

偏極中性子散乱による空間反転対称性を持つ磁気スキルミオン物質の磁気構造解析

—再稼働した JRR-3 からの成果—

物性研究所中性子科学研究施設 中島 多朗

2000 年代以降の固体物性の潮流の一つとして「スピン配列の空間反転対称性の破れによる創発物性」が挙げられます。代表的には 2003 年に報告されたペロブスカイト型 Mn 酸化物 TbMnO_3 のらせん型磁気構造が自発電気分極を誘起する現象、いわゆるスピン誘導型マルチフェロイックなどがよく知られています[1]。らせん型の磁気秩序には右巻き・左巻き(あるいは時計回り、反時計回り)の巻き方があり、両者は単なる平行移動では重なり合いません。よって結晶が空間反転対称性を持っていたとしても、磁気構造が右巻き、左巻きのどちらかを選ばざるを得ない状況では系の対称性が破れ、それが電気分極などのマクロな交差相関応答を生じさせる原因となります。このらせん型のような複雑な磁気構造を決定するには中性子散乱実験が非常に有効です。中性子は電荷を持ちませんがスピン $1/2$ を持つ粒子であり、磁気秩序した物質に入射すると、物質中の磁気モーメントとの磁気双極子相互作用によって散乱され、その散乱パターンを解析することで磁気構造が決定できます。実際に 2000 年代のマルチフェロイック研究では中性子散乱は非常に大きな役割を果たしました。東海村にある日本原子力研究開発機構の研究用原子炉 JRR-3 には物性研が共同利用として運用する中性子散乱装置が多数設置されており、磁気構造研究に大活躍していました。しかし、2011 年の東日本大震災の後、新たな耐震基準を満たすための工事のために JRR-3 は長期の停止を余儀なくされました。一方物性研においては、らせん型磁気構造に付随する新現象が次々と発見され、特に 2009 年には複数のらせん型磁気変調の重ね合わせとして表される渦型の磁気構造である「磁気スキルミオン」が多くの注目を浴びるようになりました。この磁気スキルミオンに関する研究が盛り上がった 2010 年代に JRR-3 が停止していたのは日本の磁性研究コミュニティにとって大きな痛手だったと思います。しかし、日本の中性子研究者の多くは、物性研の海外旅費支援事業による国外中性子施設の活用や、当時徐々にビーム出力を上げてきた J-PARC のパルス中性子源などを活用することで成果をあげてきました。

2009 年に最初に報告された磁気スキルミオン物質は MnSi という金属磁性体でした[2]。この系は強磁性相互作用

を持ちながら、結晶構造がカイラリティを持つために、スピンを傾けて配列させるジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用が働き、この二つの相互作用の競合で長周期のらせん磁気構造が生じます。前述のマルチフェロイック物質とは逆に、この系では元々結晶構造が空間反転対称性を破っているために、らせん磁気秩序が選ばれたと言えます。このらせん磁気秩序の状態において転移温度近傍でわずかに磁場をかけると、図 1 に示したような渦状の磁気構造が現れます。これが磁気スキルミオン格子と呼ばれる状態で、局所的にはらせん磁気構造のように隣接するスピンの角度をつけて配列していますが、全体としてみると、渦のような模様が三角格子を形成しています。ここで物質中のスピン配列を平均化して連続場として考えると、この渦の中心はトポロジカル欠陥とみなすことができ、その構造のトポロジーに起因する新奇な現象が数多く報告されてきました。(詳しくは参考文献 [3] などをご参照ください。) MnSi の研究が注目を浴びて以降、同様に「強磁性相互作用」と「DM 相互作用」を持つ物質が集中的に研究され、数多くの磁気スキルミオン物質が報告されてきました。もちろんこれらの物質も中性子散乱を用いて研究されてきたのですが、多くの場合において強磁性相互作用が DM 相互作用より非常に強く、磁気的な変調周期は長くなり、典型的には 10-100 nm 程度でした。中性子散乱実験に用いられる中性子の波長は 1 から 10 Å 程度ですから、相手にする周期構造が波長よりも非常に長くなると、小角散乱と呼ばれる手法で観測することになります。一方、

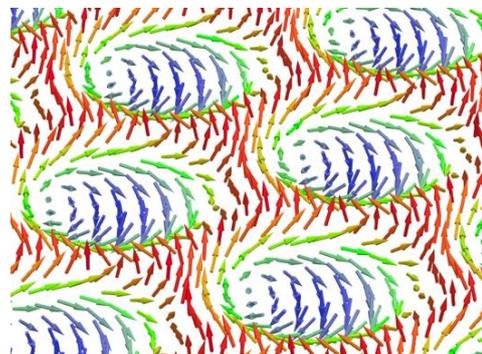


図 1: 磁気スキルミオン格子のイメージ図。矢印が各原子の磁気モーメントに対応する。

よく決定することができます。GM 冷凍機を使って 2 K までの範囲で測定を行ったところ、図 3 に示したような spin-flip, non-spin-flip 散乱の温度変化が得られました。詳細は割愛しますが、この結果は 15 K 以下に 4 つの磁気相が存在しており、その中にはこれまで報告されてきたスキルミオン格子とは異なる、新たな磁気渦構造も含まれていることを示しています。高木さんらはこの結果をすぐにまとめて投稿していただき、3 月には Nature Communications 誌に掲載されました[8]。詳しい内容についてはぜひ本論文をご参照ください。この結果は再稼働した JRR-3 において、我々の PONTA 分光器としては最初の成果となり、近年注目を集めるトピックの研究にタイムリーに貢献できたことを非常に嬉しく思っています。

2022 年度も 5 月から JRR-3 の共同利用が始まりますが、ありがたいことに今年度も数多くの一般課題の申請を頂きました。磁気スキルミオンだけでなく、非共面的磁気構造とともに巨大なホール効果を示す反強磁性体など魅力的なトピックが数多くあります。今後も分光器の性能をさらに向上させながら、これらの現象の解明に貢献していきたいと考えています。また、震災の前と比較しての大きな違いは、同じ東海村の原子力研究開発機構内に J-PARC が存在しており、パルス中性子と原子炉中性子の相補利用が可能になっているという点です。国内に 2 種類の大型中性子源があるというのは極めて恵まれた状況ですから、これを活用して相乗効果をもたらすような研究の展開を考えていきたいと思えます。

参考文献：

- [1] T. Kimura *et al.*, Nature **426**, 55 (2003).
- [2] Muhlbauer *et al.*, Science **323**, 915 (2009).
- [3] N. Nagaosa and Y. Tokura, Nat. Nanotech. **8**, 899 (2013).
- [4] X. Z. Yu *et al.*, Nature **465**, 901 (2010).
- [5] T. Kurumaji *et al.*, Science **365**, 914 (2019).
- [6] M. Hirschberger *et al.*, Nat. Commun. **10**, 5831 (2019).
- [7] N. D. Khanh *et al.*, Nat. Nanotech. **15**, 444 (2020).
- [8] R. Takagi *et al.*, Nat. Commun. **13**, 1472 (2022).