

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料 〔令和5（2023）年度 中間評価用〕

令和5年3月31日現在

研究期間：2021～2025
課題番号：21H04987
研究課題名：中性子スピン偏極物性科学の開拓
研究代表者氏名（ローマ字）：藤田 全基 (FUJITA Masaki)
所属研究機関・部局・職：東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号：20303894

研究の概要：

広い運動量・エネルギー領域で電荷・格子・軌道の自由度が結合したスピンドYNAMIKSの全貌を明らかにする手法として、高エネルギー中性子偏極デバイスと多重外場環境（温度・磁場・圧力・電場）を組み合わせた「共鳴スピン分解法」を実現する。これを高温超伝導体とスピン流・熱電変換物質に適用して、物性発現の要となる複合スピン状態を解明する。

研究分野：量子ビーム科学関連

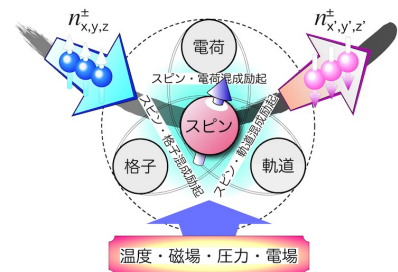
キーワード：偏極中性子散乱、高温超伝導、スピントロニクス、スピンドYNAMIKS

1. 研究開始当初の背景

近年、スピン自由度を主体とする材料開発と物性開拓が益々脚光を浴びている。隆盛が際立つスピントロニクス科学では、スピン角運動量の流れであるスピン流を光・熱・電気に変換し、これらを磁化で総合的に制御することが目指されている。その伝動機構と変換機構の解明には、非平衡安定状態でのスピンの運動を微視的に観測する必要がある。また、電子多自由度の混成効果が顕著な遷移金属化合物では、スピンと電荷・軌道・格子の自由度と結合した「マルチダイナミクス」が、多彩な物性を理解する上で注目されている。事実、多自由度相関係の代表格である銅酸化物高温超伝導体では、電荷・格子振動と結合した複合スピンドYNAMIKSが超伝導に関与することが示されている。スピンの運動をエネルギー・運動量空間で観測できる中性子散乱法は優れた測定手法で、スピン偏極した中性子ビームを利用すれば、物質内のスピン情報を高感度かつ選択的に取得できる。しかし、従来法では観測可能なエネルギー・運動量領域に制限があり、エネルギースケールが大きい複合状態を如何に検知するかが課題となっている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、(I) ダイナミクスの内部構造を決める手法として、温度・磁場・圧力・電場の制御下における偏極中性子散乱法を提案し、高エネルギー中性子分光器でこれを実現すること、および(II) この手法を活用して、プロトタイプの高温超伝導体とスピン流・熱電変換物質における多自由度が結合したスピン状態を解明することである。その技術的な最終到達点として、スピン偏極率90%以上の中性子ビームを用いた100 meVまでの励起に対する偏極度解析の実現とし、偏極環境と多重外場環境が両立する測定環境の構築を目指す。また、電荷・格子・軌道の自由度が結合した複合励起から純粋スピン成分を抽出し、その外場応答から結合成分も把握することで、多電子自由度が絡むスピンドYNAMIKSの全貌を示す。これにより、スピンが絡む量子物性の発現機構を解明し、「中性子スピン偏極物性科学」への道を拓く。



研究内容の概念図。偏極中性子を用いて、電子が持つ多自由度の複合励起から詳細なスピン情報を引き出す。試料に外場を印加することでスピン状態の変化を誘起し、さらに詳しい情報を得る。

3. 研究の方法

本研究では、高エネルギーの複合スピンドYNAMIKSの素性を明らかにし、その中から物性発現の要となるスピン状態を抽出できる新しい測定手法「共鳴スピン分解法」の実現を目指す。このために、(1)スピン交換光ポンピング法による高エネルギー中性子偏極デバイスを高エネルギー分光器に実装し、(2)多重外場環境（温度・磁場・圧力・電場）と共存する統合測定環境を構築する。この手法の特徴は、偏極中性子ビームにより成分分解したスピン情報の中から、外場応答し、かつ、物性変化に対応する「活きたダイナミクス」を決定するである。高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}(\text{Sr}, \text{Ba})_x\text{CuO}_4$ とスピン流・熱電変換物質 $\text{RE}_3(\text{Fe}, \text{Ga})_5\text{O}_{12}$ (RE: 希土類) を最初の研究対象に選び、本手法の有効性を示す。これらを通して、複合スピンドYNAMIKSが、どのように物性発現に関わっているかを微視的に解明する。

4. これまでの成果

^3He 用ガラスセルを内包したコンパクトな SEOP システムを作成し、性能評価と高度化を進めた。透過率

測定の結果、セル透過後の中性子の偏極度は、波長 $\lambda > 2.5 \text{ \AA}$ でほぼ 100%であることが分かり、 ^3He の偏極度 80%を達成した。これは SEOP 法による ^3He 偏極度として非常に高い値であり、中性子非弾性偏極実験に利用できる高性能な SEOP システムが開発できことを意味する。実際に、本研究で開発した SEOP システムを MLF の複数の中性子ビームラインに導入して、偏極中性子の利用試験を行う事もできた。また、磁石の線材に高温超伝導体を採用し、軟鉄からなるヨークを組み合わせることで、コンパクト超伝導磁石の開発と ^3He フィルター位置での漏洩磁場を 5G 以下に抑えることに成功した。本研究課題の難関と考えられた SEOP システムと両立する超伝導磁石の導入を予定通り完遂することができた。同時に多重外場環境の実現に向けて、圧力デバイスの開発や低温測定環境の構築も進めた。

複合励起に関する予備的測定と外場印加のテスト実験は、研究対象物質である高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}(\text{Sr}, \text{Ba})_x\text{CuO}_4$ とスピン流・熱電変換物質 $\text{Tb}_3(\text{Fe}, \text{Ga})_5\text{O}_{12}$ について行った。具体的内容は、(i) $\text{Tb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ について、偏極中性子による 30 meV 以下のエネルギー領域のマグノン極性の調査、(ii) 非偏極中性子で低エネルギーマグノンに対する磁場効果の調査、(iii) 非偏極高エネルギー中性子で $\text{Tb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ のマグノン分散の全貌とその温度依存性の測定、(iv) 非偏極中性子と放射光で $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ のフォノンと結晶場励起に対する磁場印加効果の調査、(v) 非偏極中性子で $\text{La}_{2-x}(\text{Sr}, \text{Ba})_x\text{CuO}_4$ のスピン・電荷秩序に対する圧力効果の調査、(vi) 共鳴 X 線で新規 T*構造銅酸化物 $\text{Sm}_{0.75}\text{LaSr}_{0.25}\text{CuO}_4$ のスピン波励起の全体像の観測、などである。非常に多くのデータを取得するとともに、インパクトのある学術的成果を得て論文にまとめた。また、「共鳴スピン分解法」を実施する上での経験値を高めることができ、本研究の専任教員や関係大学院生の教育に資する重要な機会を提供することもできた。

5. 今後の計画

2022 年度までに開発した SEOP システムを用いて、偏極した ^3He スピンフィルターを利用する偏極中性子実験を遂行する。様々な実験条件に適用するため、 ^3He ガス圧や形状の異なる ^3He ガラスセルを設計・製作するとともに、中性子ビームライン上で SEOP 法により ^3He ガスを偏極するオンビーム型 SEOP システムの導入を進める。J-PARC の分光器を基盤として、「共鳴スピン分解法」の実施環境を構築するとともに、中性子ビームの有効利用と測定環境の構築を効率的に推進するため、JRR-3 熱中性子分光器も活用する。既存の JRR-3 装置にはない波長帯域の入射中性子ビームを利用するため、Cu モノクロメータの導入を検討する。多重外場下で偏極非弾性散乱に関しては、これまでに単独の外場印可環境の開発を進めてきたが、2023 年以降は、これらを組み合わせた最適環境を構築する。特に、2022 年度に導入した超伝導磁石と合わせた試料環境の整備を進め、SEOP システムとも組み合わせることで、目標である多重外場環境下での偏極実験を実施する。代表者が研究をリードする対象物質について、予備的なデータを蓄積してきた。そのため、「共鳴スピン分解法」による狙い所は絞れており、実験を遂行して高温超伝導体とスピン流・熱電変換物質の物性発現の根幹となる複合スピン励起の素性を解明する。

6. これまでの発表論文等（受賞等も含む）

- [1] J.-J. Wen, W. He, H. Jang, H. Nojiri, S. Matsuzawa, S. Song, M. Chollet, D. Zhu, Y.-J. Liu, M. Fujita, J. M. Jiang, C. R. Rotundu, C.-C. Kao, H.-C. Jiang, J.-S. Lee, and Y. S. Lee, Enhanced charge density wave with mobile superconducting vortices in $\text{La}_{1.885}\text{Sr}_{0.115}\text{CuO}_4$, *Nature Commun.* **14**, 733-1-733-6 (2023).
- [2] K. Ikeuchi, S. Wakimoto, M. Fujita, T. Fukuda, R. Kajimoto, and M. Arai, Spin excitations coupled with lattice and charge dynamics in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, *Phys. Rev. B* **105**, 014508-1-014508-7 (2022).
- [3] T. Ino, S. Fukumura, P. Strasser, M. Fujita, Y. Ikeda, S. Kanda, M. Kitaguchi, S. Nishimura, T. Oku, T. Okudaira, H. M. Shimizu, and K. Shimomura, Optically Polarized Alkali Metal Cell for Muonic Helium Measurements, *JPS Conf. Proc.* **37**, 021208-1-021208-5 (2022).
- [4] S. Takada, M. Fujita, Y. Goto, T. Honda, K. Ikeda, Y. Ikeda, T. Ino, K. Kaneko, R. Kobayashi, M. Okawara, T. Oku, T. Okudaira, T. Otomo, and S. Takahashi, Study of magnetic environment for neutron spin filters using polarized ^3He at J-PARC and JRR-3, *JPA Conf. Proc.* (accepted)
- [5] S. Takahashi, R. Kiyonagi, R. Kobayashi, T. Okudaira, T. Ino, J. Suzuki, K. Kakurai, and T. Oku, The first polarized neutron diffraction experiment at the time-of-flight single crystal neutron diffractometer SENJU at J-PARC, *JPS Conf. Series* (accepted)

7. ホームページ等

<http://qblab.imr.tohoku.ac.jp>