

量子磁性材料研究チーム

Quantum Magnetic Materials Research Team

チームリーダー 勝 又 紘 一

KATSUMATA, Koichi

SPRing-8 からの高輝度 X 線を用いて、量子効果が顕著な磁性体について X 線磁気散乱、吸収及び発光の測定を行い、これらの磁性体における磁気構造や電子状態についての情報を得る。理研内外の研究者と協力して新物質開発を積極的に行い、得られた物質について上記の X 線測定を行う。また、外部研究者との連携により、測定結果の理論的解析を行う。電子スピン共鳴や中性子散乱など、X 線測定と相補的な手法を活用した量子磁性体の研究を推進する。これらの研究を通して磁性体における量子効果の解明と新磁性材料創製を目指す。

1. X 線磁気散乱、吸収、発光測定（勝又、田中、鳴海*、下村*、田畑*、Staub*）

SPRing-8 のビームライン BL19LXU において、固体酸素の磁場中における X 線回折測定を行った。アルファ相固体酸素において磁場誘起体積膨張を観測した。膨張量は 7.5 テスラにおいて約 1% であり、鉄の磁場中での膨張量 0.004% と比べて巨大である。固体酸素においては、その結晶構造の安定化に酸素分子の持つスピン間の相互作用が重要であると理論的に指摘されていたが、この測定から得られた結果は、それを支持するものである。このような磁場誘起巨大膨張を利用して、新材料を創製する可能性が得られた。

高濃度近藤磁性体 CeB_6 について磁場中で非共鳴 X 線回折測定を行い、磁場の増加に伴って回折強度が増加することを見出した。また、単結晶の軸方向によっては、磁場と共に回折強度が減少することが分かった。この現象は、スピンの磁場方向を向くと、スピン・軌道相互作用により四極子が方向を変えることとして説明できる。この実験より、希土類磁性体の多重極子を磁場で操作出来る可能性が得られ、新奇磁性材料への応用が期待される。

典型的な少数キャリア磁性体 CeP について、15 テスラまでの強磁場中で非共鳴 X 線回折測定を行った。磁場の増加と共に、格子変調の波数が不連続に変化する様子が観測された。これは、大きな磁気モーメントを持つ Ce 層と小さな磁気モーメントを持つ Ce 層が周期的に配列し、その周期が磁場で変化するためである、と説明される。本実験では、従来の測定では得られていなかった、強磁場領域における短周期の格子変調が初めて観測され、少数キャリア磁性体の理解が深まった。

2. 新規磁性体の探索と合成（勝又、吉川、田中、本多*）

スピンの結晶中で梯子状に並んだ磁性体は、量子効果が大きく、低温で新奇な磁性を発現すると期待されている。従来のスピン梯子物質は、銅を構成要素とするものが殆どであった。我々は、コバルトや鉄を構成要素とする新しいスピン梯子物質の合成に成功し、その磁性を調べた。 $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ 単結晶について磁化率を測定したところ、梯子方向と梯子と垂直方向で大きな異方性を見出した。この結果より、 $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ は初めての一軸異

方性を持つスピン梯子物質であることがわかった。磁化率は低温で一定となり、ゼロにはならない。我々は、この現象をこの物質が梯子間の弱い相互作用のために、低温で磁気秩序を起こすためであると説明した。 $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ は磁気長距離秩序相とスピン液体相を分ける量子臨界点に近い物質であることが分かった。鉄を含む類似物質 $\text{Na}_2\text{Fe}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ の単結晶育成にも成功し、その磁性を調べた。 $\text{Na}_2\text{Fe}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ も $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ と同じように、一軸異方性を持つスピン梯子物質であることが明らかとなった。これらの研究は、量子磁性の解明に役立つものである。

3. X 線磁気散乱、吸収、発光測定結果の理論的解析（勝又、Lovesey*）

電気磁気効果を示す典型的な物質 Cr_2O_3 における X 線回折の理論的検討を行った。この系においては、通常の多重極子の他に、アナポールが存在することが明らかとなった。アナポールによる X 線回折強度の式を導出した。

*連携研究員（非常勤）

X-ray magnetic diffraction, absorption and emission measurements are made on advanced magnetic materials with novel properties. Both the instrumentation on the SPRing-8 machine and our sample environment equipment are the apotheosis world-wide, and they are used to provide information on materials of interest that is not obtainable at other facilities. International collaborations include searches for and investigations of new magnetic materials. Additionally, through collaborations, state-of-the-art theoretical work is applied to the interpretation of the measurements. Complementary use of other techniques, such as electron spin resonance and neutron scattering, is in progress. With the combined studies, experimental and theoretical, we understand quantum phenomena in magnetic materials and identify new ones.

We have been successful in observing a giant magneto-volume effect in alpha phase solid oxygen which amounts to about 1% at 7.5 T. This result provides an evidence that the spin-dependent inter-molecular force plays an important role in stabilizing the crystal structure of solid oxygen. We have successful in growing single crystals of a spin-ladder material, $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ and measured the magnetic

susceptibility. We find that the susceptibility becomes temperature independent below about 5 K, contrary to the expectation for a spin-ladder material. From this observation we find that the material is situated close to the quantum critical point separating the spin-liquid and Néel ordered phases. We also find that the material is the first spin-ladder with uniaxial anisotropy.

Research Subjects

1. X-ray magnetic scattering, absorption and emission measurements on quantum magnets
2. Search and synthesis of new magnetic materials
3. Theoretical studies on x-ray magnetic scattering, absorption and emission

Staff

Head

Dr. Koichi KATSUMATA

Members

Dr. Yoshikazu TANAKA

Ms. Akiko KIKKAWA

Visiting Members

Prof. Kichizo ASAI(Dep. Appl. Phys., Univ. Electrocommun.)

Prof. Masayuki HAGIWARA (KYOKUGEN, Osaka Univ.)

Dr. Zentaro HONDA (Fac. Eng., Saitama Univ.)

Prof. Hidenobu HORI(JAIST)

Prof. Takeo JO (Grad. School, Adv. Sci. Matter, Hiroshima Univ.)

Dr. Shojiro KIMURA(KYOKUGEN, Osaka Univ.)

Prof. Koichi KINDO (ISSP, Univ. Tokyo)

Prof. Shunji KISHIMOTO (KEK)

Prof. Masahumi KOHGI(Grad. School Sci., Tokyo Metrop. Univ.)

Dr. Emilio LORENZO(CNRS, France)

Prof. Stephen W. LOVESEY (RAL, UK)

Dr. Danny MANNIX (ESRF, France)

Dr. Yasuo NARUMI (ISSP, Univ. Tokyo)

Prof. Toshiro SAKAKIBARA (ISSP, Univ. Tokyo)

Dr. Susumu SHIMOMURA (Fac. Sci. Tech., Keio Univ.)

Dr. Urs STAUB (PSI, Switzerland)

Dr. Hiroyuki SUZUKI (Nanomat. Lab., NIMS)

Dr. Yoshikazu TABATA (Grad. School Sci., Osaka Univ.)

Trainees

Mr. Makoto KAWAUCHI (Grad. School Sci., Osaka Univ.)

誌上発表 Publications

[雑誌]

(原著論文) *印は査読制度がある論文誌

Katsumata K., Kimura S., Staub U., Narumi Y., Tanaka Y., Shimomura S., Nakamura T., Lovesey S., Ishikawa T., and Kitamura H.: "The giant magneto-volume effect in solid oxygen", J. Phys.: Condens. Matter **17**, L235--L239 (2005). *

Katsumata K., Kikkawa A., Tanaka Y., Shimomura S., Ebisu

S., and Nagata S.: "Synchrotron X-ray Diffraction Studies of $\alpha\text{Gd}_2\text{S}_3$ ", J. Phys. Soc. Jpn. **74**, pp.1598--1601 (2005). *

Tanaka Y., Katsumata K., Shimomura S., and Onuki Y.: "Manipulating the multipole moments in CeB_6 by magnetic fields", J. Phys. Soc. Jpn. **74**, pp.2201--2204 (2005). *

Hannan A., Kawana D., Kuwahara K., Kohgi M., Narumi Y., Tabata Y., Shimomura S., Tanaka Y., and Katsumata K.: "Study of High-Field Magnetic Phases of the Low-Carrier-System CeP by Synchrotron Radiation X-ray Diffraction", J. Phys. Soc. Jpn. **74**, pp.2301--2309 (2005). *

Matsuda M., Kikkawa A., Katsumata K., Ebisu S., and Nagata S.: "Neutron diffraction study of $\alpha\text{Gd}_2\text{S}_3$ ", J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 1412--1415 (2005). *

Kikkawa A., Katsumata K., Honda Z., and Yamada K.: "The magnetic property of a uniaxial spin-ladder material $\text{Na}_2\text{Fe}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ ", J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 2687--2690 (2005). *

Zheludev A., Grenier B., Ressouche E., Regnault L., P., Honda Z., and Katsumata K.: "Half ordered state in the anisotropic Haldane-gap antiferromagnet $\text{Ni}(\text{C}_5\text{D}_{14}\text{N}_2)_2\text{N}_3(\text{PF}_6)$ ", Phys. Rev. B **71**, 104418-1 - 4 (2005). *

Staub U., Scagnoli V., Mulders A., Katsumata K., Honda Z., Grimmer H., Horisberger M., and Tonnerre J.: "Orbital and magnetic ordering in $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{1.5}\text{MnO}_4$ studied by soft X-ray resonant scattering", Phys. Rev. B **71**, 214421-1 - 5 (2005). *

Fernandez-Rodriguez J., Blanco J., Brown P., Katsumata K., Kikkawa A., Iga F., and Michimura S.: "Experimental evidence of noncollinear magnetism in gadolinium tetraboride", Phys. Rev. B **72**, 052407-1 - 4 (2005). *

Honda Z., Katsumata K., Kikkawa A., and Yamada K.: "Thermodynamic properties in the approach to the quantum critical point of the spin-ladder material $\text{Na}_3\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ ", Phys. Rev. Lett. **95**, 087204-1 - 4 (2005). *

Mannix D., Tanaka Y., Carbone D., Bernhoeft N., and Kunii S.: "Order Parameter Segregation in $\text{Ce}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{B}_6$: 4f Octopole and 5d Dipole Magnetic Order", Phys. Rev. Lett. **95**, 117206-1 - 4 (2005). *

(総説)

Lovesey S., Balcar E., Knight K. S., and Rodriguez J. F.: "Electronic properties of crystalline materials observed in X-ray diffraction", Phys. Rep. **411**, 233--289 (2005).

(その他)

勝又 統一: "低温・強磁場下における放射光X線回折測定", SPRING-8利用者情報 **10**, No. 5, pp.346--350 (2005).

[単行本]

(その他)

勝又 統一: "物理学辞典(分担執筆)", 培風館, 東京, (2005).

口頭発表 Oral Presentations

(国際会議等)

Tanaka Y., Inami T., Lovesey S. W., Knight K. S., Yakhov F., Mannix D., Vettier C., Kokubun J., Kanazawa M., Ishida K., Nanao S., Nakamura T., Yamauchi H., Onodera H., Ohoyama K., and Yamaguchi Y.: "A resonant x-ray scattering study of antiferroquadrupolar ordering in DyB_2C_2 ", Neutron and Synchrotron X-Ray Scattering in Condensed-Matter Research, (Paul Scherrer Institute), Villigen, Switzerland, Aug. (2002).

Katsumata K.: "Synchrotron X-ray diffraction studies under extreme conditions", 25th Anniversary of Condensed-Matter Theory at ISIS and the Rutherford Appleton Laboratory,

(Rutherford Appleton Laboratory), Abindon, UK, Apr. (2005).

Katsumata K.: "An over view of the research activity at the Quantum Magnetic Materials Research Team of RIKEN", Magnetic Materials Research using Synchrotron X-rays and Neutron Scattering, (Oviedo University), Oviedo, Spain, May (2005).

Lovesey S.: "Calculations of x-ray diffraction performed at the RIKEN Harima Institute", Magnetic Materials Research using Synchrotron X-rays and Neutron Scattering, (Oviedo University), Oviedo, Spain, May (2005).

Tanaka Y.: "Direct observation of multipole moment ordering in rare-earth compounds", Magnetic Materials Research using Synchrotron X-rays and Neutron Scattering, (Oviedo University), Oviedo, Spain, May (2005).

Narumi Y., Kikkawa A., Katsumata K., Honda Z., Hagiwara M., and Kindo K.: "High field magnetization process of a pyrochlore compound $Gd_2Ti_2O_7$ ", 24th International Conference on Low Temperature Physics (LT24), (Department of Physics and University of Florida), Orlando, USA, Aug. (2005).

Narumi Y., Kawauchi M., Hagiwara M., Kikkawa A., Tanaka Y., Katsumata K., Staub U., and Kindo K.: "Development of a split-pair pulse magnet for X-ray diffraction studies", Physical Phenomena at High Magnetic Fields -5, (National High Magnetic Field Laboratory), Tallahassee, USA, Aug. (2005).

Tanaka Y., Sera M., Tabata Y., Shimomura S., Kikkawa A., Katsumata K., Iga F., and Kishimoto S.: "Incommensurate and commensurate quadrupole orders in $Ce_{0.7}Pr_{0.3}B_6$ ", 3rd Hiroshima Workshop "Novel Functional Materials with Multinary Freedoms", (JSPS and others), Higashihiroshima, Nov. (2005).

(国内会議)

田中 良和, 世良 正文, 田畑 吉計, 下村 晋, 吉川 明子, 勝又 紘一, 伊賀 文俊, 岸本 秀司: " $Ce_{0.7}Pr_{0.3}B_6$ における非整合多重極子秩序の観測", 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 3月 (2005).

Hannan A., 川名 大地, 桑原 慶太郎, 神木 正史, 鳴海 康雄, 田畑 吉計, 下村 晋, 田中 良和, 勝又 紘一: "CePの高磁場下の磁気構造-放射光X線回折", 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 3月 (2005).

松田 雅昌, 吉川 明子, 勝又 紘一, 戎 修二, 永田 正一: "フラストレート磁性体 αGd_2S_3 の磁気構造", 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 3月 (2005).

吉川 明子, 勝又 紘一, 田中 良和, 下村 晋, 戎 修二, 永田 正一: "フラストレート磁性体 αGd_2S_3 の放射光X線回折", 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 3月 (2005).

木戸 太一, 田畑 吉計, 谷口 年史, 河原崎 修三, 勝又 紘一, 吉川 明子: "希土類化合物 $ErNi_2Ge_2$ の磁気異方性", 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 3月 (2005).

田中 良和: "希土類磁性体における多重極子秩序の直接観測", 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 3月 (2005).

川内 周, 鳴海 康雄, 萩原 政幸, 田中 良和, 吉川 明子, 勝又 紘一, 下村 晋, 金道 浩一: "強磁場下放射光X線回折実験用パルスマグネットの開発", 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 3月 (2005).

鈴木 博之, 鬼丸 孝博, 榊原 俊郎, 田中 良和, 吉川 明子, 勝又 紘一: "非共鳴X線散乱による $PrPb_3$ の四極子秩序の観測", 日本物理学会第60回年次大会, 野田, 3月 (2005).

勝又 紘一: "極限環境下の放射光X線回折実験", 東京大学物性研究所短期研究会「ミクロプローブを用いた強磁場

物性研究の展開: 現状と将来」, 柏, 6月 (2005).

田中 良和, 勝又 紘一, 吉川 明子, 下村 晋, 大貫 惇睦: "CeB₆における四重極子の磁場応答", 日本物理学会2005年秋季大会, 大阪, 京田辺, 9月 (2005).

矢野 一雄, 田中 良和, 中井 生央, 櫻井 浩, 安達 弘通, 河田 洋: " $Gd_{100-x}Cu_x$ (30 < x < 70)系合金の磁性とCuの3d電子状態", 日本物理学会2005年秋季大会, 大阪, 京田辺, 9月 (2005).

高橋 雅裕, 町田 一成, 鳴海 康雄, 勝又 紘一, 下村 晋, 田畑 吉計, 田中 良和: "スピンパイエルス系 $CuGeO_3$ の不整合波数の温度変化の測定とその理論的解釈", 日本物理学会2005年秋季大会, 大阪, 京田辺, 9月 (2005).

鳴海 康雄, 金道 浩一, 川内 周, 萩原 政幸, 田中 良和, 吉川 明子, 勝又 紘一, Staub U.: "パルス強磁場下での時間分割X線回折測定", 日本物理学会2005年秋季大会, 大阪, 京田辺, 9月 (2005).

吉川 明子, 勝又 紘一, 本多 善太郎, 山田 興治: "一軸異方性をもつスピンラダー物質 $Na_2Fe_2(C_2O_4)_3(H_2O)_2$ の磁性", 日本物理学会2005年秋季大会, 大阪, 京田辺, 9月 (2005).

木戸 太一, 田畑 吉計, 谷口 年史, 河原崎 修三, 勝又 紘一, 吉川 明子: "希土類化合物 $ErNi_2Ge_2$ の磁気相図", 日本物理学会2005年秋季大会, 大阪, 京田辺, 9月 (2005).

本多 善太郎, 勝又 紘一, 吉川 明子, 山田 興治: "梯子格子磁性体 $Na_2CO_2(C_2O_4)_3(H_2O)_2$ の磁性", 日本物理学会2005年秋季大会, 大阪, 京田辺, 9月 (2005).

田中 良和: PF研究会「X線非弾性散乱を用いた物性研究III」, つくば, 1月 (2006).

田中 良和: "Phonon Spectra of quasi-one-dimensional Material $BaVS_3$ ", High-Resolution Inelastic X-Ray Scattering Workshop Program, 播磨, 2月 (2006).

堀場 弘司, 江口 律子, 田口 孝宗, Chainani A. A., 吉川 明子, Senba Y., Ohashi H., 辛 埴: " $LaNiO_3$ 薄膜の *in situ* 軟X線光電子分子", 日本物理学会第61回年次大会, 松山, 3月 (2006).

田中 良和, Lovesey S., 世良 正文, 吉川 明子, 田畑 吉計, 勝又 紘一, 伊賀 文俊, 岸本 秀司: " $Ce_{1-x}Pr_xB_6$ の整合、非整合多重極子秩序相の観察", 日本物理学会第61回年次大会, 松山, 3月 (2006).

道村 真司, 重川 祥, 伊賀 文俊, 吉川 明子, 田中 良和, 勝又 紘一, 世良 正文, 高畠 敏郎: "Shastry-Sutherland格子系 ErB_4 の常磁性領域における磁場誘起格子歪み", 日本物理学会第61回年次大会, 松山, 3月 (2006).

植田 浩明, 鳴海 康雄, 上田 寛, 稲見 俊哉, 松田 雅昌, 吉川 明子, 田中 良和, 勝又 紘一: "クロムスピネル $HgCr_2O_4$ の磁場誘起構造相転移", 日本物理学会第61回年次大会, 松山, 3月 (2006).

鳴海 康雄, 金道 浩一, 勝又 紘一, 川内 周, Staub U., 豊川 秀訓, 田中 良和, 吉川 明子, 山本 知秀, 萩原 政幸, 石川 哲也, 北村 英男: "パルス強磁場下での時間分割X線回折測定II", 日本物理学会第61回年次大会, 松山, 3月 (2006).