

令和 4 年 5 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H01856

研究課題名（和文）中性子スピネコー分光・小角散乱によるトポロジカル・スピン秩序の動的特性の解明

研究課題名（英文）Neutron spin echo and small angle neutron scattering studies on dynamical properties of topological spin orders

研究代表者

中島 多朗（Nakajima, Taro）

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：30579785

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 14,200,000 円

研究成果の概要（和文）：本研究では近年注目されている磁気スキルミオンなどのトポロジカル磁気秩序を先端的中性子散乱法を用いて研究することを目的とした。我々はJ-PARC物質生命科学実験施設(MLF)の大観分光器において散乱中性子のスピン偏極解析を行うための装置を構築し、実際の磁性体研究に用いた。近年スピンと伝導電子の新奇な相関を示すことで注目されていたEuAl₄、EuAsなどの磁性体にこの手法を適用し、その磁気構造が非共面・非共線的な構造であることを明らかにした。また、同じくJ-PARCの中性子共鳴スピネコー分光装置VIN ROSEにおいては低温・磁場中で測定可能な試料環境を構築した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまでの磁気スキルミオン研究は、定常状態におけるスキルミオンの配列を観測するというものが多く、特に中性子散乱では磁気的なオブジェクトの周期のみを観測することが多かった。本研究では偏極中性子散乱や中性子共鳴スピネコー法といった先端的中性子散乱手法を用いることで、磁気スキルミオンのような複雑な磁気構造におけるスピンのxyz成分の詳細な変化やそのダイナミクスなどを測定することを可能にした。この研究は他の磁性研究にも広く応用可能であり、スピン由来の新たな創発物性の開拓にも寄与するものである。

研究成果の概要（英文）：In this project, we aimed at investigating topological magnetic orders using advanced neutron scattering techniques. We have developed neutron spin analyzer for TAIKAN instrument in the materials and life-science experimental facility (MLF) in J-PARC. We succeeded in separating spin-flip and non-spin-flip scattering process by using the analyzer and applied this technique to EuAl₄ and EuAs, which have attracted increasing attention because of their quantum transport phenomena related to non-collinear/non-coplanar magnetic orders. We also introduced low-temperature and magnetic-field environment for the MIEZE-type neutron spin echo instrument VIN ROSE in MLF of J-PARC. We observed spin fluctuations in a magnetic skyrmion compound MnSi in the vicinity of the phase boundary of the paramagnetic and skyrmion-lattice phase.

研究分野：磁性、中性子散乱

キーワード：磁性 中性子散乱 中性子スピネコー分光 磁気スキルミオン

1. 研究開始当初の背景

近年、磁性体中において現れるナノスケールの渦状スピン構造である「磁気スキルミオン」が大きな注目を集め、盛んに研究されている。この「スキルミオン」という概念の源流は1960年代の場の量子論に遡る。当時、「連続的な場からいかにして粒子が現れるか？」という根源的な問いに対して様々な数理モデルが提案されていた中で、T. H. R. Skyrme は核物理のモデルとしてトポロジカルな位相欠陥としての性質を持つ粒子モデルを提案し [1]、それが「スキルミオン」と呼ばれるようになった。例えばベクトル場が渦を巻くような状態にあるとき、各点のベクトルの始点を一点に集めると矢印の指す方向が 4π の立体角をちょうど整数回覆う場合、その渦は「トポロジー」で特徴づけられる離散量(トポロジカル数)を持った粒子とみなすことができる。

このような粒子は物性研究の分野でも見出され、冒頭で述べた磁気モーメントの分布を連続場とみなした時にその配列がトポロジカルな渦構造となる「磁気スキルミオン」が理論的に予測され、2009年に実際にMnSiという金属磁性体で磁気スキルミオンが発見された [2]。MnSiは元々強磁性的な交換相互作用とカイラルな結晶構造に起因するジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用により長周期のらせん磁気構造を示す系だということが知られていたが、中性子小角散乱において磁気転移温度直下の磁場中で六角形の散乱パターンが観測され、これがスキルミオン三角格子による散乱であると報告された [2]。これに続いてローレンツ電子顕微鏡による磁化分布の実空間観察が行われ、図1の模式図に示したような渦状のスピン配列が実際の物質で実現していることが確かめられた [3]。これを皮切りとしてスキルミオン研究は世界的な広がりを見せ、これまでに薄膜上のナノ・スキルミオン [4] や、室温でスキルミオンを示すCo-Zn-Mn合金 [5]、さらには三次元的なトポロジカル磁気秩序であるスピンヘッジホッグ・反ヘッジホッグ格子を示す磁性体MnGe [6] などとも報告されている。また、磁気スキルミオンは基礎物理学的な観点からだけでなく、新世代の磁気メモリへの応用の観点からも注目を集めている。

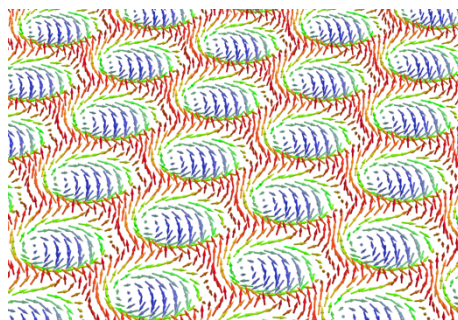


図1:磁気スキルミオン格子の模式図。

これまで数多くの物質について中性子小角散乱やローレンツ電子顕微鏡を用いた研究が行われた結果、定常状態において磁気スキルミオンを観測する方法はほぼ確立しつつある。よってこの分野の研究は「止まっているスキルミオンの配列を観察する」という段階から次のステージへと移り、「動的(もしくは準静的)な外場下における磁気スキルミオンの構造変化を観測する」ということや「スキルミオン格子(もしくは単一粒子)の揺らぎを観測する」という点に焦点が移っていった。

2. 研究の目的

本研究では、J-PARC物質・生命科学実験施設(MLF)に設置された2つの中性子ビームライン、中性子小角・広角散乱装置「大観」(BL15)と中性子共鳴スピネコー分光器群「VIN ROSE」(BL06)を用いて、「外場下におけるトポロジカルスピン秩序の変化」と「トポロジカルスピン秩序のスピンダイナミクス」を解明することを目的とした。具体的には2つのビームラインで以下の点に取り組んだ。

(1) 偏極中性子散乱による、磁場中のトポロジカル磁気構造の構造解析

先に述べたように、スキルミオン格子がそこに存在しているということは中性子小角散乱における六角形の散乱パターンとして観測される。しかしそれでは何らかのオブジェクトが三角格子を組んでいるという周期の情報しかわからない。磁場や温度を変化させた時に磁気構造を構成しているスピンの磁場垂直・並行成分がどのように変化したかを知るためには偏極中性子散乱が極めて有効である。この手法は、スピン偏極した中性子を試料に入射し、散乱中性子強度をスピンプリップ・ノンスピンプリップ過程に分けて分けて検出するもので、中性子スピンの偏極方向に対して垂直・並行の磁気成分を分離して測定することができる。原子炉の三軸分光器や小角散乱装置ではこのようなスピン解析が可能なものもあるが、J-PARC MLFの小角・広角散乱装置ではこれまで実現していなかった。本研究ではこれを実現することを目指した。

(2) MIEZE型中性子スピネコー分光法を用いた磁気スキルミオン系のスピンゆらぎの研究

磁性体におけるスピンの動的相関を観測する上で中性子散乱は非常に有効な方法である。しかし本研究で対象とする磁気スキルミオンのような長周期磁気構造の揺らぎは、実空間で数十ナノメートル程度の長周期、時間スケールでナノ秒(エネルギースケールで μeV)程度の長周期・低エネルギー励起であるため、これを観測するのは容易ではない。J-PARC物質・生命科学実験

施設の BL06 に設置された VIN ROSE 分光器は、MIEZE 型中性子共鳴スピネコー分光法によりこの波数・エネルギー領域の探査が可能である。本研究では VIN ROSE に低温磁場中測定環境を構築し、実際の物質研究に用いることを目指した。

3. 研究の方法

目的の(1)について、我々は本予算で TAIKAN に散乱中性子の偏極解析装置を導入した。TAIKAN 自体は元々入射ビームの偏極機構を備えているが、散乱中性子のスピン偏極解析機構は備えていなかった。TAIKAN の検出器は広い立体角をカバーするように配置されており、理想的には全ての散乱角でのスピン解析を行えるような ^3He スピンフィルターのような機構が望ましいとされている。しかし、我々の研究対象である磁性体単結晶からの散乱は限られた方向に非常にシャープな反射として現れるため、本研究ではその一つの反射を選択して解析を行うことが可能な磁気スーパーミラーを用いて偏極解析装置を製作することを試みた。磁気スーパーミラー自体は同じ J-PARC MLF の別のビームラインから借りることとした。本予算を用いて、分担者の大石氏らによってスピン解析用磁気ミラーを上下左右に移動し、かつその角度を特定の散乱中性子ビームの方向に並行にするシステムが開発された。(図2参照)

目的の(2)については、低温磁場中の実験環境を整えることに本予算を使用した。冒頭でも述べた代表的な磁気スキルミオン物質である MnSi などは、30 K 以下程度の低温と、0.2 T 程度の磁場中において磁気スキルミオン格子相を示す。本課題ではこの領域をターゲットとして、最低温度約 3 K の GM 冷凍機と、最大磁場 0.6 T の電磁石を導入した。冷凍機は分担者の遠藤氏が所属する KEK の予算で購入され、電磁石は本予算によって購入された。さらに、電磁石導入の直前には磁場中測定の有効性を示すために、永久磁石を用いて試料位置に磁場を加えながら中性子スピネコー分光測定を行うこともテストした。

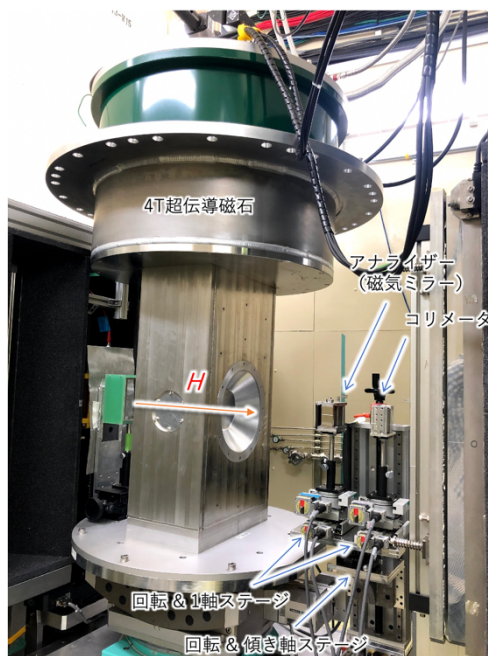


図2: J-PARC MLF の TAIKAN ビームラインに設置されたスピン偏極解析装置

4. 研究成果

(1)の偏極解析について、我々はテスト実験として小角領域に磁気 Bragg 散乱が出現し、すでにフランスの中性子施設 ILL でスピン偏極解析実験が行われた実績のある $\text{Y}_3\text{Co}_8\text{Sn}_4$ 試料に対する偏極中性子散乱実験を行った。試料は東大工学部物理工学科関研究室の高木里奈氏より提供いただいた。その結果、先行研究[7]と同様な spin-flip, non-spin-flip 散乱の比が得られ、本課題で構築した偏極解析システムが正しく機能していることが実証された。我々はこの偏極解析の手法を EuAl_4 , EuAs などの物質に適用し磁気構造を決定した [8, 9]。これらの物質は非共面的磁気構造に起因するホール効果を生じることが期待されており、今回行った散乱中性子のスピン偏極解析によって得られた磁気構造はこれを裏付けるものとなった。注目すべきは、 EuAl_4 に対する偏極中性子散乱は中性子ビーム平行方向に 1 T の外部磁場を加えた状態で行われたことである。海外施設でも使用されている ^3He スピンフィルター型の偏極解析装置は、 ^3He の核スピンの偏極を保つために磁場環境を精度よくコントロール必要がある。磁性体の実験で試料位置に中性子ビームと平行な磁場をかけた場合は、その漏れ磁場によってスピンフィルターの性能が損なわれてしまうことがある。しかし、分担者の大石氏らによって開発された今回のセットアップは磁気ミラーを用いているため外部磁場に対して比較的強く、その結果磁性体の磁場誘起相転移の研究に極めて適しているものとなった。本課題の期間終了後もこのセットアップは BL15 TAIKAN における磁性研究において活用されることが期待される。

(2)の中性子スピネコー実験については、前述の電磁石が昨年度導入され、現在ビームラインにおいてコミッショニング中である。この手法の研究対象として低エネルギーのスピンゆらぎが巨大なホール効果を誘起することが理論的に予測されている Mn(Si, Ge)が挙げられる。ホール効果の測定結果はすでに論文で発表されており [10]、これと対応させるためのスピンゆらぎの温度磁場変化を測定することが必要である。我々は VIN ROSE を用いてすでにゼロ磁場におけるスピンゆらぎの温度変化の測定を進めており、この電磁石のコミッショニングが完了し次第磁場依存性の測定も行うことを計画している。また、これに先立って、代表的な磁気スキルミオン物質である MnSi における磁場中のスピンゆらぎの測定を、永久磁石を用いた外部磁場印加装置を使って行った。代表的な結果を図3に示す。この物質は 0.21 T 程度の磁場下において、29 K

程度の温度で常磁性状態から磁気スキルミオン格子への相転移を示す。その前駆現象としてスピンの短距離相関の発達が見られ、それが小角散乱領域における散漫散乱として観測される [11, 12] が、VIN ROSE での測定によって、そのスピン相関が 1 ns 程度の時間スケールで揺らいだ状態にあることを直接観測することに成功した [13]。さらに温度を下げていくと、磁気スキルミオンが三角格子を組んだ結晶状態へと転移するが、その過程でも散漫散乱は存在している。規則的な格子を組んだスキルミオンに対応する磁気ピークからはスピン相関の時間緩和は観測されなかった一方で、同じ温度で共存する散漫散乱成分は緩和を示しており、これは静的なスキルミオン格子と動的な短距離スピン相関が相転移点境界で共存していることを示している。この結果は、磁気スキルミオン研究としての位置付けの他に、今回の実験手法が「共存する二つの異なるスピン状態を波数空間で精度よく分離して、それぞれのゆらぎを検出することができる」ものであることを示している。これは磁気スキルミオン研究のみならず他の物質研究にも VIN ROSE が活用できることを示している。

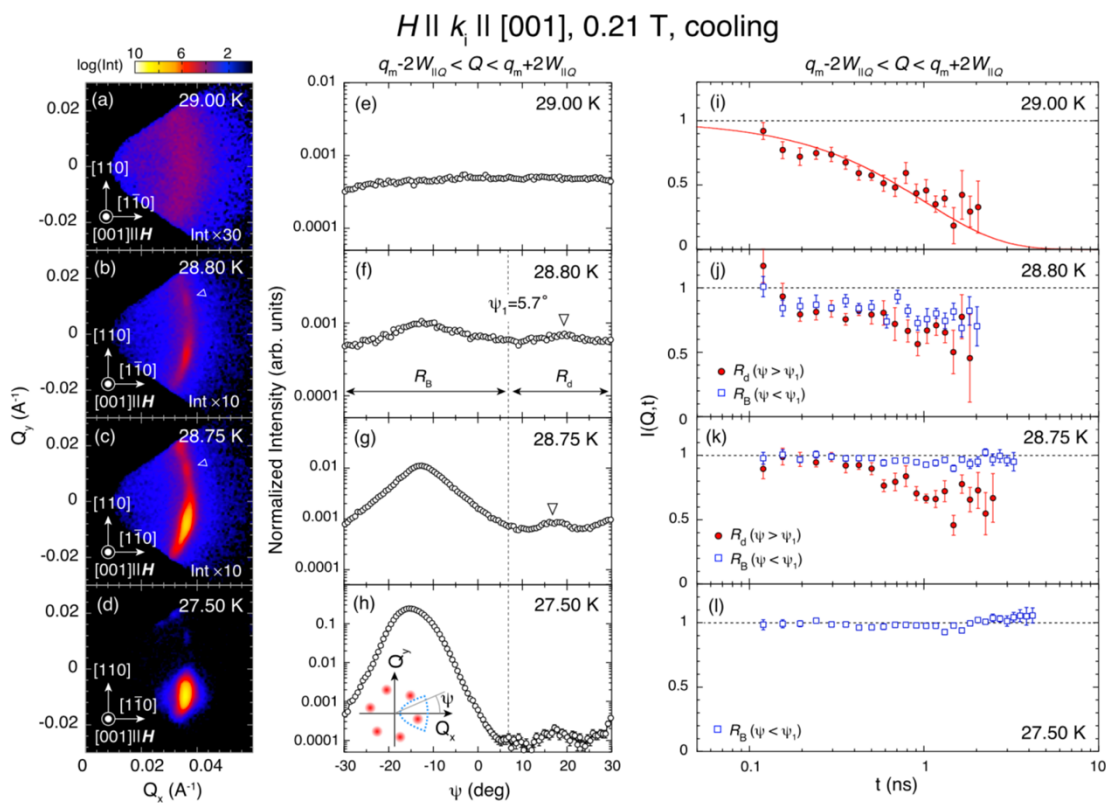


図 3: J-PARC MLF の VIN ROSE ビームラインで測定された MnSi の磁場中中性子共鳴スピ
ンエコー測定の結果。(論文[13]より引用)

<参考文献>

- [1] T.H.R. Skyrme: Nucl. Phys. **31**, 556 (1962).
- [2] S. Muhlbauer et al., Science **323**, 915 (2009).
- [3] X. Z. Yu et al., Nature **465**, 901 (2010).
- [4] N. Romming et al., Science **341**, 636 (2013).
- [5] Y. Tokunaga et al., Nat. Commun. **6**, 7638 (2013).
- [6] N. Kanazawa et al., PRB **86**, 134425 (2012).
- [7] R. Takagi et al., Sci. Adv. **4**, 3402 (2018).
- [8] R. Takagi et al., Nat. Commun. **13**, 1472 (2022).
- [9] M. Uchida et al., Sci. Adv. **7**, ab15381 (2021).
- [10] Y. Fujishiro et al., Nat. Commun. **10**, 1059 (2019).
- [11] C. Pappas et al., PRL **102**, 197202 (2009).
- [12] J. Kindervater et al., PRX **9**, 041059 (2019).
- [13] T. Nakajima et al., PRR **2**, 043393 (2020).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Nakajima Taro, Oda Tatsuro, Hino Masahiro, Endo Hitoshi, Ohishi Kazuki, Kakurai Kazuhisa, Kikkawa Akiko, Taguchi Yasujiro, Tokura Yoshinori, Arima Taka-hisa	4. 巻 2
2. 論文標題 Crystallization of magnetic skyrmions in MnSi investigated by neutron spin echo spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 43393
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.2.043393	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Uchida Masaki, Sato Shin, Ishizuka Hiroaki, Kurihara Ryosuke, Nakajima Taro, Nakazawa Yusuke, Ohno Mizuki, Kriener Markus, Miyake Atsushi, Ohishi Kazuki, Morikawa Toshiaki, Bahramy Mohammad Saeed, Arima Taka-hisa, Tokunaga Masashi, Nagaosa Naoto, Kawasaki Masashi	4. 巻 7
2. 論文標題 Above-ordering-temperature large anomalous Hall effect in a triangular-lattice magnetic semiconductor	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 ab15381
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1126/sciadv.ab15381	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Takagi Rina, Matsuyama Naofumi, Ukleev Victor, Yu Le, White Jonathan S., Francoual Sonia, Mardegan Jose R. L., Hayami Satoru, Saito Hiraku, Kaneko Koji, Ohishi Kazuki, Onuki Yoshichika, Arima Taka-hisa, Tokura Yoshinori, Nakajima Taro, Seki Shinichiro	4. 巻 13
2. 論文標題 Square and rhombic lattices of magnetic skyrmions in a centrosymmetric binary compound	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1472
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-022-29131-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Oda Tatsuro, Endo Hitoshi, Ohshita Hidetoshi, Seya Tomohiro, Yasu Yoshiji, Nakajima Taro, Hino Masahiro, Kawabata Yuji	4. 巻 1012
2. 論文標題 Phase correction method in a wide detector plane for MIEZE spectroscopy with pulsed neutron beams	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment	6. 最初と最後の頁 165616 ~ 165616
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nima.2021.165616	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 中島多朗, 小田達郎, 日野正裕, 遠藤仁, 吉川明子, 田口康二郎, 加倉井和久, 十倉好紀, 有馬孝尚
2. 発表標題 MIEZE型中性子スピンエコー分光を用いたMnSiにおける磁気スキルミオン格子相境界のスピンゆらぎの観測
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高木里奈, 松山直史, Victor Ukleev, Le Yu, Jonathan S. White, Sonia Francoual, Jose R. L. Mardegan, 金子耕士, 大石一城, 大貫 悖睦, 有馬孝尚, 十倉好紀, 中島多朗, 関真一郎
2. 発表標題 空間反転対称性を有する遍歴磁性体EuAl4における磁気スキルミオン格子相の観測
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	遠藤 仁 (Endo Hitoshi) (40447313)	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・准教授 (82118)	
研究分担者	大石 一城 (Ohishi Kazuki) (60414611)	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）及び中性子科学センター（研究開発・中性子科学センター・副主任研究員） (82121)	
研究分担者	小田 達郎 (Oda Tatsuro) (70782308)	東京大学・物性研究所・助教 (12601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------