

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月8日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04007

研究課題名(和文) 新しい偏極中性子散乱手法を用いた高次スピン及び軌道自由度の検出

研究課題名(英文) Detection of higher-order spin and orbital degrees of freedom through novel polarized neutron scattering techniques

研究代表者

南部 雄亮 (Nambu, Yusuke)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：60579803

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では以下のテーマを推進した。(1) 圧力下で超伝導を示す鉄系梯子型物質 BaFe₂Se₃ について軌道秩序の存在を解明し、BaFe₂Se₃ については空間群の詳細同定から極性の存在を突き止めた。双方の物質について、中性子とミュオンを組み合わせることで8桁に渡る磁気揺動の定量的解明に成功した。(2) 三角格子磁性体 NiGa₂S₄ について、中性子散乱実験と磁気ラマン散乱から磁気四重極子相関の存在を明らかにした。また、8.5 Kの異常について偏極中性子散乱によりベクトルカイラリティ誘起による機構を解明した。(3) スピントロニクス基盤物質 Y₃Fe₅O₁₂ について、マグノン極性を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁気四重極子、カイラリティ、軌道揺らぎ等の高次スピン自由度および軌道自由度に基づく物性は磁性研究の分野で注目されており、実験的証拠は蓄積されているものの、その直接検出が待望されてきた。例えば、中性子散乱は二点相関関数を検出するため、磁気散乱で観測できるのはスピンスピン相関のみに限られる。それゆえスピン自由度が担う相関と素励起の観測には威力を発揮してきたが、高次スピン自由度および軌道自由度については現行の手法では傍証しか得ることしかできなかった。本研究で得られた新しい中性子散乱手法とその他の実験による観測は電子の新奇自由度の理解を深め、他の自由度への波及効果という点でも意義深いと考えられる。

研究成果の概要(英文)：We have conducted the following research topics. (1) In iron-based ladder compound BaFe₂Se₃ which shows superconductivity under pressures, an orbital order is elucidated. Polar state is identified in BaFe₂Se₃ through a detailed determination of the space group. Dynamical magnetism in these compounds is examined by combining neutrons and muons, and characteristic timescale of spin fluctuations spanning eight orders in magnitude is quantitatively measured. (2) For the triangular antiferromagnet NiGa₂S₄, magnetic quadrupole correlation was clarified from neutron and Raman scattering experiments. We also elucidated the vector chirality-driven anomaly at 8.5 K through polarized neutron scattering. (3) We discovered the magnon polarization in the spintronics material Y₃Fe₅O₁₂.

研究分野：物性物理学

キーワード：物性実験 中性子散乱 鉄系超伝導 フラストレート磁性 スピントロニクス

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系において従来型の秩序を抑えた際に現れる新奇な状態は物性物理学のフロンティアとして永く注目を集めてきた。例として磁性体においてはスピンアイスや valence bond solid 等が知られ、これまで盛んに研究されてきた。近年は研究の進展に伴い、スピン自由度のみでは説明できない物性が多く報告されている。それらは、スピンを超えた高い自由度や、スピンのみならず電荷・軌道を組み合わせた協奏的な自由度で構成されており、具体的には、磁気四重極子相関やカイラリティ、軌道揺らぎなどが挙げられる。磁気四重極子(スピンネマティック)相関とカイラリティは磁気単極子(モノポール)、双極子(スピン)に次ぐ高い次数を持つ新奇秩序状態として、また軌道揺らぎは鉄系超伝導の発現機構として重要視されている。

スピンネマティック状態については応募者らの二次元三角格子反強磁性体での初めての量子スピンサイズ依存性[1]から、カイラリティ自由度については中性子散乱による低温での磁気揺らぎの解明[2]などからその存在が確実視されるようになってきている。また、軌道自由度については我々によって世界で初の鉄系梯子型物質における超伝導誘起に成功[3]し、そのバルク物性、中性子散乱、メスバウア効果を通じた測定から軌道揺らぎ・秩序の傍証が挙がっている。しかしながら、中性子散乱によるそれらの直接的観測には至っていないのが現状である。

2. 研究の目的

本研究の目的は、新たに考案した(偏極)中性子散乱手法を用いて、これまでの実験手段では直接検出されなかった高次スピン自由度、および軌道自由度の検出を行うことにある。また、中性子以外にも磁気抵抗、弾性抵抗、磁気ラマン測定などを相補的に用いることで、これらの新奇自由度の検出を目指した。

また、研究の進行過程において、スピントロニクス分野におけるマグノンスピン流の伝搬過程に注目した。絶縁体におけるスピン流はマグノン歳差運動の横方向成分に依存することが知られており、新しい偏極中性子散乱手法によってマグノンの極性を直接検出できる可能性を見出した。

3. 研究の方法

鉄系梯子型物質 AFe_2X_3 ($A = Cs, Ba; X = S, Se$) について、粉末・単結晶試料を固相反応法・徐冷法により合成し、X線回折などを用いて評価した。巨視的物性測定として、磁化率、比熱、(圧力下)電気抵抗、磁気抵抗、弾性抵抗測定を行った。また、結晶点群同定のため二次高調波生成実験を行った。中性子散乱実験は J-PARC 設置の BL12 HRC、オークリッジ国立研究所設置の BL-14B HYSPEC、アメリカ国立標準技術研究所設置の NGA NSE、オーストラリア ANSTO 設置の ECHIDNA を用いて行った。ミュオン実験は J-PARC の D1、S1 装置を用いて行った。

三角格子反強磁性体 $NiGa_2S_4$ について、単結晶試料は化学気相輸送法により合成した。磁気ラマン散乱、および J-PARC 設置の BL01 4SEASONS とアメリカ国立標準技術研究所設置の BT9 MACS を用いて(偏極)中性子散乱実験を行った。

ガーネット $Y_3Fe_5O_{12}$ の単結晶試料はフローティングゾーン法により合成した。磁化率測定からキュリー温度を確認し、(偏極)中性子散乱実験はオークリッジ国立研究所設置の BL-14B HYSPEC、オーストラリア ANSTO 設置の SIKA、フランス ILL 設置の IN20 を用いて行った。

4. 研究成果

以下に本研究で得られた成果を研究テーマごとにまとめる。

(1) 二次元面上で誘起される鉄系超伝導の発現機構を理解するため、空間次元の異なる系からのアプローチを試みている。鉄系梯子型物質は鉄系超伝導の一次元版類似化合物として理解され、我々は $BaFe_2S_3$ において圧力印加による超伝導相を世界で初めて報告した。鉄系超伝導では鉄の多軌道を反映して軌道自由度が注目されている。圧力下で超伝導を示す鉄系梯子型物質 $BaFe_2S_3$ についても軌道自由度由来の異常が示唆されていた[3]。この物質について角度分解磁気抵抗、弾性抵抗測定を行い、磁気転移温度よりも高温で軌道秩序が引き起こされていることを明らかにし、中性子回折により決定したストライプ型磁気構造と合わせて候補となる軌道秩序の型を同定することに成功した。この結果については現在、Phys. Rev. Lett. に投稿中である。

$BaFe_2S_3$ がストライプ型磁気構造を持つのにに対し、 $BaFe_2Se_3$ はブロック型磁気構造を取る[4]。その磁気構造を群論的に記述するには複表現を用いる必要があり、ランダウ理論との整合性から結晶の空間群のそもそもの低対称性化が疑われていた。今回、二次高調波生成実験(SHG)により点群の同定を行い、中性子粉末回折データの再解析を組み合わせることで、400 K での構造相転移を突き止めた。空間群はこれまで報告されていた $Pnma$ ではなく、 $Pmn2_1$ であることを解明し、磁気構造も正しく単一の規約表現で記述できることを確認した。得られた空間群から $BaFe_2Se_3$ は鉄系化合物において極性を持つ初めての物質であることを実験的に証明することが

できた ([雑誌論文] ①)。

これら BaFe_2Se_3 、 BaFe_2S_3 はともに中性子回折から磁気秩序の存在が明らかになっているが、磁気転移温度で比熱に異常が見られない。また、散漫散乱から短距離相関が存在し、時間スケールの異なるメスバウアと中性子では磁気転移温度が異なるなど低次元性を反映した特徴が見られる。 BaFe_2Se_3 および BaFe_2S_3 についてチョッパー分光器、中性子スピンエコー、ミュオン実験を組み合わせることで 8 桁に渡る磁気揺動の温度変化を調べた。その結果、磁気転移温度以下においても動的磁性の成分は残り、40 K 程度まで保持されることがわかった。この梯子-梯子間のエネルギースケールに対応する温度以下で磁性が準静的になることを突き止めた。また、この実験と相補的に BaFe_2Se_3 について磁気励起測定を行った。複数軸立てした単結晶試料を用いて 50 meV までの磁気励起を観測し、スピン波計算と比較することで超交換相互作用の見積もりを行った。これらの結果については現在論文投稿準備中である。

BaFe_2S_3 以外の物質での更なる超伝導相誘起を目指し、磁性が抑えられる $(\text{Ba}_{1-x}\text{Cs}_x)\text{Fe}_2\text{Se}_3$ 希釈系 [5] についてその圧力効果を調べた。中間濃度領域で絶縁体金属転移誘起に成功し、電気抵抗の温度依存性から絶縁体の性質を明らかにした ([雑誌論文] ⑨、⑤)。

(2) 磁気四重極子相関が低温で発達すると考えられている三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 について、高次スピン相関に対応する、散乱の第一 Born 近似から逸脱した項を観測することを目的に中性子散乱実験を行った。その結果、磁気揺動の時間スケールに依存して、磁気信号が変化することを確認した。今後、解析の精度を上げ、第二次項の観測の有無について決定づける。また、磁気四重極子相関の他の実験的検出手段として、磁気ラマン散乱を行った。その結果、 E_g モードフォノンによる磁気弾性効果により、40 K 以下において強的な磁気四重極子相関が発達することが分かった。この結果については現在論文投稿中である。

バルク物性における 8.5 K の異常については偏極中性子散乱からスピンの異方性の変化が確認され、理論計算との比較からベクトルカイラリティ誘起による Z_2 渦の異常であることが示唆される。この結果については現在論文投稿準備中である。

(3) 新しい偏極、考案。

電子の持つ電荷に加え、スピン自由度に着目したスピントロニクスの研究において、スピンの流が大きな注目を集めている。スピントロニクスを更なる応用に繋げるためには、基盤物質 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG) の磁気励起を正しく理解する必要がある。この物質はギルバート減衰定数が最小のフェリ磁性体としてよく知られているが、その磁気励起を観測したものは 1970 年代の報告に限られている。そこでチョッパー型分光器を使用し広範囲の (Q, ω) 空間での磁気励起を観測し、低エネルギー磁気励起について冷中性子三軸分光器を用いて詳細に決定した。その結果、これまでの報告とは異なり、磁気ブラッグ点から対称性の高い逆格子空間方向について強磁性的な相関が発達していることがわかった。

また、スピンゼーベック効果の性能を決めるマグノンモード極性について、偏極中性子非弾性散乱を用いたカイラル項測定から初めて決定することができた。通常、偏極中性子は核散乱と磁気散乱の分離に用いられることが多いが、中性子偏極を散乱ベクトル方向に平行に揃え、共線の磁気構造を持つ磁性体について非弾性領域で実験を行った例は初めてである。YIG には音響と光学の二つの主要なマグノンモードが存在する。今回、三軸分光器を用いた σ_x 偏極実験により、それぞれのマグノン極性を明らかにした。その結果、二つのモードはそれぞれ逆符号の極性を持ち、昇温によって光学モードがソフト化することから、逆符号の極性による影響でスピンゼーベック効果の信号が減衰する機構を明らかにすることができた。この結果については現在論文投稿準備中である。

<引用文献>

- [1] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101**, 207204 (2008).
- [2] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **115**, 127202 (2015).
- [3] H. Takahashi, A. Sugimoto, Y. Nambu *et al.*, Nat. Mat. **14**, 1008 (2015).
- [4] Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 064413 (2012).
- [5] T. Hawaii, Y. Nambu *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 184416 (2015).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 10 件) 全て査読有り

- ① T. Aoyama, S. Imaizumi, T. Togashi, Y. Sato, K. Hashizume, Y. Nambu, M. Avdeev, Y. Hirata, M. Matsubara, and K. Ohgushi, Polar State induced by Block-type Lattice Distortions in BaFe_2Se_3 with Quasi-One-Dimensional Ladder Structure, Physical Review B (R), in press.
- ② D. Okuyama, M. Bleue, J.S. White, Q. Ye, J. Krzywon, G. Nagy, I.Z. Quan, I. Živković, M. Bartkowiak, H.M. Rønnow, S. Hoshino, J. Iwasaki, N. Nagaosa, A. Kikkawa, Y. Taguchi, Y. Tokura, D. Higashi, J.D. Reim, Y. Nambu, and T.J. Sato, Deformation of the moving magnetic skyrmion lattice in MnSi under electric current flow, Communications Physics,

in press.

- ③ K. Matan, T. Ono, G. Ghitgeatpong, K. de Roos, M. Ping, S. Torii, T. Kamiyama, A. Miyata, A. Matsuo, K. Kindo, S. Takeyama, Y. Nambu, P. Piyawongwatthana, T. J. Sato, and H. Tanaka, Magnetic structure and high-field magnetization of the distorted kagome lattice antiferromagnet $\text{Cs}_2\text{Cu}_3\text{SnF}_{12}$, *Physical Review B* **99**, 224404 (2019). DOI: 10.1103/PhysRevB.99.224404
- ④ 山内徹, 平田靖透, 高橋博樹, 南部雄亮, 佐藤卓, 大串研也, 梯子型鉄系化合物 BaFe_2S_3 における圧力誘起超伝導, *固体物理* **54**, 27 (2019). <https://www.agne.co.jp/kotaibutsuri/kotal054.htm#no635>
- ⑤ C. Kawashima, H. Soeda, H. Takahashi, T. Hawaii, Y. Nambu, T.J. Sato, Y. Hirata, and K. Ohgushi, High-pressure electrical resistivity studies for $\text{Ba}_{1-x}\text{Cs}_x\text{Fe}_2\text{Se}_3$, *Journal of Physics: Conference Series* **950**, 042031 (2017). DOI: 10.1088/1742-6596/950/4/042031
- ⑥ T. Ino, M. Ohkawara, K. Ohoyama, T. Yokoo, S. Itoh, Y. Nambu, M. Fujita, H. Kira, H. Hayashida, K. Hiroi, K. Sakai, T. Oku, and K. Kakurai, Development of a polarized ^3He neutron spin filter for POLANO at J-PARC, *Journal of Physics: Conference Series* **862**, 012011 (2017). DOI: 10.1088/1742-6596/862/1/012011
- ⑦ J.D. Reim, K. Makino, D. Higashi, Y. Nambu, D. Okuyama, T.J. Sato, E.P. Gilbert, N. Booth, and S. Seki, Impact of minute-time-scale kinetics on the stabilization of the skyrmion-lattice in Cu_2OSeO_3 , *Journal of Physics: Conference Series* **828**, 012004 (2017). DOI: 10.1088/1742-6596/755/1/011001
- ⑧ K. Makino, J.D. Reim, D. Higashi, D. Okuyama, T.J. Sato, Y. Nambu, E.P. Gilbert, N. Booth, S. Seki, and Y. Tokura, Thermal stability and irreversibility of skyrmion-lattice phases in Cu_2OSeO_3 , *Physical Review B* **95**, 134412 (2017). DOI: 10.1103/PhysRevB.95.134412
- ⑨ T. Hawaii, C. Kawashima, K. Ohgushi, K. Matsubayashi, Y. Nambu, Y. Uwatoko, T.J. Sato, and H. Takahashi, Pressure-Induced Metallization in Iron-Based Ladder Compounds $\text{Ba}_{1-x}\text{Cs}_x\text{Fe}_2\text{Se}_3$, *Journal of the Physical Society of Japan* **86**, 024701 (2017). DOI: 10.7566/JPSJ.86.024701
- ⑩ M. Kinoshita, S. Seki, T. J. Sato, Y. Nambu, T. Hong, M. Matsuda, H. B. Cao, S. Ishiwata, and Y. Tokura, Magnetic Reversal of Electric Polarization with Fixed Chirality of Magnetic Structure in a Chiral-Lattice Helimagnet MnSb_2O_6 , *Physical Review Letters* **117**, 047201 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevLett.117.047201

[学会発表] (計 53 件) 代表的なもののみ記す

- ① (招待講演) 南部雄亮, 量子ビームを用いたスピンの時空間相関の研究, 日本物理学会第 74 回年次大会, 2019 年 3 月 15 日
- ② 南部雄亮, 岡研吾, 越智正之, 複合アニオン化ペロブスカイト $\text{Pb}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{F}_2$ における結晶場変化によるスピンプロップ, 日本物理学会第 74 回年次大会, 2019 年 3 月 14 日
- ③ (招待講演) Y. Nambu, Role of magnon mode helicity in the spin current, 53rd REIMEI International Workshop “New excitations in spintronics”, February 12, 2019.
- ④ (招待講演) Y. Nambu, Helicity of magnon modes in YIG, The 17th Japan-Korea Meeting on Neutron Science, January 8, 2019.
- ⑤ (招待講演) 南部雄亮, 中性子を用いたスピンドイナミクスの研究, 第 28 回日本 MRS 年次大会, 2018 年 12 月 19 日
- ⑥ 南部雄亮, 磁性体における偏極中性子散乱研究 一定常炉・核破砕炉の相補利用を見据えて, 東京大学物性研究所中性子セミナー, 2018 年 8 月 20 日
- ⑦ (招待講演) 南部雄亮, カイラル磁性絶縁体 Cu_2OSeO_3 における磁気スキルミオンの中性子小角散乱, 2017 年度量子ビームサイエンスフェスタ, 2018 年 3 月 3 日
- ⑧ (招待講演) Y. Nambu, Magnetic excitations in YIG: Neutron scattering study, Reimei/GP-Spin/ICC-IMR International Workshop “New Excitations in Spintronics”, January 12, 2018.
- ⑨ (招待講演) 南部雄亮, 中性子を用いた複合アニオン化合物の磁性研究, 日本磁気学会第 215 回研究会/第 61 回化合物新磁性材料専門研究会, 2017 年 11 月 1 日
- ⑩ (招待講演) 南部雄亮, 複合アニオン研究に中性子が貢献できること, 第 7 回 CSJ 化学フェスタ 2017, 2017 年 10 月 17 日
- ⑪ 南部雄亮, 鈴木謙介, 羽合孝文, 長尾道弘, 横尾哲也, 伊藤晋一, 岡部博孝, 幸田章宏, 門野良典, 今泉聖司, 橋詰和樹, 青山拓也, 今井良宗, 大串研也, 中性子とミュオンでみた鉄系梯子型物質 BaFe_2Se_3 の動的磁性, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 21 日
- ⑫ Y. Nambu, K.M. Suzuki, S. Imaizumi, K. Hashizume, T. Aoyama, Y. Imai, and K. Ohgushi,

- Dynamical magnetism in the iron-based ladder compound BaFe_2Se_3 through multi-probe techniques, 28th International Conference on Low Temperature Physics, August 10, 2017.
- ⑬ Y. Nambu, K. M. Suzuki, H. Okabe, A. Koda, R. Kadono, S. Imaizumi, K. Hashizume, T. Aoyama, Y. Imai, and K. Ohgushi, Magnetic dynamics in the iron-based ladder compound BaFe_2Se_3 , The 14th International Conference on Muon Spin Rotation, Relaxation and Resonance, June 26, 2017.
 - ⑭ 南部雄亮, Y. Qiu, T. R. Gentile, W. Chen, S. Watson, C. Broholm, 三角格子反強磁性体 NiGa_2S_4 の偏極中性子弾性散乱, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 20 日
 - ⑮ (招待講演) Y. Nambu, Magnetic excitations in YIG revisited, The 37th REIMEI Workshop on Frontiers of Correlated Quantum Matters and Spintronics, January 15, 2015.
 - ⑯ (招待講演) 南部雄亮, 中性子でみた鉄系梯子型物質の磁気揺動, KEK-S 型課題中性子スピネコー研究会, 2016 年 10 月 4 日
 - ⑰ (招待講演) Y. Nambu, Magnetism of the triangular antiferromagnet NiGa_2S_4 and introduction of POLANO, Polarised Neutrons for Condensed Matter Investigations, July 6, 2016.
 - ⑱ (招待講演) 南部雄亮, 偏極中性子を用いた研究展望と POLANO の現状, Workshop: CROSSroads of Users and J-PARC 第 18 回「偏極ターゲットと偏極中性子技術開発」, 2016 年 6 月 15 日
 - ⑲ (招待講演) Y. Nambu, Spin fluctuations on a triangular lattice, Summit of Materials Science, May 18, 2016.

[その他]

ホームページ等

http://www.mext.go.jp/b_menu/houdou/29/04/__icsFiles/afieldfile/2017/04/11/1384228_02.pdf

<http://www.imr.tohoku.ac.jp/kinken-mapping/00-201707.html>

<https://www.jps.or.jp/activities/awards/jusyosya/wakate2019.php#r3>

<http://www.sci.tohoku.ac.jp/news/20190228-10141.html>

http://www.phys.tohoku.ac.jp/cat_jp/post-2411/

<http://www.imr.tohoku.ac.jp/ja/news/awards/2019/#aw1103>

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。