

中性子散乱による時間反転対称性の破れた非共面的反強磁性磁気構造の研究

中性子科学研究施設 中島 多朗
凝縮系物性研究部門 高木 里奈

物質中の磁気モーメントが自発的に同じ方向に揃う現象である「強磁性」は、我々にとってとても身近な現象であり、固体物理としても本質的に重要なテーマです。一番身近な強磁性体としては冷蔵庫のドアにくっつくマグネット(永久磁石)が挙げられるかもしれませんが、応用としてはモーターなどの動力装置やハードディスクなどの情報記憶装置まで、幅広く使われています。まさに、私たちの暮らしを支えている物性現象の一つと言えると思います。この強磁性という現象を特徴づける性質に「時間反転対称性の破れ」というものがあります。物質中の磁気モーメントは円電流と等価であり、図1のように上向きの磁気モーメントが生じている状態に対して時間反転の操作を行うと、電流が逆向きに流れることになり、磁気モーメントの向きが反転します。よって、物質全体で自発磁化が生じている状態は、マクロに時間反転対称性が破れていると考えることができます。強磁性と時間反転対称性の破れは一対一に対応するかのように思えますが、近年の固体物性では「時間反転対称性は破れているが単純な強磁性ではない」という変わった磁気秩序が大きな注目を集め、盛んに研究されています。物性研だよりの読者の皆様であればよくご存知かと思いますが、この研究の代表例としては、中辻先生らによるカゴメ格子磁性体 Mn_3Sn の研究[1]がよく知られています。この系はカゴメ格子上で磁気モーメントが逆 120 度構造をとって配置することにより時間反転対称性が破れ、非常に小さな一様磁化にもかかわらず、強磁性体に匹敵するような大きなホール効果を示すことが報告されました。一様磁化が小さいということは応用上も利点があり、漏れ磁場や反磁場の影響を受けずに微細素子を製作可能であり、強磁性における一様磁化の up, down に相当する 2 つの状態を電氣的に区別できるため、新たな情報記憶担体としても活用できる可能性が指摘されています。

このような新しい物性現象を開拓していく上で、物質のバリエティを広げていくことは非常に重要です。東京大学工学系物理工学専攻の高木寛貴さん(修士課程(当時))、高木里奈助教(当時)、関真一郎准教授らのグループは、反強磁性体でありながら巨大なホール効果を示す三角格子磁性

体 $CoTa_3S_6$ を発見し、良質な単結晶を育成されました。そしてその磁気構造を決定するために、この物質の中性子散乱に関する共同研究がスタートしました。この $CoTa_3S_6$ という物質の磁気構造については 1980 年代に磁気変調波数を報告した論文[2]があったのですが、その論文上では実験データも十分に示されておらず、具体的な磁気構造を推測するのは難しい状況でした。そこで我々は J-PARC の物質生命科学実験施設(MLF)に設置された中性子回折装置 TAIKAN(BL15)を用いて単結晶中性子回折測定を行ったところ、過去に報告されていた磁気変調ベクトルとは異なり、三角格子の対称性のもとで等価な $q=(1/2,0,0)$, $(0,1/2,0)$, $(1/2,-1/2,0)$ という磁気変調ベクトルで表される逆空間上の位置に磁気反射が現れることを見出しました。

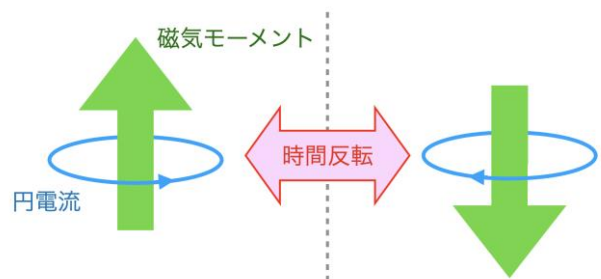


図 1: 物質中の磁気モーメントと等価な円電流を表した模式図。時間反転の操作によりモーメントの方向が反転する。

ここからさらに一步すすんで、磁気変調の方向だけではなく各原子位置のスピンの方向を決定するために、我々は東海村の研究用原子炉 JRR-3 に設置された偏極中性子三軸分光器 PONTA で実験を行いました。中性子散乱でスピンの方向を決定する方法としては、数多くの磁気反射を測定しその強度を計算値と比較する方法が一般的ですが、今回用いた偏極中性子散乱法はそれと異なり、スピン偏極した中性子を試料に入射し、散乱された中性子のスピン状態を解析することで、中性子スピンの偏極方向に並行・垂直な磁気モーメントの成分を分けて観測できるという特徴を持っています。今回は結晶の c 軸方向に偏極した中性子を

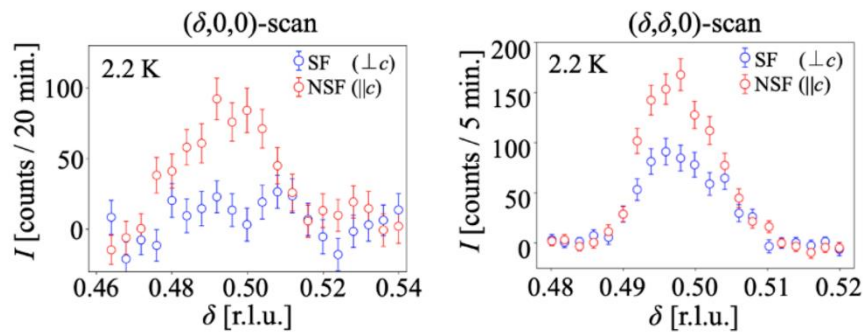


図 2: PONTA 分光器で観測された CoTa_3S_6 の偏極中性子散乱プロファイル。(Ref. [3]より引用)

入射し、磁気散乱の過程で中性子のスピンの反転したもの (Spin-flip(SF)散乱) と反転しないもの (Non-spin-flip (NSF)散乱) を観測したところ、図 2 のように、逆空間の $(1/2, 0, 0)$ という点では NSF 散乱のみが、 $(1/2, 1/2, 0)$ という点では NSF と SF 散乱の両方が観測されました。この結果を結晶の対称性から考察した磁気構造モデルと比較して考えると、この物質の磁気構造は図 3 に示したように Co の磁気モーメントが非共面的に配列したものであることが分かりました。これは、磁気単位胞内の Co 原子によって作られる 2 つの四面体について、一つは磁気モーメントが全て四面体の内部を向き、もう一方は全て外側を向くという「all-in-all-out」型の配列になっています。二つの四面体の all-in と all-out の関係を反転させたものが左右に並べて描かれていますが、両者は単純な並行移動では重なり合わず、磁気モーメントの向きを反転させる時間反転対称性によって重なり合います。これはまさに冒頭で紹介した時間反転対称性の破れた反強磁性構造であり、両者は逆符号のホール効果を示します。

この研究は関先生らによって論文にまとめられ、最近 Nature Physics 誌に掲載されました[3]。今後このような研究が活発化し、反強磁性体のスピン配列の対称性を実験的に決定することが求められる場面が多くなってくると思いますが、そのような目的には今回用いた偏極中性子散乱が非常に有効です。また、中性子散乱は磁気モーメントの静的な秩序構造だけでなくその揺らぎや集団励起を観測することも得意ですから、今後それを活かしてこの新しい磁気秩序ならではのスピンドYNAMIKSの研究を進めていくことも重要であると考えています。

参考文献：

- [1] S. Nakatsuji *et al.*, Nature **527** 7577 (2015).
- [2] S. S. P. Parkin *et al.*, J. Phys. C: Solid State Phys. **16**, 2765 (1983).
- [3] H. Takagi *et al.* Nat. Phys. **19**, 961-968 (2023).

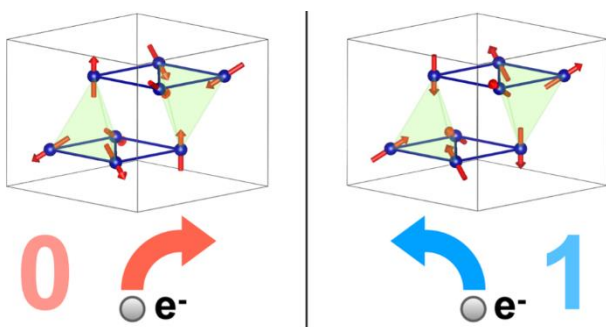


図 3 : CoTa_3S_6 の基底状態における all-in-all-out 型磁気構造の模式図。左右の図は時間反転対象操作に対応した二つの磁気ドメイン。それぞれが逆符号のホール効果を生じるため、この二つを「0」と「1」に対応させることで情報を記録することができる。(Ref. 3 のプレスリリース記事

<https://www.t.u-tokyo.ac.jp/hubfs/press-release/2023/0421/002/text.pdf>)より引用)

