

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 20 日現在

機関番号：82121

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390139

研究課題名(和文) 偏極中性子実験によるカイラル磁性体の結晶構造と磁性のカイラリティ結合

研究課題名(英文) Relation between crystallographic and magnetic chiralities in chiral helimagnets probed by polarized neutron scattering

研究代表者

大石 一城 (Ohishi, Kazuki)

一般財団法人総合科学研究機構(総合科学研究センター(総合科学研究室)及び東海事業・中性子科学センター・副主任研究員)

研究者番号：60414611

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、カイラルな結晶構造をもつ磁性体の結晶構造及びカイラルらせん磁気構造のヘリシティを偏極中性子実験により検出し、結晶構造と磁性のカイラリティ結合を検証することを目的として研究を行った。その結果、MnSiでは、カイラルソリトン格子の検出に成功し、らせん磁気構造及びカイラルソリトン格子は左巻きであることを明らかにした。また、CsCuCl₃では、結晶構造が右手系及び左手系の単結晶による偏極中性子回折実験により、右手系結晶構造では右巻きの磁気構造、左手系結晶構造では左巻きの磁気構造を形成することが判明した。これらのカイラル磁性体において、結晶構造と磁気構造が結合していることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：The aim of this study is to clarify the relation between crystallographic chirality and that of magnetic structures by means of polarized neutron scattering. First, the polarized small angle neutron scattering experiments detected the higher harmonics in MnSi. By evaluating the difference in intensities between the up and down-spin incident neutrons, this result is well interpreted by formation of the left-handed chiral soliton lattice. Second, it revealed that there is a one to one relationship between the structural and magnetic handedness in CsCuCl₃; namely the right-handed crystal structure has a right-handed spiral magnetic structure, and left-handed crystal has a left-handed spiral magnetic structure. In this way, we have succeeded to clarify the relation between crystallographic chirality and that of magnetic structures.

研究分野：物性物理学

キーワード：カイラル磁性体 カイラル磁気構造 カイラリティ 中性子散乱 偏極中性子 中性子小角散乱

1. 研究開始当初の背景

電子の量子位相的な位相をマクロに制御することは、物性物理学における最も重要な課題の一つである。例えば超伝導は、電荷と結合する波動関数の位相制御に成功した好例である。一方、スピン波動関数の量子位相の制御は、「カイラリティを持つ磁性結晶」により可能となる。水晶のようにカイラリティを持つ結晶が磁気を帯びると、結晶対称性に由来した「ジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用」によりスピン磁気モーメントの向きが特定の巻き方(カイラリティ)を保持してマクロスケールで捻じれた「カイラルらせん磁気構造」が実現する。この状態は、スピン位相のねじれが凝縮した秩序状態であるといえる。

右巻きもしくは左巻きのカイラルらせん磁気構造を持つ磁区を自発的に生成することは、交換相互作用のみではエネルギー的に困難である。しかし、カイラルな結晶構造を有する物質においては、交換相互作用と DM 相互作用の拮抗でこの縮退が解け、片巻のみの単一磁区が自発的に生成される。このカイラルらせん磁気構造に関しては、0.1 T 程度という弱い磁場でその周期を無限大(試料サイズ)まで周期的に変調することができる。これは、カイラル磁性体に特有の「カイラルソリトン格子」と呼ばれるスピンの非線形位相構造である。2012年、カイラルな結晶構造を持つ磁性伝導体 $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ においてローレンツ電子顕微鏡により初めてカイラルソリトン格子が観測され、結晶構造とカイラルらせん磁気構造の結合の検証の皮切りとなるはずであった。しかし、カイラルらせん磁性体物質の候補は現在のところ数える程しか存在しないこと、また、結晶構造のカイラリティ制御は極めて困難であり、ほぼ全ての無機化合物で試料内に左右のカイラリティドメインが混在したラセミ双晶が形成されることから、実験による検証が困難な状況にある。

2. 研究の目的

本研究の目的は、大強度陽子ビーム加速器施設 J-PARC 物質・生命科学実験施設(MLF)の中性子実験装置を用いて、「偏極中性子実験によるカイラル磁性体の結晶構造と磁性のカイラリティ結合」をテーマとして、実験装置の開発を行うとともに、カイラル構造を持つ結晶と磁性のカイラリティ結合の検証を行う。

3. 研究の方法

結晶と磁性のカイラリティ結合の検証のため、以下の3点を実施した。

(1) 実験環境の整備・充実化

カイラルソリトン格子観測に必要な条件となる弱磁場(数 Oe ~ 数百 Oe)を安定して印加できる弱磁場電磁石の製作。

(2) カイラルらせん磁気構造のヘリシティの検出

結晶構造のカイラリティは、主に定常 X 線による単結晶構造解析により決定した。結晶構造のカイラリティが単一ドメインであることが担保された結晶を用いて、偏極中性子回折実験を行った。

(3) カイラルソリトン格子の検出

(1)で製作した弱磁場電磁石を用いて、磁化測定の際の振る舞いからカイラルソリトン格子が示唆されている MnSi において、カイラルソリトン格子の検証を行った。

4. 研究成果

本研究で得られた代表的な成果を以下にまとめる。

(1) MnSi のカイラルソリトン格子の検出

B20 型のカイラルな結晶構造を有する MnSi は、111 方向と等価な方向にカイラルらせん磁気構造を有する。結晶構造が左巻きの単結晶試料を育成し、弱磁場電磁石を用いて偏極中性子回折実験を行った。その結果、印加磁場とほぼ垂直な関係にあるらせん磁気構造ドメインにおいて、らせん磁気構造形成による磁気衛星反射を観測した。更に、高次の磁気衛星反射の観測に成功し、MnSi において、カイラルソリトン格子が形成されていることを実証した。また、磁気散乱ピーク強度と入射中性子スピン方向の評価から、らせん磁気構造及びカイラルソリトン格子は左巻きであり、左手系結晶構造と磁気構造が結合していることが判明した。

(2) CsCuCl_3 の結晶と磁性のカイラリティ結合

CsCuCl_3 はカイラルな空間群に属し、らせん磁気構造を形成するため、カイラルらせん磁気構造の形成が期待されている。我々は、独自の結晶育成手法により CsCuCl_3 の結晶カイラリティを単一化することに成功した。そこで、右手系結晶並びに左手系結晶を用いて、偏極中性子回折測定を行った。その結果、入射中性子のスピン偏極方向の反転に伴う磁気衛星反射強度の変化を観測した。この結果より、 CsCuCl_3 の右手系結晶構造では右巻きのらせん磁気構造、左手系結晶構造では左巻きのらせん磁気構造を形成していることが判明し、 CsCuCl_3 の結晶構造と磁気構造が結合していることを実証した。

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5件)

K. Ohishi, Y. Kousaka, E. Proskurina, T. Ogura, A. Koda, J. Akimitsu, K. Inoue, JPS Conference Proceedings, 査読有, 8 巻, 2015, 034006/1-6

DOI:

<http://dx.doi.org/10.7566/JPSCP.8.034006>

Y. Nii, T. Nakajima, A. Kikkawa, Y. Yamasaki, K. Ohishi, J. Suzuki, Y. Taguchi, T. Arima, Y. Tokura, Y. Iwasa, Nature Communications, 査読有, 6 巻, 2015, 8539/1-7

DOI: 10.1038/ncomms9539

H. Kira, H. Hayashida, H. Iwase, K. Ohishi, J. Suzuki, T. Oku, K. Sakai, K. Hiroi, S. Takata, T. Ino, K. Ohyama, M. Ohkawara, T. Shinohara, K. Kakurai, K. Aizawa, M. Arai, JPS Conference Proceedings, 査読有, 8 巻, 2015, 036008/1-6

DOI:

<http://dx.doi.org/10.7566/JPSCP.8.036008>

S. Takata, J. Suzuki, T. Shinohara, T. Oku, T. Tominaga, K. Ohishi, H. Iwase, T. Nakatani, Y. Inamura, T. Ito, K. Suzuya, K. Aizawa, M. Arai, T. Otomo, M. Sugiyama, JPS Conference Proceedings, 査読有, 8 巻, 2015, 036020/1-6

DOI:

<http://dx.doi.org/10.7566/JPSCP.8.036020>

Y. Kousaka, N. Ikeda, T. Ogura, T. Yoshii, J. Akimitsu, K. Ohishi, J. Suzuki, H. Hiraka, M. Miyagawa, S. Nishihara, K. Inoue, J. Kishine, JPS Conference Proceedings, 査読有, 2 巻, 2014, 010205/1-6

DOI:

<http://dx.doi.org/10.7566/JPSCP.2.010205>

[学会発表](計 29 件)

大石一城, 高阪勇輔, 小山珠美, E. Proskurina, 小椋隆弘, 幸田章宏, 小嶋健児, H. Luetkens, A. Amato, 秋光純, 井上克也, 無機カイラル磁性体 CsCuCl₃ の磁気秩序状態, 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 19 日, 東北学院大学(宮城県仙台市)

高阪勇輔, 小山珠美, 大石一城, 加倉井和久, V. Hutano, T. Brueckel, 鈴木淳市, 宮本幸乃, 世良文香, 井上克也, 秋光純, 無機カイラル磁性体 CsCuCl₃ のキララらせん磁気構造の検証(II), 日本物理学会第 71 回年次大会, 2016 年 3 月 19 日, 東北学院大学(宮城県仙台市)

大石一城, カイラル磁性体 CsCuCl₃ 磁気的カイラリティ, 2015 年度量子ビームサイエンスフェスタ/第 7 回 MLF シンポジウム, 2016 年 3 月 15 日, つくば国際会議場(茨城県つくば市)

(招待講演)大石一城, 中性子散乱及びミュオン回転法によるスピネクスタの観測, 日本磁気学会第 55 回化合物新磁性材料専門研究会, 2016 年 3 月 11 日, 東

京大学(東京都文京区)

K. Ohishi, Y. Kousaka, T. Koyama, K. Kakurai, V. Hutano, T. Brueckel, Y. Miyamoto, A. Sera, E. Proskurina, T. Ogura, A. Koda, K. M. Kojima, H. Luetkens, A. Amato, J. Suzuki, K. Inoue, J. Akimitsu, Chirality in CsCuCl₃ probed by muon spin rotation and polarized neutron scattering, RIKEN-RAL Muon Facility 25-Years Operation Celebration and Users Meeting, 2016 年 2 月 16 日, 理化学研究所(埼玉県和光市)

中島多朗, 新居陽一, 吉川明子, 山崎裕一, 大石一城, 鈴木淳市, 田口康二郎, 岩佐義宏, 十倉好紀, 有馬孝尚, MnSi における磁気スキルミオン相の一軸応力制御 - J-PARC 大観における一軸応力下中性子小角散乱 -, 2015 年 12 月 10 日, 和光市民文化センター(埼玉県和光市)

小山珠美, 高阪勇輔, 秋光純, 井上克也, 西原禎文, 大石一城, 鈴木淳市, 加倉井和久, V. Hutano, T. Brueckel, 無機カイラル磁性体 CsCuCl₃ におけるキララらせん磁性の検証, の本中性子科学会第 15 回年会, 2015 年 12 月 10 日, 和光市民文化センター(埼玉県和光市)

大石一城, 偏極中性子回折及びミュオンスピン緩和法による CsCuCl₃ のカイラリティの検証, 平成 27 年度 KUR 専門研究会「短寿命 RI を用いた各分校と各物性研究 II」, 2015 年 11 月 5 日, 京都大学原子炉実験所(大阪府熊取町)

中島多朗, 新居陽一, 吉川明子, 山崎裕一, 大石一城, 鈴木淳市, 田口康二郎, 岩佐義宏, 十倉好紀, 有馬孝尚, 中性子小角散乱を用いたカイラル磁性体 MnSi の磁気秩序に対する一軸応力効果の研究, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年 9 月 16 日, 関西大学(大阪府吹田市)

K. Ohishi, J. Suzuki, S. Takata, H. Iwase, T. Shinohara, T. Oku, T. Nakatani, Y. Inamura, T. Ito, H. Kira, T. Morikawa, M. Sahara, T. Hosoya, K. Suzuya, K. Aizawa, M. Arai, T. Otomo, and M. Sugiyama, Current status of polarized and focused neutron beam at the small and wide angle neutron scattering instrument TAIKAN, 16th International Conference on Small Angle Scattering, 2015 年 9 月 14 日, Berlin (Germany)

Y. Kousaka, T. Koyama, K. Ohishi, J. Suzuki, Y. Miyamoto, A. Sera, Y. Matsumoto, S. Ohara, H. Hiraka, K. Inoue, J. Akimitsu, Chiral Helimagnetism and Chiral Magnetic Soliton Lattice in Inorganic Chiral Magnetic Materials, ESNS2015 VI European Conference on Neutron Scattering, 2015 年 9 月 1 日, Zaragoza (Spain)

K. Ohishi, Y. Kousaka, K. Inoue, N. Ikeda, T. Ogura, T. Yoshii, E. Proskurina, J. Akimitsu, J. Suzuki, H. Hiraka, A. Koda, K. M. Kojima,

J. Kishine, Relation between crystallographic chirality and spin chirality in chiral helimagnets studied by polarized small angle neutron scattering and muon spin rotation, 20th International Conference on Magnetism, 2015年7月7日, Barcelona (Spain)

K. Ohishi, Y. Kousaka, E. Proskurina, T. Ogura, J. Akimitsu, K. Inoue, J. Kishine, Chiral helimagnetism in the right-handed and left-handed single crystalline samples of CsCuCl₃, III International Workshop Dzyaloshinskii-Moriya Interaction and Exotic Spin Structure (DMI2015), 2015年5月27日, Pskov (Russia)

高阪勇輔, 大石一城, 小山珠美, 宮本幸乃, 世良文香, 鈴木淳市, 井上克也, 秋光純, 無機キラル磁性体 CsCuCl₃ のキラルらせん磁気構造の検証, 日本物理学会第70回年次大会, 2015年3月21日, 早稲田大学(東京都新宿区)

(招待講演) 大石一城, 高阪勇輔, 池田直樹, 小椋隆弘, 吉井冬破, E. Proskurina, 秋光純, 鈴木淳市, 平賀晴弘, 幸田章宏, 宮川真里奈, 西原禎文, 井上克也, 岸根順一郎, 中性子小角散乱及びミュオンスピンドル緩和法によるキラル磁性体の研究, 第3回物構兼サイエンスフェスタ/第6回MLFシンポジウム, 2015年3月17日, つくば国際会議場(茨城県つくば市)

(招待講演) 大石一城, 高阪勇輔, 井上克也, E. Proskurina, 小椋隆弘, 秋光純, 鈴木淳市, 平賀晴弘, 幸田章宏, 岸根順一郎, カイラルらせん磁性体の結晶構造と磁気構造, 第14回CROSSroads研究会, 2015年2月4日, いばらき量子ビーム研究センター(茨城県東海村)

大石一城, 高阪勇輔, 井上克也, E. Proskurina, 小椋隆弘, 秋光純, 幸田章宏, カイラル磁性体 CsCuCl₃ のカイラリティ結合, 第6回研究会「Muon科学と加速器研究」, 2015年1月7日, 大阪大学(大阪府吹田市)

K. Ohishi, J. Suzuki, S. Takata, H. Iwase, T. Shinohara, T. Oku, T. Nakatani, Y. Inamura, T. Ito, H. Kira, T. Morikawa, M. Sahara, T. Hosoya, K. Suzuya, K. Aizawa, M. Arai, T. Otomo, and M. Sugiyama, Development of polarized and focused neutron beam at the small and wide angle neutron scattering instrument TAIKAN, International Collaboration on Advanced Neutron Sources (ICANS XXI), 2014年9月30日, 茨城県立県民文化センター(茨城県水戸市)

高阪勇輔, 二宮博樹, 松本裕司, 大原繁男, 大石一城, 鈴木淳市, 秋光純, 偏極中性子回折法によるYbNi₃Al₉のカイラルらせん磁性の検証, 日本物理学会2014年秋季大会, 2014年9月7日, 中部大学(愛知県春日井市)

南部雄亮, 東大樹, 奥山大輔, 関真一郎, 大石一城, 高田慎一, 鈴木淳市, 十倉好紀, 佐藤卓, カイラル磁性体 Cu₂OSeO₃ におけるスキルミオン格子のダイナミクス, 日本物理学会第71回年次大会, 2014年9月8日, 中部大学(愛知県春日井市)

21 東大樹, 南部雄亮, 奥山大輔, 佐藤卓, 大石一城, 高田慎一, 鈴木淳市, 関真一郎, 十倉好紀, カイラル磁性体 Cu₂OSeO₃ におけるスカーミオン格子の巨大電気磁気応答の観測, 日本物理学会第71回年次大会, 2014年9月8日, 中部大学(愛知県春日井市)

22 大石一城, 鈴木淳市, 高田慎一, 岩瀬裕希, 篠原武尚, 奥隆之, 中谷健, 稲村泰弘, 伊藤崇芳, 吉良弘, 森川利明, 佐原雅恵, 細谷倫紀, 鈴谷賢太郎, 相澤一也, 新井正敏, 大友季哉, 杉山正明, J-PARC大強度中性子小角・広角散乱装置「大観」の現状, 日本物理学会第71回年次大会, 2014年9月9日, 中部大学(愛知県春日井市)

23 大石一城, 鈴木淳市, 高田慎一, 岩瀬裕希, 篠原武尚, 奥隆之, 中谷健, 稲村泰弘, 伊藤崇芳, 吉良弘, 森川利明, 佐原雅恵, 細谷倫紀, 鈴谷賢太郎, 相澤一也, 新井正敏, 大友季哉, 杉山正明, J-PARC大強度中性子小角・広角散乱装置「大観」, 日本磁気学会第38回学術講演会, 2014年9月3日, 慶応大学(神奈川県横浜市)

24 K. Ohishi, Y. Kousaka, E. Proskurina, T. Ogura, J. Akimitsu, K. Inoue, Relationship between crystallographic and magnetic chiralities in chiral helimagnets CsCuCl₃, The 2nd International Symposium on Science at J-PARC, 2014年7月14日, つくば国際会議場(茨城県つくば市)

25 K. Ohishi, Y. Kousaka, E. Proskurina, T. Ogura, J. Akimitsu, K. Inoue, Relationship between crystallographic chirality and chirality of magnetic structure in chiral magnets, J-PARC - Korea University Muon Experimental Collaboration Meeting, 2014年7月7日, 高エネルギー加速器研究機構(茨城県東海村)

26 K. Ohishi, Y. Kousaka, E. Proskurina, T. Ogura, J. Akimitsu, K. Inoue, Magnetic ordering state in inorganic chiral magnet CsCuCl₃ --- Relationship between crystallographic and magnetic chiralities ---, The 13th International Conference on Muon Spin Rotation, Relaxation and Resonance, 2014年6月5日, Grindelwald (Switzerland)

27 高阪勇輔, 小椋隆弘, 池田直樹, 吉井冬破, 秋光純, J. Zhang, P. Miao, 石川喜久, 鳥居周輝, 神山崇, 大石一城, J. Campo, 無機カイラル磁性体におけるカイラル磁気ソリトン格子の検証, 物構研サイエンスフェスタ2013/第5回MLFシンポジウム, 2014年3月19日, つくば国際会議場

(茨城県つくば市)

- 28 高阪勇輔, 小椋隆弘, 池田直樹, 吉井冬破, 秋光純, J. Zhang, P. Miao, 石川喜久, 鳥居周輝, 神山崇, 大石一城, J. Campo, MnSiのカイラルソリトン格子の観測, 物構研サイエンスフェスタ 2013/第 5 回 MLF シンポジウム, 2014 年 3 月 18 日, つくば国際会議場(茨城県つくば市)
- 29 Y. Kousaka, N. Ikeda, T. Ogura, T. Yoshii, J. Akimitsu, K. Ohishi, J. Suzuki, H. Hiraka, M. Miyagawa, S. Nishihara, K. Inoue, and J. Kishine, Chiral Magnetic Soliton Lattice in MnSi, International Symposium on Science Explored by Ultra Slow Muon (USM2013), 2013 年 8 月 11 日, くにびきメッセ(島根県松江市)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

大石 一城 (OHISHI, Kazuki)
総合科学研究機構・中性子科学センター・
副主任研究員
研究者番号：60414611

(2)研究分担者

なし。

(3)連携研究者

高阪 勇輔 (KOUSAKA, Yusuke)
広島大学・大学院理学研究科・特任助教
研究者番号：60406832