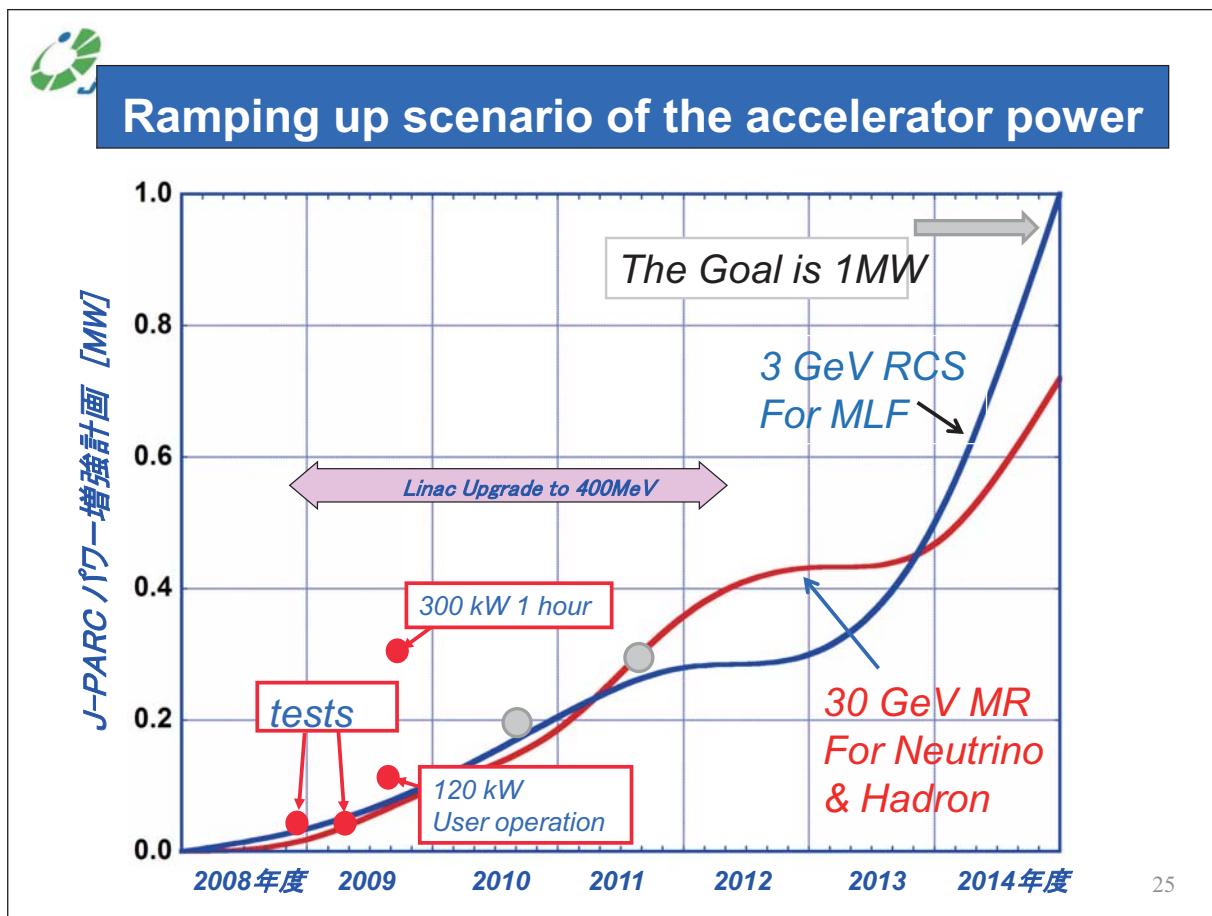
2010A



2010B



Term	2008	2009A	2009B	2010A	2010B
Proposals	98	132	74	110	116
Accepted	61	124	70	90	-
Beam Time (day)	40	44	37	50	60
# Instruments (N)	4	7	8	9	10
# Instruments(M)	1	1	1	2	2





# NASCES11

*The International Workshop on Neutron Applications on Strongly Correlated Electron Systems 2011*

February 23 - 25, 2011, Tokai, Ibaraki, Japan

[Home](#)  
[Registration / Call for papers](#)  
[Invited speakers](#)  
[Program](#)  
[Proceedings](#)  
[Important dates](#)  
[Conference venue](#)  
[Accommodation](#)  
[Organization](#)  
[Contact](#)

**NASCES11**  
The International Workshop on Neutron Applications on Strongly Correlated Electron Systems 2011  
February 23, 2011 (Wed) - February 25, 2011 (Fri)  
at Ibaraki Quantum Beam Research Center (IQBRC), Tokai, Ibaraki, Japan



## NEWS & TOPICS

The deadline of abstracts has been extended to December 20.  
On line registration site for NASCES11 was launched.

**Scope**  
Neutron scattering is undoubtedly a powerful technique for study on strongly correlated electron systems. Recent development of new-generation neutron scattering facilities, such as ISIS, SNS and J-PARC, and experimental techniques like neutron polarimetry in addition to several upgrades of existing facilities should promise further advancements in this research field. On these circumstances, we hold a workshop where the forefronts of neutron applications on strongly correlated electron systems are to be discussed. The workshop will include:

#27

## 7. 立方晶希土類化合物における 多極子揺らぎの研究

物材機構 鈴木博之

## 共同研究者

物材機構	寺田典樹	酒井 治	吉川明子(現理研)
東北大院理	高木 滋	久野大輔	谷田博司(現広大院先端)
理研仁科セ	鈴木栄男	渡邊功雄	松崎禎市郎
新潟大院自然	荒木幸治	赤津光洋	根本祐一 後藤輝孝
原子力機構	目時直人	金子耕二	長壁 豊隆
<i>Néel Inst.</i>	R.-M. Galera	M. Amara	
<i>ILL</i>	L.-P. Regnaut		

## ○ 内容

立方晶Pr化合物 $\text{PrMg}_3$ の $\Gamma_3$ 基底状態の多極子(四極子・八極子)の観測

- ・立方晶Pr化合物の $\Gamma_3$ 基底状態
- ・ $\mu\text{SR}$ による研究
- ・結晶場励起の分散

Intro

 $\Gamma_3$ 基底・ $\Gamma_3$ 基底Pr化合物 ~多極子基底状態~

非クラマース希土類イオン+立方対称結晶場

 $\Gamma_3$ 基底状態の可能性

スピン・軌道相互作用

 $f^2$ 電子

非クラマース二重項

電気四極子  $O_2^0, O_2^{+2}$ 磁気八極子  $T_{xyz}$ 

(×磁気モーメント)

立方対称結晶場

 $J = 4$  $\Gamma_1$  — $\Gamma_5$  === $\Gamma_4$  === $\Gamma_3$  == $\Delta$

PrMg<sub>3</sub>のμSR

## ～多極子(四極子)揺らぎの観測～

 $\Gamma_3$  (非磁性) 基底系Pr化合物でのμSR

- 増強核 & 非磁性基底  $\Rightarrow$  <sup>141</sup>Pr核磁気モーメント揺らぎの観測  
<sup>141</sup>Pr核磁気モーメント  
 $\Rightarrow$  hyperfine-enhanced dipolar coupling  $\Rightarrow \mu^+$
- 四極子のオンサイトのカップリング  
f電子系のquadrupoles  $\Rightarrow$  <sup>141</sup>Pr核quadrupoles

## μSR実験

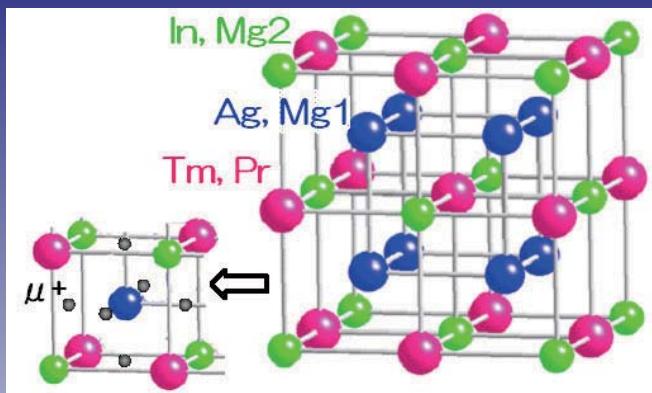
AUGUS spectrometer RIKEN-RALMuon Facility

3He 冷凍機 (測定温度 : 0.28 K ~ 78 K)

Sample : single crystal [001]面の3mm四方の板状 約20個

 $P\mu(t=0) // [001] // H_{ext}$ PrMg<sub>3</sub>のμSR

## ～多極子(四極子)揺らぎの観測～

 $\mu^+$ サイト

- SmAg<sub>2</sub>In (同じホイスラー構造) TF-μSR (by Ito )  
 $\Rightarrow (1/4, 1/4, 0)$ と等価なサイト

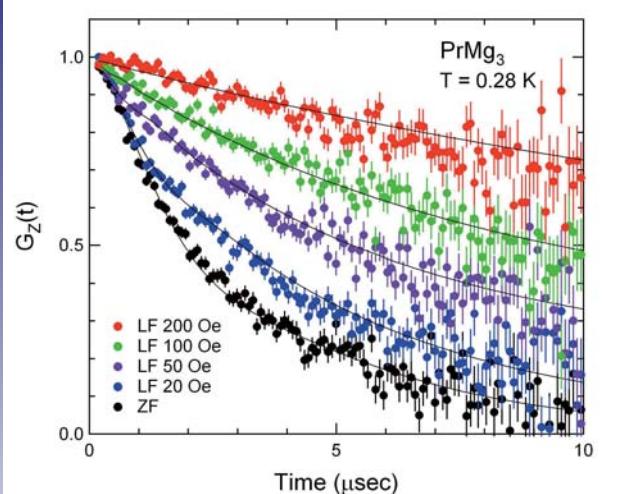
$P\mu(t=0) // [001]$  の場合 2サイト  
 $(1/4, 0, 1/4) (0, 1/4, 1/4)$  と  $(1/4, 1/4, 0)$   $\leftarrow 2 : 1$

cf. TmAg<sub>2</sub>Inでも同様な結果

PrMg<sub>3</sub>のμSR

## ～多極子(四極子)揺らぎの観測～

## dynamical KT model



Fitting parameters

@ T = 0.28 K

サイト比率 2 : 1

site 1

 $\sigma_1 = 1.1 \text{ μsec}^{-1}$  $u_1 = 9.1 \text{ μsec}^{-1}$ 

site 2

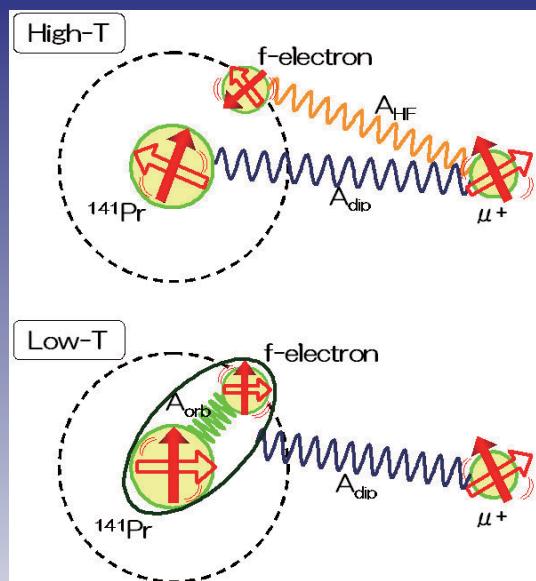
 $\sigma_2 = 0.71 \text{ μsec}^{-1}$  $u_2 = 0.47 \text{ μsec}^{-1}$ 

- $\sigma_1 : \sigma_2 \sim 1.5 : 1 \Leftrightarrow$  計算で求められるdipole fieldの比率と等しい
- Enhancement factor  $^{141}\text{K} = 9$   
 $\Leftrightarrow {}^{141}\text{K}_{\text{cal}} = 8.5 \quad A_{\text{hf}} = 187.7 \text{ mole/emu}, \chi_{\text{vv}} (=C/(\Delta_{\text{CEF}}/k_B)) = 0.45 \text{ emu/mole}$   
cf Mg核のdipole field 0.056 μsec<sup>-1</sup>

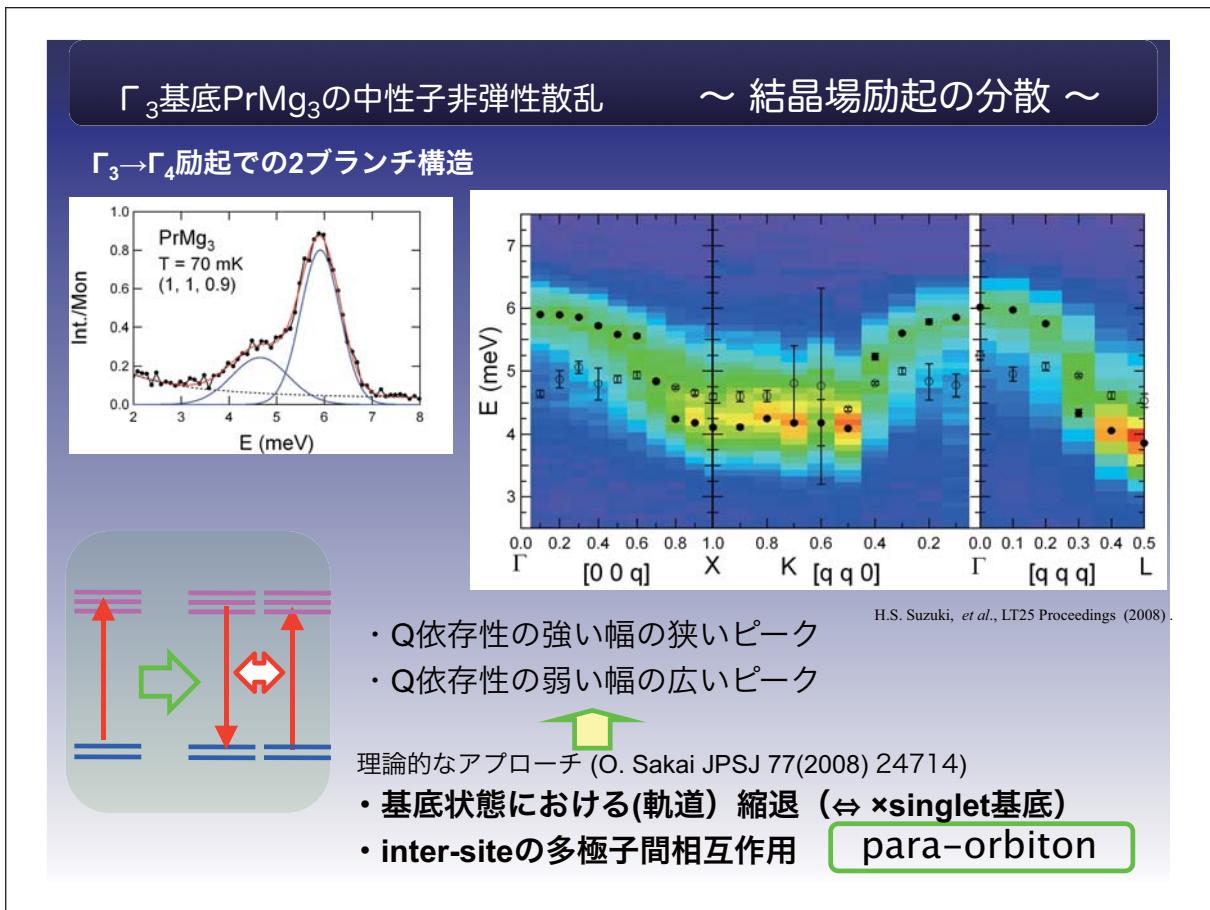
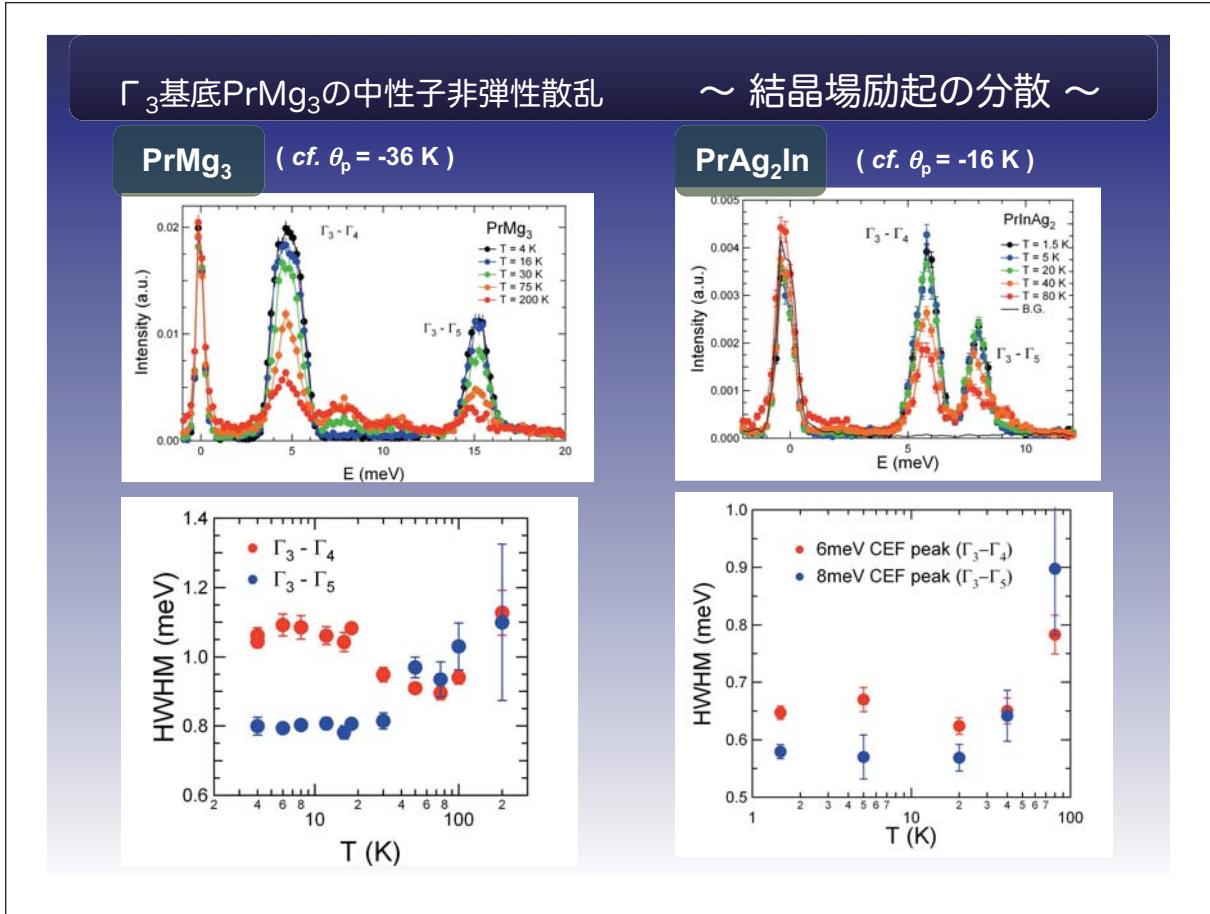
PrMg<sub>3</sub>のμSR

## ～多極子(四極子)揺らぎの観測～

“dressed”,  
or hyperfine-enhanced



- ・低温でのf電子系の磁気双極子揺らぎは低周波成分を持たず、Van Vleck項のみに由来
- ・核の磁気双極子による局所磁場は、超微細相互作用を通じてVan Vleck項により増強される。
- ・ミューオンサイトでの局所磁場は、 ${}^{141}\text{Pr}$ 核からの寄与が支配的( ${}^{141}\text{Pr}$ 核T<sub>1</sub>, T<sub>2</sub>を間接的に測定)



Summary

Summary

$\Gamma_3$ 基底PrMg<sub>3</sub>の低温での多極子のdynamicsの研究として

単結晶を用いたμSRの実験

低温では、<sup>141</sup>Pr核の揺らぎを観測

- 2 サイト dynamical Kubo-Toyabe 関数
- hyperfine-enhanced ( K~9 )
- <sup>141</sup>T<sub>1</sub>の温度依存性  $\sim \sqrt{T}$

$\Gamma_3$ 基底PrMg<sub>3</sub>単結晶を用いた結晶場励起の分散の観測

- 2 ピーク構造 (q依存性の強いピークと幅広いq依存性の弱いピーク)
- 第1励起状態に $\Gamma_4$ をとる系 (PrPb<sub>3</sub>、PrAg<sub>2</sub>In)に共通に見られる。
- (理論) → 基底状態に縮退+多極子相互作用 (para-orbiton)

## 8. Yb系重い電子物質の量子臨界点における価数揺動の観測

物質・材料研究機構

辻井直人

- 重い電子系の量子臨界点について
- 共鳴X線発光分光について
- YbCu<sub>5-x</sub>Al<sub>x</sub>、YbPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>などにおける結果
- 考察
  - ・同様のYb化合物の例
  - ・Ce化合物との比較
  - ・物性の違いの起源
- 結論

## 共同研究体制



試料作製・物性測定（物材機構）  
アーク溶解法、フラックス法、高周波炉 等  
粉末X線回折、SEM、EPMA分析  
SQUID（磁化）、PPMS（電気抵抗、比熱、熱起電力）



SPring-8



山岡人志

理化学研究所 播磨研究所  
石川X線干渉光学研究室 専任研究員

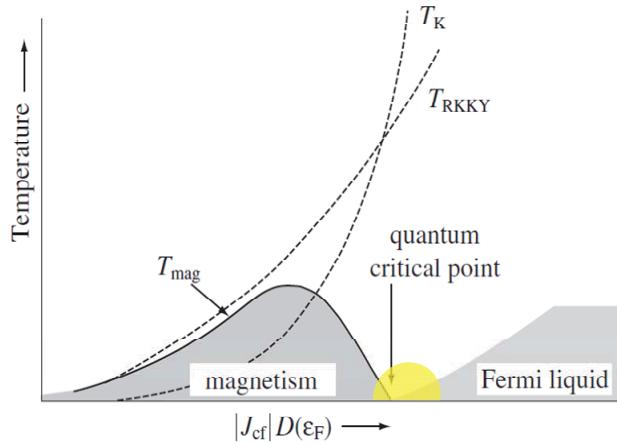


Ignace Jarrige

日本原子力研究開発機構  
量子ビーム応用研究部門  
構造物性研究ユニット 研究員

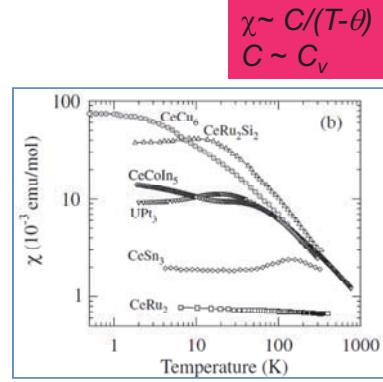
- Ku-Ding Tsuei, 平岡望、石井啓文 (BL12XU :台湾ビームライン)
- Hideki Yoshikawa (BL15XU: NIMSビームライン)
- A. Chainani, S. Shin (RIKEN)
- H. Oohashi (nims)
- K. Handa, J. Ide, Y. Ito (Kyoto Univ.)
- T. Tochio (Kobe Univ.)

# Introduction



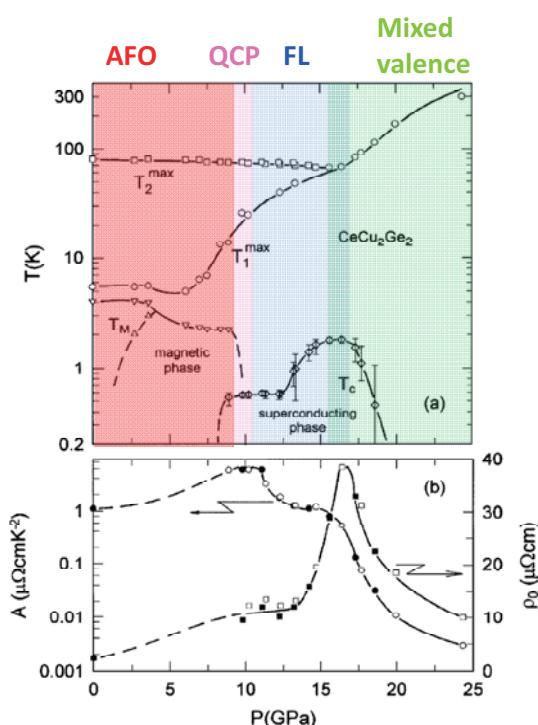
- Superconductivity
- Non Fermi liquid

**Magnetic instability  
Spin fluctuation**

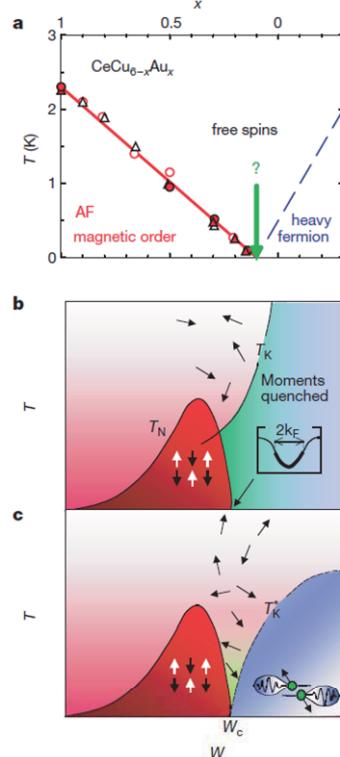


$$\begin{aligned} \chi &\sim \chi(0) \\ \rho &\sim AT^2 \\ C/T &\sim \gamma \end{aligned}$$

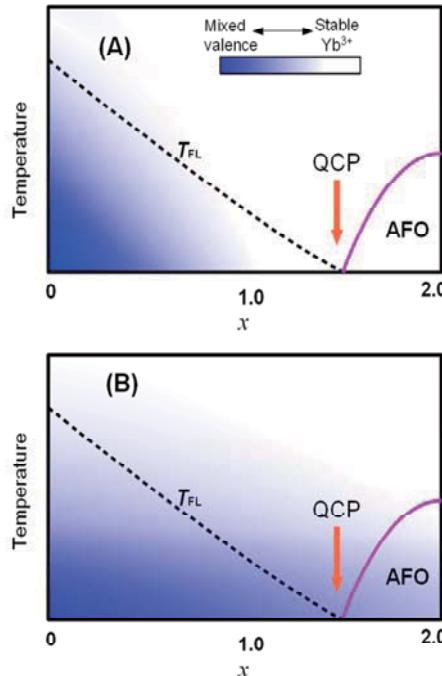
## Properties at Valence Instability



D. Jaccard et al., Physica B 259–261 (1999) 1.

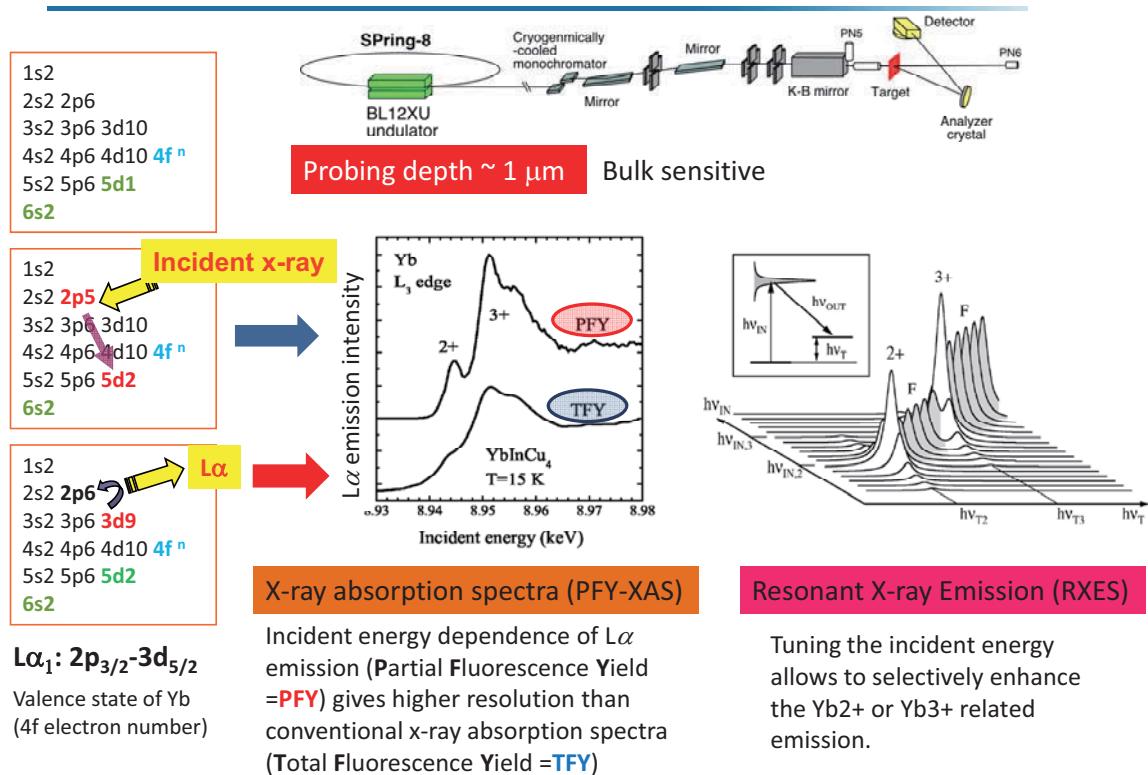


## Valence fluctuation at QCP?

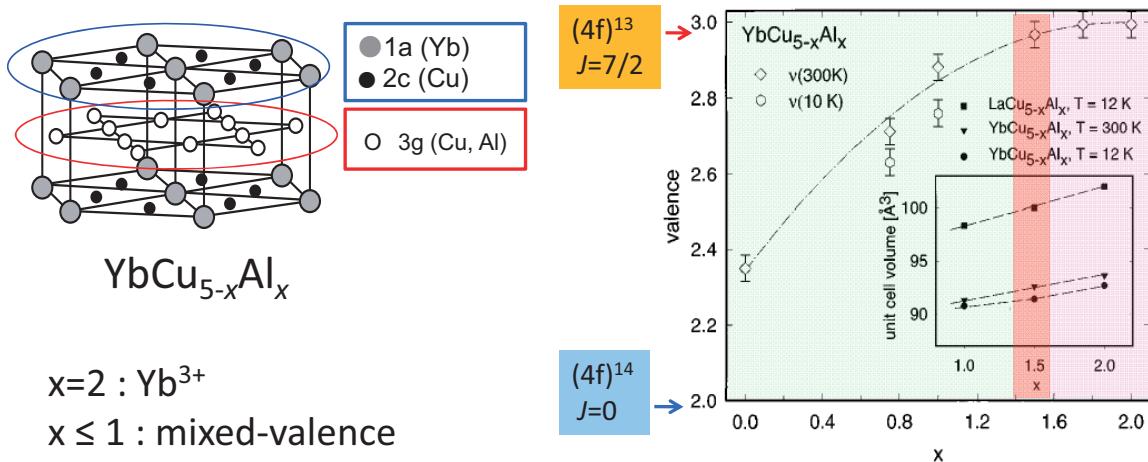


- Quantum Critical Point (QCP) offers anomalous physical properties (superconductivity, non Fermi-liquid).
- Spin fluctuation is considered to be responsible.
- Charge fluctuation ? (valence fluctuation?)

## Method

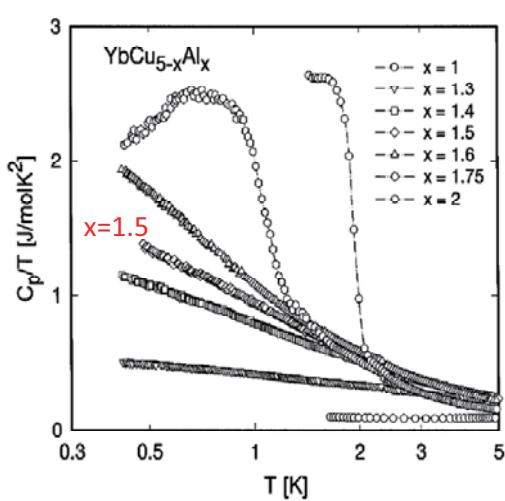


## Valence evolution in $\text{YbCu}_{5-x}\text{Al}_x$

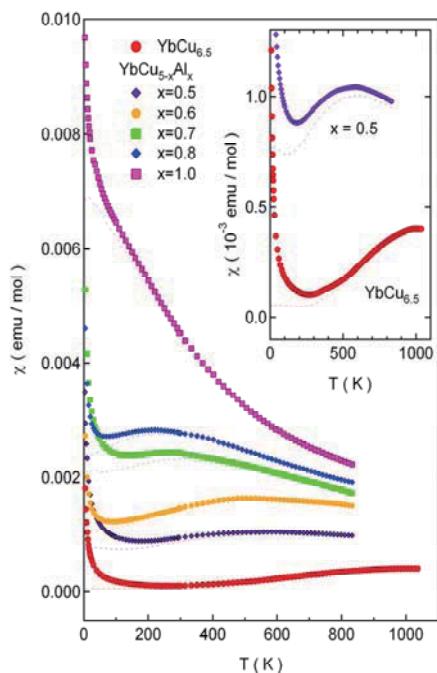


E. Bauer et al., PRB 56 (1997) 711.

## Physical properties of $\text{YbCu}_{5-x}\text{Al}_x$



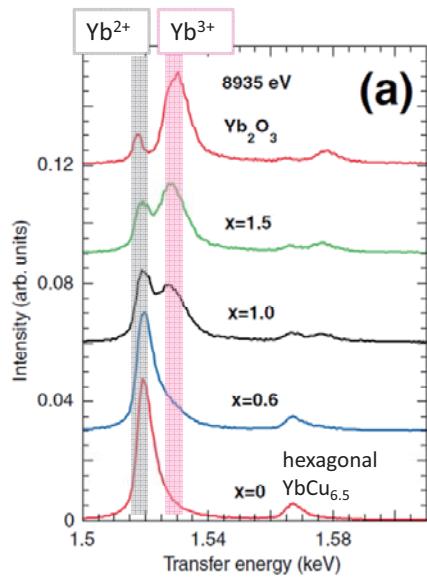
E. Bauer et al., PRB 56 (1997) 711.  
PRB 60 (1999) 1238.



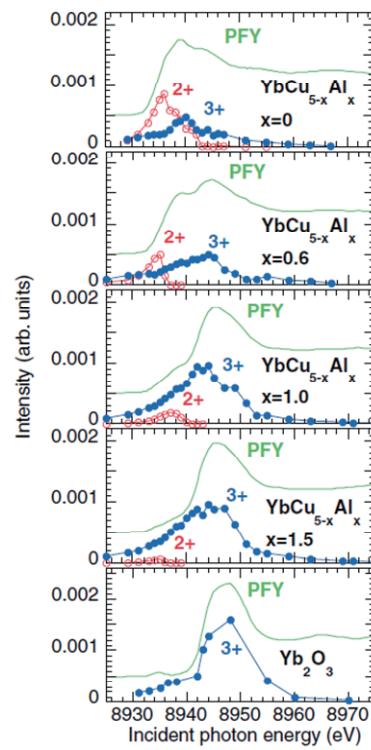
K. Yoshimura et al., JJAP Series 11 (1999) 242.

## Resonant XES of $\text{YbCu}_{5-x}\text{Al}_x$

K. Yamamoto et al., JPSJ 76 (2007) 124705.

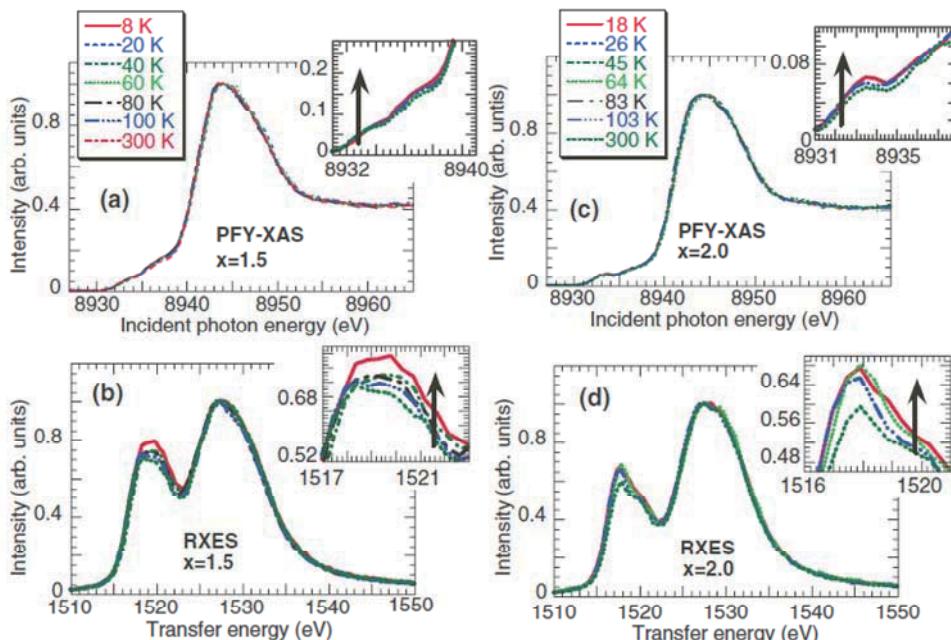


- $\text{Yb}^{2+}$  component exists even for  $x=1.5$  (QCP)
- Valence fluctuation? impurities/defects?
- Temperature dependent measurements needed!



H. Yamaoka et al., PRB 80 (2009) 035120.

## Resonant X-ray Emission Spectra of $\text{YbCu}_{5-x}\text{Al}_x$



- PFY spectra confirm the existence of  $\text{Yb}^{2+}$  component for  $x=1.5$  (QCP) and even for  $x=2$  (AFO).
- Resonant XES demonstrate  $\text{Yb}^{2+}$  component increases with decreasing temperature.

## Temperature dependence of the valence in $\text{YbCu}_{5-x}\text{Al}_x$ around QCP

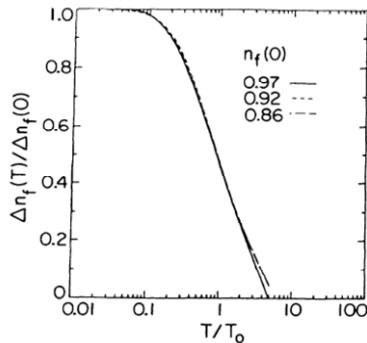
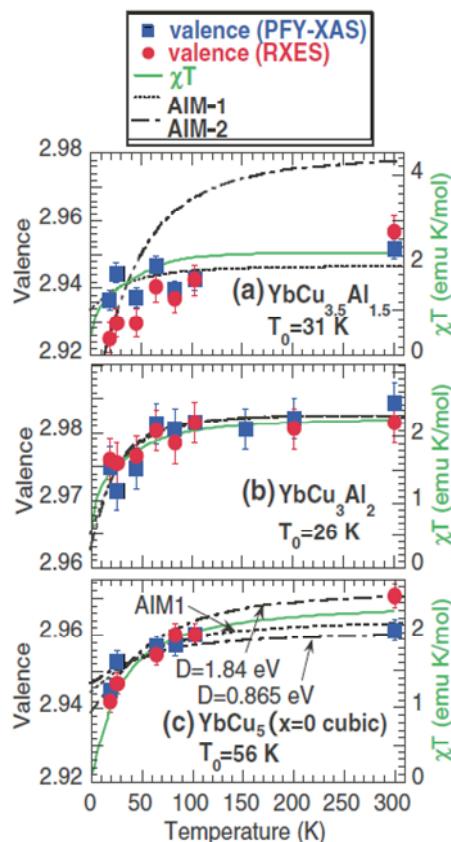


FIG. 14. Scaling of the temperature-dependent contribution to the low-temperature f valence,  $\Delta n_f(T)/\Delta n_f(0)$ .

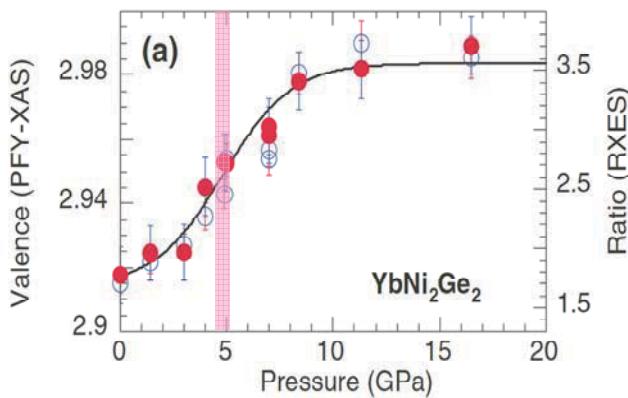
Bickers, Cox & Wilkins, PRB **36** (1987) 2036

- $\text{YbCu}_{3.5}\text{Al}_{1.5}$  (QCP) and even  $\text{YbCu}_3\text{Al}_2$  (AFO) show valence fluctuation.
- Temperature dependence of the valence is qualitatively described by the Anderson Impurity Model.

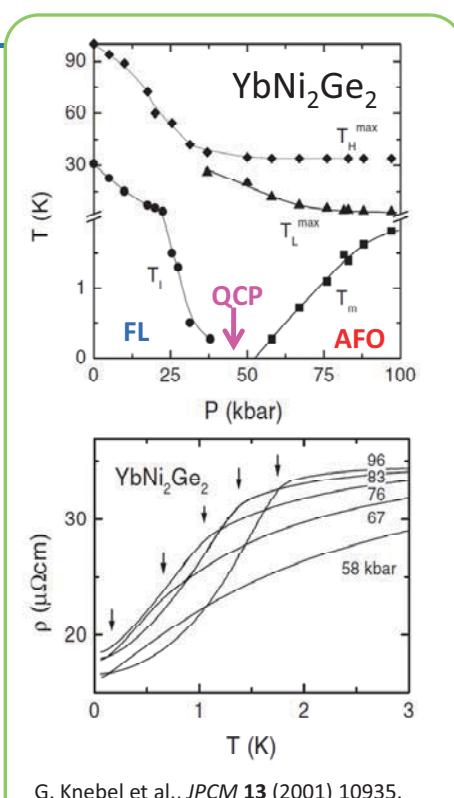


## $\text{YbNi}_2\text{Ge}_2$ under pressure

H. Yamaoka et al., PRB **82** (2010) 035111.

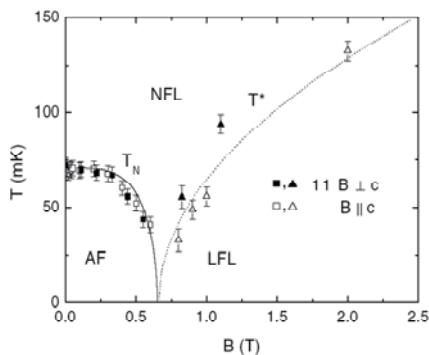


- Valence fluctuation remains at QCP and even at AFO region.
- Spin density wave (SDW) is unlikely from the electrical resistivity data at high pressures.

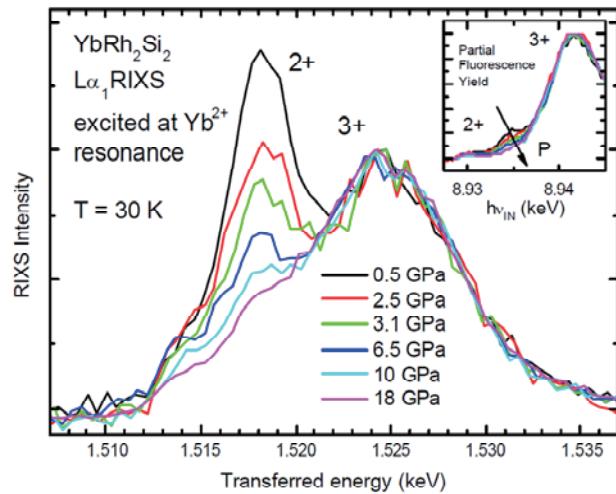


G. Knebel et al., JPCM **13** (2001) 10935.

## Valence fluctuation : Common for Yb compounds ?



P. Gegenwart et al.,  
Phys. Rev. Lett. 89 (2002) 056402.



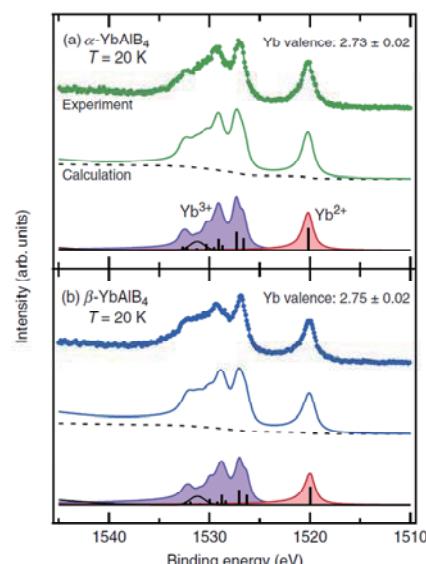
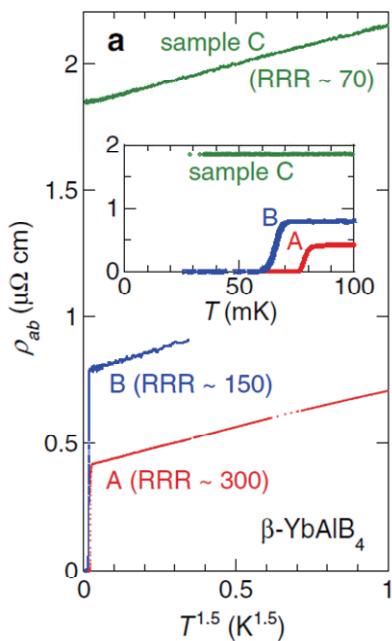
C. Dallera et al., ESRF Report 2006

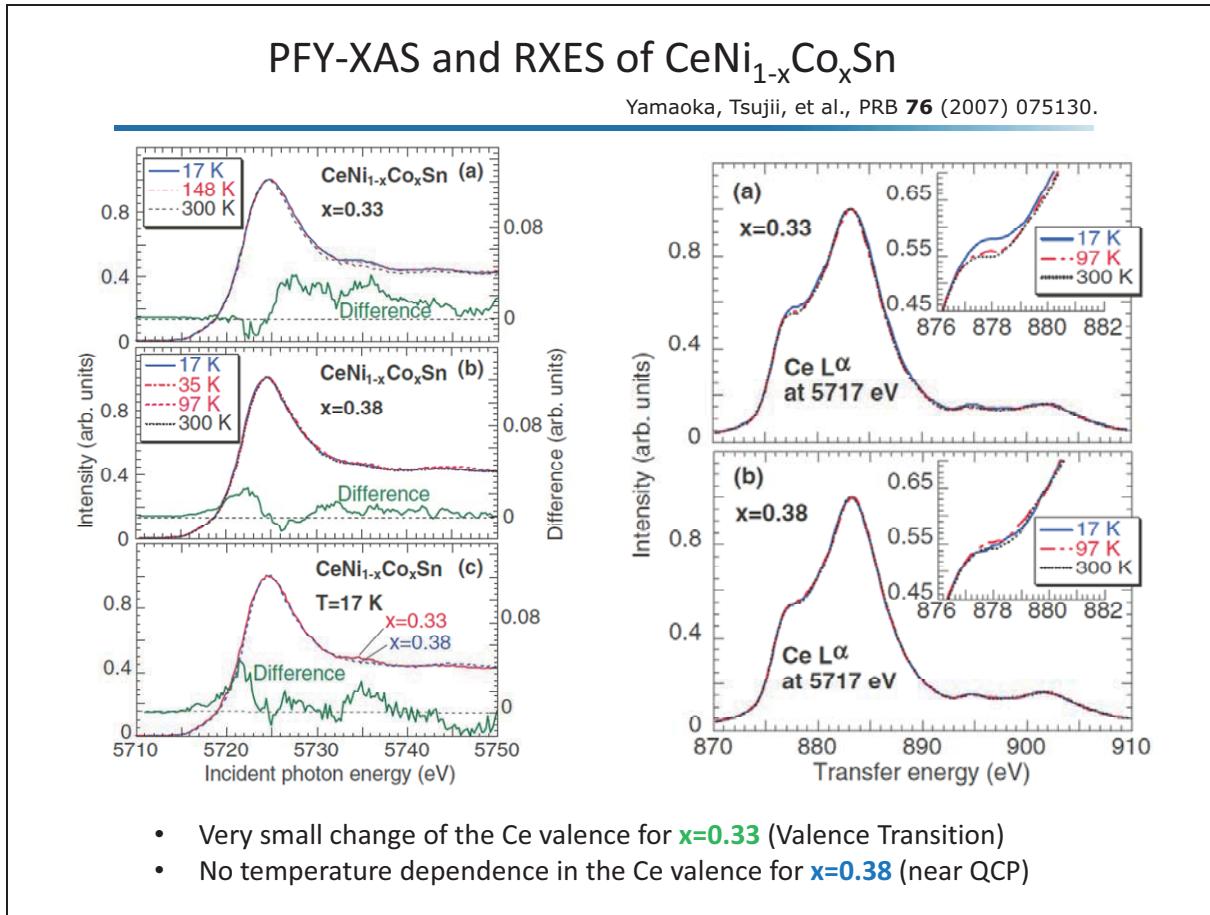
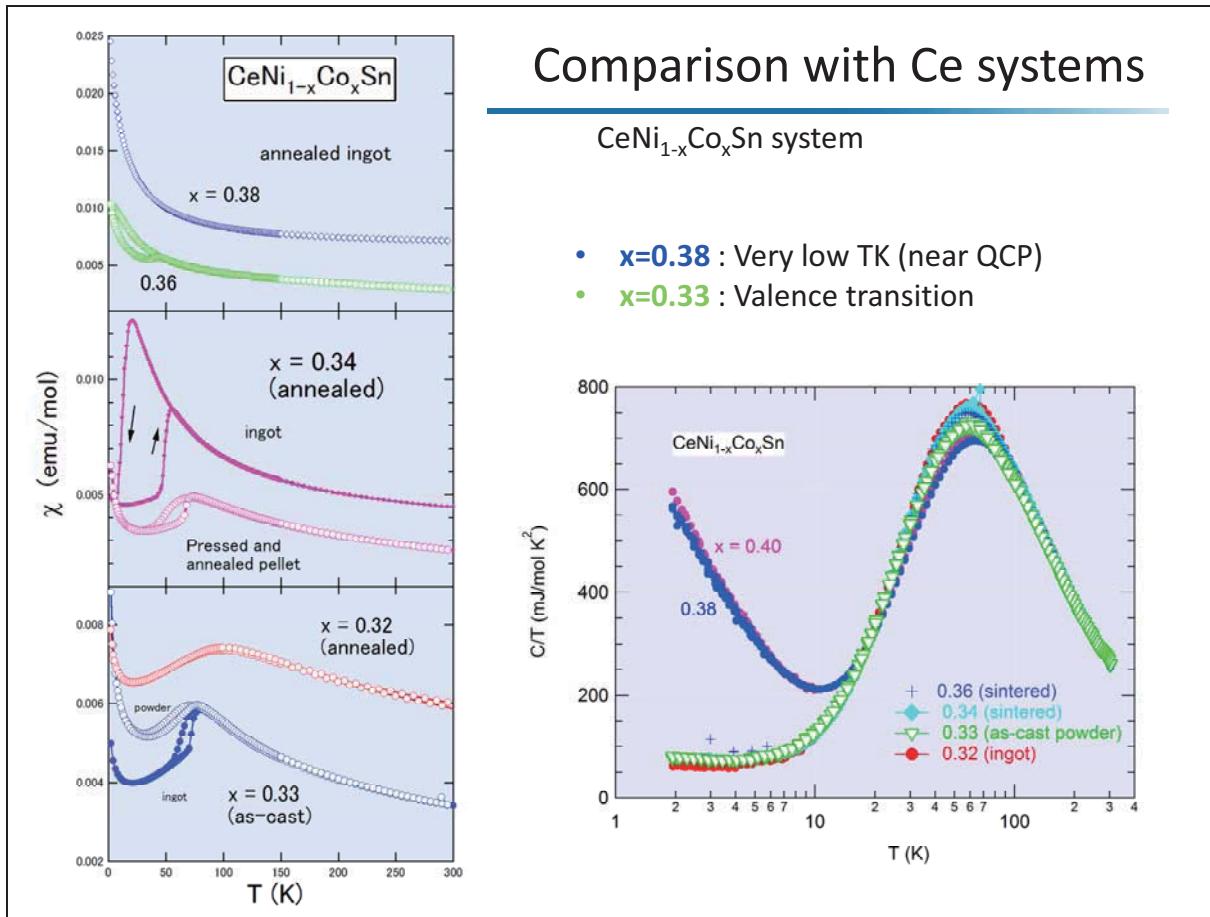
- Valence fluctuation ( $\sim \text{Yb}^{2.9+}$ ) has been observed for  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  at ambient pressure

## Superconductivity and valence fluctuation in $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub>

Nakatsuji et al., Nature Phys. **4** (2008) 603.  
Kuga et al., PRL **101** (2008) 137004.  
Okawa et al., PRL **104** (2010) 247201.

- Non Fermi Liquid behavior  $\rho \sim T^{1.5}$
- Superconductivity at  $T = 80$  mK
- $\text{Yb}^{2.7+}$





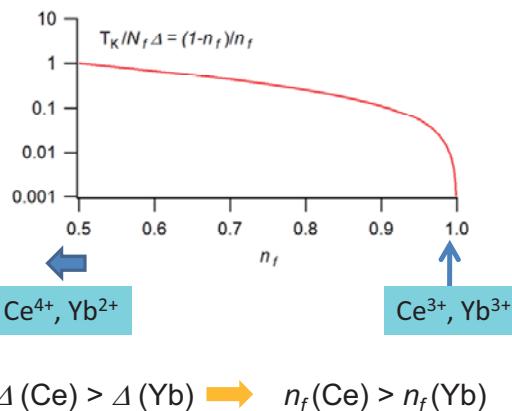
## Difference between Ce and Yb

- 4f orbitals spread more widely in Ce than in Yb

Gunnarsson & Schönhammer (PRB **28** 4315)

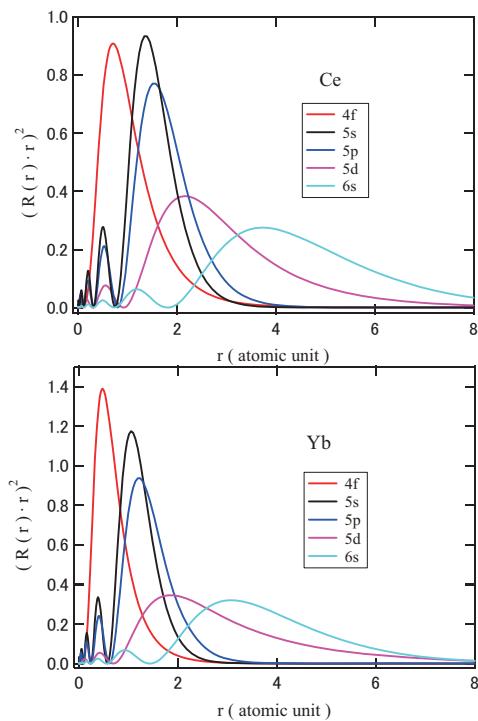
$$\frac{1-n_f}{n_f} = \frac{T_K}{N_f \Delta}$$

$n_f$ : 4f occupation number  
 $N_f$ : degeneracy of f-orbital  
 $\Delta$ : hybridization



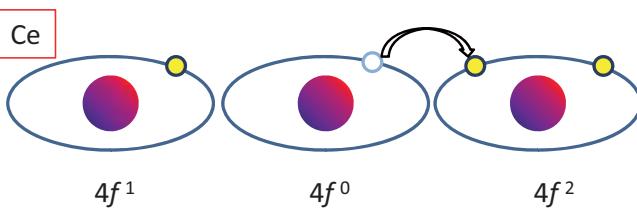
$$\Delta(Ce) > \Delta(Yb) \rightarrow n_f(Ce) > n_f(Yb)$$

(for similar order of  $T_K$ )

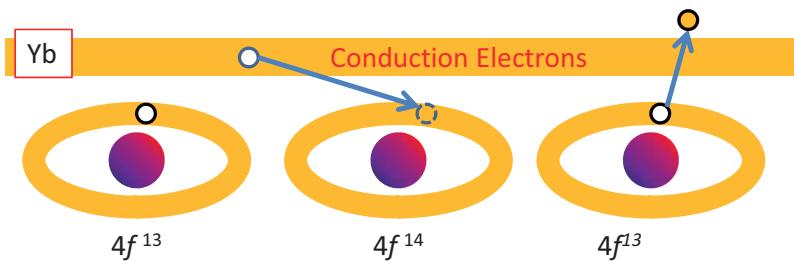
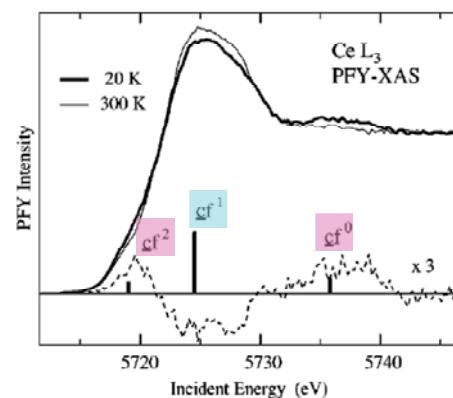


Calculated by O. Sakai-Yanagimachi

## Difference between Ce and Yb



- 4f<sup>1</sup>から4f<sup>0</sup> or 4f<sup>2</sup>の励起状態が可能
- Yb系よりも多くの混成チャネルがある
- 4f電子の直接のホッピングも可能？
- 4f占有数  $n_f$ を保ったまま、遍歴できる？



- 混成に利用できる励起状態は4f<sup>14</sup>のみ
- 価数揺動(4f<sup>13</sup>-4f<sup>14</sup>)を必然的に伴う？

## Conclusion

- RXES and PFY-XAS are very useful to study the electronic state of heavy fermion system  
(intrinsically bulk sensitive, sensitivity of tiny valence change and accessibility to QCP by pressure, magnetic field, etc.)
- Yb system shows clear valence fluctuation even at QCP and AFM state.
- For Ce system, such valence fluctuation is not so pronounced
- These difference can be attributed to the wider 4f orbitals in Ce than in Yb, and existence of  $4f^0$  and  $4f^2$  excited states for Ce contrasting to the  $4f^{14}$  state as the only excited state for Yb.

Valence fluctuation in Yb systems



Superconductivity  
Non Fermi Liquid

9.

2010.12.20 4th Three Organization Joint Meeting @ Ueno

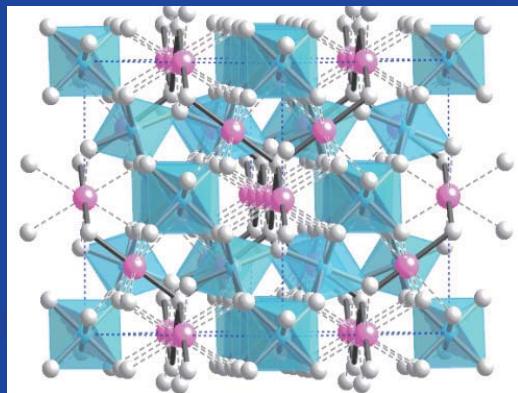
# Crystal Structure and Physical Properties of Itinerant 4d,5d Pyrochlores, $A_2B_2O_6O'$

*RIKEN Ayako YAMAMOTO*

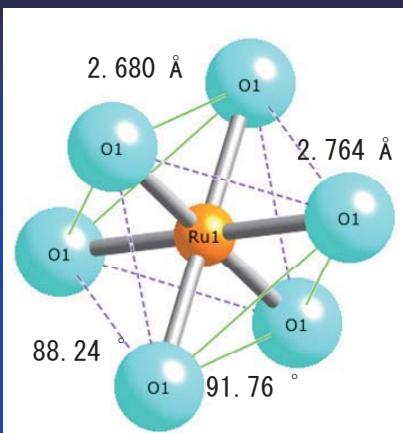
Focus on trigonal distortion of  $BO_6$   
(positional parameter,  $x(O)$ )

Conductivity - bonding angle  
Magnetism - orbital split

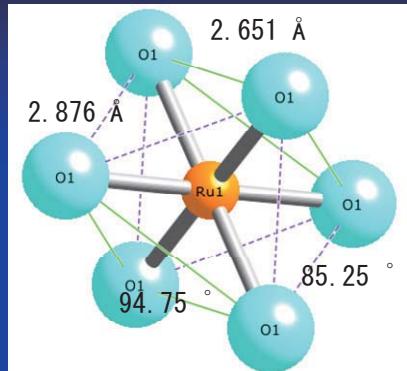
Valence of B:  
less distortion, 2+/5+  
Bonding character of A:  
comfort with Hg, Tl



## Distortion in the cubic phase



$Hg_2Ru_2O_7$  High T phase  
no distortion



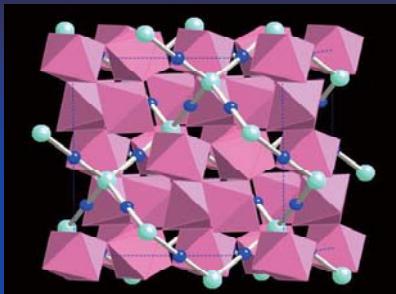
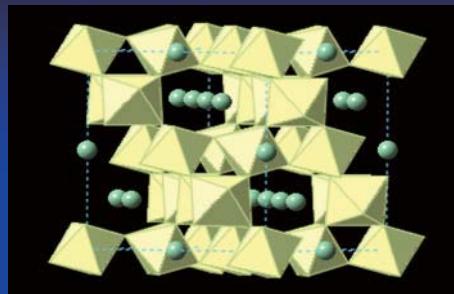
$Tl_2Ru_2O_7$  High T phase  
slight trigonal distortion



## Outline

- (1) Basic crystal structure of pyrochlore  
Importance of positional parameter parameter x
- (2) Material summary of itinerant 4d,5d pyrochlores  
A-site effect : structure & properties for  
3+/4+, 2+/5+ having partially filled  $t_{2g}$  orbital
- (3) Structure of low T phase of  $\text{Hg}_2\text{Ru}_2\text{O}_7$
- (4) 4d versus 5d:  $\text{Tl}_2\text{Rh}_2\text{O}_7$  and  $\text{Tl}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$
- (5) Summary

## Composition of Pyrochlore

(Ca, Na)  $2\text{Nb}_2\text{O}_6\text{F}$ 

Spin ice

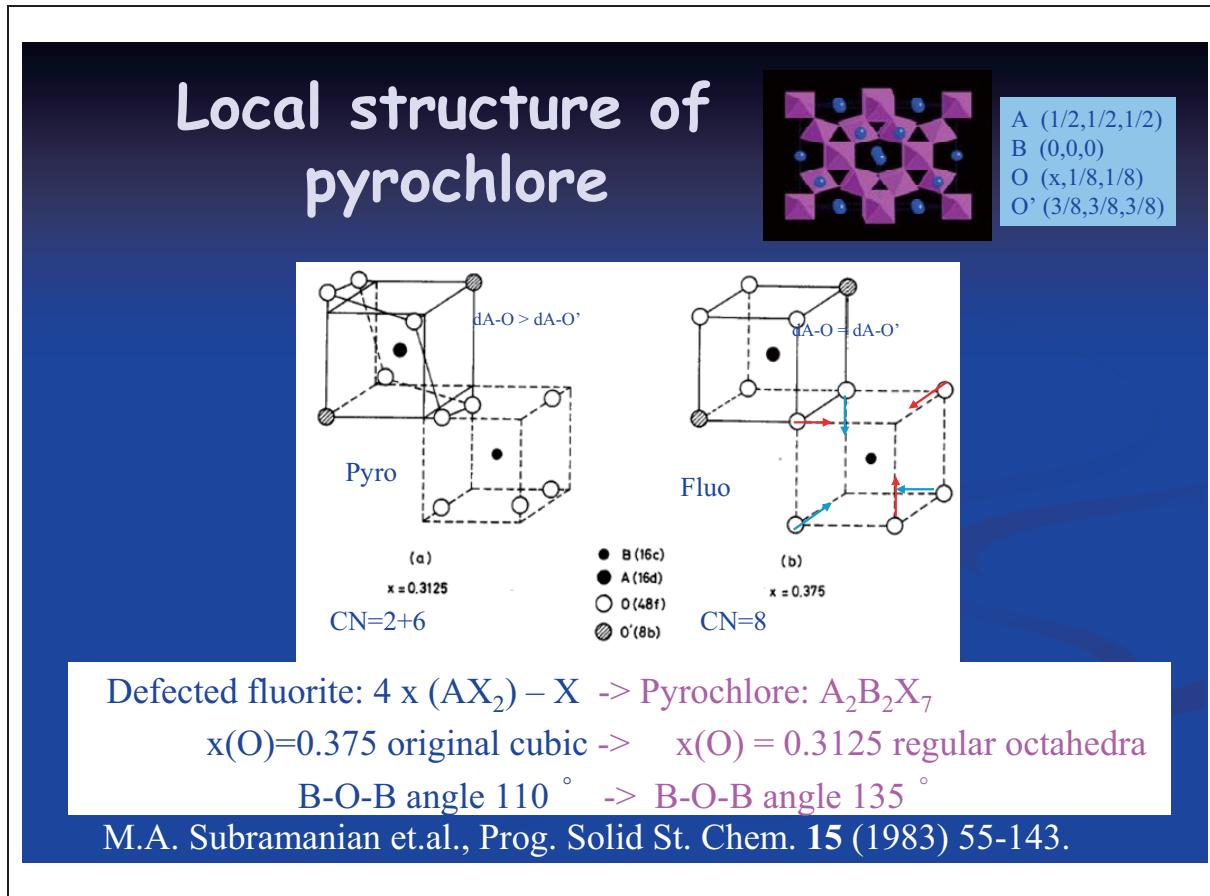
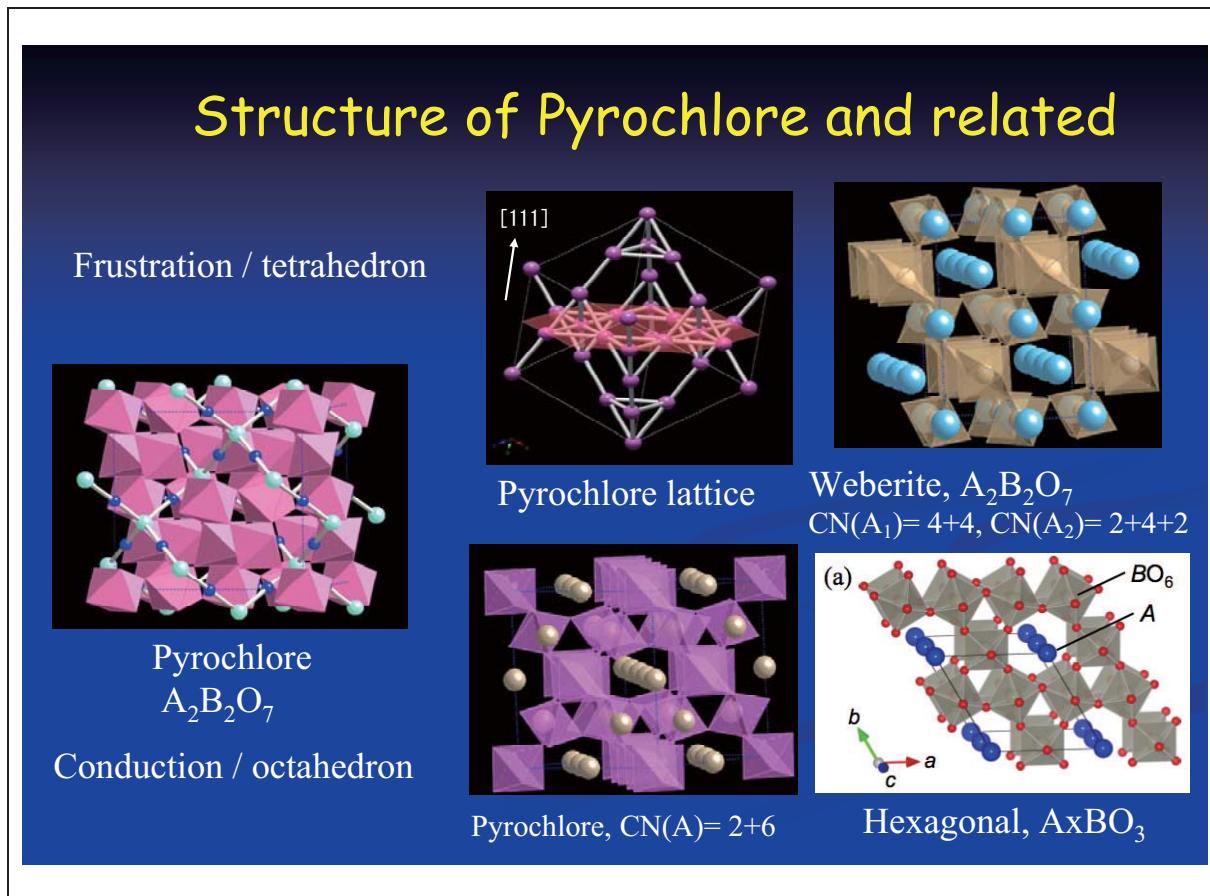
A<sub>2</sub>B<sub>2</sub>O<sub>6</sub>'

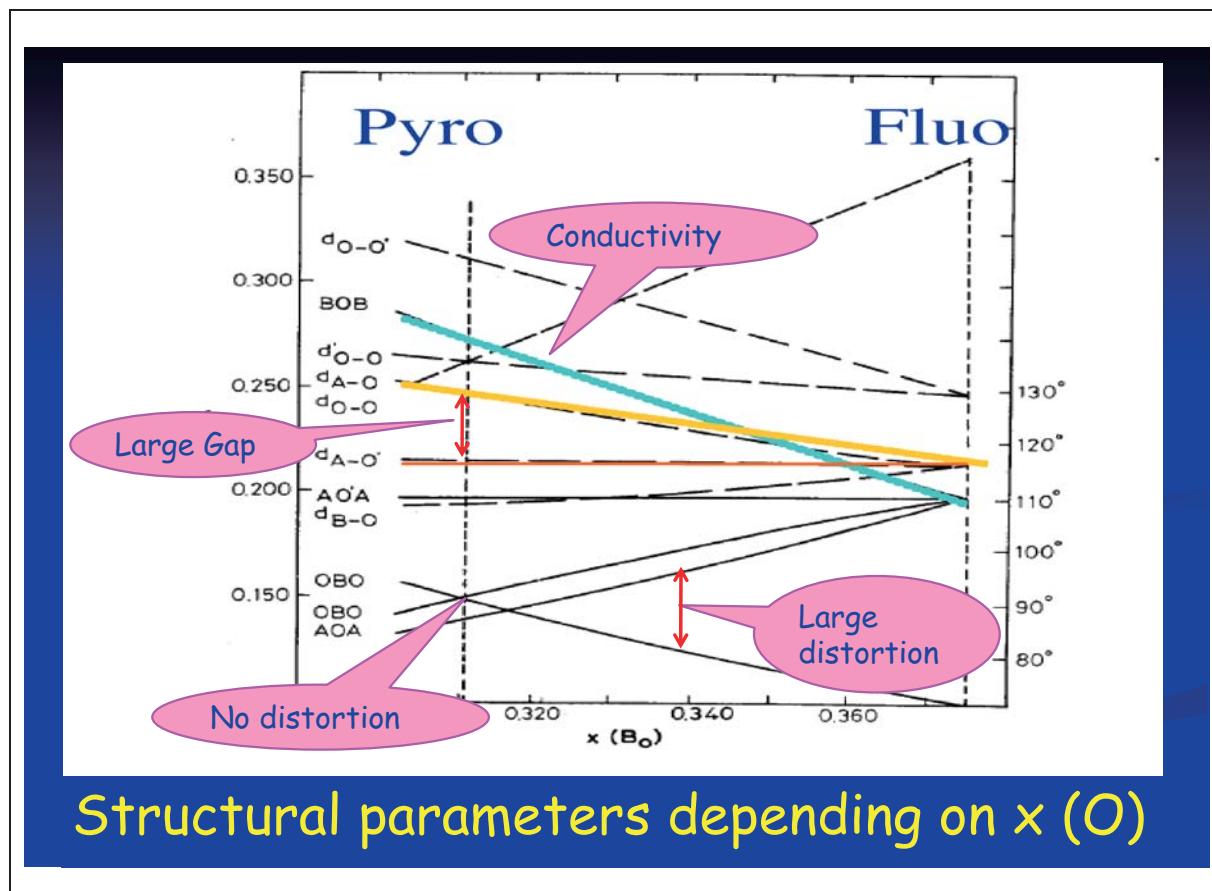
MIT

- |   |   |
|---|---|
| (1) $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$ (3+ /4+) ex. $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ , $\text{Tl}_2\text{Ru}_2\text{O}_7$ | $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$ (2+ /5+) ex. $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ , $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$           |
| (2) $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$ (2+ /5+) ex. $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$ , $\text{Cd}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ | (3) $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_6$ (1+/5+, 3+/3+) ex. $\text{Tl}_2\text{Nb}_2\text{O}_6$ , $\text{Bi}_2\text{Sc}_2\text{O}_6$ |
| (4) $\text{AB}_2\text{O}_6$ (1+/5+,6+) ex. $\text{KNbWO}_6$ , $\text{KOs}_2\text{O}_6$                                    | ( $\square\text{B}_2\text{O}_6\text{A}$ )   |

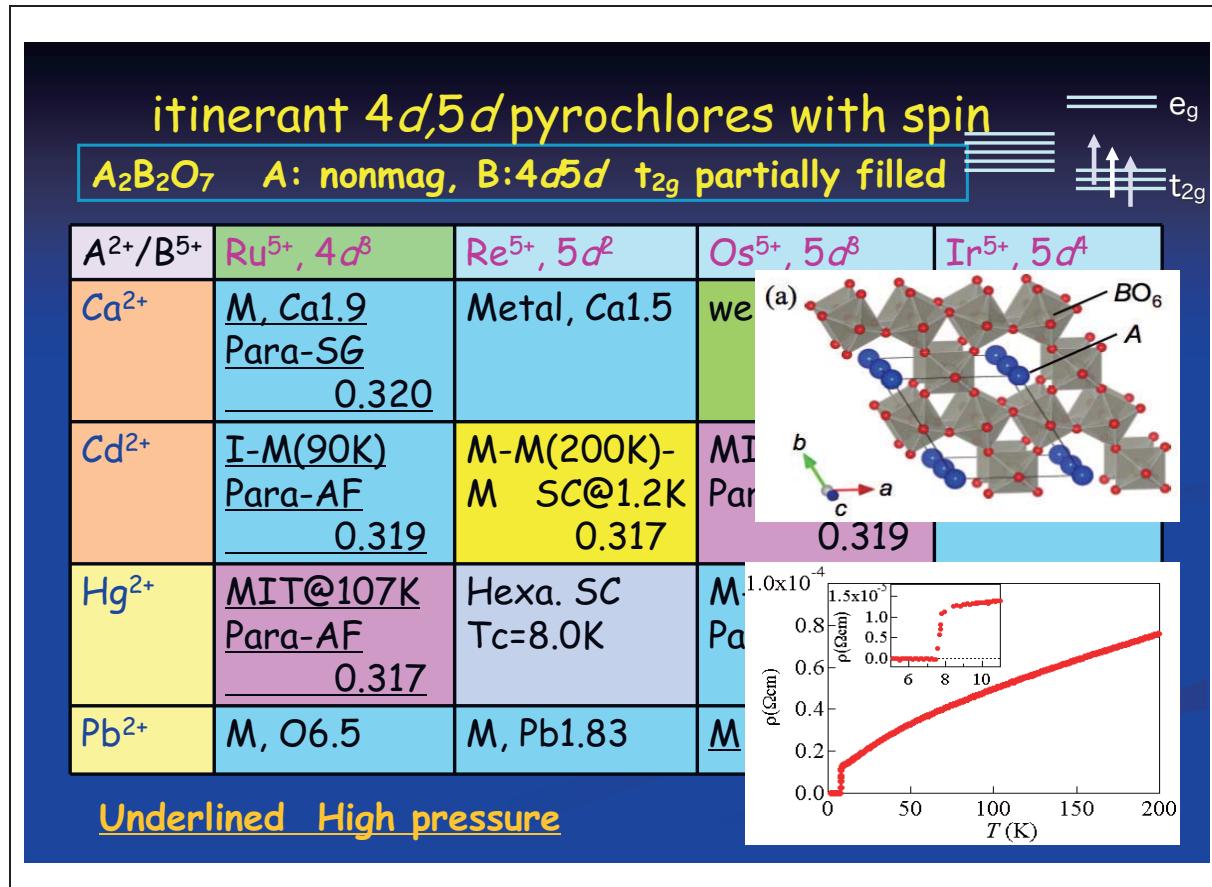
Dielectrics

Super

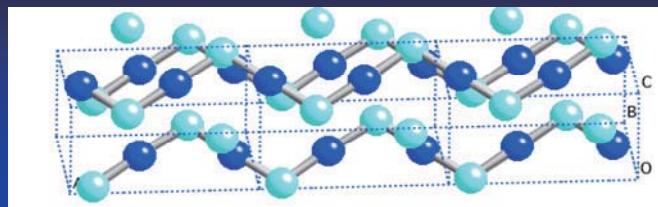




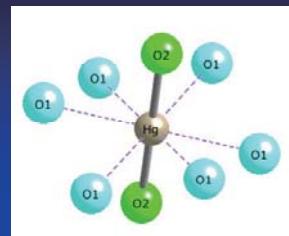
Structural parameters depending on  $x (O)$



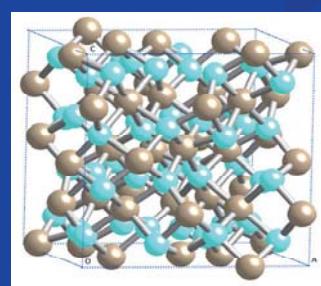
## Character of coordination in simple oxides



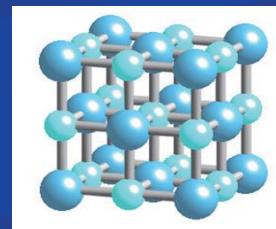
HgO      Hg-O  2.028 x 1  
              2.042 x 1  
              (2.821 x 2, 2.825 x 1, 2.896 x 1)



In pyrochlore lattice  
Hg-O  2.21 x 2, 2.59 x 6



Tl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
Tl(1)-O 2.424 x 6  
Ti(2)-O 2.177 x 2  
          2.224 x 2  
          2.529 x 2



Ca-O  2.408 x 6  
Cd-O  2.348 x 6  
CaO, CdO

## Summary of bond distances & angles of A<sub>2</sub>Ru<sub>2</sub>O<sub>7</sub>

	In simple oxide (AO, A <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	In pyrochlore (A <sub>2</sub> Ru <sub>2</sub> O <sub>7</sub> )	x	O-B-O	B-O-B
Hg <sup>2+</sup>	<u>2.03 x 2</u> , 2.83 x 4 CN=2+4	2.21 x 2, 2.59 x 6	0.317	88.2, 91.8	138.5
Cd <sup>2+</sup>	2.35 x 6 CN=6	2.19 x 2, 2.56 x 6	0.319	87.3, 92.7	137.1
Ca <sup>2+</sup>	2.41 x 6 CN=6	2.20 x 2, 2.57 x 6	0.320	87.1, 92.9	136.9
Tl <sup>3+</sup>	<u>2.20 x 2</u> , 2.47 x 4 CN=2+4	2.20 x 2, 2.53 x 6	0.325	85.2, 94.8	134.2 Metal ↑
Nd <sup>3+</sup>	2.30 x 3, 2.40 x 1 2.66 x 3 CN=3+1+3	2.24 x 2, 2.54 x 6	0.329	83.3, 96.7	131.3 Ins. ↓
Y <sup>3+</sup>	2.29 x 6 CN=6	2.20 x 2, 2.46 x 6	0.335	81.5, 98.5	128.5

## A site preference

### Divalent A

Hg: very comfort       $T^* \sim 100K$   
 Cd: comfort             $T^* \sim 200K$   
 Ca: possible but deficiency, SG  
 Pb<sup>2+</sup>: lone pair,  
 Induce oxygen deficiency  
 Distorted F43m

### Trivalent A

Tl: very comfort       $T^* \sim 100K$   
 Bi: lone pair,  
 Bi6p near Fermi level conductive  
 Ln (Nd, Sm, Gd, Dy, Ho, Y)  
 (size effect on distortion )  
 Ferro, spin glass  
 No phase with La !!  
 Pb<sup>2+</sup>/Pb<sup>4+</sup> ? complex

## Some factors related to x

### B site valence

A<sub>2+</sub>/B<sub>5+</sub> x=0.317, close to regular (x=0.3125) octahedron  
 A<sub>3+</sub>/B<sub>4+</sub> x=0.330, trigonal distortion even in high T cubic phase

### A site preference

Increase trigonal distortion especially for small size lanthanoid

### B site d electron number

does not affects so much in x

### Additional factor

Spin Orbit coupling for 5d  
 Z=4 multiband near Fermi energy, topological insulator?

## Structural analysis of $\text{Hg}_2\text{Ru}_2\text{O}_7$

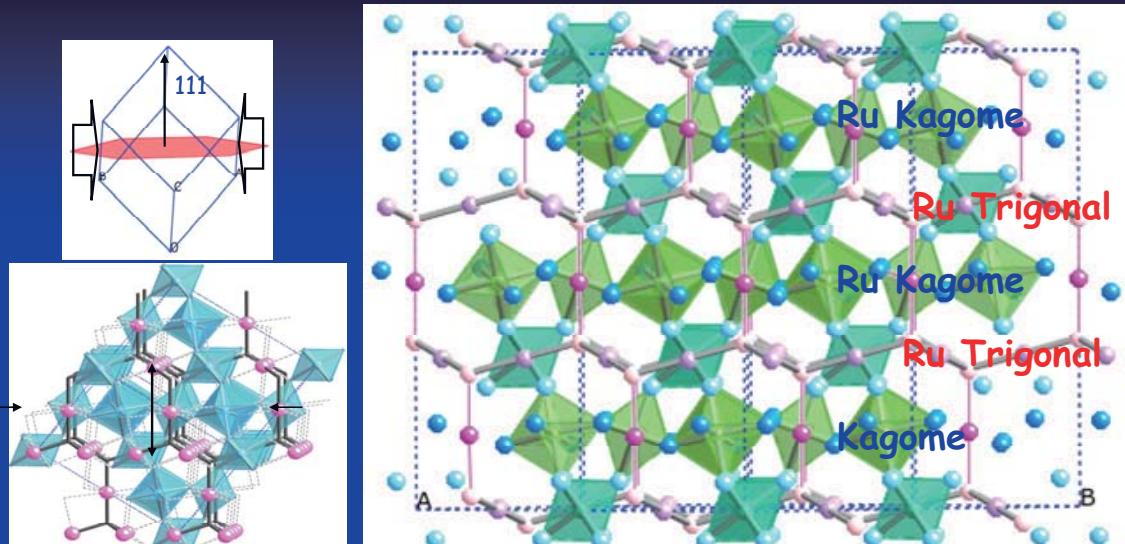
### Crystal structure

- (1) Lab detected the distortion  
but problem on wave length, intensity, resolution
- (2) Synchrotron  
coexistence of Hg and O, X-ray absorption,
- (3) J-PARC  
intensity (iMATERIA better), resolution (SHPD)

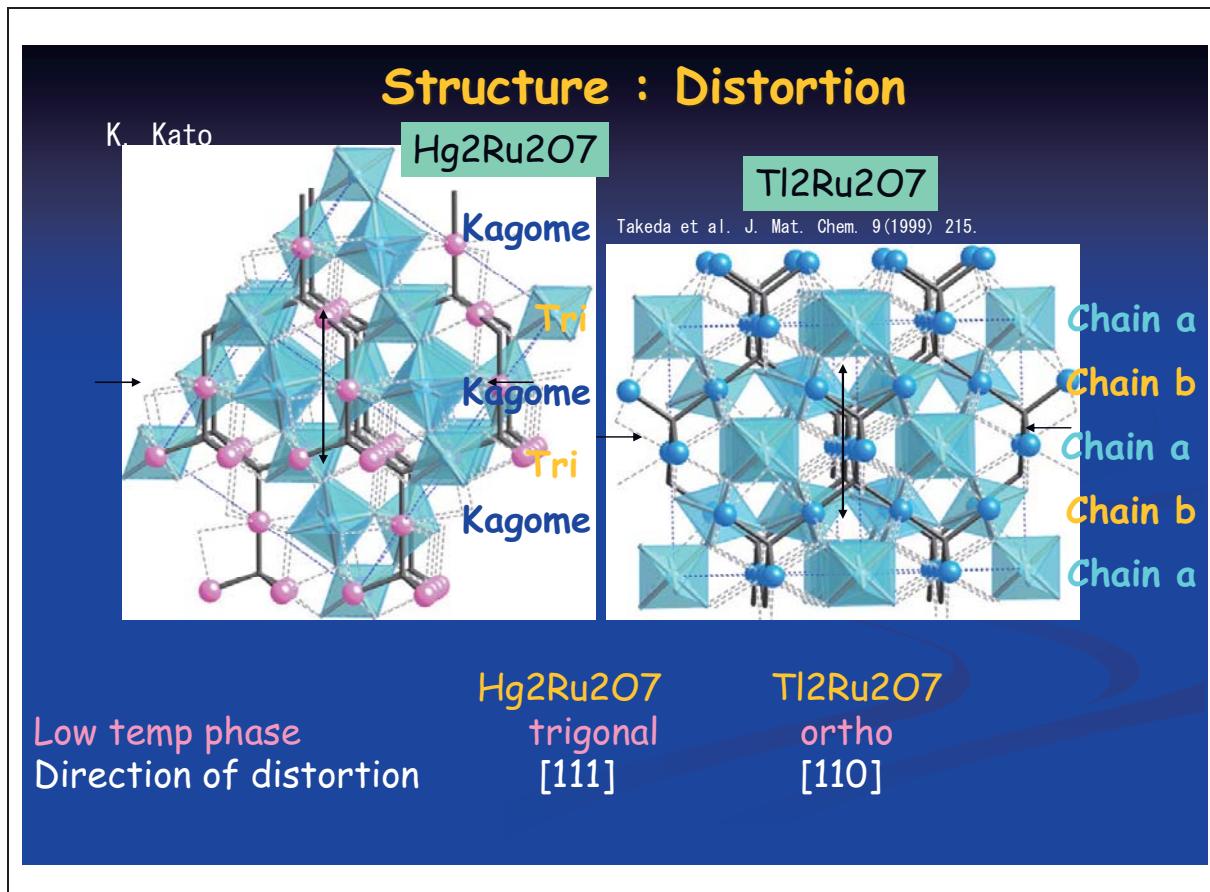
### Magnetic structure

- (1) NMR magnetic order at the  $T_{\text{MIT}}$ , Hg, isotope Ru 99
- (2)  $\mu\text{SR}$  magnetic order at the  $T_{\text{MIT}}$
- (3) High field, no enhancement up to 45T
- (4) Neutron diffraction, volume(intensity) problem

## Phase transition from Cubic to Trigonal



三角格子面とカゴメ格子面は  
面間の相互作用が弱くなり、面内の相互作用が強まる傾向  
2次元的フラストレーションへ（三角とカゴメ）



## Summary

- (1) Positional parameter of oxygen is a key of structural distortion.  
Conductivity: bonding angle of BO<sub>6</sub>-BO<sub>6</sub>  
Magnetism: orbital split → release spin frustration
- (2) Preference of A ion is important.  
Hg > Tl > Cd > Nd > Ca >> Gd >> Y
- (3) Trigonal distortion of BO<sub>6</sub> at room T depends on valence of B ion and coordination character of A ion.
- (4) Example: analysis of Low T phase of Hg<sub>2</sub>Ru<sub>2</sub>O<sub>7</sub>
- (5) Neutron diffraction analysis is needed and in progress at J-PARK SHPD and iMATERIA. Single crystal ??

第4回 三機関連携「量子複雑現象」研究会  
2010年12月20日@原子力研究開発機構システム計算科学センター

## 10. 六方晶フェライトにおける磁場誘起 電気分極と磁気構造

独立行政法人理化学研究所 基幹研究所  
交差相關物性科学研究グループ (CMRG)  
強相關量子科学研究グループ (CERG)

田口康二郎



### Collaborators

石渡 晋太郎	(Univ. of Tokyo, CMRG-RIKEN)
奥山 大輔	(CMRG-RIKEN)
徳永 祐介	(ERATO-MF)
金子 良夫	(ERATO-MF)
貴田 徳明	(Univ. of Tokyo, ERATO-MF)
熊倉 真一	(Univ. of Tokyo)
脇本 秀一	(JAEA)
加倉井 和久	(JAEA)
西 正和	(ISSP, Univ. of Tokyo)
岩佐 和晃	(Tohoku Univ.)
島野 亮	(Univ. of Tokyo, ERATO-MF)
有馬 孝尚	(IMRAM-Tohoku Univ / RIKEN SPring-8 )
十倉 好紀	(CMRG-RIKEN / CERG-RIKEN/ Univ.of Tokyo / ERATO-MF)

## Outline

- Introduction of spin driven electric polarization
- Weak magnetic field control of polarization  
in **Y-type hexaferrite  $Ba_2Mg_2Fe_{12}O_{22}$**
- Polarized neutron diffraction study on  
 **$Ba_2Mg_2Fe_{12}O_{22}$**  in transverse magnetic field
- **M-type hexaferrite** with room-temperature conical spin structure
- Summary

## Introduction

What's interesting about magnetically induced polarization?

Mutual control of electricity and magnetism with magnetic- and electric-field.

Possible device application in future spin-electronics

*e.g.*  $E$ -driven magnetization reversal  
with low power consumption

# Introduction

## Mechanisms of magnetically-induced polarization

$$P \sim e \times (\mathcal{S}_i \times \mathcal{S}_j)$$

Spin current model

Inverse Dzialoshinsky-Moriya interaction

$\text{TbMnO}_3$ ,  $\text{Ni}_3\text{V}_2\text{O}_8$ ,  $\text{MnWO}_4$ ,  $\text{CuO}$ , Hexaferrites

$$P \sim \mathcal{S}_i \cdot \mathcal{S}_j$$

Symmetric exchange striction

$\text{Ca}_3(\text{CoMn})_2\text{O}_6$ ,  $\text{GdFeO}_3$ ,  $\sigma\text{-RMnO}_3$

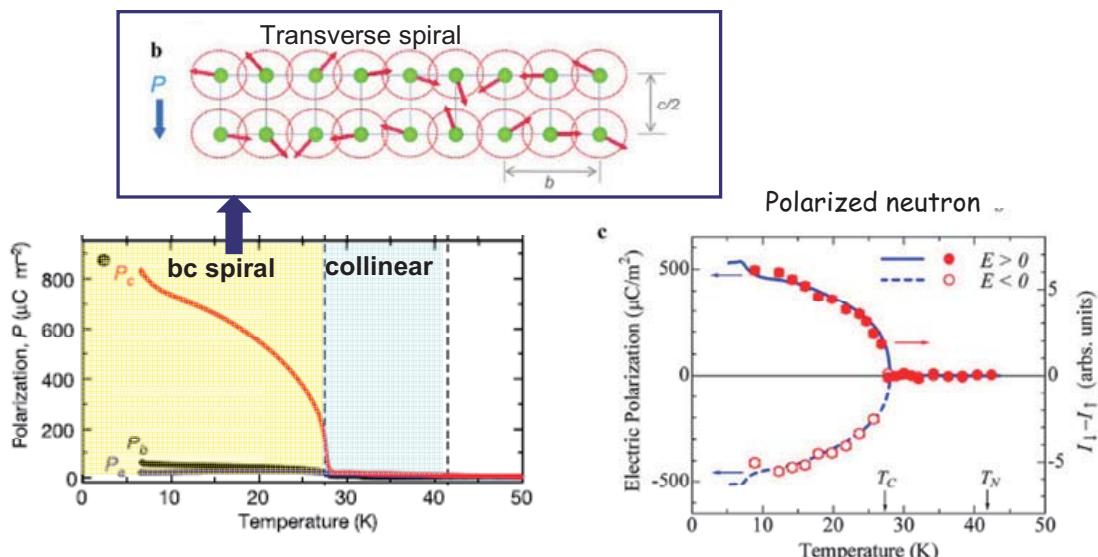
$$P \sim (e \cdot \mathcal{S}_i)\mathcal{S}_i - (e \cdot \mathcal{S}_j)\mathcal{S}_j$$

Spin dependent orbital hybridization

$\text{Cu(FeGa)O}_2$

# Introduction

## Magnetically induced ferroelectricity in $\text{TbMnO}_3$



T. Kimura et al. Nautre 426, 55(2003)

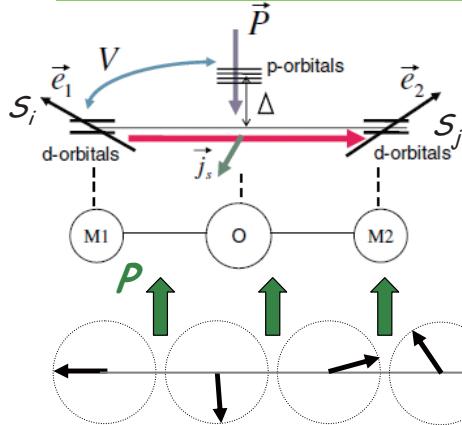
Y. Yamasaki et al. Phys. Rev. Lett. 98, 147204 (2007)

## polarization generation due to anti-symmetric exchange striction

### "Spin current model"

Katsura, Nagaosa, Balatsky PRL 95, 057205 (2005)

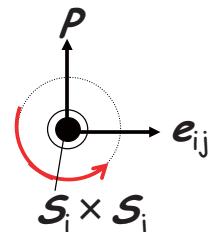
Spin-orbit interaction + Spin canting (=spin current)  $\rightarrow$  Polarization



### "Inverse DM interaction"

Sergienko and Dagotto, PRB (2006)  
Mostovoy, PRL (2006).

$$P = A e_{ij} \times (S_i \times S_j)$$



Transverse spiral structure gives rise to  $P$

Direction of  $P$  depends on the sense of spiral

## Ferroelectricity in helimagnets under magnetic field

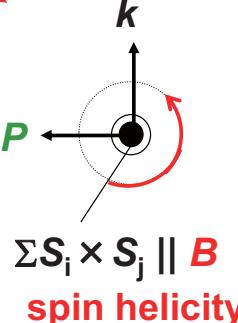
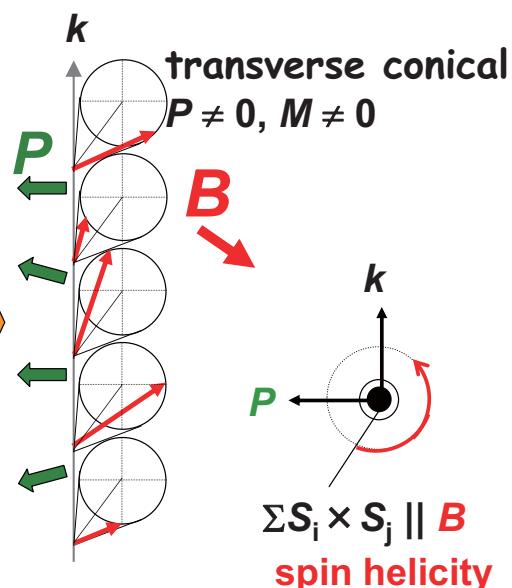
$$k \parallel \sum S_i \times S_j$$

longitudinal conical

$$P = 0, M \neq 0$$

$$P = \sum A e_{ij} \times (S_i \times S_j)$$

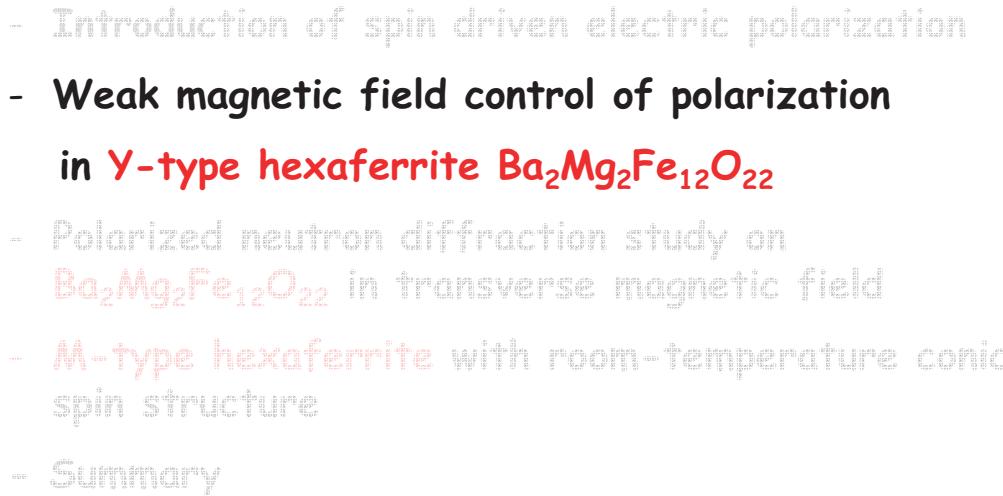
Katsura et al., PRL (2005)  
Mostovoy, PRL (2006).  
Sergienko et al., PRB (2006)



Weak planar anisotropy

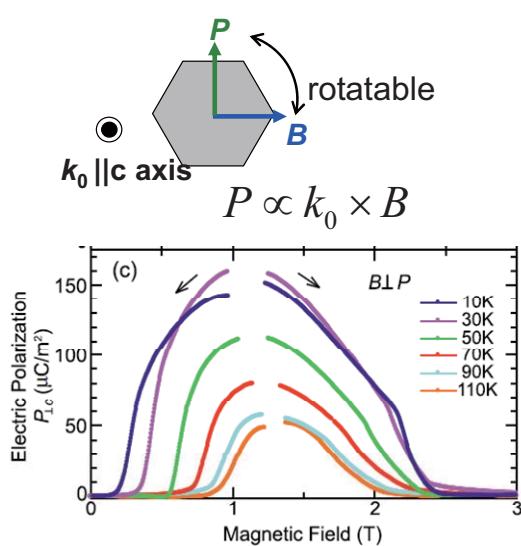
control of screw axis by low mag. field

## Outline



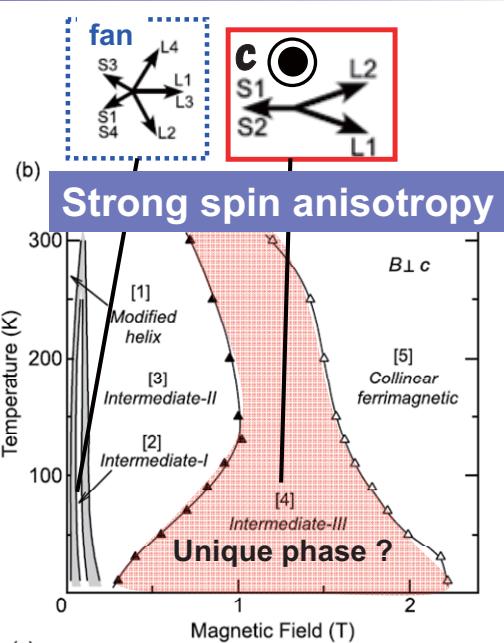
## Field-induced rotatable polarization in helimagnetic hexaferrite $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{1.5}\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$

T. Kimura et al. PRL (2005)



working at high  $T$

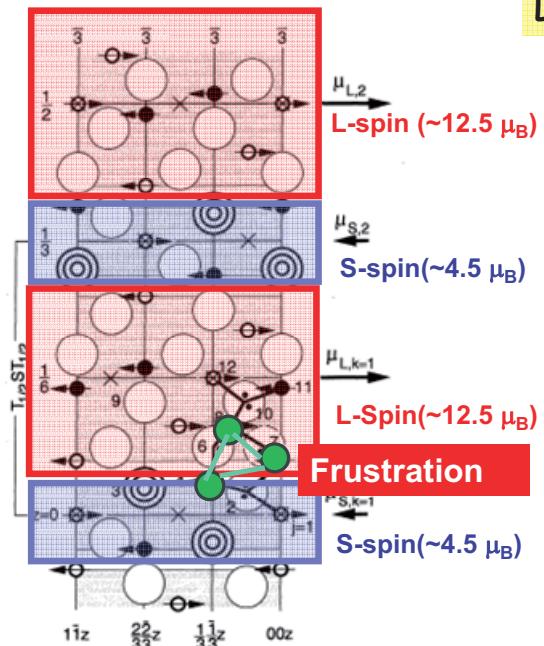
working at high  $B$



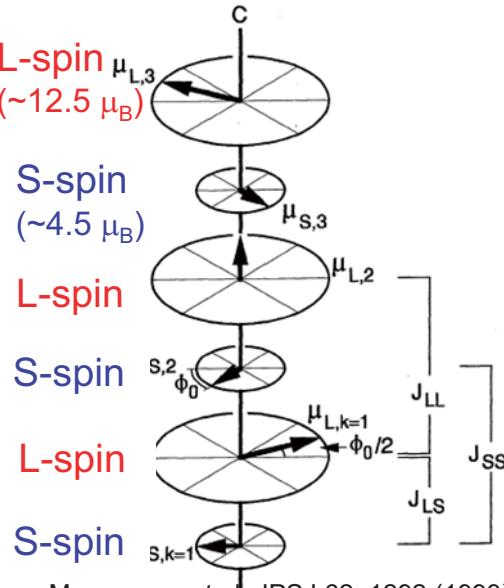
Relation between helical structure and field-induced polarization is not clear

## $\gamma$ -type hexagonal ferrite $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$

Basically, Spinel structure

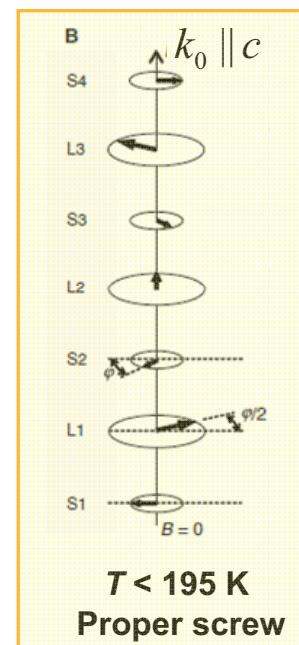
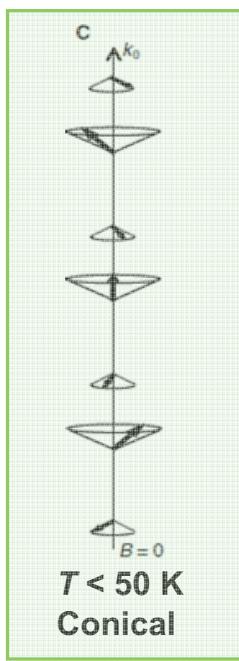
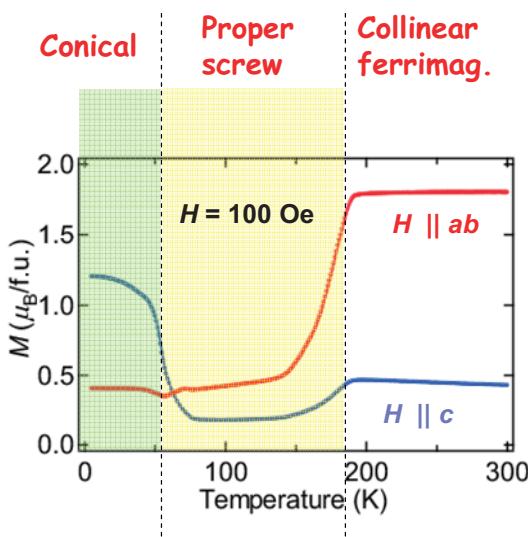


Helical structure composed of Long and Short "spin bunch"

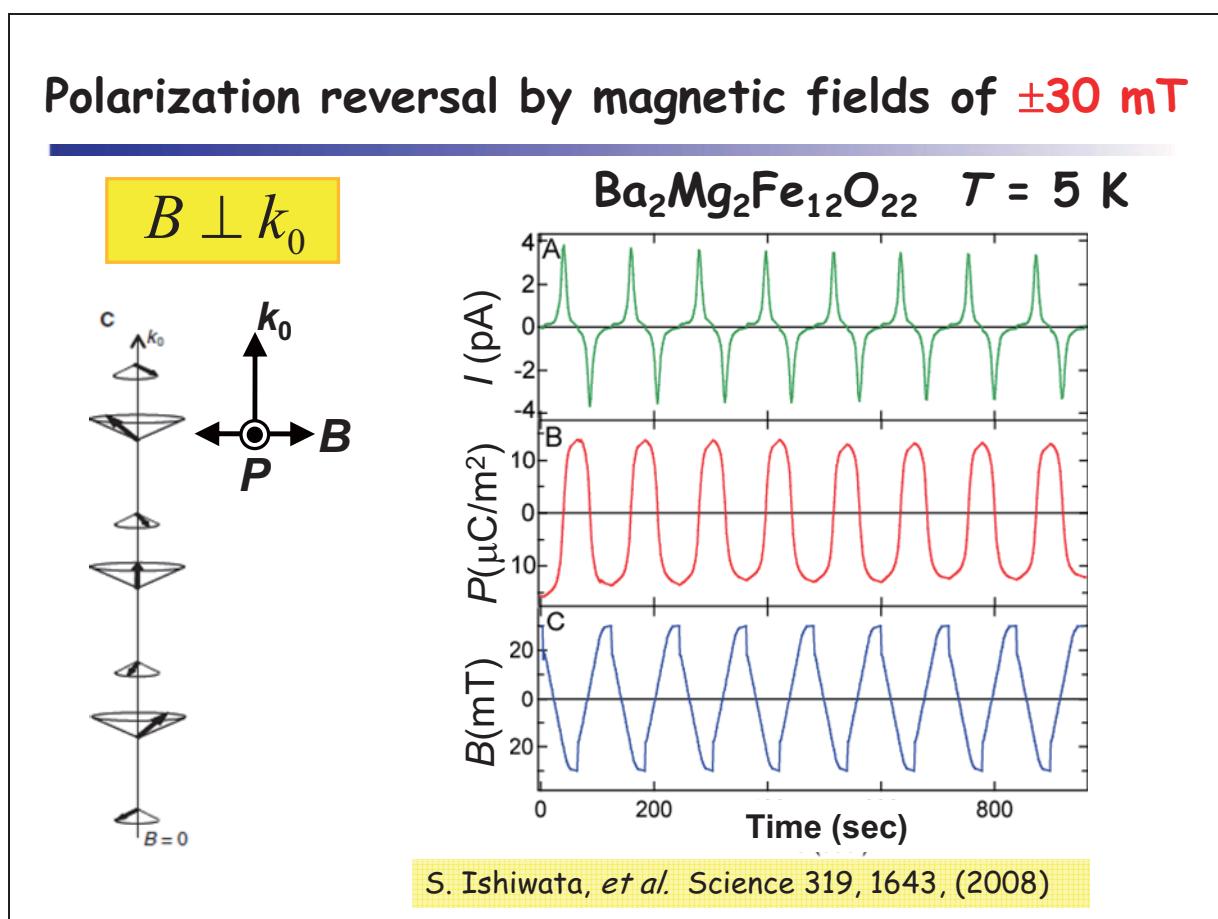
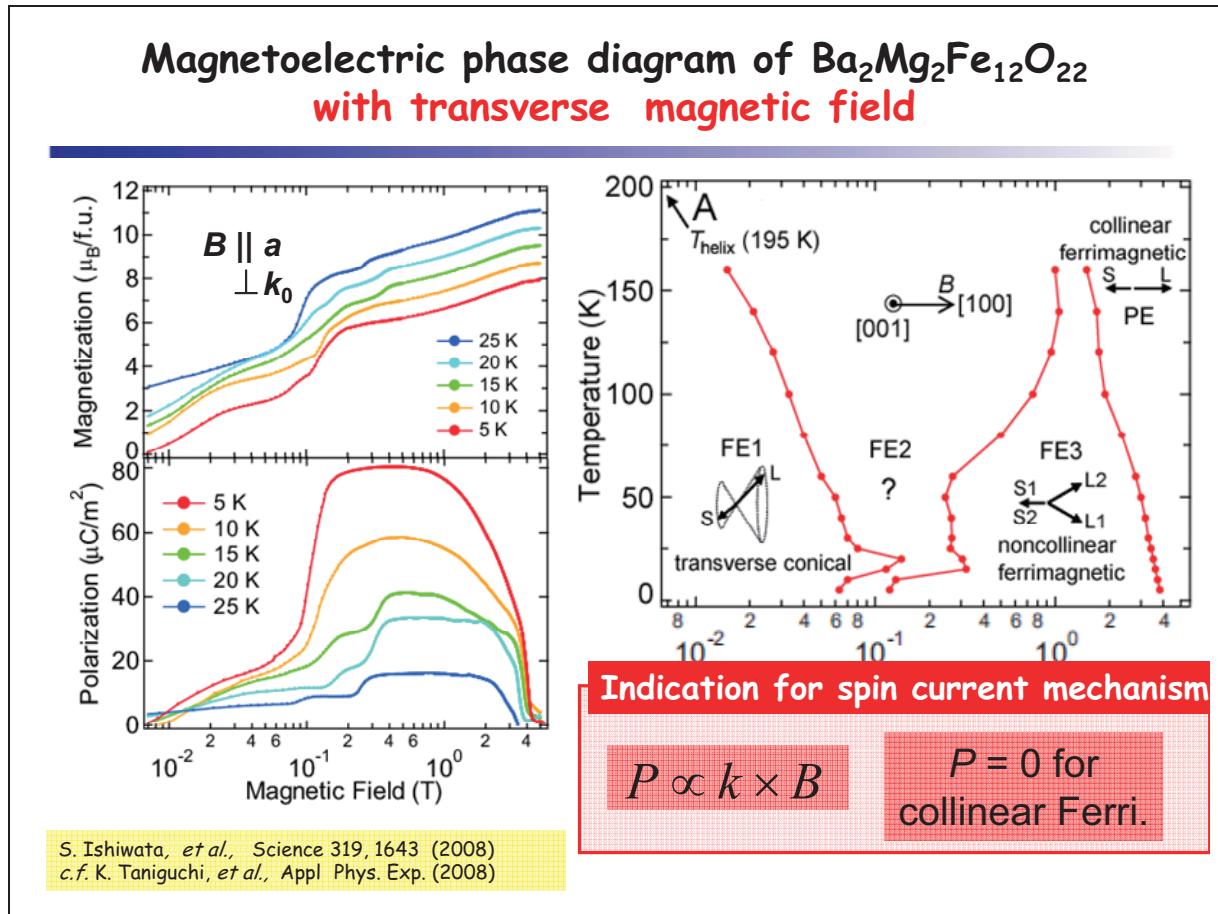


Momozawa et al. JPSJ 62, 1292 (1993)

## Helimagnetic order in $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$



Magnetically easy surface seems to be conical.



# Ferroelectric helimagnets

In  $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ , polarization can be controlled with the lowest field (30 mT) ever reported

compound	magnetic structure	$T_{\text{FE}}$	$H_{\text{FE}}$	ref.
$\text{TbMnO}_3$	cycloidal	28 K	$\sim 5$ T	Kimura, Nature 2003
$\text{TbMn}_2\text{O}_5$	cycloidal	40 K	$\sim 2$ T	Hur, Nature 2004
$\text{LiCu}_2\text{O}_2$	cycloidal	22 K	$\sim 2$ T	Park, PRL 2007
$\text{Ni}_3\text{V}_2\text{O}_8$	cycloidal	7 K	$0 \sim 6$ T	Lawes, PRL 2005
$\text{CuFeO}_2$	cycloid like	10 K	$\sim 10$ T	Kimura, PRB 2006
$\text{MnWO}_4$	cycloidal	13 K	$0 \sim 10$ T	Taniguchi, PRL 2006
$\text{CoCr}_2\text{O}_4$	transverse conical	26 K	$\sim 0.2$ T	Yamasaki, PRL 2006
$\text{CuO}$	cycloidal	230 K	-	Kimura, Nature Mat. 2008
$\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{1.5}\text{Zn}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$	noncollinear ferrimag.	320 K	$\sim 1$ T	Kimura, PRL 2005

Working at  $H_{\text{FE}} \sim 1$  T and  $T_{\text{FE}} < 40$  K

## Outline

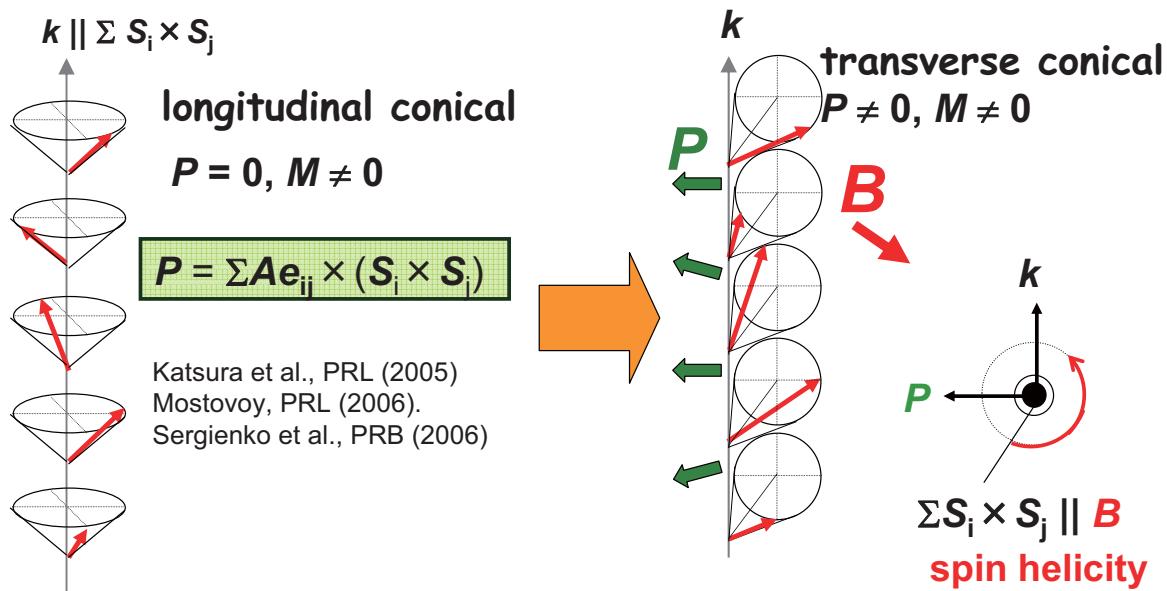


Y-type hexaferrite  $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$

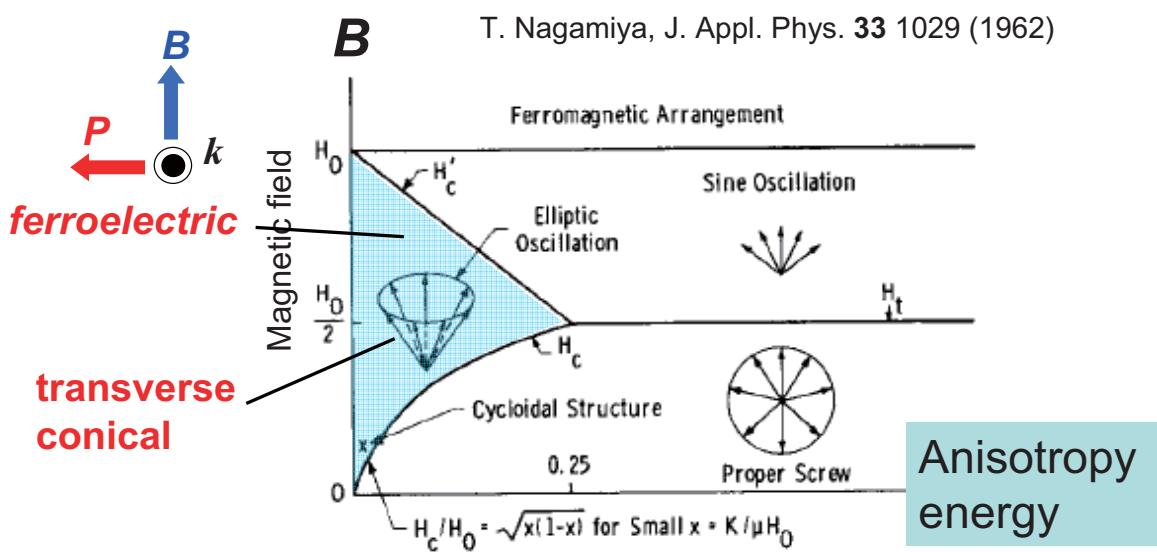
- Polarized neutron diffraction study on  $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  in transverse magnetic field



## Ferroelectricity in helimagnets under magnetic field



## Helimagnetic structure under magnetic fields

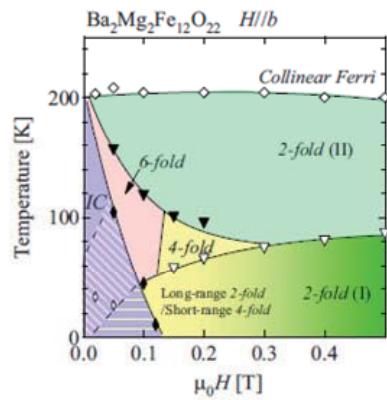
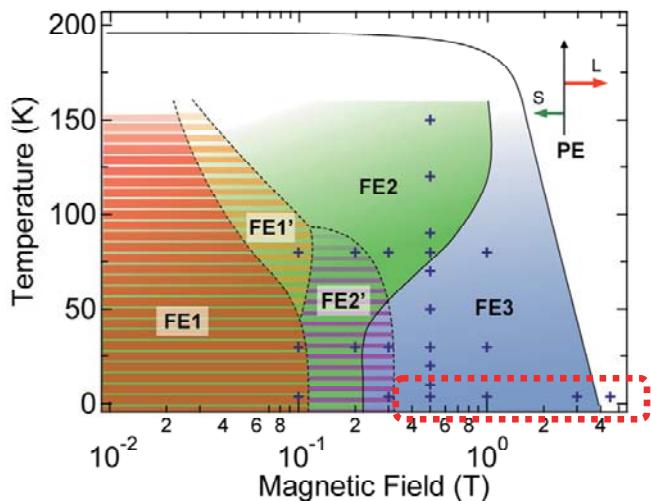


Transverse conical spin structure becomes stable at low  $H$  when the anisotropic energy is small

## Magnetic phase diagram of $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$

### Complex phase diagram

TAS-1, JRR3

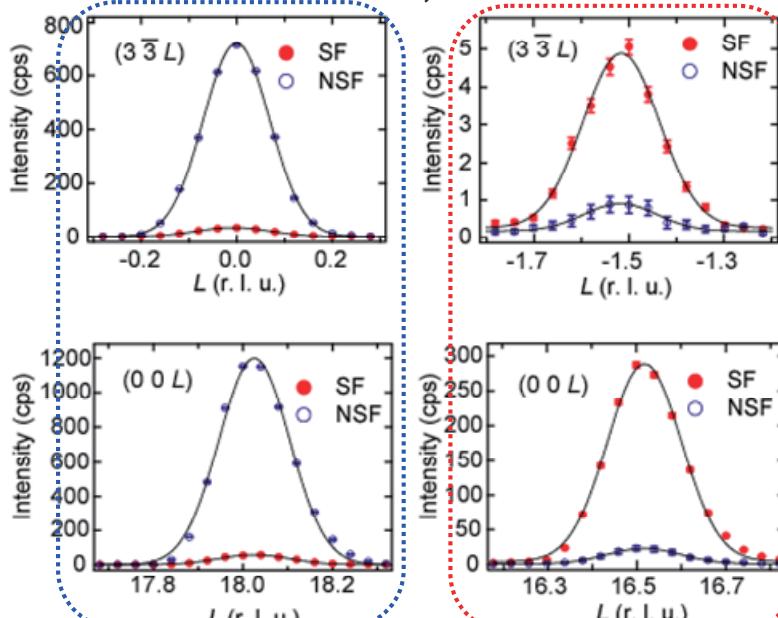
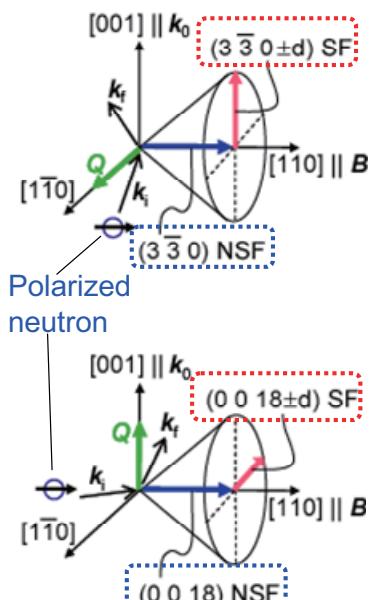


H. Sagayama et al. PRB (2009)

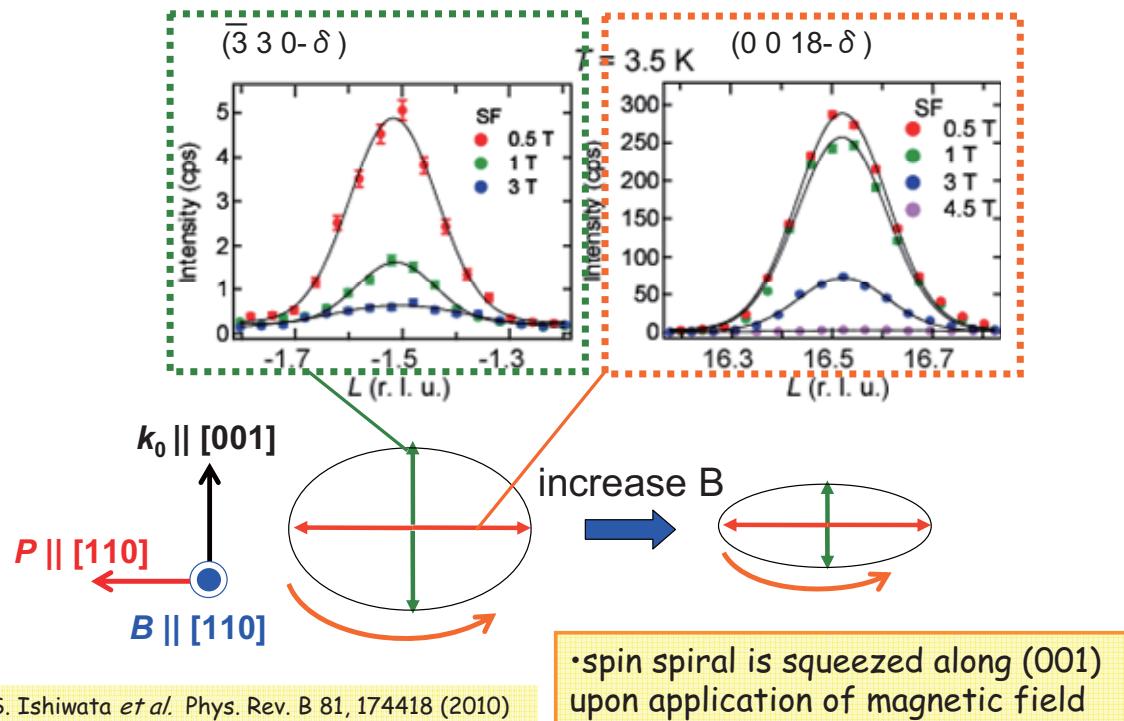
S. Ishiwata et al. Phys. Rev. B 81, 174418 (2010)

### Polarized neutron diffraction on FE3

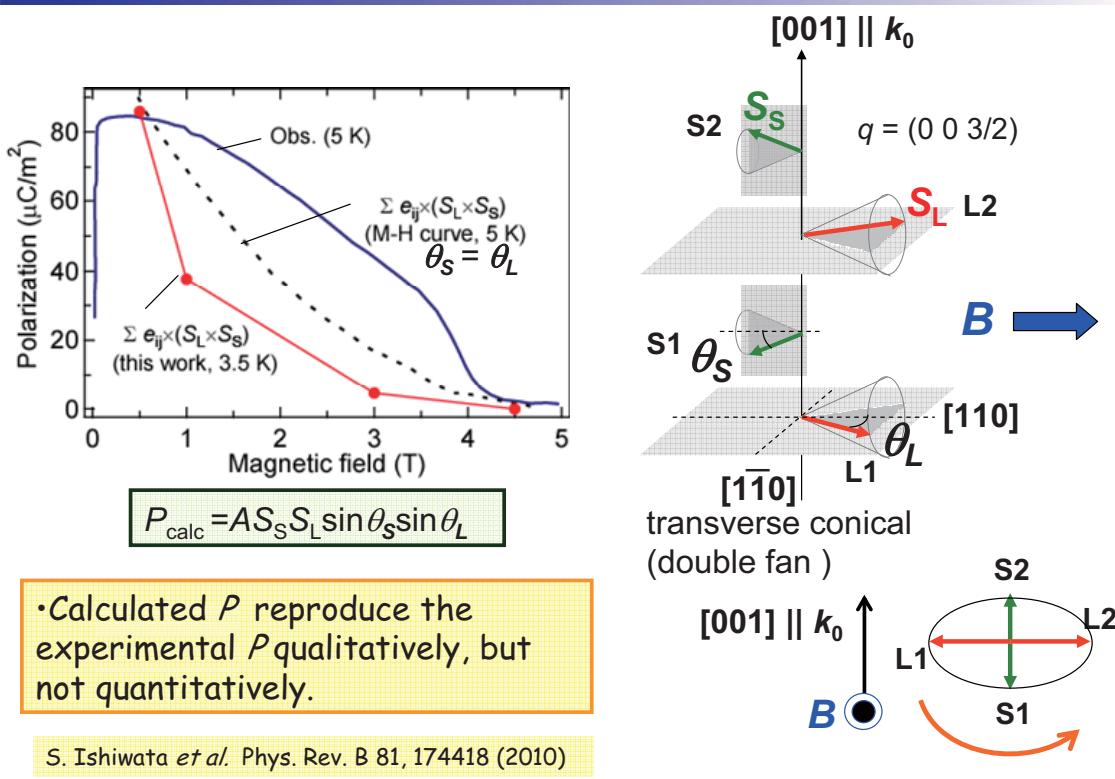
0.5 T, 3.5 K TAS-1, JRR3

transverse ferro.  
component ( $\parallel B$ )cycloidal  
component ( $\perp B$ )FE3 phase has  
transverse conical  
spin structure

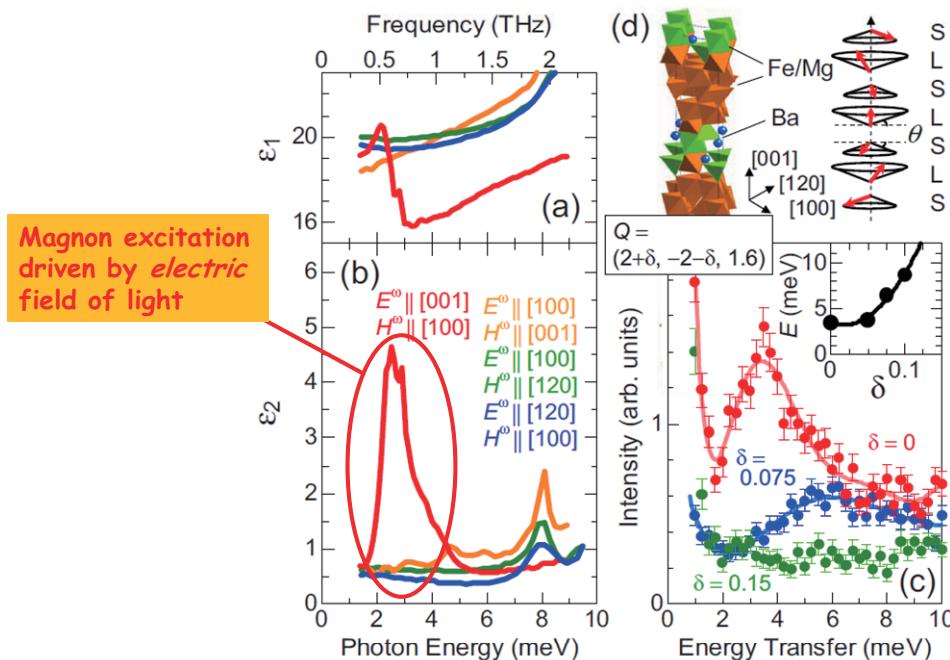
## Magnetic field dependence of satellite peaks



## Possible Magnetic structure model for Fe3

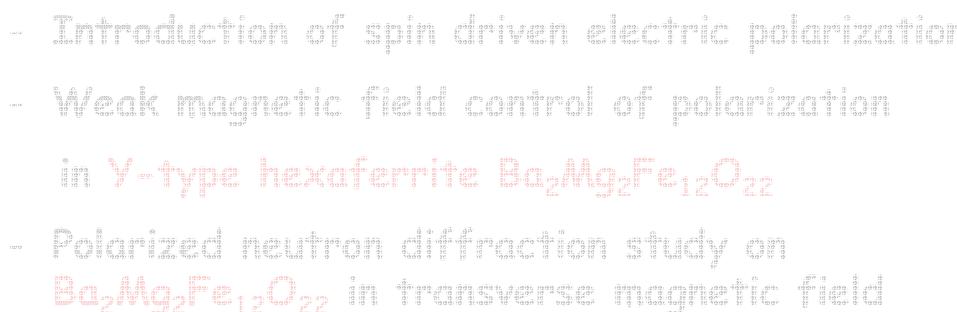


## Electromagnon absorption as observed by THz spectroscopy



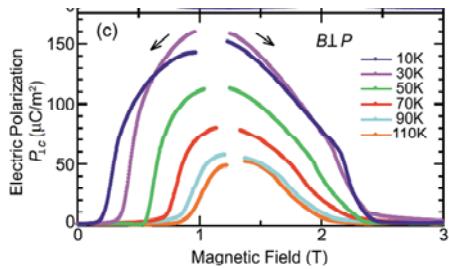
N. Kida, D. Okuyama *et al.* Phys. Rev. B 80, 220406 (R) (2009)

## Outline

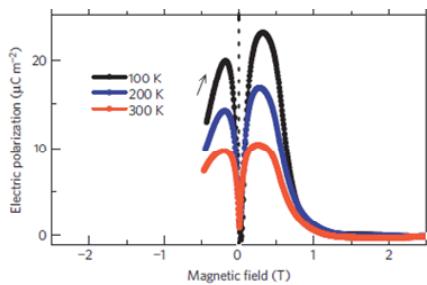


- M-type hexaferrite with room-temperature conical spin structure

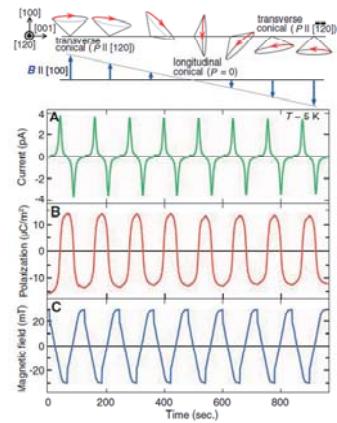
## Hexaferrites as promising multiferroics



Y-type, B-induced polarization  
T. Kimura *et al.* PRL (2005)



Z-type, room temp. operation  
Y. Kitatawa *et al.* Nat. Mat. (2010)



Y-type, weak field (300 Oe) control  
S. Ishiwata *et al.* Science (2008)  
K. Taniguchi *et al.* APEX (2008)

## M-type hexaferrite $\text{BaFe}_{12-x}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$

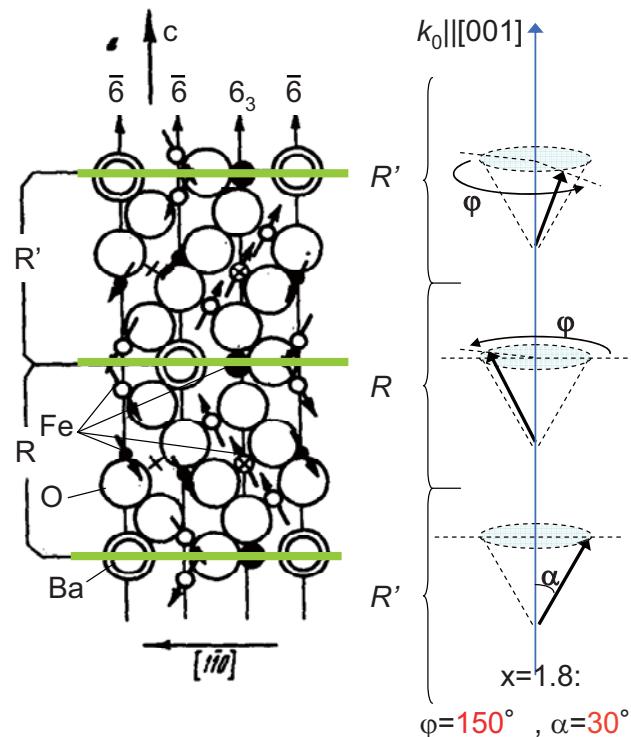


Hard magnet (uniaxial:  $M \parallel [001]$ )  
cf. Y-type  $\Rightarrow$  planar



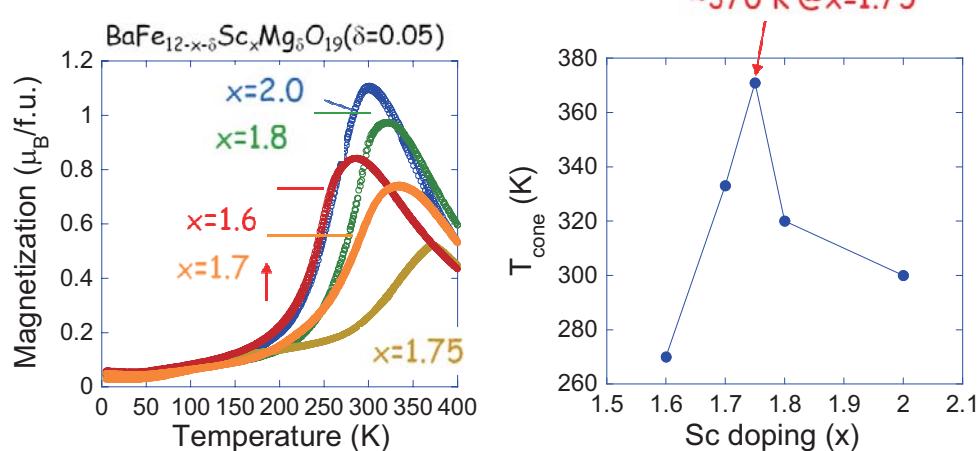
O.P. Aleshko-Ozhevskii *et al.* JETP (1969).  
Aleshko-Ozhevskii *et al.*, JETP Lett. (1968).

M-type:  
ferrimagnetic (uniaxial)  
 $\Rightarrow$  longitudinal conical



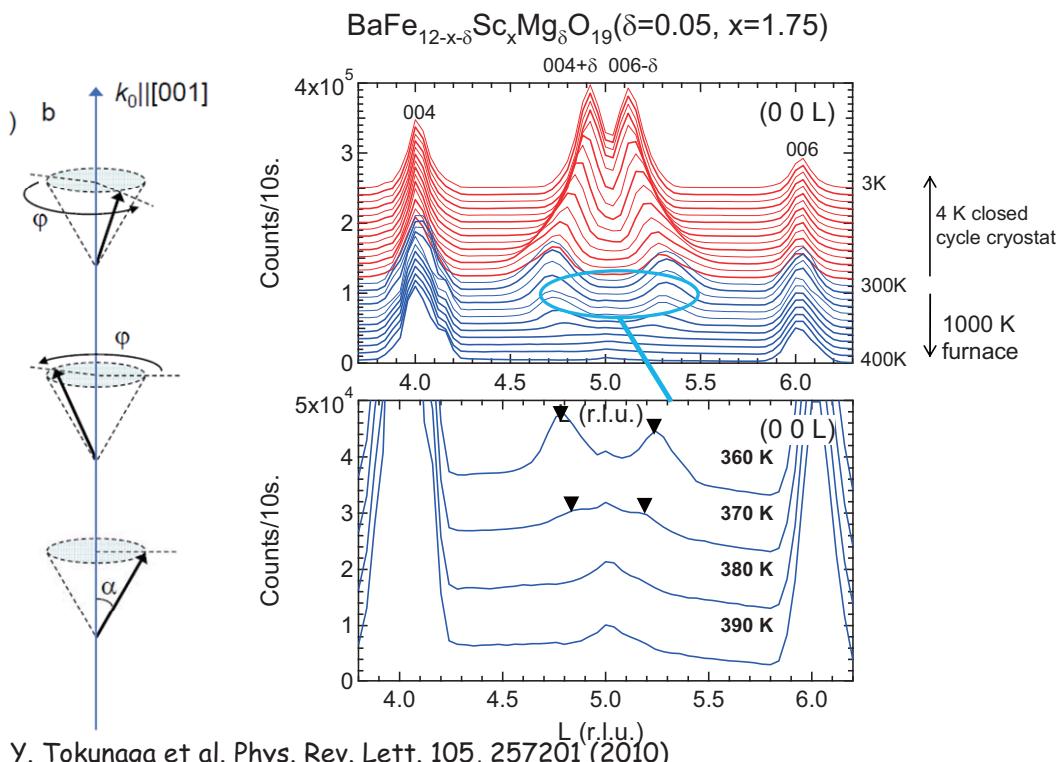
## Ferrimagnetic to conical transition in M-type hexaferrite

Room-temperature conical magnet!!

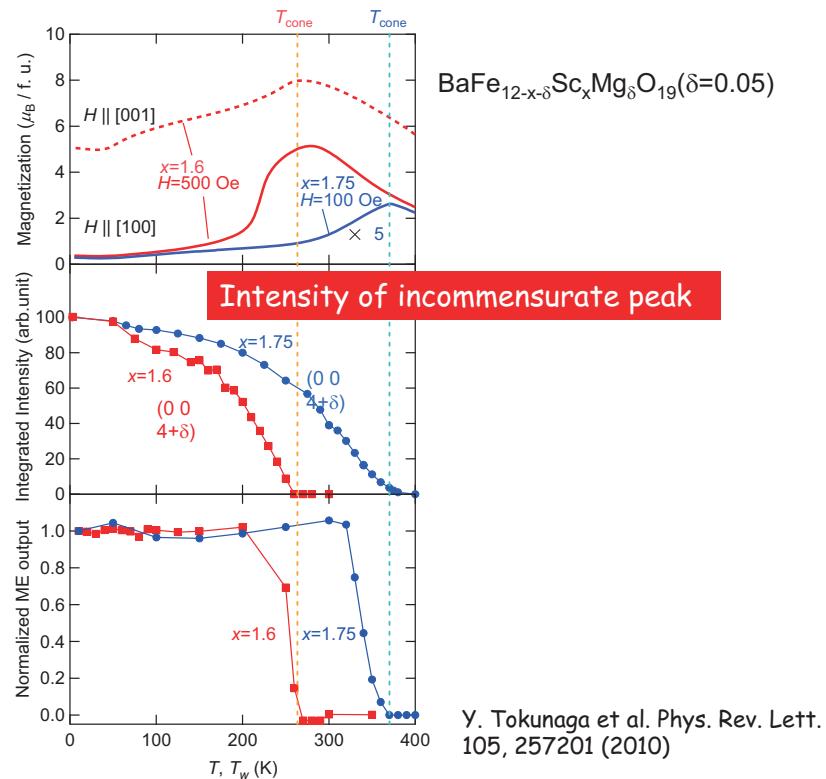


Y. Tokunaga et al. Phys. Rev. Lett. 105, 257201 (2010)

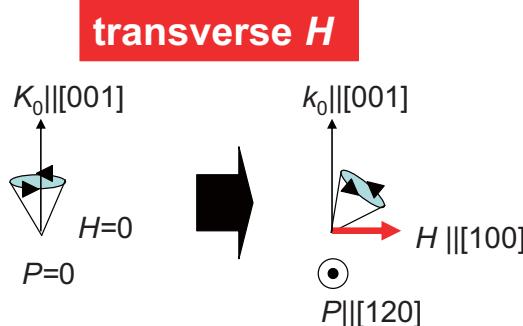
## Neutron diffraction study of conical transition



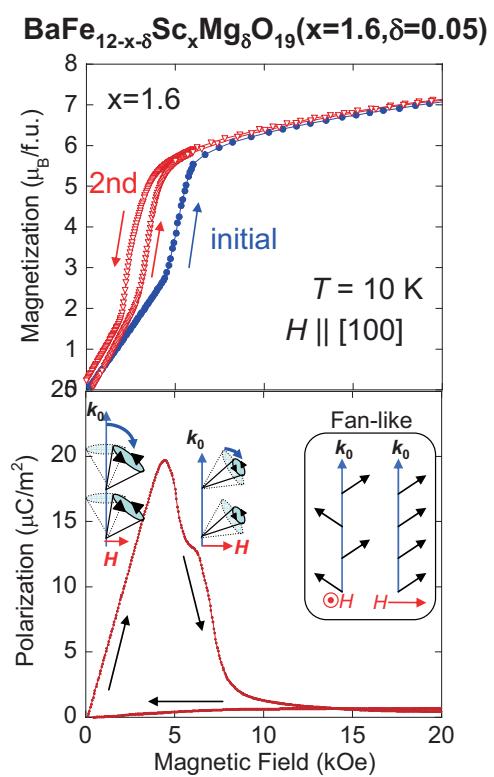
## Neutron diffraction study of conical transition



## Polarization induced by transverse magnetic field



- Tilting of cone induces  $P$
- Metamagnetic transition  $\sim 5$  kOe  
⇒ irreversible disappearance of  $P$   
⇒ transverse conical state is **not stable**

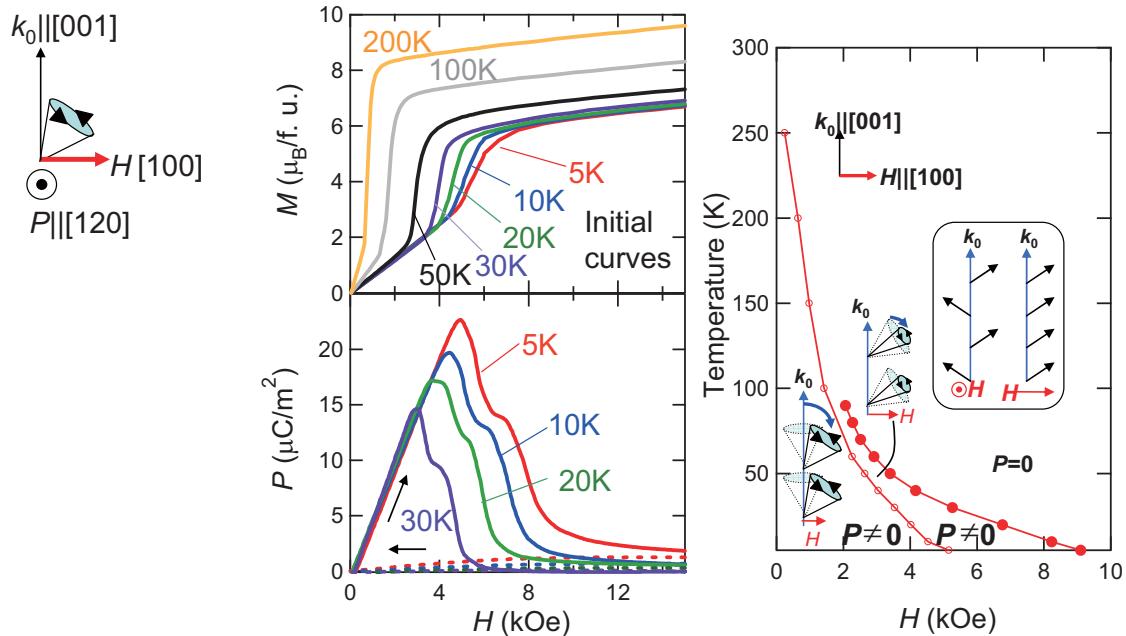


**Y. Tokunaga et al. Phys. Rev. Lett. 105, 257201 (2010)**

## T-H phase diagram in transverse magnetic field

**transverse  $H$**

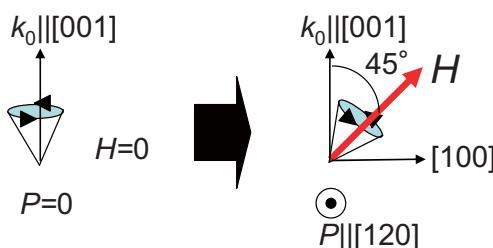
$\text{BaFe}_{12-x-\delta}\text{Sc}_x\text{Mg}_\delta\text{O}_{19}$  ( $x=1.6$ ,  $\delta=0.05$ )



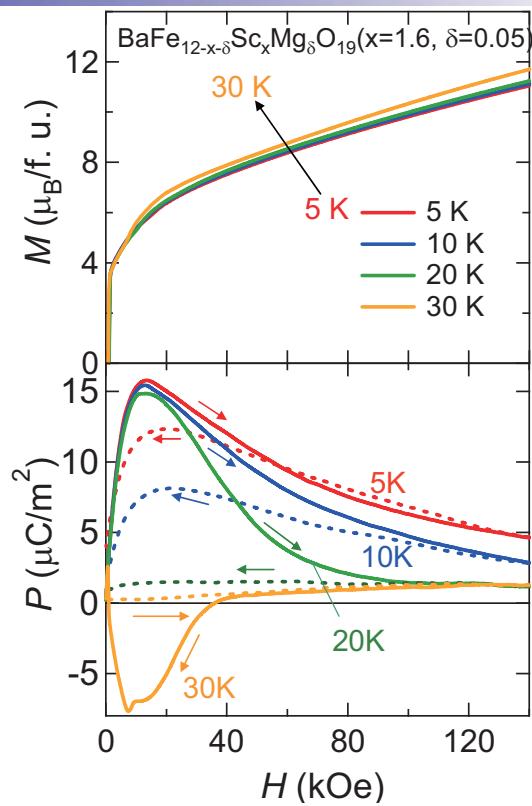
Y. Tokunaga et al. Phys. Rev. Lett. 105, 257201 (2010)

## Polarization in tilted magnetic field

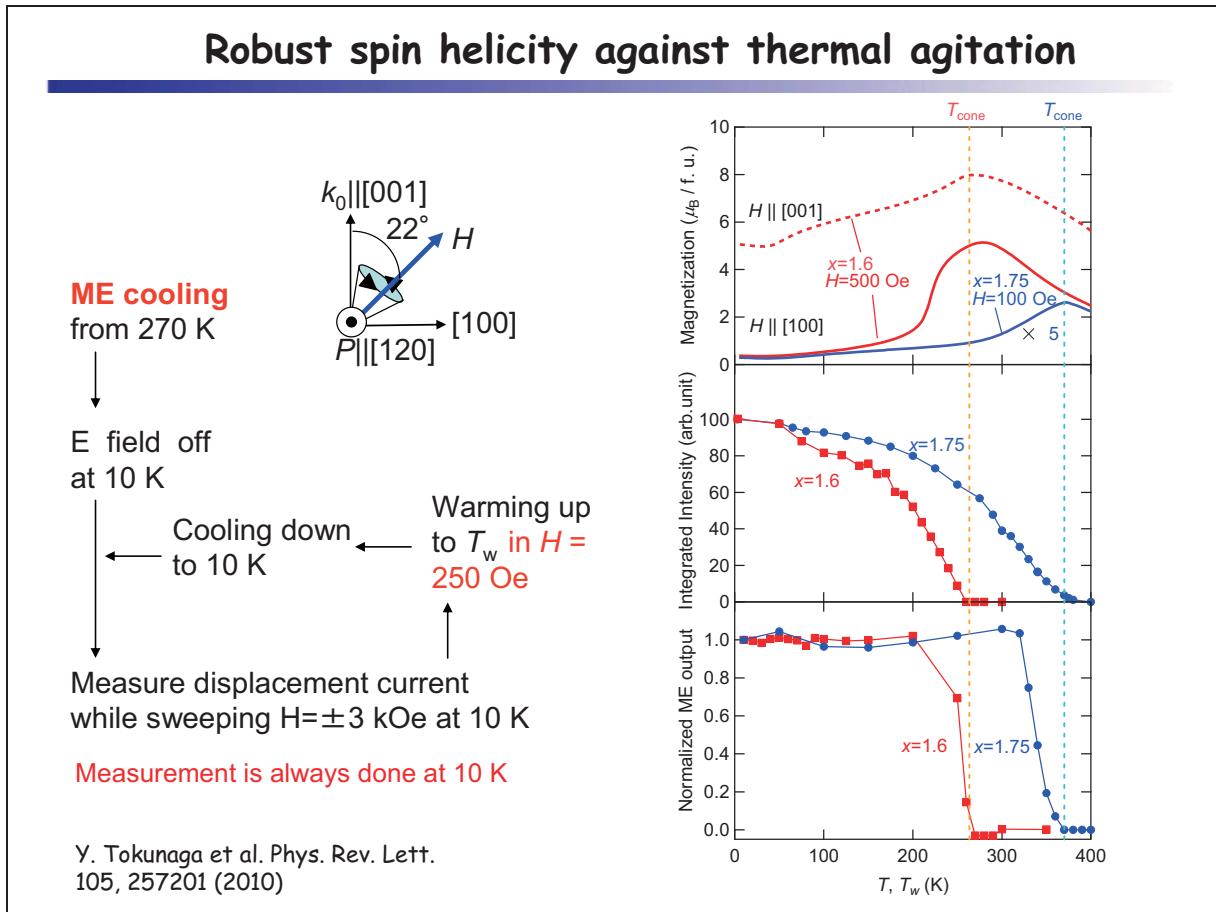
**tilted  $H$**



• Conical structure is stable against tilted magnetic field



Y. Tokunaga et al. Phys. Rev. Lett. 105, 257201 (2010)



### Summary

+ In Y-type hexaferrite  $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$

\*Polarization is induced by transverse magnetic field.

\*The direction and magnitude of  $P$  was controlled by a magnetic field as weak as 300 Oe.

S. Ishiwata et al. Science 319, 1643 (2008)

+ In Y-type hexaferrite  $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$

\*Transverse conical structure was confirmed

by polarized neutron diffraction.

S. Ishiwata et al. Phys. Rev. B 81, 174418 (2010)

\*Gigantic magneto-chromism was observed via electro-magnon excitation.

N. Kida et al. Phys. Rev. B 80, 220406 @ (2009); N. Kida et al. submitted.

+ In M-type hexaferrite  $\text{BaFe}_{12-x}\text{Sc}_x\text{O}_{19}$ ,

\* Conical spin state above room-temperature with robust spin helicity

\* Clamping between spin helicity and magnetization changes as  $T$  varies.

Y. Tokunaga et al. Phys. Rev. Lett. 105, 257201 (2010)

# 11. 中性子と放射光X線による マルチフェロイクスCuFeO<sub>2</sub>の研究



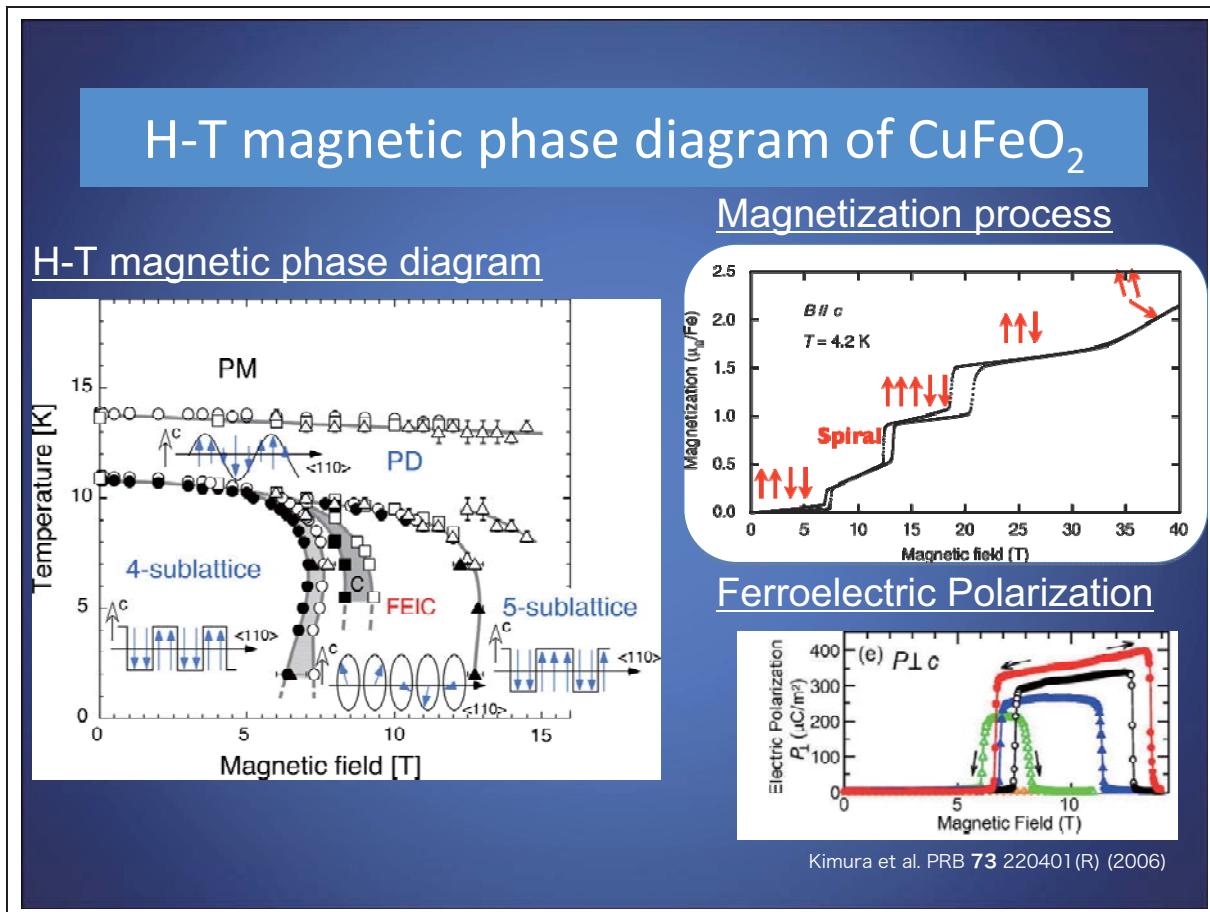
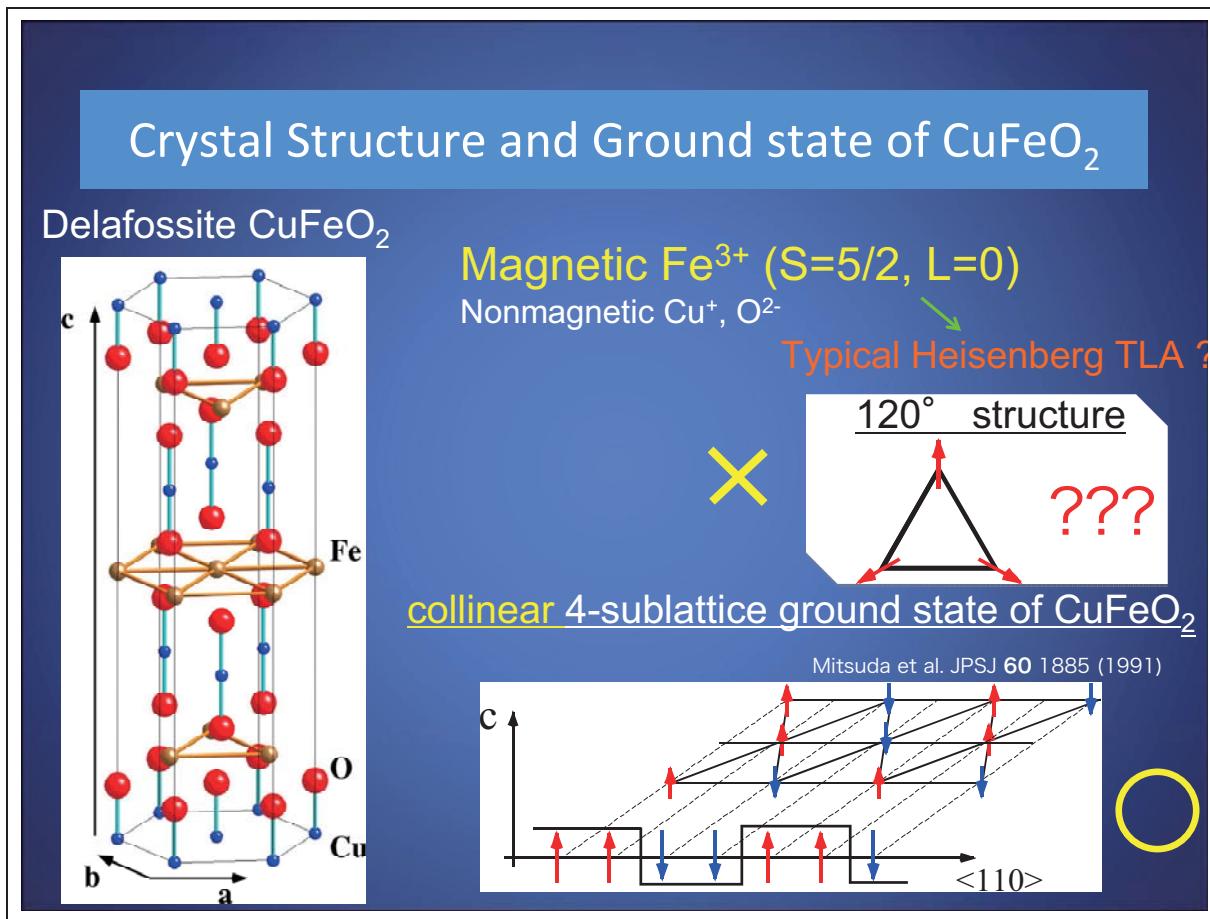
寺田典樹

物質・材料研究機構 中性子散乱グループ

共同研究者：満田節生、中島多朗、大隅寛之、勝又紘一、田中良和、  
鳴海康雄、加倉井和久、長壁豊隆、左右田稔、松浦直人、廣田和馬

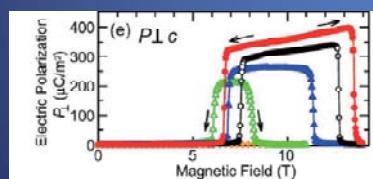
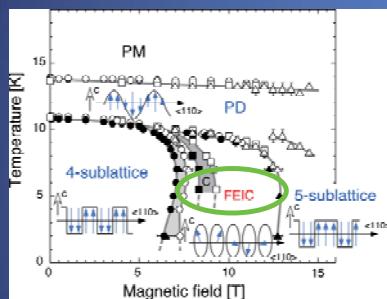
## Outline

- **Introduction**  
*Multiferroic triangular lattice antiferromagnet CuFeO<sub>2</sub>*
- **Spin-lattice coupling CuFeO<sub>2</sub>**
  - *Lattice distortion (synchrotron x-ray)*
  - *Spin-wave excitation (neutron)*
  - *High-pressure study (neutron)*
- **Multiferroicity in CuFeO<sub>2</sub>**
  - *Spin chirality (neutron)*
  - *Orbital modulation (synchrotron x-ray)*
- **Summary**



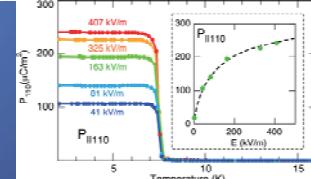
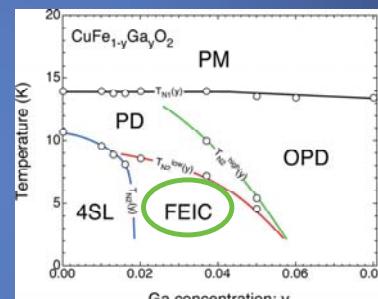
## Field and substitution induced ferroelectric state

**Field-induced Ferroelectricity**  
 $\text{CuFeO}_2$



Kimura et al. PRB **73** 220401(R) (2006)

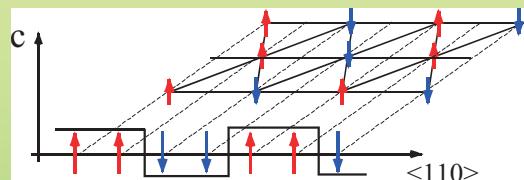
**Impurity-substitution induced FE**  
 $\text{CuFe}_{1-x}\text{N}_x\text{O}_2$  ( $N = \text{Al or Ga}$ )



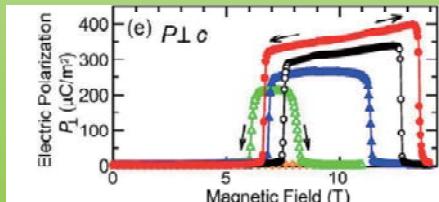
Kanetsuki JPCM **14** 145216 (2007)  
Seki et al. PRB **75** 100403(R) (2007)  
Terada et al. PRB **78** 014101 (2008)  
Terada et al. JPCS **145** 012071 (2009)

## Motivation: Study of $\text{CuFeO}_2$

- Why is the ground state collinear ground state ?



- Why does the ferroelectricity appear in the noncollinear phase?

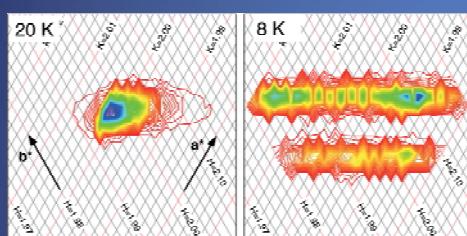


# Outline

- **Introduction**  
*Multiferroic triangular lattice antiferromagnet CuFeO<sub>2</sub>*
- **Spin-lattice coupling CuFeO<sub>2</sub>**
  - Lattice distortion (synchrotron x-ray)
  - Spin-wave excitation (neutron)
  - High-pressure study (neutron)
- **Multiferroicity in CuFeO<sub>2</sub>**
  - Spin chirality (neutron)
  - Orbital modulation (synchrotron x-ray)
- **Summary**

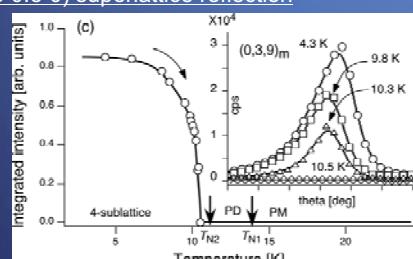
## Spontaneous lattice distortion

X-ray diffraction intensity around 220 reflection



Three-fold rotational symmetry breaking

(0.5 0.5 0) superlattice reflection

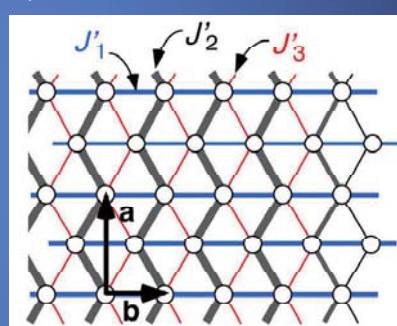


Doubling the lattice period along [110]

N. Terada et al. JPSJ **75** 023602 (2006)

Experiment at BL46XU at SPring-8

Expected lattice distortion: scalene triangle



The geometric frustration in this system is released by the spontaneous lattice distortion. As the result, the unexpected 4-sublattice ground state considered to be stabilized.

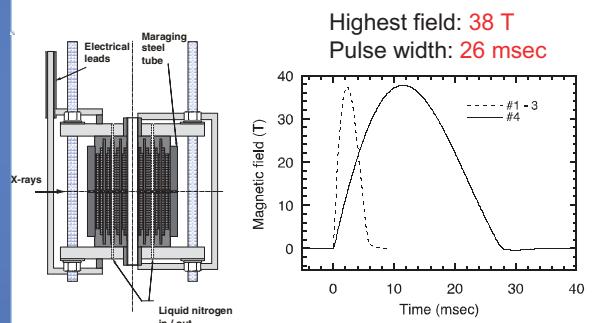
## X-ray diffraction under pulsed magnetic fields

**Motivation:** clarify the relationship between the magnetic phase transition and lattice deformation under high magnetic fields.

Experiment at BL19LXU at SPring-8



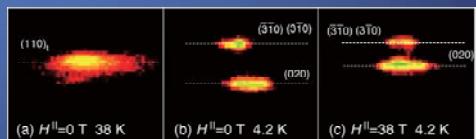
Narumi et al. J. Syn. Rad. **13** 120 (2006)



2D pixel detector  
Developed by PSI



Typical diffraction images



## Relationship between calculation and observation

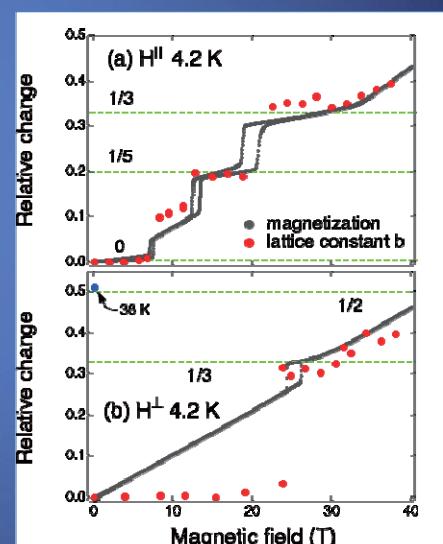
Relative fractional change in lattice constant b in magnetic phases

	Magnetic structure	$d_m$	$\frac{d_m - d_{4SL}}{d_{Ferro} - d_{4SL}}$
<b>4SL</b>		$d_{4SL} = d + \delta$	<b>0</b>
<b>5SL</b>		$d_{5SL} = d + (3/5)\delta$	<b>1/5</b>
<b>3SL</b>		$d_{3SL} = d + (1/3)\delta$	<b>1/3</b>
<b>Ferro</b>		$d_{Ferro} = d - \delta$	<b>1</b>
<b>Para</b>		$d_{Para} = d$	<b>1/2</b>

The relative change in the lattice constant b can be quantitatively explained by our magnetostriction model.

Terada et al. Phys. Rev. B **75** 224411 (2007)

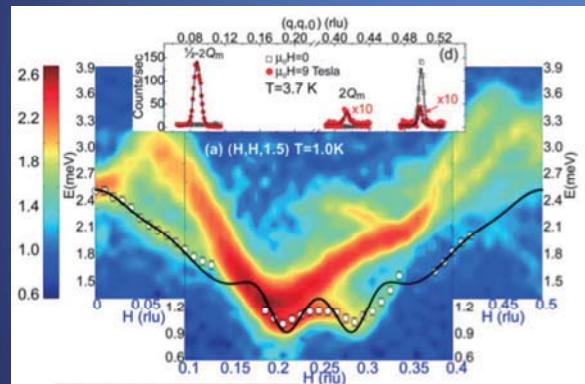
Relationship between calculation and observation



## Magnetic excitation spectrum: Previous Works

中性子非弾性散乱により、スピン波分散関係が得られていたが、、

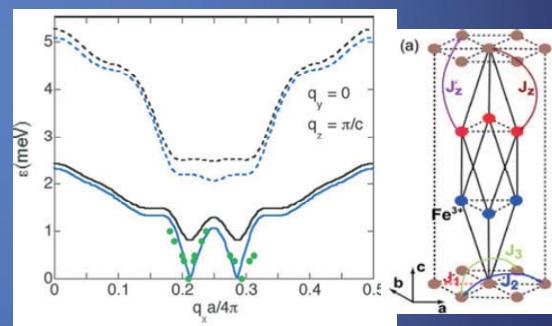
Ye. et al. PRL **99** 157201 (2007)  
Terada et al. JPCM **14** 145241 (2007)



マルチドメインの分散関係は非常に複雑で解析が困難

三角格子+第3近接交換相互作用

$$H = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{i,j}^{\parallel} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - \frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{i,j}^{\perp} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j - D \sum_i S_{iz}^2,$$



Fishman JAP **103** 078109 (2008)

三角格子モデルでは、実験結果を説明できていなかった。

## Inelastic neutron scattering



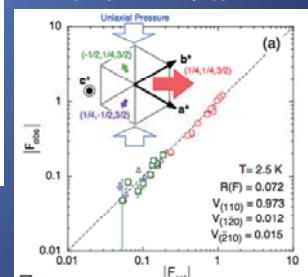
理科大満田研  
中島多朗

C1-1 HER JRR-3



一軸圧力セルの  
10MPa  
阿曾氏が開発

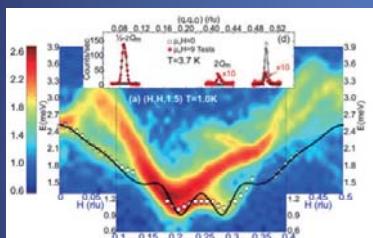
シングルドメイン化に成功



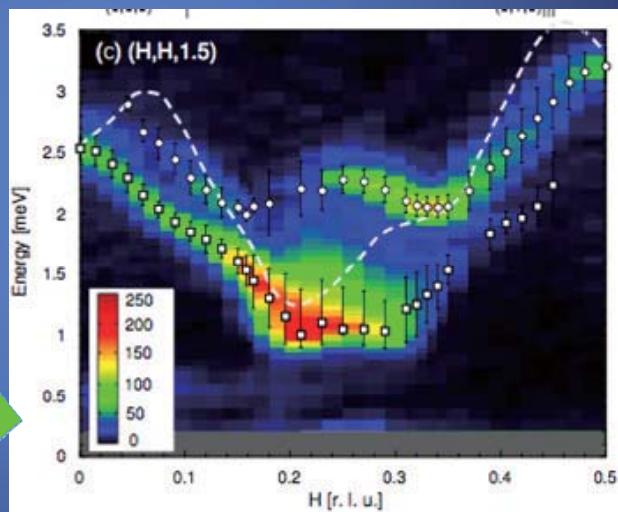
# Spin-wave dispersion in CuFeO<sub>2</sub>

Nakajima et al. JPSJ in press arXiv 1011.2859v1

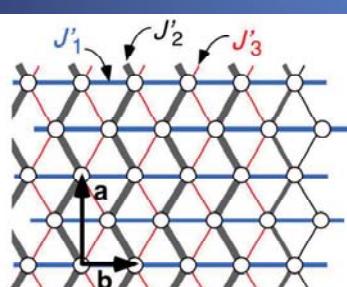
マルチドメイン



シングルドメイン



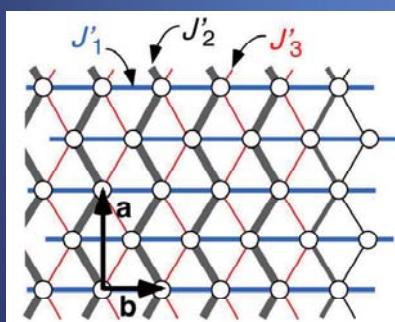
不等辺三角格子モデルで説明できる！



## Motivation: Pressure effect on CuFeO<sub>2</sub>

Magnetic ordering in CuFeO<sub>2</sub> is stabilized with help of **anisotropic** lattice distortion lowering the lattice symmetry and release the frustration.

Expected lattice distortion: scalene triangle

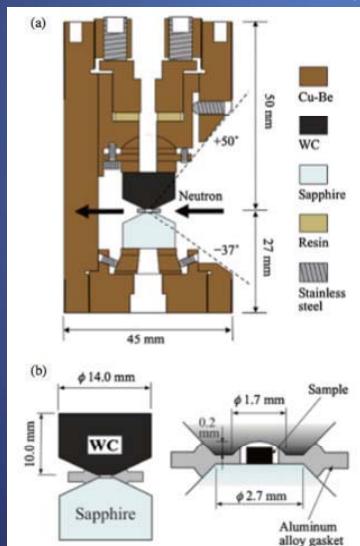


If the anisotropic distortion is suppressed by isotropic hydrostatic pressure, the magnetic ordering should be suppressed under the pressure.

## Our Recent Works: Neutron diffraction CuFeO<sub>2</sub> under 7.9 GPa

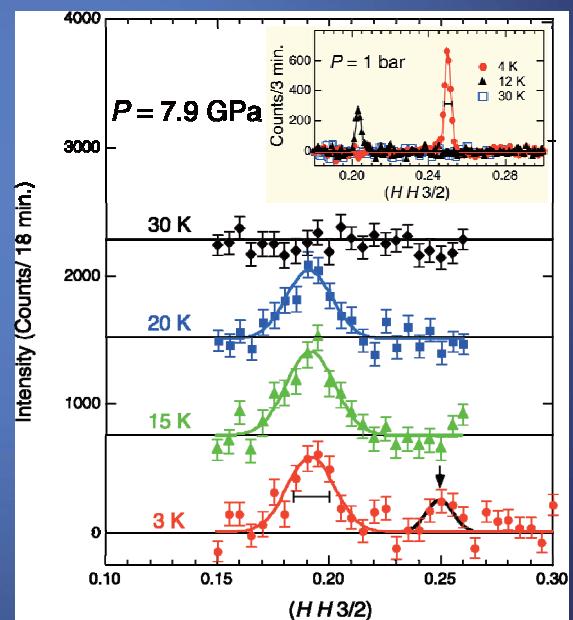
Hybrid anvil type cell  
developed by Dr. Osakabe in JAEA

JPSJ 79 034711 (2010)

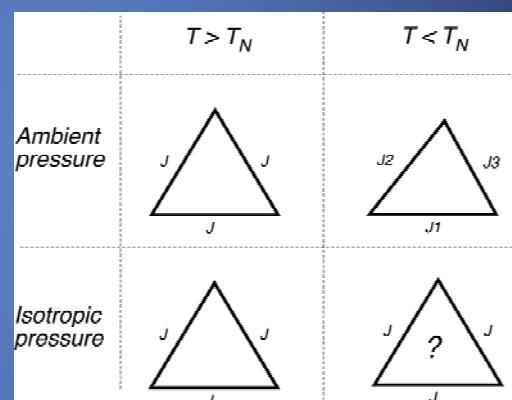
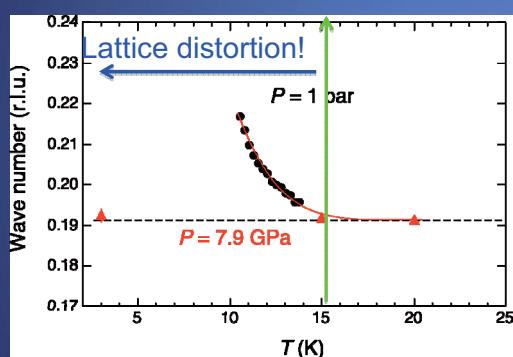


N. Terada, et al. PRB in press: arXiv:1012.1091v1

Sample size  
0.50\*0.60\*0.25, 7.7 mg



## Our Recent Works: Neutron diffraction CuFeO<sub>2</sub> under 7.9 GPa



The wave number  $q=0.192$  is almost the same as that just above temperature where the lattice distortion occurs under ambient pressure.

# Outline

- **Introduction**

*Multiferroic triangular lattice antiferromagnet CuFeO<sub>2</sub>*

- **Spin-lattice coupling CuFeO<sub>2</sub>**

- Lattice distortion (synchrotron x-ray)
- Spin-wave excitation (neutron)
- High-pressure study (neutron)

- **Multiferroicity in CuFeO<sub>2</sub>**

- Spin chirality (neutron)
- Orbital modulation (synchrotron x-ray)

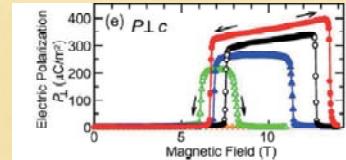
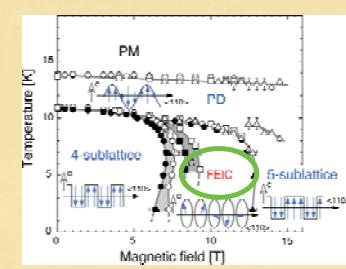
- **Summary**



## Ferroelectric Phase of CuFeO<sub>2</sub>, Cu(FeAl)O<sub>2</sub> and Cu(FeGa)O<sub>2</sub> systems

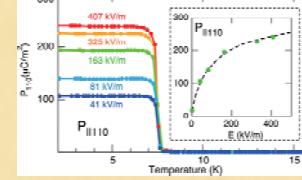
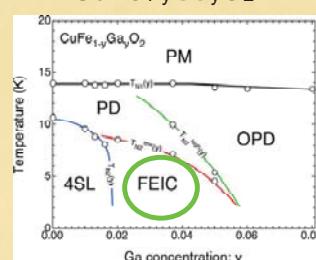
Field-induced ferroelectrics Impurity-induced ferroelectrics

### CuFeO<sub>2</sub>



Kimura et al. PRB **73** 220401(R) (2006)  
Seki et al. PRB **75** 100403(R) (2007)  
Terada et al. PRB **78** 014101 (2008)  
Terada et al. JPCS **145** 012071 (2009)

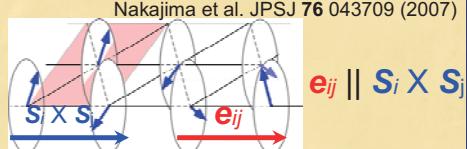
### CuFe<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>O<sub>2</sub> CuFe<sub>1-y</sub>GayO<sub>2</sub>



Kimura et al. PRB **73** 220401(R) (2006)  
Seki et al. PRB **75** 100403(R) (2007)  
Terada et al. PRB **78** 014101 (2008)  
Terada et al. JPCS **145** 012071 (2009)

### Proper helical ordering

Nakajima et al. JPSJ **76** 043709 (2007)

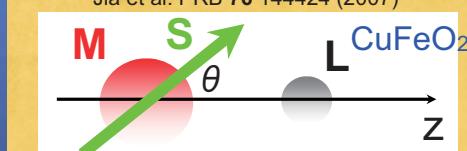


### Spin current mechanism

$\mathbf{P} \propto \mathbf{e}_{ij} \times (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$   
Katsura et al. PRL **95** 157205 (2005)  
TbMnO<sub>3</sub>, MnWO<sub>4</sub>, etc

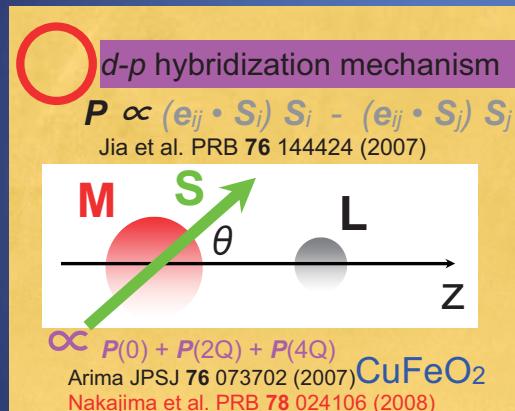
### d-p hybridization mechanism

$\mathbf{P} \propto (\mathbf{e}_{ij} \cdot \mathbf{S}_i) \mathbf{S}_i - (\mathbf{e}_{ij} \cdot \mathbf{S}_j) \mathbf{S}_j$   
Jia et al. PRB **76** 144424 (2007)



$\text{OC } \mathbf{P}(0) + \mathbf{P}(2Q) + \mathbf{P}(4Q)$   
Arima JPSJ **76** 073702 (2007)  
Nakajima et al. PRB **78** 024106 (2008)

## Mechanism3: $d-p$ hybridization

Arima JPSJ **76** 073702 (2007)

Experimental Prove predicted by the theory

1, **Spin chirality** should be reversed when  $P$  is reversed.

Polarized neutron in electric fields

2, **Spatial modulation** with 2Q (and 4Q) of  $d-p$  hybridization.

Resonant X-ray Scattering

## Polarized Neutron Diffraction in Cu(FeGa)O<sub>2</sub>

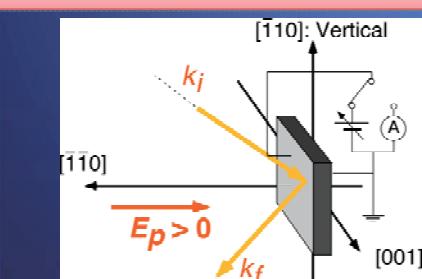
Purpose: Clarifying the relationship between magnetic ordering and electric polarization in Cu(FeGa)O<sub>2</sub>.

Neutron scattering cross section

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right) \propto S(\kappa) \{(1 + (\tilde{C} \cdot \tilde{\kappa})^2)(V_{RH} + V_{LH})\} m2(p_N \cdot \tilde{\kappa})(\tilde{C} \cdot \tilde{\kappa})(V_{RH} - V_{LH})$$

$\tilde{C}$  Spin chirality       $p_N$  Neutron spin  
 $V_{RH}(V_{LH})$  Volume fraction of right-hand (left-hand) chirality

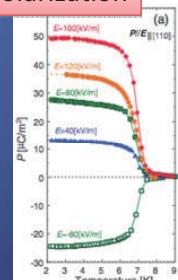
Polarized neutron diffraction in electric fields



Ferroelectric polarization

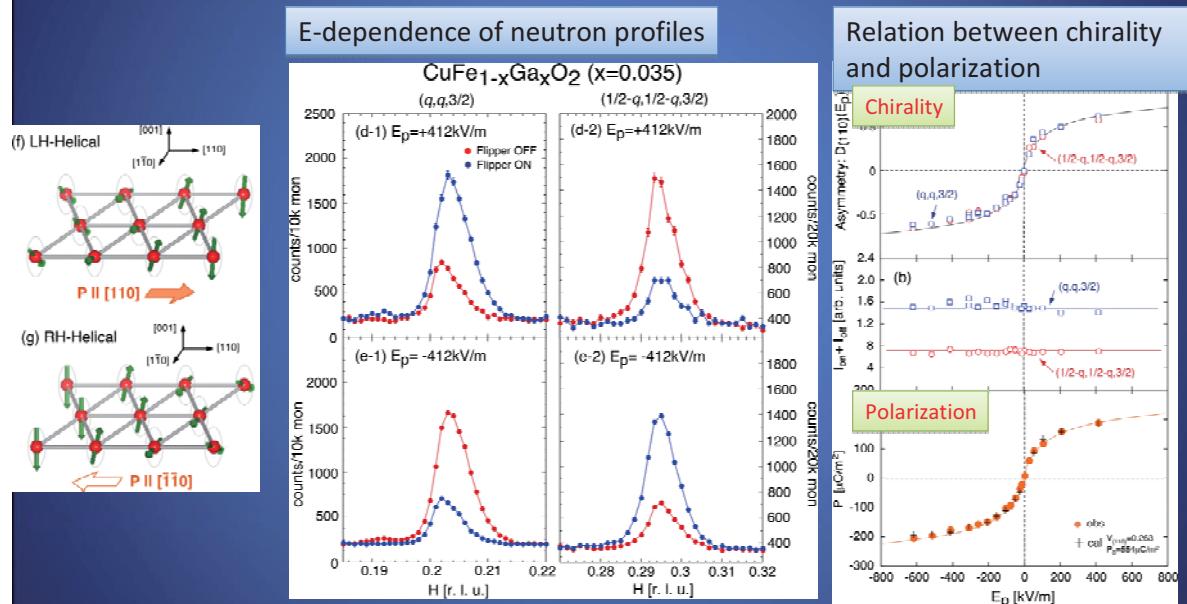
Point

When the ferroelectric polarization is reversed by electric fields, is spin chirality changed or not?



## Polarized Neutron Diffraction in Cu(FeGa)O<sub>2</sub>

PRB 79 214423 (2009)



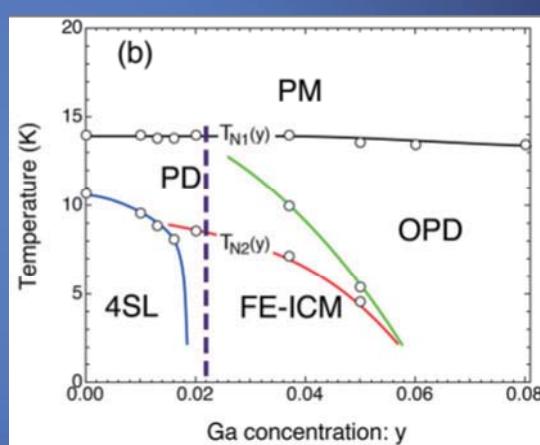
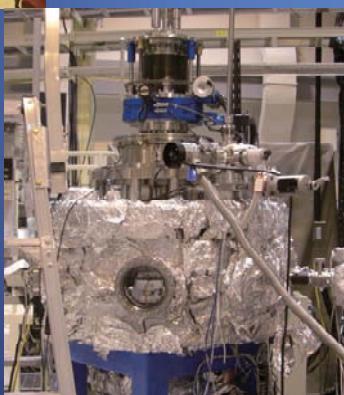
Spin Chirality and Polarization are simultaneously reversed by electric fields !

## Resonant Soft X-ray Scattering in Cu(FeGa)O<sub>2</sub>

理研 田中良和氏



SPring-8 BL17SU  
Temp down to 4 K



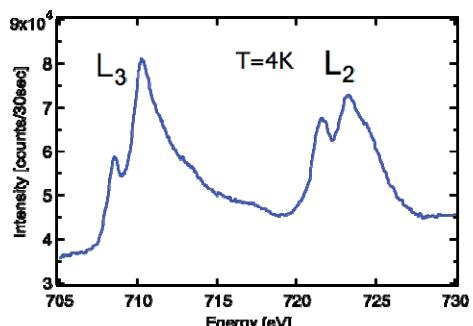
## 0, 1-2q, 0反射のエネルギー、偏光依存性

Fe L吸収端

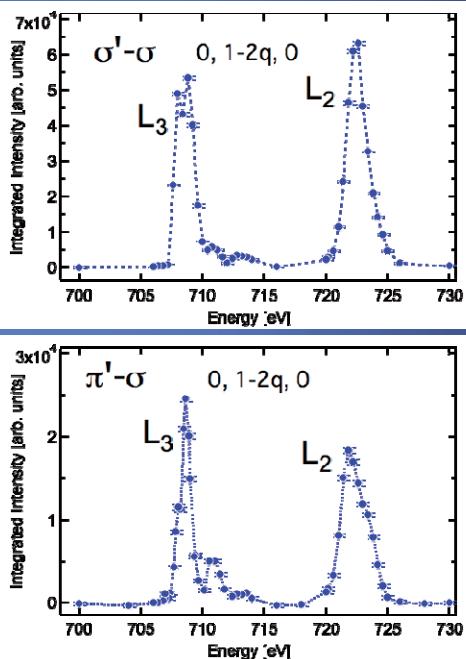
$$2p_{\frac{3}{2}, \frac{1}{2}} \leftrightarrow 3d$$

3d stateを直接観測

鉄のL吸収端の吸収曲線



Tanaka et al. arXiv. 1012.3586

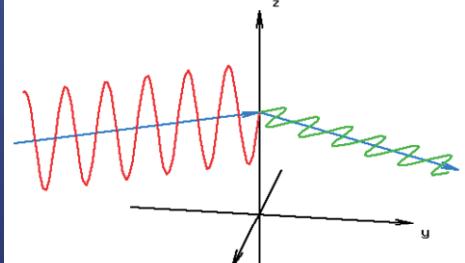
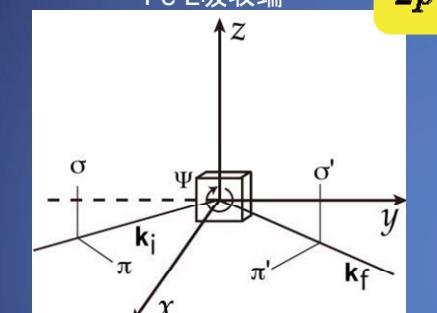


## 0, 1-2q, 0反射のエネルギー、偏光依存性

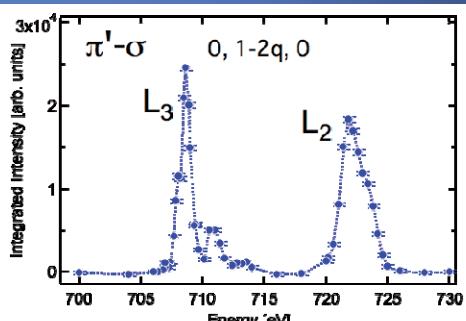
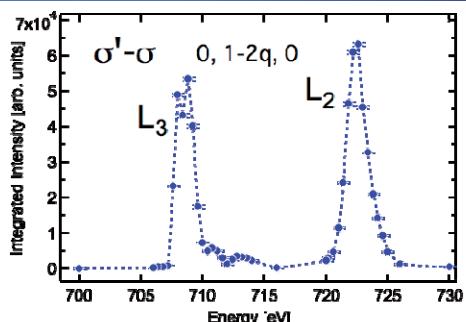
Fe L吸収端

$$2p_{\frac{3}{2}, \frac{1}{2}} \leftrightarrow 3d$$

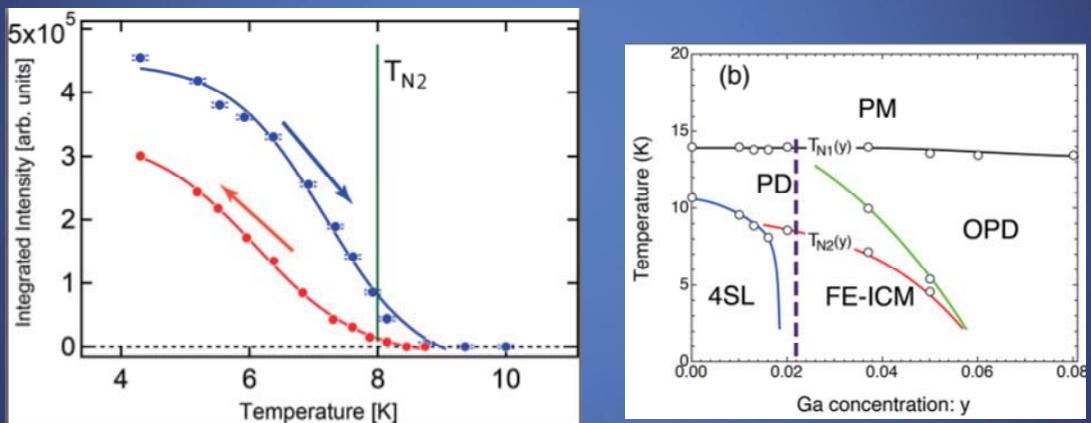
3d stateを直接観測



Tanaka et al. arXiv. 1012.3586



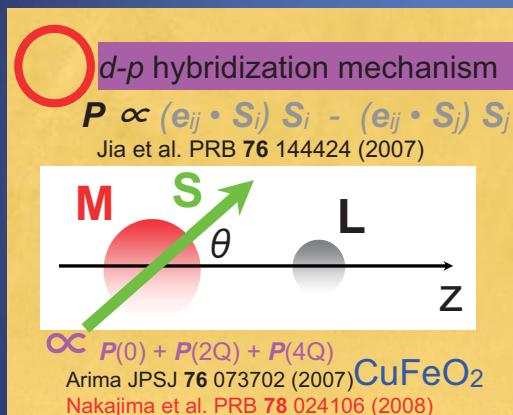
## 0, 1-2q, 0反射の温度依存性



Tanaka et al. arXiv. 1012.3586

## Mechanism3: $d$ - $p$ hybridization

Arima JPSJ **76** 073702 (2007)



Experimental Prove predicted by the theory

1, **Spin chirality** should be reversed when  $P$  is reversed.

Polarized neutron in electric fields

2, **Spatial modulation** with 2Q (and 4Q) of  $d$ - $p$  hybridization.

Resonant X-ray Scattering

## Summary

三角格子反強磁性体 $\text{CuFeO}_2$ が示す、「理論的に自明ではない磁気基底状態」、「マルチフェルイクス現象」のメカニズムを解明するために、中性子散乱、放射光X線回折実験をおこなった。

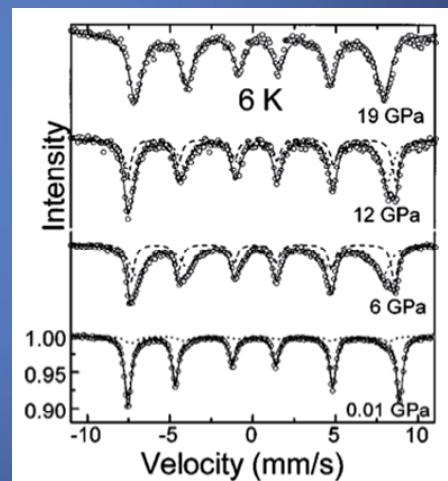
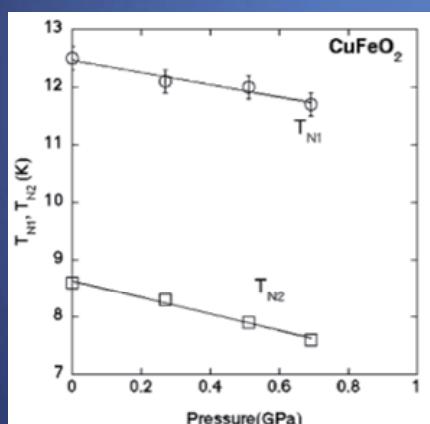
(1)  $\text{CuFeO}_2$ の基底状態、励起状態を説明するためには、自発的な**不等辺三角格子歪み**を考慮することが必要であることが明らかになった。**(放射光X線回折、中性子非弾性散乱、高圧下中性子回折)**

(2)  $\text{CuFeO}_2$ のプロパスクリュー型磁気構造誘起強誘電性に関して、Fe 3d-O 2p軌道混成メカニズムから予想される、**電場反転スピニカラリティー**、および**Fe 3d軌道の2Q空間変調の観測**に成功した。**(電場中偏極中性子回折、軟X線共鳴回折)**

## Previous Works: Pressure effect on $\text{CuFeO}_2$

Magnetic susceptibility  
Up to 0.7 Gpa  
Takahashi et al. J. MMM **272** 213 (2004)

Moessbauer spectroscopy  
Up to 19 Gpa  
Xu et al. PRB **69** 052401 (2004)

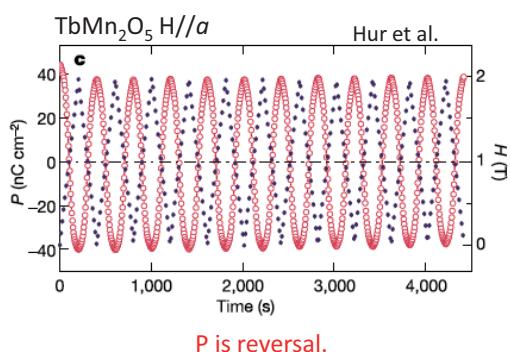
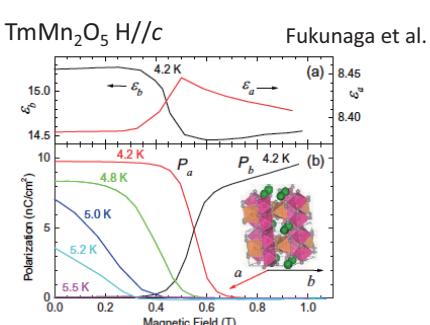
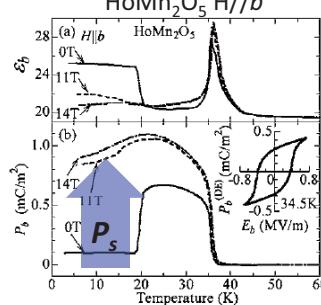
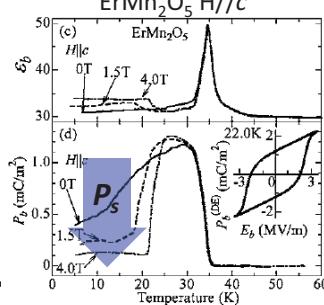


## 12. Ga置換した $\text{YMn}^{4+}(\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}_x)^{3+}\text{O}_5$ の磁気力イライティと電気分極

原子力機構<sup>1)</sup>、東北大多元研<sup>2)</sup>  
 脇本秀一<sup>1)</sup>、木村宏之<sup>2)</sup>、坂本勇馬<sup>2)</sup>  
 福永守<sup>2)</sup>、加倉井和久<sup>1)</sup>、野田幸男<sup>2)</sup>



### Magnetoelectric (ME) effects in $R\text{Mn}_2\text{O}_5$

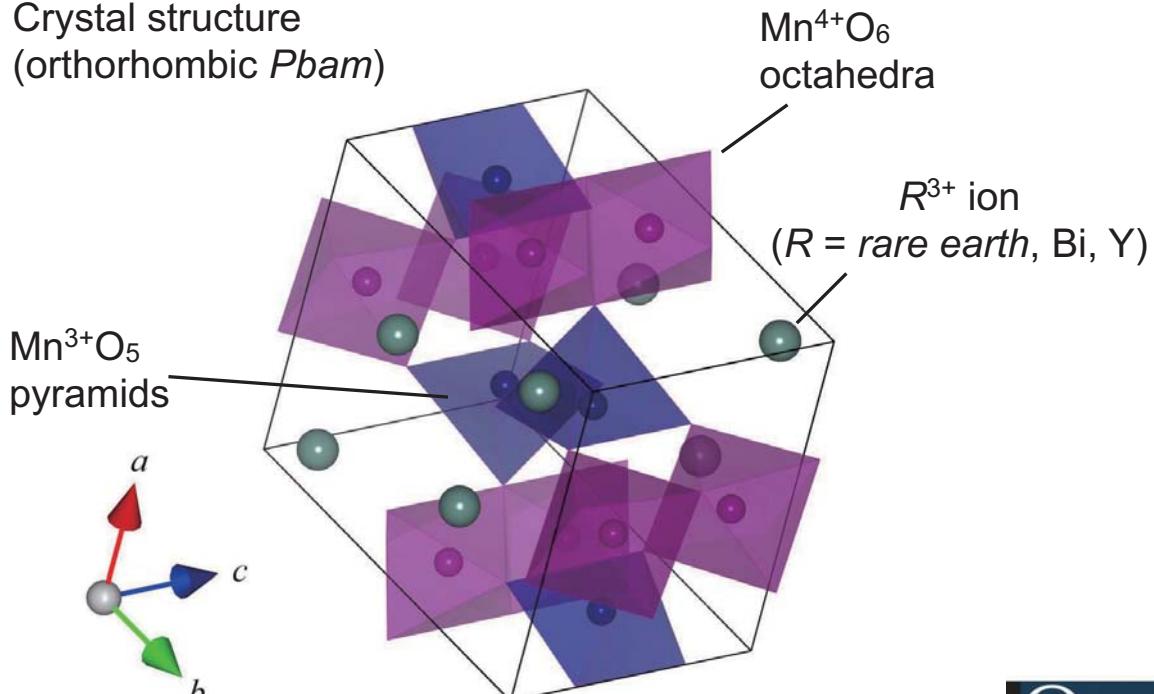
Switching of  $P$  by magnetic fieldFlopping of  $P$  by magnetic field $\text{HoMn}_2\text{O}_5$  H//b $\text{ErMn}_2\text{O}_5$  H//cChange of  $P$  by magnetic field

Ferroelectricity is magnetically driven.  
Rich variety of ME effect.



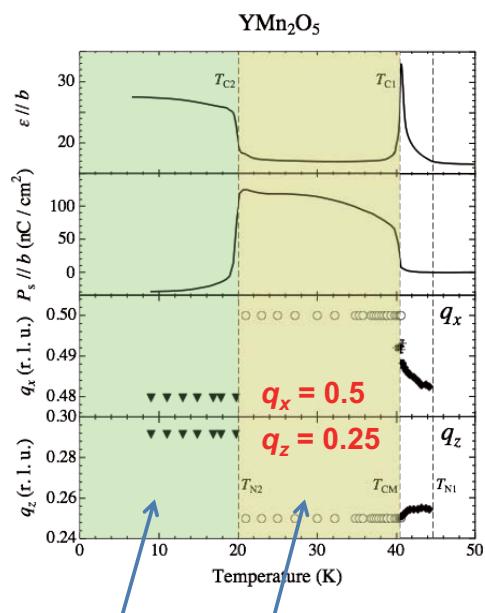
## Crystal structure

Crystal structure  
(orthorhombic *Pbam*)



## Magnetic & dielectric phases

X, $P_s \parallel b$	PE				
1DICM	LT-2DICM	2DICM	PM		( $R = \text{Lu}$ ) Ionic Radii small
X, $P_s \parallel a$	X, $P_s \parallel b$	WFE	PE		( $R = \text{Yb}$ )
LT-2DICM	LT-2DICM	2DICM	PM		
$T_{C3}$	$T_{C2}$	$T_{C1}$	$T_S$		
Dielectric	X, $P_s \parallel a$	X, $P_s \parallel b$	FE1, $P_s \parallel b$	WFE	PE
Magnetic	LT-2DICM	LT-2DICM	CM	1DICM	2DICM
				CM	PM
	$T_{N3}$	$T_{N2}$	$T_{CM}$	$T_D$	$T_{N1}$
	X, $P_s \parallel b$	FE1, $P_s \parallel b$	WFE	PE	
	LT-1DICM	CM	1DICM	2DICM	PM
	X, $P_s \parallel b$	FE1, $P_s \parallel b$	WFE2	PE	
	LT-2DICM	CM	2DICM	PM	( $R = \text{Ho}$ )
	X, $P_s \parallel b$	FE1, $P_s \parallel b$	WFE	PE	
	LT-2DICM	CM	1DICM	2DICM	( $R = \text{Y}$ )
	X, $P_s \parallel b$	FE1, $P_s \parallel b$	WFE	PE	
	LT-2DICM	LT-2DICM	CM	2DICM	( $R = \text{Tb}$ )
				CM	PM
	FE1, $P_s \parallel b$	PE			( $R = \text{Bi}$ ) Ionic Radii large
	CM	PM			



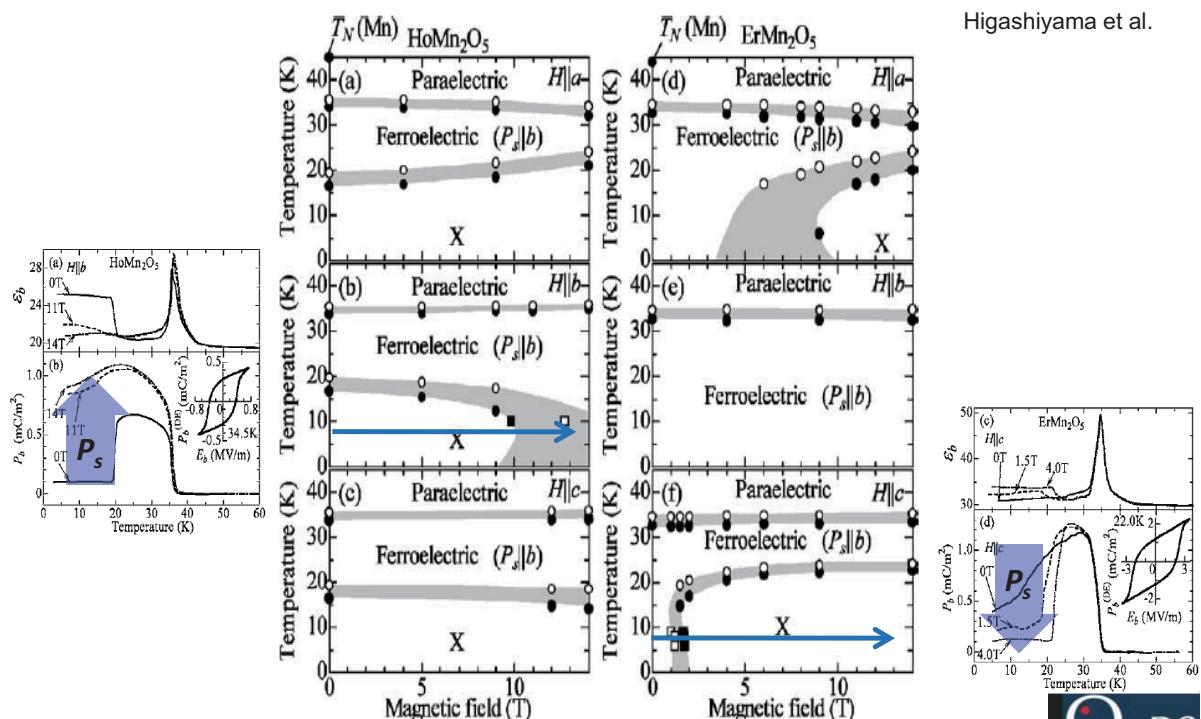
# Three issues(?) in Mn125 system

(1) Rare earth moment.

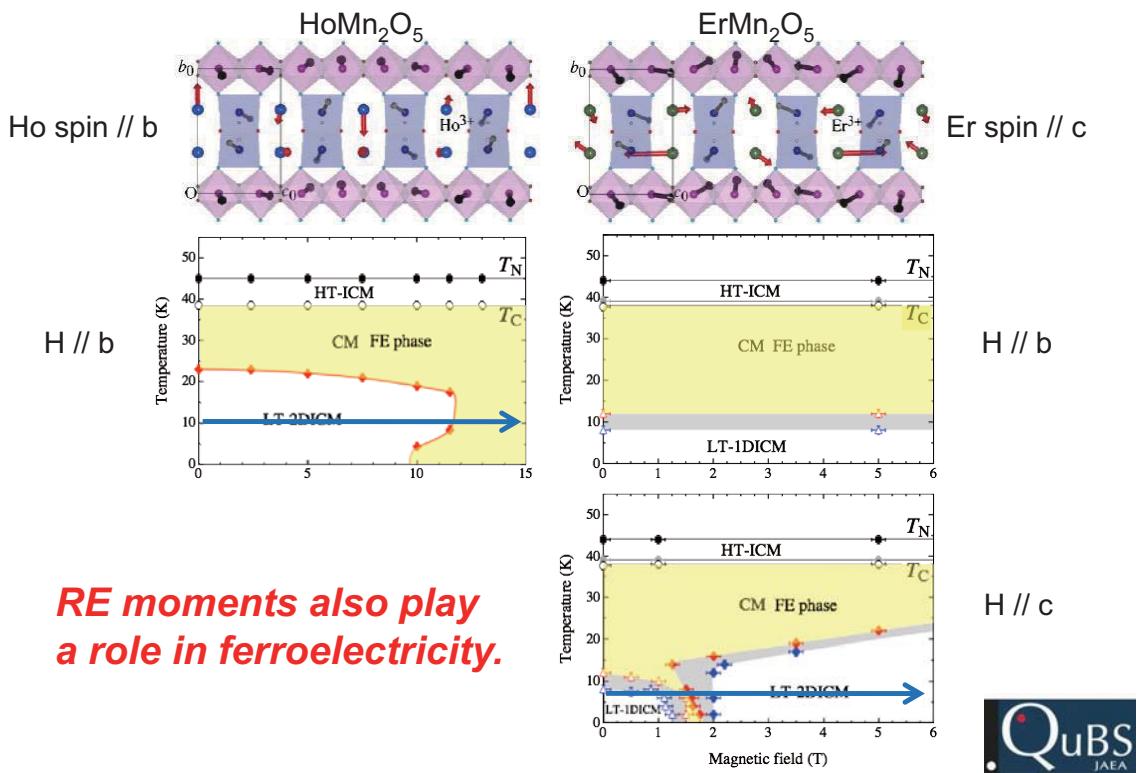
(2) Mn<sup>4+</sup> or Mn<sup>3+</sup> ?

(3) At least, two different FE phases.

## Large ME effect in LT-ICM phase



## RE moment & ME effect



## Three issues(?) in Mn125 system

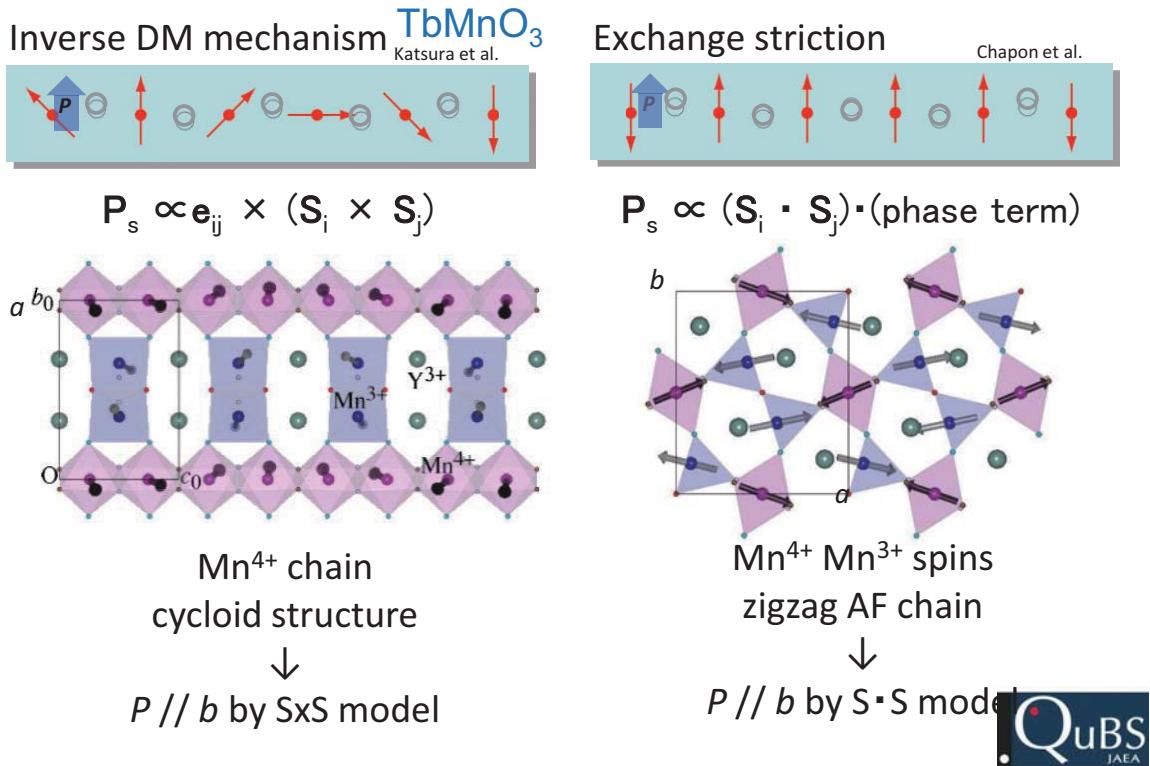
(1) Rare earth moment.

*For the sake of simplicity,  
 $\text{YMn}_2\text{O}_5$  is ideal !!*

(2) Mn<sup>4+</sup> or Mn<sup>3+</sup> ?

(3) At least, two different FE phases.

## Two possible mechanism

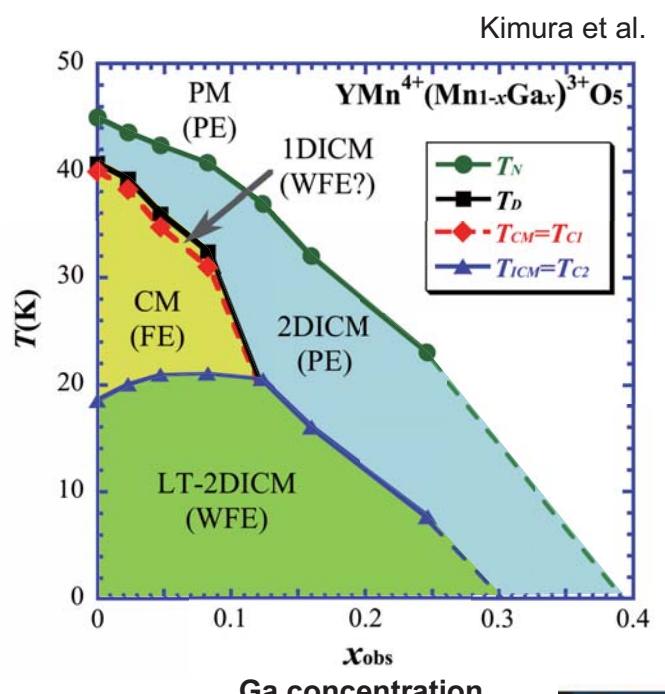


## Ga<sup>3+</sup> doping

$\text{Mn}^{3+} : 3d^4, S = 2,$   
 $r = 0.645 \text{ \AA}$

$\text{Ga}^{3+} : 3d^{10}, S = 0,$   
 $r = 0.620 \text{ \AA}$

Ga<sup>3+</sup> doping dilute Mn<sup>3+</sup> spins.  
 $\downarrow$   
Dilute interchain interaction, &  
dilute S·S contribution.



# Three issues(?) in Mn125 system

(1) Rare earth moment.

*For the sake of simplicity,  
YMn<sub>2</sub>O<sub>5</sub> is ideal !!*

(2) Mn<sup>4+</sup> or Mn<sup>3+</sup> ?

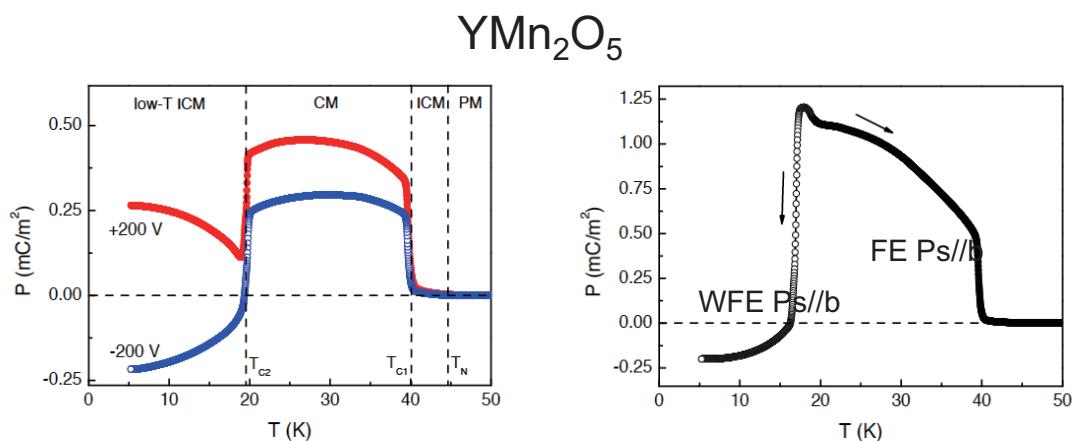
*Ga<sup>3+</sup> doping dilute Mn<sup>3+</sup> spins.  
(Dilute S·S contribution.)*

(3) At least, two different FE phases.

## Poling condition dependence

Journal of Physics: Conference Series 150 (2009) 042013

P. Chaudhury, C. R. dela Cruz, B. Lorenz, Y. Y. Sun<sup>1</sup>, C. W. Chu, S. Park and S-W. Cheong



# Three issues(?) in Mn125 system

(1) Rare earth moment.

*For the sake of simplicity,  
YMn<sub>2</sub>O<sub>5</sub> is ideal !!*

(2) Mn<sup>4+</sup> or Mn<sup>3+</sup> ?

*Ga<sup>3+</sup> doping dilute Mn<sup>3+</sup> spins.  
(Dilute S·S contribution.)*

(3) At least, two different FE phases.

*Poling condition is important.*

## Experiment

### Sample :

YMn<sup>4+</sup>(Mn<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>)<sup>3+</sup>O<sub>5</sub>  
x=0.047 (HTICM-CM-LTICM)  
x=0.12 (HTICM-LTICM)

### Experiment :

Polarization measurements  
Spin chirality by polarized neutron

### Poling condition :

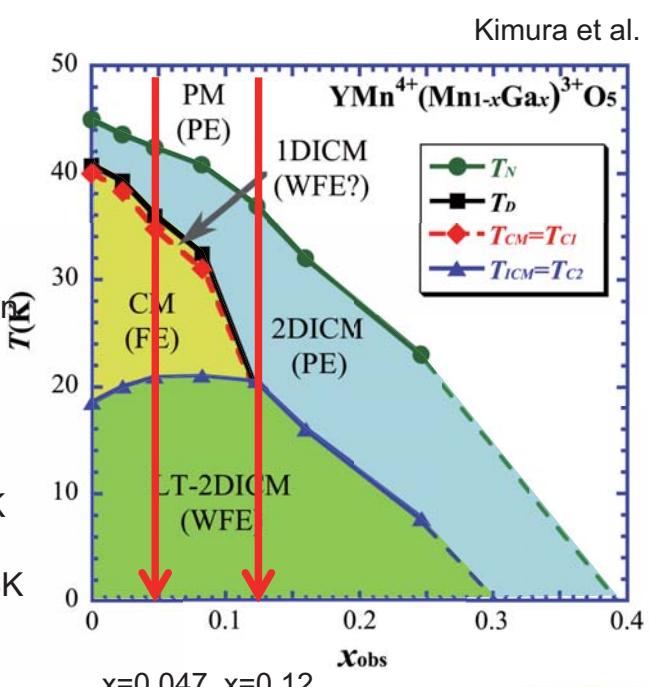
x=0.047

Poling @CM phase  
FC 55K → 24K, ZFC 24K → 4K

Poling@LTICM phase  
ZFC 55K → 18K, FC 18K → 4K

x=0.12

Poling @LTICM phase  
FC 55K → 4K



# Detecting spin chirality

Incident PG(002)  
monochromator.  
(Unpolarized beam)

$E_i = 14.7 \text{ meV}$   
 $40'-80'-80'-80'$

Helmholtz coil guide  
field ( $H_G$ ) either  
vertical or parallel  
to  $\mathbf{Q}$ .



Scattered  
Heusler (111)  
double-focus  
analyzer.



$$P_f \sigma = \{-\mathbf{P}_i + 2(\mathbf{P}_i \cdot \hat{\mathbf{M}}) \cdot \hat{\mathbf{M}}\} \cdot \sigma_m + i(\mathbf{M} \times \mathbf{M}^*)$$

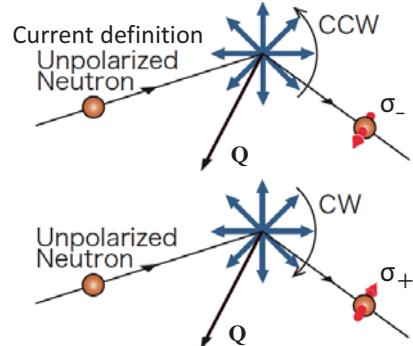
$$\mathbf{M} = \sum_j \mathbf{S}_{j\perp} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_j}$$

$$= \sum_j \mathbf{S}_{j\perp} \cos \mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_j + i \sum_j \mathbf{S}_{j\perp} \sin \mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_j$$

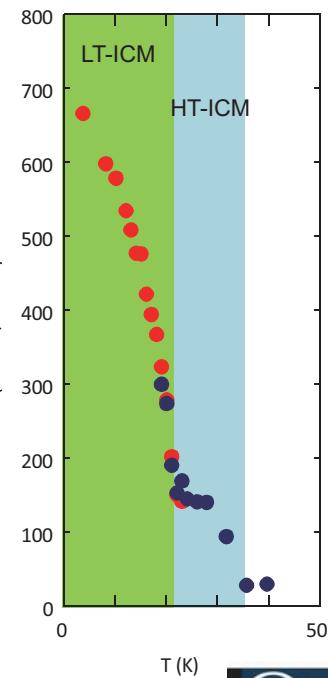
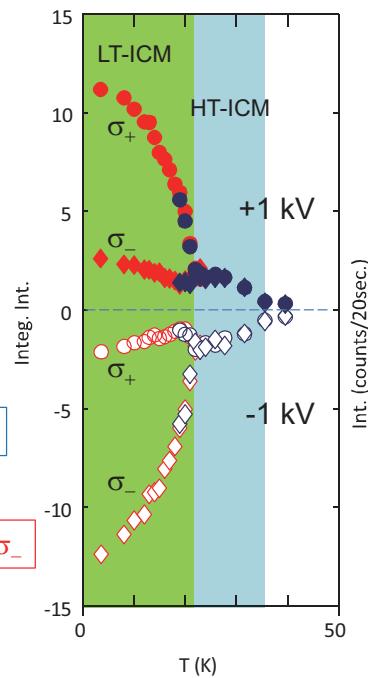
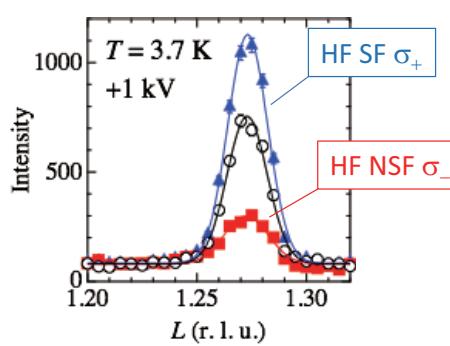
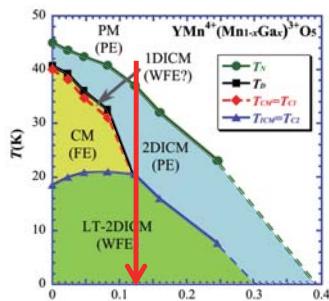
In this set-up,  $P_i=0$ . Thus  $P_f \sigma = (\sigma_+ - \sigma_-)$  is the direct measure of the magnetic chirality  $(\mathbf{M} \times \mathbf{M}^*)/\|\mathbf{Q}\|$ .

$\sigma_+$ :  $\mathbf{H}_G // \mathbf{Q}$  (Horizontal field, HF), non-spin-flip (NSF)

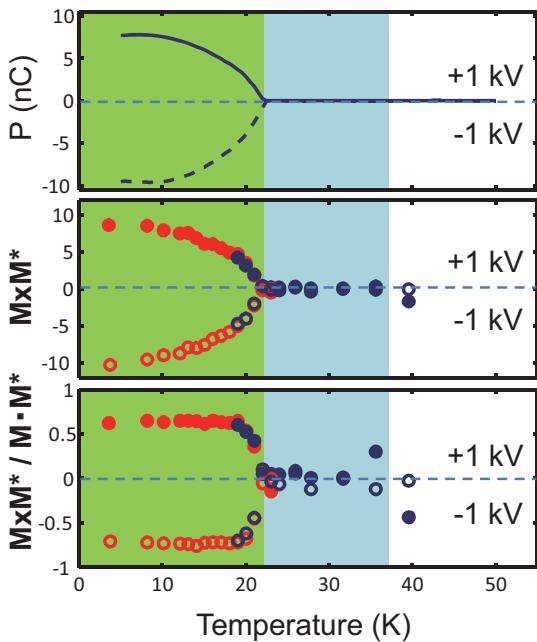
$\sigma_-$ :  $\mathbf{H}_G // \mathbf{Q}$  (Horizontal field, HF), spin-flip (SF)



# x=0.12 sample



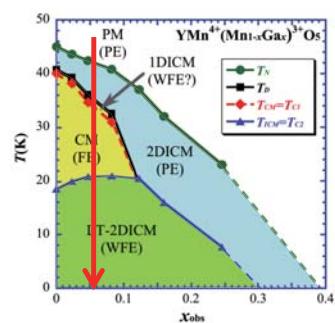
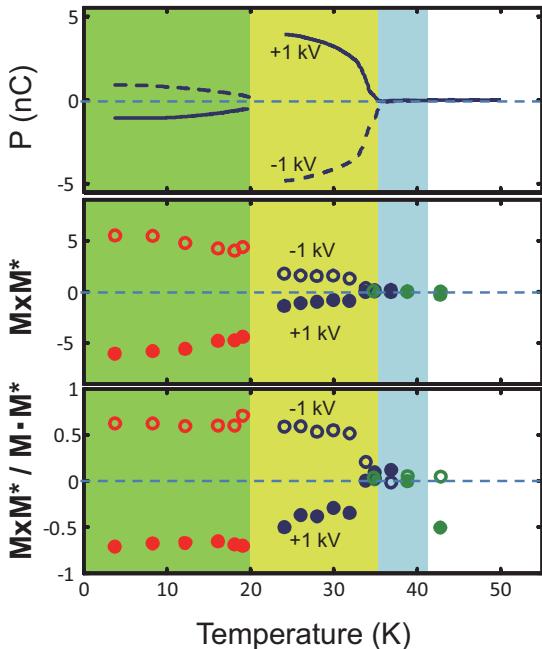
## x=0.12 Poling @LTICM



- Measured with ZFH after FC from 55 K to 4 K.
- Positive  $P$  gives positive chirality.
- $M_x M^*$  and  $P$  follows almost same T-dependence.
- Normalized chirality saturates quickly.



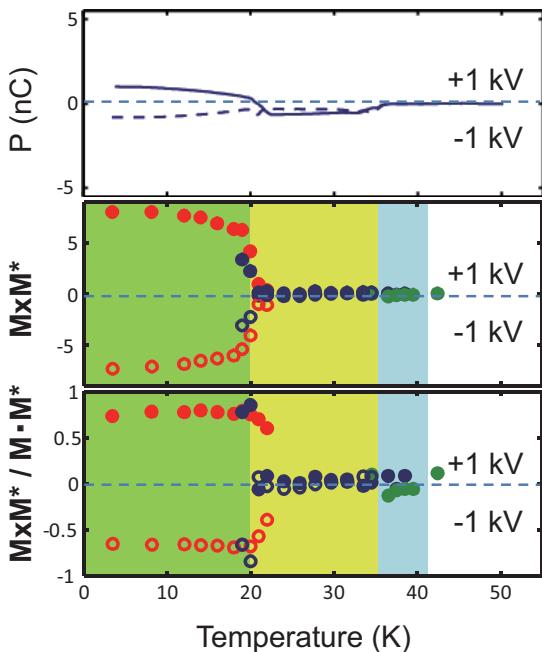
## x=0.047 Poling @CM



- Measured upon ZFH after FC from 55 K to 24 K. (CM phase data)
- Measured upon ZFH after FC from 55 K to 24 K, then ZFC from 24 K to 4 K. (LTICM phase data)
- CM phase : Positive  $P$  gives negative chirality.
- Upon CM-LTICM transition,
  - $P$  flips, but chirality does not flip.
  - Normalized chirality changes little.



## x=0.047 Poling @ LTICM



- Measured upon ZFH after ZFC from 55 K to 18 K, then FC from 18 K to 4 K.
- LT-ICM phase : Positive  $P$  gives positive chirality.
- Upon LTICM-CM transition,
  - Both  $P$  and chirality vanish.



## Summary

### Poling @ CM ( $x=0.047$ )

	ZFC	FC
	LTICM phase	CM phase
$P$	- negative	+ positive
$M_x M^*$	- negative	- negative

### Poling @ LTICM( $x=0.047, x=0.12$ )

	FC	ZFC
	LTICM phase	CM phase
$P$	+ positive	~0
$M_x M^*$	+ positive	0



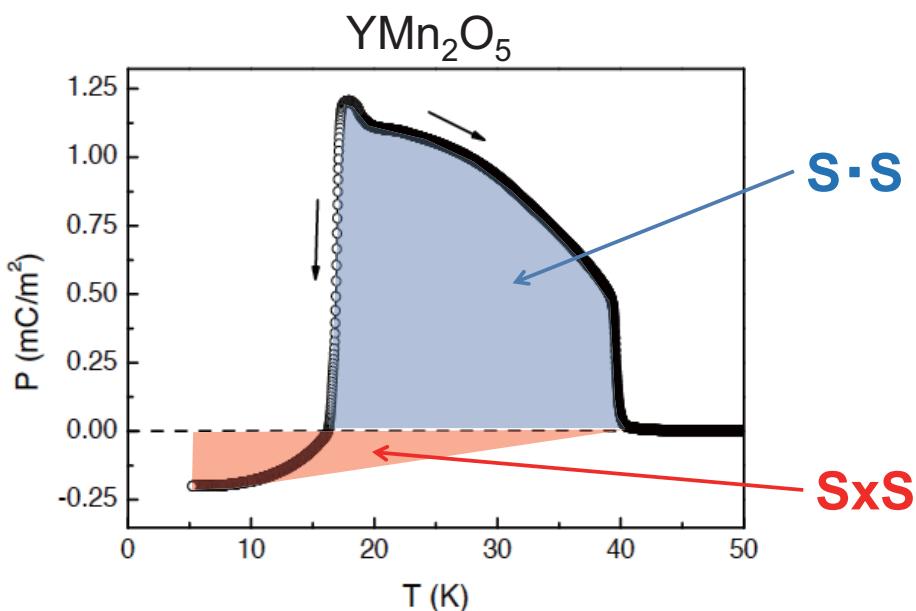
## Summary 2

- Spin chirality & electric polarization were measured for Ga-doped  $\text{YMn}_2\text{O}_5$ , where  $\text{Mn}^{3+}$  spins are diluted.
- When pole at each phase :

	CM phase	LT-ICM phase
P	+ positive	+ positive
$\text{MxM}^*$	- negative	+ positive

- When cool down to LT-ICM phase, the sign of  $\text{MxM}^*/\text{M} \cdot \text{M}^*$  conserves.
- This is why P changes sign at the CM-LTICM transition when FC down to the CM phase.
- When pole at the LTICM phase, both P and  $\text{MxM}^*$  vanishes at the LTICM-CM transition upon warming.
- These facts indicates that in the LTICM phase, the SxS mechanism is dominant, while SxS is not necessary for the ferroelectricity in the CM phase.

## Summary 3



## 13. 反強磁性トライマー物質 $\text{SrMn}_3\text{P}_4\text{O}_{14}$ の 磁気構造と磁気励起



物質・材料研究機構（NIMS）  
量子ビームセンター 中性子散乱グループ  
長谷 正司

1. 研究の動機と背景
2. 実験方法
3. 結果と考察
  - 3-1 高磁場磁化
  - 3-2 中性子非弾性散乱
  - 3-3 中性子回折
4. まとめ

### 1. 研究の動機と背景 はじめに



本日12月20日は記念日

2006年12月20日

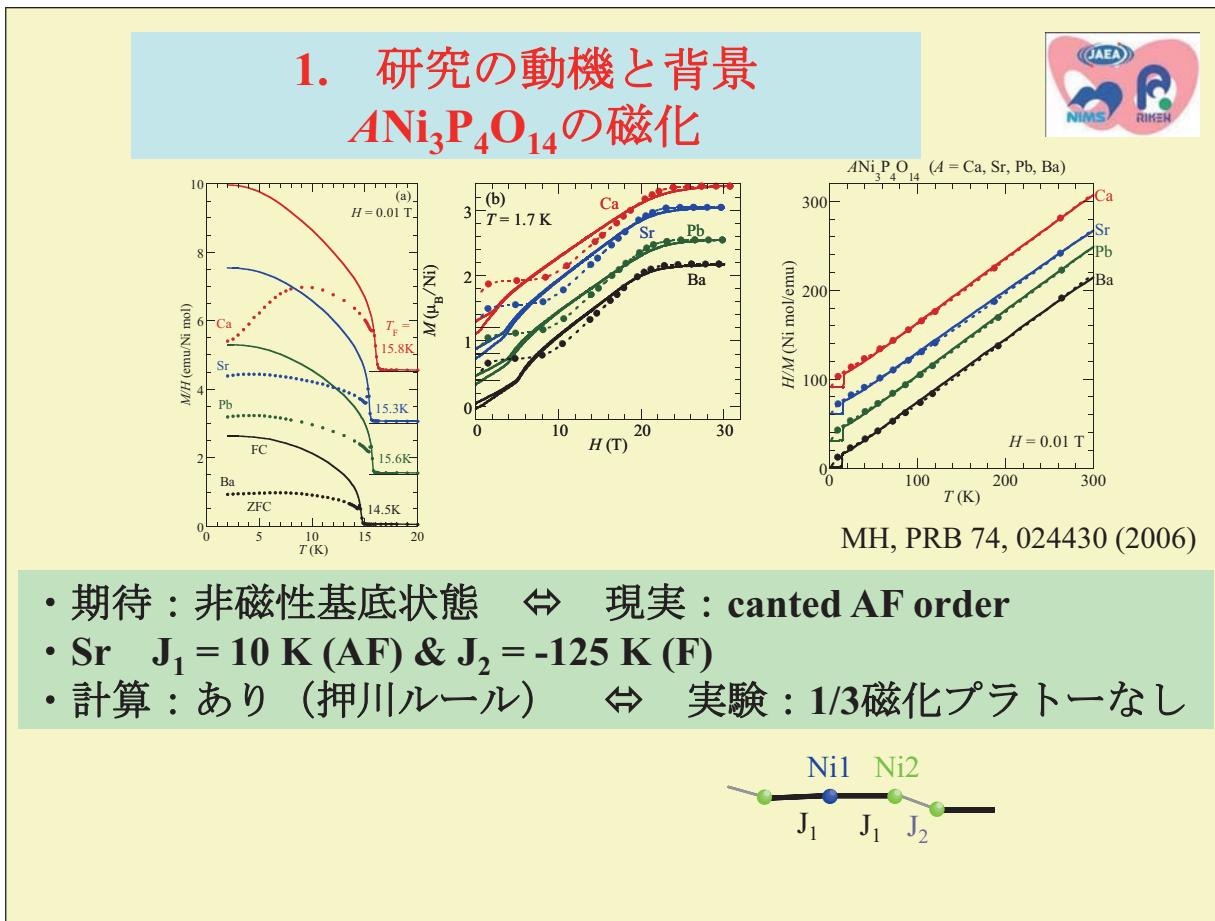
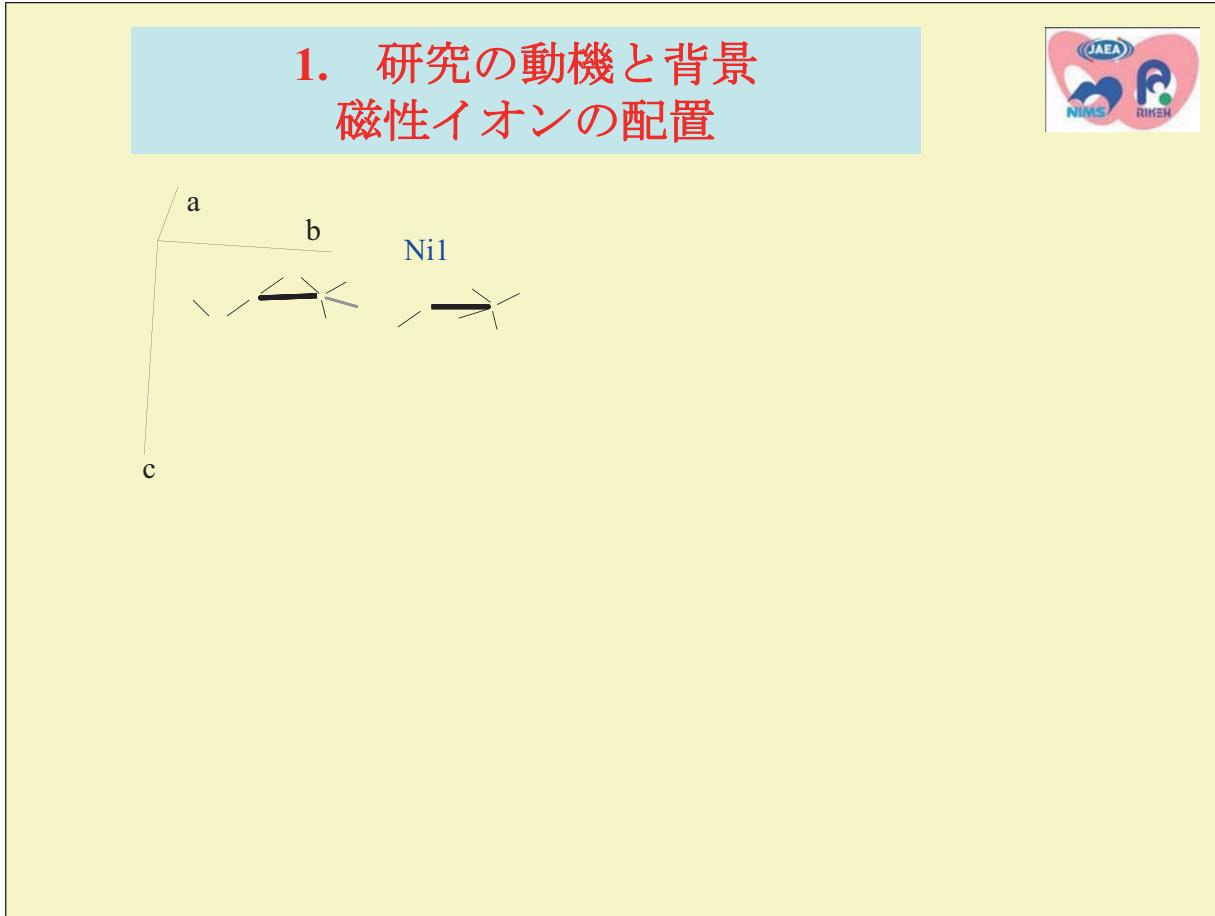
三機関連携の研究協力協定の署名式

1965年12月20日

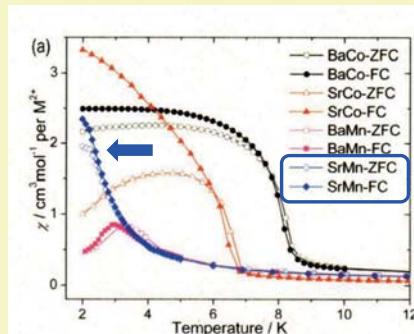
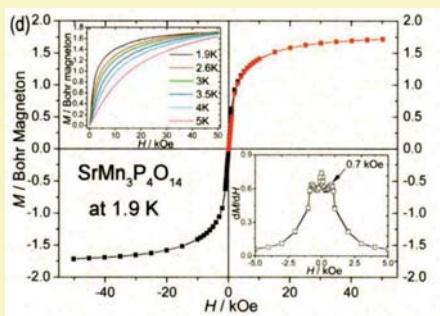
長谷の誕生日



- ・インコメンシュレイト磁気構造
- ・フラストレーション？ 他の機構？



## 1. 研究の動機と背景 $AMn_3P_4O_{14}$ と $ACo_3P_4O_{14}$ ( $A = Sr, Ba$ ) の磁化



T. Yang et al.,  
Inorg. Chem.  
47, 2562 (2008).

- Mn<sup>2+</sup>、3d5、スピノン5/2。  
Co<sup>2+</sup>、3d7、スピノン3/2（高温の帶磁率から）
- 1/3磁化プラトー Mnでは有る。Coでは無い。
- canted AF order Mnでは無い？。Coでは有る。

## 2. 実験方法

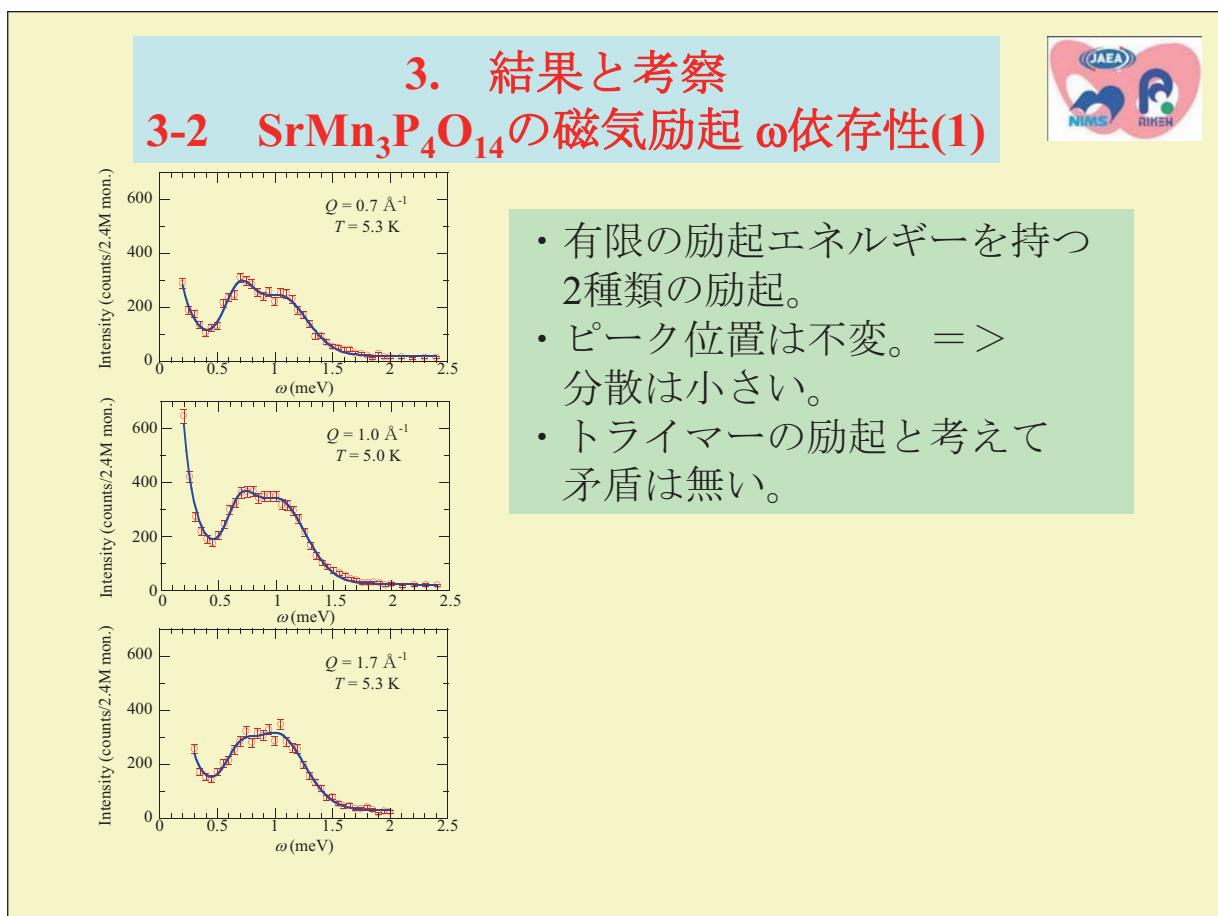
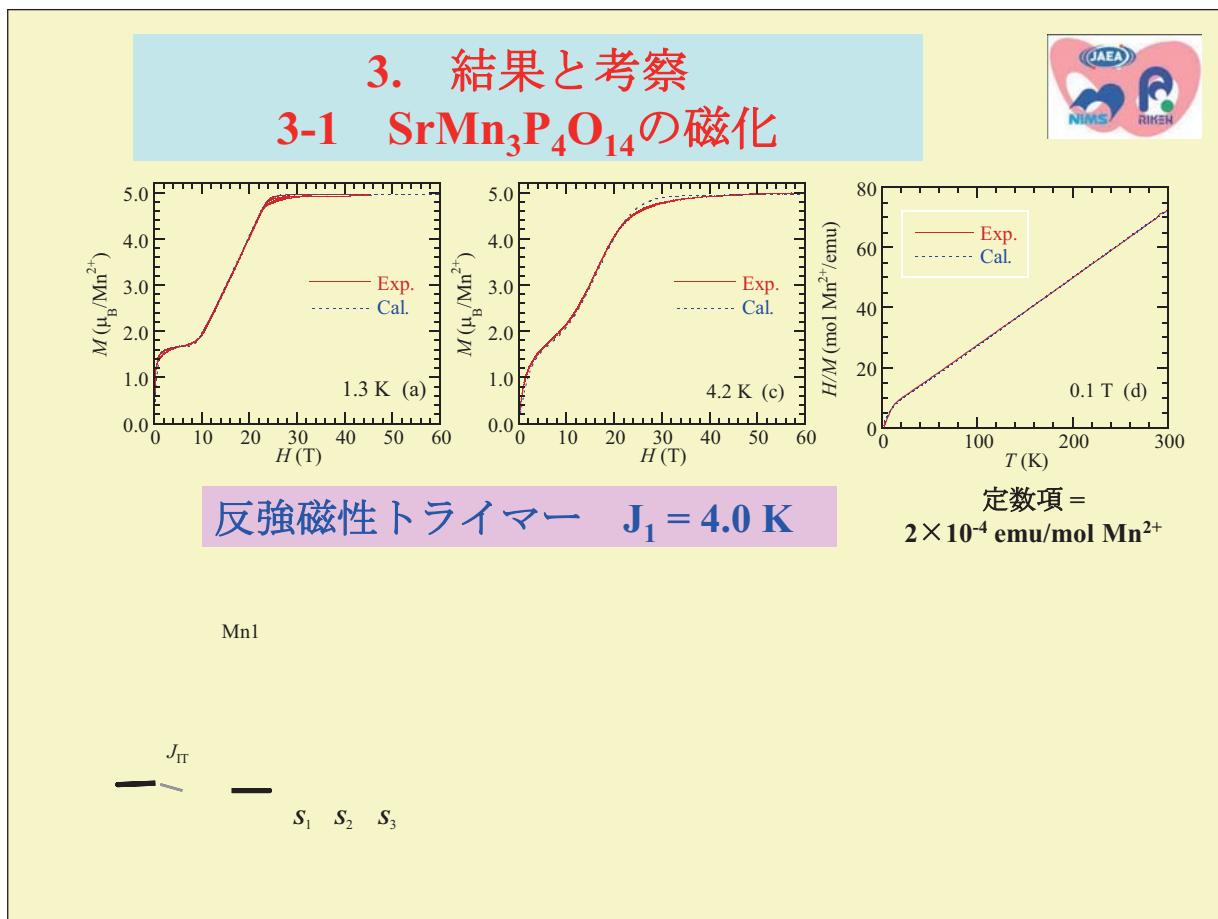


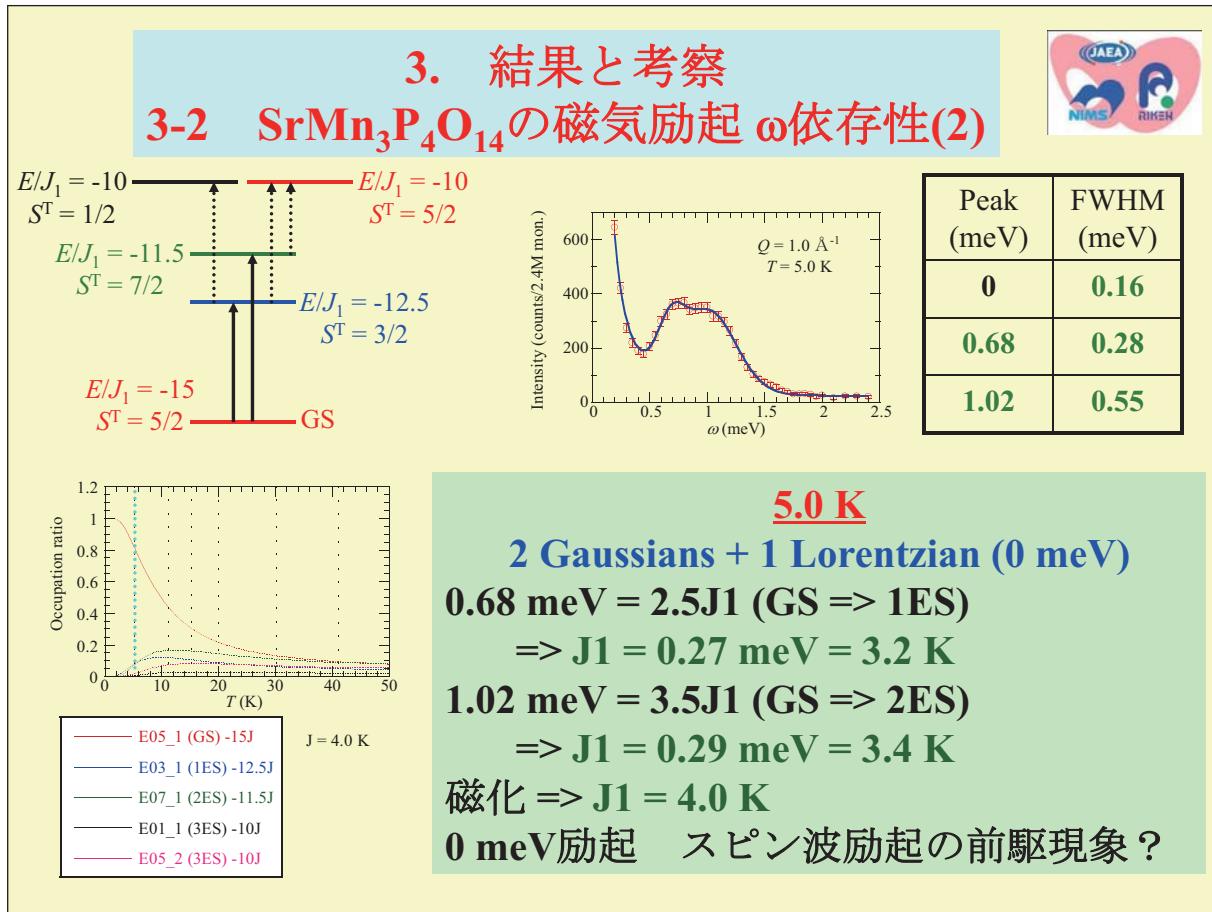
$SrMn_3P_4O_{14}$ 粉末試料 水熱合成法 200°C

高磁場磁化測定 (58 T) ISSP金道研  
 ショートパルスマグネット ピックアップ法（誘導法）  
 => スピノン系の評価

中性子非弾性散乱測定 JRR-3、LTAS分光器  
 => 1/3量子磁化プラトーを作る準位差の確認

中性子回折測定 PSI、DMCとHRPT回折計  
 => 交換相互作用の符号の確認  
 => インコメンシュレイトだった。

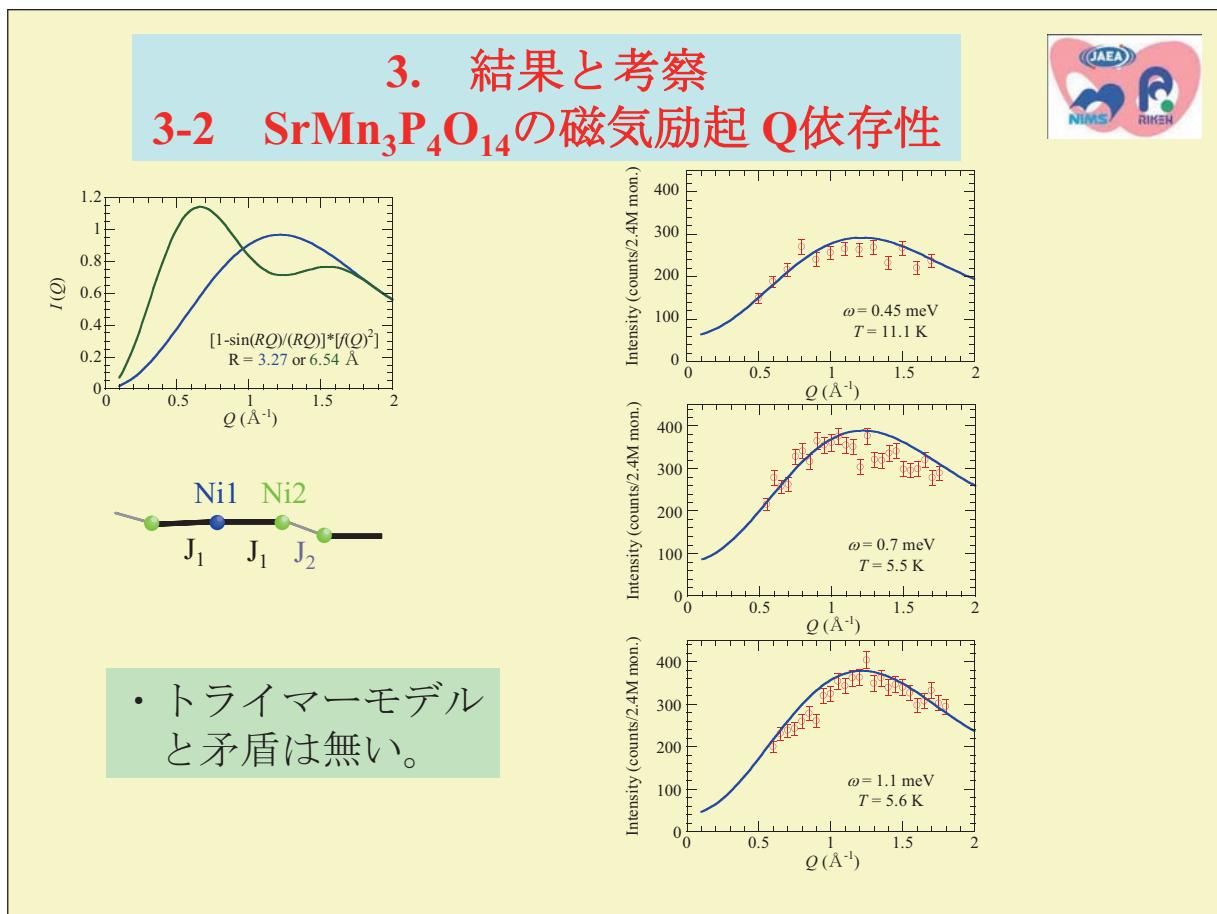
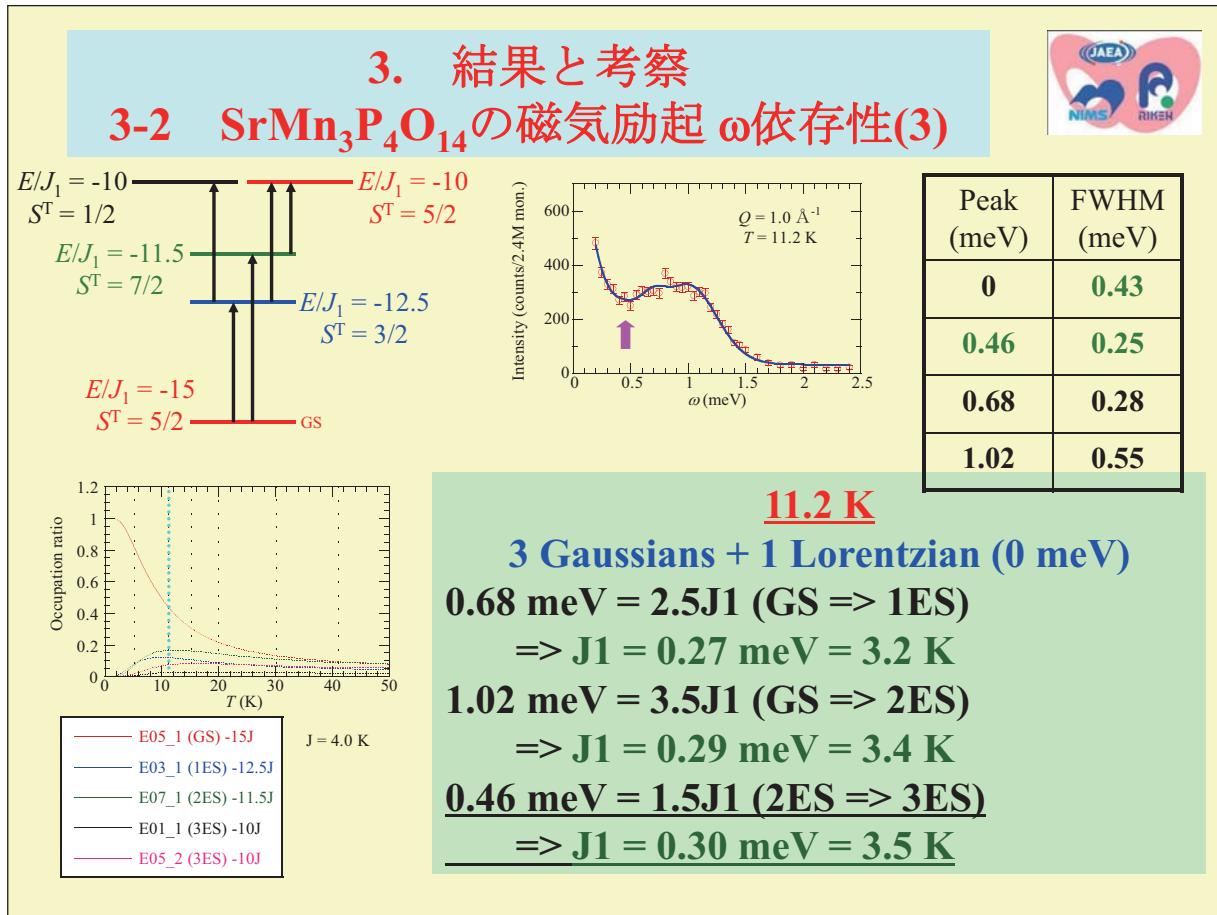


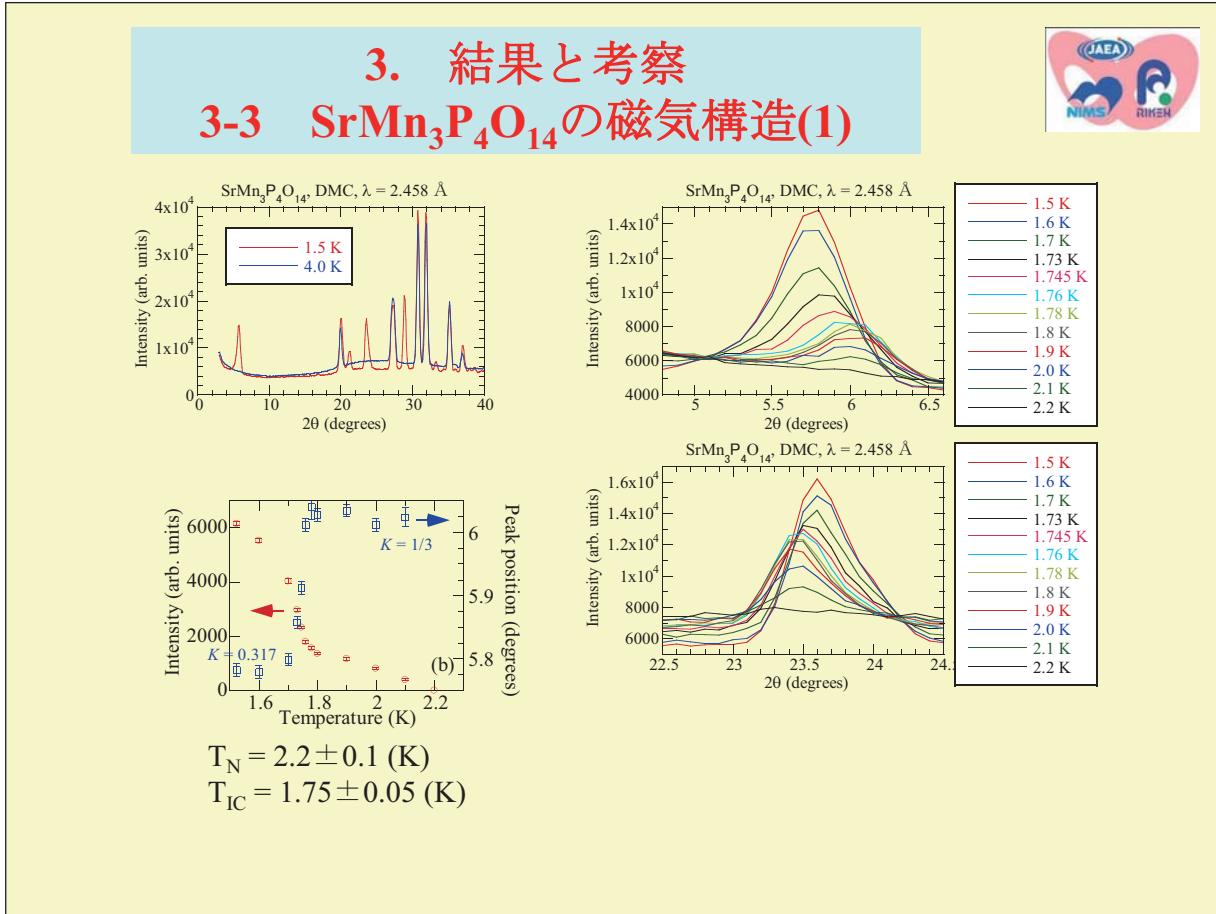


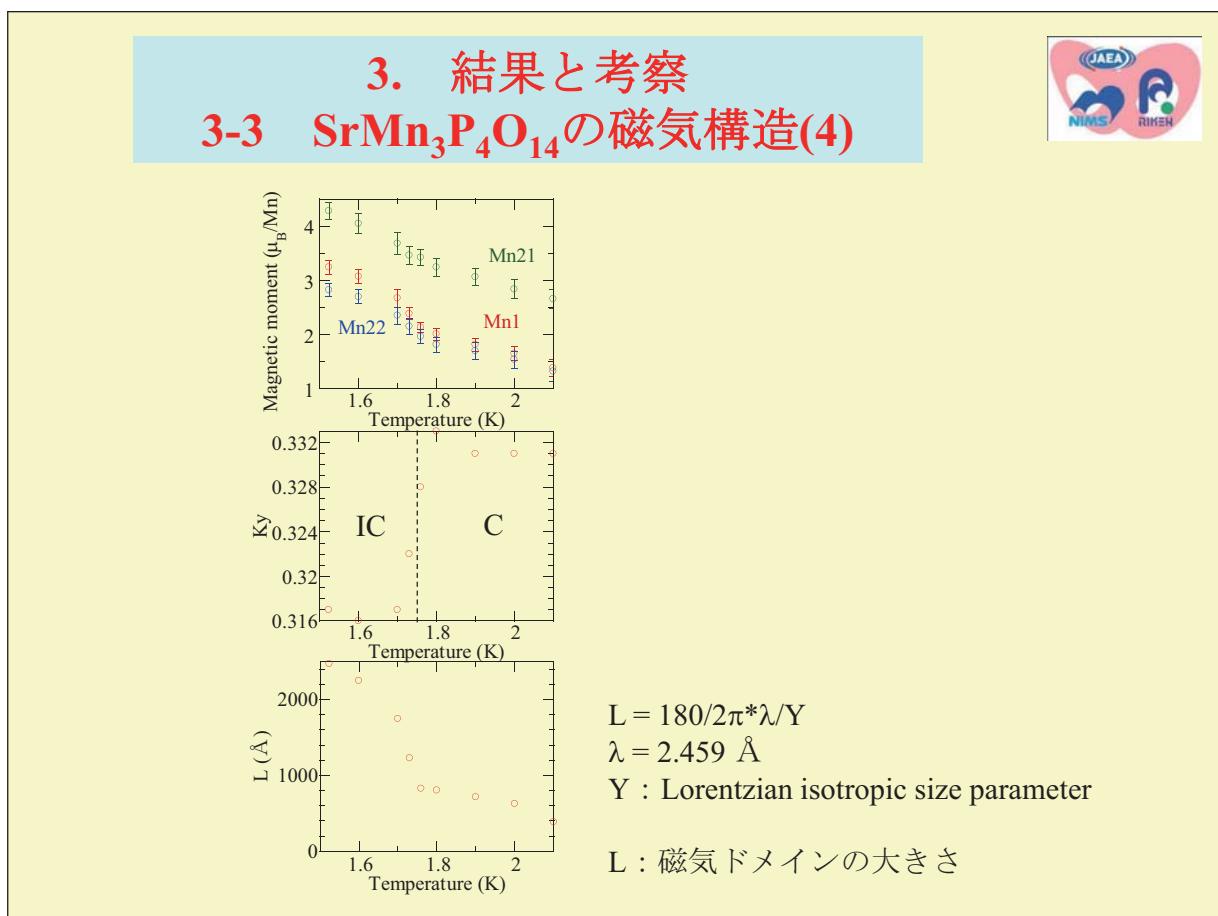
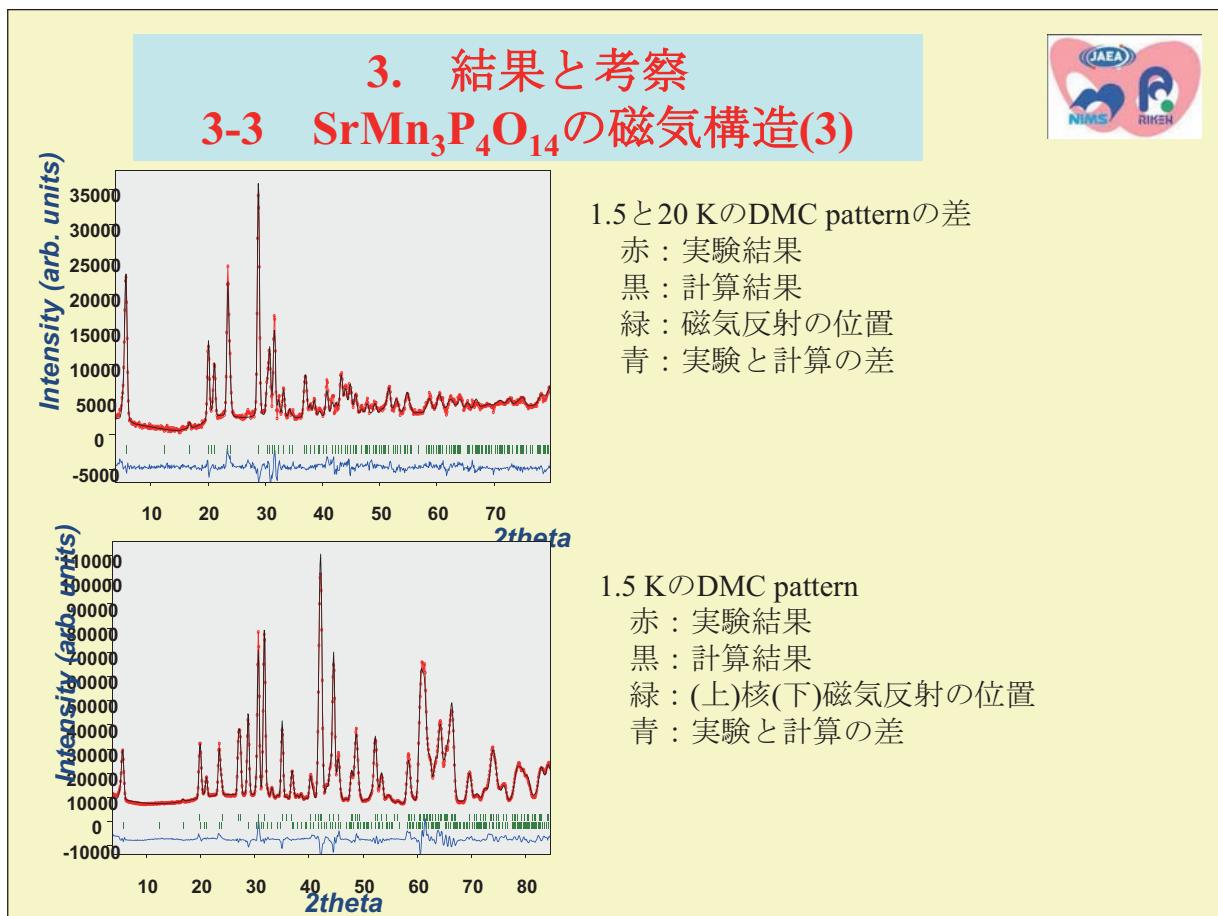
**3. 結果と考察**

### 3-2 トライマーのエネルギー準位

S <sup>T</sup>	E/J <sub>1</sub> Spin-5/2 AF trimer H = J <sub>1</sub> (S <sub>1</sub> S <sub>2</sub> + S <sub>2</sub> S <sub>3</sub> )					
15/2	<b>12.5</b> E15_1					
13/2	<b>5</b> E13_1	<b>10</b> E13_2				
11/2	<b>-1.5</b> E11_1	<b>3.5</b> E11_2	<b>7.5</b> E11_3			
9/2	<b>-7</b> E09_1	<b>-2</b> E09_2	<b>2</b> E09_3	<b>5</b> E09_4		
7/2	<b>-11.5</b> E07_1	<b>-6.5</b> E07_2	<b>-2.5</b> E07_3	<b>0.5</b> E07_4	<b>2.5</b> E07_5	
5/2	<b>-15</b> E05_1	<b>-10</b> E05_2	<b>-6</b> E05_3	<b>-3</b> E05_4	<b>-1</b> E05_5	<b>0</b> E05_6
3/2	<b>-12.5</b> E03_1	<b>-8.5</b> E03_2	<b>-5.5</b> E03_3	<b>-3.5</b> E03_4		
1/2	<b>-10</b> E01_1	<b>-7</b> E01_2				

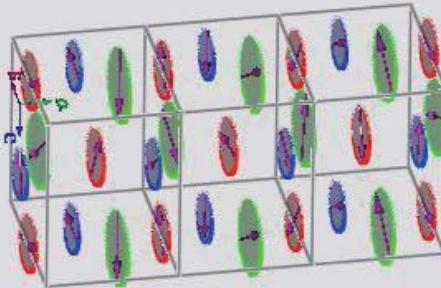






### 3. 結果と考察

#### 3-3 $\text{SrMn}_3\text{P}_4\text{O}_{14}$ の磁気構造(5)



1.5Kの磁気構造

$$K_y = 0.317$$

$\text{Mn1} : 3.24 \mu_B$ 、 $\text{Mn21} : 4.28 \mu_B$ 、 $\text{Mn22} : 2.82 \mu_B$

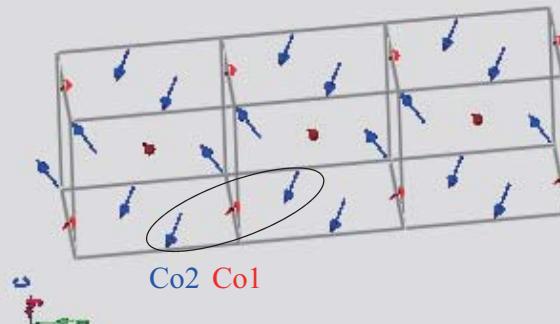
$\text{Mn1}$ と $\text{Mn21}$  ( $\text{Mn22}$ ) はほぼ反平行。 $\Leftrightarrow$   $J_1$ はAF

$\text{Mn21}$ と $\text{Mn22}$ の成す角は大雑把に $120^\circ$   $\Leftrightarrow$

平行でも反平行でもないので、 $J_2$ は弱いだろう。

### 3. 結果と考察

#### 3-3 $\text{SrCo}_3\text{P}_4\text{O}_{14}$ と $\text{SrNi}_3\text{P}_4\text{O}_{14}$ の磁気構造



コメンシュレイト磁気構造。

$K = [0, 0, 0]$ 。canted AF orderで、y方向にフェロ成分が残る。

$J_2$ で結ばれた2つの $\text{Co2}$ モーメントの成す角は $0^\circ \Rightarrow J_2$ はF

$J_1$ で結ばれた $\text{Co1}$ と $\text{Co2}$ モーメントの成す角は $129^\circ$

$J_1$ はAF的だが、異方性に負けて反平行になれない。 $J_1$ はそんなに強くない。

傾き角が大きいのでDM相互作用だけでは説明できない。

$J_1$ で結ばれた $\text{Ni1}$ と $\text{Ni2}$ モーメントの成す角は $30^\circ$

$J_1$ はF的だが、異方性に負けて平行になれない。 $J_1$ はそんなに強くない。

$J_1$ 弱い  $\Rightarrow$  3倍周期鎖ではない  $\Rightarrow$

1/3磁化プロトーが見えなくてもいい。

CoやNiとMnではスピン系が異なる。

### 3. 結果と考察

#### 3-3 インコメンシュレイト磁気構造の起源(1)



局在スピン系では、磁気フラストレーション以外でもインコメが現れる場合がある。

Uniform DM相互作用 (D vectorに平行成分がある場合)

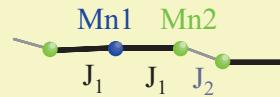
CsCuCl<sub>3</sub>、CuB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>、Ba<sub>2</sub>CuGe<sub>2</sub>O<sub>7</sub> 物質例は少ない。

SrMn<sub>3</sub>P<sub>4</sub>O<sub>14</sub>には、Uniform DM相互作用は無い。

Mn1の位置は反転中心 =>

J<sub>1</sub>ボンドの隣合う2つのD vectorは反平行。

ちなみに、J<sub>2</sub>ボンドにはDMは無い。



異方性が強いようには見えない。

飽和磁化4.95 μ<sub>B</sub> => g = 1.98

30 K以上のχ(T) => g = 1.95

スピン・軌道相互作用はほぼ0 => g ~ 2

### 3. 結果と考察

#### 3-3 インコメンシュレイト磁気構造の起源(2)



磁気フラストレーションはあっても弱いだろう

Mn1

反強磁性トライマーで磁化とINSの結果は説明できる。

30 K以上のχ(T) => ワイス温度θ = 22.3 K

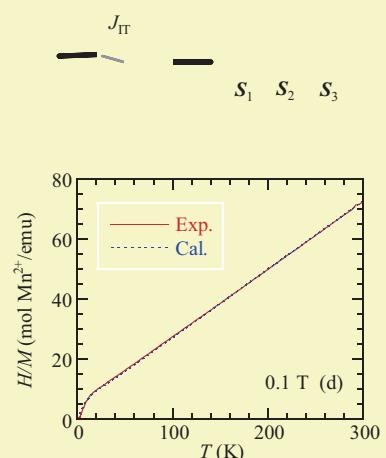
T<sub>IC</sub> = 1.75 Kの10倍強。

J<sub>1</sub> = 4.0 K => θ = 2S(S+1)J<sub>1</sub>/3 = 23.3 K

インコメと言っても、K<sub>y</sub> = 0.317@1.5Kで、1/3に近い。

弱いフラストレーションで、

コメからちょっとずれたインコメ？



## 4. まとめ

$\text{SrMn}_3\text{P}_4\text{O}_{14}$  (スピノン5/2)

高磁場磁化と磁気励起 =>  
反強磁性トライマー  
強いフラストレーションは期待できない

インコメンシュレイト磁気構造  
(パラ=>コメ=>インコメ) =>  
フラストレーション

ありがとうございます

Peking Univ.

Tao Yang, Rihong Cong, Jianhua Lin 試料提供

東大物性研 (ISSP)

松尾晶, 金道浩一 高磁場磁化

益田隆嗣 討論

原子力機構 (JAEA)

松田雅昌, 金子耕二, 目時直人, 加倉井和久

中性子非弹性散乱

Paul Sherrer Institut (PSI)

Vladimir Pomjakushin, Lukas Keller 中性子回折

物材機構 (NIMS)

Andreas Doenni, 河野昌仙, 寺田典樹,

小澤清, 北澤英明

14.

## 「最後に」

2010年12月20日

第4回 三機関連携「量子複雑現象」研究会  
原子力機構 システム計算科学センター 会議室



### 「量子複雑現象」 チーム これまでの活動

日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門  
物質・材料科学研究ユニット  
社本 真一

1

### 「量子複雑現象」チーム



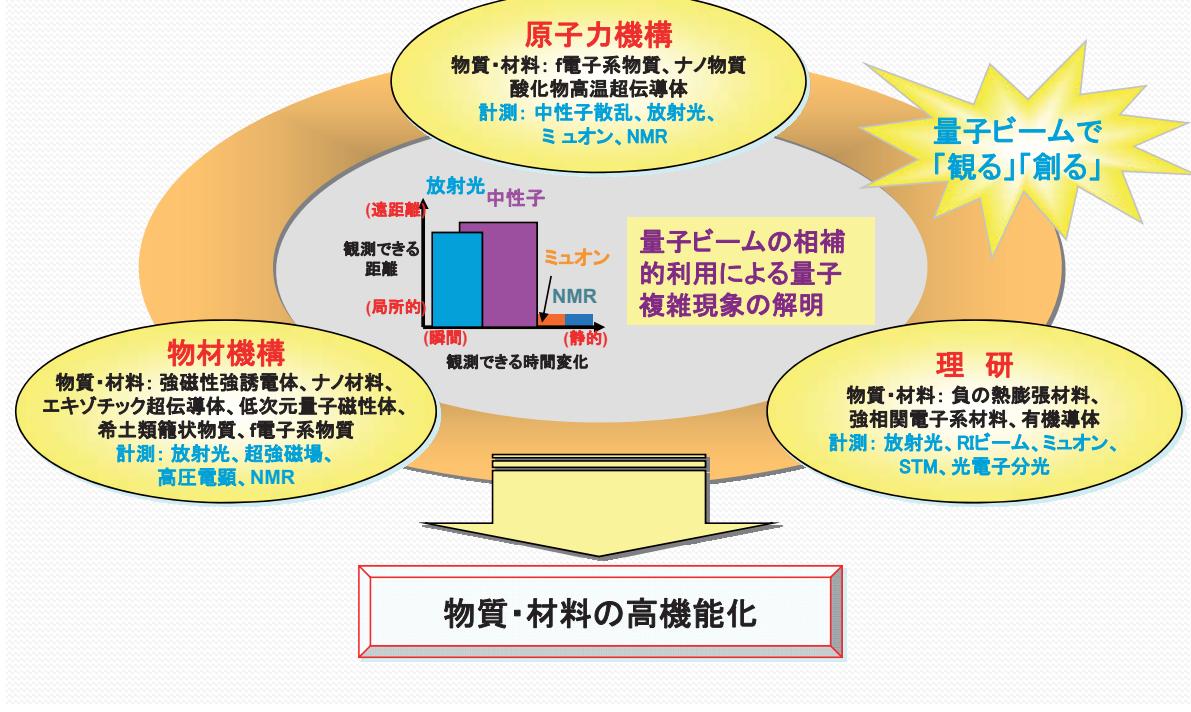
物材機構、理研及び原子力機構の三機関で  
2006年12月20日

「量子ビームテクノロジーの先導的研究開発に関する  
研究協力協定」の次世代機能性材料に向けた量子複  
雑現象の解明を目的に締結

2

## 次世代機能材料開発に向けた量子複雑現象の解明

三機関の力を結集し、施設を横断的に活用して、物質・材料を評価し、高機能化を目指す



### 第1回三機関連携「量子複雑現象」研究会

2007年6月14日 日本原子力研究開発機構システム計算科学センター

### 第2回三機関連携「量子複雑現象」研究会

2008年2月12日 独立行政法人理化学研究所 東京連絡事務所

### 第1回三機関連携量子複雑現象チーム幹事会

2008年7月22日 原子力機構 東京事務所12階第3会議室

午前10:00～12:30

### 量子ビームテクノロジー3機関連携第1回合同研究会

2008年10月7日 物質・材料研究機構 千葉第1会議室

## 鉄系高温超伝導体に関する国際研究集会の開催

2009年1月25日 原子力機構 システム計算科学センター(上野)

## 鉄系高温超伝導体に関する国内研究集会の開催

2009年11月28日 原子力機構 システム計算科学センター(上野)

(第3回三機関連携「量子複雑現象」研究会)

## 第4回 三機関連携「量子複雑現象」研究会

2010年12月20日 原子力機構 システム計算科学センター(上野)

## 量子複雑現象チームメンバーリスト



### 物材機構(20)

\*北澤 英明  
\*長谷 正司  
\*磯部 雅朗  
泉 富士夫  
茂筑 高士  
鈴木 博之  
間宮 広明  
辻井 直人  
上田 茂典  
寺田 典樹  
門馬 繩一  
土屋 佳則  
~~アンドレアス~~  
~~ウルニサトルフン~~  
小林 啓介  
松下 能孝  
室町 英治  
山浦 一成  
川嶋 哲也  
Alexei A. Belik  
櫻井 裕也  
橋 信  
高野 義彦

### 理研(25)

\*高木 英典  
\*高田 昌樹  
\*山崎 展樹  
香取 浩子  
竹中 康司  
松野 丈夫  
藤山 茂樹  
山本 文子  
古崎 昭  
桃井 勉  
是常 隆  
有田 亮太郎  
侯 召民  
田口 康二郎  
石渡 晋太郎  
金澤 直也  
奥山 大輔  
岩崎 雅彦  
松崎 稔市郎  
渡邊 功雄  
加藤 健一  
大隈 寛幸  
吉田 美美子  
Alfred Q.R. Baron  
有馬 孝尚

### 原子力機構(22)

\*水木 純一郎  
\*社本 真一  
\*石井 賢司  
井川 直樹  
樹神 克明  
石角 元志  
加倉井 和久  
武田 全康  
脇本 秀一  
~~内海 泊~~  
~~青木 勝敏~~  
西畠 保雄  
吉井 賢資  
福田 竜生  
田村 和久  
Jarrige Ignace  
目時 直人  
金子 耕司  
新井 正敏  
中島 健次  
根本 亮一  
河村 聖子  
町田 昌彦  
前川 稔通  
森 道康

(\*WGメンバー)

## 研究資金獲得実績



独立行政法人科学技術振興機構 (JST) 戰略的創造研究推進事業  
研究領域「新規材料による高温超伝導基盤技術」

研究課題名 「量子ビームによる鉄系高温超伝導の物性研究」

**原子力機構グループ代表：社本真一**  
**理研グループ代表：BARON Alfred**

3.5 年間の予定総額：5540 万円



5915 万円

物材での採択：寺嶋太一Gr、高野義彦Gr、室町栄治Gr.

(理研での採択)：野原実（岡山大）Gr.

7

## 研究資金申請実績



Strategic Japanese-EU Coordinated Research Program

戦略的国際科学技術協力事業(共同研究型)  
日本(JST)－EU(EC DG RTD)共同研究 研究提案

“Superconductivity”

研究期間 2011/10/03～2015/03/31

Advanced Spectroscopic Investigations on Novel  
High- $T_c$  Superconductors

日本側研究代表者：社本 真一

EU側研究代表者：SCHMITT Thorsten (Paul Scherrer Institut)

量子ビームグループ	NRIXSグループ	京都グループ
社本 真一 水木 純一郎 JARRIGE Ignace 石井 賢司 加倉井 和久 脇本 秀一 樹神 克明 新井 正敏 梶本 亮一 中島 健次	小嶋 健児 幸田 章宏 門野 良典 髭本 亘 伊藤 孝 河村 聖子 渡邊 功雄 大石 一城 町田 昌彦 中村 博樹 永井 佑紀 野村 拓司 坂井 徹	BARON Alfred 福田 竜生 加藤 健一
<b>東北グループ</b>		
山田 和芳 藤田 全基		
<b>産総研グループ</b>		
李 哲虎 松畑 洋文 山口 博隆		

PSI Gr.	USTAN Gr.	日本側予算計画(円)
SCHMITT Thorsten ZHOU Kejin MONNEY Claude STROCOV Vladimir PATTHEY Luc	BAUMBERGER Felix TAMAI Anna KING Phil	第1年度(平成23年度)総額: 38,500千円 第2年度(平成24年度)総額: 38,500千円 第3年度(平成25年度)総額: 38,300千円 第4年度(平成26年度)総額: 38,300千円
<b>IFW-IFF Gr.</b>		
GECK Jochen KNUPFER Martin BISOGNI Valentina KRAUS Roberto		
<b>IFW-ITF Gr.</b>		
VAN DEN BRINK Jeroen WOHLFELD Krzysztof DAGHOFER Maria KOURTIS Stefanos		
EU側チーム総額: 1689.907 k€		
EU側予算計画(ユーロ)		
第1年度(平成23年度)総額: 0 k€ 第2年度(平成24年度)総額: 563.303 k€ 第3年度(平成25年度)総額: 563.302 k€ 第4年度(平成26年度)総額: 563.302 k€		

「量子複雑現象」チーム

JAEA NIMS RIKEN

# 大型量子ビーム 施設の相互利用

放射光X線 中性子線 ミュオン

General view of the reactor hall

ISIS

II

Outside view of JRR-3

TAS-1 HRPD

JRR-3 (20MW) 中性子実験装置 (JAEA)

炉室内	9	(6)
サーマルガイド	9	(5)
コールドガイド	13	(7)

LTAS MUSASI TAS-2

NIMS

副装置責任者: 寺田典樹(NIMS)

原子力機構職員と同じ使いやすさ  
マシンタイム会議の案内、WGによる審査→ 半年前から計画可能

General v

# The SPring-8 Facility Super Photon ring-8GeV



- Construction started: 1991
- Open to public: October, 1997
- Constructed by: RIKEN and JAERI
- Owned by: RIKEN
- Operated by: JASRI

**Beamlines**

物材	1
理研	7
原子力機構	4

**理研 新非弾性X線分光器 (Baron Gr)**



Total number of beamlines : 62 (1=1)

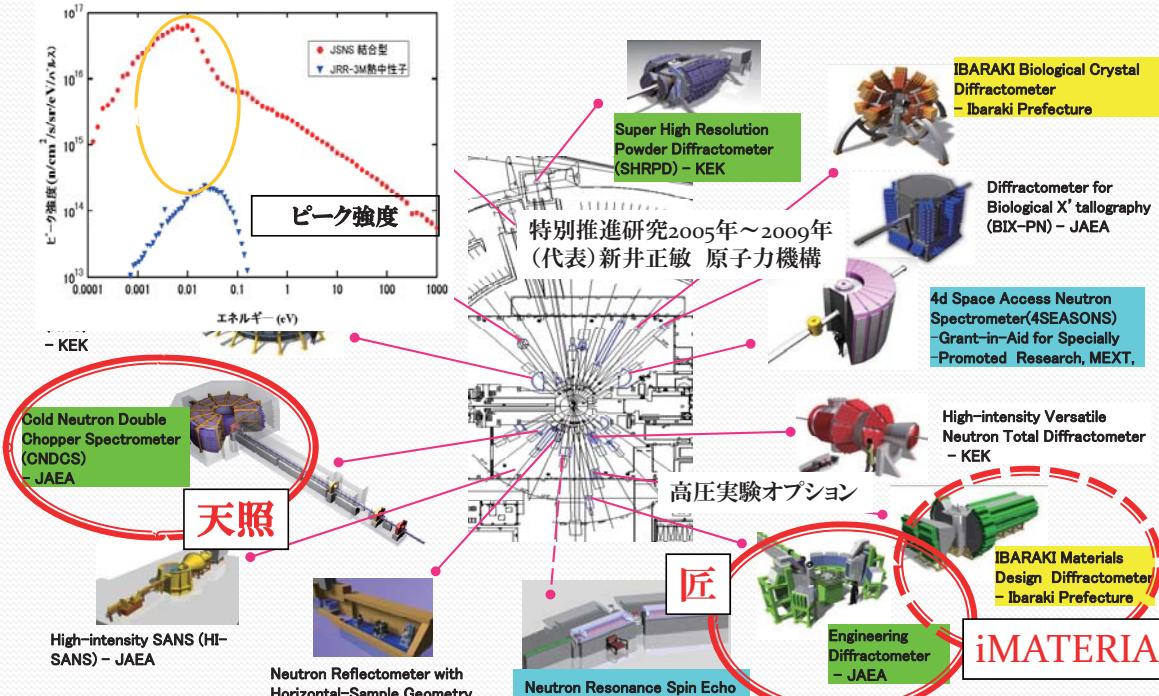
- Insertion Device (6 m) : 34 (—)
- Insertion Device (30 m) : 4 (—)
- Bending Magnet : 23 (—)
- Others : 1 (—)

13

# J-PARC

## JAEAプロジェクト枠を利用した研究推進

**天照**



ビーム強度 ( $\text{n/cm}^2/\text{s}/\text{sr}/\text{eV}/\Delta E$ )

エネルギー (eV)

● JSNS 結合型  
▼ JRR-3M熱中性子

ピーグ強度

KEK

IBARAKI Biological Crystal Diffractometer - Ibaraki Prefecture

Super High Resolution Powder Diffractometer (SHRPD) - KEK

Diffractometer for Biological X' tallography (BIX-PN) - JAEA

4d Space Access Neutron Spectrometer(4SEASONS)  
- Grant-in-Aid for Specially Promoted Research, MEXT,

High-intensity Versatile Neutron Total Diffractometer - KEK

IBARAKI Materials Design Diffractometer - Ibaraki Prefecture

iMATERIA

Neutron Reflectometer with Horizontal-Sample Geometry - KEK

Neutron Resonance Spin Echo spectrometers - KUR, Kyoto University

Engineering Diffractometer - JAEA

High-intensity SANS (HI-SANS) - JAEA

特别推進研究2005年～2009年  
(代表)新井正敏 原子力機構

By courtesy of Dr. M. Arai (J-PARC) 14

## 「量子複雑現象」チーム

## JRR-3 2009年度利用実績修正

## 物材機構

× 使用日数 注:\_は施設共用枠

粉末構造解析用回折装置(HRPD)	× 3 + <u>3</u>
低エネルギー非弾性散乱装置(TAS-2)	× 4
低エネルギー非弾性散乱装置(LTAS)	× 2 + <u>14</u>
多目的ポート(MUSASI)	× 9



## 理研

低エネルギー非弾性散乱装置(TAS-2)	× 6
----------------------	-----

## SPring-8 2009年度利用実績



## 原子力機構

RIKEN BL35XU(IXS)	× 17
RIKEN BL44B2	× 4

## 物材機構

RIKEN BL35XU(IXS)	× 4
RIKEN BL27SU	× 6

15

## 「量子複雑現象」チーム

## JRR-3 2010年度利用実績



## 物材機構

× 使用日数 注:\_は施設共用枠

粉末構造解析用回折装置(HRPD)	× 5 + <u>9</u>
非弾性散乱装置(TAS-1)	× 6
低エネルギー非弾性散乱装置(TAS-2)	× 39
低エネルギー非弾性散乱装置(LTAS)	× 4 + <u>27</u>
多目的ポート(MUSASI-L&H)	× 26



## 理研

非弾性散乱装置(TAS-1)	× 11
小角散乱装置(SANS-J)	× 3

## SPring-8 2010年度利用実績



## 原子力機構

RIKEN BL35XU(IXS)	× 22
-------------------	------

## 物材機構

RIKEN BL27SU	× 9
--------------	-----

16

「量子複雑現象」チーム

JRR-3 2011年度申請



× 使用日数 注:\_は施設共用枠

粉末構造解析用回折装置(HRPD)	×3
高エネルギー非弾性散乱装置(TAS-1)	×4
低エネルギー非弾性散乱装置(TAS-2)	×10



General view of the reactor hall.

## 謝 辞

この研究会は、三機関連携「量子複雑現象」ワーキンググループ（通称 B チーム）のメンバーを中心に三機関でほぼ閉じた形で開催された。それにもかかわらず 30 名の方々に参加していただいた。お忙しい中発表された 12 名の方々に感謝するとともに、三機関連携協定の締結に関与された多くの方々にも感謝申し上げたい。またこの研究会の開催に当たっては、会議室、弁当、懇親会の料理の予約、懇親会の後片付けまで町田昌彦室長とそのグループのメンバーである中村博樹、永井佑紀の各氏に大変お世話になった。また会場係として、長谷正司、山本文子、山崎展樹、石角元志の各氏にお世話になった。プログラム作成、会場案内、会計案内、会計係として富岡美智子さん、前川康子さんにお世話になった。このような方々のご協力のお陰で無事に研究会を開催し、この報告書も研究技術情報課の方々のご協力もあり、短期間にまとめることができた。この場を借りて皆様にお礼申し上げたい。

## 付録 1 第4回 三機関連携「量子複雑現象」研究会

場所：原子力機構 システム計算科学センター 会議室（当日連絡先 TEL: 03-5246-2503）

(地図 <http://ccse.jaea.go.jp/ja/map.html>)

日時：12月20日（月） 10:00～17:40 （講演）  
18:00～19:30 （懇親会）

物材機構、理研、原子力機構の3機関の連携の下で、次世代機能材料開発に向けた量子複雑現象の解明を目指した第4回研究会を開催いたします。それぞれの機関での特徴的な持てる技術や装置、および優れた研究の紹介または、これまでの3機関での共同研究結果等について、質疑応答を含めて30分で講演していただきます。講演者の方はノートPCをご自身でご用意いただくか、こちらでノートPC(Windows XP)を用意いたしますので、メモリースティックをご持参ください。後日、報告書としてまとめますので、発表されるファイルは可能な部分を担当者にお渡しください。

### — プログラム —

10:00～10:10 「はじめに」

南波 秀樹（原子力機構）

#### Session 1

座長：高木 英典（理研&東大）

10:10～10:40 「ゼーベック効果とスピニゼーベック効果」

前川 穎通（原子力機構）

10:40～11:10 「5d遷移金属酸化物の電子構造のX線磁気散乱研究」

有馬 孝尚（理研&東北大）

11:10～11:40 「共鳴非弾性X線散乱によるSr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub>の電子励起」

石井 賢司（原子力機構）

11:40～12:10 「パイロクロアIr酸化物における金属絶縁体転移、磁性とZ<sub>2</sub>及びU(1)トポロジーの理論」

小野田 繁樹（理研）

～～～ 昼食（12:10～13:10）～～～

#### Session 2

座長：加倉井 和久（原子力機構）

13:10～13:40 「J-PARC中性子・ミュオン科学の展開」

新井 正敏（原子力機構）

13:40～14:10 「立方晶希土類化合物における多極子揺らぎの研究」

鈴木 博之（物材機構）

14:10～14:40 「Yb系重い電子物質の量子臨界点における価数揺動の観測」

辻井 直人（物材機構）

14:40～15:10 「遍歴系4d5dパイロクロアの構造と物性」

山本 文子（理研）

～～～ 休憩（15:10～15:30）～～～

#### Session 3

座長：北澤 英明（物材機構）

15:30～16:00 「六方晶フェライトにおける磁場誘起電気分極と磁気構造」

田口 康二郎（理研）

16:00～16:30 「中性子と放射光X線によるマルチフェロイクスCuFeO<sub>2</sub>の研究」

寺田 典樹（物材機構）

16:30～17:00 「Ga置換したYMn<sup>4+</sup>(Mn<sub>1-x</sub>Ga<sub>x</sub>)<sup>3+</sup>O<sub>5</sub>の磁気力イラリティと電気分極」

脇本 秀一（原子力機構）

17:00～17:30 「反強磁性トライマー物質SrMn<sub>3</sub>P<sub>4</sub>O<sub>14</sub>の磁気構造と磁気励起」

長谷 正司（物材機構）

17:30～17:40 「最後に」

社本 真一（原子力機構）

～～～ 休憩（17:40～18:00）～～～

18:00～19:30

ロビーにて 懇親会（会費3,000円）

## 付録 2 研究会での様子



### 付録3 参加者リスト

●物質・材料研究機構 (NIMS)

河村 幸彦 (かわむら ゆきひこ)  
 北澤 英明 (きたざわ ひであき)  
 鈴木 博之 (すずき ひろゆき)  
 辻井 直人 (つじい なおひと)  
 寺田 典樹 (てらだ のりき)  
 長谷 正司 (はせ まさし)

量子ビームセンター中性子散乱グループ  
 量子ビームセンター中性子散乱グループ  
 量子ビームセンター中性子散乱グループ  
 量子ビームセンター中性子散乱グループ  
 量子ビームセンター中性子散乱グループ  
 量子ビームセンター中性子散乱グループ

●理化学研究所 (RIKEN)

有馬 孝尚 (ありま たかひさ)  
 小野田 繁樹 (おのだ しげき)  
 高木 英典 (たかぎ ひでのり)  
 田口 康二郎 (たぐち やすじろう)  
 松崎 穎一郎 (まつざき ていいちろう)  
 山崎 展樹 (やまざき ひろき)  
 山本 文子 (やまもと あやこ)

理研放射光&東北大  
 理研基幹研 古崎物性理論研究室  
 理研基幹研&東大  
 理研基幹研 交差相關物性科学研究グループ  
 理研仁科加速器研究センター  
 理研基幹研 高木磁性研究室  
 理研基幹研 高木磁性研究室

●日本原子力研究開発機構 (JAEA)

朝岡 秀人 (あさおか ひでひと)  
 新井 正敏 (あらい まさとし)  
 石井 賢司 (いしい けんじ)  
 石角 元志 (いしかど もとゆき)  
 加倉井 和久 (かくらい かずひさ)  
 梶本 亮一 (かじもと りょういち)  
 河村 聖子 (かわむら せいこ)  
 樹神 克明 (こだま かつあき)  
 社本 真一 (しゃもと しんいち)  
 永井 佑紀 (ながい ゆうき)  
 中村 博樹 (なかむら ひろき)  
 南波 秀樹 (なんば ひでき)  
 前川 穎通 (まえかわ さだみち)  
 町田 昌彦 (まちだ まさひこ)  
 水木 純一郎 (みずき じゅんいちろう)  
 山本 博之 (やまもと ひろゆき)  
 脇本 秀一 (わきもと しゅういち)

量子ビーム応用研究部門  
 J-PARC センター<sup>†</sup>  
 量子ビーム応用研究部門  
 量子ビーム応用研究部門  
 量子ビーム応用研究部門  
 J-PARC センター<sup>†</sup>  
 J-PARC センター<sup>†</sup>  
 量子ビーム応用研究部門  
 量子ビーム応用研究部門  
 システム計算科学センター<sup>†</sup>  
 システム計算科学センター<sup>†</sup>  
 量子ビーム応用研究部門  
 先端基礎研究センター<sup>†</sup>  
 システム計算科学センター<sup>†</sup>  
 量子ビーム応用研究部門  
 量子ビーム応用研究部門  
 量子ビーム応用研究部門

This is a blank page.

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 基本単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度、質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m <sup>2</sup>
比體積	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 <sup>(a)</sup> 、濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1
比透磁率 <sup>(b)</sup>	(数字の) 1	1

(a) 量濃度(amount concentration)は臨床化学の分野では物質濃度(substance concentration)ともよばれる。

(b) これらは無次元あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	他のSI単位による表し方
平面角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 <sup>(b)</sup> m/m m <sup>2</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
立体角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(c)</sup>	1 <sup>(b)</sup> Hz
周波数	ヘルツ <sup>(d)</sup>	N	m kg s <sup>-2</sup>
力	ニュートン	Pa	N/m <sup>2</sup> m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
圧力、応力	パスカル	J	N m m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
エネルギー、仕事、熱量	ジュール	W	J/s m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
仕事率、工率、放射束	ワット	C	s A
電荷、電気量	クーロン	V	W/A m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
電位差(電圧)、起電力	ボルト	F	C/V m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
静電容量	ファラード	Ω	V/A m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-2</sup>
電気抵抗	オーム	S	A/V m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
コンダクタンス	ジーメンス	Wb	Vs m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
磁束密度	エーベル	T	Wb/m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
インダクタンス	テスラ	H	Wb/A m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
セルシウス温度	度	℃	K
光度	ルーメン	lm	cd sr <sup>(e)</sup> lm/m <sup>2</sup> m <sup>2</sup> cd s <sup>-1</sup>
放射性核種の放射能 <sup>(f)</sup>	ルクス	Ix	lm
吸収線量、比エネルギー分与、カーマ	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq	J/kg m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
線量当量、周辺線量当量、方向性線量当量、個人線量当量	グレイ	Sv	J/kg m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
酸素活性	シーベルト <sup>(g)</sup>	kat	s <sup>-1</sup> mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。

(b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。

(c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを表し方の中に、そのまま維持している。

(d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。

(e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同じである。したがって、温度差や温度間隔を表す數値はどちらの単位で表しても同じである。

(f) 放射性核種の放射能(activity referred to a radionuclide)は、しばしば誤った用語で“radioactivity”と記される。

(g) 単位シーベルト(PV,2002,70,205)についてはCIPM勧告2(CI-2002)を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	m <sup>1</sup> kg s <sup>-1</sup>
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>2</sup>
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	kg s <sup>-2</sup>
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> =s <sup>-1</sup>
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup> =s <sup>-2</sup>
熱流密度、放射照度	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-3</sup>
熱容量、エンタルピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比熱容量、比エンタルピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>1</sup> kg s <sup>-2</sup>
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>3</sup> sA
表面電荷密度	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> sA
電束密度、電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>2</sup> sA
誘電率	ファラード毎メートル	F/m	m <sup>3</sup> kg s <sup>-4</sup> A <sup>2</sup>
透過率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s <sup>-2</sup> A <sup>2</sup>
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> mol <sup>1</sup>
モルエンタルピー、モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> mol <sup>1</sup>
照射線量(X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> sA
吸収線量	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>-3</sup> s <sup>-2</sup>
放射強度	ワット毎メートル	W/sr	m <sup>1</sup> m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> =m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> sr)	m <sup>2</sup> m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> =kg s <sup>-3</sup>
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> mol

表5. SI接頭語

乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
10 <sup>24</sup>	ヨ	タ	Y	10 <sup>-1</sup>	デシ
10 <sup>21</sup>	ゼ	タ	Z	10 <sup>-2</sup>	センチ
10 <sup>18</sup>	エ	ク	E	10 <sup>-3</sup>	ミリ
10 <sup>15</sup>	ペ	タ	P	10 <sup>-6</sup>	マイクロ
10 <sup>12</sup>	テ	ラ	T	10 <sup>-9</sup>	ナノ
10 <sup>9</sup>	ギ	ガ	G	10 <sup>-12</sup>	ピコ
10 <sup>6</sup>	メ	ガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト
10 <sup>3</sup>	キ	ロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト
10 <sup>2</sup>	ヘ	ク	h	10 <sup>-21</sup>	ゼット
10 <sup>1</sup>	デ	カ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=1(60)'=(π/10800) rad
秒	"	1"=(1/60)"=(π/648000) rad
ヘクタール	ha	1ha=1hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
リットル	L	1L=1dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J
ダルトン	Da	1Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg
統一原子質量単位	u	1u=1 Da
天文単位	ua	1ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 <sup>-10</sup> m
海里	M	1 M=1852m
ノット	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =(10 <sup>-12</sup> cm) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネバール	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
デジベル	dB	

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイーン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ボアズ	P	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> cd m <sup>-2</sup>
フォート	ph	1 ph=1cd sr cm <sup>-2</sup> 10 <sup>4</sup> x
ガル	Gal	1 Gal=1cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>
マクスウェル	Mx	1 Mx=1G cm <sup>2</sup> =10 <sup>8</sup> Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T
エルステッド	Oe	1 Oe△(10 <sup>3</sup> /4n)A m <sup>-1</sup>

(c) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリ	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
フェルミ	f	1フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
トール	atm	1 atm=101 325 Pa
標準大気圧	cal	1cal=4.1858J (15°Cカロリー), 4.1868J (ITカロリー)
カロリ	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m

