

2. 東日本大震災、J-PARC、JRR3 と海外実験支援プログラム

2011年の3月の大震災では、日本の二つの中性子源JRR3とJ-PARCの両方が大きなダメージを受けました。物性研がKEKと共同運営しているJ-PARCビームラインBL12では、 ^3He 検出器(時価約500万円/本)が数本破損して大変な損害が出ましたし、JRR3では中性子輸送管のずれ、様々な分光器の不調などが発生しました。多くの方々の復旧作業により、J-PARCは2012年1月には再稼働しましたが、JRR3の方は原子炉の安全審査が必要とされているため、6年が経過した現在もまだ稼働していません。そこで私のグループでは、J-PARCと海外の中性子実験施設を利用してこの6年を過ごしてきました。中性子施設では毎年度共同利用課題の公募を継続しており、採択されたグループが海外で同じ内容の実験を行う際には旅費支援を行う海外実験支援プログラムを走らせており、私たちもその制度を利用してきました。支援を受けた実験で論文化された仕事としては、左右田助教を中心としたマルチフェロイック物質 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ (スイスPSI)、リラクサー磁性体 LuFeCoO_4 (スイスPSI)、浅井晋一郎特任研究員を中心とした二次元凸凹ハニカム格子 $\text{Ba}_2\text{NiTeO}_6$ (オーストラリアANSTO)、白椽大君(2015年3月博士号取得)のブリーディングパイロクロア $\text{Ba}_3\text{Yb}_2\text{Zn}_5\text{O}_{11}$ (オーストラリアANSTO)、などがあります。また、J-PARCを利用した研究としては本間勇紀君(2012年3月修士)の酸素分子超結晶、林田翔平君(現在D2)のマルチフェロイック物質 $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ などがあります。以下では、これらから二つのトピックを選んで説明を行います。

3. マルチフェロイック物質におけるスピン・ネマティック相互作用の観測

磁性と誘電性が同時に秩序化するマルチフェロイクスは、2003年に TbMnO_3 の研究[1]以降、基礎と応用の両面から大きな注目を集めてきました。理論的には、ミクロな電子状態をスピン・軌道相互作用と物質の対称性を取り入れて考慮することにより、スピンの構造と電気分極の構造の関係についてのモデルが提唱されてきました。実験面では、数多くのモデル物質で、複雑なスピン構造と電気分極の関係について研究がなされてきました。しかし、分極間相互作用と磁気相互作用の間にどのような関係があるかについてはさほど注目されてきませんでした。その中で、二次元反強磁性体 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ は、電気分極がスピン演算子の対

称二次テンソル(いわゆるスピン・ネマティック演算子)で表され、磁性と誘電性の関係が非常にシンプルであることが特徴です。またこの物質は、私が理工学助手の頃に指導していた学生のテーマでもあり、思い出深い物質でもあります[2]。図2(a)に示されるように、 Co^{2+} イオンの周囲には O^{2-} イオンが四面体配位しており、反転中心が存在せず、電気分極とスピン・ネマティック演算子は等価になります。したがって、分極間相互作用をスピン・ネマティック相互作用と結びつけることができ、またこれらは全てスピン演算子により表すこともできますので、磁性と誘電性の両方を、簡単な形でスピン・ハミルトニアンにより記述することが可能になります。また、この物質では、 Co^{2+} の磁気異方性の主要項は容易面型の単イオン異方性 $D(S^z)^2$ で表されますが、容易面内の向きは決定されないことも、特徴の一つです。

結晶の対称性の考察から、面内の異方性を決める主要項は、 O_{XY} のスピン・ネマティック相互作用項であることが分かりました。たとえば、図2(b)のように O_{XY} 相関が反強的な場合には、磁気異方性は[100]方向となり、電気分極は反強誘電的となります。このことは、磁気異方性の測定はスピン・ネマティック相関の測定と等価であり、さらに異方性エネルギーの測定によりスピン・ネマティック相互作用定数と誘電エネルギーの測定が可能になることを意味します。そこで左右田助教が中心となってJ-PARCの中性子非弾性散乱分光器とスイスPSIの中性子三軸分光

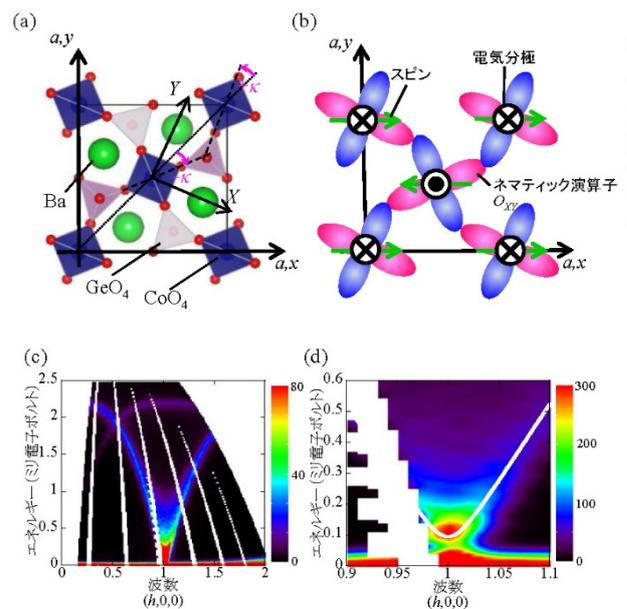


図2: (a) $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ の結晶構造 (b) スピン、電気分極、スピン・ネマティック演算子の構造、(a) $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ の中性子磁気スペクトル (b) 中性子スペクトルの(1,0,0)近傍を拡大したもの。

実験は計算で良く再現されます。また低温の磁化曲線も同じモデルで再現されることが確認されました(図 3(c))。一方、温度依存性は単純なダイマーモデルでは説明できませんでした。これは、ファンデルワールス力を凝集力とする酸素超結晶は柔らかく、酸素分子の幾何学的な配置とスピン状態が強く相関しているため、第二励起以上の状態の記述には、スピンモデルが良い近似にならないためと考えられました。これは酸素超結晶磁性体と金属酸化物磁性体との大きな違いで、今後さらに研究を進めるべき点と考えています。現在は、金属錯体の水素を重水素に置換した良質な試料での研究を継続しています。

5. J-PARC BL12 分光器

物性研中性子施設が KEK と共同で運営している High Resolution Chopper(HRC)分光器は、通常のチョッパー分光器としての性能を有するとともに、小角散乱の測定が可能である点と 1eV 程度の高エネルギー領域の測定が可能である点が特徴です。私が着任した 2010 年時点で KEK 伊藤晋一教授と物性研佐藤卓元准教授によって当該分光器はほぼ完成しており[10]、一般共同利用プログラムが開始されていました。そこで佐藤先生が東北大多元研に異動された後、私のグループでは共同利用プログラムをサポートすると同時に、試料環境機器の導入により様々な外場環境での中性子実験ができるように努力をしました。約 3 時間で $T=3\text{ K}$ に到達する GM 冷凍機の導入により、効率的な中性子実験が可能になりました。JRR3 で使用されてきた液体ヘリウム型冷凍機に専用アダプタを作成し J-PARC 分光器でも使用可能にしました。今年度は物質設計評価施設の上床先生と共同でピストン型圧力セルの導入を行い、0.5g 程度の単結晶を用いた 1.4GPa の高圧下での非弾性散乱スペクトルの収集に成功しました。14T 超伝導磁石については、導入について詳細な検討を行いました、分光器

に用いられている鉄材の影響が大きく安全な運用が困難であることが判明したため、HRC での使用は当面見合わせ、JRR3 などを使用することになりました。

6. JRR3 三軸分光器およびその周辺

再稼働に備えて分光器及びその周辺部の改良を行いました。三軸分光器 PONTA では、従来透過型ホイスラーモノクロメータを利用した偏極中性子実験が行われてきましたが、透過率が低いこととモノクロメータ結晶サイズが小さいことから、非偏極中性子の実験と比べて中性子強度はおおよそ 1/50 程度でした。このため、偏極非弾性散乱実験を行うことは困難でした。そこで中性子スーパーミラーを利用した V 型偏極子を利用することで、偏極中性子強度の増強を図ることにしました。Fe/Si スーパーミラーでは、上向きスピンと下向きスピンの中性子の全反射臨界角が異なっており、この性質を利用すると上向きスピンだけを取り出すことが出来ます。たとえば図 1(a)の上段図のように V 字にスーパーミラーを配置すると、臨界角の大きな下向きスピンは V 字の外側で反射されて光路の外に追い出されますが、臨界角の小さな上向きスピンは V 字スーパーミラーを透過し、光路の中を進み続けるため、出口での中性子の偏極度に偏りが生じます。さらに図 1(a)下段のように V 字を 2 つ設置すると、1 つ目の V 字を潜り抜けてきた下向きスピンのみも、二つ目の V 字で外に追い出されるため上向きスピンだけを取り出すことが出来ます。PONTA に導入される偏極子は、図 4(c)に示されるように幅広い中性子波長領域で高い偏極率と透過率を示しています。これを利用することにより、高強度偏極中性子の生成が可能となり、非弾性散乱実験が可能になると期待されます。

冷中性子三軸分光器 HER は、10meV 程度以下の低エネルギー励起の測定に特化した分光器です。このエネルギースケールは、10 ~ 20 T 程度の超伝導磁石のゼーマン

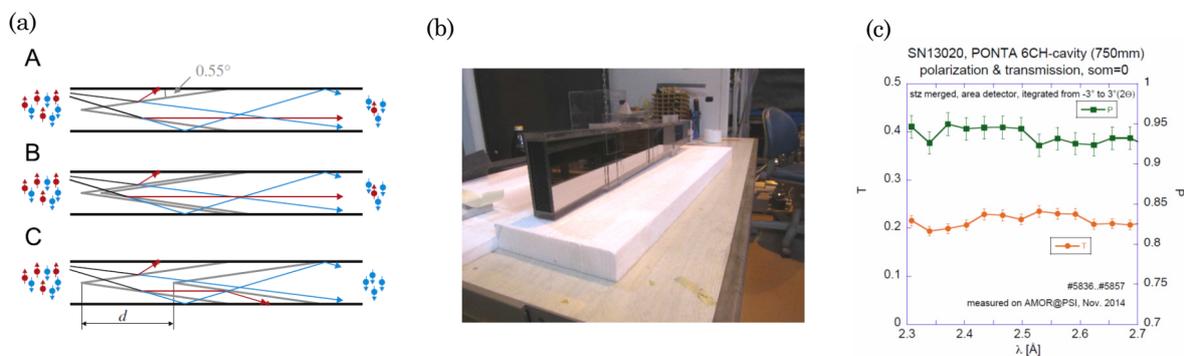


図 4 : (a) V 字スーパーミラー偏極子の原理。上向きスピン(水色) だけが取り出される様子が示されている。(b)PONTA に導入された V 型偏極子。(c)V 型偏極子の透過率と偏極率。

研究室年表

	2010	2011	2012	2013	2014	2015	2016
所員	益田隆嗣						
助教	左右田稔						
補佐員	長澤時子	大串彩子				羽部なおみ	飯高智子
補佐員	西正和						
PD		萩原雅人				萩原雅人	
PD						浅井晋一郎	
D3						白椽大	
D2					白椽大		林田翔平
D1				白椽大		林田翔平	
M2			白椽大 本間勇紀		林田翔平	尾山拓彌	吉田俊也
M1		白椽大 本間勇紀		林田翔平	尾山拓彌	吉田俊也	飯田晋介 加藤大輝
研究生							長谷川舜介

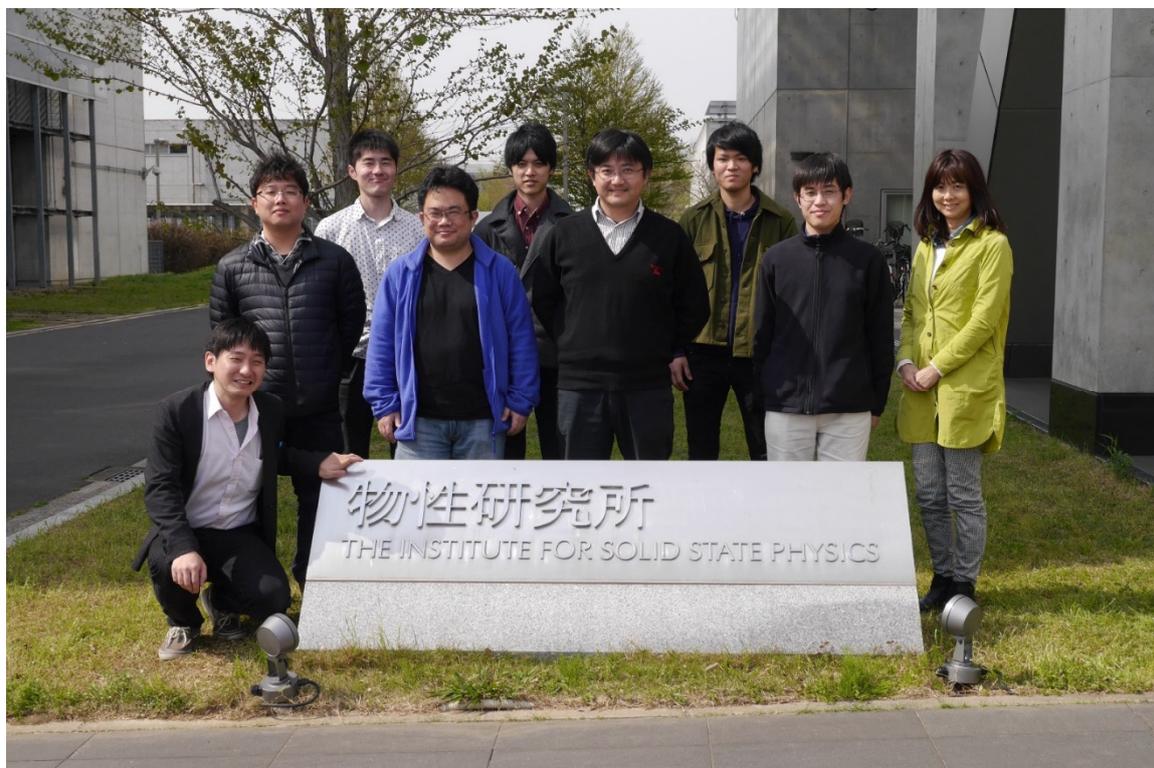


図 5 : 2016 年度研究室メンバー集合写真

