

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年5月22日現在

機関番号：11301
 研究種目：挑戦的萌芽研究
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23654112
 研究課題名（和文）新奇強磁性非平衡物質の合成と磁気相互作用の解明
 研究課題名（英文）Development for novel ferromagnetic non-equilibrium materials and search for magnetic interactions
 研究代表者
 遠藤 康夫（ENDO H YASUO）
 東北大学・金属材料研究所・名誉教授
 研究者番号：00013483

研究成果の概要（和文）：

中性子散乱をツールとしてスピントロニクス材料の強磁性相互作用の直接検出を目標としている。研究の為にバルク試料が必須で非平衡状態での試料作製を目指してメカニカルミリングを使って結晶育成を試み準安定相を実現する試作条件を得た。並行して粉末や多結晶試料でスピノ波が直接観測出来る J-PARC パルス中性子を使った中性子ブリリアン散乱法を高分解能チョッパー装置で確立した。

研究成果の概要（英文）：

The major goal of this project is to measure directly the ferromagnetic interactions in the ferromagnetic materials for the spintronics devices. Bulk materials mandatory for this specific purpose have been developed to be grown in the nonequilibrium condition by the mechanical milling method. At the same time, new neutron scattering method to measure spin wave scattering from powder materials has been completed by combining pulsed neutrons and high resolution chopper instrument installed at J-PARC.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,900,000	870,000	3,770,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：スピントロニクス、強磁性半導体、中性子非弾性散乱、新奇強磁性、非平衡合成、メカニカルミリング

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクス研究は今世紀に入って急激に発展した分野である。従ってエレクトロニクスデバイスに必須の磁性素子の開発競争も熾烈である。その中で薄膜合成に依って、磁性金属をドーパした強磁性半導体の創成が確立されつつある。これらの物質はエピタキシャルないしスパッタリングで非平衡的に薄膜を創成しているが、出来るだけ低温で熱処理をして準安定相を作ることによって高性能を

得ている。本研究は中性子散乱をツールとして強磁性相互作用の検出を目標としている為にある程度の体積を確保出来るバルク試料が必須である。つまり、バルク強磁性半導体を創成する目的を第一に考えて、非平衡状態での試料作製を目指した結晶育成から開始することにした。非平衡状態の物性に洞察を加えるという視点も併せ持っている。

2. 研究の目的

室温で強磁性を示す半導体物質の創成を目指して、遷移金属を注入した半導体や酸化物を非平衡状態で合成して物性測定を経て中性子非弾性散乱によってスピン波測定の準備をする。単結晶が得られないので、粉末試料や多結晶からスピン波散乱を測定する方法を確立する事が必須である。従来中性子ブリリアン散乱は光のブリリアン散乱に倣って開発されて来たが、低エネルギーの中性子を用いる為に励起エネルギーに制限が加わり、目的の様に強い強磁性体のスピン波観測には適さない。どうしても高エネルギー中性子を発射するパルス中性子を用いた方法の開発が必要である。

将来的には、偏極中性子による中性子磁気散乱が容易に出来る様に偏極や偏極度解析の為に実験方法を確立することも視野に入れている。同時に、スピントロニクス原理の追求の一つとしてスピン流 (spin current) の機構解明を目指す。この為の準備研究に着手する。

3. 研究の方法

- (1) 試料作成は東北大金研に設置されているメカニカルミリング装置を使って各々の金属の微粉末を当量に混ぜて、室温でミリング合成をする。ミリング速度やミリングの時間などをパラメーターにして最適条件を見つける。
- (2) ミリングで合成した試料をサンプリングして、化学分析、磁化測定、x線回折によって物理、化学的性質を測定する。
- (3) 中性子ブリリアン散乱の開発の為に、モーメントが大きく且つ強磁性転移温度が高い強磁性試料 (実際にはMn酸化物) を使って強磁性相でのスピン波の観測を可能にする。この方法は原理的に古い。パルス中性子による高エネルギー中性子を入射し、非弾性散乱を小角度の散乱角度でS/N比の高い高性能のデータが出る様に開発する。この方法が確立すれば1.で用意した試料のスピン波測定を行う。

4. 研究成果

本研究は中性子散乱をツールとして強磁性相互作用の検出を第一目標としている。繰り返しになるが、その為にはある程度の体積を取るバルク試料が必須である。バルク強磁性半導体を創成する為に、低温で焼成する非平衡状態での試料作製を目指す為に、先ずメカニカルミリングを使って結晶育成を試みた。その後室温でミリング合成をした粉末試料を加熱してquenchする方法で非平衡状態を実現し、物性の変化を調べた。平成23年度

は東日本大震災の影響で大幅に計画が遅れた。漸く9月以降に実験研究を再開させたが、測定機器の調整と材料となる原料粉の入手が極端に困難となり年度末に手元に到着したので多くの実験は持ち越しとなった。現時点においても研究計画の根幹をなすJRR3に於ける中性子散乱実験の再開の目処が立っていないので殆ど手つかずの状態が続いている。

Cr doped ZnTe

メカニカルミリング法によってZnTeにCr5%ドーブした強磁性半導体の創成法を確立し、試料焼成条件の最適条件を見つけ磁化などの特性を明らかにした。メカニカルミリングをして得られた試料のXPDプロファイルから判断するとCrZnTeがメインではあるが僅かにCrTeの混入が観られる試料と実験誤差範囲内で混入が無い試料が出来この差が出来る条件も把握した。CrZnTeはZn-Blende型結晶で、ZnTeより僅かに(最大3%)の格子常数の膨張が観られる。熱処理を施すと予想通り低温(300°C)まではZn Blende型の結晶を維持するがこれより高温で熱処理を行うと明らかにZnTeと他の相との相分離が起り、それとともに強磁性磁化の値が激減する。現時点ではメカニカルミリング直後の状態が最も高い強磁性転移温度を示す。焼成温度が高い程転移温度は下がる。飽和磁化は焼成温度が高くなると激減し、かつhysteresis(磁場冷却と無磁場冷却の差)が大きくなる。キュリー温度(強磁性転移温度)と格子常数(単位格子の大きさ)の大きさに相関がありミリング生成直後。あるいは室温での合成時が最も高いことが判明した。

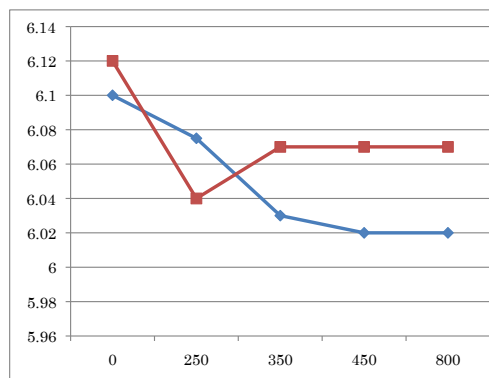


図1 格子常数、キュリー温度と焼成温度との相関、青線は格子常数、赤線はキュリー温度を示す。

Mn doped MnO & MnAs

MnOにMnをドーパした試料のメカニカルミリングに着手した。MnOの混入が観られるが試料創成の可能性はあるものの強磁性を示す化合物を創成出来る確信が得られていない。LiZnMnAsの試料創成を試行しているがLiをハンドルする為の環境整備を試みている段階で研究実施期間が終了した。

中性子ブリリアン散乱

最も成果が上がったのはパルス中性子を用いて散乱角を小角にし(forward scattering)保って(000)からのスピン波散乱を観測する中性子ブリリアン散乱を再考させたことである。J-PARCに建設したHRCチョッパー分光器に小角(0.5度)の散乱角でも高性能(最大のS/N比が取れ精度高くスピン波の非弾性散乱が観測可能になるように装置開発を進めた結果これに成功した。目的の強磁性半導体のスピン波の実験はマシンタイムの都合で25年度に持ち越されたが現在観測を試みる準備をしている。

J-PARCのBL13に設置されたHRCと名付けられたチョッパー分光器を整備して、小角でmeV領域の非弾性散乱が出来る様に中性子光学、入射ビーム方向の装置雑音を細小にする為の工夫を凝らした。その結果、典型的な強磁性物質のスピン波分散が普通に撮れるようになり、所謂「neutron Brillouin Scattering法」を世界で始めて確立した。

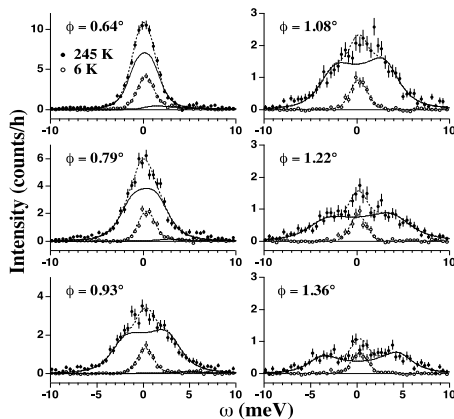


図2、NBSの測定例。非弾性成分にスピン波によるピークが観測されている。phiは散乱角で最小は0.5度である。omega=0にあるピークは弾性非干渉性散乱。

その結果は論文[1]などに掲載し、強磁性酸化物で注目を集めているSrRuO₃のスピン波実験を行っ

て立方晶にも拘らず大きなスピン波エネルギーギャップの存在を見つけた。さらに温度変化などを測ってSrRuO₃が典型的な強磁性金属(局在型)であることを検証し従来予想されて来た遍歴型弱強磁性金属(ストーナー型)の概念を根底から覆した。

残念ながらマシンタイムの都合で目標とするCrドーパしたZnTe試料の測定は来年以降に持ち越した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

1. S. Itoh, Y. Endoh, T. Yokoo, D. Kawana, Y. Kaneko, Y. Tokura, M. Fujita, Neutron Brillouin scattering with pulsed pallation neutron source- spin-wave excitations from ferromagnetic powder samples -, J. Phys. Soc. Jpn. 82, 043001, 2013, 査読有り DOI: 10.7566/JPSJ.82.043001

2. K. Ishii, K. Tsutsui, K. Ikeuchi, I. Jarrige, J. Mizuki, H. Hiraka, K. Yamada, T. Tohyama, S. Maekawa, Y. Endoh, H. Ishii, Y. Q. Cai, Electronic excitations around the substituted atom in La₂Cu_{1-y}Ni_yO₄ as seen via resonant inelastic x-ray scattering, Phys. Rev. B 85, 104509, 2012, 査読あり DOI: 10.1103/PhysRevB.85.104509

[学会発表] (計2件)

1. S. Itoh, T. Yokoo, D. Kawana, and Y. Endoh, Magnetic Brillouin Neutron Scattering on High Resolution Chopper Spectrometer (HRC), 10th International Conference on Quasielastic Neutron Scattering, 2012年10月2日, Nikko
2. H. Hiraka and D. Matsumura, XAFS study on Ir- dimer formation across the metal-insulator transition in Ir sulfides, Summit of

Materials Science (SMS2012), 2012年11月
26日, Sendai

[図書] (計1件)

1. 中性子散乱 遠藤康夫 朝倉書店
(2012.4) 220頁

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

遠藤 康夫 (ENDO H YASUO)
東北大学・金属材料研究所・名誉教授
研究者番号：00013483

(2) 研究分担者

平賀 晴弘 (HIRAKA HARUHIRO)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号：90323097

伊東 恵司 (ITO H KEIJI)
岡山大学・大学院教育学研究科・准教授
研究者番号：80324713

(3) 連携研究者

大山 研二 (Ohoyama Kenji)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号：60241569

佐藤 豊人 (Sato Toyoto)
東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：20455851

伊藤 晋一 (Itoh Shinichi)
高エネルギー加速器研究機構・物質構造研
究所・教授
研究者番号：00221771