



JAEA-Review

2016-018

DOI:10.11484/jaea-review-2016-018

**JAEA プロジェクト研究「機能物質の構造と電子物性」
「銅酸化物高温超伝導体のスピン・
格子ダイナミクスの研究」 合同研究会講演集**

2016年3月22日～23日：東北大学金属材料研究所（宮城県仙台市）

Proceedings of the Joint Workshop for the JAEA Project Researches

“Structure and Electronic Properties of Functional Materials” and

“Study of Spin and Lattice Dynamics in Cuprate Superconductors”

March 22–23, 2016, Institute for Materials Research, Tohoku University,

Sendai, Miyagi, Japan

（編）梶本 亮一 中島 健次 脇本 秀一

(Eds.) Ryoichi KAJIMOTO, Kenji NAKAJIMA and Shuichi WAKIMOTO

原子力科学研究部門

J-PARC センター

J-PARC Center

Sector of Nuclear Science Research

August 2016

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

本レポートは国立研究開発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。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail: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
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, 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

© Japan Atomic Energy Agency, 2016

JAEA プロジェクト研究
「機能物質の構造と電子物性」
「銅酸化物高温超伝導体のスピン・格子ダイナミクスの研究」
合同研究会
講演集

2016年3月22日～23日：東北大学金属材料研究所（宮城県仙台市）

日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門 J-PARC センター

（編）梶本 亮一・中島 健次・脇本 秀一⁺

（2016年6月22日受理）

J-PARC センター物質・生命科学ディビジョンでは、物質・生命科学実験施設内の日本原子力研究開発機構（JAEA）が管理する中性子実験装置を主に利用した研究プロジェクト「JAEA プロジェクト研究」を実施している。そのうち 2012 年度～2014 年度まで実施された「機能物質の構造と電子物性」と、2015 年度から開始された「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」の 2 つのプロジェクト研究の合同研究会が、2016 年 3 月 22 日～23 日に東北大学金属材料研究所において開催された。

本報告書は上記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ある。

Proceedings of the Joint Workshop for the JAEA Project Researches
“Structure and Electronic Properties of Functional Materials”
and
“Study of Spin and Lattice Dynamics in Cuprate Superconductors”

March 22–23, 2016, Institute for Materials Research, Tohoku University,
Sendai, Miyagi, Japan

(Eds.) Ryoichi KAJIMOTO, Kenji NAKAJIMA and Shuichi WAKIMOTO⁺

J-PARC Center, Sector of Nuclear Science Research
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received June 22, 2016)

The Materials and Life Science Division in J-PARC Center has been conducting “JAEA Project Researches”, which consists of a several research projects utilizing neutron scattering instruments developed by JAEA in the Materials and Life Science Experimental Facility. Among the research projects, the project “Structure and electronic properties of functional materials” has been conducted in 2012-2014, and the project “Study of spin-lattice dynamics in cuprate superconductors” has started since 2015. On March 22-23, 2016, a joint workshop for these two projects was held at the Institute for Materials Research, Tohoku University.

This report compiles the presentation materials and abstracts shown in the above-mentioned workshop.

Keywords: Functional Materials, Cuprate Superconductors, J-PARC, MLF

⁺ Materials Sciences Research Center

目 次

1. 緒言	1
2. 旧プロジェクト「機能物質の構造と電子物性」全体報告	3
中島健次（原子力機構）	
3. S1「遷移金属元素物質のスピン・格子ダイナミクス」	7
3.1 S1 班報告	7
富安啓輔（東北大）	
3.2 Cr の磁気励起	11
福田竜生（原子力機構）	
4. S2「新奇超伝導体の電荷・スピン・格子ダイナミクス」	15
4.1 S2 班報告および「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」	15
脇本秀一（原子力機構）	
4.2 中性子と RIXS による銅酸化物高温超伝導体の磁気励起の全体像解明	19
脇本秀一（原子力機構）	
4.3 砂時計型磁気励起の擬ギャップ温度を挟んだ温度依存性	23
松浦直人（CROSS）	
4.4 ホールドープされたモット絶縁体の階層的磁気励起	25
藤田全基（東北大学）	
4.5 銅酸化物高温超伝導体における磁気励起とフォノンの結合について	29
池内和彦（CROSS）	
5. S3「伝導電子と局在電子の混成効果による新しい電子相における秩序と揺らぎ」	31
5.1 S3 班報告	31
岩佐和晃（東北大学）	
5.2 $Ce_3T_4Sn_{13}$ ($T = Co, Rh$) におけるカイラル構造相転移と電子状態	33
岩佐和晃（東北大学）	
6. S4「分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス」	37
6.1 S4 班報告	37
佐々木孝彦（東北大学）	

6.2	ダイマーモット絶縁体 β -(BEDT-TTF) $_2$ ICl $_2$ におけるフォノンと電荷・スピンの関連性	39
	河村聖子 (原子力機構)	
6.3	反強磁性ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Cl の電荷-スピン-分子格子ダイナミクス	43
	松浦直人 (CROSS)	
7.	S5 「遷移金属化合物におけるスピン・軌道状態の観測」	45
7.1	S5 班報告	45
	鬼柳亮嗣 (原子力機構)	
7.2	ABC $_6$ 型規則合金 Pt-Mn の磁気秩序と磁気励起	49
	高橋美和子 (筑波大)	
8.	S6 「低次元量子スピン系の新規な励起状態と基底状態の解明」	53
8.1	S6 班報告	53
	益田隆嗣 (東京大)	
8.2	マルチフェロイック物質 Ba $_2$ CoGe $_2$ O $_7$ におけるスピン・ネマティック相互作用	57
	左右田稔 (東京大)	
8.3	スピンパイエルス系 CuGeO $_3$ のスピン-フォノン結合	61
	池内和彦 (CROSS)	
8.4	量子スピン及びフラストレート磁性体の磁気励起 —飛行時間法チョッパー分光器を活用する多結晶非弾性磁気散乱研究—	63
	加倉井和久 (原子力機構)	
9.	S7 「フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究」	67
9.1	S7 班報告	67
	蒲沢和也 (CROSS)	
9.2	フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究	69
	蒲沢和也 (CROSS)	
10.	S8 「スピンの高次テクスチャがもたらす新奇な励起状態の探索」	73
10.1	S8 班報告	73
	木村宏之 (東北大)	
10.2	マルチフェロイック物質 YMn $_2$ O $_5$ のスピンダイナミクス	75
	木村宏之 (東北大)	

10.3 サイクロイド型マルチフェロイックにおける動的電気磁気効果の研究	79
佐賀山基 (KEK)	
付録	
研究会プログラム	83
参加者リスト	84

Contents

1. Preface	1
2. Overview of project research program “Structure and electronic properties of functional materials” K. Nakajima (JAEA)	3
3. S1 “Spin and Lattice Dynamics in Transition Metal Compounds”	7
3.1 S1 Team report	7
K. Tomiyasu (Tohoku University)	
3.2 Magnetic Excitations in Cr	11
T. Fukuda (JAEA)	
4. S2 “Charge-Spin-Lattice Dynamics in Novel Superconductors”	15
4.1 S2 Team report and overview of the new project “Study of spin and lattice dynamics in cuprate superconductors”	15
S. Wakimoto (JAEA)	
4.2 Overall picture of magnetic excitation of cuprate superconductors studied by neutron and RIXS	19
S. Wakimoto (JAEA)	
4.3 Thermal evolution of the hourglass-shaped magnetic dispersion in the high-temperature superconductor $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$	23
M. Matsuura (CROSS)	
4.4 Hierarchical magnetic excitation in doped Mott insulator	25
M. Fujita (Tohoku University)	
4.5 Anomalous enhancement of the magnetic spectral weight on the optic phonon branch in the superconducting phase of LSCO	29
K. Ikeuchi (CROSS)	
5. S3 “Order and Fluctuations in Novel Electronic States due to Hybridization between Conduction and Localized Electrons”	31
5.1 S3 Team report	31
K. Iwasa (Tohoku University)	

5.2	Structural transition with chiral-lattice formation and electronic states of $Ce_3T_4Sn_{13}$ ($T = Co, Rh$)	33
	K. Iwasa (Tohoku University)	
6.	S4 “Hierarchical Structure and Charge-Spin-Lattice Dynamics in Organic Molecular Conductors”	37
6.1	S4 Team report	37
	T. Sasaki (Tohoku University)	
6.2	Relationship between phonon and charge/spin in dimer-Mott insulator β' -(BEDT-TTF) $_2$ Cl $_2$	39
	S. Kawamura (JAEA)	
6.3	Study of multiple coupling between the spin, charge, and lattice in a multiferroic organic charge-transfer salt κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Cl	43
	M. Matsuura (CROSS)	
7.	S5 “Observation of Spin and Orbitals in Transition Metal Compounds”	45
7.1	S5 Team report	45
	R. Kiyanagi (JAEA)	
7.2	Magnetic order and excitations in the alloy with ABC $_6$ -type order	49
	M. Takahashi (University of Tsukuba)	
8.	S6 “Elucidation of Novel Excited and Ground States in Low Dimensional Quantum Spin Systems”	53
8.1	S6 Team report	53
	T. Masuda (the University of Tokyo)	
8.2	Spin-nematic interaction in multiferroics Ba $_2$ CoGe $_2$ O $_7$	57
	M. Soda (the University of Tokyo)	
8.3	Spin-phonon coupling in spin-Peierls CuGeO $_3$	61
	K. Ikeuchi (CROSS)	
8.4	Magnetic excitations in quantum spin systems and frustrated magnets—Exploiting powder sample inelastic magnetic neutron scattering investigation with TOF chopper spectrometer—	63
	K. Kakurai (JAEA)	
9.	S7 “Dynamics Study for Characteristic Excitations of Frustrated Magnets”	67
9.1	S7 Team report	67
	K. Kamazawa (CROSS)	
9.2	Dynamics study for characteristic excitations of frustrated magnets	69
	K. Kamazawa (CROSS)	

10. S8 “Search of Novel Excited States Caused by Higher-Order Textures of Spins”	73
10.1 S8 Team report	73
H. Kimura (Tohoku University)	
10.2 Spin dynamics on multiferroic YMn_2O_5	75
H. Kimura (Tohoku University)	
10.3 Dynamical electromagnetic effect in cycloidal-type multiferroic materials	79
H. Sagayama (KEK)	
Appendix	
Workshop Program	83
Participants List	84

1. 緒言

J-PARC が最初の中性子ビームを生み出したのは、2008 年 5 月のことであった。次の年度には試験的な共用が開始されている。J-PARC の利用開始以前より、施設として J-PARC の最新の中性子装置群からどのようにして世界最高の学術成果を生み出すべきかという議論が積み重ねられてきた。その戦略の 1 つが J-PARC を運営する 2 つの主体の 1 つである日本原子力研究開発機構 (JAEA) 側が立ち上げたプロジェクト課題である。施設側が持つビームタイムを施設側が選定した成果が見込める特定の分野に投入し、早期に一定の結果を得ようというものであり、2009 年から 3 年間の期間で第 1 期の JAEA プロジェクト課題が開始された。その中には、超伝導の研究を狙った「Neutron scattering study of high- T_c superconductors」(代表：新井正敏)、量子スピン系のダイナミクスをターゲットにした「Magnetic excitations in quantum spin systems and frustrated magnets」(代表：加倉井和久) の 2 つの課題があった。中性子源の出力も低く装置のコミッションングも完全には終わっていない状態での研究であったにも関わらず、複数の論文発表に繋がる成果が得られている。これに続いて、2012 年度より第 2 期の JAEA プロジェクト課題が開始され、その 1 つが「Structure and electronic properties of functional materials」、つまり、「機能物質の構造と電子物性」であった。この課題は、山田和芳氏を代表とし、総括班とそれぞれ個別のテーマを実施する 8 つの研究班からなり、BL01 四季分光器、BL14 AMATERAS、BL18 SENJU の 3 台の装置を使う大がかりなもので、いよいよ本格的に稼働を開始した J-PARC の実験装置を使って量子スピン系から分子性有機導体、超伝導に至るまで、およそ電子物性の関わる中性子散乱のテーマとして考えられるすべてのテーマを網羅し、全体を通して物質の中の機能発現に関わる本質を明らかにしようという野心的なものであった。実際には、利用できるマシンタイムには限りがあり、当初計画されたすべての研究の中のごく一部が実施されただけではあったが、それだけでも多数の成果を生み出すことができた。また、何より、磁性、強相関に絡んだこのような広い範囲に関わる多くの研究者がこのプロジェクト課題をコアに集合できたことには大きな意義があった。私自身、このプロジェクト課題を通して新しい研究仲間と多数知り合うことができた。J-PARC 利用して研究する電子物性の研究者のコミュニティを形成できたということがこのプロジェクト課題のもっとも大きな成果の一つであったと言える。「機能物質の構造と電子物性」は、一旦休止となり、一方で、超伝導に関わる研究については 2015 年度から始まった第 3 期のプロジェクト課題の 1 つ「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」(代表：脇本秀一)として継続される。本研究会は、「機能物質

の構造と電子物性」の総括であると共に、新しいプロジェクト課題「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」の開始と、そして、プロジェクト課題を通じて生まれた J-PARC 利用して研究する電子物性の研究者のコミュニティの活動継続を宣言する研究会である。

最後に、プロジェクト課題研究会の幹事を務めていただいた河村聖子氏（「機能物質の構造と電子物性」研究会第 1 回～第 5 回）、梶本亮一氏（本研究会）に感謝いたします。

JAEA プロジェクト課題「機能物質の構造と電子物性」第 2 代代表・中島健次



2. 旧プロジェクト「機能物質の構造と電子物性」全体報告

中島健次¹

¹ J-PARC センター 物質・生命科学ディビジョン 中性子利用セクション

プロジェクト課題「機能物質の構造と電子物性」は、2012 年度から開始された JAEA 内の第 2 期のプロジェクト課題の一つとして、山田和芳教授が全体代表となって開始され、その後、2013 年度から代表を中島に代えて 2014 年度（一部の実験は 2015 年度に実施）まで行われた。このプロジェクト研究は、当時加速器の出力も上がりつつあった J-PARC の物質・生命科学実験施 (MLF) において、整備が進み本格的な運用が始まりだした 2 台のチョッパ型分光器、四季、AMATERAS、そして、完成したばかりの単結晶回折装置千手を用い、総括班と 8 つの個別テーマを持つ研究班を組織して、J-PARC という新しい研究手段により電子物性の新展開を見ることを企画した課題であった。およそ中性子散乱実験の対象となる磁性を中心とした電子物性のあらゆる系を包括的に研究することが計画された本プロジェクト課題では、銅酸化物超伝導からマルチフェロイック物質、フラストレーション系、量子スピン系、そして、*f* 電子系に至るまで極めて幅広い領域においての研究が行われた。その結果は学術的会合でなされた多数の研究発表、現在までに 7 件以上の学術論文、そして、2 件の学位論文という形で成果となっている。また、それらにとどまらず、MLF での実験や年 2 回のミニ研究会等を通じた研究者同士の交流で、研究にかかる最新の情報の交換、J-PARC の装置で得られたデータの解析手法についての情報共有等を行えたことも、これが J-PARC を用いた電子物性研究推進のきっかけになっていたのならそれも成果の一つとしてあげられるだろう。一方、本プロジェクト課題は、個別の研究テーマが広範囲に渡った一方で、当然マシンタイムには限りがあり、J-PARC の予期せぬ停止にも見舞われたこともあり、実施された実際の研究は提案の一部にとどまることになった。また、広範囲な研究を通じ、これらを俯瞰的にまとめることで電子物性に関わる物質中の機能性の発現機構、階層性の発現機構を解明するという山田初代表の設定した最終ゴールに到達するまでには残念ながら至らなかった。

この発表では、本研究会でなされる他の多数の研究発表に先駆け、本プロジェクト課題の総括に資することを目的とし、約 3 年間行われた本プロジェクト課題の全体を概観する。

JAEAプロジェクト課題
「機能物質の構造と電子物性」
(2012年度~2014年度)
全体報告
 中島健次
J-PARCセンター

第2期JAEAプロジェクト課題(2012-2014年度)

課題代表者	所属	プロジェクト課題名
友田 陽	茨城大学	材料強度・工学プロジェクト
中島健次 (山田和芳)	J-PARCセンター	機能物質の構造と電子物性
武田全康	JAEA 量子ビーム応用研究部門	ナノ材料の機能発現の研究
瀬戸秀紀	KEK	ソフトマターの構造とダイナミクス
片岡幹雄	奈良先端科学技術大学院 大学	生体高分子の構造-ダイナミクス相関の解析
鬼柳善明	北海道大学	パルス中性子イメージング
原田秀郎	JAEA 原子力基礎工学研究部門	パルス中性子による中性子核反応研究
奥 隆之	J-PARCセンター	中性子光学デバイスおよび検出器システムの開発と応用
川北至信	J-PARCセンター	プロトン・イオン機能性物質の構造とダイナミクス

機能性物質の構造と電子物性

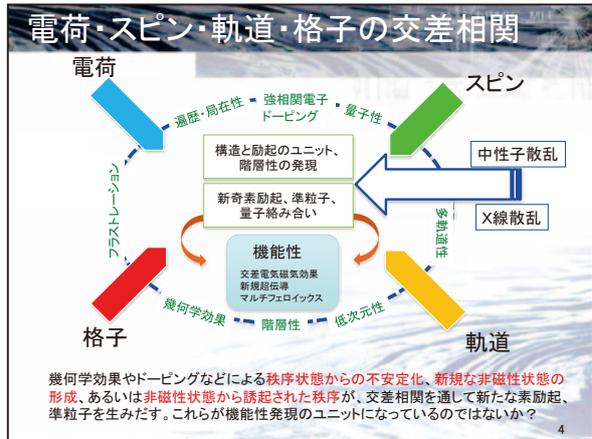
本プロジェクト課題のミッション
物質・材料科学の基本問題への挑戦

機能性の発現機構、階層性の発現機構の解明

- 絶縁体から金属への変化(伝導性の発現、超伝導)
- 磁性の発現(強磁性、反強磁性)
- 強誘電性の発現(格子変位から電子変位)
- Multiferroics (異なる性質の共存、物質中でのすみ分け)

これらは、物質中で均一あるいは静的(空間的、時間的)に発現するのか?
 機能性発現のための最小ユニット(空間的、時間的)が存在するのか?
 もし存在するならば、それと物質中の階層構造との関係は?

ユニット構造を励起してみた場合→新しい素励起、準粒子



「機能性物質の構造と電子物性」の歴史

- 2012.4 プロジェクト課題スタート
 全体代表: 山田
 個別課題代表: 脇本(BL01), 益田(BL14), 鬼柳(BL18)
- 2012.11 山田和芳代表→中島健次代表
- 2013. 4 プロジェクト課題最初の論文出版 K. Iwasa et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82, 043707 (2013)
- 2013.5 J-PARCハドロン事故で停止
- 2014.2 MLFの共用再開
- 2014.3 個別課題代表変更
 BL01: 脇本→梶本
 BL14: 益田→中島
- 2015.1 MLF火災で停止 (2014B期分キャリアオーバー)
- 2015.3 MLFの共用再開
- 2015. 4. 23 プロジェクト課題最後の実験終了(S3班@BL14)

「機能性物質の構造と電子物性」の体制

S1班: 班長・富安啓輔(助教、東北大学理学研究科) 遷移金属元素物質のスピン・格子ダイナミクス

S2班: 班長・脇本秀一(主任研究員、日本原子力研究開発機構) 新奇超伝導体の電荷・スピン・格子ダイナミクス

S3班: 班長・若佐和亮(准教授、東北大学理学研究科) 伝導電子と局在電子の混成効果による新しい電子相における秩序と揺らぎ

S4班: 班長・佐々木孝彦(教授、東北大学金属材料研究所) 分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス

S5班: 班長・北条剛(研究員、日本原子力研究開発機構J-PARCセンター) 遷移金属化合物におけるスピン・軌道状態の観測

S6班: 班長・益田隆嗣(准教授、東京大学物性研究所) 低次元量子スピン系の新規な励起状態と基底状態の解明

S7班: 班長・浦沢和也(副主任研究員、総合科学研究機構東海事業センター) フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究

S8班: 班長・木村宏之(准教授、東北大学多元物質科学研究所) スピンの高次テクニクがもたらす新奇な励起状態の探索(木村)

総括班: 佐藤正俊、加倉井和久、新井正敏、有馬孝尚、野田幸男、村上洋一、山田和芳+各班長

BL01: 四季 梶本
 BL14: AMATERAS 中島・河村
 BL18: 千手 鬼柳

マシンタイムの申請、採択、実績

年度	申請	採択	実績
2012年度	BL01	50日	27日 27.5日
	BL14	107日	36日 36日
	BL18	58日	24日 22日
2013年度*1	BL01	46日	19日(B:4日) 12.6日(B:5日)
	BL14	68日	18日(B:0日) A:3.5日(B:0日)
	BL18	15日	7日(B:3日) A:4日(B:3日)
2014年度*2	BL01	27日(47日)	13日 13日
	BL14	36日(63日)	24.5日 29日
	BL18	13日(13日)	6.5日 7日

プロジェクト課題ミニ研究会

- プロジェクト課題で実施した課題の実験の結果の報告と相談
- 実施する実験の提案、話題提供
- プロジェクト課題の進め方、マシンタイム配分の検討

第1回 日時: 2012年9月21日(金)、22日(土) 場所: T's横浜パシフィックホール2
 報告: 6件、実験提案: 7件、参加者: 約20名

第2回 日時: 2013年3月29日(金)、30日(土) 場所: 広島RCC文化センター
 報告: 15件、参加者: 約30名
 懇親会: 千年の宴 広島本通り店

第3回 日時: 2013年9月28日(土)、29日(日) 場所: 徳島センチュリープラザホテル
 報告: 12件、提案: 1件、参加者: 約30名
 懇親会: ひいきや

第4回 2014年3月26日(水) 場所: 平塚商工会議所会館
 報告+提案: 2件、提案: 2件、参加者: 約15名
 懇親会: 月のダイニング うさぎ

第5回 2014年9月6日(土)、7日(日)
 場所: TKP名古屋ビジネスセンター
 報告7件、報告+提案: 2件、提案: 1件、参加者: 約20名
 懇親会: 地鶏坊主本店

今後の「機能性物質の構造と電子物性」プロジェクト研究について (2013.3@広島)

- マシントime不足で、申請通りの課題推進は不可能
- いろいろと発散気味
- プロジェクト課題の役割(施設としてのタスク、教育)を果たすようにという要請

山田前代表を中心として集合したこの集団を研究コミュニティとして発展させる

- 実施する研究は一部に絞る。
 - 「マシントimeの獲得はガチンコ勝負で」(山田前代表の遺した言葉)
- 一般課題等の研究についても、このコミュニティを通じて連結させる
- プロジェクト課題研究費を使ったインフォーマル、フォーマル両面の研究懇親会を定期的に開催
 - 装置、研究を包括した、パルス中性子構造・電子物性研究の最先端コミュニティを目指す

以上をもって、山田前代表が考えた当初目標を達成することを目指す

2014年度の実施課題について

- 申請書作成時の方針
 - 提案された課題を「実施課題」と「バックアップ課題」に分ける。
 - 「実施課題」は各BLの実際の申請日数に数える。
 - 「バックアップ課題」は、申請日数にカウントしない。

そのようにして、実際の申請日数を20日×1.5倍以下に抑える。

 - 重点課題(銅酸化物超伝導)はBL01を厚くする
 - BL14、18は、重点課題以外の課題を優先する
- 配分されたマシントimeの実施方針
 - BL01は、重点課題(銅酸化物超伝導)で主に使用
 - BL14、18は、重点課題以外の課題を優先し
 - ・申請時に申請されており、すぐに実施できるものを実施
 - ・この研究会で提案され、認められ、すぐに実施できるものを実施

プロジェクト課題からの成果

- 学術論文
 1. Neutron Scattering Study of Spin Fluctuations in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ by Four-Dimensional Mapping of Neutron Cross-Sections Using the 4SEASONS Chopper Spectrometer
Shuichi Wakimoto, Kazuhiko Ikeuchi, Masatoshi Arai, Masaki Fujita, Ryoichi Kajimoto, Sho Kawamura, Masato Matsuura, Kenji Nakajima, Kazuyoshi Yamada
JPS Conf. Proc. 8, 034013 (2015)
 2. High-energy spin and charge excitations in electron-doped copper oxide superconductors
K. Ishii, M. Fujita, T. Sasaki, M. Minola, G. Dellea, C. Mazzoli, K. Kummer, G. Ghiringhelli, L. Braicovich, T. Tohyama, K. Tsutsumi, K. Sato, R. Kajimoto, K. Ikeuchi, K. Yamada, M. Yoshida, M. Kurooka & J. Mizuki
Nature Commun. 5, 3714 (2014)
 3. Well-Defined Crystal Field Splitting Schemes and Non-Kramers Doublet Ground States of f Electrons in $\text{PrT}_2\text{Zr}_{20}$ ($T = \text{Ir, Rh, and Ru}$)
Kazuaki Iwasa, Hiroki Kobayashi, Takahiro Onimaru, Keisuke T. Matsumoto, Naohiro Nagasawa, Toshiro Takabatake, Seiko Ohira-Kawamura, Tatsuya Kikuchi, Yasuhiro Inamura, Kenji Nakajima
J. Phys. Soc. Jpn. 82, 043707 (2013)
 4. Spin nematic interaction in multiferroic compound $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$
M. Soda, M. Matsumoto, M. Mansson, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Shiina, T. Masuda
Phys. Rev. Lett. 112, 127205 (2014)
 5. Spin-orbit fluctuations in frustrated heavy-fermion metal LiV_2O_4
K. Tomiyasu, K. Iwasa, H. Ueda, S. Niitaka, H. Takagi, S. Ohira-Kawamura, T. Kikuchi, K. Nakajima, and K. Yamada
Phys. Rev. Lett. 113, 236402 (2014)

プロジェクト課題からの成果

- 学術論文
 6. Spin Fluctuation in $\text{YBaFe}_2\text{O}_{7-x}$ with geometrically frustrated pyrochlore lattice of Fe spins
Kazuya Kamazawa, Motoyuki Ishikado, Seiko Ohira-Kawamura, Kazuhisa Kakurai, Kenji Nakajima, Yukinobu Kawakita, Kazuyoshi Yamada, Masatoshi Arai, and Masatoshi Sato
Journal of the Physical Society of Japan 84, 104711 (2015)
 7. Single crystal neutron diffraction study of high neutron absorbing compound EuGa_4
T. Kawasaki, K. Kaneko, N. Aso, A. Nakamura, M. Hedo, T. Nakama, Y. Onuki, T. Ohhara, R. Kiyonagi, K. Oikawa, I. Tamura, A. Nakao, K. Munakata, T. Hanashima
JPS Conf. Proc. 1, 014009 (2014)
- 学位論文
 1. 古川圭作, 修士論文「中性子非弾性散乱実験によるマルチフェロイック物質 YMn_2O_5 のスピンドynaミクス」東北大学大学院理学研究科, 修士(理学), 2013年3月
 2. 泉谷義寿, 修士論文「中性子散乱によるマルチフェロイック物質 $\text{YMn}^{4+}(\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}_x)\text{O}_2$ の磁気動起の研究」東北大学大学院理学研究科, 修士(理学), 2015年3月
 3. 佐藤研太郎, 博士論文「ホールドープされたモット絶縁体の階層的磁気動起—パルス中性子散乱によるLa系銅酸化物の磁気動起精密測定—」東北大学大学院理学研究科, 博士(理学), 2016年3月
 4. 堤 健之, 博士論文「T'構造銅酸化物の磁気相関に対する量子ビームを用いた還元アニール効果の研究」東北大学大学院理学系研究科物理学専攻 博士(理学), 2015年9月

他にありましたら、また、今後出ましたら、中島までご一報ください!

「機能性物質の構造と電子物性」の総括

総括のポイント

- 研究目標を達成できたか?
- J-PARCのサイエンスを向上させることができたか?
- 装置Gとの連携により、装置整備に寄与できたか?
- J-PARCを使った電子物性研究コミュニティに寄与ができたか?
 - ・利用者が増えたか?
 - ・新しい人の入り口、学生さんの教育
 - ・プロジェクト課題の一般課題への移行
 - ・J-PARCの利用に役立つ情報交換ができたか?
 - ・J-PARCが使いやすくなったか?
- みんな満足できたか?
- もっといい方法はないか?

This is a blank page.

3. S1 「遷移金属元素物質のスピン・格子ダイナミクス」

3.1 S1 班報告

富安啓輔¹

¹ 東北大学大学院理工学研究科

本講演では、この研究会シリーズで未報告だった課題の現況を紹介する。

La_{1-x}Sr_xCoO₃ 22 March, 2016

(スピン転移型分子磁石を作る)

富安 啓輔 (Keisuke TOMIYASU)

ペロフスカイト型コバルト酸化物 LaCoO₃とその関連物質は、スピン状態という独自の自由度に基づき、巨大磁気モーメント・絶縁体金属転移・高温強磁性金属・大きな磁気抵抗や熱起電力などの特性を示す。その発現機構は、非自明且つ役立つ基本原則を秘めているかもしれない。

本研究では、矢印の極希薄ホール濃度領域に着目し、ドーパされたホールの原点に迫る。

E.g., C. He et al., PRB 76, 014401 (2007).

Introduction

Spin-state polaron in (La_{0.998}Sr_{0.002})CoO₃

(1) Giant moment (2) Ferromagnetic heptamer model

local spin-state transition in nonmagnetic low-spin matrix

W-exchange mechanism

$S_{total} = 13/2$
 $g = 2$

Anisotropic mol. magnets may open the new mechanism of memory & qubits.

S. Yamaguchi et al., PRB 53 R2926 (1996). A. Podlesnyak et al., PRL 101 247603 (2008). D. Louca et al., PRL 91, 155501 (2003).

Introduction

Experimental reports to propose the heptamer model

powder ESR data: many large g-factors

powder INS data: Q structure analysis

A. Podlesnyak et al., PRL 101, 247603 (2008).

Our experiments

Results Magnetization measurements

約9 Kで傾きが変わっている。

(La_{0.99}Sr_{0.01})CoO₃の[100]と[110]方向の磁化率の温度依存性の比 ([100] / [110])。図中の直線は高温側からフィッティングした。

9 K ≃ 0.8 meV付近で比の傾きが大きく変わっている。

中性子で観測された0.8 meV付近の励起エネルギーは、異方性ギャップ。

飽和磁化 > 11 μB/hole (not shown) → Stotal > 3

Results study of |Q|-E structure @J-PARC

Powder inelastic scatt. data

分子磁石特有の離散準位群の直接観測に初成功！
微視的状态 (ハミルトニアン) の完全解明へはずみ。

Results study of Q structure @PSI

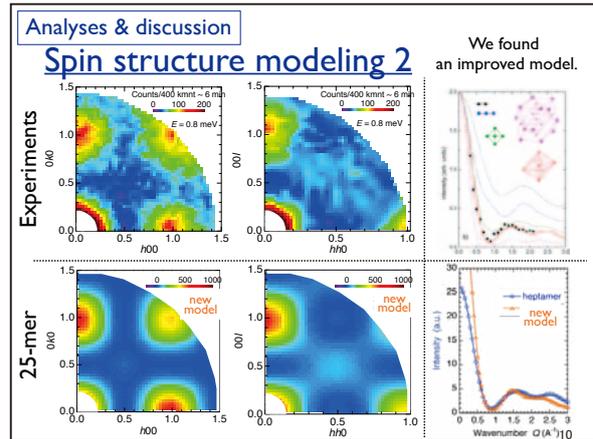
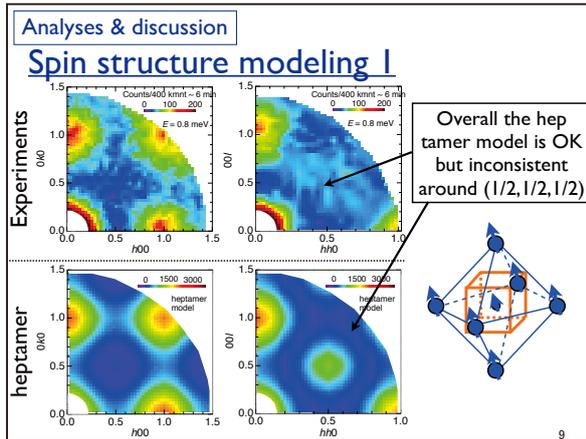
SX inelastic scatt. data

逆格子点近くに磁気散漫散乱 → 強磁性の短距離相関

FWHM ΔQ = 0.46 r.l.u. ~ 1.4a ~ 大体7量体サイズ

過去の粉末データ報告と一致。

However, ...



Summary of $(\text{La}_{0.99}\text{Sr}_{0.01})\text{CoO}_3$

1. ドープホールの原点を探るべく、 $(\text{La}_{0.99}\text{Sr}_{0.01})\text{CoO}_3$ の磁化測定と中性子散乱実験を行った。
2. その結果、本系の磁性が、大きな角運動量と異方性を持つ量子的な分子磁石に起因することを突き止めた。
3. これは、ホールがスピン状態転移/スピントロニクスオーバーの衣をまとった分子磁石であることだけでなく、スピン状態転移が新たな分子磁石生成メカニズムになるかもしれないことを示している。
4. $Q-E$ 相関の解析へ。

This is a blank page.

3.2 Cr の磁気励起

福田 竜生¹, 平賀 晴弘², 池内 和彦³

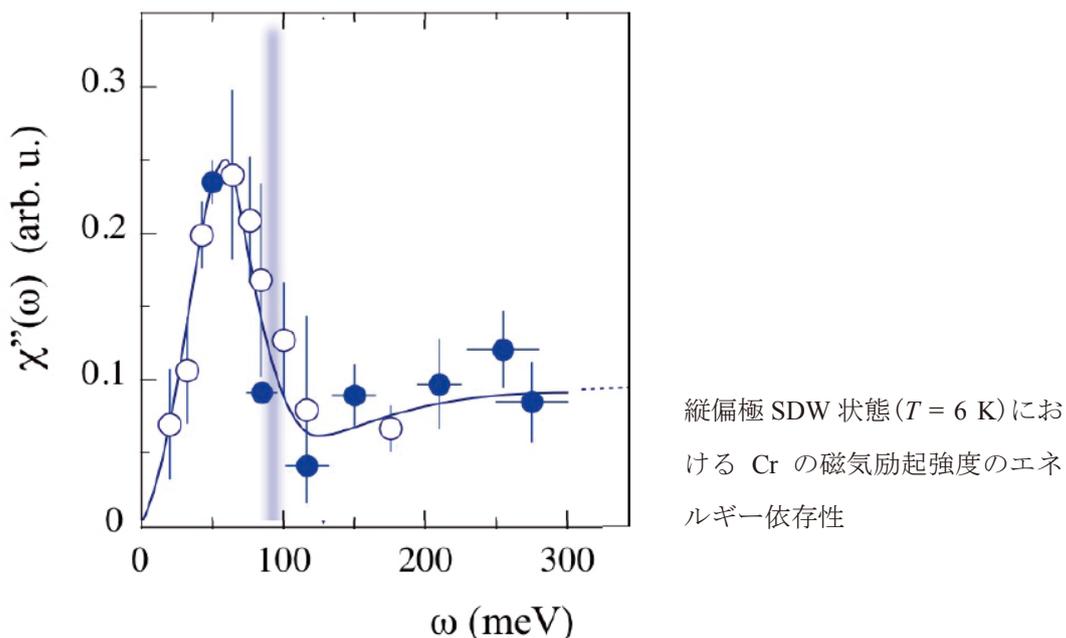
¹ 日本原子力研究開発機構 (JAEA), 量子ビーム応用研究センター (Spring-8)

² 高エネルギー加速器研究機構 (KEK), 物質構造科学研究所

³ 総合科学研究機構 (CROSS), 東海事業センター

典型的な遍歴磁性反強磁性体と考えられている Cr は、Néel 点 (~311 K) 以下で Fermi 面の nesting 効果によって、格子非整合な周期を持つスピン密度波状態となっている。またその磁気励起状態は非常にバラエティーに富んでおり、昔から研究が続けられているが、まだその全容は明らかにはなっていない。本講演では、J-PARC での中性子非弾性散乱実験で得られた結果を中心に、その全体像を低エネルギーから高エネルギーまで、また最近得られた Néel 点以上の温度での測定を含めて議論する。

なおこの研究は、HRC、AMATERAS、SIKI、INC、TOPAN 等の中性子散乱実験装置を用いて行われたものであり、ビームライン担当者をはじめ、多数の方々との協力のもとに進める事ができました。ここに記して感謝の意を表します。



S1班 Crの磁気励起 (Magnetic Excitations in Chromium)

福田竜生 (JAEA QuBS/Spring-8), 平賀晴弘 (KEK IMSS), 池内和彦 (CROSS)

SIKI 稲村泰弘、梶本亮一
 AMATERAS 菊地龍弥、河村聖子、中島健次
 HRC 横尾哲也、伊藤晋一
 INC 大友季哉、新井正敏
 TOPAN 武田全康、山田和芳、遠藤康夫

contents

- Introduction
- Magnetic Excitations at Low Energy
- Magnetic Excitations at High Energy
- Discussion & Summary

Cr

Longitudinal Spin Density Wave **LSDW** $S//Q$ $T_{SF} \sim 122K$

Transverse Spin Density Wave **TSDW** $S \perp Q$ $T_N \sim 311K$

para T

$3d^5 4s^1$

$Q \sim (21-28) \text{unit}$

Fermi Surface and the Nesting

(001) cross section

$Q \sim (21-28) \text{unit}$

L.F. Mattheiss: PR 139 (1965) 1893A. D.G. Laurent et al.: PRB 23 (1981) 4977.

Field Cooling

multi-Q \rightarrow single-Q

magnetic field, heater, thermocouple, sample, magnetic field

Q , h , k , h

(020), (220), (110), (000), (111), (101), (110), (000)

Reported Excitations in Cr (LSDW, S//Q)

ω [meV]

commensurate magnetic scattering

quasi-spin wave (q-SW)

longitudinal fluctuation

Q , q [r.l.u.]

T. Fukuda et al. JPSJ 65 (1996) 1418. J.E. Lorenzo et al. PRL 72 (1994) 1762.

Reported Excitations in Cr (TSDW, S ⊥ Q)

ω [meV]

commensurate magnetic scattering

quasi-spin wave (q-SW)

Fincher-Burke mode (FB mode)

Hiraka mode

no gap

Q , q [r.l.u.]

B.J. Sternlieb et al. PRB 48 (1993) 10217. B.H. Grier et al. PRB 31 (1985) 2892.

Low Energy Excitations (TSDW, S ⊥ Q)

$E_i = 15.16 \text{ meV}$, $T = 150K$, $\Delta Q_b = 0.06 \text{ r.l.u.}$, $\Delta Q_c = 0.06 \text{ r.l.u.}$, $\Delta E = 0.5 \text{ meV}$

$Q \sim (100)$ $Q \sim (010)$

FB mode

Energy [meV]

Q_a [r.l.u.]

H. Hiraka et al. PRB 70 (2004) 144413. FB mode: transverse fluctuation

Low Energy Excitations (LSDW, S//Q)

$E_i = 15.16 \text{ meV}$, $T = 8K$, $\Delta Q_b = 0.06 \text{ r.l.u.}$, $\Delta Q_c = 0.06 \text{ r.l.u.}$, $\Delta E = 0.5 \text{ meV}$

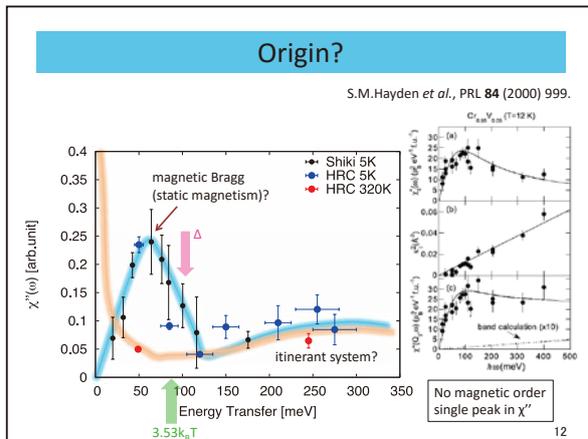
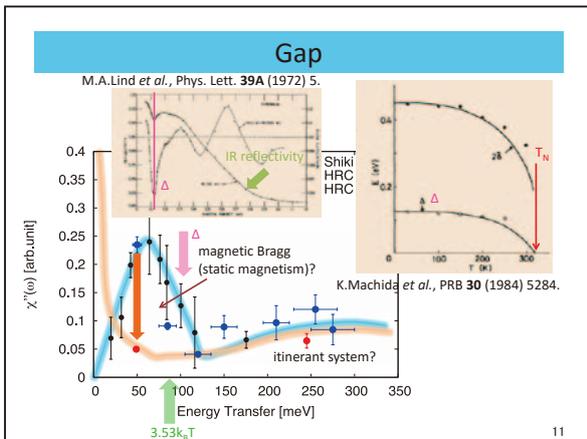
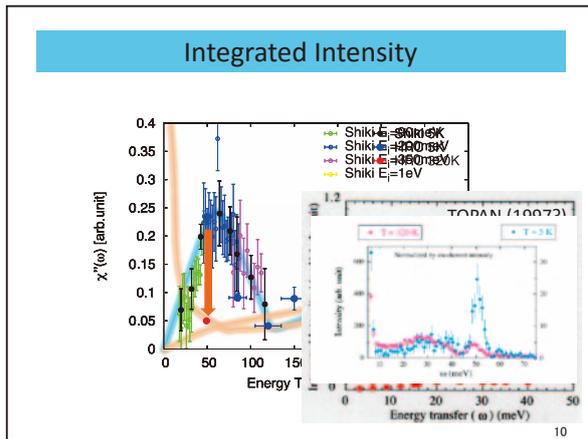
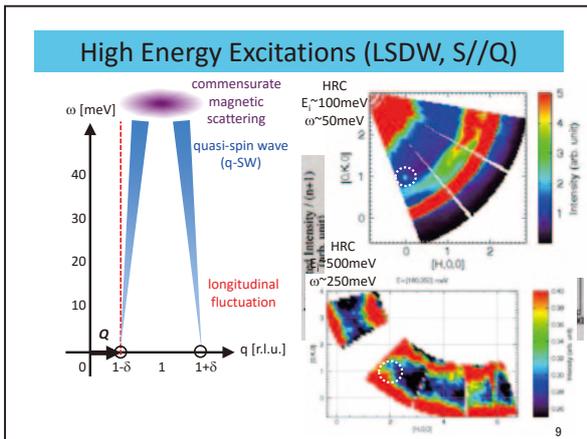
$Q \sim (100)$ $Q \sim (010)$

new excitation

Energy [meV]

Q_a [r.l.u.]

longitudinal fluctuation new mode: transverse fluctuation



Summary

新旧、様々なタイプの中性子散乱装置を用いて、単体Crの磁気励起の研究を行ってきた。最近のJ-PARCのSHIKI、AMATERAS、HRCによる実験結果から、

- LSDW状態においてもなお、Fincher-Burkeモードらしきものが観測された。ただし強度は、TSDW状態におけるものの1/5程度。
- $\chi''(\omega)$ は2ピーク構造を持つ

という事が分かってきた。

- Fincher-Burkeモード及びLSDW状態で見えたFincher-Burkeらしきモードに関しては、起源等は不明
- $\chi''(\omega)$ の低エネルギー側のピークは磁気Bragg(静的磁気構造)由来、高エネルギー側のピークは遷移磁性由来か？

13

This is a blank page.

4. S2 「新奇超伝導体の電荷・スピン・格子ダイナミクス」

4.1 S2 班報告 および

「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」

脇本秀一¹

¹ 日本原子力研究開発機構, 量子ビーム応用研究センター

2012年からのプロジェクト課題「機能物質の構造と電子物性」のS-2班では、高温超伝導とスピン・格子ダイナミクスの相関を研究することを目的とし、BL01四季とBL14アマテラスを用いて、銅酸化物、鉄系超伝導体、およびそれらの関連物質を含めた物質群の測定を計画した。マシンタイムの制約により、銅酸化物に焦点を絞った研究を展開し、中性子と放射光を相補利用した磁気励起の全体像解明、砂時計磁気励起の階層性、擬ギャップ温度をまたいだ温度変化、スピンとフォノンの結合などに関して研究を行い、proceedings や和文解説記事を含めて9編がプロジェクト課題期間中に出版された。また現在も3編の論文を執筆中である。

2015年に新しいプロジェクト課題「銅酸化物高温超伝導体のスピン・格子ダイナミクスの研究」が採択された。前プロジェクト課題では物質・材料科学の基本的命題として機能性発現機構を様々な物質で検証することを目的としたが、新プロジェクト課題では機能性物質の宝庫である強相関電子系のプロトタイプとして銅酸化物高温超伝導体を主題とした研究を行う。電子ドーピング系に磁気励起や、 $G(r,t)$ 解析を用いたホールドーピング系の構造不均一の研究を通して、ドーピングされたモット絶縁体における遍歴性と局在性の二面性、電子状態および結晶構造の複数相の共存といった多面性を理解することを目的としている。

本発表ではこれらのプロジェクト課題の詳細について報告する。

JAEAプロジェクト研究
「機能物質の構造と電子物性」
「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクス」の研究
合同研究会
2016.3.22-23 @ 東北大学金研

S2班報告および 超伝導体における スピン・格子ダイナミクスの研究

脇本 秀一
中性子利用セクション
量子ビーム応用研究センター

1

機能性物質の構造と電子物性のチーム構成

S1班: 班長・富安啓輔(助教、東北大学理学研究科)
遷移金属元素物質のスピン・格子ダイナミクス

S2班: 班長・脇本秀一(主任研究員、日本原子力研究開発機構)
新奇超伝導体の電荷・スピン・格子ダイナミクス

S3班: 班長・岩佐和晃(准教授、東北大学理学研究科)
伝導電子と局在電子の混成効果による新しい電子相における秩序と揺らぎ

S4班: 班長・佐々木孝彦(教授、東北大学金属材料研究所)
分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス

S5班: 班長・鬼柳亮嗣(研究員、日本原子力研究開発機構J-PARCセンター)
遷移金属化合物におけるスピン・軌道状態の観測

S6班: 班長・益田隆嗣(准教授、東京大学物性研究所)
低次元量子スピン系の新規な励起状態と基底状態の解明

S7班: 班長・浦沢和也(副主任研究員、総合科学研究機構東海事業センター)
プラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究

S8班: 班長・木村宏之(准教授、東北大学多元物質科学研究所)
スピンの高次テクスチャがもたらす新奇な励起状態の探索(木村)

総括班: 佐藤正俊、加倉井和久、新井正敏、有馬孝尚、野田幸男、村上洋一、山田和芳+各班長

BL01:四季
BL14:AMATERAS
BL18:千手

2

S2班メンバー

- 脇本秀一 日本原子力研究開発機構
- 金子耕士 日本原子力研究開発機構
- 李哲虎 産業技術総合研究所
- 木方邦宏 産業技術総合研究所
- 藤田全基 東北大学金属材料研究所
- 平賀晴弘 KEK物質構造科学研究所
- 松浦直人 総合科学研究機構東海事業センター
- 佐藤正俊 総合科学研究機構東海事業センター
- 池内和彦 総合科学研究機構東海事業センター
- 中島健次 J-PARCセンター
- 梶本亮一 J-PARCセンター

申請段階では鉄系超伝導やNi, Coなどの関連物質も視野に、マンタイムの制約のため、銅酸化物に絞った研究活動を行った。

3

山田・中島プロジェクトS2班での成果

- "Neutron scattering study of spin fluctuations in La_{2-x}Sr_xCuO₄ by four-dimensional mapping of neutron cross-sections using chopper spectrometer 4SEASONS", S. Wakimoto, et al., JPS Conf.Proc.8, 034013 (2015).
- "High-Energy Spin and Charge Excitations in Electron-Doped Copper Oxide Superconductors", K. Ishii, M. Fujita et al., Nature Communications, 5, 4714 (2014).
- 「3種の量子ビームを用いた電子の動きの観測」アイトーニュース 2014年12月号 No.728, p10-13
- 結晶学会誌特集号「マルチプローブ研究が拓く構造研究の新時代」(依頼)「軟X線・硬X線・中性子非弾性散乱を用いた銅酸化物超伝導体のダイナミクス」石井賢司、藤田全基
- 日本中性子科学誌「波紋」(依頼)「電子ドープ型銅酸化物超伝導体の高エネルギー磁気励起」藤田全基、石井賢司

Four more papers are being prepared.

4

現プロジェクト課題のミッション

山田・中島プロジェクト課題(H24~H26年度)

物質・材料科学の基本問題への挑戦

機能性の発現機構、階層性の発現機構の解明

- 絶縁体から金属への変化
- 磁性の発現
- 強誘電性の発現
- Multiferroics

■ これらは、物質中で均一あるいは静的(空間的、時間的)に発現するのか?
■ 機能性発現のための根本ユニット(空間的、時間的)が存在するのか?

新たな物質観: 強相関電子系

電荷、格子系、スピン、軌道、中性子、放射光の役割大!!

現プロジェクト課題(H27~H29年度)

- 機能性発現のプロトタイプ銅酸化物超伝導体に焦点をあてる
- 強相関電子系に普遍的な内部自由度の交差相関・協奏相関を理解する

5

27年度実施個別課題(BL01四季)

局在・遷移共存電子系である銅酸化物の高エネルギースピンドイナミクス研究

電子ドープ、ホールドープ

局在、遷移

高エネルギー
弱い組成依存性
局在的
低エネルギー
強組成・温度依存
遷移的

要求 20日

- まだ十分に研究が進んでいない電子ドープ系に焦点を絞る
- 絶縁相から超伝導相までの全磁気励起スペクトル(<500meV)の定量的観測(J-PARCの高強度で初めて可能となる)
- ARPES, 放射光, 理論などとの比較

磁気励起の起源と、階層性の一般性を明らかにする

6

27年度実施個別課題(BL14天照)

BL14での銅酸化物における二相共存状態の中性子散乱研究

電子ドープ銅酸化物のドーピングに対する機構変化

要求 10日

ホールドープ系におけるヘテロ構造

要求 10日

超伝導対称性のドーピング変化について最終解答を得る

MFでの新しい中性子手法を確立し、不均質構造の詳細と形成過程を調べる

7

装置開発への寄与

BL01:四季

To chopper

- 機械的な問題のため50Hzを超える運転が不可能
- 高エネルギー($E_i > -100$ meV)でのフラックスをロス
- 新しいVtoチヨッパーを開発中

Schematic drawings of the new To chopper

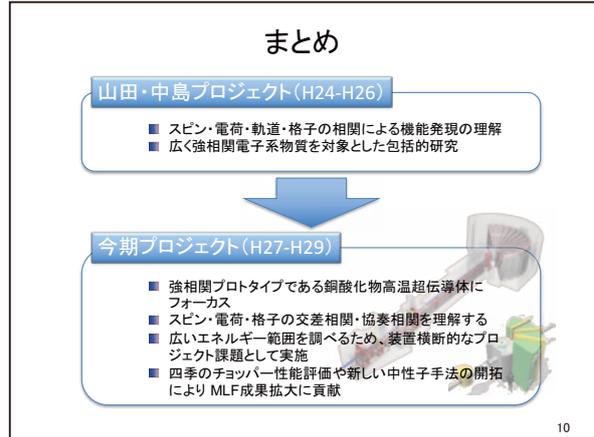
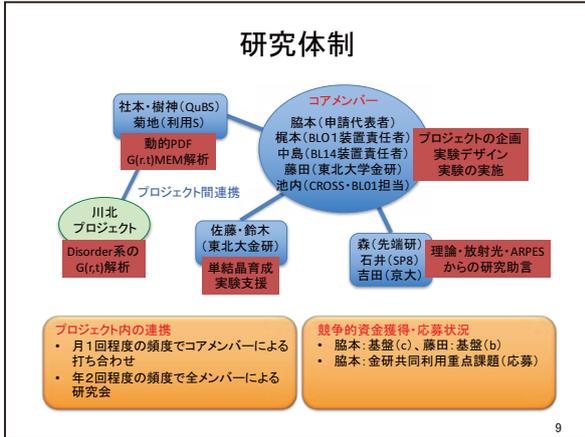
Fermi chopper

- 最高350Hzであり、高エネルギーでの分解能が不足
- 新しい回転機構の導入や、スーパーミラーをコートしたMAGICチヨッパーの導入が予定されている。
- これらの導入によりmulti-Ei測定でのフラックス増加が見込まれる。
- MAGICチヨッパーはテストのため11月に導入。
- 新しい回転機構は2015年に導入予定

Present Fermi rotor manufactured by SNS
New Fermi rotor manufactured by Mirrotron.

チヨッパーの性能評価に貢献する

8



This is a blank page.

4.2 中性子と RIXS による銅酸化物高温超伝導体の磁気励起の全体像解明

脇本秀一¹

¹ 日本原子力研究開発機構, 量子ビーム応用研究センター

ホールドープした銅酸化物高温超伝導体は砂時計型の特異な磁気励起を持ち、低エネルギー領域では反強磁性ベクトル (π, π) 近傍の格子非整合位置から内側に向かう分散を示し、高エネルギー側では通常のスピン波に似た分散関係を示す。これまで中性子による低エネルギー領域の研究では磁気励起はホール濃度に強く依存する結果が得られたが、近年の薄膜を用いた Cu-L₃ 吸収端での共鳴 X 線非弾性散乱(RIXS)では、高エネルギー側の分散関係が、母物質反強磁性絶縁体からほとんどホール濃度に依存しないという結果が報告された[1]。我々はホールドープ系 La_{2-x}Sr_xCuO₄ 単結晶を用い、中性子非弾性散乱と Cu-L₃ RIXS を同じ試料において測定することで、上部の励起が母物質と同様の分散関係を示すかについて検証を行った[2]。

中性子散乱実験は SNS の SEQUOIA 分光器を、RIXS 実験は ESRF の SAXES 分光器を用いて行った。100meV 以上の磁気励起を観測したところ、両者の結果とも、特に $(\pi, 0)$ 方向の分散関係は母物質 La₂CuO₄ のスピン波分散と概ね一致し、薄膜での RIXS 実験と矛盾しない結果を得た。一方で (π, π) 方向の分散は La₂CuO₄ のスピン波分散よりやや弱く、RIXS の偏光依存性から電荷励起が重なっていることが示唆された。

中性子と RIXS の結果から、砂時計型磁気励起には、局所的な J を反映しホール濃度に依存しない高エネルギー領域と、超伝導に直接関係し、ホール濃度に強く依存する低エネルギー領域の階層性が存在することを示している。

References

- [1] Le Tacon *et al.*, Nat. Phys. **7**, 725 (2011).
- [2] Wakimoto *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 184513 (2015).

中性子とRIXSによる 磁気励起の全貌解明

脇本 秀一
原子力機構・量子ビームセンター

JAEAプロジェクト研究
「機能物質の構造と電子物性」
「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」
合同研究会
2016.3.22-23 @ 東北大学金研

1

Introduction

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

Mott insulator

Introduction of holes
($\text{La}^{3+} \rightarrow \text{Sr}^{2+}$)

Doped Mott Insulator

Stripe formation
(1/8 anomaly)

Saving energy by phase separation

2

High-E excitation $E_i = 250/350$ meV

SEQUOIA

LSCO 25%

115 meV (250 E_i)

145 meV (250 E_i)

205 meV (350 E_i)

3

High-E excitation $E_i = 250/350$ meV

Scan around $(1/2, 1/2)$

Scan around $(1/2, 3/2)$

Dispersion along (π, π)

4

AXES ID08 @ ESRF

Advanced X-ray Emission Spectrometer (AXES)

dE = 300 meV

5

Overall RIXS intensity

$\text{La}_{1.75}\text{Sr}_{0.25}\text{CuO}_4$

$\text{La}_{1.75}\text{Sr}_{0.30}\text{CuO}_4$

6

RIXS spectra analyses

(a) $(0, 0) \rightarrow (\pi/2, \pi/2)$

(b) $(0, 0) \rightarrow (\pi/2, 0)$

7

Doping dependence

LSCO

Localized

Tranquila

Lipscombe

Itinerant

8

Summary



- We performed inelastic neutron and resonant inelastic x-ray scattering on overdoped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.
- Magnetic excitation may be divided into two parts;
 - Low energy part :
 - Strongly doping dependent.
 - Dynamical stripes (?)
 - High energy part :
 - Apparently has a similar dispersion to the spin-wave of La_2CuO_4 . But strongly damped.
 - Reflects local J.
- Issues :
 - A few disagreements between RIXS and neutron.
 - How to detect dynamical stripes directly?

This is a blank page.

4.3 砂時計型磁気励起の擬ギャップ温度を挟んだ温度依存性

松浦直人¹, 川村奨², 藤田全基², 梶本亮一³, 山田和芳⁴

¹ 総合科学研究機構 (CROSS), 東海事業センター

² 東北大学金属材料研究所

³ 日本原子力研究開発機構, J-PARC センター

⁴ 高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所

高温超伝導銅酸化物の研究において残された問題の1つに擬ギャップの起源がある。擬ギャップが超伝導の前駆現象であるか、もしくは、超伝導とは別の相によるものなのか、2つの可能性が提唱されているが、まだ、擬ギャップ問題はまだ収束を見せていない。近年、TOF 中性子分光器を用いて高温超伝導銅酸化物の磁気励起が盛んに調べられ、低温での磁気励起に関しては、その全体像が明らかになりつつあるが[1]、しかし、一方で、擬ギャップ状態や、より高温の異常金属状態における磁気励起の全体像は分かっていない。

我々は擬ギャップ相と異常金属相のスピンの相関を明らかにするために、四季 (BL01) を用いて $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ アンダードーピング組成 ($x=0.075$) の磁気励起を超伝導相 ($T=5\text{K}$)、擬ギャップ相 ($T=300\text{K}$)、異常金属相 ($T=400\text{K}$) で調べた。また、reference として、母物質 La_2CuO_4 の磁気励起を 5K と 400K で測定し、熱揺らぎが磁気励起に与える影響を調べた。その結果、母物質では Cu-Cu 間の交換相互作用 $J=136\text{meV}$ で良く表される低温でのスピン波励起が、 $T=400\text{K}$ では熱揺らぎにより僅かにソフト化 ($J=107\text{meV}$) するのに対し、アンダードーピング試料では、低温における砂時計型の磁気励起のうち、下向きの分散が擬ギャップ相で消失し、上向きの分散も異常金属相で ridge 的な磁気励起に変化する事が分かった。ridge 的な磁気励起は、Cr や V_{2-y}O_3 等の遍歴反強磁性体で見られる磁気励起と類似しており、擬ギャップ温度以上の高温におけるアンダードーピング組成では、遍歴するホールに磁気励起全体が強く影響を受けていることを示している。また、擬ギャップ相で復活するスピン波的な分散は、擬ギャップ相において local な反強磁性スピン相関が強まることを示唆している。

References

- [1] M. Fujita *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 011007 (2011).
 [2] T. Fukuda *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 1418 (1996).

新・旧JAEAプロジェクト「機能物質の構造と電子物性」研究会@東北大金研 2016/3/22-23
S-2班 「新奇超伝導体の電荷・スピン・格子ダイナミクス」

砂時計型磁気励起の擬ギャップ温度を挟んだ温度依存性

松浦 直人

CROSS
COMPREHENSIVE RESEARCH ORGANIZATION FOR SCIENCE AND SOCIETY

Collaborators

IMSS
Institute for Materials and Chemical Process

J-PARC
Japan Proton Accelerator Research Center

川村 奨, 藤田 全基
梶本 亮一, 山田 和芳

1

Pseudogap phase

B. Keimer et al. Nature 518 (2015) 179.

precursor? or competing state?

2

Magnetic response in Pseudogap phase

H. Yasuoka et al. (1994)

P. Dai et al. (1999)

V. Hinkov et al. (2007)

No study on magnetic excitations in wide energy range in PG state

3

Research goal

comparison below and above T*

comparison between parent compound and underdoped compound

SC phase: hourglass shaped dispersion established

Reveal effect of pseudogap on spin dynamics

4

Experimental Detail

Sample

LSCO (x=0.075)

75g, 8 crystals

LCO

33g, 4 crystals

INS experiment: 4SEASONS

LSCO	LCO
2012B0142	2014A0074
E_i : 256, 87, 43, 26, 17meV	E_i : 404, 94, 40, 22, 14meV
f : 300Hz	f : 250Hz

- Aligned by γ -ray Laue at ISSP (Thanks to Prof. Masuda)
- Sealed with air to avoid oxygen reduction in high-T measurements

5

4.4 ホールドープされたモット絶縁体の階層的磁気励起

佐藤研太郎¹, 浅野駿¹, 鈴木謙介², 藤田全基²

¹ 東北大学大学院, 理学研究科

² 東北大学, 金属材料研究所

ホールドープ系銅酸化物の超伝導相では、「砂時計型」磁気励起と呼ばれる得意な励起スペクトルが存在する。低エネルギー領域で観測される格子非整合(IC)位置 $(0.5, 0.5 \pm \delta)$, $(0.5 \pm \delta, 0.5)$ の磁気強度は、エネルギー上昇に伴って δ が減少する様に $(0.5, 0.5)$ に集まり、あるエネルギー以上では反強磁性スピン波と類似したゾーン境界への拡がりを見せる。母物質のスピン波励起とは全体像が異なる、この特異な励起状態の起源解明が重要視されている。最近、励起スペクトルが起源の異なる二つの成分から構成されていることが実験的に示唆されつつある。そこで、磁気励起構造の詳細を高分解能条件下で明らかにするため、中性子非弾性散乱測定を BL01 で実施した。図 1(a-c),(g)に観測した $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x=0.16$) の磁気励起スペクトルを示す。今回、IC 構造がエネルギーに対してほとんど変化しない、つまり、 δ のエネルギー依存性がないことが判明した。この結果にも続き、 δ を固定した IC 励起成分と $(0.5, 0.5)$ 上に格子整合(C)励起成分を仮定した二成分の重ね合わせで、60meV 以下の励起スペクトル形状を非常に良く再現することができた。(図 1(d-f))超伝導組成における二成分磁気励起の存在を強く示す結果である。

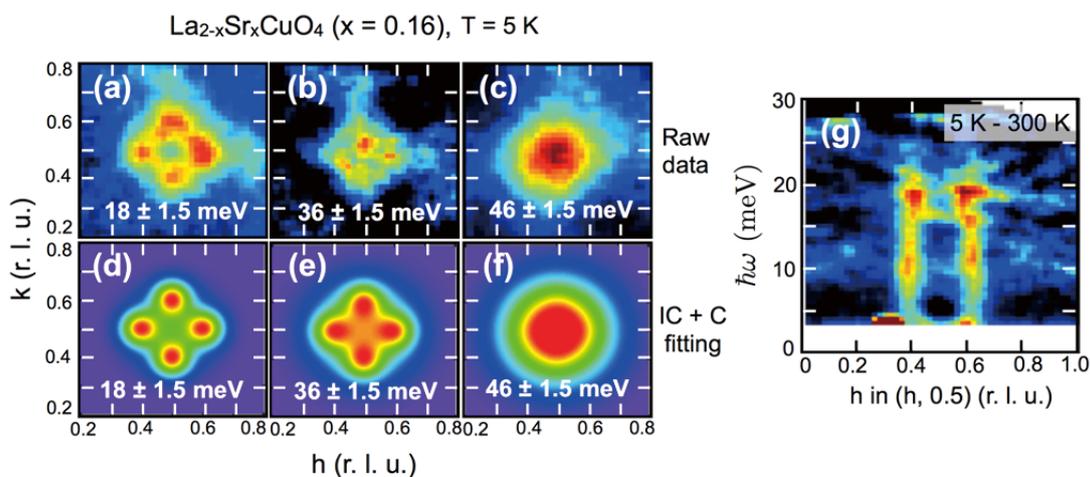


図 1: (a - c) $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x = 0.16$)における磁気励起スペクトル。エネルギー一定でスライスしている。(d - f) 格子非整合成分と格子整合成分の重ね合わせで再現したスペクトル (g) 縦軸をエネルギー、横軸を $(0.5, 0.5)$ を通る h 方向に取ったスライス。

JAEA プロジェクト研究「機能物質の構造と電子物性」
「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」合同研究会

ホールドープされたモット絶縁体の 階層的磁気励起

Masaki Fujita (藤田 全基)
IMR 東北大学金属材料研究所
Institute for Materials Research, Tohoku University



1

プロジェクト課題

- 高エネルギー励起の測定
電子ドープ効果
複眼的観測 (中性子・X線)
- 精密測定
磁気励起のエネルギー階層構造
磁気シグナルの非整合構造
- 解析の簡易化、手法の開発など
散乱強度の絶対値の導出
運動量分解能の解析的評価

2

中性子散乱による高エネルギー磁気励起の観測 超伝導体 $\text{La}_{2-x}(\text{Sr}, \text{Ba})_x\text{CuO}_4$

モット絶縁体 分散関係 強度 超伝導相

R. Coldea, PRL 2001

Hamiltonian :

$$H = J \sum_{\langle ij \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J' \sum_{\langle ij \rangle'} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J'' \sum_{\langle ij \rangle''} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$$

$$+ J_c \sum_{\langle i, i+1 \rangle} (S_i^x S_{i+1}^x + S_i^y S_{i+1}^y) - (S_i^z S_{i+1}^z) + \text{h.c.}$$

砂時計型磁気励起 J.M Tranquada 2004

3

中性子散乱による高エネルギー磁気励起の観測 超伝導体 $\text{La}_{2-x}(\text{Sr}, \text{Ba})_x\text{CuO}_4$

stripe model spiral model band model 超伝導相

Mathias/Vojta, PRL 2007 Y.J. Kao, Physica C 2000 K. Koizumi, JPSJ 2008

砂時計型磁気励起 J.M Tranquada 2004

精密測定による動的構造因子の決定で区別が可能か？

4

中性子非弾性散乱実験

「四季」分光器 試料 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, $x=0.10, 0.16$

組成x	チョッパー回転数 [Hz]	入射エネルギー: E [meV]	測定温度
0.1	250	30.1, 60.4, 177.4	5 K, 250 K
0.16	250	33.7, 71.1, 236.6	5 K, 300 K

多重中性子入射測定法
 $E_i = 45.6 \text{ meV}$ $E_i = 21.6 \text{ meV}$ $E_i = 12.6 \text{ meV}$

全体像の把握と微細構造の評価を同時に可能

マルチエネルギースタールでの階層性ダイナミクス測定に有効

5

測定結果 精密測定

2004-2009 2014 $\text{La}_{2-x}(\text{Sr}, \text{Ba})_x\text{CuO}_4$, $p \sim 0.1$

$E > E_{\text{cross}}$
 $E \sim E_{\text{cross}}$
 $E < E_{\text{cross}}$

6

測定結果 E_{cross} 近傍の磁気励起解析 低エネルギー領域における格子非整合励起

LSCO(x = 0.16) LSCO(x = 0.10)

5 K - 300 K 5 K - 250 K

格子非整合構造は低温でのみ見られる
非常に屹立した非整合励起の存在が判明

7

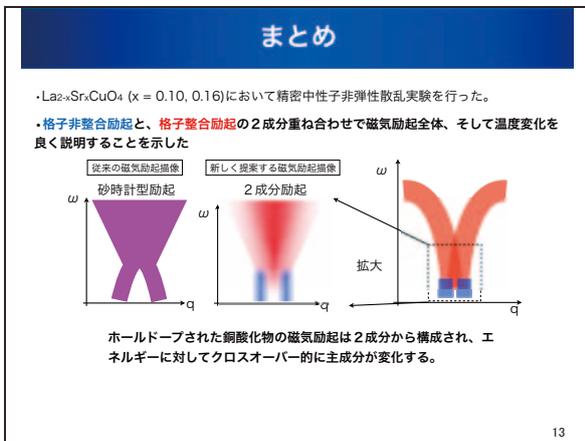
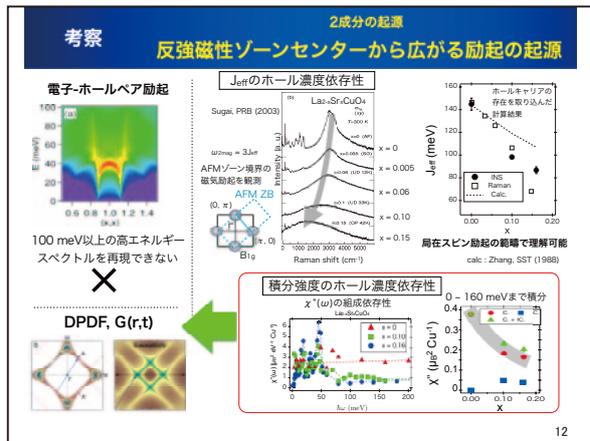
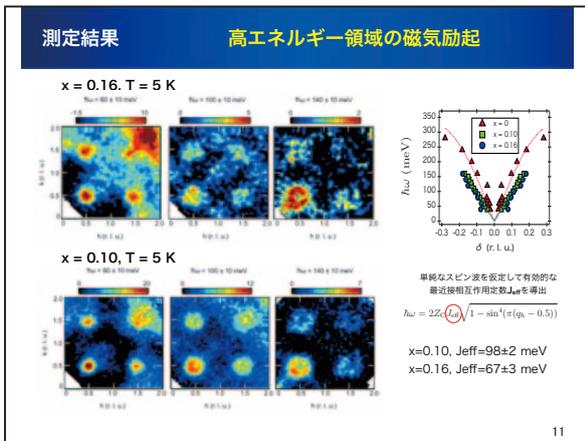
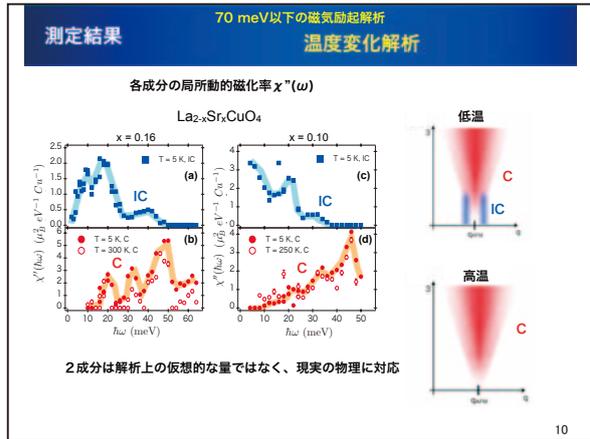
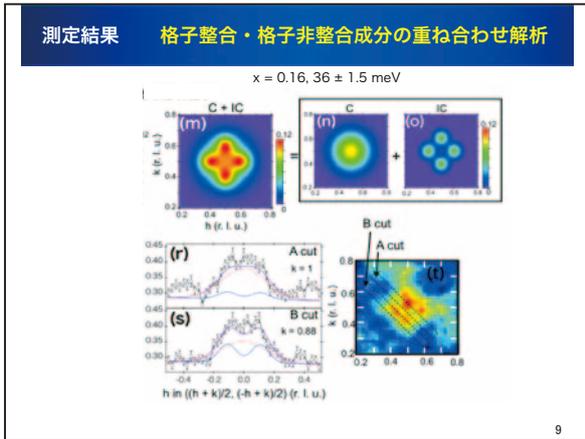
測定結果 シグナル形状の解析

x = 0.16

-C構造、IC構造の2つの成分があると仮定。
C/IC成分は高/低エネルギー領域内の傾向に従うとして、各成分の強度だけをパラメータにして再度フィッティング

高エネルギー領域 中間エネルギー領域 低エネルギー領域

8



This is a blank page.

4.5 Anomalous enhancement of the magnetic spectral weight on the optic phonon branch in the superconducting phase of LSCO

池内和彦¹, 脇本秀一², 福田竜生³, 新井正敏^{4,5}, 藤田全基⁶, 梶本亮一⁴, 川村奨⁷, 松浦直人¹, 中島健次⁴, 山田和芳⁸

¹ 総合科学研究機構 (CROSS), 東海事業センター

² 日本原子力研究開発機構, 量子ビーム応用研究センター

³ 日本原子力研究開発機構, SPring-8

⁴ 日本原子力研究開発機構, J-PARC センター

⁵ European Spallation Source

⁶ 東北大学, 金属材料研究所

⁷ 東北大学, 理学研究科

⁸ 高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所

銅酸化物高温超伝導体の磁気励起を理解することは、High- T_c 超伝導のみならず、キャリア注入された Mott 絶縁体の性質を理解する上でも重要である。キャリア注入により、磁気励起の分散関係が反強磁性スピン波から砂時計型の特徴的な構造に変化する様子がよく知られる中、その動的感受率にも 15 meV 近傍に特徴的な強度増大が見られることが、Lipscombe によって報告されている。特に、この 15 meV 構造は、磁気励起とフォノンが交わる(\mathbf{Q}, ω)点で見られており、双方の強い相関が、その原因として示唆される。

今回、BL01 四季/J-PARC で中性子非弾性散乱実験を行い、LSCO 系の磁気励起と格子振動に注目して、それらのキャリア濃度依存性を測定した。

本実験結果を基に、動的磁化率に見られた 15 meV 構造の起源について議論し、電子-フォノン結合の視点から、砂時計型磁気励起の微視的理解に向けての可能性を考察する。

References

[1] O.J. Lipscombe *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102** (2009) 167002-1.

CROSS TOKAI

金研研究会 2016年2月19日 - 20日

Anomalous enhancement of the magnetic spectral weight on the optic phonon branch in the superconducting phase of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$

季

K. Ikeuchi (CROSS), S. Wakimoto (JAEA),
 T. Fukuda (SPring-8/JAEA), M. Arai (J-PARC),
 M. Fujita (IMR/Tohoku Univ.), R. Kajimoto (J-PARC),
 S. Kawamura (Tohoku Univ.), M. Matsuura (CROSS),
 K. Nakajima (J-PARC), K. Yamada (KEK)

1

はじめに

銅酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の磁気励起

Localized → Itinerant

Layer structure: Doping independent, Strongly doping dependent

CROSS TOKAI 2

磁気励起のドーピング依存性

【低エネルギー領域】

□ ドーピングにより格子不整合に。
 □ NSC-SC相境界を境に、伝搬ベクトルが変化
 □ 格子不整合度の増加 (up to $x \sim 0.125$)

CROSS TOKAI 3

磁気励起のドーピング依存性

【高エネルギー領域】

AXES ID08 @ ESRF

Soft X-ray RIXS (Cu-L_2): $dE = 300 \text{ meV}$

磁気励起の観測 (中性子実験とも整合した結果)

□ 過剰ドーピング領域に至るまで、磁気励起の分散は、ほぼ変化無し

CROSS TOKAI 4

パルス中性子非弾性散乱実験

【直接配置型チョッパー分光器】

【4次元マッピング測定: $\chi''(\mathbf{Q}, \omega)$ 】

水平面: H-L面, 回転軸: K軸
 単結晶試料を、2.5 deg. ステップで回転

【実験配置】
 斜方晶標記 (ort): $\mathbf{Q}_{\text{mag}} = (1, 0, 0)$ など

Fermi チョッパー: 250 Hz
 Cuprates Nickelate
 $E_1 = 25.5 \text{ meV}$ $E_1 = 28.2 \text{ meV}$
 $E_2 = 48.0 \text{ meV}$ $E_2 = 56.0 \text{ meV}$
 $E_3 = 121.5 \text{ meV}$ $E_3 = 151.6 \text{ meV}$

二次元的な磁気励起 (L方向にストリーク) 一般に三次元的なフォノン分散 (スポット的)

CROSS TOKAI 5

強度の規格化

■ $x = 0.075$: 非干渉性散乱強度による絶対強度の見積もり

Intensity: $\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{2(\gamma_{\mu})^2 k_f}{\pi^2 \mu_B^2 k_i} |F(\mathbf{Q})|^2 \frac{\chi''(\mathbf{q}, \hbar\omega)}{1 - \exp(-\hbar\omega/kT)}$ ($|F(\mathbf{Q})|^2$: 異方的形状因子 $\text{Cu}^{2+} d_{3/2}$)

■ $x = 0, 0.30$: (H, K) = (1, 0.5) 位置フォノン強度を用いた強度の規格化

[H: 0.9, 1.1] [Δ L: -0.5, 0.5]
 (H, K, L)-folded

(ドメイン由来の非干渉性散乱強度の影響を避けるため)

CROSS TOKAI 6

15-20 meV のフォノンモード

【フォノン計算】

$\text{La}_{1.925}\text{Sr}_{0.075}\text{CuO}_4$, $T = 5 \text{ K}$
 [H: 0.8, 1.2] [L: 4.5, 5.5]

#1 #2 #3 #4

ブロック相の運動 CuO_2 原子のベント

八面体のツイスト 八面体のバックリング

ort歪み

□ 電荷秩序との相関を議論しうるモードは、
 #2 バックリングモードか(?)
 □ ストライプ秩序は低温正方晶(tet)相で安定化。
 揺らぎを助長する振動モード(?)

CROSS TOKAI 7

電荷フォノン結合典型例: Breathing モードとの相違

■ Stripe秩序 ($\text{La}214$)

電荷-スピンストライプ秩序 (Mott 的電荷局在)

Neutron, Breathing Phonons

Hubbard, Stripe order

□ Longitudinal optic phonon (Breathing mode) $\sim 80 \text{ meV}$
 □ Anomalous softening and broadening at $(\pi/2, 0)$
 ストライプ秩序との結合 (Kaneshita et al.)

CROSS TOKAI 8

5. S3「伝導電子と局在電子の混成効果による新しい電子相における秩序と揺らぎ」

5.1 S3 班報告

岩佐和晃¹，金子耕士²，長壁豊隆²，桑原慶太郎³

¹ 東北大学大学院理学研究科

² 日本原子力研究開発機構，量子ビーム応用研究センター

² 茨城大学大学院理工学研究科

S-3 班では、主に希土類金属化合物における f 電子とキャリアの混成効果に基づく電子相の微視的解明を試みてきた。本研究会において、プロジェクト研究で実施した以下のテーマの内容を報告する。

「多極子や重い電子的振る舞いを見せる $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ ($T = \text{Ir, Rh, and Ru}$) の基底状態」 (BL14 を用いた非弾性磁気散乱実験)

成果発表：“Well-Defined Crystal Field Splitting Schemes and Non-Kramers Doublet Ground States of f Electrons in $\text{PrT}_2\text{Zn}_{20}$ ($T = \text{Ir, Rh, and Ru}$),” K. Iwasa et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82, 043707 (2013).

「 NdB_4 における多極子秩序の研究， EuGa_4 の磁気構造決定」 (BL18 において高エネルギー中性子を用いた磁気回折測定と構造解析)

成果発表：“Single crystal neutron diffraction study of high neutron absorbing compound EuGa_4 ,” T. Kawasaki, K. Kaneko et al., JPS Conf. Proc. 1, 014009 (2014).

「 $\text{Ce}_3\text{T}_4\text{Sn}_{13}$ ($T = \text{Co, Rh}$) におけるエネルギーギャップ：電荷密度波と近藤半導体」

成果発表：「単結晶 $\text{R}_3\text{Co}_4\text{Sn}_{13}$ ($R = \text{Ce, La}$) の X 線・中性子線による研究」大友優香，岩佐和晃ほか，日本物理学会 2014 年秋季大会 9aBJ-9.

「 $\text{R}_3\text{T}_4\text{Sn}_{13}$ ($R = \text{Ce, La}$) におけるカイラル結晶構造化をともなう電子相転移の研究」大友優香 東北大学大学院理学研究科修士論文.

S3班:伝導電子と局在電子の混成効果による新しい電子相における秩序と揺らぎ

岩佐和晃¹, 金子耕士², 長壁豊隆², 桑原慶太郎³
¹東北大学大学院理学研究科, ²JAEA, ³茨城大学大学院理工学研究科

2012年4月28日~5月3日 BL14(5日間)岩佐
 多極子や重い電子の振る舞いを見せるPrT₂Zn₂₀ (T = 遷移金属元素)の基底状態
 "Well-Defined Crystal Field Splitting Schemes and Non-Kramers Doublet Ground States of f Electrons in PrT₂Zn₂₀ (T = Ir, Rh, and Ru)."
 K. Iwasa et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82, 043707 (2013).

2013年1月28日-2013年2月6日 BL14(10日間)金子
 NdB₄における多極子秩序の研究, EuGa₄の磁気構造決定
 "Single crystal neutron diffraction study of high neutron absorbing compound EuGa₄."
 T. Kawasaki, K. Kaneko et al., JPS Conf. Proc. 1, 014009 (2014).

2015年4月17日~4月22日 BL14(5日間)岩佐
 Ce₃T₂Sn₁₃ (T = Co, Rh)におけるエネルギーギャップ:電荷密度波と近藤半導体
 (2013B0173), (2015 Nov.: LLB, ILL)

多極子や重い電子の振る舞いを見せる PrT₂Zn₂₀ (T = 遷移金属元素)の基底状態

岩佐和晃, 小林拓希(東北大院理!)
 松本圭介"鬼丸孝博"高島敏郎(広島大院先端物質!)
 J.-M. Mignot, A. Gukasov (Laboratoire Léon Brillouin)

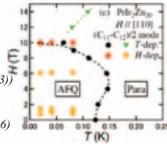
多極子秩序と2チャンネル近藤効果
 4f電子状態の同定



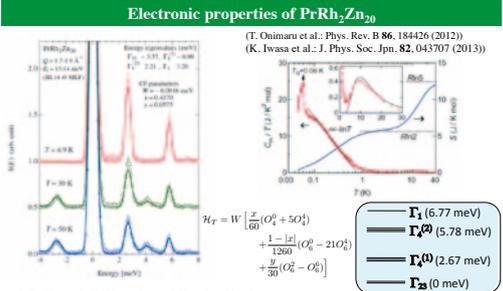
●Γ₃二重項基底
 PrIr₂Zn₂₀: 点群 T_d [Fd-3m], AFQ 秩序
 PrRh₂Zn₂₀: 点群 T

●より低対称な系
 PrRu₂Zn₂₀: 結晶場励起あり
 (K. Iwasa et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 82, 043707 (2013))

●PrOs₂Zn₂₀: フロードな磁気励起。
 (岩佐ほか: 日本物理学会2014年秋季大会 9pBK-6)



Electronic properties of PrRh₂Zn₂₀



(T. Ohnmaru et al.: Phys. Rev. B 86, 184426 (2012))
 (K. Iwasa et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 82, 043707 (2013))

$\mathcal{H}_T = W \left[\frac{2}{60}(O_x^2 + 5O_z^2) + \frac{1-|a|}{1260}(O_x^2 - 21O_z^2) + \frac{a}{30}(O_x^2 - O_z^2) \right]$

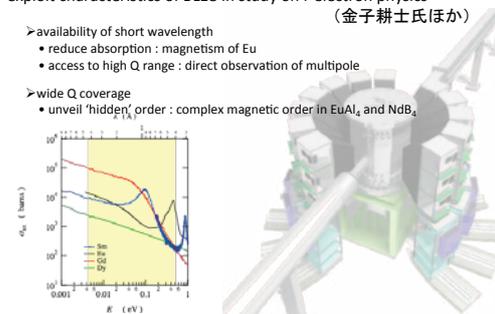
- Γ₁ (6.77 meV)
- Γ₂ (5.78 meV)
- Γ₄ (2.67 meV)
- Γ₃ (0 meV)

- C_v/T ∝ -lnT: Two-channel Kondo effect?
- Superconductivity and 4f-electron quadrupole ordering at 0.06 K
- Point symmetry T is required below the structural transition temperature, T_S ~ 140 K.
- Non Fermi-liquid behavior below 1 K.

NdB₄における多極子秩序の研究, EuGa₄の磁気構造決定
 aim of the project (金子耕士氏ほか)

exploit characteristics of BL18 in study on f-electron physics

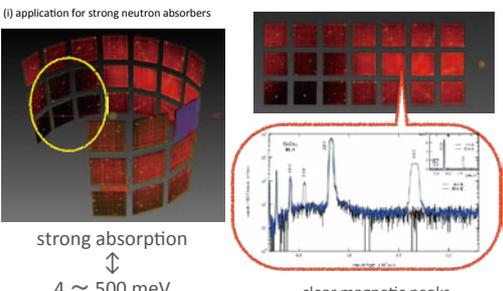
- availability of short wavelength
 - reduce absorption: magnetism of Eu
 - access to high Q range: direct observation of multipole
- wide Q coverage
 - unveil "hidden" order: complex magnetic order in EuAl₄ and NdB₄



exploit availability of short wavelength

T. Kawasaki, KK, A. Nakamura, Y. Onuki, + BL18 group (T. Kawasaki et al., JPS Conf. Proc. 2014.)

(i) application for strong neutron absorbers



strong absorption
 ↓
 4 ~ 500 meV

clear magnetic peaks

exploit availability of short wavelength

successful study on magnetism in EuGa₄

Order parameter

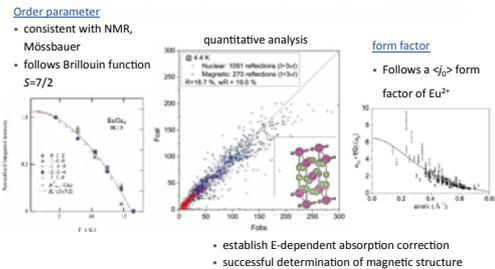
- consistent with NMR, Mössbauer
- follows Brillouin function S=7/2

quantitative analysis

form factor

- Follows a $\langle f_Q \rangle$ form factor of Eu²⁺

- establish E-dependent absorption correction
- successful determination of magnetic structure



exploit availability of short wavelength

H. Yamauchi, KK, T. Kawasaki, R. Watanuki + BL18 group

(ii) attempt for direct observation of multipoles

NdB₄: possible octupole order?

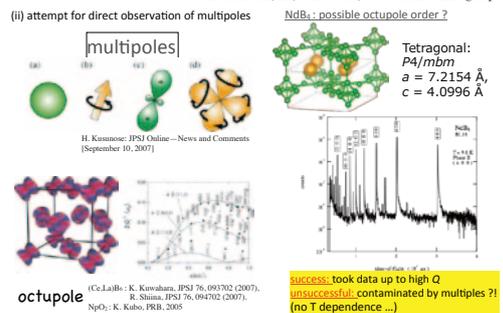
multipoles

Tetragonal: P4/mbm
 a = 7.2154 Å,
 c = 4.0996 Å

octupole

(Ce-La)Be: K. Kawahara, JPSJ 76, 093702 (2007).
 R. Shima, JPSJ 76, 094702 (2007).
 NpO₂: K. Kubo, PRB, 2005

Success: took data up to high Q
 unsuccessful: contaminated by multipoles?!
 (no T dependence ...)



5.2 $\text{Ce}_3\text{T}_4\text{Sn}_{13}$ ($T = \text{Co}, \text{Rh}$)におけるカイラル構造相転移と電子状態

大友優香¹, 巢山和哉¹, 岩佐和晃¹, 富安啓輔¹, 河村聖子², 中島健次²,
佐賀山遼子³, 佐賀山基³, 中尾裕則³, 熊井玲児³, 村上洋一³, Jean-Michel Mignot⁴,
Stéphane Raymond⁵, Paul Steffens⁵

¹ 東北大学大学院理学研究科

² 日本原子力研究開発機構, J-PARC センター

³ 高エネ機構PF, 構造物性センター

⁴ Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS Saclay

⁵ Institut Laue-Langevin

S-3 班で実施した研究テーマのうち、上記表題のトピックスを発表する。

トポロジカル絶縁体や Dirac 電子などエキゾチックな電子状態に注目が集まっている。カイラル対称な空間群では 3 次元 Weyl 電子状態が実現する可能性が指摘されている[1]。本研究では、 f 電子と伝導電子の混成によって近藤半導体の電子状態が現れていると考えられてきた $\text{Ce}_3\text{T}_4\text{Sn}_{13}$ ($T = \text{Co}, \text{Rh}$)に着目し、構造相転移によってカイラルな空間群をもつ結晶構造に相転移することを明らかにした。その構造のもとでの $\text{Ce}_3\text{Co}_4\text{Sn}_{13}$ の f 電子状態を BL14 (AMATERAS)での中性子非弾性散乱によって決定し、過去の報告[2]で解明されていなかった磁気的狀態に解釈を与えた。さらに電気抵抗が増大する 15 K 以下では、1 meV 以下の低エネルギーでスピン揺らぎが発達することを見出した。これらの特徴的な磁気的性質とカイラル格子中の電子状態の関連を考察する。

References

[1] J. L. Mañes, Phys. Rev. B **85**, 155118 (2012).

[2] A. D. Christianson et al., Physica B **403**, 909 (2008).

[3] A. D. Christianson et al., J. Magn. Magn. Mater. **310**, 266 (2007).

S3班:伝導電子と局在電子の混成効果による新しい電子相における秩序と揺らぎ

**Ce₃T₄Sn₁₃ (T = Co, Rh)における
カイラル構造相転移と電子状態**

大友優香, 奥山和哉, 岩佐和晃, 富安啓輔
東北大学大学院理学研究科

河村聖子, 中島健次
J-PARCセンター

佐賀山遼子, 佐賀山基, 中尾裕則, 熊井玲児, 村上洋一
高エネ機構PF(構造物性センター)

Jean-Michel Mignot
Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS Saclay

Stéphane Raymond, Paul Steffens
Institut Laue-Langevin

Weyl electrons in chiral structures
(J. L. Mañes, PRB 85, 155118 (2012))

$$\mathcal{H} = v\vec{\sigma} \cdot \vec{k} + O(k^2)$$

$v > 0$: right handed, $v < 0$: left handed

14₁32 14₁22

特定の空間群 → 直線的なバンドの交点が普遍的に存在
3次元バルクワイルフェルミオン:異常ホール伝導など

R₃T₄Sn₁₃ (R = La, Ce and T = Co, Rh)

[1] E. T. Thomas et al., J. Solid State Chem. 179, 1642 (2006).
[2] J. L. Hodeau et al., Solid State Comm. 42, 97 (1982).
[3] P. Bordet et al., Solid State Comm. 78, 359 (1991).

高温相 : *Pm-3n* [1]
低温相
T = Rh
12₁3, P4₂22 [2]
14₁32, I2₁3, P4₂22 [3]
カイラル格子

T = Co
構造相転移は指摘されたが、
詳細な検証はない [1]。

Ce₃Co₄Sn₁₃ and La₃Co₄Sn₁₃
(A.L. Cornelius et al., Physica B 378-380 (2006) 113, E. L. Thomas et al., J. Solid State Chem. 179 (2006) 1642.)

Ce Semiconducting
CDW at 160 K? No evidence.

Ce
 $\gamma \sim 4$ J/(mol-Ce K)
No magnetic order

La Metallic (SC)

Ce₃Rh₇Sn₁₃ and La₃Rh₇Sn₁₃
(U. Köhler et al., J. Phys.: Condens. Matter 19 (2007) 386207.)

Semiconductor?
Metallic (SC)

● Non-metallic ground state and large C_m/T of Ce₃T₄Sn₁₃ (T = Co, Rh)
→ c-f hybridization
(Kondo semiconductor?)

● CDW-like transition of both Ce₃T₄Sn₁₃ and La₃T₄Sn₁₃
→ structural instability?

$\gamma \sim 0.4$ J/(mol-Ce K)

Single-crystal structural analysis [BL-8B @ PF]

$T = 200 \text{ K} > T_D$ → $T = 30 \text{ K} < T_D$

	$\% \#$	I23	I2 ₁ 3	Im3
β	0.1499	As reported in E. T. Thomas et al., J. Solid State Chem. 179, 1642 (2006).	0.1709	0.2902
γ	0.0581		0.0559	0.2104
ζ	1.199		1.199	1.169

Collected reflcBns : 6670 Collected reflcBns : 23875

$T < T_D$

Two inequivalent Ce-ion sites characterized by the interatomic distances to the neighboring Sn.

Chiral lattice

Cage sizes
Between Ce (A) and Sn
→ 3.4328 Å in average
Between Ce (B) and Sn
→ 3.3685 Å in average

Magnetic excitation of Ce₃Co₄Sn₁₃ (powder sample, BL14@MLF)
(Y. Otomo, K. Iwasa et al., PSI meeting (September 9, 2014).)

Subtraction of data of La₃Co₄Sn₁₃ with the same amount of sample of Ce₃Co₄Sn₁₃.

$E_i = 42.0$ meV

T = 6 K T = 170 K

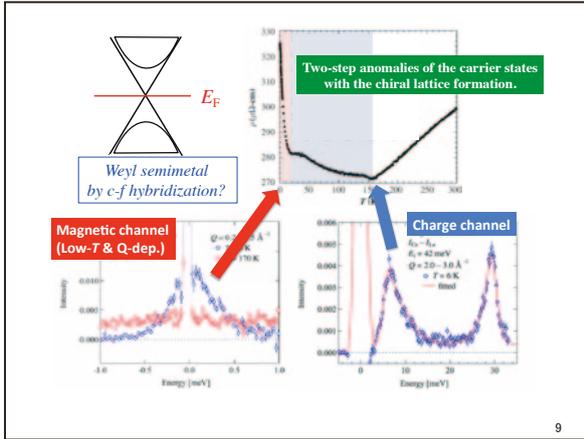
Two magnetic excitation peaks at 7 and 29 meV.

Low-E magnetic excitation of Ce₃Co₄Sn₁₃ (powder sample, BL14)

$E_i = 2.24$ meV

T = 6 K T = 170 K

Another lower-E excitation below 0.5 meV is observed at 6 K, and it is smeared out at 170 K.
Quasi-elastic or Splitting levels owing to lower symmetry or Dispersive excitation?
If the latter one, coherent c-f hybridization with magnetic correlation (w/o ordering).



Summary

- Structural instability of $R_2T_3\text{Sn}_{13}$ ($R = \text{La, Ce}$ and $T = \text{Co, Rh}$) owing to the electronic state of T and Sn is established for the Sn-flux single crystalline samples.
- The low-temperature phase is expected to be the chiral crystal lattice, $I2_13$.
- Low-energy magnetic excitations of $\text{Ce}_2\text{Co}_3\text{Sn}_{13}$ and $\text{Ce}_3\text{Rh}_3\text{Sn}_{13}$ emerge at low-temperature region with the high values of electrical resistivity.
- The Weyl semimetallic state in three-dimensional chiral lattice may be realized by the contribution of Ce $4f$ electrons to the Fermi surface via the hybridization with carrier state.

Figure 10 shows two 3D visualizations of the Fermi surface (left) and a plot of magnetic excitation (right). The magnetic excitation plot shows a peak at $E = 0$ with $E_2 - E_1 = 2.28 \text{ meV}$ and $Q = 0.2 \times 10^{-3} \text{ \AA}^{-2}$ at $T = 170\text{K}$. The number 10 is in the bottom right corner.

This is a blank page.

6. S4 「分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス」

6.1 S4 班報告

佐々木孝彦¹, 河村聖子², 松浦直人³

¹ 東北大学金属材料研究所

² 日本原子力研究開発機構, J-PARC センター

³ 総合科学研究機構(CROSS), 東海事業センター

S-4 班では、分子性有機導体が特徴的に有する分子内や分子格子の階層的な構造自由度と密接に関係した、パイ電子による分子内-分子間の電荷・スピンドイナミクスを明らかにすることを目的として、中性子非弾性散乱実験による低エネルギー格子ダイナミクスの観測を試みた。ターゲットは、電荷・スピン自由度の理解が、物性解明の重要なカギとなる量子スピン液体状態や電荷ガラス・液体状態などの非自明な電子状態を示す分子性有機導体である。このような非自明な電子状態が出現する起源としてスピン・電荷フラストレーションに加えて、大きな格子自由度と空間的に広がったパイ電子軌道との結合やドメイン・欠陥・乱れなどによる非局所的な低エネルギー励起なども提案されている。

本課題では主として BL14 アマテラス利用による非弾性散乱実験を実施し、上記のような問題に対して低エネルギーフォノンモードの観測による非自明電子状態における電荷・フォノダイナミクスの相関解明を行った。また、このような物理的重要性とともに、水素を多く含み軽元素が主たる構成元素であり、また中性子散乱実験を行う上では小さな単結晶試料しか得られない分子性有機導体における非弾性中性子散乱実験の実施可能性を探ることも本課題の重要な目的である。

当初の目的・計画に対して、十分な成果があったとは言えないが、これは非弾性中性子散乱実験としては十分な試料量が準備できなかったことに因っている。具体的に実験実施した3つの分子性有機導体（四角格子反強磁性ダイマーモット絶縁体 β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂, 三角格子反強磁性ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl, 三角格子電荷秩序-電荷ガラス θ -(BEDT-TTF)₂CsZn(SCN)₄)の結果については、河村聖子氏、松浦直人氏に報告いただく。

JAEAプロジェクト研究「機能物質の構造と電子物性」研究会
2016年3月22-23日 東北大学金属材料研究所

S4班「分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス」班報告

東北大学金属材料研究所
佐々木孝彦

1

S4: 分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス

Importance of phonon dynamics coupled with charge and spin degrees of freedom in hierarchical structure of molecular materials

バルク結晶 金属タンパク質 次世代複素系電子状態の開拓・解明へ
ヘテロ界面 電子秩序ドメイン 分子 電子
非平衡 非線形 非定常
特徴的エネルギースケール
低エネルギーフォノンダイナミクス

特徴的誘電応答(電荷液体) 量子スピン液体
Temperature (K)
Y-axis: $\chi''(T)$ EPR cross peak

協奏する分子自由度
電荷
スピン 軌道・格子

Spectroscopy investigations in molecular conductors

collective motion condensation energy transfer energy Coulomb energy
collective excitations (charge and spin) lattice phonon
domain motion individual excitations Mott gap charge order gap
dielectric Meas. NMR microwave THz optical Infrared, Raman
Inelastic neutron scattering studies in organic molecular conductors

S4: 分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス

・多くの水素を含む小さな単結晶試料

1mm

・少ない中性子実験の報告例

結晶構造解析
Schultz et al., JACS 108, 7853 (1986). D15, ILL, Grenoble
Schultz et al., PRB 33, 7823 (1986). Argonne
crystal size: ~1 mm³

非弾性中性子散乱実験 (超伝導体)
inelastic neutron scattering on SC of $\kappa-(\text{BEDT-TTF})_x\text{Cu}(\text{NCS})_2$
crystal size: ~4 mm³ (extremely large crystal...)
2T-triple axes spectrometer ORPHEE-reactor, LLB, Saclay
Pintschovius, Rietschel, Sasaki et al. EPL 37, 627 (1997)

at RT
transverse acoustic phonon

S4: 分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス

・First phonon spectra using pulsed neutrons on Organic conductors by AMATERAS. (Kawamura, Matsuura)

β' -(BEDT-TTF)₂Cl₂ Q2D AF-Mott insulator

230 crystals (ca. 1.5g)
20mm
Charge

E-Q slice, T=300K
E (meV)
optical
acoustic
5.5 6.0 6.5 7.0 7.5 8.0 8.5 (h00)

0 K 35 K 7.5 K
Energy (meV)
K (r.u.)

Optical mode at E = 4.2 meV
Integrated h, l ranges
-1.2 ≤ h ≤ 0.2
-0.2 ≤ l ≤ 0.2

S4: 分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス

電荷秩序絶縁体 θ -(BEDT-TTF)₂MZn(SCN)₂ (M=Cs, Rb)の電荷秩序・電荷ガラス状態と分子格子ダイナミクス

クーロン相互作用, 電荷フラストレーションによる電荷秩序近傍の電荷ガラス状態

スピン液体 電荷ガラス 電荷液体...?
電荷ガラスドメイン? (Kagawa et al. 2013)

AMATERAS 低エネルギー格子ダイナミクス測定
電荷ガラス・電荷液体と電荷-分子格子ダイナミクス

M=CsZn 特異な低エネルギー電子動起(~20meV) (Hashimoto, Sasaki, PRB(2014))
フィージビリティテスト ~49mg

6

多様な相互作用の拮抗状態: 電子状態の時空間構造の理解と制御

電荷/スピン液体/bad metal (if, large t)
metals/superconductivity
ダイマーモット 電荷秩序 + 分子格子イオン変位
ダイマー性 臨界点 フラストレーション, V, V'
分子性物質に特長な自由度・階層性
非線形・非一様・非平衡
非自明な電子状態 (スピン液体・電荷ガラス)
マルチスケールヘテロ時空間構造
低エネルギー非弾性中性子散乱の重要性
非周期性構造・電子系
生物物質・人口ヘテロ構造

7

6.2 ダイマーモット絶縁体 β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂におけるフォノンと電荷・スピンの関連性

河村聖子¹, 松浦直人², 井口敏³, 佐々木孝彦³, 谷口弘三⁴, 窪田愛子⁴, 佐藤一彦⁴, 稲村泰弘¹, 菊地龍弥¹, 川北至信¹, 中島健次¹

¹ 日本原子力研究開発機構, J-PARC センター

² 総合科学研究機構(CROSS), 東海事業センター

² 東北大学, 金属材料研究所

² 埼玉大学, 理学部

β' -(BEDT-TTF)₂ICl₂は、有機分子 BEDT-TTF のダイマーが形成する層とアニオン ICl₂層が交互に積層した擬2次元物質で、(BEDT-TTF)₂ダイマー上にホール($S = 1/2$)が局在したダイマーモット絶縁体である。 $T_N = 22$ K 以下で反強磁性秩序を示すことが知られているほか[1]、最近では、 $T_c = 62$ K 以下で電場誘起の部分的な電荷不均化状態(強誘電)が実現することが報告され[2]、注目を集めている。我々は、この系の電荷あるいはスピンのダイナミクスの変化に伴って起こると考えられるフォノン異常を観測するため、単結晶試料を用いて、BL14 アマテラスにおける中性子非弾性散乱測定を行った。

観測された最も低いエネルギー $E \sim 4.2$ meVのモードの強度の Q 依存性をみると、ゾーン中心でディップを示す一方でゾーン境界でエンハンスされており、反強磁性的な相関が、直接あるいは電荷を介して4.2 meVのフォノンモードに反映されていることがわかる。また、電荷の不均化を生じる温度 T_c に向かってすべての Q 領域で徐々にその強度が増加したあと、 T_N 以下で急激にエンハンスされることが明らかになった。この結果から、4.2 meVのモードは、この系の電荷およびスピンと強く結合したフォノンモードであることが示唆される。

References

- [1] M. Tokumoto *et al.*, Synth. Met. **19**, 215 (1987);
K. Yoneyama *et al.*, Synth Met. **86**, 2029 (1997).
[2] S. Iguchi *et al.*, Phys. Rev. B **87**, 075107 (2013).

JAEAプロジェクト研究「機能性物質の構造と電子物性」
「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」 合同研究会
2016.3.22-23

ダイマーモット絶縁体 β^{\prime} -(BEDT-TTF) $_2$ ICl $_2$ におけるフォノンと電荷・スピンの関連性

J-PARC 河村聖子、中島健次、稲村泰弘、菊地龍弥、川北至信
CROSS 松浦直人
東北大金研 井口敏、佐々木孝彦
埼玉大理 谷口弘三、窪田愛子、佐藤一彦

1

Organic dimer-Mott insulator β^{\prime} -(BEDT-TTF) $_2$ ICl $_2$

- > Charge-transfer metal complex
- > $S = 1/2$ (hole) is localized on each BEDT-TTF dimer
- > 2D crystal structure of alternative BEDT-TTF dimer and ICl $_2$ anion layers

ICl $_2$ anion

BEDT-TTF dimer

BEDT-TTF layer

ICl $_2$ anion layer

■ Crystal structure

Space group : P1
 $a = 12.937 \text{ \AA}$ $\alpha = 98.59^\circ$
 $b = 9.778 \text{ \AA}$ $\beta = 100.98^\circ$
 $c = 6.636 \text{ \AA}$ $\gamma = 87.19^\circ$

■ Superconductivity under pressure

$T_c = 14.2 \text{ K}$
 $p = 8.2 \text{ GPa}$

highest record among the organic charge-transfer complexes

H. Taniguchi et al., JPSJ 72 (2003) 468.

2

Physical properties

Below $T_c = 62 \text{ K}$

Glassy ferroelectricity due to charge disproportionation

Below $T_N = 22 \text{ K}$

Long-range AFM order

M. Tokumoto et al., Synth. Met. 19 (1987) 215.
 S. Iguchi et al., PRB 87 (2013) 075107_3

3

Physical properties

$T_c = 62 \text{ K}$

$T_N = 22 \text{ K}$

Temp \rightarrow

Since the molecule-based materials have a soft crystal lattice, low-energy phonons could couple with charge and/or spin dynamics.

↓

Cross-correlation between charge, spin and lattice

Aim : To investigate intriguing phonon dynamics due to strong coupling of lattice with charge disproportionation and/or AFM order in β^{\prime} -(BEDT-TTF) $_2$ ICl $_2$

4

Experimental

■ Samples
 β^{\prime} -(BEDT-TTF) $_2$ ICl $_2$ (h8)
 Single crystals ~230 pieces, 1.5 g

■ INS @ AMATERAS

$E_i = 7.7, 15.2, 42.1 \text{ meV}$
 $Q // b^*$ -axis

Project	May 2012 (1 day)	RT only	Feasibility check
Project	Jun 2012 (1.5 days)	7.5, 35, 70 K	$Q // b^*$
General	Feb 2013 (4 days)	7.5, 50, 80 K	Anisotropy ($Q // a^*, b^*, c^*$)
General	May 2013 (6 days)	7.5, 35, 70 K	4D analysis

5

Previous reports

Only three reports for inelastic neutron scattering studies on organic charge-transfer complexes using TAS

■ TEA(TCNQ) $_2$ and MNEB(TCNQ) $_2$

250 mg & 1.7 g, deuterated to 99%

K Carneiro et al., SSC 44 (1982) 959.
 J. S. Pedersen et al., J. Phys C 20 (1987) 1781.

■ k -(BEDT-TTF) $_2$ Cu $_2$ (NCS) $_2$

4 mm 3 , deuterated to 99%

L. Pintschovius et al. EPL 37 (1997) 627.

6

E-Q slice at 70 K

The optical mode at $E = 4.2 \text{ meV}$ is observed also in THz time domain spectroscopy (Itoh, Iwai et al, JPS meeting, Mar 2013)

7

E-cuts at $Q = (0, 5, 0)$ and $(0, 5.5, 0)$

70 K 35 K 7.5 K

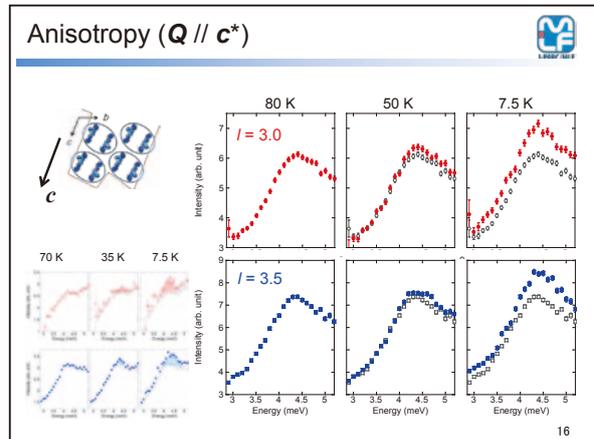
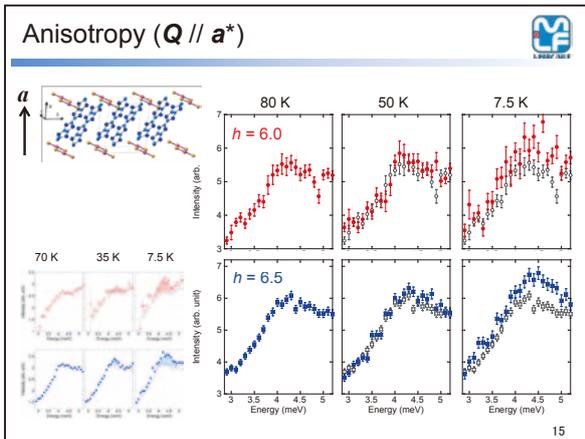
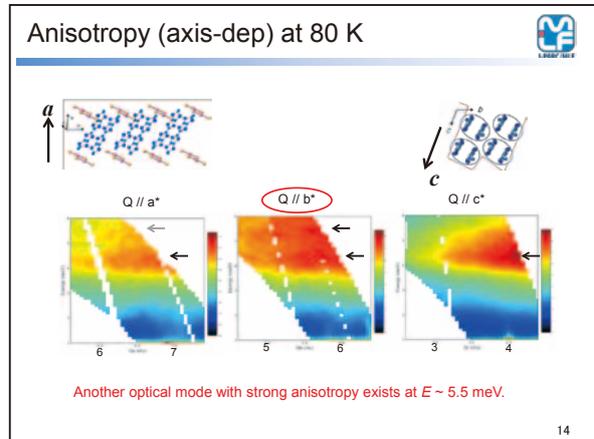
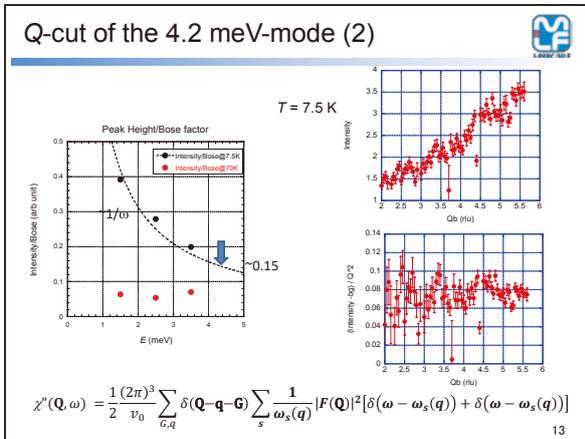
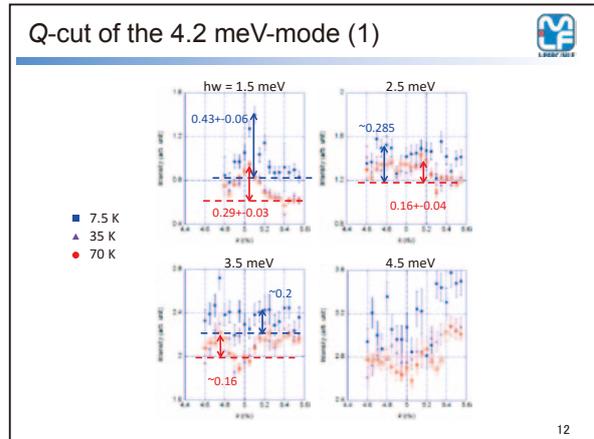
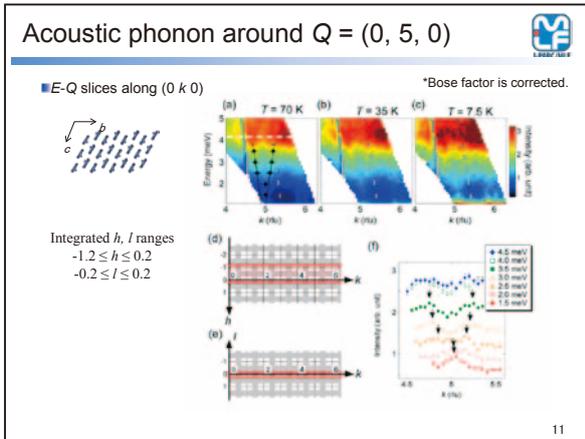
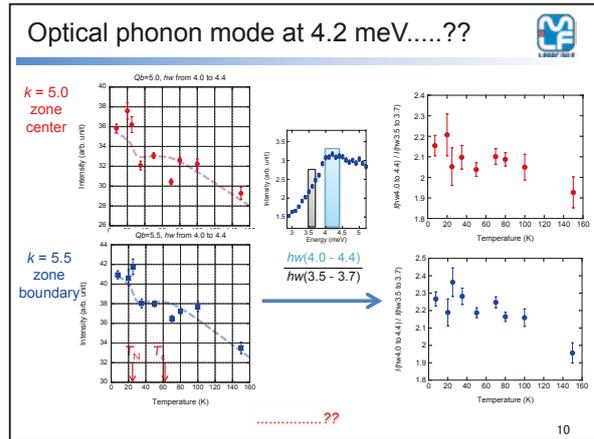
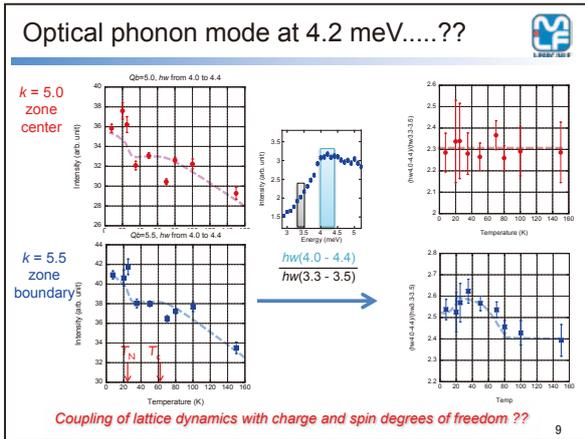
$k = 5.0$ zone center

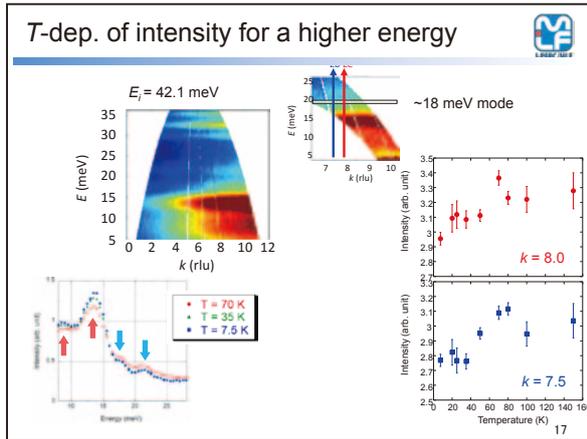
$k = 5.5$ zone boundary

- ✓ Integrated h, l ranges $-1.2 \leq h \leq 0.2$
 $-0.2 \leq l \leq 0.2$
- ✓ Bose factor is corrected

$T_{FE} = 62 \text{ K}$ $T_N = 22 \text{ K}$

8





Summary

Project	May 2012 (1 day)	Feasibility check	
Project	Jun 2012 (1.5 days)	$Q // b^*$	
General	Feb 2013 (4 days)	Anisotropy ($Q // a^*, b^*, c^*$)	now analyzing
General	May 2013 (6 days)	4D analysis	

- First observation of phonon spectra in a wide Q - E region by INS using a chopper spectrometer
- Strong coupling of the 4.2 meV-mode with the charge and spin is indicated. This mode shows period-doubled behavior.
- Another optical phonon mode with strong anisotropy may exist at $E \sim 5.5$ meV
- Even higher modes show opposite T-dep: the intensities decrease below T_c .

A full paper is now being prepared to submit as soon as possible...

6.3 反強磁性ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl の電荷-スピン-分子格子ダイナミクス

松浦直人¹, 小林亮太², 黒子めぐみ², 佐々木孝彦², Oliver Stockert³,
Benedikt Hartmann⁴, Elena Gati⁴, Jens Müller⁴, Michael Lang⁴

¹ 総合科学研究機構 (CROSS), 東海事業センター

² 東北大学金属材料研究所,

³ Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe

⁴ Goethe-Universität Frankfurt, Institute of Physics

量子スピン液体が示唆されている κ -(BEDT-TTF)₂Cu₂(CN)₃ の低温モット絶縁体状態において、最近特異な誘電応答が見出され、注目を集めている。この誘電応答は低温絶縁体状態で電気双極子が存在することを示唆しており、従来考えられてきた三角格子ダイマー内に電荷が局在秩序化したモット絶縁体描像では説明できない。この誘電異常は正負イオンの変位により電気分極が生じる通常の強誘電性と異なり、その発現に強い電子相関が関与しているため、新たな電子誘電体を創出する可能性が指摘され、また、磁性との交差応答も期待されている。これらの分子性固体では柔らかいダイマー分子構造や分子結晶構造により、スピン、格子、電荷のエネルギースケールが拮抗し、本質的に電荷-スピン-格子が複合的に絡み合っていると考えられており、電荷・スピン・格子ダイナミクスとそれらの結合を調べる事が重要である。

今回我々が中性子非弾性散乱実験を行った κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl は、低温においてスピンと電荷の両方において長距離秩序を示す物質で、電荷・格子・スピンの相関を探る上で理想的な舞台を提供している。従来、分子性有機導体は大型単結晶の育成が困難なことから、中性子散乱実験は非常に難しいと考えられてきたが、ILL の 3 軸分光器 IN8 を使用することにより、7 mg と中性子散乱実験試料としては非常に小さい試料に対しても明瞭なフォノンを観測することが出来た。更に、反強磁性揺らぎの増大する 70 K 付近からスピンの長距離秩序が生じる 27 K 付近の間において、低エネルギーの光学フォノンが過減衰を起こす事を見出し、スピン-格子間の結合を示唆するフォノン異常の観測に成功した。発表では、フォノン異常と、その温度変化から κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Cl における電荷・スピン・格子ダイナミクスの結合と今後の研究方針を議論する。

新・旧IAEAプロジェクト「機能物質の構造と電子物性」研究会@東北大金研 2016/3/22-23
 S-4班「分子性有機導体の層層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス」

反強磁性ダイマーモット絶縁体 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Clの 電荷-スピン-分子格子ダイナミクス

CROSS
CONCEPTUAL RESEARCH CENTER FOR SCIENCE AND SOCIETY

松浦 直人

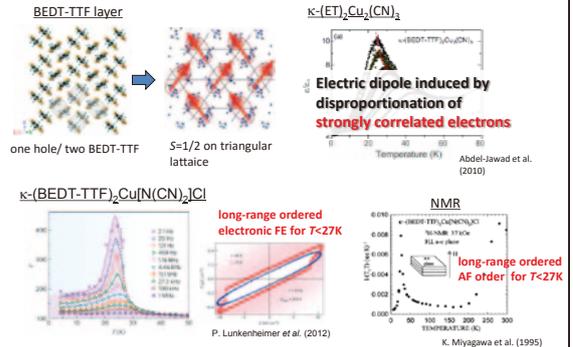
Collaborators



小林亮太¹, 黒子めぐみ¹, 佐々木孝彦¹
 Benedikt Hartmann², Elena Gati², Jens Müller², Michael Lang²
 Oliver Stockert³

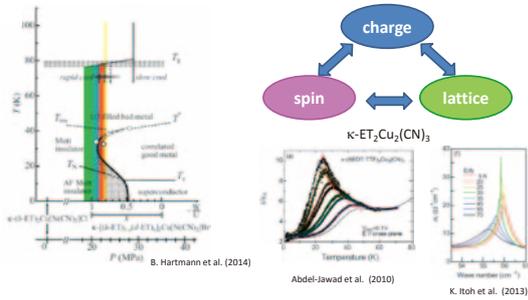
1

Electronic ferroelectricity



2

charge-spin-lattice



Aim: Reveal coupling between intermolecular charge motion and intermolecular phonons in electronic ferroelectrics

3

7. S5 「遷移金属化合物におけるスピン・軌道状態の観測」

7.1 S5班報告

鬼柳亮嗣¹, 中尾朗子², 堤健二³, 高橋美和子⁴

¹ 日本原子力研究開発機構, J-PARC センター

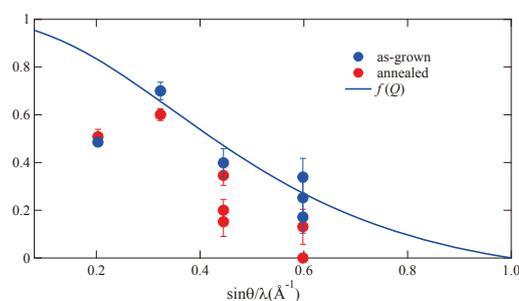
² 総合科学研究機構(CROSS), 東海事業センター

³ 東北大学金属材料研究所

⁴ 筑波大学数理

S5 班では、当プロジェクトの他の班が主としてダイナミクスの研究を行うのに対し、結晶構造や磁気構造解析により静的側面から物質の機能発現機構の研究を行った。実験は BL18 に設置されている中性子単結晶構造解析装置 SENJU を用いて行った。当装置は、無機物や低分子物質の単結晶構造解析を行うようにデザインされたものであり、白色中性子と多数の 2 次元検出器を用いることで高効率に回折データの測定を行うことが可能である。実験は 2012 年のプロジェクト開始から計 7 件行われており、主に遷移金属イオンが物性発現に大きく寄与する物質を対象とした研究が行われた。具体的には、

- (1) Pt-Mn 合金における組成と磁気構造に関する研究
- (2) 水素結合型有機強誘電体 Phz-H2ca の分極起源の解明
- (3) T'型高温超伝導体における磁気形状因子の詳細研究
- (4) Sm を含むダブルペロブスカイト型 Mn 酸化物の磁気構造と相転移の研究が行われた。それぞれの研究において、結晶構造や磁気構造の変化を捉えることに成功しており、結果は論文としてまとめる予定である。



(Pr,La)₂CuO₄ の as-grown 試料と annealed された試料の $f(Q)$ の比較

S5班 「遷移金属化合物におけるスピン・軌道状態の観測」の総括

日本原子力研究開発機構J-PARCセンター
鬼柳亮嗣

機能性物質の構造と電子物性プロジェクト研究会@金研 2016/3/15-3/16

機能性物質の構造と電子物性のチーム構成

S1班: 班長・富安啓輔(助教、東北大学理学研究科)
遷移金属元素物質のスピン・格子ダイナミクス

S2班: 班長・脳本秀一(主任研究員、日本原子力研究開発機構)
新奇超伝導体の電荷・スピン・格子ダイナミクス

S3班: 班長・岩佐和晃(准教授、東北大学理学研究科)
伝導電子と局在電子の混成効果による新しい電子相における秩序と揺らぎ

S4班: 班長・佐々木孝彦(教授、東北大学金属材料研究所)
分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス

S5班: 班長・鬼柳亮嗣(研究員、日本原子力研究開発機構J-PARCセンター)
遷移金属化合物におけるスピン・軌道状態の観測

S6班: 班長・益田隆嗣(准教授、東京大学物性研究所)
低次元量子スピン系の新規な励起状態と基底状態の解明

S7班: 班長・蒲沢和也(副主任研究員、総合科学研究機構東海事業センター)
フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究

S8班: 班長・木村宏之(准教授、東北大学多元物質科学研究所)
スピンの高次テクスチャがもたらす新奇な励起状態の探索(木村)

総括班: 佐藤正俊、加倉井和久、新井正敏、有馬孝尚、野田幸男、村上洋一、山田和芳+各班長

S5班 メンバー(発足当初)

■ S5班 メンバー(発足当初)

- 及川健一 研究員、日本原子力研究開発機構
- 田村裕良 研究員、日本原子力研究開発機構
- 金子耕二 研究員、日本原子力研究開発機構
- 川崎卓郎 博士研究員、日本原子力研究開発機構
- 大原高志 研究員、総合科学研究機構
- 中尾朗子 研究員、総合科学研究機構
- 花島隆泰 研究員、総合科学研究機構
- 宗像孝司 研究員、総合科学研究機構
- 野田幸男 教授、東北大学多元物質科学研究所
- 大村宏之 准教授、東北大学多元物質科学研究所
- 坂倉輝俊 助教、東北大学多元物質科学研究所
- 高橋美和子 准教授、筑波大学
- 大嶋建一 教授、筑波大学
- 有馬孝尚 教授、東京大学
- 佐賀山基 助教、東京大学
- 村上洋一 教授、高エネルギー加速器研究機構
- 中尾裕則 准教授、高エネルギー加速器研究機構
- 熊井玲児 教授、高エネルギー加速器研究機構
- 岩佐和晃 准教授、東北大学大学院理学研究科
- 桑原慶太郎 准教授、筑波大学大学院理工学研究科
- 金子耕二 研究員、日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門
- 長壁豊隆 研究員、日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門

S5班の活動実績

- 2012年11月5日~11月9日(4日間)高橋、鬼柳、大原、川崎
Pt-Mn合金に現れる磁気散乱の測定
- 2012年11月24日~11月28日(4日間)木村、堤、鬼柳、藤田
(Pr,La)₂CuO₄超伝導体におけるスピン電子分布の観測を行うための磁気反射の測定(1)
- 2013年1月23日~1月28日(5日間)中尾
Phz-H2calにおける強誘電相の測定
- 2013年5月17日~5月21日(4日間)堤、藤田、鬼柳、木村
(Pr,La)₂CuO₄超伝導体におけるスピン電子分布の観測を行うための磁気反射の測定(2)
- 2014年3月3日~3月7日(3日間)
Pt-Mn合金の磁気秩序の観測
- 2014年6月10日~6月14日(4日間)鬼柳、有馬、山田、佐賀山
ダブルペロブスカイト型構造SmBaMn₂O₆の磁気構造と相転移の観測
- 2015年3月29日~4月1日(3日間)高橋、鬼柳、茂吉
ABC6型Pt-Mn合金における磁気・結晶秩序の測定

「水素結合型有機強誘電体の分極起源の解明」

A. Nakao¹, R. Kumai², S. Horuchi³, Y. Tokura^{4,5}, T. Ohnara¹, T. Hanashima¹, K. Munakata¹, R. Kiyanagi²
¹CROSS, ²KEK, ³AIST, ⁴RIKEN, ⁵Univ. of Tokyo, ⁶JAEA

有機強誘電体Phz-H2caは、フェナジンとアノール酸が交互に配列した一次元水素結合鎖を形成しており、温度変化によって逐次相転移を起こす。

以下では、(1/2 1/2 1/2)の超格子反射が出現し、常誘電相の4倍の体積をもつC層格子になる。

Space group C1
a: 17.652(6), b: 7.4871(6), c: 24.881(12),
α: 90.11(3), β: 114.415(6), γ: 90.23(2), V: 2982.81(2)
Reflections: 58012, R: 12.8% (I>3σ), Twin Volume fractions: 0.558 (2): 0.442

誘電率

中性子構造解析の結果、イオン性のペアからなる水素結合鎖と中性水素鎖が交互に積層しており、プロトン移動によるイオン性が分極の起源であることが明らかとなった。

T型超伝導体(Pr,La)₂CuO₄における磁気反射の測定

堤健二、藤田全基、鬼柳亮嗣、木村宏之(金研、原研J-PARC、東北大多元研)

装置 J-PARC MLF TOF型単結晶構造解析装置「SENUJ」
波長: 0.4-4.4 Å
試料: Pr_{1-x}La_xCuO₄ (PLCO) as-grown, annealed
質量: ~1 g
測定温度: 7 K
脱酸素量: 0.055(7)

平手義孝(量子力機構鬼柳氏より)

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_0^2 N \frac{(2\pi)^2}{V_0} \sum \delta(k-Q) \exp(-2W(Q)) |F_M(Q)|^2 (1 - (Q \cdot \hat{\eta})^2)$$

$$F_M(Q) = \sum_j \frac{1}{2} g_{\alpha} <S_j> f_{\alpha}(Q) \sigma_{\alpha} \exp(iQ \cdot d)$$

N: 磁性を担うCuスピンの数
<S_j>: 秩序化モーメントサイズ
f_α(Q): 磁気形状因子

2次元PSD

白色中性子のラウエパターン

時間分解 (0, 0, l) ピーク

単結晶磁気構造解析結果と考察: 磁気形状因子(Q)の変化

Pr_{1-x}La_xCuO₄ (PLCO) (0.5, 0.5, l) 磁気形状因子

Pr_{1-x}La_xCuO₄ (PLCO) (h, 0.5, 1) 磁気形状因子

アノール処理でモーメントサイズと(h, 0.5, 1)の磁気形状因子のQ依存性が変化

考察

共有結合性の変化

少量の酸素量格子定数

CuO₂面内の酸素サイトにスピンの移る → スピン密度分布、Cuサイトのモーメントが変化

結合性が大きく変化

Magnetic structure of A-site ordered double-perovskite type manganese, LnBaMn₂O₆

鬼柳亮嗣、山田重樹、青木博、佐賀山基、茂吉武人、中尾朗子、有馬孝尚(原研J-PARC、横浜市立、KEK物構研、CROSS、東大新領域)

Ln = trivalent ion
Nominal Mn valence = 3.5
Mn³⁺: Mn⁴⁺ = 1:1

charge ↔ spin
orbital ↔ lattice

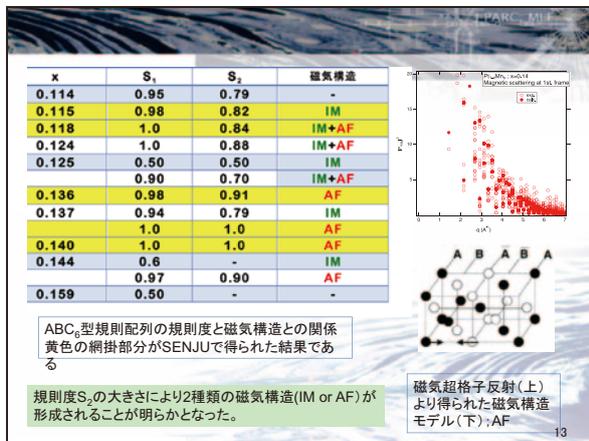
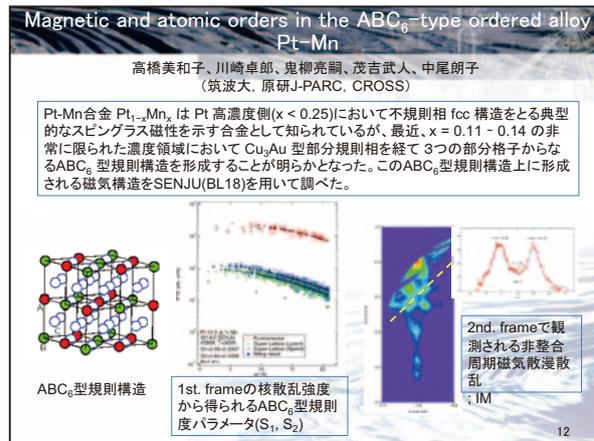
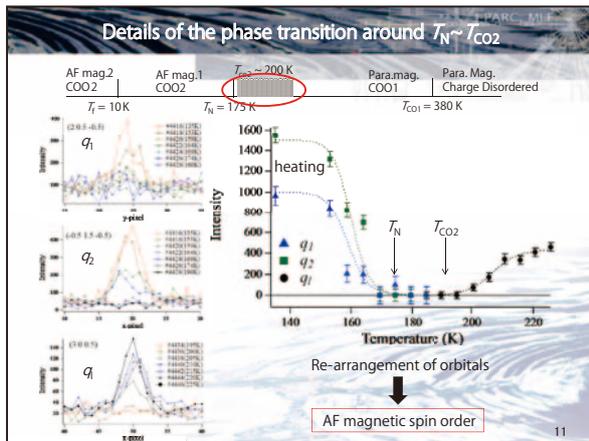
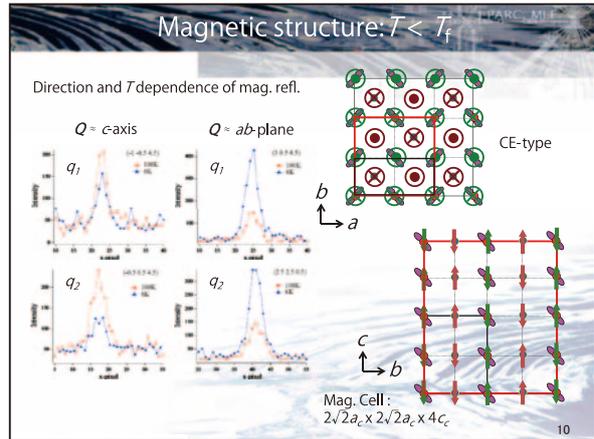
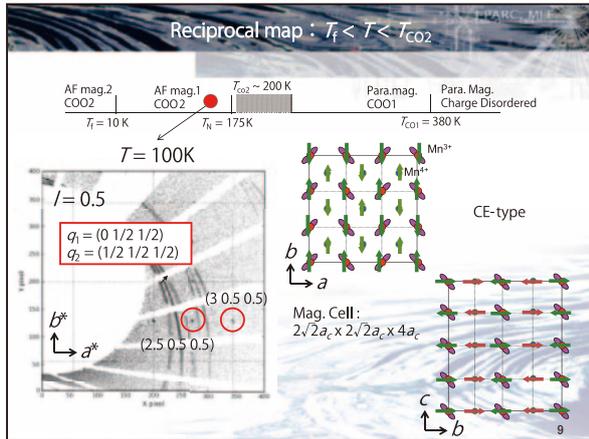
Ba layer MnO₆
Ln layer MnO₆
Ba layer MnO₆
Ln layer MnO₆
Ba layer MnO₆

S. Yamada, JPSJ **81** (2012) 113711.

* COO = Charge-Orbital ordered

AF mag.2 COO2 | AF mag.1 COO2 | Para.mag. COO1 | Para. Mag. Charge Disordered

T_i = 10 K | T_N = 175 K | T_{CO1} = 380 K



This is a blank page.

7.2 ABC₆ 型規則合金 Pt-Mn の磁気秩序と磁気励起

高橋美和子¹, 川崎卓郎², 鬼柳亮嗣², 大原高志², 河村聖子², 中島健次², 湯蓋邦夫³

¹ 筑波大数理物質

² 日本原子力研究開発機構, J-PARC センター

³ 東北大金研

Pt_{1-x}Mn_x ($x=0.11\sim 0.14$)は ABC₆ 型規則構造へ原子配列が規則化することにより多様な磁気秩序が出現する合金である。磁気構造は、ABC₆ 型の規則度の僅かな低下により fcc の type-III 反強磁秩序から遍歴電子による短範囲 SDW へと大きく変化し、その中間領域において双方の磁気相関は共存する[1]。ABC₆ 型の原子配列と磁気相関との関係を定量的に明らかにする目的で BL-18 の SENJU で、Mn 濃度を系統的に変化させた単結晶試料を用いて原子配列および磁気構造解析を行った。原子配列については 1st.frame で得られる核散乱強度を解析して ABC₆ 型構造の原子配列規則度を求めた。磁気構造は 2nd.frame で短範囲 SDW による磁気散漫散乱を観測し、また 1st.frame の磁気散乱強度を解析して type-III 反強磁秩序の磁気構造モデルを求めた。図 1 に得られた磁気構造モデルを示す。また、BL-14 の AMATERAS を用い、 $x = 0.125$ の単結晶試料について $\Delta E \leq 10\text{meV}$ で同じ (hk0) 面の非弾性スペクトルを測定した。得られた運動量エネルギー ($Q-E$) マップを図 2 に示す。スペクトルには転移点 $T_N (=20\text{ K})$ 以上 で高エネルギー側に発達する磁気励起スペクトルが観測された。

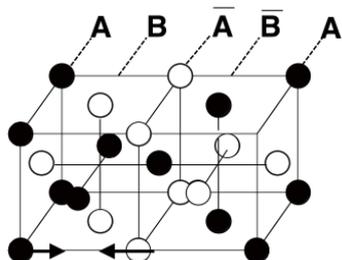


図 1 : 磁気構造モデル

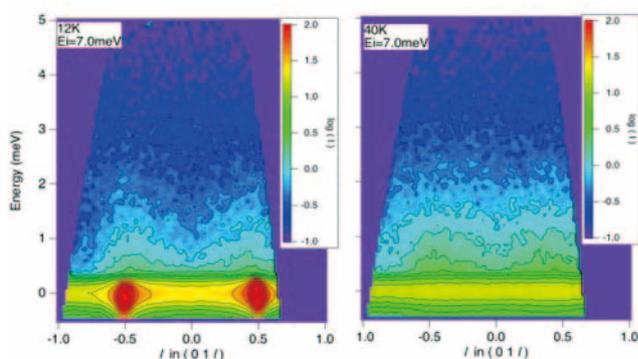


図 2 : T_N 以下 (左)、以上 (右) での磁気励起スペクトル

References

[1] M. Takahashi *et al.*, Phys. Rev. B **70**, 014431 (2004).

JAEAプロジェクト研究2016/3

ABC₆型規則合金Pt-Mnの 磁気秩序と磁気励起

Magnetic order and magnetic excitation
in the ABC₆-type ordered alloy Pt-Mn

筑波大数理物質^A、原研J-PARC^B、東北大金研^C
高橋美和子^A、河村聖子^B、中島健次^B、川崎卓郎^B、
鬼柳亮嗣^B、大原高志^B、湯蓋邦夫^C

1

ABC₆-type ordered structure

2 step ordering

Cu₃Au-type (Pm $\bar{3}m$)
○ Pt
● Pt+Mn

ABC₆-type (Fm $\bar{3}m$)
○ Pt
● Pt
● Mn

Phase diagram of Pt_{1-x}Mn_x

Temperature (K)
1473
1273
1073
873
673

Mn composition
0.0 0.1 0.2

M.Takahashi et al.; J. Phys. Soc. Jpn. 71(2002)681.

2

ABC₆-type ordered structure

2 step ordering

Cu₃Au-type (Pm $\bar{3}m$)
○ Pt
● Pt+Mn

ABC₆-type (Fm $\bar{3}m$)
○ Pt
● Pt
● Mn

ABC₆-type ordered structure of Pt-Mn

111
L
1/2 1/2 1/2
X
000 100 200
(hkk) plane

$I(X)/I(L) \sim S_1$
 $I(L)/I()$

3

Magnetic structure in Pt-Mn

$S_1=S_2=1$

commensurate magnetic long-range order

$S_2 < 1$

incommensurate magnetic short-range order

4

Magnetic order on the ABC₆-type order

magnetic superlattice reflections

$(1 \pm 1/2 \ 0)$
002
020
200
000

type-III Anti-Ferromagnetic order

$Q=(1 \pm 1/2 \ 0)$

$J_1/J_2 < J_3 < 0$ ($J_3 = 0$); very limited condition

$MnS_2(T_N=48K)$, $K_2IrCl_6(T_N=3.1K)$, $YbAs(T_N=0.58K)$

magnetic structure

$T_N \sim 20K$
● spin up
○ spin down

5

Magnetic fluctuation

magnetic diffuse scattering

$T < T_N$

Diffuse scattering around superlattice reflections

$T = T_N$

Diffuse intensities persists above T_N

$T > T_N$

Diffuse intensities include inelastic components

$\Delta E \sim 0$ meV by 4-circle diffractometer
 $\Delta E = 1.5$ meV by 3-axis spectrometer

6

Magnetic fluctuation

$T < T_N$

- Magnetic diffuse scattering above T_N
- Diffuse intensities with inelastic components
- Remnant magnetization in $\chi(T)$

Magnetic fluctuation exists in the wide region of Energy and temperature.

$T = T_N$

$\Delta E \sim 0$ meV by 4-circle diffractometer
 $\Delta E = 1.5$ meV by 3-axis spectrometer

7

Purpose

What is the origin of the magnetic fluctuation?

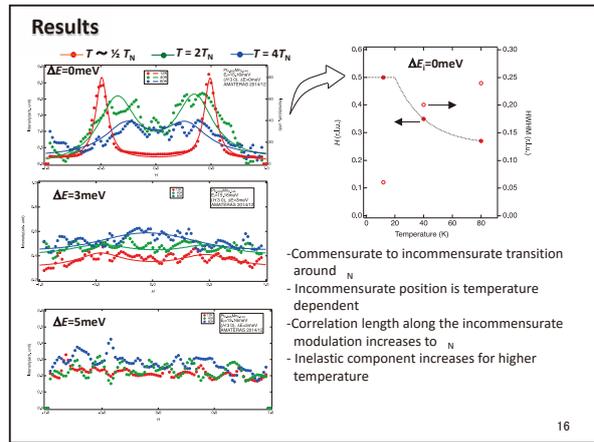
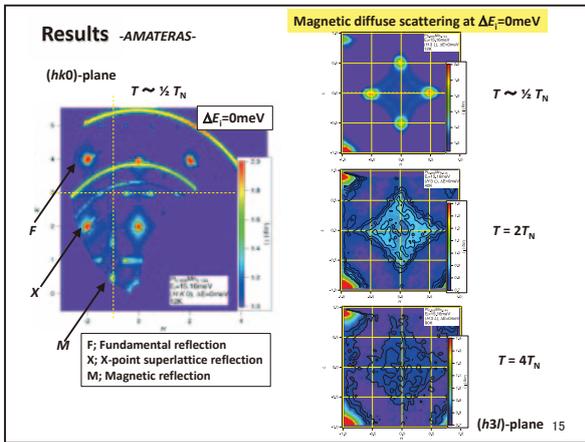
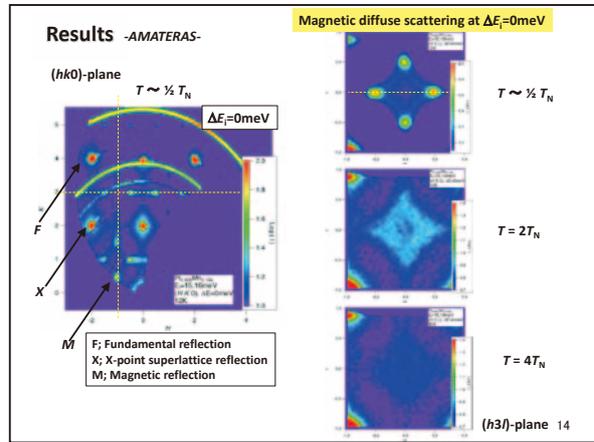
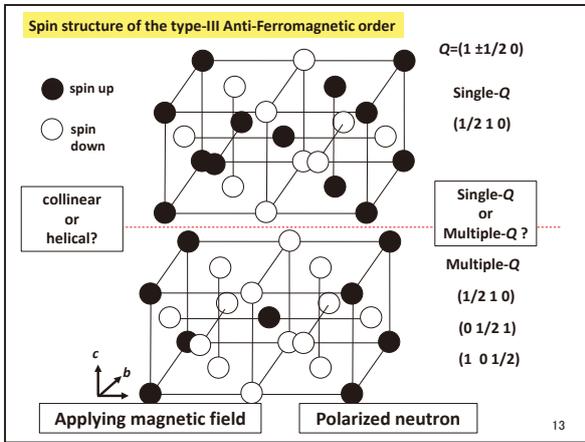
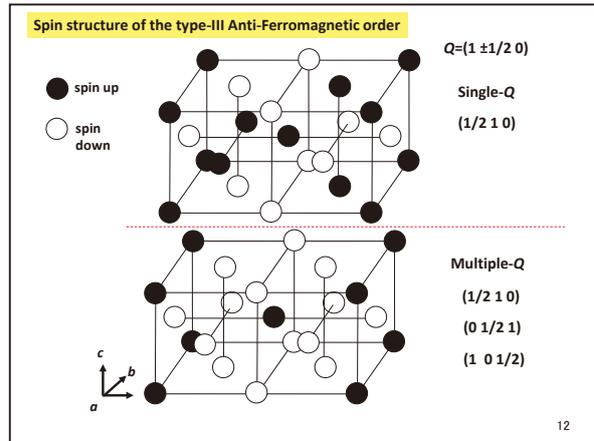
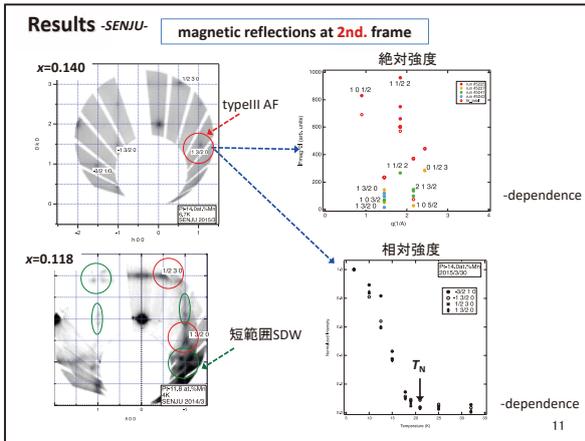
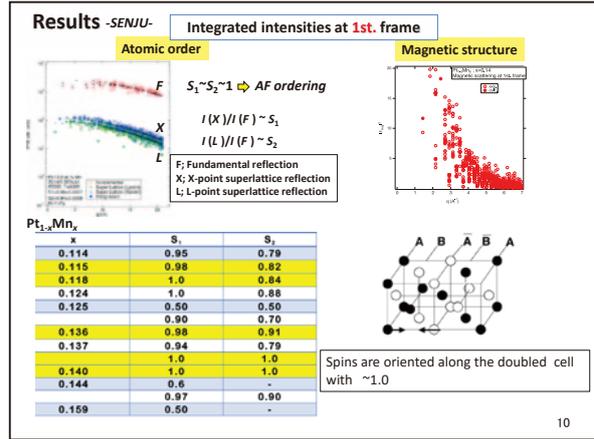
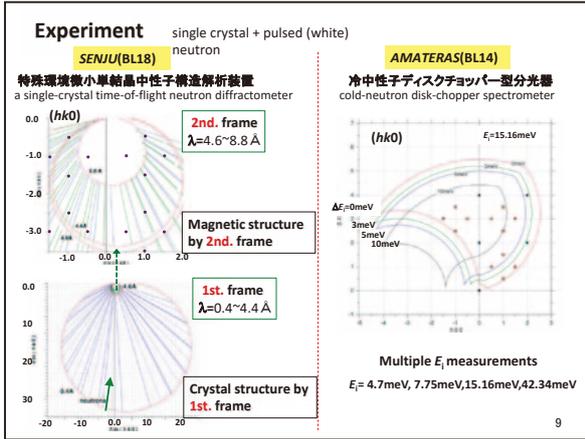
Detailed information for

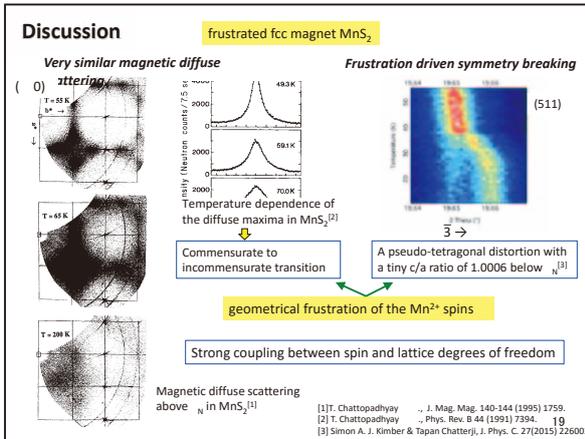
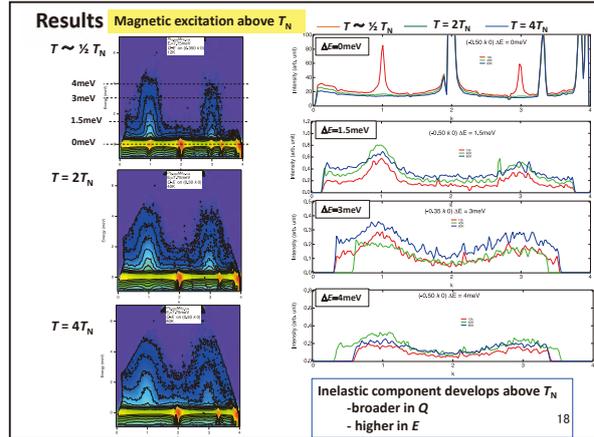
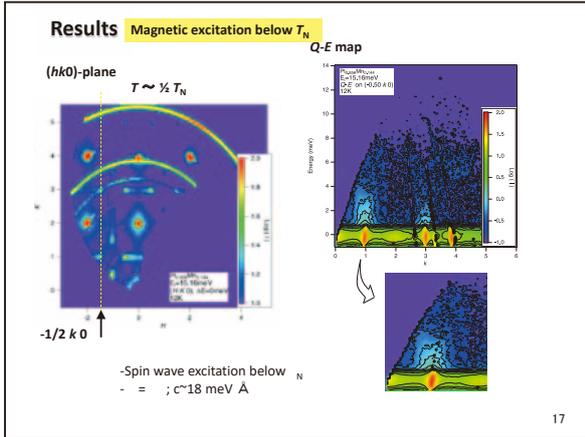
- Magnetic structure
- Magnetic excitation

Neutron scattering measurements at J-PARC

- Structural analysis for magnetic and atomic orders
- Inelastic scattering measurement for magnetic excitation

8





Plans

Further investigation for ...

- spin structure of type-III magnetic order
measurements under external magnetic field
measurements with polarized neutron
- temperature dependence of the incommensurate modulation
- a lattice distortion around T_N in Pt-Mn system

to see if the magnetic behavior is universal in the magnets with type-III order.

20

Summary

- Commensurate (Type-III AF of fcc) to incommensurate transition around T_N
Period of the incommensurate modulation decreases to T_N
Correlation length along the incommensurate modulation increases to T_N
- SW excitation is observed below T_N
- Inelastic component of the diffuse scattering develops to higher energy with broader distribution above T_N
- Very similar magnetic fluctuation is observed in MnS_2 , in which symmetry breaking driven by the fluctuation is reported.
- There is a possibility that the behavior is universal in the magnets with type-III AF order.

21

8. S6 「低次元量子スピン系の新規な励起状態と基底状態の解明」

8.1 S6 班報告

益田隆嗣¹

¹ 東京大学物性研究所

S6 班では、低次元量子スピン系の新規な励起状態と基底状態の解明を目的として、東大物性研、J-PARC センター、名古屋大、東北大、NIMS、CROSS、JAEA のバラエティに富んだ機関に所属するメンバーから構成されるグループにより、プロジェクトが推進された。2012 年度から 2014 年度にかけて、一次元フラストレート鎖 $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$ の磁気励起の測定、マルチフェロイック物質 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ の磁気励起の測定[1]、 CuGeO_3 のギャップ内励起の研究が主に AMATERAS 分光器を用いて行われ、大きな成果を上げることが出来た。

References

[1] M.Soda, M. Matsumoto, M. Mansson, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Shiina, and T. Masuda, Phys. Rev. Lett. **112**, 127205 (2014).

JAEAプロジェクト研究
「機能物質の構造と電子物性」
「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」
合同研究会

S6班 班報告

東京大学物性研究所
益田隆嗣

1

S6班: 班長・益田隆嗣
低次元量子スピン系の新規な励起状態と基底状態の解明

益田隆嗣	東京大学 物性研究所
萩原雅人	東京大学 物性研究所
左右田俊	東京大学 物性研究所
中島健次	J-PARCセンター
河村聖子	J-PARCセンター
安井幸夫	名古屋大学 理学部物理学科 (現明治大学)
長谷正司	物質材料機構
佐藤年	東北大学 多元研
南部雄介	東北大学 多元研(現東北大学金研)
池内和彦	CROSS
加倉井和久	JAEA

1. 2012年6月28日~7月2日 (3.5日間) 益田、左右田、長谷、安井、富安、河村、菊池、中島G
Rb₂Cu₂Mo₂O₈の磁気励起の測定
2. 2012年11月23日 (1日間) 益田、左右田、河村、中島G
Ba₂CoGe₂O₈の磁気励起の測定
3. 2014年5月2日~5月8日 (6日間 (実質5日間)) S6班 池内G
CuGeO₃のキヤップ内励起の研究

2

1. 中性子分光器の進歩 三軸分光器とチョッパー分光器

(1) 中性子三軸分光器

集光ビーム
Q.E空間の1点測定

3

(2) チョッパー分光器

- 中性子のエネルギーを波ではなく軸子の飛行速度で調べる
- パルス中性子源で発生した中性子をフェルミチョッパーで単色化
- サンプルまでは単色なので飛行時間は距離で決まる。
- サンプルより後は非弾性散乱の度合いによって速度がかわるので、この変化を飛行時間で調べる。
- 中性子の波数は2次元ディテクタの検出箇所が決まる

2次元検出器+飛行時間法
→効率的測定

4

(3) 実験例 三軸分光器 PSI in 2003 (Q.E)を1点ずつ測定

A. Zheludev et al., PRB **68**, 024428 (2003).

5

(3) 実験例 三軸分光器 (Q.E)を1点ずつ測定

6

(3) 実験例 三軸分光器 (Q.E)を1点ずつ測定

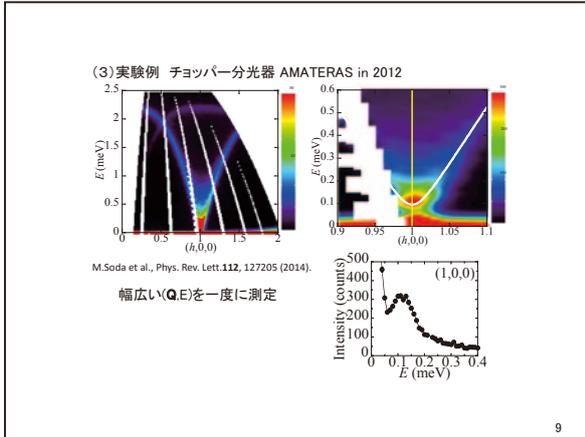
7

(3) 実験例 チョッパー分光器 AMATERAS in 2012

M.Soda et al., Phys. Rev. Lett. **112**, 127205 (2014).

幅広い(Q.E)を一度に測定

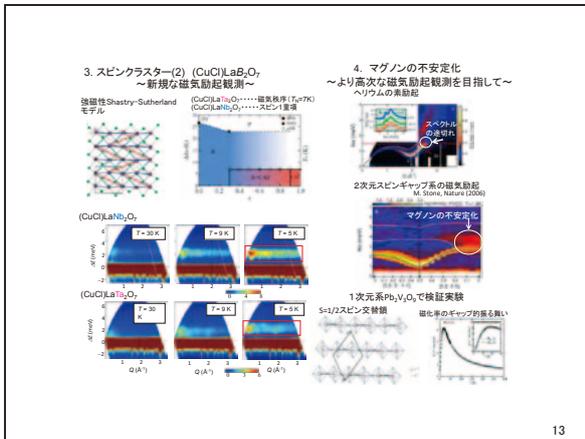
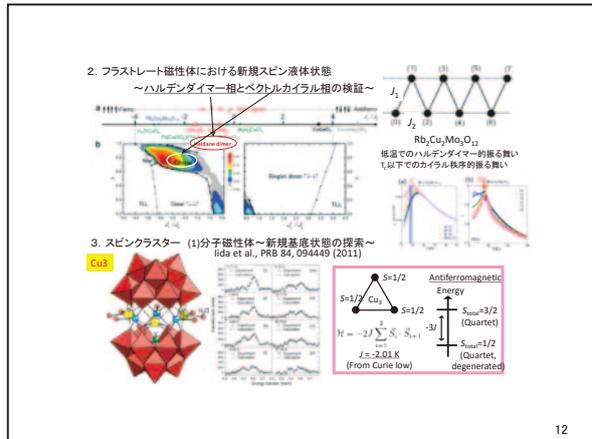
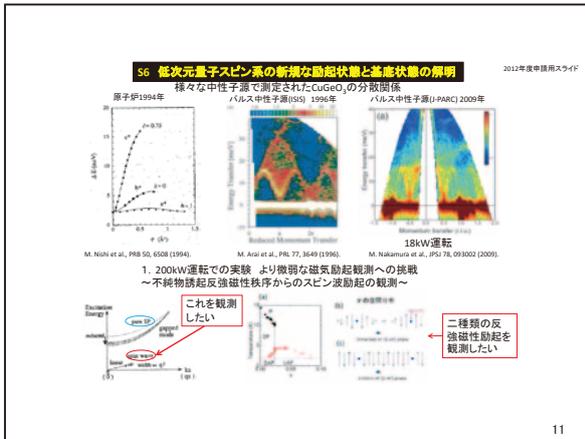
8



2012年

AMATERASに期待を胸膨らませてプロジェクト研究に参加

10



AMATERAS プロジェクト課題

M. Soda, M. Matsumoto, M. Mansson, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Shina, and T. Masuda, "Spin-Nematic Interaction in the Multiferroic Compound Ba₂CoGe₂O₇", Phys. Rev. Lett. **112**, 127205 (2014).

AMATERAS 一般課題

Minoru Soda, Yuki Honma, Satoshi Takamizawa, Seiko Ohira-Kawamura, Kenji Nakajima, Takatsugu Masuda, "Spin Model of O₂-Based Magnet in a Nanoporous Metal Complex" J. Phys. Soc. Jpn. **85**, 034717 (2016).

14

結論

AMATERASは期待を裏切らない分光器である

15

結論・要望

AMATERASは期待を裏切らない分光器であるが、しかし、最近の過当競争は何とかしてほしい

非弾性なら、BL1,12,14の複数分光器に申請することを認める、とか...

16

This is a blank page.

8.2 マルチフェロイック物質 Ba₂CoGe₂O₇におけるスピン・ネマティック相互作用

左右田稔¹, 松本正茂², M. Månsson³, 河村聖子⁴, 中島健次⁴, 椎名亮輔⁵, 益田隆嗣¹

¹ 東大物性研, ² 静岡大, ³ PSI, ⁴ J-PARC, ⁵ 新潟大

二次元反強磁性体 Ba₂CoGe₂O₇ は、磁場下において *ab* 面内の collinear 反強磁性秩序と *c* 軸方向の自発的誘電分極が同時に出現するマルチフェロイック物質である。[1,2] 磁性を担う CoO₄ 四面体に反転中心が存在しないことから、Co サイトのスピン四極子は電気分極と等価となる。このため、当該物質では誘電的性質をスピンハミルトニアンの中で解析することが可能である。また、Co イオンの局所的及び非局所的対称性の考察から、*ab* 面内の磁気異方性の最低次は、スピン四極子 $O_{XY} = \cos(2\kappa)(S^x S^y + S^y S^x) - \sin(2\kappa)((S^x)^2 - (S^y)^2)$ 間の相互作用であることが導かれる。

マルチフェロイック物質 Ba₂CoGe₂O₇ に対する中性子散乱実験を行ったところ、~0.1 meV 程度の特異な磁気異方性ギャップを観測した。Ba₂CoGe₂O₇ では、モーメントが <100> に向くと反強誘電、<110> に向くと強誘電になるため、面内で 90 度周期の磁気異方性が存在すると考えられる。我々は、スピンハミルトニアンに

$$\mathcal{H}_p = -J_p^{\text{eff}} \sum_{i,j} O_{XY}(i) O_{XY}(j) = -J_p \sum_{i,j} P^Z(i) P^Z(j)$$

の項を加えることによって、この特異な異方性ギャップを説明できることを明らかにした。この結果は、中性子実験によって多極子間の相互作用を観測していることを意味する。さらに、磁化測定においても、この磁気異方性起源のスピンフロップが観測されており、そのフロップ磁場は中性子散乱実験で観測されたギャップエネルギーと一致する。

References

- [1] H. Murakawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105** 137202 (2010).
 [2] M. Soda *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 127205 (2014).

マルチフェロイック物質 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ における
スピン・ネマティック相互作用

東大物性研^A, 静岡大^B, PSI^C, J-PARC^D, 新潟大^E
左右田稔^A, 松本正茂^B, M. Månsson^C,
河村聖子^D, 中島健次^D, 椎名亮輔^E, 益田隆嗣^A

1

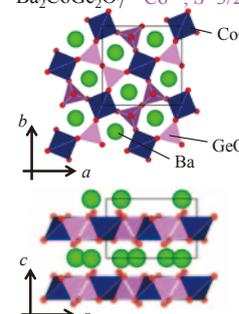
Outline

1. multiferroic property in $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$
2. magnetic anisotropy induced by multiferroic property spin-nematic (spin quadrupole) interaction
3. electric control of moment direction
4. summary

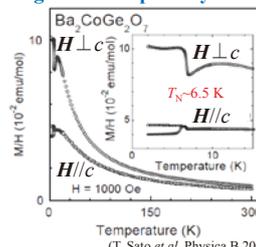
2

Introduction

$\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ Co^{2+} ; $S=3/2$



magnetic susceptibility



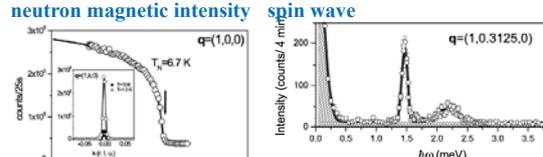
$T_N \sim 6.5 \text{ K}$

magnetic anisotropy ($g_{\parallel} \neq g_{\perp}$)
large spin-orbit coupling

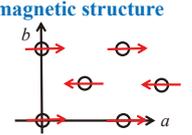
3

Introduction

neutron magnetic intensity **spin wave**



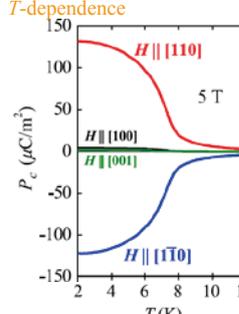
magnetic structure



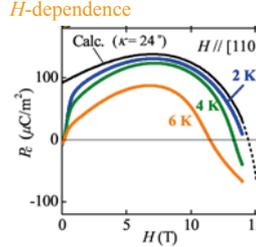
4

multiferroic property

T-dependence



H-dependence

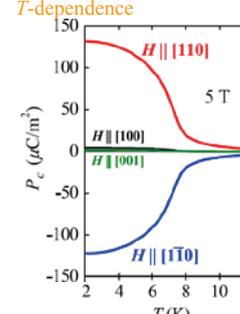


multiferroics induced by magnetic field

5

multiferroic property

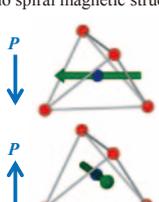
T-dependence



origin of ferroelectricity
spin dependent d-p hybridization model
(T. Arima, JPSJ 2007)

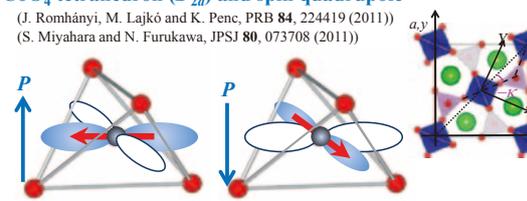
$$P \propto \sum (\mathbf{S} \cdot \mathbf{e}_i)^2 \mathbf{e}_i$$

(no spiral magnetic structure)



6

CoO₄ tetrahedron (D_{2d}) and spin quadrupole
(J. Romhányi, M. Lajkó and K. Penc, PRB **84**, 224419 (2011))
(S. Miyahara and N. Furukawa, JPSJ **80**, 073708 (2011))



CoO₄ tetrahedron of D_{2d}
absence of space inversion

polarization \Leftrightarrow spin quadrupole

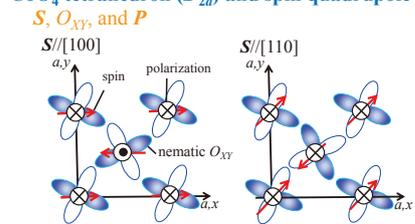
$$P^x = -K_{ab} O_{yz}, P^y = -K_{ab} O_{zx},$$

$$P^z = -K_c O_{xy}$$

spin nematic operators
 $O_{xy} = (\cos(2\kappa) O_y - \sin(2\kappa) O_x^2)$
 $O_{ab} \equiv S_a S_b + S_b S_a$
 $O_z^2 = S_x^2 - S_y^2$

7

CoO₄ tetrahedron (D_{2d}) and spin quadrupole
 S , O_{XY} , and P

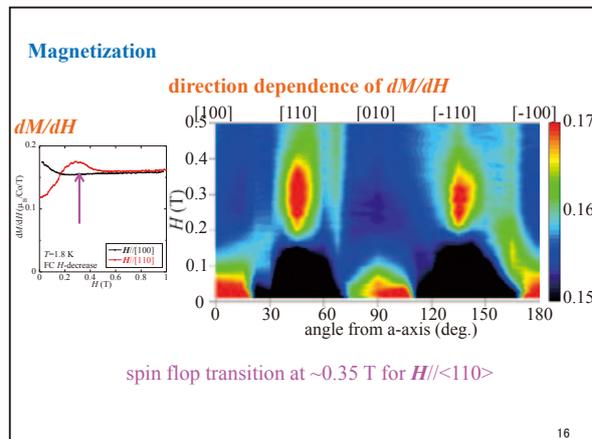
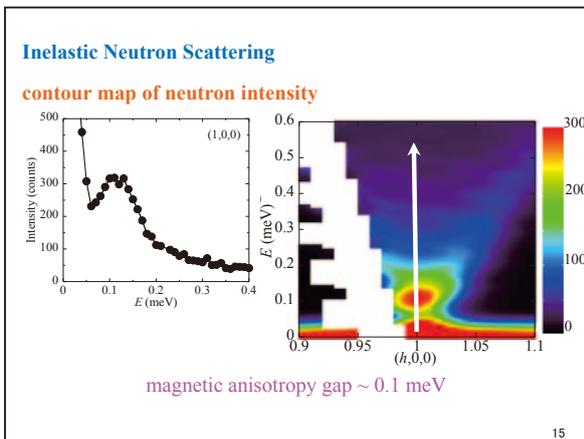
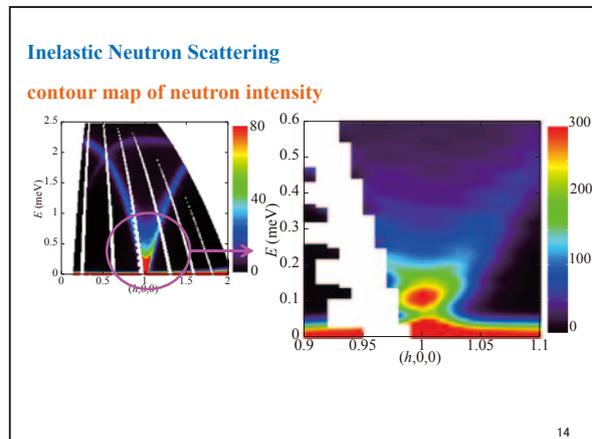
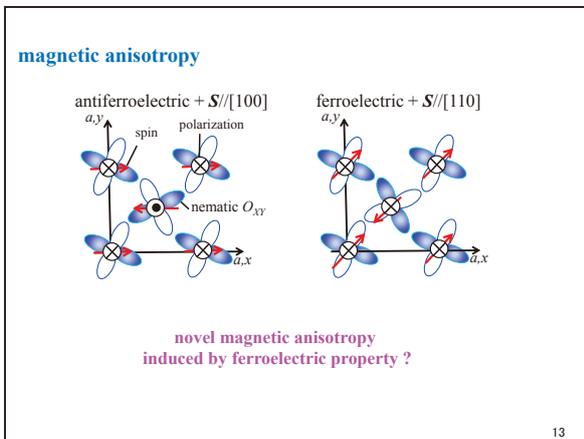
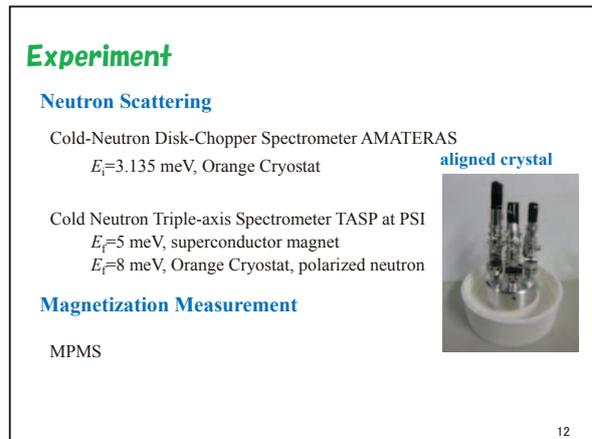
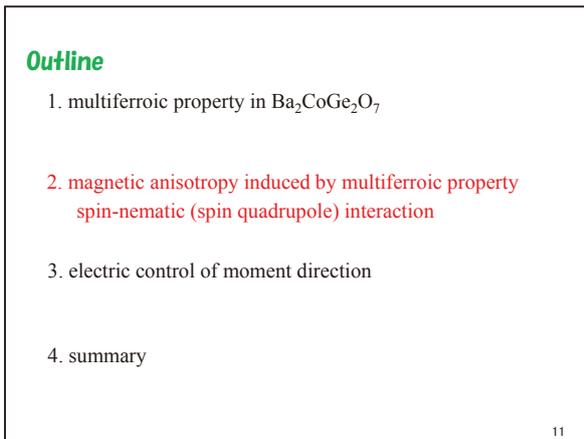
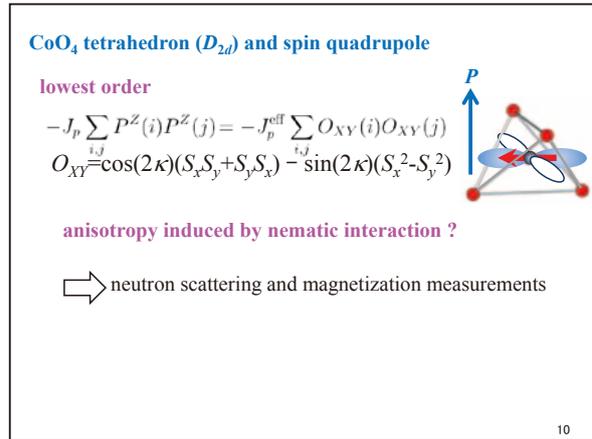
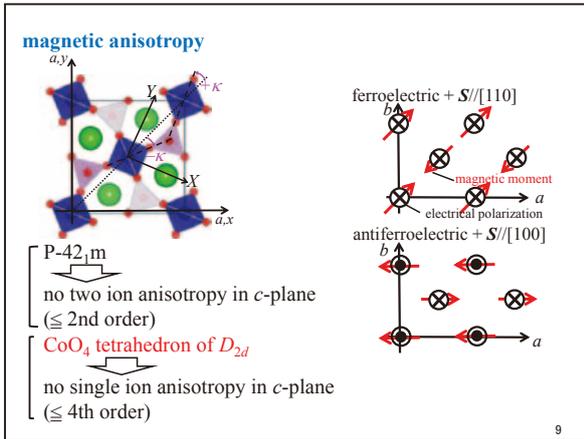


$$-J_p \sum_{i,j} P^Z(i) P^Z(j) = -J_p^{\text{eff}} \sum_{i,j} O_{XY}(i) O_{XY}(j)$$

$$O_{XY} = \cos(2\kappa) (S_x S_y + S_y S_x) - \sin(2\kappa) (S_x^2 - S_y^2)$$

spin quadrupole interaction ?

8



Energy Difference

ground state
antiferroelectric + S//[100]

excited state
ferroelectric + S//[110]

inelastic neutron scattering ; ~0.1 meV energy gap
magnetization ; spin flop transition at 0.35 T

17

Spin Hamiltonian

ground state
antiferroelectric + S//[100]

excited state
ferroelectric + S//[110]

$$\mathcal{H} = \sum J S_i \cdot S_j + D \sum S^2 - g \mu_B H \cdot \sum S - J_p \sum P_i^z P_j^z$$

$(J_p < 0)$

$$-J_p \sum_{i,j} P^z(i) P^z(j) = -J_p^{\text{eff}} \sum_{i,j} O_{XY}(i) O_{XY}(j)$$

$$O_{XY} = \cos(2\kappa)(S_x S_y + S_y S_x) - \sin(2\kappa)(S_x^2 - S_y^2)$$

18

Analyses

anisotropy gap

$-J_p^{\text{eff}} \sum_{i,j} O_{XY}(i) O_{XY}(j)$ $J_x = J_y = 0.208$ meV, $J_z = 0.253$ meV, $D = 1.034$ meV
 $J_p^{\text{eff}} = -0.198$ μeV \rightarrow anisotropy gap

19

Analyses

magnetization (dM/dH)

direction dependence of dM/dH

$-J_p^{\text{eff}} \sum_{i,j} O_{XY}(i) O_{XY}(j)$ $(J_p^{\text{eff}} = -0.198 \mu\text{eV})$ \rightarrow spin flop transition

20

Analyses

anisotropy gap

direction dependence of dM/dH

$-J_p^{\text{eff}} \sum_{i,j} O_{XY}(i) O_{XY}(j)$ $(J_p^{\text{eff}} = -0.198 \mu\text{eV})$ \rightarrow neutron results ~ magnetization consistent

21

Spin Quadrupole Interaction

$$-J_p \sum_{i,j} P^z(i) P^z(j) = -J_p^{\text{eff}} \sum_{i,j} O_{XY}(i) O_{XY}(j)$$

$$O_{XY} = \cos(2\kappa)(S_x S_y + S_y S_x) - \sin(2\kappa)(S_x^2 - S_y^2)$$

(spin quadrupole)

$J_p^{\text{eff}} = -0.198 \mu\text{eV}$
antiferro- spin quadrupole interaction

22

Outline

1. multiferroic property in Ba₂CoGe₂O₇
2. magnetic anisotropy induced by multiferroic property spin-nematic (spin quadrupole) interaction
3. electric control of moment direction
4. summary

23

Summary

neutron scattering and magnetization studies of multiferroic system Ba₂CoGe₂O₇

anisotropy of magnetic moments
originated from multipole interaction
anisotropy gap ~ 0.1 meV
spin flop transition at ~ 0.3 T for H//<110>

spin quadrupole interaction

$\rightarrow -J_p \sum_{i,j} P^z(i) P^z(j) = -J_p^{\text{eff}} \sum_{i,j} O_{XY}(i) O_{XY}(j)$

\rightarrow control of spin direction with electric field

24

8.3 スピンパイエルス系 CuGeO_3 のスピン-フォノン結合

池内和彦¹, 梶本亮一², 中島健次², 藤田全基³, 新井正敏^{2,4}

¹ 総合科学研究機構 (CROSS), 東海事業センター

² 日本原子力研究開発機構, J-PARC センター

³ 東北大学, 金属材料研究所 J-PARC センター

⁴ European Spallation Source

CuGeO_3 はスピンパイエルス系の代表例である一方で、相転移の際に、平均場の範囲では理解できない種々の異常が伴うことが知られており、スピンパイエルス物質の典型例とはいいがたい系として知られている。本研究では、磁気励起に加えて格子振動にも視点をおき、双方の温度変化から本系のスピンパイエルス状態実現に伴う両者の結合について調べた結果を紹介する。

今回、 CuGeO_3 における磁気励起、および格子振動の温度変化を調べるために、MLF/J-PARC のチョッパー型非弾性散乱分光器、四季を用いて (Q, ω)-4 次元空間における強度分布の測定を行った。特に、スピングャップ ($E_{\text{SP}} = 2.5 \text{ meV}$) 周辺の低エネルギー領域から、格子振動の状態密度 ($\sim 110 \text{ meV}$) をすべてカバーするような高エネルギー領域までの励起構造の全容を観測するために、複数の入射エネルギーを同時に利用する Multi- E_i 測定法を活用した。

スピンパイエルス転移温度 ($T_{\text{SP}} = 14 \text{ K}$) 以下から、室温までの温度変化を詳細に調べた結果、転移温度上下で des Cloizeaux Pearson モードの消失は確認できたものの、スピノン由来の連続励起は緩慢に 150 K 程度まで残ることがわかった。一方、格子振動の温度変化を調べた結果、特に鎖間方向に変位する酸素の振動モードの散乱強度が、温度変化に対して単純な Bose 因子に従わない様子を見いだした。

上記のような結果を基に、磁気励起と格子振動の温度変化の比較から、スピンパイエルス転移に伴う励起構造の変化について議論する。

CROSS TOKAI
2016年3月22日-23日 プロジェクト研究会 (東北大学研)

Spin-Peierls CuGeO₃ における 転移点近傍の磁気励起と格子振動

Neutron R&D Center, CROSS-TOKAI
Kazuhiko Ikeuchi

Masaki FUJITA (IMR, Tohoku Univ.)
Ryoichi KAJIMOTO, Kenji NAKAJIMA, Masatoshi ARAI (J-PARC)

1

01/13

Spin Peierls系 CuGeO₃

S = 1/2 1D chain
Cu²⁺ S=1/2
CuO₂ plate
Edge sharing

q=0.5

Spin Excitations
E_{sp} singlet - triplet
dCP mode
triplet - 2 spinon
continuum

$E_i = 45.6 \text{ meV}$

ω (meV)

L (r.l.u.)
[H:-1.75, 1.75] [K:-3.5, 3.5]

CROSS TOKAI 2

02/13

Spin Peierls系 CuGeO₃

S = 1/2 1D chain
Cu²⁺ S=1/2
CuO₂ plate
Edge sharing

q=0.5

Spin Excitations
E_{sp} singlet - triplet
dCP mode
triplet - 2 spinon
continuum

Archetypal

M. C. Martin et al., P.R.B. 53, 14713 (1996)

Best Fit: $a = 0.147 \pm 0.012$
Fit to $(T_C - T)^{2\beta}$, $\beta = 0.33$

CuGeO₃ No. A12
q = (0.5, 1, 0.5)

& The missing soft phonon

Energy Gap (meV)

Temperature (K)

CROSS TOKAI 3

03/13

Spin Peierls系 CuGeO₃

S = 1/2 1D chain
Cu²⁺ S=1/2
CuO₂ plate
Edge sharing

q=0.5

Spin Excitations
E_{sp} singlet - triplet
dCP mode
triplet - 2 spinon
continuum

The Second Gap

E_i = 21.5 meV

ω (meV)

L (r.l.u.) K (r.l.u.)

[H:-1.75, 1.75] [Δ K:-0.2, 0.2] [Δ L:-0.1, 0.1]

CROSS TOKAI 4

04/13

TOF-INS w/ 4SEASONS (BL-01/J-PARC)

Inelastic Neutron Scattering Excitations (magnon, phonon etc...)

Sample Vacuum Chamber
Superinsulated-Coated Guide Tube (elliptically converged)
Detectors (inside the vacuum chamber)

Phonons up to ω_0
E_i = 150 meV

1/2 Heisenberg
E_i = 45.6 meV

des Cloizeaux-Pearson
E_i = 21.5 meV

Spin Gap
E_i = 12.5 meV

4SEASONS, F₀ 200 Hz, delay = 2.0 μ s

E_i = 10 meV
E_i = 6.5 meV
E_i = 2.5 meV
E_i = 0.5 meV

CROSS TOKAI 5

10/13

ギャップ内励起/BL14-AMR

AMATERAS
E_i = 1-80 meV
 $\Delta E/E_i > 1\%$

■ 高分解能 □ 低BG □ パルス形状
⇒ 冷中性子 ⇒ Top loading ⇒ Pulse shaper

BL14 AMR, E_i = 8.38 meV, Pulse shaper: On
300 Hz - both 150 Hz - 150 Hz - 25 Hz - 25 Hz

CuGeO₃, T = 5 K

Integration Range:
[H: -0.80, 0.60]
[K: -0.30, 3.80]
[L: 0.45, 0.55]

I (a.u.)

ω (meV)

~0.5 meV

■ 弾性散乱のテイルを抑える。
■ dCPモードからのテイルを抑える。
■ BGの軽減

CROSS TOKAI 6

8.4 Magnetic excitations in quantum spin systems and frustrated magnets

—Exploiting powder sample inelastic magnetic neutron scattering investigation with TOF chopper spectrometer—

S. Ohira-Kawamura¹, K. Nakajima¹, R. Kajimoto¹, K. Iida², K. Kamazawa², A. Kitada³, Y. Tsujimoto³, H. Kageyama³, K. Kakurai⁴

¹*J-PARC Center, JAEA*

²*Comprehensive Research Organization for Science and Society (CROSS-Tokai)*

³*Graduate School of Engineering, Kyoto University*

⁴*Quantum Beam Science (QuBS) Center, JAEA*

Neutron chopper spectrometer is the best tool to investigate magnetic excitations in powder samples. Equivalent points in Q and E can be integrated so that data from all the detector points in position and time are fully utilized. Hence a very effective global investigation on magnetic excitations and thus a quick characterization of novel magnetic materials from microscopic dynamical point of view can be performed. Establishing such a method can have a great impact on the role of the neutron inelastic experiments on materials research, because it allows much more novel materials to be investigated than just using single crystal specimen.

In this presentation we report on some of the powder sample inelastic magnetic neutron scattering investigations performed within the J-PARC/MLF project proposal titled ‘Magnetic excitations in quantum spin systems and frustrated magnets.’

Magnetic excitations in quantum spin systems and frustrated magnets
 —Exploiting powder sample inelastic magnetic neutron scattering investigation with TOF chopper spectrometer—

S. Ohira-Kawamura¹⁾, K. Nakajima¹⁾, R. Kajimoto¹⁾, K. Iida²⁾, K. Kamazawa²⁾, A. Kitada³⁾, Y. Tsujimoto³⁾, H. Kageyama³⁾, K. Kakurai⁴⁾

1) J-PARC Center, Japan Atomic Energy Agency, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan
 2) Comprehensive Research Organization for Science and Society (CROSS), Tokai, Ibaraki 319-1106, Japan
 3) Graduate School of Engineering, Kyoto University, Nishikyoku, Kyoto 615-8510, Japan
 4) Quantum Beam Science (QuBS) Center, Japan Atomic Energy Agency, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

1

Temperature and Ag Doping Effect on Magnetic Excitations in the Quasi-Two-Dimensional Triangular Lattice Antiferromagnet CuCrO_2 Studied by Inelastic Neutron Scattering

R. Kajimoto et al.
 Journal of the Physical Society of Japan Vol. 79, No. 12, December, 2010, 123705

2

Quantum spin system $(\text{CuCl})\text{LaB}_2\text{O}_7$ ($B = \text{Nb, Ta}$)

■ Crystal structure ■ J_1 - J_2 model ■ Magnetic susceptibility of $(\text{CuCl})\text{LaNb}_2\text{O}_7$

H. Kageyama et al., JPSJ 74 (2005) 1702.
 A. Kitada et al., PRB 80 (2009) 174409.

$(\text{CuCl})\text{LaNb}_2\text{O}_7 \cdots$ singlet ground state
 $(\text{CuCl})\text{LaTa}_2\text{O}_7 \cdots$ AF long range order ($T_N = 7\text{K}$)

3

4

Q-E map with $E_i = 7.7\text{ meV}$ using AMATERAS

← AF Para →

5

Observation of spin excitations in $(\text{CuCl})\text{LaNb}_2\text{O}_7$ with $E_i = 7.7\text{ meV}$

Both in $(\text{CuCl})\text{LaTa}_2\text{O}_7$ and $(\text{CuCl})\text{LaNb}_2\text{O}_7$ band-like excitations around 2meV energy transfer, but subtle difference in Q dependence

6

Tassel et al. PRL(2010)

TABLE I. Structural parameters obtained from Rietveld refinement of neutron diffraction at 2 K. The goodness of the fit is indicated by the conventional structural and profile agreement factors R_{exp} , R_p , R_w , and χ^2 . P_{atom} , $a = 7.755(5)\text{ \AA}$, $b = 7.580(5)\text{ \AA}$, $c = 11.742(4)\text{ \AA}$, $R_{\text{int}} = 1.54\%$, $R_{\text{exp}} = 4.62\%$, $R_p = 3.39\%$, and $\chi^2 = 3.38$.

Atom/W	x/a	y/b	z/c	$U_{\text{eq}}(\text{Å}^2)$
Cu (4d)	(0.502(6))	(0.7662(10))	(0.5)	(0.0048(13))
Cl (4d)	(0.7367(16))	(0.4226(7))	(0.5)	(0.006(2))
La (4d)	(0.7423(13))	(0.5901(10))	(0)	(0.0024(12))
Nb (8f)	(0.500(3))	(0.7529(9))	(0.1908(3))	(0.0040(9))
O1 (4f)	(0.5)	(0)	(0.1395(13))	(0.002(3))
O2 (4c)	(0.5)	(0.5)	(0.1751(11))	(0.008(3))
O3 (8i)	(0.752(4))	(0.7599(11))	(0.1545(10))	(0.006(2))
O4 (4c)	(0.500(2))	(0.7170(14))	(0)	(0.007(2))
OS (8c)	(0.501(4))	(0.7731(11))	(0.3410(5))	(0.00089(16))

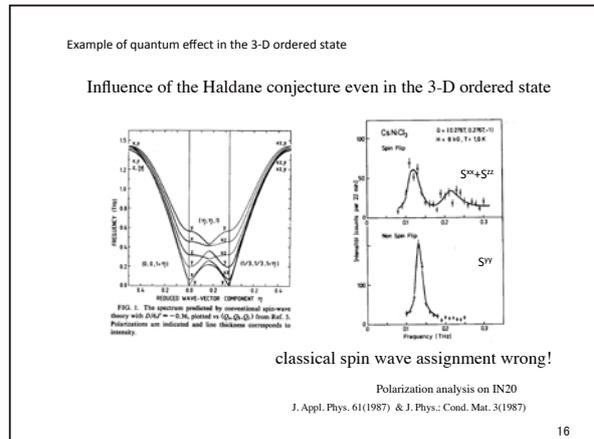
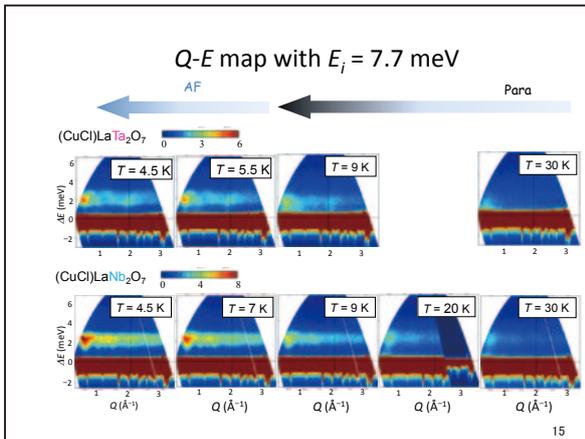
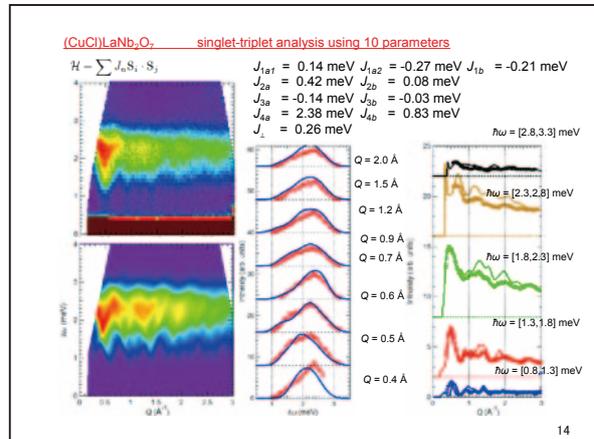
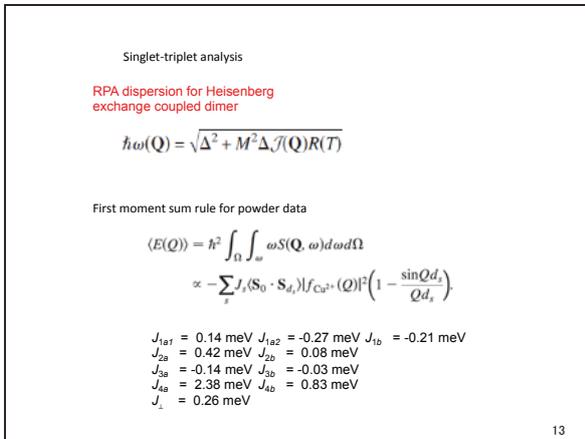
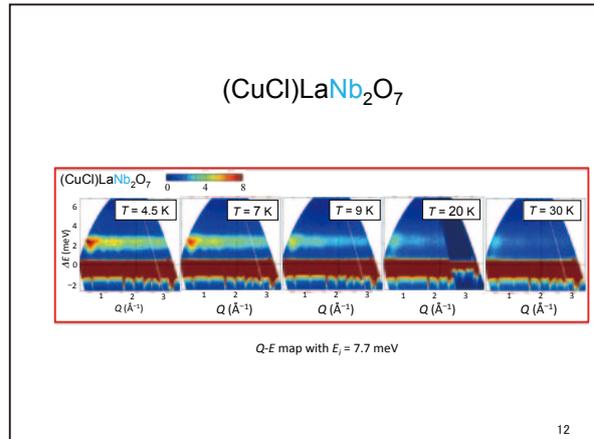
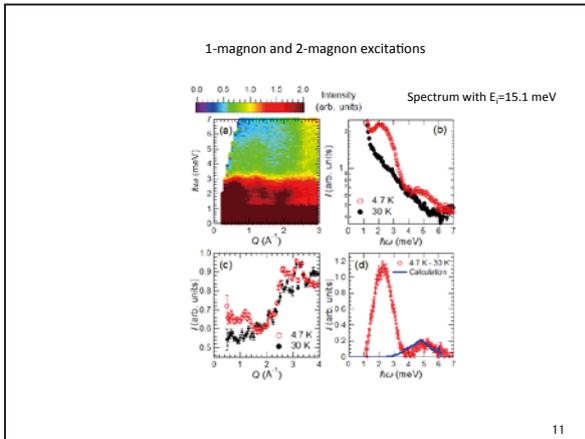
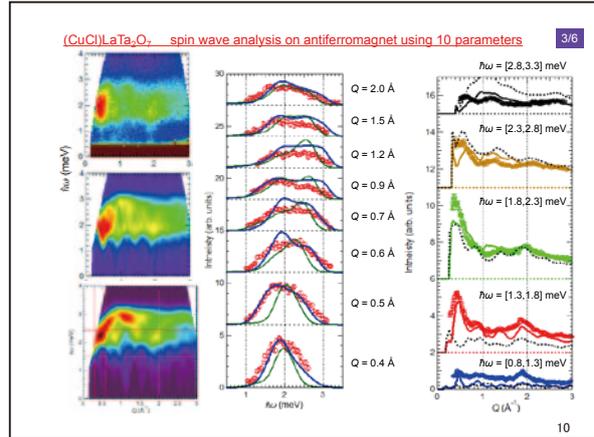
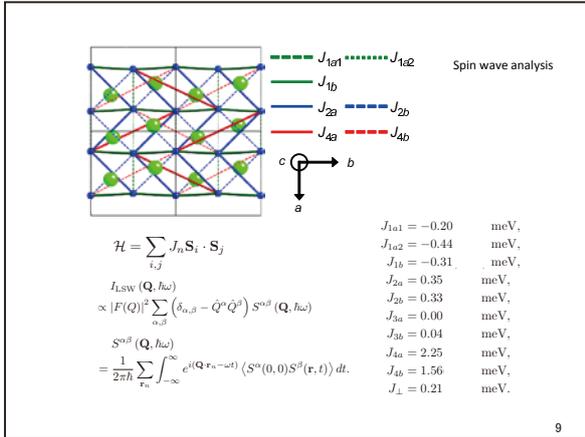
7

$(\text{CuCl})\text{LaTa}_2\text{O}_7$

← AF Para →

Q-E map with $E_i = 7.7\text{ meV}$

8



I. Affleck, PRL 62(1989)474

Using the mapping of the AF Heisenberg chain on to a (1+1)-dimensional quantum field theory lattice of coupled S=1 AF chain has been studied.

resolves the mystery of the upper mode

FIG. 2. The dispersion predicted by the present theory with $\beta = 0$. T and L label transverse and longitudinal modes.

17

$I_{\text{exp}} \propto \cos^2 a S^z(Q, \omega) + \sin^2 a S^z(Q, \omega)$ in SF scattering
 $I_{\text{exp}} \propto S^z(Q, \omega)$ in NSF scattering

Figure 3. Polar dispersions of the magnetic excitation energies at $T = 0$. (1) and (2) $Q = (0, 0, 1)$, (3) $Q = (1, 0, 1)$. The modes observed in SF and NSF are indicated by open circles and full squares, respectively. The vertical lines are guides for the eye with a slope corresponding to a dispersion splitting with $\beta = 0$.

Figure 4. Polar dispersions of the magnetic excitation energies at $T = 2.6$ and 4.2 K. (1) and (2) $Q = (0, 0, 1)$, (3) $Q = (1, 0, 1)$. The modes observed in SF and NSF are indicated by open circles and full squares, respectively. The vertical lines are guides for the eye with a slope corresponding to a dispersion splitting with $\beta = 0$.

Influence of the Haldane ground state, even in the 3D ordered regime, in particular around the quasi-1D Brillouin zone center (0,0,1).

18

Sr₂FeSi₂O₇ spin wave analysis on antiferromagnet using 3 parameters

- lattice structure: $P4_2/m$ (tetragonal), $a = 8.108 \text{ \AA}$, $c = 5.117 \text{ \AA}$
- magnetic structure: collinear AF with $\mathbf{q} = (1, 0, 0.5)$ along [110]
- Hamiltonian: $\mathcal{H} = J_1 \sum_{\langle ij \rangle} (S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y + \delta_1 S_i^z S_j^z) + D \sum_i (S_i^z)^2$
- parameter: J_1, δ_1, D
- analysis: linear spin wave

By courtesy of Dr. K. Iiida

19

Sr₂FeSi₂O₇ spin wave analysis on antiferromagnet using 3 parameters

$$\mathcal{H} = J_1 \sum_{\langle ij \rangle} (S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y + \delta_1 S_i^z S_j^z) + D \sum_i (S_i^z)^2$$

Exp. $\chi(Q, E)$ vs Q and E plot. Cal. $\chi(Q, E)$ vs Q and E plot.

$J_1 = 0.125 \text{ meV}$
 $\delta_1 = 0.65$
 $D = 0.75 \text{ meV}$

By courtesy of Dr. K. Iiida

20

Spin Fluctuation in YBaFe₂O_{7-x} with Geometrically Frustrated Pyrochlore lattice of Fe atoms

Kazuya Kamazawa, Motoyuki Ishikado, Seiko Ohira-Kawamura, Kazuhisa Kakurai, Kenji Nakajima, Yukinobu Kawakita, Kazuyoshi Yamada, Masatoshi Arai, Masatoshi Sato

Fig. 1. (color online) Crystal structure of cubic YBaFe₂O_{7-x}. The bold sticks indicate one of hexagons of Fe atoms, which is used in the Section III. The number ratio of Fe³⁺ and Fe²⁺ sites is 3:1. They form corner sharing tetrahedra. The lattice constant $a = 3.96 \text{ \AA}$.

By courtesy of Dr. K. Kamazawa

K. Kamazawa et al. JPSJ 84, 104711 (2015)

21

In the project proposal dated Feb. 2, 2009

Title: Magnetic excitations in quantum spin systems and frustrated magnets

We proposed

: Neutron chopper spectrometer is the best tool to investigate magnetic excitations in powder samples. Equivalent points in Q and E can be integrated so that data from all the detector points in position and time are fully utilized. Hence a very effective global investigation on magnetic excitations and thus a quick characterization of novel magnetic materials from microscopic dynamical point of view can be performed. Establishing such a method can have a great impact on the role of the neutron inelastic experiments on materials research, because it allows much more novel materials to be investigated than just using single crystal specimen.

We thus would like to propose a project to exploit the possibilities of inelastic magnetic investigations using powder samples of quantum spin systems and frustrated magnets. Novel and known materials will be investigated and directly compared with some of the available single crystal systems to exploit the possibilities and limits of this technique. If this project is successful, studies of excitations using powder samples will become more common and chopper spectrometers will attract many scientists and industrial researchers who want to investigate and characterize novel magnetic materials by looking at their spin dynamics.

The examples presented in this talk clearly show, that the studies of excitations using powder samples are becoming more common place and chopper spectrometers are attracting many scientists.

22

9. S7「フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究」

9.1 S7 班報告

蒲沢和也¹¹ 総合科学研究機構東海事業センタープロジェクト期間中ご参画(予定も含む)頂いたメンバーの方々
(敬称略, 所属・身分は開始当時)

加倉井和久, 副部門長, 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門

梶本亮一, 副主任研究員, 総合科学研究機構東海事業センター

北澤英明, ユニットリーダー, 独立行政法人物質・材料研究機構 先端的共通技術部門量子ビームユニット

高木英典, 教授, 東京大学大学院理学系研究科

新高誠司, 研究員, 理研

計画テーマ

蒲沢和也: R₂BaFe₄O₇ (R= Y, Lu, Ho)1147 フェライトの電荷・磁性・誘電性及びそれら相関の解明北澤英明, 加倉井和久: CePdAl, TbPdAl バナジウムスピネル系物質 AV₂O₄ のスピン及び格子ダイナミクス梶本亮一: NaCrO₂ 三角格子反強磁性体における新奇磁気励起の探索高木英典, 新高 誠司: AlV₂O₄ 金属カゴメ格子系における部分秩序状態の磁気励起

当初の計画目標: フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究

相互作用に強い競合を有するフラストレート系では自明な最適化条件が存在しないために、系は一般に不安定になりやすく、大きな揺らぎの効果が発現したり、非フラストレート系では見られない新しいタイプの熱力学的状態や相が発現する。その典型例としてスピン相互作用に競合を持つ磁性体、フラストレート磁性体、ではその磁氣的フラストレーションが強い揺らぎの効果を生み、様々な新奇の物性を示す。この強い揺らぎの本質に迫るためには、様々な量子性、次元性を持つ、起源の異なるフラストレート系の系統的なスピンドイナミクス研究が不可欠である。これまで中性子非弾性散乱を活用した詳細なスピンドイナミクスの研究は主に単結晶化が可能な物質系のみに限られて来たが、このフラストレート系の研究に粉末試料を用いた非弾性散乱実験を効率よく実施できる中性子飛行時間分光法を活用した実験手法を確立して、新規物質における従来と異なる励起状態の探求をより簡便化して、より高精度な単結晶実験に効率よく継続、進展させる研究手法をこのプロジェクト課題の枠組みの中で確立することにより、フラストレート系の研究に大きく貢献できると思われる。

プロジェクト期間中の使用ビームタイム及び課題名

Total 8 日 (BL14 AMATERAS)

内訳: 2012B 期 ・ YBaFe₄O₇ の磁気励起の測定
2013 年 2 月 6 日～ 2 月 11 日 (5 日間) 蒲沢、河村 G
2014A 期 ・ スピンフラストレート系 HoBaFe₄O₇ の磁気励起の測定
2014 年 11 月 14 日～11 月 17 日 (3 日間) 蒲沢、河村 G

ビームタイムを基にした成果: 国内学会発表・国際会議発表

日本物理第 69 回年会, 於東海大, 2014/3/27-/30

スピンフラストレート系 YBaFe₄O₇ の磁気励起-中性子散乱による-, 蒲沢和也, 石角元志, 河村聖子, 川北至信, 加倉井和久, 新井正敏, 山田和芳, 中島健次, 佐藤正俊

日本物理 2015 秋期大会, 於関西大, 2015/9/16-/19

スピンフラストレート系 HoBaFe₄O₇ の磁気励起-中性子散乱による-, 蒲沢和也, 石角元志, 河村聖子, 川北至信, 加倉井和久, 中島健次, 佐藤正俊

第 15 回日韓中性子科学会議, 於釜山, 2016/1/6-/8

Substitution effect on magnetic excitation of R₂BaFe₄O₇ (R=Y, Ho) spin frustrated system —Inelastic neutron scattering—, K. Kamazawa, M. Ishikado, S. Ohira-Kawamura, Y. Kawakita, K. Kakurai, K. Nakajima, and M. Sato
量子ビームサイエンスフェスタ(第 7 回 MLF シンポジウム), 於エポカルつくば, 2016/3/14-/16Substitution effect on magnetic excitation of R₂BaFe₄O₇ (R=Y, Ho) spin frustrated system —Inelastic neutron scattering—, K. Kamazawa, M. Ishikado, S. Ohira-Kawamura, Y. Kawakita, K. Kakurai, K. Nakajima, and M. Sato

論文:

Spin Fluctuation in YBaFe₄O_{7+δ} with Geometrically Frustrated Pyrochlore Lattice of Fe Spins,Kazuya Kamazawa, Motoyuki Ishikado, Seiko Ohira-Kawamura, Kazuhisa Kakurai, Kenji Nakajima, Yukinobu Kawakita, Kazuyoshi Yamada, Masatoshi Arai, and Masatoshi Sato, Journal of the Physical Society of Japan **84**, 104711 (2015)HoBaFe₄O₇, in preparation

S-7班 報告 班長・蒲沢和也(副主任研究員, 総合科学研究機構東海事業センター)
プロジェクト期間中ご参画(予定含む)頂いたメンバーの方々(敬称略, 所属・身分は開始当時)
 加倉井和久, 副部門長, 日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門
 橋本亮一, 副主任研究員, 総合科学研究機構東海事業センター
 北澤英明, ユニツリーダー, 独立行政法人物質・材料研究機構 先進的共通技術部門量子
 ビームユニット
 高木英典, 教授, 東京大学大学院理学系研究科
 新高 誠司, 研究員, 理研

当初の計画目標: フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起, ダイナミクス研究
 相互作用に強い結合を有するフラストレート系では自明な量子化条件が存在しないため
 に, 系は一般に不安定になりやすく, 大きな揺らぎの効果が発現したり, 非フラストレート系
 では見られない新しいタイプの熱力学的状態や相が発現する。

その典型例としてスピン-相互作用に結合を持つ磁性体, フラストレート磁性体, ではその
 磁気的フラストレーションが強い揺らぎの効果を生み, 様々な新奇の物性を示す。この強い
 揺らぎの本質に迫るためには, 様々な量子性, 次元性を持つ, 起源の異なるフラストレート系
 の系統的なスピンドイナミクス研究が不可欠である。

これまで中性子非弾性散乱を活用した詳細なスピンドイナミクスの研究は主に単純晶
 化が可能な物質系のみに限られて来たが, このフラストレート系の研究に物未試料を用いた
 非弾性散乱実験を効率よく実施できる中性子飛行時間分光法を活用した実験手法を確立し
 て, 新系物質における従来と異なる励起状態の探求をより高度化して, より高精度な単純晶
 実験に効率よく継続, 進展させる研究手法をこのプロジェクト課題の枠組みの中で確立する
 ことにより, フラストレート系の研究に大きく貢献できると思われる。

1

S7: フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起, ダイナミクス研究

2

S7: フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起, ダイナミクス研究

3

プロジェクト期間中の使用ビームタイム及び課題名

Total **8日** (BL14 AMATERAS)

内訳:

2012B期 ・YBaFe₂O₇の磁気励起の測定
 2013年 2月 6日～ 2月 11日(5日間) 蒲沢, 河村G

2014A期 ・スピンドイナミクス系HoBaFe₂O₇の磁気励起の測定
 2014年11月14日～11月17日(3日間) 蒲沢, 河村G

4

ビームタイムを基にした成果:

論文:

- Spin Fluctuation in YBaFe₂O_{7-x} with Geometrically Frustrated Pyrochlore Lattice of Fe Spins, Kazuya Kamazawa, Motoyuki Ishikado, Seiko Ohira-Kawamura, Kazuhisa Kakurai, Kenji Nakajima, Yukinobu Kawakita, Kazuyoshi Yamada, Masatoshi Arai, and Masatoshi Sato, Journal of the Physical Society of Japan 84, 104711 (2015)
- HoBaFe₂O₇, *In preparation*

国内学会発表・国際会議発表

- 日本物理第69回年会, 於東大, 2014/3/27-30
- スピンドイナミクス系YBaFe₂O₇の磁気励起-中性子散乱による-, 蒲沢和也, 石角元志, 河村聖子, 川北至信, 加倉井和久, 新井正敏, 山田和芳, 中島健次, 佐藤正俊
- 日本物理2015秋期大会, 於関西大, 2015/9/16-19
- スピンドイナミクス系HoBaFe₂O₇の磁気励起-中性子散乱による-, 蒲沢和也, 石角元志, 河村聖子, 川北至信, 加倉井和久, 中島健次, 佐藤正俊
- 第15回中性子科学会議, 於釜山, 2016/1/6-8
- Substitution effect on magnetic excitation of RBaFe₂O₇ (R=Y, Ho) spin frustrated system — Inelastic neutron scattering —, K. Kamazawa, M. Ishikado, S. Ohira-Kawamura, Y. Kawakita, K. Kakurai, K. Nakajima, and M. Sato
- 量子ビームサイエンスフェスタ(第7回MLFシンポジウム), 於エポカルつくば, 2016/3/14-16
- Substitution effect on magnetic excitation of RBaFe₂O₇ (R=Y, Ho) spin frustrated system — Inelastic neutron scattering —, K. Kamazawa, M. Ishikado, S. Ohira-Kawamura, Y. Kawakita, K. Kakurai, K. Nakajima, and M. Sato

5

9.2 フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究

K. Kamazawa¹, M. Ishikado¹, S. Ohira-Kawamura², Y. Kawakita², K. Kakurai³, K. Nakajima², and M. Sato¹

¹Comprehensive Research Organization for Science and Society (CROSS), Tokai, Ibaraki 319-1106, Japan,

²J-PARC Center, JAEA, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

³Quantum Beam Science Center, JAEA, Tokai, Ibaraki 319-1195, Japan

A cubic ferrite RBaFe_4O_7 ($\text{R} = \text{Y, Lu, In, Sc, Dy, Ho, Yb, etc.}$) takes mixed valence state of Fe^{2+} and Fe^{3+} with a number ratio of 3 : 1, and Fe spins form a 3D network of corner-sharing tetrahedra. The magnetic susceptibility of RBaFe_4O_7 ($\text{R}=\text{Y}$ and Ho) indicates antiferromagnetic spin interaction in the system, suggesting geometrically frustrated. Systems with small R ions so far investigated keep cubic symmetry to the temperature (T) = 4K without having anyone of charge ordering and Jahn-Teller distortion of Fe^{2+} .

In our recent result of $\text{YBaFe}_4\text{O}_{7-\delta}$, [1] the observed neutron scattering (AMATERAS (BL14) at MLF of J-PARC) intensity map in the energy (ω)–wave vector (Q) space (See Fig. (a)-(c)) shows a streak magnetic scattering, extending to a rather high- ω region (up to 80 meV at least, SIKI(BL01) MLF J-PARC) at the Q position of $Q_p \sim 1.25\text{\AA}^{-1}$, where the width κ and position Q_p of the streak are found to be insensitive to both T and ω , in addition to the quasielastic scattering at $Q = Q_p$. The streak indicates the existence of the short-time spin correlation of Fe hexagons in the pyrochlore lattice, and can be understood by considering the spin fluctuation arising from the purely frustrating nature of three-dimensional classical insulating system of $\text{YBaFe}_4\text{O}_{7-\delta}$.

On the other hand in $\text{HoBaFe}_4\text{O}_7$, the streak scattering is observed obscurely, and dispersionless excitations appear at 10, 15 and etc., which are considered to be spin wave within a hexagon spin cluster, in addition to the crystal field excitations at $\omega \sim 0.8$ and 2.5meV. (See Fig. (d)-(f))

References

[1] K. Kamazawa, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn **84**, 104711 (2015)

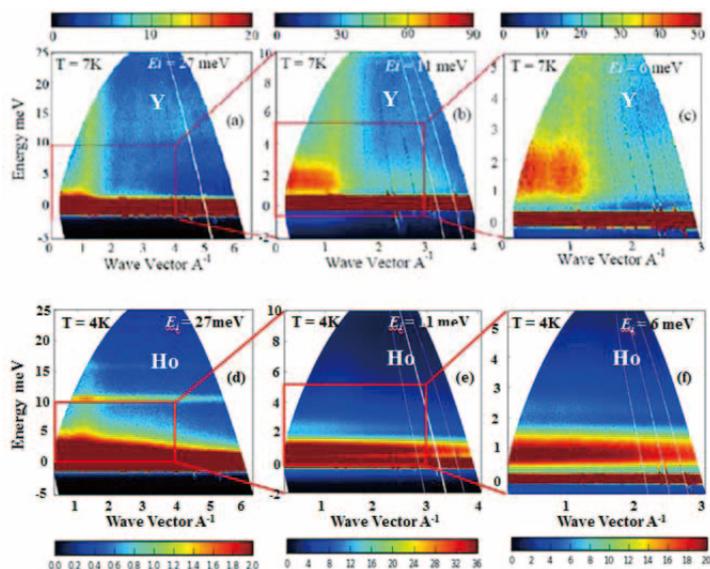


Figure:

Neutron scattering intensity map in the energy (ω) – wave vector (Q) space.

We used multi-incident neutron energies with E_i of 27.59, 11.66, and 6.389 meV. Top ((a)(b)(c)) YBaFe_4O_7 ($T = 7\text{K}$), bottom ((d)(e)(f)) $\text{HoBaFe}_4\text{O}_7$ ($T = 4\text{K}$), left ((a)(d)) $E_i = 27\text{meV}$, middle ((b)(e)) $E_i = 11\text{meV}$, right ((c)(f)); $E_i = 6\text{meV}$.

S-7班

**フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、
ダイナミクス研究**

K. Kamazawa

Comprehensive Research Organization for Science and Society
(CROSS), Tokai, Ibaraki 319-1106, Japan

新・旧JAEAプロジェクト「機能物質の構造と電子物性」研究会
2016, 3/22-23 @ 東北大金研

1

共著の方々&謝辞

YBaFe₂O₇
石角元志, 河村聖子^A, 川北至信^A, 加倉井和久^B,
新井正敏^A, 山田和芳^C, 中島健次^A, 佐藤正俊
BL01メンバー
総合科学研究機構(CROSS東海),
原子力機構 J-PARC^A, 原子力機構量子ビーム^B, KEK機構^C,

HoBaFe₂O₇
石角元志, 河村聖子^A,
川北至信^A, 加倉井和久^B, 中島健次^A, 佐藤正俊
総合科学研究機構(CROSS東海),
原子力機構 J-PARC^A, 原子力機構量子ビーム^B

2

幾何学的フラストレーション (基底状態のマクロな縮退)

三角
S(T=0) = 0.338 K_B
G. H. Wannier, Phys. Rev. 79, 357(1950)
B. W. Southern, et al.,
J. Phys. C: Sol. Stat. Phys. 13, L827 (1980)

カゴメ
S(0) = 0.202 K_B
Y. Yamada, K. Kamazawa, et al., PRB 66, 064401 (2002)

四面体
S(0) = 0.202 K_B
S(0) = 0
・スピネル
・パイロクロア
・C15ラベス
Y. Kobayashi et al., JPSJ. 11, 3906(1998)

ハイパーカゴメ
S(0) = 0
・ガーネット
・Na4Ir3O8

Q空間での縮退

幾何学的フラストレーション
⇒ 残留エントロピー
⇒ 空間的なエネルギーの縮退

FIG. 4. The energy eigenvalues of the lowest-lying branch in the (k, 0) reciprocal plane when only the nearest-neighbor antiferro-
Y. Yamada, K. Kamazawa, et al., PRB 66, 064401 (2002)

3

粉末のパターン⇒ 単結晶で測定した分布がわかる

PRL 108, 017204 (2012) PHYSICAL REVIEW LETTERS 6 JANUARY 2012

Empirical Magnetic Structure Solution of Frustrated Spin Systems
Joseph A.M. Paddison and Andrew L. Goodwin*

4

レゾナンスモード

S. Ligenza et al., Phys. Stat. Sol. B 90 319 (1978)

S.-H. Lee, et al., PRL, 84, 3718, (2000).
ZnCr2O4

Magneto-Electric Splitting of the Crystal Field Γ₂-Level
of Cr³⁺ Ions in MgCr₂O₄, Studied by Neutron Spectroscopy

5

4-site collective spin singlet?

(Y_{0.97}Sc_{0.03})Mn₂ T=9 K
E=10 meV
T=9 K

Y_{0.97}Sc_{0.03}Mn₂
C15 Laves

Q ~ 1.6A⁻¹
Q ~ 3.5A⁻¹
4K
50K
YMN_{1.92}Fe_{0.08}
C15 Laves

R. Ballou, et al., PRL 76, 2125(1996)
R. Rainford, et al., JMMM, 104-107(1992)

6

Introduction

フラストレーションは何か嬉しいのか、
何か新パラダイム・新しい物理体系を生み出せないか？

フラストレーションによる揺らぎに着目
低次元揺らぎと量子揺らぎを排除するため
3次元でモーメントの大きい古典系を あえて選んでいる

作業仮説:
フラストレーションはスピン揺らぎが大きい？！
振子 は自明
ばね系でも

大きい揺らぎ(振幅) ⇒ ばね定数に非線形性を期待
非線形性 → 励起の混成?
→ 線形近似の枠組みを超えた物理を期待?

図4-1

7

Structure etc R = Y → Ho

114 ferrite R₂BaFe₂Fe₃O₇ Spinel AFe₂O₄

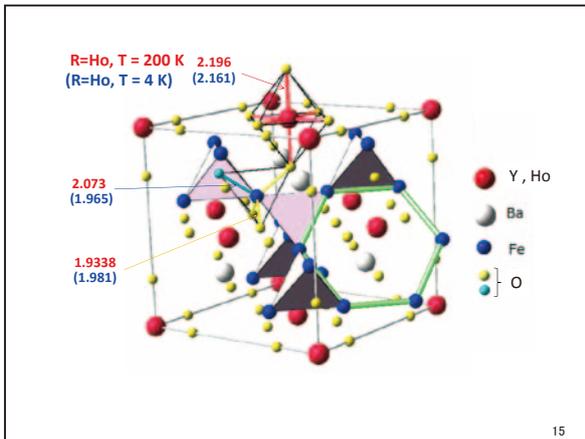
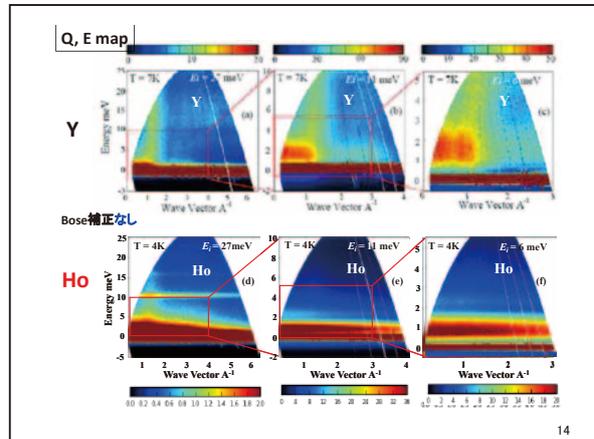
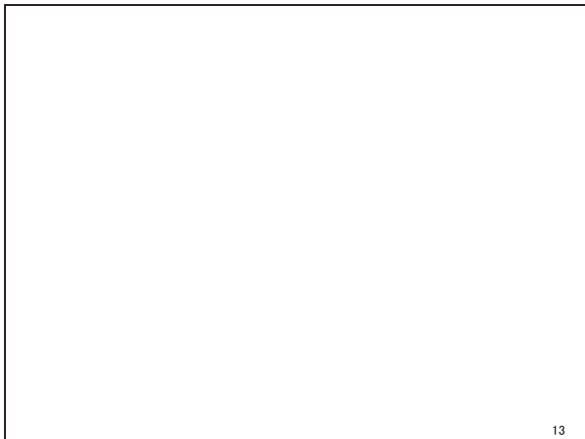
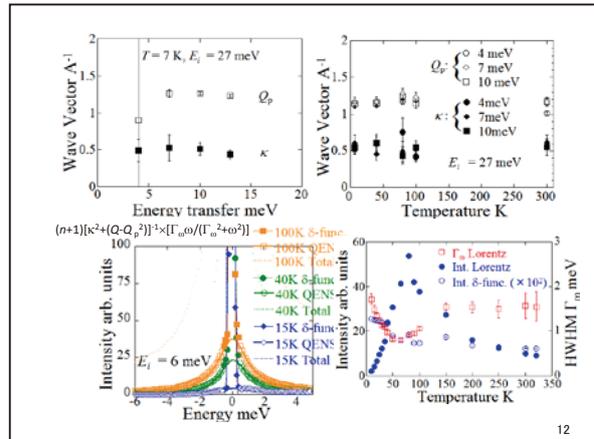
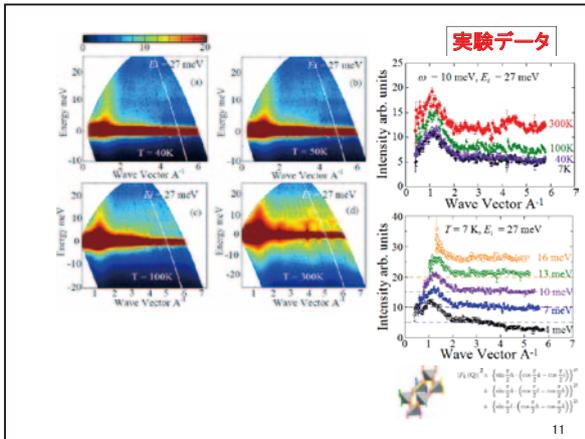
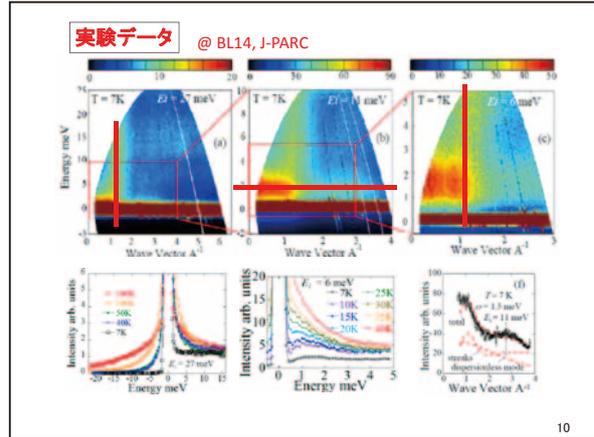
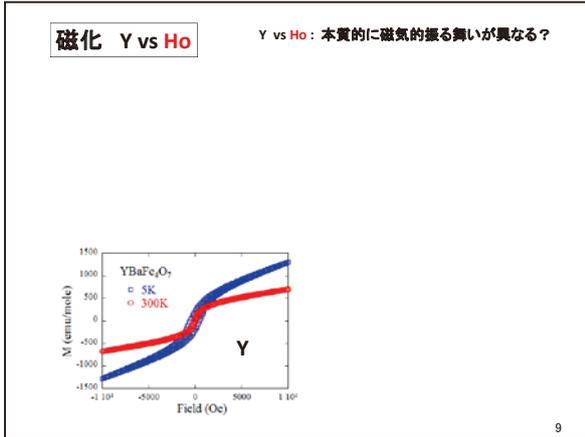
Fe²⁺ : Fe³⁺ = 3 : 1

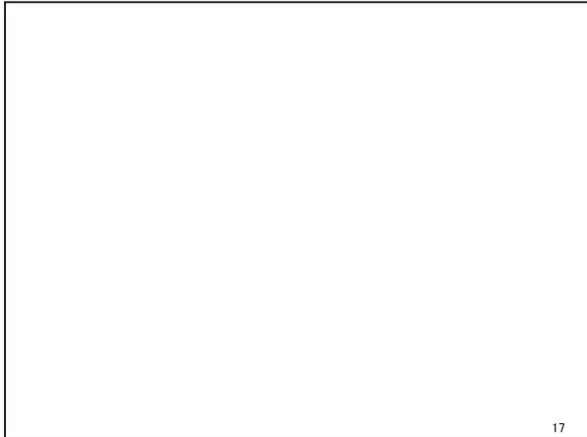
Cubic, a = 8.52 Å

a ~ 8.96 Å

V. Pralong et al., J. Mater. Chem., 19, 8335 (2009)
In Lu Er Yb Ho Dy Y
Cubic F-43m P63mc
a ~ 8.96 Å

8





finite AF Heisenberg system \Rightarrow two excitation modes

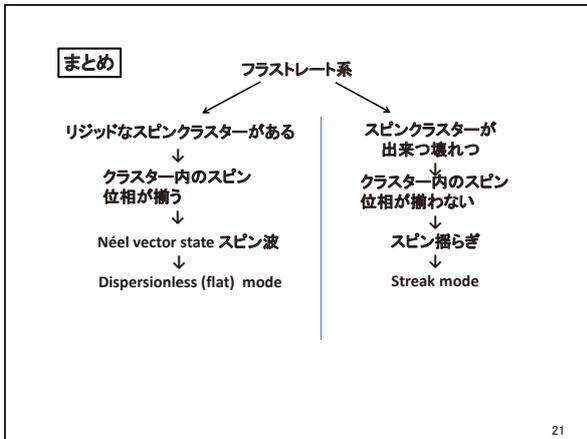
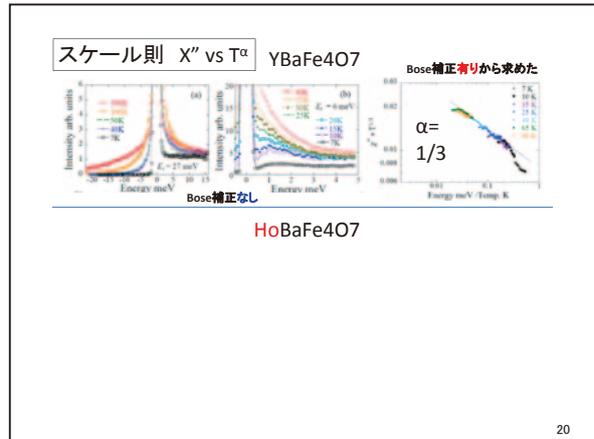
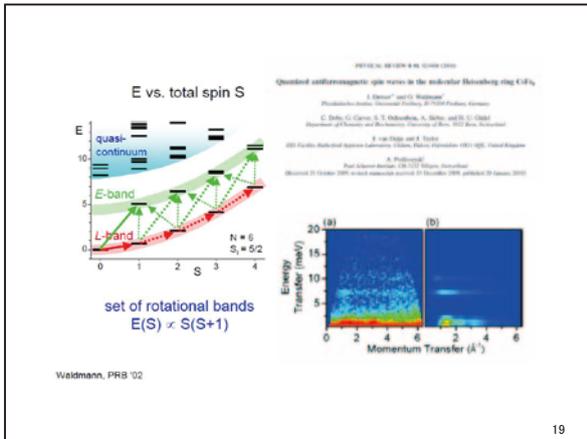
Spin-wave excitation in an antiferromagnet.

E-band: \rightarrow excitation energy $\approx 2|J|$

spin flips delocalize \rightarrow spin waves
Coherent motion of the ground-state spin configuration.

L-band: \rightarrow quantized rotation of the Néel vector

$H_{AB} \approx 2J/N \vec{S}_A \cdot \vec{S}_B$
 $S = 0, 1, \dots, S_A + S_B$
 $E(S) \propto S(S+1)$



10. S8「スピンの高次テクスチャがもたらす新奇な励起状態の探索」

10.1 S8 班報告

木村宏之¹

¹ 東北大学多元物質科学研究所

S8 班では、反強磁性と強誘電性が共存するマルチフェロイック物質群である RMn_2O_5 と斜方晶 $RMnO_3$ のスピンドイナミクス研究が、BL-01 四季と BL-14 アマテラス分光器を用いて行われた。マルチフェロイック物質における強誘電性の微視的なメカニズムについては幾つか提唱されており、軌道交換歪によるイオン変位がもたらす電気分極 ($S \cdot S$ モデル)、ジャロシンスキー・守谷相互作用の逆効果として生まれるイオン変位 (スピントレントによる電子変位) がもたらす電気分極 ($S \times S$ モデル) 等がある。 RMn_2O_5 では両者の共存が指摘され、斜方晶 $RMnO_3$ では後者の $S \times S$ モデルで説明されている。これらの系では振動電場によって励起されるエレクトロマグノンの存在が指摘され、様々な計測プローブでその検出が試みられてきたが、運動量—エネルギー空間のどこにそのモードが現れるか (どのモードが電場に応答するか)、明らかにされて来なかった。本研究班では、 RMn_2O_5 と斜方晶 $RMnO_3$ におけるスピンドイナミクスの全体像理解と、エレクトロマグノンの探索に焦点がおかれ、研究が行われた。

S8班：スピンの高次テクスチャがもたらす新奇な励起状態の探索

S8班報告

東北大多元研

木村宏之

新・旧JAEAプロジェクト「機能物質の構造と電子物性」発表会 2016.3.22




S8班：スピンの高次テクスチャがもたらす新奇な励起状態の探索

非共線的な磁気構造（高次のスピントクスチャ）と電気・光学物性の結合

vector spin chirality $C = S_1 \times S_2$

toroidal moment $T = \frac{1}{2} \sum_i r_i \times S_i$

scalar spin chirality $\Omega = S_1 \cdot (S_2 \times S_3)$

$\text{RMnO}_3, \text{RMn}_2\text{O}_5$ Y-type ferrites, $\text{GaFeO}_3, \text{LiCoPO}_4$
 $\text{MnWO}_4, \text{LiCu}_2\text{O}_4, \text{CuO}, \text{etc.}$ 磁気光学効果

$\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7, \text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ 異常ホール効果

巨大電気磁気効果

磁気光学効果

異常ホール効果




S8班の実験実績

- YMn_2O_5

東北大多元研 野田・木村G, 脇本秀一, 池内和彦, 梶本亮一, 中島健次

四季：2012/11/23 - 11/27 (4 days)

アマテラス：2013/1/30 - 2/4 (5 days)
- TbMnO_3

東大 有馬・佐賀山G, 梶本亮一, 中島健次

アマテラス：2012/5/31 - 6/4 (3.5 days)




学会発表、業績等

- 修士論文

2012年度 古川圭作 東北大学大学院理学研究科

2014年度 泉谷義寿 東北大学大学院理学研究科
- 学会発表

2014年度日本物理学会秋季大会 泉谷義寿




10.2 マルチフェロイック物質 YMn_2O_5 のスピンドイナミクス

木村宏之¹, 泉谷義寿¹, 古川圭作¹, 石井祐太¹, 野田幸男¹, 脇本秀一²,
池内和彦³, 梶本亮一⁴, 中島健次⁴, Chun-Ming Wu⁵

¹ 東北大学多元物質科学研究所

² 日本原子力研究開発機構

³ 総合科学研究機構 (CROSS), 東海事業センター

⁴ 日本原子力研究開発機構, J-PARC センター

⁵ The Bragg Institute, ANSTO

YMn_2O_5 は反強磁性秩序状態で強誘電性を示し、磁気相転移が強誘電転移を誘起するマルチフェロイック物質群 RMn_2O_5 ($R = \text{rare-earth, Bi, Y}$) の一つである。この系は Mn 間に働く磁気相互作用 $J_1 \sim J_5$ の競合により長周期磁気秩序が逐次的に現れ、同時に強誘電転移を起こす。この微視的機構を解明するために、我々は $\text{Y}(\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}_x)^{3+}\text{Mn}^{4+}\text{O}_5$ の磁性と強誘電性を、(偏極電場下) 中性子回折実験により調べ、その結果中間コメンシュレート磁気相 (CM 相) の安定化に重要な相互作用が $J_3 \sim J_5$ である事と、この系では起源の異なる 2 種の強誘電電気分極が共存・競合している事を明らかにした [1,2]。一方最低温インコメンシュレート磁気相 (LTICM 相) において中性子非弾性散乱実験が行われ、その磁気励起スペクトルから磁気相互作用が定量的に見積もられた [3] が、各磁気秩序相での変化については情報が得られていなかった。そこで我々はこのプロジェクトでそれぞれの相における磁気励起スペクトルを四季とアマテラス分光器で測定し、どのような変化があるか調べた。その結果、CM 相から LTICM 相への転移の際に、0.7 meV 程度のギャップが励起スペクトルに現れる事を発見した。この詳細を調べるため、最近我々は ANSTO の冷中性子三軸分光器 SIKA を用いて詳細な温度変化を測定したので、講演ではその結果も合わせて紹介する。

References

- [1] H. Kimura *et al.*, PRB **87**, 104414 (2013).
- [2] S. Wakimoto *et al.*, PRB **88**, 140403(R) (2013).
- [3] J.-H. Kim *et al.*, PRL **107**, 097401 (2011).

S8班：スピンの高次テクスチャがもたらす新奇な励起状態の探索

研究報告

マルチフェロイック物質 YMn_2O_5 のスピンドYNAMIX

¹IMRAM, ²Tohoku Univ., ³JAEA, ⁴CROSS, ⁵J-PARC, ⁶ANSTO

H. Kimura¹, Y. Izumiya¹, K. Furukawa¹, Y. Ishii, Y. Noda¹, S. Wakimoto², K. Ikeuchi³, R. Kajimoto⁴, K. Nakajima⁴, C.-M. Wu⁵

新・旧JAEAプロジェクト「機能物質の構造と電子物性」発表会 2016.3.22

RMn_2O_5 における非線形電気磁気効果

$\text{TbMn}_2\text{O}_5 (H // a)$

$\text{TmMn}_2\text{O}_5 (H // c)$

電気分極の反転

電気分極の90度回転

Rサイトの種類による多彩な電気磁気効果

YMn_2O_5 における磁気・誘電相転移

格子整合磁気相 (CM相) - 強誘電1相 (FE1相)

低温格子不整合磁気相 (LTICM相) - 強誘電2相 (FE2相)

電気分極の自発的反転 @ CM → LTICM 相転移

微視的起源は？

共存する2つの分極メカニズム

YMn_2O_5 in CM phase

鎖間相互作用 → zig-zag 反強磁性鎖 ($\text{Mn}^{4+}-\text{Mn}^{3+}-\text{Mn}^{3+}-\text{Mn}^{4+}$)

軌道交換歪による分極 ($P_S \propto S_i \cdot S_j$)

鎖内相互作用 → サイクロイド構造 // c ($\text{Mn}^{4+} - \text{Mn}^{4+}$)

DM相互作用の逆効果による分極 ($P_S \propto e_{ij} \times (S_i \times S_j)$)

2種の磁気誘起電気分極の共存

磁気相互作用のコントロール

非磁性 Ga^{3+} イオンの導入 → $\text{Mn}^{3+} (S=2)$ イオンが選択的に置換

zig-zag 反強磁性鎖が断ち切られる

鎖内相互作用は生き残る (ベクトルスピカイラリティが生き残る)

磁気相互作用の制御 → 磁性と強誘電性がどのように変化するか

磁気相互作用のコントロール

磁気-誘電相図 $\text{YMn}^{2+}(\text{Mn}_{1-x}\text{Ga}_x)_2\text{O}_5$

CM (FE1) 相: $x \sim 0.12$ で消失 → zig-zag 反強磁性鎖が CM (FE1) 相を安定化

LTICM (FE2) 相: $x = 0.24$ まで残る → ベクトルスピカイラリティ ($S_i \times S_j$) が生き残る

CM (FE1) 相安定化 → J_3 の減少

YMn_2O_5 の磁気励起観測

Spectra @ LT-ICM phase

磁気励起の全体像とその温度変化

Kim, et al., PRL 107, 097401 (2011).

YMn_2O_5 の磁気励起観測

YMn_2O_5 磁性: Mn^{4+} スピンと Mn^{3+} スピンのみ

4SEASONS 磁気励起の全体像を3つの磁気相で観測 単結晶総体積: ~ 2.5 cc Multi $E_i = 45.03, 21.44, 12.50$ meV

AMATERAS $\omega \leq 1$ meV の領域 (ギャップの有無) Multi $E_i = 15.15, 7.736, 4.682, 3.135$ meV

SIKA: Cold triple axis at OPAL in ANSTO

• SIKA

SEASONS, AMATERAS 実験と同じ結晶

単結晶総体積 : ~ 2.5 cc

E_i -fix = 5 meV



This is a blank page.

10.3 サイクロイド型マルチフェロイックにおける動的電気磁気効果の研究

佐賀山基¹, 大泉広野², N. D. Khanh³, 阿部伸行³, 有馬孝尚³,
 稲村泰弘⁴, 中村充孝⁴, 梶本亮一⁴, 菊池龍弥⁴, 河村聖子⁴, 中島健次⁴,
 新井正敏⁴

¹ 高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所

² 東北大学 多元物質科学研究所

³ 東京大学大学院 新領域創成科学研究科

⁴ 日本原子力研究開発機構、J-PARC センター

磁性と強誘電性が共存するマルチフェロイック物質において、動的な電気磁気効果であるエレクトロマグノンに関する研究が盛んに行われている。ある種のエレクトロマグノンでは結晶方向に入れる光の方向によって共鳴吸収の大きさが大きくことなる非相反効果が見られ、光整流デバイスなどの応用利用が期待されている。TbMnO₃は螺旋スピン配列が電気分極を誘起する磁性強誘電体の典型例であり、 $T_c = 27\text{K}$ 以下で、 bc 面内に回転し伝播ベクトル $\mathbf{q} = (0 \ q \ 1)$ ($q \sim 0.27$) を有するサイクロイド型スピン構造が c 軸方向に電気分極を誘起する。この物質では THz 吸収分光測定により、 $E \sim 2.5, 7.5, 17 \text{ meV}$ にエレクトロマグノンが存在することが報告されている[1,2]。本研究では、その起源をミクروسコピックな視点から明らかにすることを目的として、J-PARC, BL-1 高強度チョッパー型分光器 4SEASONS, BL-14 冷中性子ディスクチョッパー型分光器 AMATERAS を用いた非弾性中性子散乱実験を行った。その結果、強誘電相において $dE = 2.5\text{meV}$ の磁気励起を結晶学的 Γ 点に見出した。講演ではこの磁気励起とエレクトロマグノンの相関について議論する。

References

- [1] A. Pimenov, *et al.*, Nat. Phys. **2**, 97 (2006).
 [2] N. Kida, *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **26**, A35 (2009).

JAEAプロジェクト研究「機能物質の構造と電子物性」[「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクス」の共同研究] 2016年3月22日(火)~23日(水) 東北大学金属材料研究所 国際教育研究棟2階セミナー室

サイクロイド型マルチフェロイックにおける動的電気磁気効果の研究

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光科学研究施設
佐賀山基、

共同研究
東北大 東大新領域
J-Parc center, JAEA

N. D. Khanh、大泉広野、阿部伸行、有馬孝尚
稲村泰弘、中村充孝、梶本亮一 (4SEASONS)
菊池龍弥、河村聖子、中島健次 (AMATERAS)
新井正敏

1

マルチフェロイック物質における動的電気磁気効果

Altering ELECTRIC FIELD FERRO ELECTRIC FERRO MAGNETIC Altering MAGNETIC FIELD

エレクトロマグノン: 振動電場により起こされる磁気動起

Nonreciprocal Directional Dichroism

Pointing vector

GHz ~ THz ~ 可視光領域で観測

2

サイクロイド型における準静的な電気磁気効果

H. Katsura et al., PRL (2005), (Theory)
I. A. Sergienko and E. Dagotto, PRB (2006), (Theory)

① $H//x$ $P//z$
② $H//z$ $P//x$
③ $H//y$ $P=0$

3

サイクロイド型マルチフェロイックにおける電気磁気ダイナミクス

スピンのみ スピン結合が強い極限で

H. Katsura et al., PRL (2007)

Classical spin wave

① Phason
② Rotation mode
③ Electromagnon

4

Multiferroic $TbMnO_3$

T. Kimura et al., Nature (2003).

bc -cycloid $q_M = (0, q_y, 1)$, $q_y = 0.273$
M. Kenzelmann et al., PRL (2005).
T. Arima et al., PRL (2006).

THz absorption spectrum in multiferroic $TbMnO_3$

A. Pimenov et al., nature phys (2006).
N. Kida et al., J. Opt. Soc. Am. (2009).

5

27PEA-10 JPS meeting 2013 Sep. 25-28th at Tokushima University

Spin wave excitations at $(0\ q\ 1)$ detected by using INS technique

R. Kajimoto et al., JPSJ (2005).
D. Senff et al., PRL (2007).

$TbMnO_3$ $T = 14$

① Phason
② Rotation mode
③ Electromagnon

6

Motivation

マルチフェロイックにおけるスピン揺らぎのモードを明らかにし、スピン格子結合を微視的に理解する。

Experimental Details

BL14: AMATERAS
Cold-neutron disk-chopper spectrometer

Single crystal preparation

Five single crystals (2.4 cc)
Floating zone method
 $T = 13K$
(closed-cycle He^4 refrigerator)

$E_i = 6.4\ meV$
Energy Resolution: $dE/E_i \sim 3\%$
 Q range ($0 < H < 2$, $-2 < K < 1$, $-0.5 < L < 0.5$)

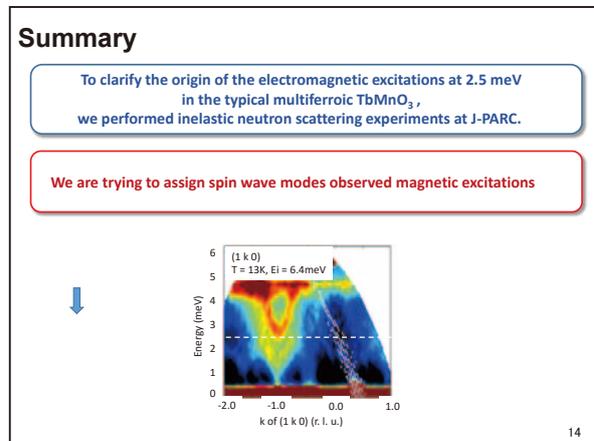
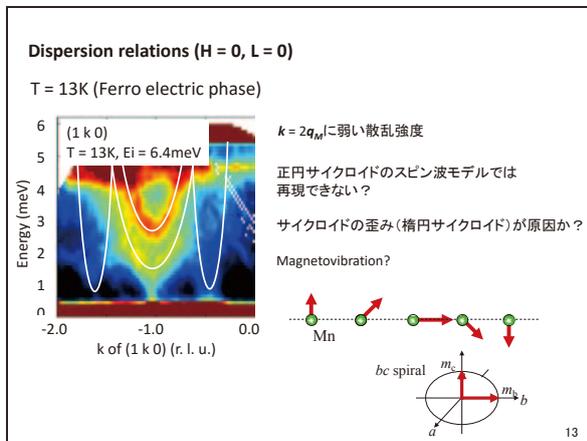
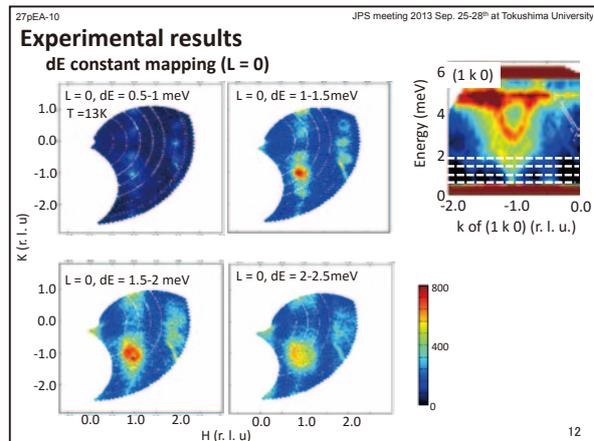
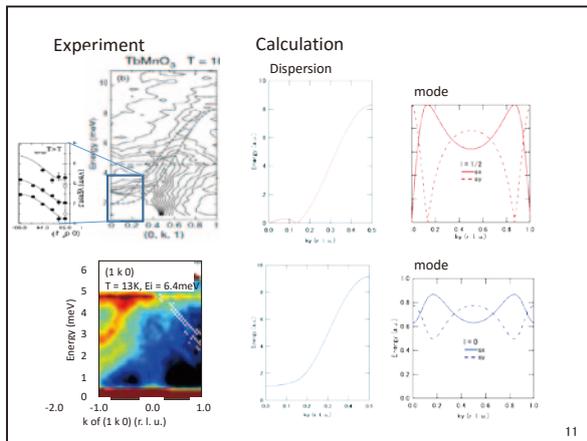
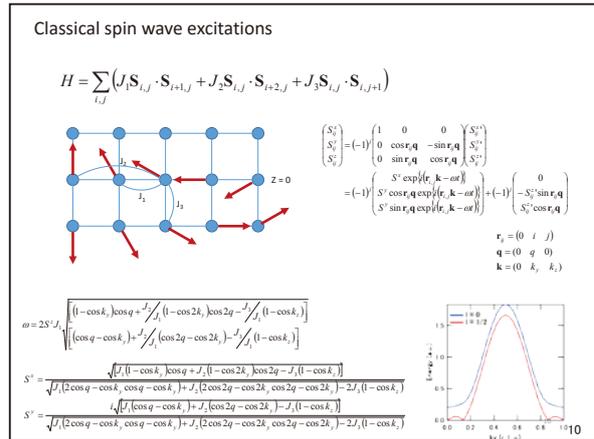
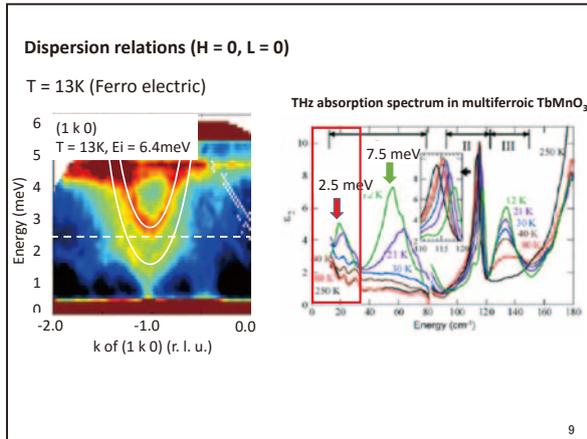
7

Dispersion relations ($H = 0, L = 0$)

$T = 13K$ (Ferro electric) $T = 30K$ (Para electric)

Energy (meV) k of $(1\ k\ 0)$ (r. l. u.)

8



This is a blank page.

付 録

JAEAプロジェクト研究
「機能物質の構造と電子物性」
「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」
合同研究会

2016年3月22日(火)～23日(水)
東北大学金属材料研究所 国際教育研究棟2階セミナー室

プログラム

3月22日(火)

座長：脇本秀一 (JAEA QuBS)

Opening		
16:40	はじめに	脇本秀一 (JAEA QuBS)
16:45	旧プロジェクト「機能物質の構造と電子物性」全体報告	中島健次 (JAEA J-PARC)
S1班「遷移金属元素物質のスピン・格子ダイナミクス」		
17:00	班報告	富安啓輔 (東北大理)
17:10	Crの磁気励起	福田竜生 (JAEA SPring-8)
17:30 休憩 (10分)		
S5班「遷移金属化合物におけるスピン・軌道状態の観測」		
17:40	班報告	鬼柳亮嗣 (JAEA J-PARC)
17:50	ABC ₆ 型規則合金Pt-Mnの磁気秩序と磁気励起	高橋美和子 (筑波大数理物質)
S4班「分子性有機導体の階層構造と電荷・スピン・格子ダイナミクス」		
18:10	班報告	佐々木孝彦 (東北大金研)
18:20	ダイマーモット絶縁体β ⁻ -(BEDT-TTF) ₂ Cl ₂ におけるフォノンと電荷・スピンの関連性	河村聖子 (JAEA J-PARC)
18:40	反強磁性ダイマーモット絶縁体κ ⁻ -(BEDT-TTF) ₂ Cu[N(CN) ₂]Clの電荷-スピン-分子格子ダ	松浦直人 (CROSS)
19:30 懇親会(塚田農場 仙台青葉通り店)		

3月23日(水)

座長：中島健次 (JAEA J-PARC)

S6班「低次元量子スピン系の新規な励起状態と基底状態の解明」		
9:00	班報告	益田隆嗣 (東大物性研)
9:10	マルチフェロイック物質Ba ₂ CoGe ₂ O ₇ におけるスピン・ネマティック相互作用	左右田稔 (東大物性研)
9:30	スピンバイエルス系CuGeO ₃ のスピン-フォノン結合	池内和彦 (CROSS)
9:50	Magnetic excitations in quantum spin systems and frustrated magnets—Exploiting powder sample inelastic magnetic neutron scattering investigation with TOF chopper	加倉井和久 (JAEA QuBS)
10:10 休憩 (10分)		
S2班「新奇超伝導体の電荷・スピン・格子ダイナミクス」		
10:20	班報告および「超伝導体におけるスピン・格子ダイナミクスの研究」全体説明	脇本秀一 (JAEA QuBS)
10:35	中性子とRIXSによる磁気励起の全体像解明	脇本秀一 (JAEA QuBS)
10:55	砂時計型磁気励起の擬ギャップ温度を挟んだ温度依存性	松浦直人 (CROSS)
11:15	ホールドープされたモット絶縁体の階層的磁気励起	藤田全基 (東北大金研)
11:35	銅酸化物高温超伝導体における磁気励起とフォノンの結合について	池内和彦 (CROSS)
11:55 休憩 (60分)		
S3班「伝導電子と局在電子の混成効果による新しい電子相における秩序と揺らぎ」		
12:55	班報告	岩佐和晃 (東北大理)
13:05	Ce ₃ T ₄ Sn ₁₃ (T = Co, Rh)におけるカイラル構造相転移と電子状態	岩佐和晃 (東北大理)
S7班「フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究」		
13:25	班報告	蒲沢和也 (CROSS)
13:35	フラストレーション系磁性物質の特異な磁気励起、ダイナミクス研究	蒲沢和也 (CROSS)
S8班「スピンの高次テクスチャがもたらす新奇な励起状態の探索」		
13:55	班報告	木村宏之 (東北大多元研)
14:00	マルチフェロイック物質YMn ₂ O ₅ のスピンダイナミクス	木村宏之 (東北大多元研)
14:15	サイクロイド型マルチフェロイックにおける動的電気磁気効果の研究	佐賀山基 (KEK物構研)
Closing		
14:30	総合討論	
14:55	おわりに	中島健次 (JAEA J-PARC)

参加者リスト

有馬 孝尚	東京大学／理化学研究所
池内 和彦	CROSS 東海
岩佐 和晃	東北大学 大学院理学研究科
加倉井 和久	日本原子力研究開発機構
梶本 亮一	J-PARC センター
蒲沢 和也	CROSS 東海
河村 聖子	J-PARC センター
木村 宏之	東北大学 多元物質科学研究所
鬼柳 亮嗣	J-PARC センター
佐賀山 基	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
佐々木 孝彦	東北大学 金属材料研究所
社本 真一	日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター
鈴木 謙介	東北大学 金属材料研究所
左右田 稔	東京大学 物性研究所
高橋 美和子	筑波大学 数理物質系
富安 啓輔	東北大学 大学院理学研究科
中島 健次	J-PARC センター
中島 多朗	理化学研究所 創発物性科学研究センター
野田 幸男	東北大学
福田 竜生	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
藤田 全基	東北大学 金属材料研究所
本田 孝志	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
益田 隆嗣	東京大学 物性研究所
松浦 直人	CROSS 東海
森 道康	日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター
山田 和芳	高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所
李 哲虎	産業技術総合研究所 省エネルギー研究部門
脇本 秀一	日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究センター
Timothy Ziman	Institut Laue-Langevin

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량	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 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m ²
体積	立方メートル	m ³
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s ²
波数	毎メートル	m ⁻¹
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m ²
比体積	立方メートル毎キログラム	m ³ /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m ²
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 ^(a) , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m ³
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m ³
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m ²
屈折率 ^(b)	(数字の)	1
比透磁率 ^(b)	(数字の)	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) これらは無次元量あるいは次元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	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン ^(b)	rad	1 ^(b)	m/m
立体角	ステラジアン ^(b)	sr ^(e)	1 ^(b)	m ² /m ²
周波数	ヘルツ ^(d)	Hz		s ⁻¹
力	ニュートン	N		m kg s ⁻²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²	m ⁻¹ kg s ⁻²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m ² kg s ⁻²
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m ² kg s ⁻³
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻¹
静電容量	ファラド	F	C/V	m ² kg ⁻¹ s ⁴ A ²
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m ² kg s ⁻³ A ⁻²
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m ² kg ⁻¹ s ³ A ²
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m ² kg s ⁻² A ⁻¹
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²	kg s ⁻² A ⁻¹
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m ² kg s ⁻² A ⁻²
セルシウス温度	セルシウス度 ^(e)	°C		K
光照射量	ルーメン	lm	cd sr ^(e)	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
放射性核種の放射能 ^(f)	ベクレル ^(d)	Bq		s ⁻¹
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m ² s ⁻²
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト ^(g)	Sv	J/kg	m ² s ⁻²
酸素活性化	カタール	kat		s ⁻¹ 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を単位の表し方の中に、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一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数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
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m ⁻¹ kg s ⁻¹
表面張力	ニュートンメートル	N m	m ² kg s ⁻²
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m ⁻¹ s ⁻¹ = s ⁻¹
角加減	ラジアン毎秒毎秒	rad/s ²	m m ⁻¹ s ⁻² = s ⁻²
熱流密度, 放射照度	ワット毎平方メートル	W/m ²	kg s ⁻³
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m ² kg s ⁻² K ⁻¹
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m ² s ⁻² K ⁻¹
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m ² s ⁻²
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s ⁻³ K ⁻¹
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m ³	m ⁻¹ kg s ⁻²
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s ⁻³ A ⁻¹
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m ³	m ⁻³ s A
電表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m ²	m ⁻² s A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m ³ kg ⁻¹ s ⁴ A ²
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s ⁻² A ⁻²
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m ² kg s ⁻² mol ⁻¹
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m ² kg s ⁻² K ⁻¹ mol ⁻¹
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg ⁻¹ s A
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m ² s ⁻³
放射線強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m ⁴ m ⁻² kg s ⁻³ = m ² kg s ⁻³
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m ² sr)	m ² m ⁻² kg s ⁻³ = kg s ⁻³
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m ³	m ⁻³ s ⁻¹ mol

表5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 ²⁴	ヨタ	Y	10 ¹	デシ	d
10 ²¹	ゼタ	Z	10 ²	センチ	c
10 ¹⁸	エクサ	E	10 ³	ミリ	m
10 ¹⁵	ペタ	P	10 ⁶	マイクロ	μ
10 ¹²	テラ	T	10 ⁹	ナノ	n
10 ⁹	ギガ	G	10 ¹²	ピコ	p
10 ⁶	メガ	M	10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ³	キロ	k	10 ⁻¹⁸	アト	a
10 ²	ヘクト	h	10 ⁻²¹	ゼプト	z
10 ¹	デカ	da	10 ⁻²⁴	ヨクト	y

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=60 s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm ² =10 ⁴ m ²
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm ³ =10 ³ cm ³ =10 ⁻³ m ³
トン	t	1 t=10 ³ 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	1 eV=1.602 176 53(14)×10 ⁻¹⁹ J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 ⁻²⁷ kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 ¹¹ 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=100 kPa=10 ⁵ Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 ⁻¹⁰ m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm ² =(10 ¹² cm ²) ² =10 ⁻²⁸ m ²
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

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
エルグ	erg	1 erg=10 ⁻⁷ J
ダイン	dyn	1 dyn=10 ⁻⁵ N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm ⁻² =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm ² s ⁻¹ =10 ⁻⁴ m ² s ⁻¹
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm ⁻² =10 ⁴ cd m ⁻²
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm ⁻² =10 ⁴ lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s ⁻² =10 ⁻² ms ⁻²
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm ² =10 ⁻⁸ Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm ⁻² =10 ⁻⁴ T
エルステッド ^(a)	Oe	1 Oe _e =(10 ³ /4π)A m ⁻¹

(a) 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10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 ¹⁰ Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 ⁻⁴ C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 ⁻² Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 ⁻² Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 ⁻⁹ T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 ⁻¹⁵ m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g=2×10 ⁻⁴ kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858J (「15°C」カロリ), 4.1868J (「IT」カロリ), 4.184J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 ⁻⁶ m

