

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25287094

研究課題名(和文)中性子散乱による温度勾配下での素励起流測定

研究課題名(英文)Elementary excitation measured under a temperature gradient by neutron scattering

研究代表者

社本 真一 (SHAMOTO, Shin-ichi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・研究主席

研究者番号：90235698

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,100,000円

研究成果の概要(和文)：イットリウム鉄ガーネット(YIG)は高効率のスピンゼーベック効果で最近注目されている。温度勾配によるこのYIGのスピン波への影響を、2つのエネルギー分解能が異なる中性子非弾性散乱装置、四季とAMATERASで測定した。もっとも磁気散乱強度の強い(220)の低エネルギーのスピン波について、最大で1.4K/mmの温度勾配と並行な+qと-qの磁気散乱強度に、エラーバー程度とわずかだが熱流とは逆方向で強度増加が観測された。またDNAでの測定を含めたこの一連の研究で、これまでに測定されていない約10 microeVから90 meVまでの非常に幅広いエネルギーのYIGスピン波の測定に成功した。

研究成果の概要(英文)：We have studied spin wave of yttrium iron garnet (YIG) crystal with high performance for spin Seebeck effect under temperature gradient by inelastic neutron scattering spectrometers, 4SEASONS and AMATERAS at J-PARC/MLF. The low energy spin wave intensity measured at (220) magnetic Bragg peak position showed a little increase to the opposite direction at +q and -q points under a temperature gradient less than 1.4K/mm. The observed change was comparable to error bar. During a series of our study, extremely wide energy range of YIG spin wave from about 10 microeV to 90 meV (upper boundary) is successfully explored for the first time by using state-of-the-art inelastic neutron scattering spectrometers, DNA, AMATERAS, and 4SEASONS at J-PARC/MLF.

研究分野：Neutron scattering

キーワード：Spintronics Spin Seebeck effect Neutron scattering Temperature gradient Yttrium iron garnet Spin wave

1. 研究開始当初の背景

これまでスピン流は、スピンホール効果、スピンゼーベック効果、スピン移行トルクなど、様々な新しい実験手法において観測されている[1]。しかし、これらの手法は、電流とスピン流の相互変換、あるいはスピン流から磁気モーメントへの角運動量の移行を利用するものであり、スピン流自体の直接的かつ定量的な測定には至っていない。温度勾配などの非平衡条件下ではスピン波などで特定方向の流れが生じ、その方向をうまく選ぶことで、スピン波の散乱強度 $S(Q, \omega)$ が中性子との運動量のやり取りの結果として、正負の q に関して非等価になることが期待される。一方、申請者は、大強度化が実現されている J-PARC の物質・生命科学実験施設 MLF のパルス中性子非弾性散乱装置 BL01「四季」を用いて、鉄系超伝導体の磁気励起スペクトルの強度分布を測定するなかで、正負の運動量空間の同時測定を利用して、非平衡状態としてのスピン流の測定ができるのではないかと考え、この挑戦的な実験を試みることにした。この中性子非弾性散乱装置の特徴のひとつとして、 $^3\text{HePSD}$ 中性子ディテクターが散乱角ゼロのダイレクトビームの上下左右に配列されていることがある。このため、波数ゼロ ($Q=0$) の中心から比較的広い逆格子空間にわたって散乱ベクトル Q に関して、上下左右対称で向きに関係なく同じ条件で測定することが可能である。中性子は電荷を持たず、スピンを持つことから磁性に敏感で、これまでにスピン波などその分散が多く測定されてきた。しかしこれまでの中性子散乱では、中性子強度が弱く、スピンの揺らぎの測定には大きな単結晶が必要であった。そのため、さらに強度の弱い非平衡状態のスピン波を初めとした素励起の流れは、まだ世界中のどこでも観測できていない。しかし、J-PARC では徐々に出力を上げ、パルス強度としては世界最高の強度となったことから、スピン流のような課題を、一般に非平衡状態での素励起の流れとして捉えて、総合的に取り組む意義が出てきた。

2. 研究の目的

非平衡状態の素励起の流れを中性子散乱で調べる研究全体構想の中で、本研究では温度勾配下での単結晶中のスピン波の流れを中性子散乱で調べる。温度勾配ベクトルを ∇T とすると、その下では熱流が結晶中の様々な素励起を媒介として運ばれる。これらの流れは素励起の数、すなわちボーズ因子に反映されることから、例えば、 ∇T の向きに対して正負の運動量 ($+q$ と $-q$) で中性子の散乱強度が変わる。また流れにより寿命が変化すれば、幅の変化となって現れる。すなわち中性子をプローブとすることで、 ∇T との関連を正負の運動量 ($+q$ と $-q$) とエネルギーとを同時に

散乱強度として測定することが可能となる。イットリウム鉄ガーネット (YIG) を中心として、スピン波を平衡状態と非平衡状態とで比較し系統的に研究することを本研究の目的とした。

3. 研究の方法

現在、水銀ターゲットのトラブルにより出力を 200kW まで下げている J-PARC の物質・生命科学実験施設 MLF で、多くのディテクターが配置されているパルス中性子非弾性散乱装置、四季、AMATERAS、DNA の 3 つを用いて、非平衡状態として YIG 単結晶試料に温度勾配などをつけて、10 meV 以下の低エネルギーで非弾性散乱実験を行ってきた。この関連研究は挑戦的であるにも関わらず、J-PARC/MLF ですべての申請課題が採択され、順調に実験ができた。図 1 に示すように低温で大きな温度勾配をつけられる低温ユニットを製作し、またそれが設置できる 4K 冷凍機付きのクライオスタットを製作した。また永久磁石を用いて磁場を試料にかけられる磁場ユニットとともに、専用の低温スティックも製作した (図 2)。測定した YIG 大型単結晶の育成には、不純物による散乱の可能性を減らすために、育成速度を 1mm/h のものだけでなく、0.6mm/h の結晶も育成した。合わせて超伝導体 FeSe の測定も行った。

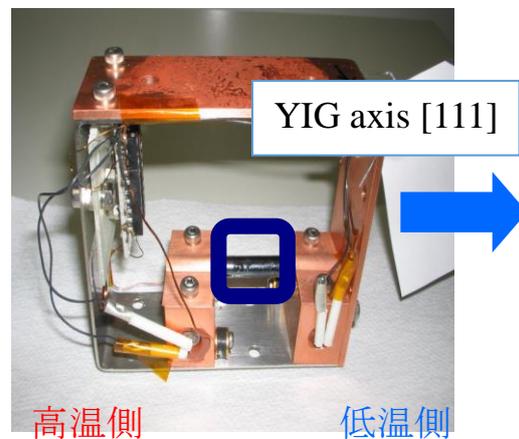


図 1. 温度勾配用低温ユニット。



図 2. 永久磁石を用いた磁場ユニット。

4. 研究成果

温度勾配の実験では、磁壁の存在下で5~35K程度の温度勾配によるYIGのスピンの影響を、2つのエネルギー分解能が異なる中性子非弾性散乱装置、四季とAMATERASで測定した。対象エネルギーは5 meV以下であるが、Multi-Eiオプションにより、同時に幅広いエネルギー領域の測定が可能となる。そのため四季では3~140 meVまでの幅広い領域のスピンを、またAMATERASでは、2~10 meVのスピンを測定できた。もっとも散乱強度の強い(220)付近の低エネルギーのスピンのについて、最大で1.4K/mmの温度勾配と並行な+qと-qの磁気散乱強度の変化を調べたところ、図3に示すように、エラー程度と小さいものの、わずかな強度変化が熱流とは逆方向で観測された。四季での実験結果も含めて図4に結果をまとめる。この結果の解釈については現在、検討中である。

一方で磁場下での中性子散乱測定にはJ-PARC/MLFでは制限が多い。そのことから、永久磁石による磁場ユニットと専用の低温測定スティックを製作した。ここでは反磁場係数が小さくなるように棒状に育成したYIGの長手方向に磁場をかけ、漏れ磁場が小さくなるように鉄製のアームで磁気回路が閉じるように製作した。リング型ネオジム磁石のBr値は約12kGaussで、単結晶試料上の磁場は約1kGaussとなった。そして試料中心から300mmでの磁場の漏れは約1Gaussに抑制することができた。これにより単一ドメインのYIG単結晶試料のDNAでの中性子散乱測定が可能になった。

高エネルギーのスピンの波としては、これまでの計算 [2] では、 $J_{aa}/J_{ad}=0$, $J_{dd}/J_{ad}=0.2$, $J_{ad}=3.0$ meVとしたとき、最大のエネルギーが120 meVになっていたが、今回の実験で、約90 meVが最大であることがわかり、 $J_{ad}=2.3$ meV程度であることがわかった。図5には30meV付近までの Σ 方向へのスピンの分散を示す。黒丸が約20 Kでの分散であり、赤丸が約280 Kでの分散である。これまで光学モードのソフト化が報告されていたが、音響モードのソフト化も同時にしかも同程度に生じていることが分かった。

またエネルギー分解能が約4 μ eVと非常に高い中性子非弾性散乱装置DNAを用いて、0.01~0.1 meVとより低エネルギーでの測定を行った。磁場下では、磁場によるギャップが観測されたが、無磁場下ではギャップが観測されなかった (図6)。スピンゼーバック効果ではYIGが材料としてもっとも優れていることが明らかになり、YIGの低エネルギーのスピンの波が注目を浴びている[3]。この低エネルギーでの磁場依存性について今後検討して、YIGのスピンの波の全体像を学会で発表し、論文としてまとめる予定である。

また超伝導体については、約700個のFeSe単結晶を並べて、四季にて中性子非弾性散乱

測定を行った。こちらについては200 meVまでの幅広いエネルギー領域のスペクトルを得ることができた[4]。こちらの結果については、いくつかの海外の学会での招待講演等を行った。

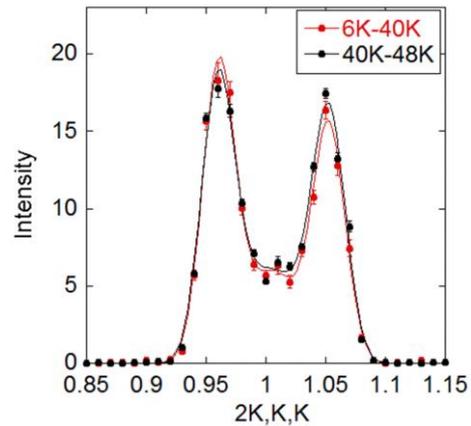


図 3. AMATERAS での温度勾配による散乱強度変化($E=2.4$ meV)。熱流方向は左から右。

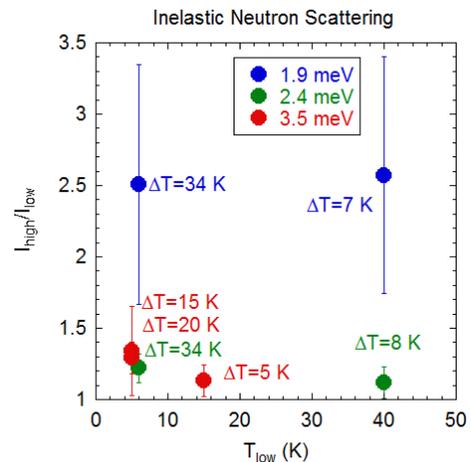


図 4. 様々な条件下での磁気散乱強度の比の温度勾配依存性。熱流は散乱ベクトルにほぼ平行にかけて実験を行った。

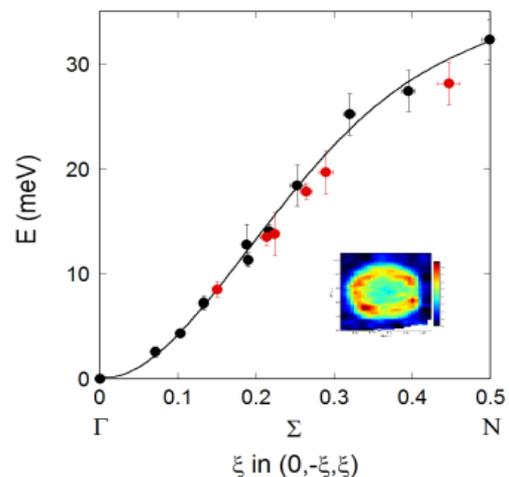


図 5. 30meV 付近までの Σ 方向への YIG スピンの波の分散。黒丸が約 20 K、赤丸が約 280 K での測定結果。挿入図は四季で測定されたスピンの波の例。

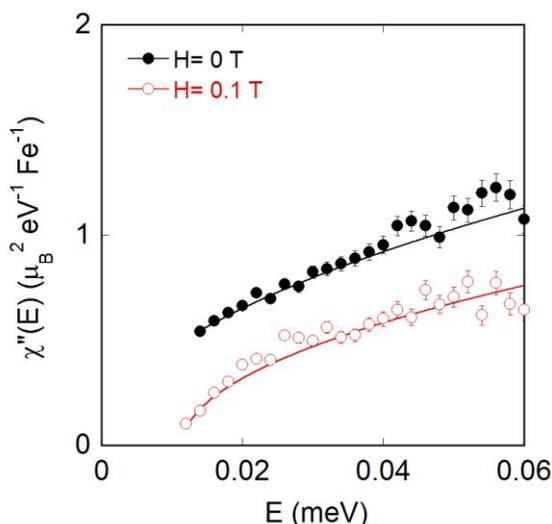


図6. 300 Kでの低エネルギーのYIGスピンの動的帯磁率。磁場 $H(\perp Q)$ により、ランダムなドメイン方向から期待される強度から $3/4$ 倍に強度が変化するとともに、低エネルギーに 0.1 T (11.5 μeV)に相当するギャップが現れる。実線によるフィットは強磁性スピンの期待されるエネルギー依存性であり、変数は磁場下での強度の定数1つのみである。

引用文献

- [1] "Spin Current" eds. S. Maekawa, *et al.* (Oxford University Press, 2012/8).
- [2] J. S. Plant, *J. Phys. C: Solid State Phys.* 10, 4805 (1977).
- [3] "Critical suppression of spin Seebeck effect by magnetic fields", Takashi Kikkawa *et al.*, *Phys. Rev. B* 92, 064413 (2015).
- [4] "Spin nematic susceptibility studied by inelastic neutron scattering in FeSe", S. Shamoto, K. Matsuoka, R. Kajimoto, M. Ishikado, Y. Yamakawa, T. Watashige, S. Kasahara, M. Nakamura, H. Kontani, T. Shibauchi, Y. Matsuda, arXiv:15011.04267.

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 14 件)

- ① "Spacing between graphene and metal substrates studied with total-reflection high-energy positron diffraction", Yuki Fukaya, Shiro Entani, Seiji Sakai, Izumi Mochizuki, Ken Wada, Toshio Hyodo, and Shin-ichi Shamoto, *Carbon* 103 (2016) 1-4. 査読有 DOI:10.1016/j.carbon.2016.03.006.
- ② "Local Lattice Distortion Caused by Short-range Charge Ordering in Transition Metal Oxides", K. Kodama, N. Igawa, S. Shamoto, K. Ikeda, H. Ohshita, N. Kaneko, T. Otomo, K. Suzuya, A. Hoshikawa, and T. Ishigaki, *JPS Conf. Proc.* 8, (2015) 034002-1-6. 査読有

DOI:http://dx.doi.org/10.7566/JSPSC.8.034002

③ "Anisotropic magnetic form factor in a detwinned single crystal of BaFe_2As_2 ", K. Kodama, M. Ishikado, S. Wakimoto, K. Kihou, C. H. Lee, A. Iyo, H. Eisaki, and S. Shamoto, *Phys. Rev. B* 90, 144510 (2014). 査読有 DOI:http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.144510

④ "Precise Measurement of Acoustic Phonons in PrFeAsO_{1-y} ", T. Fukuda, A. Q. R. Baron, H. Uchiyama, H. Nakamura, M. Ishikado, M. Machida, S. Shamoto SPring-8/SACLA Research Report, SP8SRR-(2014)-0086.R1. 査読有 DOI:http://dx.doi.org/10.18957/rr.3.2.290

⑤ "Cooperative Order in the Weakly Magnetic Domain of $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ near the Doping Phase Boundary",

Masatoshi Hiraishi, Ryosuke Kadono, Masanori Miyazaki, Ichihiko Yamauchi, Akihiro Koda, Kenji M. Kojima, Motoyuki Ishikado, Shuichi Wakimoto, and Shin-ichi Shamoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* 83, 103707 (2014). 査読有 DOI:http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.103707.

⑥ "Superconductivity in Noncentrosymmetric Iridium Silicide Li_2IrSi_3 ",

Sunseng Pyon, Kazutaka Kudo, Jun-ichi Matsumura, Hiroyuki Ishii, Genta Matsuo, Minoru Nohara, Hajime Hojo, Kengo Oka, Masaki Azuma, V. Ovidiu Garlea, Katsuaki Kodama, and Shin-ichi Shamoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* 83, 093706 (2014). 査読有 DOI:http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.83.093706

⑦ "Evidence of electronic polarization of the As ion in the superconducting phase of F-doped LaFeAsO ",

J. Kim, A. Fujiwara, T. Sawada, Y. Kim, K. Sugimoto, K. Kato, H. Tanaka, M. Ishikado, S. Shamoto, and M. Takata, *IUCrJ* 1-3, (2014) 155-159. 査読有.

DOI:10.1107/S2052252514005636.

⑧ "Magnetic Structure and Electromagnetic Properties of LnCrAsO with a ZrCuSiAs -type Structure ($\text{Ln} = \text{La, Ce, Pr, and Nd}$)", Sang-Won Park, Hiroshi Mizoguchi, Katsuaki Kodama, Shin-ichi Shamoto, Toshiya Otomo, Satoru Matsuishi, Toshio Kamiya, Hideo Hosono, *Inorg. Chem.* 52, 23, (2013) 13363-13368. 査読有 DOI: 10.1021/ic401487q

⑨ "Local Lattice Distortion Caused by Short Range Charge Ordering in LiMn_2O_4 ", Katsuaki Kodama, Naoki Igawa, Shin-ichi Shamoto, Kazutaka Ikeda, Hidetoshi Oshita, Naokatsu Kaneko, Toshiya Otomo, Kentaro Suzuya, *J. Phys. Soc. Jpn.* 82-9 (2013) 094601. 査読有

DOI: http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.094601

[学会発表] (計 9 件)

- ① 「 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ の低エネルギースピンの動的帯磁率」, 社

本真一, 松浦直人, 赤津光洋, 伊藤孝, 森道康, 梶本亮一, 柴田薫, 根本祐一, 前川禎通, 日本物理学会 2016 年秋季大会 (金沢大学(石川県金沢市), 2016 年 9 月 13 日-16 日)

②“Neutron-scattering study of the dynamical spin susceptibility in FeSe”, (Invited)

Shin-ichi Shamoto, R. Kajimoto, M. Ishikado, Y. Yamakawa, T. Watashige, S. Kasahara, M. Nakamura, H. Kontani, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, 2016 EMN Prague Meeting, June 21-24, 2016, Prague, Czech Republic.

③“Hidden lattice distortions in crystalline functional materials - Optical recording and negative thermal expansion materials -”, (Invited)

Shin-ichi Shamoto, Workshop on Hidden Orders in a Complex World: Past, Present and Future, 1-3, Oct. 2015, Oak Ridge, TN, USA.

④“Nematic effects on spin excitation of β -FeSe superconductor”, (Invited)

Shin-ichi Shamoto, Michiyasu Mori, Ryoichi Kajimoto, Katsuaki Kodama, Mitsutaka Nakamura, Tatsuya Watashige, Shigeru Kasahara, Yuji Matsuda, Motoyuki Ishikado, Takasada Shibauchi, EMN Qingdao Meeting 2015, June 14-17, 2015, Qingdao, China.

⑤「結晶 PDF 解析でみる構造の不均一性と機能」, 社本真一, CROSSroads of Users and J-PARC (第 12 回)「不均一系における構造と機能」2014 年 9 月 16 日(火): 13:00-9 月 17 日(水)16:00-, いばらき量子ビーム研究センター(茨城県東海村) 招待講演

⑥”Local structural study on nanoparticles of functional materials”, (Oral)

Shin-ichi Shamoto, Katsuaki Kodama, XXIII International Materials Research Congress (IMRC2014), S1A-O029, 17-21 Aug. 2014 Cancun, Mexico.

⑦「中性子散乱による超伝導材料評価」, 社本真一, 2014 年応用物理学会春季学術講演会 セッション名: 評価る (はかる) - 超伝導材料の評価技術 基礎から応用まで - 17p-D3-3, 青山学院大相模原キャンパス (神奈川県相模原市), 2014 年 3 月 17 日. 招待講演

⑧“Inelastic neutron scattering on iron-based superconductor Fe(Te_{0.5}Se_{0.5}) to discriminate the origin of the "magnetic resonance mode"” (Invited),

Motoyuki Ishikado, Katsuaki Kodama, Ryoichi Kajimoto, Mitsutaka Nakamura, Yasuhiro Inamura, Kazuhiko Ikeuchi, Sungdae Ji, Shuichi Wakimoto, Masatoshi Arai, Shin-ichi Shamoto, Electron Correlation in Nanostructures (ECN-2013) 3-6 October 2013 Yalta, Ukraine.

⑨「逆ペロフスカイト型マンガン窒化物の中性子回折: 磁性と構造」社本真一, 日本物理学会 2013 年秋季大会 (徳島大学 常三島キャンパス(徳島県徳島市), 2013 年 9 月 25 日-28 日) 領域 8、領域 3、領域 1 0 合同シンポジウム

負の熱膨張の新展開 - 相変態に伴う巨大応答と新物質 - 25pKQ3 招待講演

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://asrc.jaea.go.jp/soshiki/gr/Nanoscale-gr/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

社本 真一 (SHAMOTO, Shin-ichi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・研究主席

研究者番号: 90235698

(2) 研究分担者

樹神 克明 (KODAMA, Katsuaki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究主幹

研究者番号: 10313115

石角 元志 (ISHIKADO, Motoyuki)

一般財団法人総合科学研究機構 東海事業センター 利用研究促進部・技師

研究者番号: 90513127

梶本 亮一 (KAJIMOTO, Ryoichi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 J-PARC センター・主任研究員

研究者番号: 30391254

森 道康 (MORI, Michiyasu)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・研究主幹

研究者番号: 30396519

前川 禎通 (MAEKAWA, Sadamichi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 先端基礎研究センター・センター長

研究者番号: 60005973

(3) 連携研究者

なし