中性子散乱を用いた絶縁体スピントロニクス基盤物質 Y₃Fe₅O₁₂の磁気励起の研究 Neutron scattering study on magnetic excitations of the ferrimagnetic Y₃Fe₅O₁₂ -a fundamental material for insulator spintronics-

東北大学大学院理学研究科物理学専攻 金属材料研究所 藤田研究室 B5SM2019 沖野友貴

1 研究の背景と目的

I YIG の磁気励起の全容解明

2008年に報告されたスピンゼーベック効果 (SSE, Spin Seebeck Effect) は強磁性体/常磁性金属薄膜接合系に温 度勾配をつけることで、接合界面近傍にスピン流が誘 起される現象である [1]。SSE の研究には金属、半導体、 さらには絶縁体などの様々な物質が利用されているが、 最も利用されている物質がフェリ磁性絶縁体 Y₃Fe₅O₁₂ (YIG, Yttrium Iron Garnet) である。YIG/Pt 薄膜接合 系における SSE の温度依存性を測定した報告によると、 SSE の信号強度は室温以上の温度領域では $(T_c - T)^3$ に 従い、温度上昇に伴い減少することが示されている [2]。 この振る舞いは YIG の静的な磁気描像だけでは説明で きず、SSE と磁化ダイナミクスとの関連性を示唆してい る。YIGの磁気励起はスピン波描像で良く記述され、音 響モードと光学モードの2つのモードが SSE に重要で あることが実験、理論の両方から示唆されているが、定 量的には未解明な部分が多い。今後 SSE に対して定量的 な解釈を与えるためには、状態密度も含めた磁気励起の 全体像解明とその詳細を明らかにする必要がある。しか し、YIGの磁気励起を観測したものは、今から約40年 前に三軸分光器によって行われた中性子非弾性散乱実験 の報告に限られている [3]。三軸分光器は測定の性質上、 励起スペクトルを (Q, ω) 点ごとに測定するものであり、 磁気励起の全体像を明らかにするには膨大なビームタイ ムを必要とする。そこで、本研究では、チョッパー型分 光器、三軸分光器を使用した中性子非弾性散乱実験を行 い広範囲の (Q, ω) 空間を測定することで磁気励起の全 体像を明らかにする事を第1の目的とする。

II スピン波におけるカイラリティ

理論研究によると、YIGのスピン波の音響モードと光 学モードはカイラリティが異なり、光学モードはSSEを 抑制する働きがあると主張されている[4]。カイラリティ とは簡単な描像では磁気モーメントの歳差運動の回転 方向に対応している。一般に磁場 H 中における磁化 M の運動は以下のランダウ-リフシッツ-ギルバート (LLG, Landau-Lifshitz-Gilbert) 方程式に従う。

$$\frac{\mathrm{d}\boldsymbol{M}}{\mathrm{d}t} = -\gamma \boldsymbol{M} \times \boldsymbol{H} + \frac{\alpha}{M_{\mathrm{s}}} \boldsymbol{M} \times \frac{\mathrm{d}\boldsymbol{M}}{\mathrm{d}t} \qquad (1)$$

 γ は磁気回転比、 M_s は飽和磁化、 α はギルバートダンピ ング緩和定数であり、第1項は、磁化の歳差運動を表し、 磁気モーメントは磁場方向から見て反時計回りに回転す る。第2項は歳差運動の緩和を様子を表す。YIGの磁性 は、24d サイトと 16a サイトの Fe³⁺ が担っている。両サ イトの磁気モーメントは反強磁性的に結合し、collinear な磁気構造を持つ。基底状態では d サイトと a サイトの モーメントは同方向に回転する。しかし、ギャップのあ る励起状態では、エネルギー固有値を解くことで、d サ イトと a サイトのモーメントは基底状態とは逆方向に回 転することが知られている [5]。その結果、YIG 内には 反時計回りと時計回りに回転する磁気モーメント対が存 在することになる。本研究では偏極中性子を用いた非弾 性散乱実験を行うことで、音響モードと光学モードスピ ン波のカイラリティの違いを実験的に明らかにすること も目指した。

結果と考察

Ⅰ チョッパー型分光器を用いた中性子非弾性散乱実験

実験は、Traveling Solvent Floating Zone (TSFZ) 法 で作成した YIG 単結晶を用いて、オークリッジ国立研究 所の核破砕中性子源に設置されている BL-14B HYSPEC で行った。図1に観測した励起スペクトルを示す。図1(a) を見ると広範囲の (Q, ω) 領域に渡って明瞭な磁気励起



図 1: 観測した YIG の磁気励起スペクトル。

スペクトルが観測できていることが分かる。観測した磁 気励起スペクトルは主には音響モードと光学モードであ る。また図1 (b-d)からは、温度上昇に伴いΓ点におけ る光学モードのギャップエネルギーの値が小さくなって いき、ソフト化している様子が分かる。続いて、解析に よって得られたスピン波分散関係の温度変化を図2に示 す。この結果は三軸分光器による結果 [3]と整合してお り、音響モードは温度依存性をほとんど示さないのに対 し、先に述べたように光学モードは温度上昇に伴いソフ ト化する。副格子の磁気モーメントサイズの変調を取り 入れたスピン波計算結果では、ソフト化を再現すること に成功した (図 2(b))。また、冷中性子三軸分光器 SIKA を用いた実験では、[3]では報告されていない磁気励起 の詳細を観測することに成功し、Γ点から発達する磁気 分散関係が線形に従わないことを明らかにした。



図 2: (a) スピン波の分散関係の温度変化。音響モード はほとんど温度変化を示さない。(b) 温度上昇に伴う光 学モードギャップの温度依存性。

II 偏極中性子非弾性散乱実験

音響モードと光学モードのカイラリティを測定する事 を目的とし、HYSPECを用いて偏極中性子非弾性散乱実 験を行った。実験は入射側のみ中性子を偏極し、散乱後の 中性子の偏極方向については分析しない half-polarized mode で行った。図3に観測した磁気励起スペクトルを 示す。 σ_x^{+0} は、入射中性子をアップスピン (+) 状態にし て、検出器側はアップスピン (+) とダウンスピン (-) 両



図 3: 350 K における (-4,-4,4) 周辺の偏極中性子非弾性 散乱実験の結果。(a) は – *M_{ch}*、(b) は + *M_{ch}* を表して いる。



 \boxtimes 4: Blume-Maleev coordination [6,7]

方の状態を測定した散乱断面積に対応する。中性子の偏極方向 P を散乱ベクトル Q に平行にし、その方向を x軸 $(P \parallel \mathbf{Q} \parallel x)$ と定義すると (図 4)、 $\sigma_x^{\pm 0}$ を測定し、

$$\begin{cases} \sigma_x^{+0} - \sigma_x^{-0} \propto -M_{ch} \\ \sigma_x^{-0} - \sigma_x^{+0} \propto +M_{ch} \end{cases}$$
(2)

という解析を行うことでカイラリティの符号の違いを示 すことができる。図 3(a),(b) からは理論計算の結果 [4] と整合して、20 meV 以上の音響モードと光学モードで はカイラリティが反転していることが分かる。また、興 味深いことに音響モードの 5 meV から 15 meV 周辺で もカイラリティの反転が観測された。現時点ではこの発 現機構については結論付けることはできないが、マグノ ンとフォノンとの交差や欠陥などが作る仮想磁場によっ て一つの音響モード内でのカイラリティの反転が引き起 こされた可能性がある。今後より精密な実験を行ってい くことで、今回得られたカイラリティの知見をより決定 的なものにしていく。

3 結論

チョッパー型分光器 HYSPEC、冷中性子三軸分光器 SIKA を使用した非偏極中性子非弾性散乱実験を行い、 YIG の磁気励起の全体像を明らかにした。実験の結果、 SSE に寄与するのは音響モードと光学モードのスピン波 であることを確認し、その光学モードの温度依存性の起 源や磁気励起の形状を解明した。また、HYSPEC を用 いて偏極中性子非弾性散乱実験を行い、音響モードと光 学モードのカイラリティの違いを観測した。さらに単一 の音響モード内でカイラリティが反転するという興味深 い結果を得た。

参考文献

- [1] K. Uchida *et al.*, Nature **445**, 778 (2008).
- [2] K. Uchida *et al.*, Phys. Rev. X 4, 041023 (2014).
- [3] J. S. Plant, J. Phys C: Solid State Phys. 10, 4805 (1977).
- [4] J. Barker *et al.*, Phys. Rev. Lett. **117**, 217201 (2016).

[5] A. G. Gurevich *et al.*, Magnetization Oscillation and Waves (CRC, Boca Raton, FL, 1996).

- [6] M. Blume, Phys Rev. 130, 1670 (1963).
- [7] S.V. Maleev *et al.*, Sov. Phys. Solid. State **4**, 2533 (1963).