

放射光・中性子・ミュオン相補利用による マルチフェロイック物質の磁性と強誘電性の研究

木村宏之

東北大学多元物質科学研究所 〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1

東北大学大学院理学研究科物理学専攻 〒980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3

石井祐太

東北大学多元物質科学研究所 〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1

東北大学大学院理学研究科物理学専攻 〒980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3

■ 放射光

我々はこれまで、放射光・中性子・ミュオン等の量子ビームを用いた回折・散乱実験を相補利用し、反強磁性と強誘電性が結合したマルチフェロイック物質の構造物性研究を行ってきた。中性子回折実験により、特定の磁気構造が生み出す強誘電性の微視的起源を明らかにした。また、放射光共鳴 X 線散乱による元素選択的な実験により、酸素サイトに磁気モーメントが誘起されることを見出した。更に酸素サイトに敏感なミュオンを用いることで、サイト近傍の局所磁性の検出に成功した。

1. はじめに

「固体中の電子・原子核・電子スピンの配列と分布及びそれらの運動（微視的構造）と、物質の巨視的性質との関係を解き明かす」のが、構造物性研究の主目的の一つであろう。放射光・中性子・ミュオン等に代表される量子ビームは、それぞれが微視的構造を調べる非常に強力な手段であるが、中性子は原子核や電子スピン、放射光（X 線）は電子や電子スピン、ミュオンは局所的磁性、が観測できる、といったように、それぞれに得手がある。個々の得手を極め、専門的に用いることももちろん重要だが、一方で「群盲評象」に陥ることもしばしばである。物質の本質を全体俯瞰する、という意味で、複数種の量子ビームを相補的に活用することも極めて重要である。近年、世界中で量子ビーム大型施設が増加し、それに伴ってビームの相補利用が盛んになってきた。特に若い研究者にとっては実験室の装置を使うように、「当たり前」に量子ビームを利用できる環境が整ってきている（予算さえあれば）。

我々のグループはこれまで20年近く、X 線・放射光と中性子を用いた回折・散乱実験を用いて様々な物質の物性を結晶・磁気構造の視点で研究してきた。最近では μ SR という、新たな視点での研究にも着手している。その過程で強く認識したのは、新しい観測の「眼」を獲得するたびに、研究し尽くしたと思っていた物質に新しい（分からない）「課題」が現れる、ということである（まさしく「群盲像を評す」である）。本稿では、我々が長年研究してきた、反強磁性と強誘電性が結合したマルチフェロイック物質について、放射光・中性子・ミュオンを相補利用することで

何が分かってきたか、新たに出てきた課題は何か、について、少し古い結果も含めて紹介する。

2. 中性子回折によるマルチフェロイック物質 RMn_2O_5 の磁性と強誘電性の研究

マルチフェロイック物質とは、(反)強磁性、強誘電性、強弾性といった強的秩序（フェロイック）が2つ以上共存する物質である。特に反強磁性相内で強誘電性が共存する物質が近年多数発見され、基礎的物性とその応用の両面から注目されてきた。中でも我々が対象としてきた RMn_2O_5 ($R = \text{Rare-earth, Bi, Y}$) は、「ブーム」の先駆けとして発見されたマルチフェロイック物質であり、希土類 R サイトを変えることで、電気分極の磁場による反転¹⁾や回転²⁾といった多彩な電気磁気効果（Magneto Electric Effect）を示すことが知られている。この物質は1970年代から研究が続けられ、誘電・磁化測定などのマクロ測定により、複雑な逐次磁気相転移と共に強誘電相転移が同時に起こることが明らかにされていた³⁾が、微視的磁性の詳細と強誘電性の関係はほとんど明らかになっていなかった。

微視的磁性と巨視的な強誘電性の間にはどのような関係があるのか。野田幸男教授（当時）が中心になって立ち上げた日本原子力研究開発機構改造3号炉（JRR-3M）ガイドホール内の中性子4軸回折計 FONDER において、中性子回折と誘電率・電気分極が同時に測定できる装置が開発された。同時測定を行う理由は、温度幅 1 K 以下の狭い温度領域で起こる、逐次磁気相転移と強誘電相転移との対応関係を曖昧さ無しに決定するためである。Fig. 1 に、中

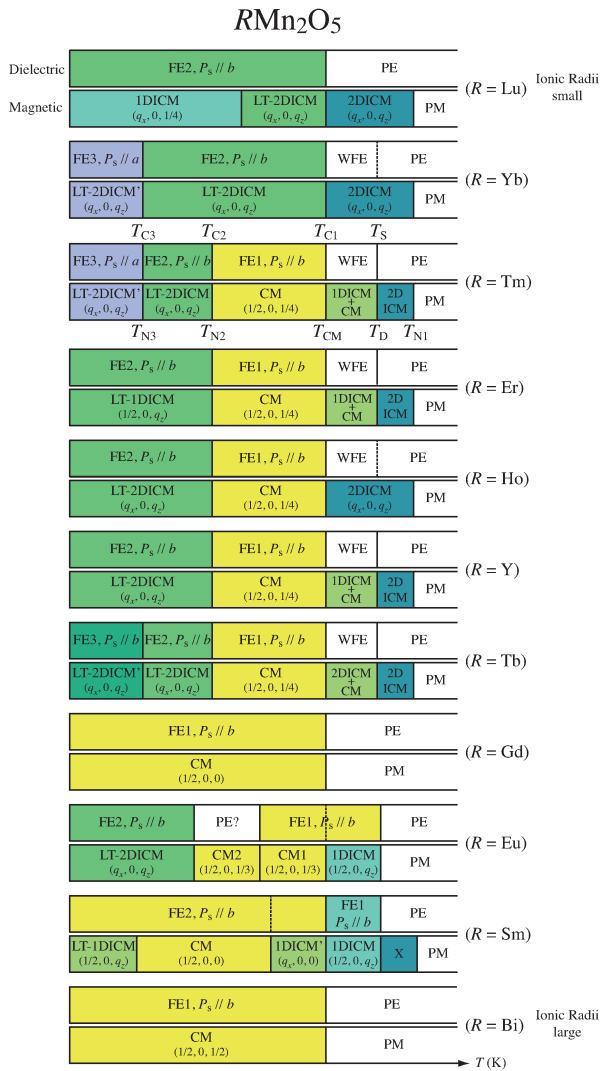


Fig. 1 (Color online) Magnetic and dielectric phase diagram as functions of temperature and the type of R site in RMn_2O_5 . Abbreviations indicate as follows, PE: ParaElectric, WFE: Weak FerroElectric, FE1: 1st FE, FE2: 2nd FE, FE3: 3rd FE, PM: ParaMagnetic, 2DICM: 2-Dimensionally modulated InCommensurate Magnetic, LT-2DICM, LT-2DICM': Low Temperature 2DICM, 1DICM, 1DICM': 1-Dimensionally modulated ICM, CM: Commensurate Magnetic, LT-1DICM: Low Temperature 1DICM. Direction of electric polarization P_s and magnetic propagation wave vector q_M are also shown.

性子回折実験と電気測定, そして後述する共鳴 X 線磁気散乱実験で決定された, 希土類 R サイトを様々に変えた RMn_2O_5 の温度に対する誘電相図と磁気相図をまとめた。この物質の結晶構造は, **Fig. 2** に示す通り, 室温で空間群 $Pbam$ の斜方晶である。一方磁気秩序相は, a 軸と c 軸方向に変調した $q_M = (q_x, 0, q_z)$ の磁気伝播ベクトルで特徴付けられる長周期磁気構造が, その周期を変えながら逐次的に相転移する。ほとんどの物質に共通する特徴としては, 中間相として格子整合磁気 (CM) 相と, それを挟むように格子不整合磁気 (ICM) 相があり, それらの磁気

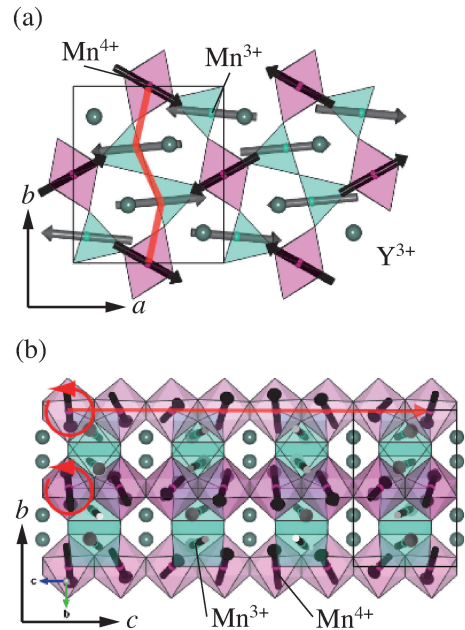


Fig. 2 (Color online) Crystal and magnetic structure of YMn_2O_5 in the CM phase for (a) the ab -plane projection and (b) the bc -plane projection. The black arrow and the gray arrow represent the magnetic moments of Mn^{4+} and Mn^{3+} ions, respectively.

転移と同時に誘電転移が起きることである。

何故磁気秩序相でのみ強誘電性が現れるのか, 電気分極を与えるのはどのような磁気構造なのか, を明らかにするため, 我々は様々な RMn_2O_5 について, 単結晶磁気構造解析を行った⁴⁾。Fig. 2 に YMn_2O_5 の CM 相における磁気構造を示す。黒矢印が Mn^{4+} イオン, 灰色矢印が Mn^{3+} イオンの磁気モーメントを表している。Fig. 2(a) の ab 面内の磁気構造を見ると, Mn^{4+} と Mn^{3+} の磁気モーメントが赤線で示した zig-zag chain に沿って上からおおよそ右一左一右一右向きに配列していることが分かる。この構造を持つとき, 隣り合うスピン間に働く交換相互作用の反作用 (軌道交換歪) として $S_i \cdot S_j$ に比例した, Mn^{4+} , Mn^{3+} 及びそれらの間の酸素の原子変位が生じて局所的に反転対称性を破り, 電気分極が b 軸方向に生じ得ることが理論的に予測されており⁵⁾, 実験的にも確かめられている⁶⁾。一方 Fig. 2(b) に示した bc 面内では, Mn^{4+} と Mn^{3+} の磁気モーメントが左巻きに回転しながら c 軸右方向に伝播している。このような磁気構造を横滑り螺旋磁気構造 (サイクロイド磁気構造) と呼ぶ。螺旋の回転は, 隣り合うスピン間の外積 $S_i \times S_j$ の正負でその向きが特徴付けられ, ベクトルスピカイラリティと呼ばれる。磁気モーメントが c 軸成分を持ち, その結果サイクロイド磁気構造が実現していることは, 我々が行った単結晶を用いたモデルフリーの磁気構造解析によって初めて明らかにされた。実はこのようなサイクロイド磁気構造が存在する場合にも, ベクトルスピカイラリティと伝播方向 e_{ij} (Fig. 2(b) の右

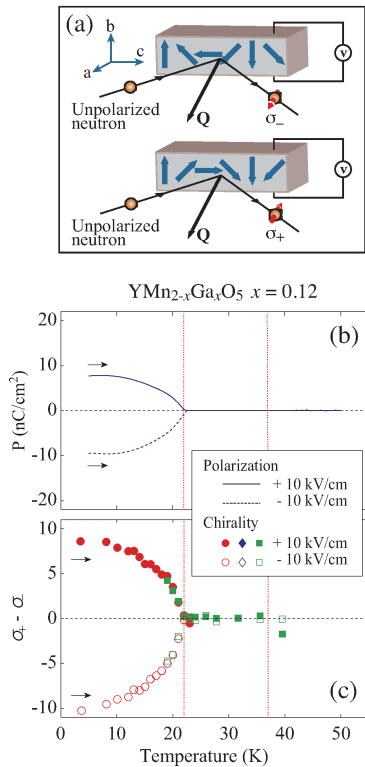


Fig. 3 (Color online) (a): Experimental setup of polarized neutron diffraction experiment detecting vector spin chirality of σ_+ (Lower condition) and σ_- (Upper condition). Temperature dependences of (b): Electric polarization and (c): $\sigma_+ - \sigma_-$ along the plus and minus b-axis for $\text{YMn}_{2-x}\text{Ga}_x\text{O}_5$ ($x = 0.12$), after Wakimoto *et al.*¹⁰.

矢印)の外積 $\mathbf{e}_{ij} \times (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$ に比例した電気分極 (あるいは電気分極を与えるイオン変位) が発生することが、Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用の逆効果やスピンの流モデル等、幾つかの理論で提唱されている⁷⁻⁹。

もし $\mathbf{e}_{ij} \times (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$ により電気分極が発生しているならば、 $\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$ の正負により電気分極の向きが、或いは逆に電気分極の向きにより $\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$ の正負が制御できるはずである。我々はこの可能性を検証するため、電場印加により電気分極の正負を制御しながら、偏極中性子を用いて YMn_2O_5 系のベクトルスピカイラリティの観測を行った¹⁰。

Fig. 3(a) に電場印加下偏極中性子回折の実験セットアップの概略図を示す。物質中にスピカイラリティが存在し、その正負のドメインの存在比に偏りがある場合、非偏極状態で入射した中性子は偏極される。その偏極度 $\sigma_+ - \sigma_-$ を計測することでカイラリティの正負とそのドメイン比が求まる¹⁰。実験に用いた試料は Mn イオンを Ga イオンで 6% 置換した $\text{YMn}_{2-x}\text{Ga}_x\text{O}_5$ ($x = 0.12$) であるが、この組成では中間領域の CM 相は存在せず、 $T = 22$ K 以下で常磁性 (PM) 相 \rightarrow 低温 2 次元変調 ICM (LT-2DICM) 相転移が起き、同時に常誘電 (PE) 相 \rightarrow 強誘電第 2 (FE2) 相転移が起こる¹¹。**Fig. 3(b), (c)** に $\text{YMn}_{2-x}\text{Ga}_x\text{O}_5$ ($x =$

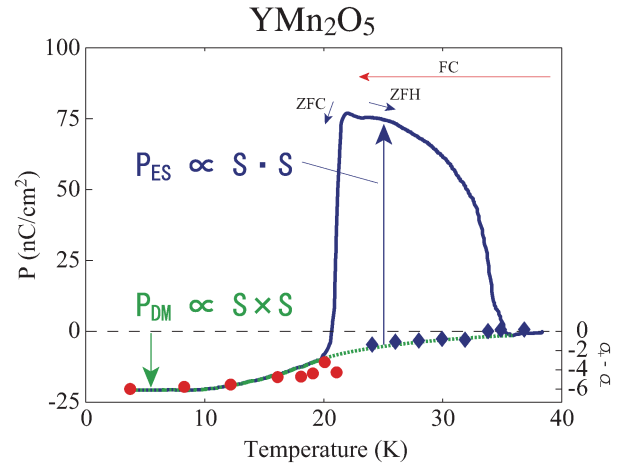


Fig. 4 (Color online) Total polarization (solid line) together with the magnetic chirality in YMn_2O_5 when the system is poled at the CM phase. Diamonds and circles are plotted $\sigma_+ - \sigma_-$ of the CM phase in and those of LT-2DICM, respectively, after Wakimoto *et al.*¹⁰. The P_{DM} contribution is shown by a dotted line.

0.12) における電気分極の温度変化と $\sigma_+ - \sigma_-$ の温度変化を示す。強誘電相転移温度以下で電気分極が発生すると同時にベクトルスピカイラリティが生じ、互いの温度変化が対応している。更に印加電場を反転させて電気分極の方向を $+b$ から $-b$ に反転させると、カイラリティも反転する。この電気分極とカイラリティの一対一対応は、LT-2DICM 相の電気分極が、カイラリティ $\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$ による電気分極 (P_{DM}) が支配的であることを示している。一方 YMn_2O_5 では、**Fig. 4** の青線で示す通り、温度低下に従って、 $T = 20$ K 近傍で CM 相 \rightarrow LT-2DICM 相転移と同時にその向きが自発的に反転する。偏極度 $\sigma_+ - \sigma_-$ の温度変化に着目すると、その成分の発達が LT-2DICM 相における負の方向の電気分極に追随していることから、CM 相においては $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ による正の電気分極 $P_{\text{ES}} > 0$ が支配的で、LT-2DICM 相においては負の P_{DM} が支配的であると考えられる。即ち P_{ES} と P_{DM} が反平行で共存する、フェリ強誘電性とも言うべき状態が実現している。この Mn^{4+} と Mn^{3+} の磁気構造は、後述する $R = \text{Gd}, \text{Sm}$ を除けば本質的には同じ構造を持っていることから、このモデルは RMn_2O_5 系の強誘電性における共通の微視的起源になっていると考えられる。

3. 共鳴硬・軟 X 線散乱による SmMn_2O_5 , GdMn_2O_5 の元素選択的磁性研究

前節で示した通り、 RMn_2O_5 系の磁気誘電相図の全体像や磁気秩序誘起強誘電性の微視的起源等、本質的なことはほぼ明らかになったように見えた。一方で **Fig. 5** に示した一連の RMn_2O_5 系の電気分極の温度変化を見ると、 $R =$

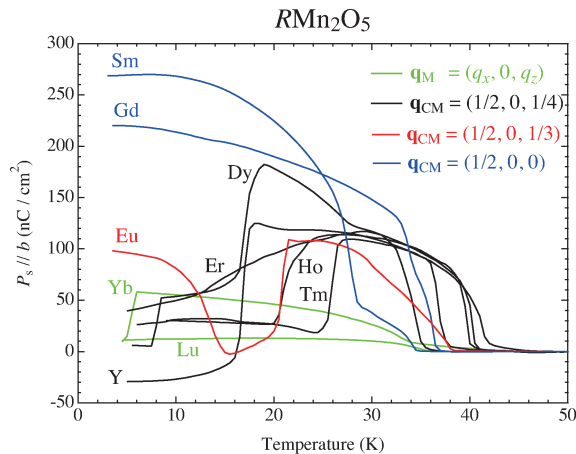


Fig. 5 (Color online) Electric polarization P_s along the b -axis as functions of temperature and the type of R site in RMn_2O_5 . The magnetic propagation wave vector in the CM phase \mathbf{q}_{CM} are also shown.

Sm, Gd の場合に顕著に電気分極が大きくなっている。この 2 物質は Sm や Gd の吸収断面積が大きく、中性子実験が不可能なため長らくその磁気構造が明らかにされてこなかったが、後述するように、共鳴 X 線磁気散乱実験により、最低温の磁気秩序相が $\mathbf{q}_M = (1/2, 0, 0)$ の CM 相であることが明らかにされた^{12,13)}。Fig. 5 には、様々な RMn_2O_5 における CM 相の \mathbf{q}_M が示されているが、 c 軸方向の変調周期が短くなれば電気分極の大きさが増大する傾向が見て取れる。そこで我々は $SmMn_2O_5$ 及び $GdMn_2O_5$ について、その微視的磁性と強誘電性の関係を明らかにするため、共鳴 X 線散乱による磁気秩序探索を行った。

共鳴 X 線磁気散乱は各元素の吸収端での共鳴プロセスを用いるので、元素選択的な観測が可能であり、更に中性子が苦手としている核種が含まれている場合でも実験できる。そこが中性子と異なる大きな特徴であり、相補性である。実験は Photon Factory の硬 X 線ビームライン BL-3A, 4C, 及び軟 X 線ビームライン BL-19B, 16A の多軸回折装置を用いて行った。吸収端は Sm L_{III} ($2p \rightarrow 5d$ 遷移), Mn K ($1s \rightarrow 4p$ 遷移), Sm $M_{V,IV}$ ($3d \rightarrow 4f$ 遷移), Mn $L_{II,III}$ ($2p \rightarrow 3d$ 遷移), O K ($1s \rightarrow 2p$ 遷移) を選択した。

Fig. 6 に $SmMn_2O_5$ の CM と ICM1 相、及び $GdMn_2O_5$ の CM 相の Mn $L_{II,III}$ 端近傍のエネルギースペクトルを示した。いずれも $L_{II,III}$ 端のエネルギーで共鳴が起きており、それぞれ $\mathbf{q}_M = (1/2, 0, 0)$, $(1/2, 0, 1/3 + \delta')$, $(1/2, 0, 0)$ の磁気伝播ベクトルを持つことが分かった。 $GdMn_2O_5$ については磁気構造が既に報告されていた¹²⁾ため、我々は $SmMn_2O_5$ に着目して磁気構造の解明を試みた。Fig. 7 上段に Sm L_{III} , Mn L_{III} , Mn K 端における CM 相の共鳴散乱強度のアジマス角依存性を示した。アジマス角とは散乱ベクトル周りの回転角度 ψ である。共鳴磁気散乱強度は、イオンが持つ磁気モーメントと入射 X 線の偏光の幾何学

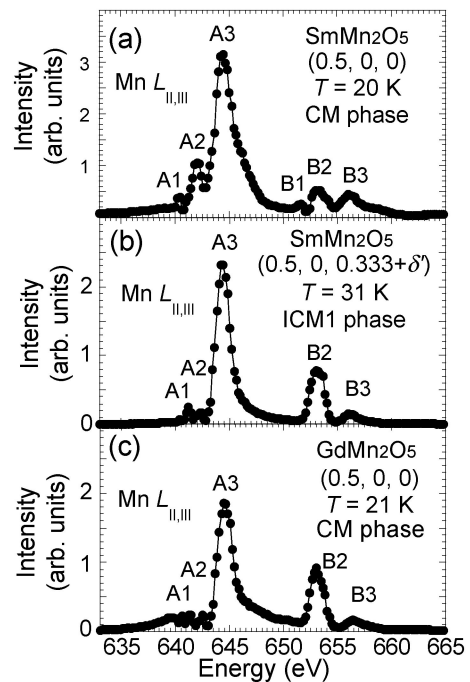


Fig. 6 Energy spectra around Mn $L_{II,III}$ edges (a) at $\mathbf{Q} = (0.5, 0, 0)$ at $T = 20$ K in the CM phase and (b) at $\mathbf{Q} = (0.5, 0, 0.333 + \delta')$ at $T = 31$ K in the ICM1 phase for $SmMn_2O_5$, and (c) at $\mathbf{Q} = (0.5, 0, 0)$ at $T = 20$ K for $GdMn_2O_5$. The incident x-ray was π polarized, after Ishii, *et al.*¹³⁾.

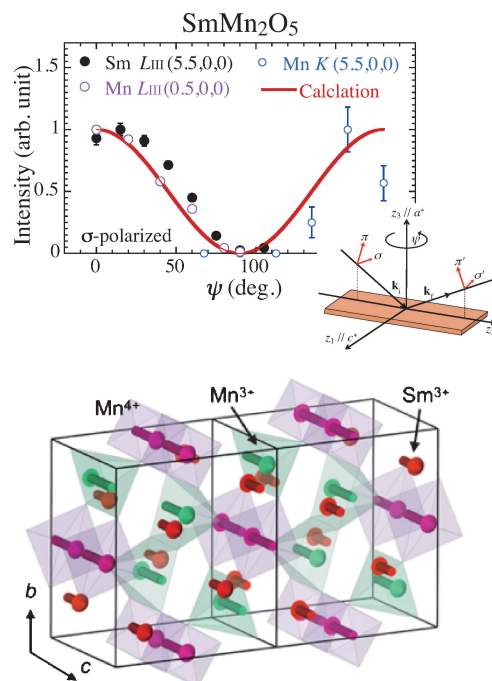


Fig. 7 (Color online) Upper panel: Azimuthal dependences of resonant magnetic scattering in the CM phase of $SmMn_2O_5$ taken at Sm L_{III} - (Black filled circle), Mn L_{III} - (Purple open circle), and Mn K - (Blue open circle) edges^{12,13)}. Incident beam is σ -polarized. Scattering geometry is also shown. Lower panel: Proposed magnetic structure in the CM phase of $SmMn_2O_5$ based on an irreducible representation analysis¹²⁾.

的關係により ψ 角に依存して変動する。Fig. 7 上段 inset に散乱配置を示した。詳細は文献13,14)を読んでいただきたいが、散乱強度がいずれの吸収端でも $\psi = 90^\circ$ で消失することから、 Sm^{3+} 、 Mn^{3+} 、 Mn^{4+} の全ての磁気モーメントが c 軸方向を向いた、コリニア構造を持つことが示された。この結果を用いて、 SmMn_2O_5 の CM 相の磁気構造を推定した。現在提唱されている RMn_2O_5 の強誘電相の結晶空間群 $Pb2_1m$ の部分群として、 $\mathbf{qM} = (1/2, 0, 0)$ を不変にする既約表現のうち、 c 軸に平行な磁気モーメントが許されるのは2種あり、その組み合わせにより16通りの磁気構造の可能性がある。共鳴散乱の結果からはこれ以上の絞り込みは無理であるが、1節で示したように、他の RMn_2O_5 に共通した Mn^{4+} と Mn^{3+} の磁気モーメントの配列 (b 軸方向に右-左-右-右) を仮定すると、Sm と Mn 磁気モーメントの間の配列のみが異なる4種に絞られる。Fig. 7 下段に4種のうちの1つを示した¹³⁾。この後、他グループによって中性子粉末磁気構造解析が行われ、ほぼ同等の磁気構造が提唱されている¹⁵⁾。Sm と Mn がコリニア磁気構造を持つ場合、1節で触れた交換歪 $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ の効果が支配的になり $\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$ の効果がほぼ無くなるため、 P_{ES} は反平行の P_{DM} によって打ち消されなくなり、トータルの P_s が増大する。また他の RMn_2O_5 では、 c 方向の磁気変調 q_z による格子変調 ($\mathbf{qL} = 2\mathbf{qM}$) が c 軸方向に反位相になり、隣接格子間で反平行に格子が歪むため、その歪が電気分極を与える原子変位と相殺する。一方 SmMn_2O_5 や GdMn_2O_5 では $q_z = 0$ のため、電気分極を与える b 軸方向の原子変位が、 c 軸に沿って一様に起こる。これらの要因が2つの物質で電気分極が大きくなる理由であると考えられる。

Fig. 8 は $\mathbf{Q} = (1/2, 0, 0)$ での OK 吸収端近傍における SmMn_2O_5 と GdMn_2O_5 の共鳴散乱スペクトル (a), (b) と共鳴エネルギーでの逆格子スキャンプロファイル (c), (d) であり、酸素サイトに $\mathbf{qM} = (1/2, 0, 0)$ を持つ磁気モーメントが誘起されていることが示されている。しかし両者の共鳴スペクトルが大きく異なっている。 GdMn_2O_5 では、 $O: 2p\text{-Mn}: 3d$ 間の軌道混成に対応するエネルギー $E_{ph} = 530$ eV 付近で強い共鳴が起こっており、スペクトル形状も含め、 RMn_2O_5 ($R = \text{Y}, \text{Er}$) において観測されたスペクトルと定性的に良く一致している¹⁶⁾。一方 SmMn_2O_5 ではこのエネルギーで共鳴散乱が起こらず、 $O\text{-Mn}$ 軌道混成に由来する酸素サイトのスピン偏極が消失している。更に $E_{ph} = 535$ eV 近傍の共鳴スペクトルも他の RMn_2O_5 とは異なっている。このピークは $O: 2p\text{-Sm}: 5d$ 間の軌道混成に由来していると考えているが詳細は不明である。このように SmMn_2O_5 は、 c 軸を向いたコリニア磁気構造を持ち、酸素サイトの磁性も起源が異なるという特異性を持っていることが分かってきた。酸素サイトの磁気モーメントも Sm, Mn 同様、 c 軸を向くことが共鳴散乱強度のアジマス角依存性により分かっている¹⁴⁾。Sm の単一イオン

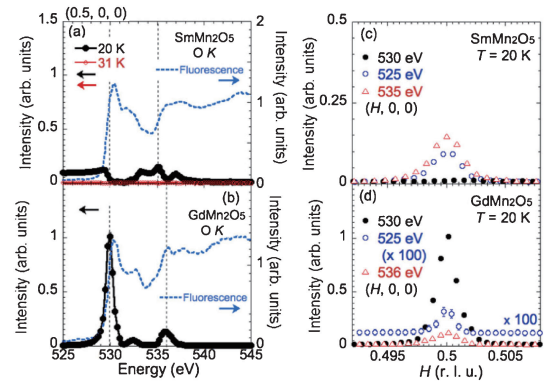


Fig. 8 (Color online) Energy spectra of Bragg peak intensity at $\mathbf{Q} = (0.5, 0, 0)$ around OK edge (a) at $T = 20$ K (filled circles) and $T = 31$ K (open circles) and the fluorescence spectrum (dashed line) for SmMn_2O_5 , and (b) GdMn_2O_5 . The H scan peak profile around $\mathbf{Q} = (0.5, 0, 0)$ at each energy for (c) SmMn_2O_5 and (d) GdMn_2O_5 , after Ishii, *et al.*¹³⁾.

異方性により酸素の磁気モーメントが c 軸を向き、Mn-O 間の直接交換相互作用により Mn 磁気モーメントも c 軸を向くと考えられるが、現状では推測の域を出ない。

4. μSR による RMn_2O_5 ($R = \text{Sm}, \text{Y}$) の酸素磁性の観測

RMn_2O_5 の常誘電相において、独立な酸素サイトは単位胞中に4つある。 OK 吸収端における共鳴 X 線磁気散乱により酸素サイトに磁気モーメントが誘起されることが明らかになったが、どこの酸素サイトに誘起されているのか、その磁気モーメントの大きさはどの程度なのか、は分かっていない。そこで我々は最近、 μSR を用いた酸素磁性の検出を試みた。ミュオンは正電荷とスピンを持つため、入射されると、物質中の特定のサイト (ミュオンサイト) に捉われ、内部磁場を感じて歳差運動をする。その後回転しながら崩壊する過程で放出される陽電子を観測することで内部磁場の情報が得られる。ミュオンは同時に水素の同位体であることから、 $O\text{-H}$ 結合により物質中の酸素近傍に捉われやすいため、酸素サイトの局所磁性を与える内部磁場を検出できる可能性がある。

実験はカナダの TRIUMF において、 SmMn_2O_5 及び YMn_2O_5 の単結晶を用いて行った。ゼロ磁場 μSR (ZF- μSR) 実験には M20 分光器、横磁場 μSR (TF- μSR) 実験には M15 分光器を用いた。現在投稿準備中のため、結果の詳細については割愛させて頂くが、TF- μSR によりミュオンサイトの特定に成功し、ZF- μSR の時間スペクトルの解析により、 YMn_2O_5 の $\text{Mn}^{4+}\text{-O-Mn}^{4+}$ 結合中の酸素サイトにおいて、磁気モーメントが存在することが確かめられた。一方で、 SmMn_2O_5 及び同酸素サイトではほとんどモーメントが誘起されていない事も明らかになった¹⁷⁾。この結果は、 OK 吸収端における共鳴 X 線磁気散

乱スペクトルにおいて、O-Mn 軌道混成に由来する酸素
スピン偏極が、 YMn_2O_5 では存在する¹⁶⁾のに対し、
 SmMn_2O_5 では存在しない¹⁴⁾事と合致する。

5. おわりに

以上、紙面の都合上駆け足になってしまったが、マルチ
フェロイック物質 RMn_2O_5 における中性子・放射光・ミ
ュオンを相補的に用いた構造物性研究について紹介した。
この物質の微視的磁性研究において、「中性子を用いて R,
Mn サイトの磁気構造を決定」し、「放射光を用いること
で、中性子では観えなかった Sm, Gd, 酸素サイトの磁気
秩序を元素選択的に検出」し、「ミュオンを用いることで
放射光では観えなかった磁性を担う酸素サイトの特定に成
功」した。詳細な実験・解析結果とサイエンスについて
は、是非参考文献を参照して頂きたいが、本研究を通し
て、中性子・放射光・ミュオンと新しい観測の「眼」を獲
得するに従い、明らかになったことがあると同時に新しい
未解決の発見があった。量子ビームが「課題解決」のみな
らず、「課題発見」のためのツールとして非常に有用であ
ると改めて認識させられた。一方で新しく見つけた課題が
「象」の本質を掴んでいるか、その評価は絶えず必要でも
ある。

最後に国内の量子ビーム大型施設に目を向けてみると、
J-PARC-MLF における中性子散乱・ミュオン施設が立ち
上がり、ビーム性能と装置性能が順調に向上してきてお
り、原子力機構の JRR-3 の再稼働の声も聞こえてきた。
一方放射光では FEL を用いた研究が普通に行われつつあ
り、軟 X 線領域の次世代放射光施設の計画も進んでい
る。これらの量・質共に飛躍的に向上した量子ビームを用
いることで、新たな相補性が生まれ、新しい課題（サイエ
ンス）の発見とその解決に繋がっていくことを期待したい
し、必ずそうなると信じている。

謝辞

本成果は、籠宮功博士（帝京大）、近桂一郎早稲田大学
名誉教授、野田幸男東北大学名誉教授、及び野田・木村研
究室の大学院学生と、博士研究員の小林悟博士（現岩手大）
及び福永守博士（現岡山大）の精力的な研究により得られ
たものである。偏極中性子回折実験は脇本秀一、武田全

康、加倉井和久（原子力機構）各博士との共同研究であり、
共鳴 X 線散乱実験は本田孝志（J-PARC）、中尾裕則、村
上洋一（KEK）各博士との共同研究である。更に、 μSR
実験は佐賀山基、岡部博孝、竹下聡史、幸田章弘、門野良
典（KEK）各博士との共同研究である。

本稿で紹介した実験は、東大物性研中性子全国共同利用、
PF 共同利用、及び TRIUMF 共同利用の元で行われた。

参考文献

- 1) N. Hur, S. Park, P. A. Sharma, J. Ahn, S. Guha and S.-W. Cheong: Nature **429**, 392 (2004).
- 2) M. Fukunaga, Y. Sakamoto, H. Kimura, Y. Noda, N. Abe, K. Taniguchi, T. Arima, S. Wakimoto, M. Takeda, K. Kakurai and K. Kohn: Phys. Rev. Lett. **103**, 077204 (2009).
- 3) 近桂一郎, 籠宮 功: 日本結晶学会誌 **41**, 342 (1999). 及びその参考文献参照.
- 4) H. Kimura, S. Kobayashi, Y. Fukuda, T. Osawa, Y. Kamada, Y. Noda, I. Kagomiya and K. Kohn: J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 074706 (2007).
- 5) J. B. Goodenough: Phys. Rev. **100**, 564 (1955); J. Kanamori: J. Phys. Chem. Solids **10**, 87 (1959).
- 6) L. C. Chapon, G. R. Blake, M. J. Gutmann, S. Park, N. Hur, P. G. Radaelli and S.-W. Cheong: Phys. Rev. Lett. **93**, 177402 (2004).
- 7) H. Katsura, N. Nagaosa and A. V. Balatsky: Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
- 8) I. A. Sergienko and E. Dagotto: Phys. Rev. B **73**, 094434 (2006).
- 9) M. Mostvov: Phys. Rev. Lett. **96**, 067601 (2006).
- 10) S. Wakimoto, H. Kimura, Y. Sakamoto, M. Fukunaga, Y. Noda, M. Takeda and K. Kakurai: Phys. Rev. B **88**, 140401 (R) (2013).
- 11) H. Kimura, Y. Sakamoto, M. Fukunaga, H. Hiraka and Y. Noda: Phys. Rev. B **87**, 104414 (2013).
- 12) N. Lee, C. Vecchini, Y. J. Choi, L. C. Chapon, A. Bombardi, P. G. Radaelli and S.-W. Cheong: Phys. Rev. Lett. **110**, 137203 (2013).
- 13) Y. Ishii, S. Horio, M. Mitarashi, T. Sakakura, M. Fukunaga, Y. Noda, T. Honda, H. Nakao, Y. Murakami and H. Kimura: Phys. Rev. B **93**, 064415 (2016).
- 14) Y. Ishii, S. Horio, H. Yamamoto, Y. Noda, H. Nakao, Y. Murakami and H. Kimura: Phys. Rev. B **98**, 174428 (2018).
- 15) G. Yahia, F. Damay, S. Chattopadhyay, V. Baledent, W. Peng, S. W. Kim, M. Greenblatt, M.-B. Lepetit and P. Foury-Leykian: Phys. Rev. B **95**, 184112 (2017).
- 16) R. A. de Souza, U. Staub, V. Scagnoli, M. Garganourakis, Y. Bodenthin, S.-W. Huang, M. Garcia-Fernandez, S. Ji, S.-H. Lee and S. Park: Phys. Rev. B **84**, 104416 (2011).
- 17) Y. Ishii, *et al.*, in preparation.

著者紹介



木村宏之

東北大学多元物質科学研究所 教授
E-mail: hiroyuki.kimura.b5@tohoku.ac.jp
専門：構造物性，中性子回折・散乱，X線回折・散乱

【略歴】

1999年，東北大学大学院理学研究科博士後期課程修了，博士（理学）。1999年-2001年，東北大学科学計測研究所，助手。2001年-2007年，東北大学多元物質科学研究所，助教。2007年-2012年，同准教授。2012年より現職。



石井祐太

東北大学大学院理学研究科物理学専攻 博士後期課程 3年
E-mail: yuta.ishii.s4@dc.tohoku.ac.jp
専門：構造物性

【略歴】

2016年，東北大学大学院理学研究科博士前期課程修了，修士（理学）。2019年，同後期課程修了見込，博士（理学）。

Magnetism and ferroelectricity in multiferroic materials studied by a complementary use of synchrotron X-ray, neutron and muon

Hiroyuki KIMURA Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University
Katahira 2-1-1, Aoba, Sendai 980-8577, Japan
Department of Physics, Tohoku University
Aramaki-Aza-Aoba 6-3, Aoba, Sendai 980-8578, Japan

Yuta ISHII Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University
Katahira 2-1-1, Aoba, Sendai 980-8577, Japan
Department of Physics, Tohoku University
Aramaki-Aza-Aoba 6-3, Aoba, Sendai 980-8578, Japan

Abstract We have studied multiferroic materials, where antiferromagnetism and ferroelectricity coexist, by means of a complimentary use of synchrotron x-ray, neutron, and muon. The neutron diffraction has revealed that the microscopic mechanism of the magnetically driven ferroelectricity. And the element-selective resonant x-ray magnetic scattering have found the induced spin polarization at oxygen site. We have also succeeded in detecting the local magnetism in the vicinity of oxygen site by using μ SR experiment.