

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。今年度は、超強磁場下における X 線回折実験より結晶格子定数が磁場と共に階段状に変化することを発見するなどの成果が得られた。

1. X 線磁気散乱、吸収、発光測定

1-1. 定常磁場下における X 線磁気散乱、吸収、発光測定 (勝又、田中、吉川、寺田*、田畑**、Staub**)

SPRING-8 のビームライン BL19LXU において、三角格子反強磁性体 CuFeO_2 について磁場中における X 線回折測定を行った。この物質は、温度 11 K 以下、低磁場で反強磁性秩序をしめす。磁氣的フラストレーションを解消するために、結晶は不等辺三角形構造をとり、X 線回折に超格子反射が現れる。この物質に磁場をかけると、13.5 テスラにおいて、反強磁性から、飽和磁化の 1/5 の値を持つ磁気相へ転移する。この転移に伴って、超格子反射が消えることを見出した。これは、磁場をかけることにより、フラストレーションが部分的に解消され、結晶格子が二等辺三角形構造を取るとして説明される。

高濃度近藤磁性体 CeB_6 について一軸圧力下で非共鳴 X 線回折測定を行い、圧力の増加に伴って回折強度が増加することを見出した。この現象は、一軸圧力を加えると、Ce の 4f 電子の軌道状態が変化し、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圧力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。

1-2. X 線回折測定用パルス磁場の開発とそれを用いた測定 (勝又、田中、吉川、寺田*、鳴海**、金道**、萩原**、Staub**、Broennimann**、川内***、山本***、福井***、冠****)

X 線回折測定用超伝導マグネットは現在の所、最高磁場は 15 テスラである。より強磁場領域で興味深い現象が生じると期待されるので、X 線回折測定が可能なスプリットペアー型パルス磁石の開発を行っている。現在までの所、非破壊で 40 テスラまでの磁場中で X 線回折測定に成功している。この装置を使って、三角格子反強磁性体 CuFeO_2 の強磁場中 X 線回折測定を行い、多段階の磁化変化に対応して、b 軸方向の格子定数が不連続に変化する様子を観測した。この現象は、磁場誘起磁気相転移に伴い、磁氣的フラストレーションが逐次解消されていくとして説明できる。

2. 新規磁性体の探索と合成 (勝又、吉川、本多**)

磁性原子が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、その磁性を調べてきた。 $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ 単結晶について RIKEN-RAL ミュオン施設において正ミュオンスピン緩和の測定を行った。結果の解析より、ミュオンスピン緩和率が温度の低下とともに増加し、約 18 K でピークを示した後、減少する結果を得た。これは、ミュオンスピン緩和法で初めてスピンギャップの形成を観測した例である。以前に、磁化率の解析より、 $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ 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を報告したが、今回のミュオンスピン緩和測定の結果はこれを支持するものである。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継続した。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 線回折強度に関する理論的検討を行った。また、希土類化合物に於ける多極子の非整合秩序相における X 線回折に関する理論的解析を行った。

*基礎科学特別研究員、**客員研究員 (非常勤)、***研修生

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 developing a split-pair pulsed magnet up to 40 T for X-ray diffraction measurements. Using this apparatus, we found a field-induced lattice staircase in a frustrated antiferromagnet CuFeO₂.

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
Dr. Noriki TERADA
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)
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 (Nanomater. Lab., NIMS)
Dr. Yoshikazu TABATA (Grad. School Sci., Osaka Univ.)

Trainees

Mr. Tomoya FUKUI (Grad. School Sci., Univ. Tokyo)
Mr. Ryotaro KAMMURI (Grad. School Sci., Osaka Univ.)
Mr. Makoto KAWAUCHI (Grad. School Sci., Osaka Univ.)
Mr. Tomohide YAMAMOTO (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

- Tabata Y., Taniguchi T., Kawarazaki S., Narumi Y., Kimura S., Tanaka Y., Katsumata K., Ishikawa T., Staub U., Kohgi M., and Iwasa K.: "Spin density wave and charge density wave in the Kondo-lattice compound Ce(Ru_{1-x}Rh_x)₂Si₂", Physica B **359/361**, 260--262 (2005). *
- Staub U., Tanaka Y., Katsumata K., Kikkawa A., Kuramoto Y., and Onuki Y.: "Influence of stress and magnetic field on the orbital orientations in CeB₆", J. Phys.: Condens. Matter **18**, 11007--11012 (2006). *
- Tanaka Y., Sera M., Katsumata K., Lovesey S., Tabata Y., Shimomura S., Kikkawa A., Iga F., and Kishimoto S.: "Direct observation of an incommensurate multipolar order in CeB₆ doped with Pr", J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 073702-1--4 (2006). *
- Narumi Y., Katsumata K., Staub U., Kindo K., Kawauchi M., Bronnimann C., Toyokawa H., Tanaka Y., Kikkawa A., Yamamoto T., Hagiwara M., Ishikawa T., and Kitamura H.: "Lattice distortion in antiferromagnetic CoO under high magnetic fields", J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 075001-1--2 (2006). *
- Terada N., Tanaka Y., Tabata Y., Katsumata K., Kikkawa A., and Mitsuda S.: "Restoring higher symmetric crystal structure with magnetic field in triangular lattice antiferromagnet CuFeO₂", J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 113702-1--4 (2006). *
- Narumi Y., Kindo K., Katsumata K., Kawauchi M., Bronnimann C., Staub U., Toyokawa H., Tanaka Y., Kikkawa A., Yamamoto T., Hagiwara M., Ishikawa T., and Kitamura H.: "X-ray diffractometer combining synchrotron radiation and pulsed magnetic fields up to 40 T", J. Synchrotron Rad. **13**, 271--274 (2006). *
- Blanco J., Brown P. J., Stunault A., Katsumata K., Iga F., and Michimura S.: "Magnetic structure of GdB₄ from spherical neutron polarimetry", Phys. Rev. B **73**, 212411-1--4 (2006). *
- Terada N., Narumi Y., Katsumata K., Yamamoto T., Staub U., Kindo K., Hagiwara M., Tanaka Y., Kikkawa A., Toyokawa H., Fukui T., Kanmuri R., Ishikawa T., and Kitamura H.: "Field-induced lattice staircase in a frustrated antiferromagnet CuFeO₂", Phys. Rev. B **74**, 180404-1--4 (2006). *
- 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}B₆", Physica B **383**, 39--40 (2006). *
- Kikkawa A., Katsumata K., Honda Z., Watanabe I., Suzuki T., and Matsuzaki T.: "Muon spin relaxation measurements on a spin-ladder material Na₂Co₂(C₂O₄)₃(H₂O)₂", J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 023707-1--4 (2007). *
- Kikkawa A., Katsumata K., Narumi Y., Suga K., Fukui T., Sugaya T., Kindo K., Iga F., and Michimura S.: "Magnetization process in GdB₄", J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 024711-1--4 (2007). *

口 頭 発 表 Oral Presentations

(国際会議等)

- Kikkawa A., Katsumata K., Honda Z., Watanabe I., Suzuki T., and Matsuzaki T.: "Evolution of the spin-gap in a spin-ladder material detected by μ SR technique", 1st International Symposium of Quantum Beam Science Directorate of JAEA (ICM2006 Satellite Conference), (JAEA), Tokai, Aug. (2006).
Matsuda M., Ueda H., Kikkawa A., Tanaka Y.,

- Katsumata K., Narumi Y., Inami T., Ueda Y., and Lee S. H.: "Neutron and X-ray diffraction studies of a frustrated spinel antiferromagnet HgCr_2O_4 in high magnetic field", 1st International Symposium of Quantum Beam Science Directorate of JAEA (ICM2006 Satellite Conference), (JAEA), Tokai, Aug. (2006).
- Suzuki H., Onimaru T., Morie T., Sakakibara T., Tanaka Y., Terada N., Kikkawa A., and Katsumata K.: "Study on quadrupolar ordering in PrPb_3 by non-resonant X-ray scattering", 1st International Symposium of Quantum Beam Science Directorate of JAEA (ICM2006 Satellite Conference), (JAEA), Tokai, Aug. (2006).
- Narumi Y., Kindo K., Katsumata K., Staub U., Kawauchi M., Bronnimann C., Toyokawa H., Tanaka Y., Kikkawa A., Yamamoto T., Hagiwara M., Ishikawa T., and Kitamura H.: "X-ray diffractometer combining synchrotron radiation and pulsed high magnetic fields", 1st International Symposium of Quantum Beam Science Directorate of JAEA (ICM2006 Satellite Conference), (JAEA), Tokai, Aug. (2006).
- Hagiwara M., Kimura S., Honda Z., Kindo K., and Katsumata K.: "A novel spin excitation in the high field phase of an $S=1$ antiferromagnetic chain", International Conference on Magnetism (ICM 2006), (IUPAP), Kyoto, Aug. (2006).
- Michimura S., Shigekawa A., Iga F., Kikkawa A., Tanaka Y., Katsumata K., and Takabatake T.: "Field-induced lattice distortion in single crystal ErB_4 observed by X-ray diffraction", International Conference on Magnetism (ICM 2006), (IUPAP), Kyoto, Aug. (2006).
- Kikkawa A., Katsumata K., Honda Z., and Yamada K.: "Magnetic properties of the spin ladder material $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ doped with Zn", International Conference on Magnetism (ICM 2006), (IUPAP), Kyoto, Aug. (2006).
- Katsumata K.: "Synchrotron X-ray diffraction studies under extreme conditions", Workshop on Synchrotron Applications of High Magnetic Fields, (ESRF), Grenoble, France, Nov. (2006).
- (国内会議)
- 勝又 紘一, Blanco J., Brown J., 伊賀 文俊, 吉川 明子, 道村 真司: "Gd B_4 の磁気構造", 日本物理学会第61回年次大会, 松山, 3月 (2006).
- 吉川 明子, 勝又 紘一, 本多 善太郎, 山田 興治: "新しいスピンラダー物質 $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ における不純物効果", 日本物理学会第61回年次大会, 松山, 3月 (2006).
- 吉川 明子, 勝又 紘一, 本多 善太郎, 渡邊 功雄, 鈴木 栄男, 松崎 禎市郎: "スピンラダー物質 $\text{Na}_2\text{Co}_2(\text{C}_2\text{O}_4)_3(\text{H}_2\text{O})_2$ の μSR 測定", 日本物理学会2006年秋季大会, 千葉, 9月 (2006).
- 満田 節生, 金築 俊介, 込谷 剛, 中辻 良太, 深沢 正芳, 寺田 典樹, 大隅 寛幸: "フラストレートした三角格子磁性体 CuFeO_2 の希釈誘起相における自発分極", 日本物理学会2006年秋季大会, 千葉, 9月 (2006).
- 矢野 一雄, 田中 良和, 梅原 出, 佐藤 清雄, 松本 勲, 安達 弘通, 河田 洋: "Gd Ni_2 における磁気コンプトン散乱解析と軌道角運動量", 日本物理学会2006年秋季大会, 千葉, 9月 (2006).
- 福井 智哉, 鳴海 康雄, 金道 浩一, 冠 涼太郎, 山本 知秀, 萩原 政幸, 勝又 紘一, 田中 良和, 吉川 明子, Bronnimann C., Staub U., 豊川 秀訓, 石川 哲也, 北村 英男: "X線回折実験用ロングパルスマグネットの開発", 日本物理学会2006年秋季大会, 千葉, 9月 (2006).
- 鳴海 康雄, 福井 智哉, 金道 浩一, 冠 涼太郎, 山本 知秀, 萩原 政幸, 勝又 紘一, 田中 良和, 吉川 明子, Bronnimann C., Staub U., 豊川 秀訓, 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III", 日本物理学会2006年秋季大会, 千葉, 9月 (2006).
- 寺田 典樹, 田中 良和, 田畑 吉計, 勝又 紘一, 吉川 明子, 満田 節生: "フラストレートした三角格子磁性体 CuFeO_2 の強磁場X線回折", 日本物理学会2006年秋季大会, 千葉, 9月 (2006).
- 田中 良和, Sutter J., Baron A., 筒井 智嗣, 中村 裕之: "高分解X線非弾性散乱による擬一次元伝導体 BaVS_3 のコーン異常の観測", 日本物理学会2006年秋季大会, 千葉, 9月 (2006).
- 道村 真司, 重川 祥, 伊賀 文俊, 高畠 敏郎, 大坂 恵一, 加藤 健一, 吉川 明子, 田中 良和, 勝又 紘一: "二次元直交ダイマー系 TbB_4 と ErB_4 の結晶構造の温度変化", 日本物理学会2006年秋季大会, 千葉, 9月 (2006).
- 田中 良和: "Search for orbitons (A trial experiment)", SPring-8利用者懇談会研究会: 凝集体の動的構造研究会, 仙台, 11月 (2006).