最近の研究動向

磁気スキルミオンのヘリシティ・キラリティ相関と 磁気バブルのヘリシティダイナミクスの観測

東京大学生産技術研究所 柴田基洋

Kiyoh SHIBATA: Observation of Helicity-Chirality Correlation and Magnetic Bubble Dynamics

ナノスケール磁気渦構造であるスキルミオンは位相幾何学的に安定な構造を有すること¹⁾などの理由で、さまざまな観点から研究が行われてきた。その中でローレンツ電子顕微鏡法 (LTEM) はキラルな結晶構造をもつ磁性体 (以下、キラル磁性体) における実験的発見^{2),3)}の当初から、スキルミオンを実空間観察できる強力なプローブとして、重要な役割を果たしてきた。本稿では、LTEMで明らかになったキラル/アキラル磁性体における結晶構造と磁気渦構造との相関を概観する。

キラル磁性体の代表例がB20型と呼ばれる空間群 $P2_13$ に属する結晶構造をもつ、遷移金属と14族元素の化合物磁性体群である。B20型結晶構造の鏡像対について図1aに示す。このような空間反転対称性の破れた磁性体では、相対論的スピン軌道相互作用に由来するジャロシンスキー・守谷 (DM) 相互作用が働く。これは隣接するスピンを直交させた場合にエネルギーが低下するようなスピン間相互作用で、B20型結晶構造においては $DS \cdot (S \times S)$ と空間的に一様で等方的な捻じりを与えるハミルトニアンで記述される。ここで、 D はDM相互作用の強さを与える擬スカラーで、スピン軌道相互作用や結晶の対称性で決まる量である。 D の符号がエネルギー的に安定な捻じりの向き、大きさが捻じりの強さを決める。このDM相互作用と隣り合うスピンを平行にしようとする強磁性的交換相互作用の競合は、一定の角度で一方向にスピンの回転するプロパースクリュー型らせん磁気構造 (図1b) を無磁場下で安定化する。一方、磁場下ではゼーマンエネルギーとのバランスでさまざまな磁気相が現れる。その1つが磁場と垂直な面に対して渦状の構造をもつスキルミオン (図1c) である。2009年にB20型MnSiについての小角中性子散乱でスキルミオンが三角格子状に配列したスキルミオン格子の形成が推察され、²⁾2010年にLTEMを用いたB20型 $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ のLTEM観察によってスキルミオン格子が実空間観察された。^{3),4)}

LTEMによるスキルミオンの観察 (フレネル法) の模式図を図2aに示す。薄片試料中のスキルミオンに照射された電子線は面内磁化によるローレンツ力で巻き方に応じて凸レンズまたは凹レンズのように偏向させられ、試料から焦点をずらした位置に斑点状の濃淡を作る。そのため、斑点の位置とその明暗からスキルミオンの位置

図1 (a) B20型結晶構造, (b) らせん磁気構造, (c) スキルミオンの右手系・左手系の模式図。(Schematics of B20-type crystal structure (a), helical magnetic structure (b), and skyrmions (c).)

と磁場と垂直な面内の巻き方 (ヘリシティ) が観察できる。B20型FeGe多結晶の薄片についてスキルミオンを観察した例を図2bに示す。各単結晶領域では斑点の明暗が揃っており、ヘリシティの同じスキルミオンの形成が確認できる。これはあるキラリティの結晶では D の符号が一定なためである。

一方、鏡映操作による結晶構造のキラリティ反転に対しては、磁気構造も鏡映操作により、スキルミオンのヘリシティが反転する。これは D の符号が反転し、磁気構造を捻る向きが逆になることを意味する。図2bの結晶ドメインA, Bでは斑点の明暗が逆になっており、スキルミオンのヘリシティが異なるが、これはドメインA, Bが異なるキラリティを有するためであると考えられる。

透過電子線は多重散乱の効果強く受け、試料の三次元構造の情報を含むため、収束電子回折 (CBED) を用いると空間群の決定が行えることが知られている。⁵⁾結晶構造のキラリティもCBED図形をシミュレーション結果と比較することで判別が可能である。図2bのドメインA, Bから取得した $[120]$ 入射CBED図形を図2c, dに示す。詳細は割愛するが、 $002/00\bar{2}$ ディスクのパターンがドメインに応じて反転していることが、異なるキラリティをもつことを示している。シミュレーションとの比較で各々のキラリティを判別すると、FeGeにおいて

図2 (a) LTEMによるスキルミオンの観察の模式図。(b) B20型FeGe多結晶中のスキルミオンのLTEM像。(c), (d) ドメインA, Bから取得したCBED図形。(a) Schematics of observation of skyrmions by LTEM, (b) LTEM image of skyrmions in a polycrystal of B20-type FeGe, (c, d) CBED patterns taken from domains A and B, respectively.)

左手系の磁性は右手系結晶で、右手系の磁性は左手系結晶で現れる相関が確認できた。⁶⁾このような結晶・磁性相関はB20型のキラル磁性体MnSiと $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ においてもLTEMとCBEDにより確認されている。⁷⁾

キラリティに応じて D の符号が反転する相関がある一方、ある一方のキラリティをもった物質における D の大きさや符号は組成に対しても変化する。B20型結晶の混晶系 $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ge}$ について同様の観察・分析を行うことで、組成に対して $x = 0.8$ 付近で結晶構造のキラリティとスキルミオンのヘリシティの相関が反転することがわかった。⁶⁾また、LTEM像から計測した磁気周期は組成に対して $x = 0.8$ 付近で発散することもわかった。⁶⁾これは組成に対する D の符号変化を伴う連続的な変化として理解できる。また、スキルミオン応用に有用な室温以上の磁気転移温度をもつ、空間群 $P4_132/P4_332$ に属する β -Mn構造 $\text{Co}_8\text{Zn}_8\text{Mn}_4$ ⁸⁾にFeをドーブした系についても、同様に磁気構造と結晶構造との相関が $x = 2.7$ 付近で反転することが確認されている。⁹⁾結晶のキラリティと組成の変調によるDM相互作用を介した磁気構造の周期と巻き方の制御が一般に可能であることが示唆される。

ここまで、DM相互作用に起因して磁性の巻き方が結晶と相関している例を取り上げたが、ねじれた磁気構造自体は空間反転対称性のある系でもプロッホ磁壁などで現れる。特に面直磁気異方性や磁気双極子相互作用が適切なバランスの系では磁気バブルと呼ばれる渦状磁気構造も安定化される。しかし、これらの磁気構造の左手系と右手系はエネルギー的に縮退しており、どちらも同等に出現するはずである。また、2つの構造間にはエネルギー障壁が存在し、エネルギー障壁を超えるような励起が起これば2つの構造間を遷移するダイナミクスが現れると期待される。

空間反転対称性を有するScドーブYタイプBaヘキサフェライトについて温度を変えてLTEMの動画を撮影した観察例¹⁰⁾の一部を図3aに示す。図3bに示すように磁気バブルもスキルミオンと同様に面内の巻き方で濃淡が異なって結像されることから、図3aのいずれのフレームも

図3 Yタイプヘキサフェライトの磁気バブルのヘリシティ反転のダイナミクス。(Helicity reversal dynamics of magnetic bubbles in a Y-type hexaferrite.) (a) 同一視野についてのLTEM像の時間変化 (b) 磁気バブルとコントラストの模式図 (c) 反転時間の温度依存性。

左巻き、右巻きの両方を含んでいることがわかる。さらに、時間経過に伴い磁気バブルのコントラストが変化しており、ヘリシティが動的に反転していることが確認できる。なお、コントラストが薄いものがあるのは積算時間中にヘリシティ反転が起き平均化されたためだと考えられる。動画の解析により図3cに示すように、観察したバブルのヘリシティ反転に要する典型的な時間は温度上昇に伴って急激に減少することがわかった。この結果は、右巻きと左巻きの構造がエネルギー縮退していること、これらの間のダイナミクスが熱的な励起で起こることを示している。

以上で紹介した例は固体結晶の対称性の性質が磁気構造の対称性やダイナミクスを支配していることを如実に示している。ほかにも結晶構造の歪みによるDM相互作用の異方的変調¹¹⁾や、異なる対称性をもった系でのスキルミオン構造の発見¹²⁾アキラルな系でのヘリシティのダイナミクスの観測¹³⁾などがLTEMを用いて行われている。これらの分析手法や得られた知見は、新たな磁気構造と結晶構造や組成の関係を理解・応用する際に有用であると考えられる。

謝 辞

本稿は筆者が東京大学工学系研究科および理化学研究所CEMSに在籍中に行った研究を軸にまとめたものです。十倉好紀教授、有馬孝尚チームリーダー、于秀珍チームリーダー、金澤直也講師をはじめとする皆様に深く感謝の意を表します。

文 献

- 1) N. Nagaosa and Y. Tokura: *Nat. Nanotechnol.* **8**, 899 (2013).
- 2) S. Mühlbauer, et al.: *Science* **13**, 915 (2009).
- 3) X. Z. Yu, et al.: *Nature* **465**, 901 (2010).
- 4) 金澤直也ほか：日本結晶学会誌 **5**, 247 (2011).
- 5) 津田健治：日本結晶学会誌 **44**, 201 (2002).
- 6) K. Shibata, et al.: *Nat. Nanotechnol.* **8**, 723 (2013).
- 7) D. Morikawa, et al.: *Phys. Rev. B* **88**, 024408 (2013).
- 8) Y. Tokunaga, et al.: *Nat. Commun.* **6**, 7638 (2015).
- 9) K. Karube, et al.: *Phys. Rev. B* **98**, 155120 (2018).
- 10) X. Z. Yu, et al.: *Phys. Rev. B* **93**, 134417 (2016).
- 11) K. Shibata, et al.: *Nat. Nanotechnol.* **10**, 589 (2015).
- 12) A. K. Nayak, et al.: *Nature* **548**, 561 (2017); L. Peng, et al.: *Nat. Nanotechnol.* accepted.
- 13) M. Nagao, et al.: *Nat. Nanotechnol.* **8**, 325 (2013).

最近の研究動向 プロフィール

伝導性MOFの最近の展開

大津博義 Hiro Yoshi OHTSU

東京工業大学理学院化学系

Department of Chemistry, School of Science, Tokyo Institute of Technology

〒152-8550 東京都目黒区大岡山2-12-1-NE-4

2-12-1-NE-4, O-okayama, Meguro-ku, Tokyo 152-8550, Japan

TEL: 03-5734-2158

e-mail: ohtsu@chem.titech.ac.jp

最終学歴: 早稲田大学先進理工学研究科化学・生命化学専攻博士課程修了, 博士(理学)

専門分野: 錯体化学, 化学結晶学

現在の研究テーマ: 準安定相ネットワーク錯体の機能創出

新規Fe-Mg系酸化物の結晶構造と地球深部科学

石井貴之 Takayuki ISHII

バイロイト大学バイエルン地球科学研究所

Bayerisches Geoinstitut, Universität Bayreuth

〒D95447 ドイツ, バイロイト, ユニヴェルジテーツ通り30, バイロイト大学バイエルン地球科学研究所

Bayerisches Geoinstitut, Universität Bayreuth, Universitätsstraße 30, D-95447 Bayreuth, Germany

e-mail: takayuki.ishii@uni-bayreuth.de

最終学歴: 学習院大学自然科学研究科化学専攻

専門分野: 高圧地球科学, 結晶化学

現在の研究テーマ: 高圧発生技術の開発とマントル構造・ダイナミックスの解明

趣味: ビール, ワイン, 旅行

磁気スキルミオンのヘリシティ・キラリティ相関と磁気バブルのヘリシティダイナミックスの観測

柴田基洋 Kiyoshi SHIBATA

東京大学生産技術研究所

Institute of Industrial Science, the University of Tokyo

〒153-8505 東京都目黒区駒場4-6-1

4-6-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo 153-8505, Japan

e-mail: kiyoshi@iis.u-tokyo.ac.jp

最終学歴: 東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻修了, 博士(工学)

専門分野: 磁性体, 透過型電子顕微鏡, 数値計算, データ解析

現在の研究テーマ: 低対称構造と物性の相関の探索

趣味: 散歩, サイクリング, 音楽鑑賞

タンパク質結晶学の巨人 Michael G. Rossmann

福山恵一 Keiichi FUKUYAMA

大阪大学大学院理学研究科

Graduate School of Science, Osaka University

〒565-0854 吹田市桃山台2-4-45-310

2-4-45-310 Momoyamadai, Suita, Osaka 565-0854, Japan

e-mail: fukuyama@bio.sci.osaka-u.ac.jp

専門分野: Protein crystallography

現在の研究テーマ: タンパク質やその複合体の働きを, 立体構造をベースにとらえることに取り組んでいる。タンパク質には酸化還元タンパク質, 鉄硫黄タンパク質や鉄硫黄クラスターの合成にかかわるタンパク質, ヘムタンパク質, ビリン色素合成タンパク質, 球状ウイルスなどがある。中性子結晶解析も取り入れている。

趣味: 歴史に関連したことがらや人物, 科学に貢献した人の考えに思いをめぐらすこと。また昭和40～50年代の歌を聞いたり映画を見て思いにふけること。