

中性子散乱による磁性・強相関電子系の研究

左右田 稔

理化学研究所 創発物性科学研究センター

Abstract

中性子散乱は、原子核やスピンの微視的構造やダイナミクスを波数とエネルギーの四次元空間で測定し、物質の性質を明らかにする実験手法である。中性子ビームは、結晶格子の周期と同程度の波長、固体内のフォノンやマグノン等と同程度のエネルギーをもつため、中性子散乱は固体物理の研究においてとても重要な役割を担う。中性子散乱を行うことができる施設、三軸分光器やチョッパー分光器等のいくつかの中性子散乱装置を紹介するとともに、固体物理における磁性・強相関電子系の研究において中性子散乱がどのように使われているかを紹介する。

I. 中性子散乱について

中性子散乱は、物質の微視的構造やダイナミクスを測定するのにとても有効な実験手法である。中性子はスピンを持つため、結晶構造だけでなく、磁気構造の決定にしばしば用いられる。さらに、典型的な中性子線のエネルギーは数 meV~数百 meV であるため、フォノンやマグノンの測定も比較的容易に行うことができ、磁氣的相互作用を含めたスピンハミルトニアンへの導出も可能である。しかし、X線回折実験のように研究室内で行うことはできず、加速器・研究用原子炉施設で行わないといけないという欠点もある。

中性子散乱実験を行うことができる加速器・研究用原子炉施設は世界中にあり、最近ではハード・ソフト両面においてより使いやすくなっている [1]。さらに日本では、茨城県東海村に加速器を用いた物質・生命科学実験施設 (J-PARC・MLF) [2] と研究用原子炉 JRR-3 [3] があり、中性子散乱を比較的容易に挑戦できる。研究目的によっても様々な装置・手法が存在するが、ここではごく一部を簡単に紹介するのみである。中性子散乱の教科書として [4-7] 等があるため、興味を持った方は是非参考にさせていただきたい。

II. 基本原理

Figure 1(a) に標準的な三軸型分光器の模式図を示す。原子炉から出てくる中性子エネルギーは幅広いエネルギーを持つため、モノクロメーターで単色化する。入射運動量を k_i と記述する。 k_i に単色化された中性子は、試料によって散乱され

る。散乱運動量を k_f と記述する。アナライザーを用いることで、特定の k_f のみを観測できる。モノクロメーターやアナライザーは、Pyrolytic Graphite (PG) が使われることが多く、結晶の反射を利用して単色ビームを得ることができる。試料における散乱でのエネルギーと運動量の変化は下記のようなになる。

$$\hbar\omega = \left(\frac{\hbar^2}{2m_N}\right)(k_i^2 - k_f^2) \quad (1)$$

$$\mathbf{Q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i \quad (2)$$

$|k_i| = |k_f|$ の場合を弾性散乱といい、 $|k_i| \neq |k_f|$ の場合を非弾性散乱という。非弾性散乱のうち $\omega > 0$ の場合、散乱された中性子はエネルギーを失っているためエネルギーロス、逆に $\omega < 0$ の場合はエネルギーゲインと呼ばれる。三軸型分光器では、特定の \mathbf{Q} とエネルギーの中性子強度を 1 点ごとに測定することになる。

一方、加速器施設でしばしば使われているのは、中性子飛行時間法を用いたチョッパー分光器である。中性子飛行時間法では、中性子が detector までに到達する時間と距離から中性子のエネルギーを得る。Figure 1(b) に典型的なチョッパー分光器の概略図を示す。チョッパーによって入射中性子を単色するが、飛行時間から散乱中性子のエネルギーを決めることで、幅広い \mathbf{Q} とエネルギー領域を同時に測定する。さらにチョッパーを調整することで、入射エネルギーの異なるいくつかの中性子ビームを入れて同時に測定 (multi- E_i 測定) することも可能である [8]。

チョッパー分光器では、幅広い \mathbf{Q} とエネルギー領域を同時に測定できるが、測定される \mathbf{Q} とエネ

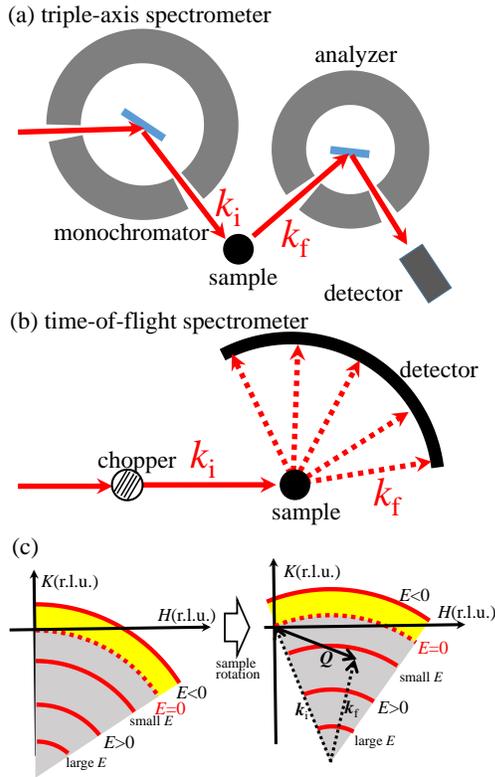


Figure 1: (a) Schematic triple-axis spectrometer. (b) Schematic time-of-flight spectrometer. (c) Measurable region in time-of-flight spectrometer.

ルギーを考慮する必要がある。単結晶を ab 面で軸立てし、特定の k_i を用いて測定される領域を、逆格子空間の $(H K 0)$ 面に投影したもの Figure 1(c) に示す。エネルギーによって測定される Q が異なっていることがわかる。また同じエネルギーに注目しても、測定される Q は単純ではなく、円状になる。幅広い領域で正確に中性子強度を測定するためには、試料を回転させることが必要となってくる。

さらにチョッパー分光器では、中性子が試料→冷凍機 OVC →試料→ detector といった経路で散乱することがしばしば起きる。中性子の飛行時間が長くなるため、解析ソフト上では中性子のエネルギーが小さくなり、非弾性散乱が起きたように表示される。このような本質的でない中性子強度がエネルギーロス領域に観測される

Table 1: Electron number Z and neutron scattering length b

	Z	b (10^{-13} cm)
^1H	1	-3.739
$^2\text{H(D)}$	1	6.672
O	8	5.804
Mn	25	-3.70
Cu	29	7.63
Pb	82	9.42

こともあり、注意が必要である。

三軸型分光器とチョッパー分光器は、固体物性研究ではよく用いられるが、meV のエネルギー領域の測定で用いられる装置である。研究目的によって装置を選ぶ必要があり、 μeV のエネルギー領域の研究では、back-scattering 装置や spin-echo 装置等が用いられることもあるがここでは省略する。

III. 核散乱と磁気散乱

物質に中性子を入射させると、物質内の原子核・磁気モーメントによって散乱される。前者は核散乱、後者は磁気散乱と呼ばれ、周期性のある結晶格子の核散乱は下記のように記述される。

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_N = \left|\sum_l b_l e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}_l}\right|^2 \quad (3)$$

b_l は散乱長であり、原子核ごとで決まる定数である。X線では、原子中の電子によって散乱が起きるため、 b_l の部分が原子形状因子で書かれる。X線の散乱振幅は原子内の電子の数 Z に比例するが、中性子の核散乱では、原子核ごとで決まるランダムな値をとる。Table 1 にいくつかの原子に対する散乱長を示す [4]。同位体によっても異なる値をとり、負の値をとることもある。原子番号の小さな原子でも大きな散乱長を持つこともあり、中性子散乱は、軽元素を含んだ物質の構造解析において大変有効な手段となりうる。

一方、X線実験と比較してデメリットもある。その一つが中性子の吸収である。原子核ごとに吸収断面積は異なるが、中性子散乱実験がほとんどできないほど大きな吸収断面積をもった原子核も存在する。そのような場合、吸収断面積の小さな同位体に置換する必要があるが、同位体

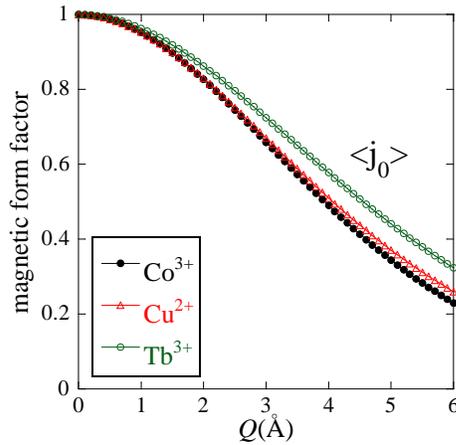


Figure 2: Q -dependence of magnetic form factors for several ions.

は高価なことが多い。もう一つのデメリットが、実験に大きな試料が必要なことである。最近では加速器や装置の発達に伴って、必要な試料の体積は小さくなっているが、X線と比較して大きな単結晶が必要であることが多々ある。そのため中性子散乱のための大型単結晶に対する試料チェック、軸立てを行う装置もある [9,10]。

中性子はスピンをもっているため、中性子は磁気モーメントによっても散乱される。磁気散乱は下記のように記述される。

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_M = \left| \sum_l (\mathbf{S} - (\mathbf{S} \cdot \hat{\mathbf{Q}}) \hat{\mathbf{Q}}) f_m(Q) e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_l} \right|^2 \quad (4)$$

\mathbf{S} は物質中の磁気モーメント、 f_m は磁気形状因子を示す。磁気散乱では、 $(\mathbf{S} - (\mathbf{S} \cdot \hat{\mathbf{Q}}) \hat{\mathbf{Q}})$ の項を持つことが大きな特徴であり、磁気モーメントの \mathbf{Q} に垂直成分に対応する。中性子散乱では、 $(\mathbf{S} - (\mathbf{S} \cdot \hat{\mathbf{Q}}) \hat{\mathbf{Q}})$ の項があるため、磁気モーメントの方向を含めた磁気構造を決定することが可能となる。Figure 2 に磁気形状因子の Q 依存性を示す [11]。大きな Q では磁気反射強度が低下するため、小さな Q で測定したほうが良いことがわかる。磁気散乱強度が磁気モーメントの大きさの2乗に比例していることも重要であり、磁気反射強度の温度変化から秩序変数が議論されることもある [12]。次章では磁気散乱の具体的な例について述べる。

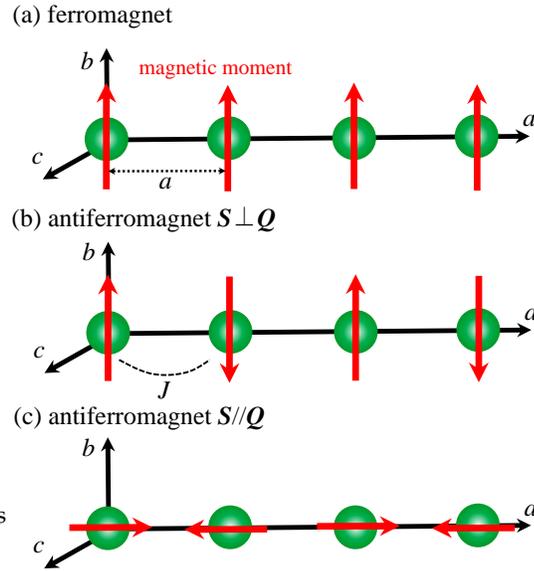


Figure 3: (a) ferromagnetic structure, (b) antiferromagnetic structure with $\mathbf{S} \perp \mathbf{Q}$, and (c) antiferromagnetic structure with $\mathbf{S} // \mathbf{Q}$ for the one dimensional chain. The magnetic propagation vector is along the a -axis, and the distance between the magnetic moments is a .

IV. 磁気弾性散乱

この章では、磁気弾性散乱についていくつかの例を示す。もっとも簡単な例として、一次元強磁性体を取り上げる。Figure 3(a) に一次元強磁性体の磁気構造を示す。格子定数が磁気モーメント間の距離 a と等しい場合、 $\mathbf{Q}=(1,0,0), (2,0,0), (3,0,0), \dots$ において核反射、磁気反射両方が観測される。次に Figure 3(b) と 3(c) に一次元反強磁性体の磁気構造を示す。磁気モーメントが伝搬ベクトルと垂直な場合 (Fig. 3(b))、 $\mathbf{Q}=(1/2,0,0), (3/2,0,0), (5/2,0,0), \dots$ に磁気反射が観測されるが、磁気モーメントが伝搬ベクトルと平行な場合 (Fig. 3(c))、 $\mathbf{Q}=(1/2,0,0), (3/2,0,0), (5/2,0,0), \dots$ に磁気反射は観測されない。これは Eq. (4) の $(\mathbf{S} - (\mathbf{S} \cdot \hat{\mathbf{Q}}) \hat{\mathbf{Q}})$ 項のためである。もちろんであるが、Fig. 3(c) の磁気構造を持つ場合でも、 b, c 軸方向に周期性があれば、 $\mathbf{Q}=(1/2, K, L), (3/2, K, L)$ 等で磁気反射が観測されることはある。このように中性子散乱実験では、磁気反射が観測され

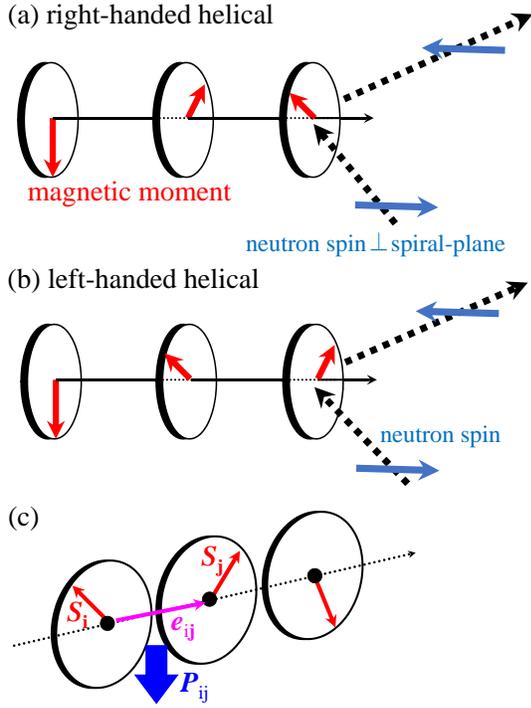


Figure 4: (a,b) Schematic of right-handed and left-handed helical magnetic structures. (c) Relationship between spins and electric polarization in spin-current model.

る Q や散乱強度から磁気モーメントの方向を決定することができる [13]。

中性子がスピンを持っていることによって、磁気散乱が観測されることはすでに述べたが、その中性子スピンをそろえた偏極中性子散乱実験を行うことによって、さらなる磁気構造情報を得ることもできる [14]。中性子スピンと磁気モーメントが平行か反平行の場合、散乱前後で中性子スピンの方向は変化しないが、中性子スピンと磁気モーメントが垂直の場合、散乱前後で中性子スピンの方向が反転する。散乱前後の中性子スピンの方向を観測することで物質中の磁気モーメントの方向を正確に求めることが可能となる。また、核散乱では中性子スピンの反転が起きないので、核散乱と磁気散乱の区別においても偏極中性子実験はしばしば行われる。

偏極中性子散乱実験によってヘリカル磁気構造のスピнкаイラリティの方向を決定することも可能である。Figure 4(a), 4(b) に右巻きヘリ

カル、左巻きヘリカル磁気構造を示す。このような長周期磁気構造では、 $Q_0 \pm q$ に磁気反射が観測されるが、磁気反射強度は下記のように記述される。

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\tau \pm q} \propto S(\kappa) \{ (1 + (\hat{C} \cdot \hat{\kappa})^2) |V_{RH} + V_{LH}| \mp 2(\mathbf{p}_N \cdot \hat{\kappa})(\hat{C} \cdot \hat{\kappa}) |V_{RH} - V_{LH}| \} \quad (5)$$

$S(\kappa)$ は構造因子、 κ は散乱ベクトル、 V_{RH} 、 V_{LH} は右巻きヘリカル、左巻きヘリカルの体積比率を示す。 τ は逆格子ベクトル、 C はベクトルスピнкаイラリティ、 \mathbf{p}_N は入射中性子の偏極ベクトルを示す。入射中性子スピンを偏極させることによって、 V_{RH} と V_{LH} の差を決めることができる。

物性にスピнкаイラリティが直接関係するものとしてマルチフェロイック物質が挙げられる。マルチフェロイック物質では、スパイラル磁気構造と強誘電分極が密接に結びついており [15]、spin-current モデル (逆 Dzyaloshinsky-Moriya 相互作用モデル) では、強誘電分極は下記のように記述される [16]。

$$P_{ij} \propto e_{ij} \times (S_i \times S_j) \quad (6)$$

Figure 4(c) に spin-current モデルにおける磁気構造と分極方向の関係を示す。Eq. (6) からわかるように、分極の方向はスパイラルの回転方向によって決定される。様々なマルチフェロイック物質に対して電場印加中で偏極中性子散乱実験を行われ、スピнкаイラリティと強誘電分極方向の関係が研究されている [17,18]。その結果、電場印加によって右巻き、左巻きスピнкаイラリティが制御可能であることが明確にされた。スピнкаイラリティを直接決定できる偏極中性子散乱実験は、マルチフェロイック研究において大変有効な手段となっている。

V. 磁気非弾性散乱

前章では、散乱前後の中性子エネルギーが変化しない弾性散乱について述べたが、次に中性子エネルギーが変化する非弾性散乱について述べる。中性子非弾性散乱実験では、格子に起因するフォノンと、スピンに起因するマグノンの両方が観測できるが、ここでは主に磁気非弾性散乱について述べる。

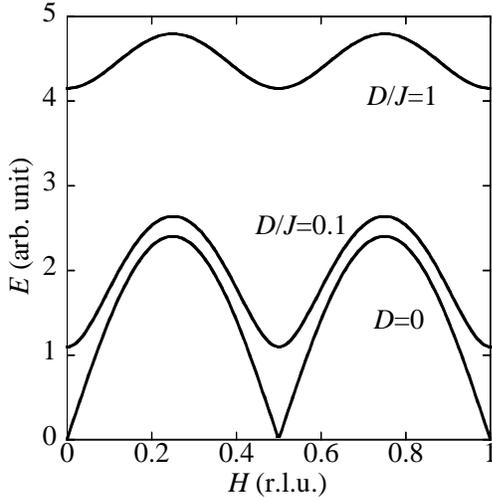


Figure 5: Dispersion of one dimensional antiferromagnet.

i. 反強磁性体

Figure 3(b) の一次元反強磁性体におけるスピン波を考える。交換相互作用 J と単イオン異方性 D を含んだハイゼンベルクモデルのスピンハミルトニアンは、

$$\mathcal{H} = \sum_{l,m} JS_l \cdot S_m + D \sum_l (S_l^z)^2 \quad (7)$$

と記述できる。Figure 2(b) のモデルにおいて上記のスピンハミルトニアンから計算されるスピン波のエネルギー $\hbar\omega$ は

$$(\hbar\omega)^2 = 4S^2(D^2 + 2JD + J^2 \sin^2(2\pi H)) \quad (8)$$

となる。Figure 5 に D/J の値を変化させた場合のそれぞれのエネルギー分散を示す。中性子散乱実験では、 \mathbf{Q} と E を幅広く測定することによって交換相互作用 J や単イオン異方性 D を決定することができる。

一方、エネルギー分散だけではスピンハミルトニアンを決定できないこともある。その際、詳細に中性子散乱強度まで解析することで XXZ スピンやスピン四極子相互作用 [19] 等を含んだ複雑なスピンハミルトニアンを決定することも可能である。一般的な磁気散乱断面積は

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right) = \frac{k_f}{k_i} \sum_{\alpha,\beta} |f_m(\mathbf{Q})|^2 (\delta_{\alpha\beta} - \hat{Q}_\alpha \hat{Q}_\beta)$$

$$\times S_{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) \quad (9)$$

$$S_{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar}$$

$$\times \int \int \langle S_{m\perp\alpha}(0) S_{n\perp\beta}(t) \rangle e^{i(\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r} - \omega t)} d\mathbf{r} dt \quad (10)$$

と記述される。これを計算することによって中性子散乱強度を求めることができるが、複雑になるため、ここで詳しくは触れない。しかし、Fig. 5 において、エネルギー分散だけでは区別がつかない $\mathbf{Q}=(1/2,0,0)$, $(1,0,0)$ の中性子散乱強度は大きく異なることだけは述べておく。

スピンハミルトニアンを用いてスピン波分散や中性子強度を計算する code として SpinW がある [20,21]。単純なスピンハミルトニアンなら、交換相互作用や単イオン異方性の値を入れるだけで中性子散乱結果を計算してくれるため、中性子散乱の知識がない人でも容易に使える。さらに、磁気構造解析や Monte Carlo Simulation 等も行える。興味がある方は是非使ってみていただきたい。

ii. クラスタ

次にクラスタ磁性体を取り上げる。反強磁性相互作用 J をもつ 2 つのハイゼンベルクスピンを考えると、スピンハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = JS_1 \cdot S_2 \quad (11)$$

と記述できる。 $S=1/2$ の場合は、Fig. 6(a) に示すように $S=0$ の singlet とエネルギーが J だけ大きい $S=1$ の triplet に分裂することは簡単に計算できる。 $S=1/2$ のダイマーに対して中性子散乱を行ったとき、singlet と triplet の遷移を見ることがになるので、Fig. 6(b) 上図のようにエネルギー分散は持たない。一方、中性子散乱強度は、クラスタサイズに依存した Q 依存性を持つ。 $S=1/2$ のダイマーに対する粉末中性子散乱強度は、

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right) \propto \left(1 - \frac{\sin(QR)}{QR} \right) \quad (12)$$

となる [7]。ここでは簡単のため、磁気形状因子は定数 1 としている。Figure 6(b) の下図にスピン間距離 $R=3 \text{ \AA}$ に対する Eq. (12) をプロットする。クラスタサイズに起因する周期が中性子強度に表れることがわかる。クラスタ磁性体で

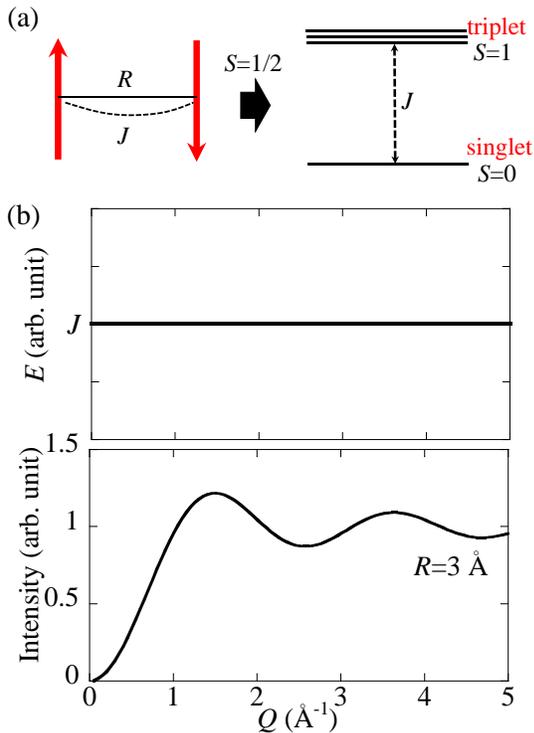


Figure 6: (a) Schematic of dimer and energy levels with $S=1/2$ dimer. (b) Neutron intensity for the dimer with $S=1/2$.

は、中性子非弾性散乱実験を行うことによって、クラスターサイズやエネルギー準位を知ることができ、そこからスピンハミルトニアンを決定することができる。また、エネルギー分散を持たないため、粉末を用いた中性子実験でも解析が比較的容易である。もちろんダイマーだけでなく、モノマー、トライマー、四面体クラスター等を形成する様々な物質において中性子散乱実験が行われ、磁気モデルの決定がされている [22,23]。

iii. フォノンとの区別

最後に、中性子散乱実験におけるフォノンとマグノンの区別について述べておく。中性子散乱では、核散乱と磁気散乱があるため、フォノンとマグノンが同時に観測される。Figure 7にフォノンの分散関係の概念図を示す。フォノン測定では、transverse acoustic (TA)、longitudinal acous-

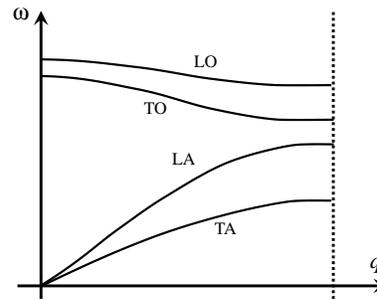


Figure 7: Schematic of phonon dispersion.

tic (LA)、transverse optical (TO)、longitudinal optical (LO) フォノンといった様々なモードが観測される。中性子散乱では、測定する Q を選ぶことでフォノンの transverse モードと longitudinal モードは容易に区別できる。

さらに中性子散乱では、測定された中性子強度が格子起源なのかスピン起源なのかも区別する必要がある。一般的な中性子実験では、強度の温度変化と $|Q|$ 依存性によって区別することが多い。磁気散乱強度は、磁気モーメントの大きさの 2 乗に比例するので、磁気転移温度の前後で測定を行うことによって、磁気散乱の寄与を見積もることが可能である。さらに、ボーズ因子

$$n(\omega) = \frac{1}{\exp(\hbar\omega/k_B T) - 1} \quad (13)$$

を考えると、フォノン生成は $(n(\omega)+1)/\omega$ 、マグノン生成は $n(\omega)+1$ に中性子強度が比例するので、その温度変化からも推測可能である。

一方、 $|Q|$ 依存性を考えると、磁気散乱強度は磁気形状因子の 2 乗に比例し、フォノン強度はおおよそ $|Q|^2$ に比例する。 $|Q|$ 依存性から格子起源、スピン起源を区別することは可能である。さらに磁気励起は小さな $|Q|$ での測定、フォノンは大きな $|Q|$ での測定をすることで効率よく測定することもできる。

フォノンとマグノンを区別する別の方法として、偏極中性子実験手法を使うこともある。磁気弾性散乱において、散乱前後の中性子スピンの反転・非反転を観測し、格子起源、スピン起源を区別することについてすでに述べたが、弾性散乱だけでなく、非弾性散乱においても同様なことが言える。さらに偏極中性子実験では、スピン・格子相関による特殊な散乱も観測される

ので、様々な物性情報を得ることができる。しかし偏極中性子実験では、特定の中性子スピン方向だけを選び出すので、理想的な場合でも中性子ビーム強度は半分となり、測定時間はより多くかかる。偏極中性子実験を行える装置も多くはないので、実験効率を考慮してどのような実験を行うか考える必要がある。

VI. おわりに

中性子散乱を用いた磁性・強相関電子系の研究として、弾性散乱実験、非弾性散乱実験に関していくつかの簡単な例を紹介した。中性子散乱では、中性子がスピンと meV のエネルギーを持っていることから、磁気モーメントの秩序状態やダイナミクスを観測できる。これは、磁性・強相関電子系の研究において、とても有効であり、微視的機構解明の最終的実験手段にもなりうる。中性子散乱実験を行わない方でも、本テキストを通して中性子散乱へ興味を持ち、論文中の中性子実験データの理解や中性子散乱研究者との共同研究につながればうれしく思う。

REFERENCES

- [1] Neutronsources.org のホームページ (最終閲覧日: 2018 年 5 月 1 日) [https://neutronsources.org]
- [2] J-PARC・MLF のホームページ (最終閲覧日: 2018 年 5 月 1 日) [https://j-parc.jp/MatLife/ja/index.html]
- [3] JRR-3 のホームページ (最終閲覧日: 2018 年 5 月 1 日) [https://jrr3.jaea.go.jp/]
- [4] 星埜禎男 (責任編集), "中性子回折" (共立出版, 1976).
- [5] G. L. Squires, "Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering" (Cambridge University Press, 1978).
- [6] S. W. Lovesey, "Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter" (Oxford University Press, 1984).
- [7] A. Furrer, J. Mesot, and T. Strässle, "Neutron Scattering in Condensed Matter Physics" (World Scientific, 2009).
- [8] M. Nakamura, R. Kajimoto, Y. Inamura, F. Mizuno, M. Fujita, T. Yokoo, and M. Arai, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 093002 (2009).
- [9] 東京大学物性研究所益田研究室のホームページ (最終閲覧日: 2018 年 5 月 1 日) [https://masuda.issp.u-tokyo.ac.jp/instruments.html]
- [10] S. Hayashida, M. Soda, S. Itoh, T. Yokoo, K. Ohgushi, D. Kawana, and T. Masuda, Phys. Proc. **75**, 127 (2015).
- [11] P. J. Brown, *International Tables for Crystallography*, ed. A. J. C. Wilson (Kluwer, Dordrecht, 1992) Vol. C, Chap. 4.
- [12] S. Hayashida, O. Zaharko, N. Kurita, H. Tanaka, M. Hagihala, M. Soda, S. Itoh, Y. Uwatoko, and T. Masuda Phys. Rev. B **97**, 140405(R) (2018).
- [13] M. Soda, S. Hayashida, B. Roessli, M. Månsson, J. S. White, M. Matsumoto, R. Shiina, and T. Masuda, Phys. Rev. B **94**, 094418 (2016).
- [14] B. Roessli and P. Böni, cond-mat/0012180 (2000).
- [15] T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, T. Arima and Y. Tokura, Nature **426**, 55 (2003).
- [16] H. Katsura, N. Nagaosa and A. V. Balatsky, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
- [17] Y. Yamasaki, H. Sagayama, T. Goto, M. Matsuura, K. Hirota, T. Arima and Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. **98**, 147204 (2007).
- [18] M. Soda, K. Kimura, T. Kimura, M. Matsuura, and K. Hirota, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 124703 (2009).
- [19] M. Soda, M. Matsumoto, M. Månsson, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Shiina, and T. Masuda, Phys. Rev. Lett. **112**, 127205 (2014).
- [20] S. Toth and B. Lake, J. Phys.: Condens. Matter **27**, 166002 (2015).

- [21] SpinW のホームページ (最終閲覧日: 2018年5月1日) [<https://www.psi.ch/spinw>]
- [22] M. Soda, Y. Honma, S. Takamizawa, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, and T. Masuda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 034717 (2016).
- [23] T. Haku, K. Kimura, Y. Matsumoto, M. Soda, M. Sera, D. Yu, R. A. Mole, T. Takeuchi, S. Nakatsuji, Y. Kono, T. Sakakibara, L.-J. Chang, and T. Masuda, *Phys. Rev. B* **93**, 220407(R) (2016).