

# 研 究 報 告 書

## 「磁気バブルメモリの刷新に向けた、スキルミオンの結晶学と電磁気学の構築」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成24年10月～平成28年3月

研 究 者: 関 真一郎

### 1. 研究のねらい

記憶素子の省電力化・高密度化は、情報社会の持続的な発展のために必要不可欠な課題である。かつて脚光を浴びたメモリ技術の1つに、円柱状の磁区構造である「磁気バブル」を情報担体とする「バブルメモリ」が挙げられる。バブルメモリは一度商業化されたものの、高密度化に限界があったほか、磁気バブルの生成に希土類元素の使用が必須であったため高価であり、他の技術との競争に破れた経緯がある。しかし最近になり、特殊な磁性体中で「スキルミオン」と呼ばれるナノスケールの渦状スピン構造体が発見され、バブルメモリに流用可能な新たな情報担体の候補として注目を集めている。スキルミオンは、磁気バブルと同じスピン構造を持ちながら直径が2～3桁小さく(数～数十nm)高密度化に極めて有利であるほか、形成機構が結晶構造の対称性のみに依存するとされており希土類元素を必要としないため、元素戦略の観点からも有望視される。また、金属中のスキルミオンは電流によって駆動できることが知られており、こうした電気的な手法による可制御性も、応用上の大きな利点である。

一方で、スキルミオンは2009年に実験的に発見されたばかりであり、従来はB20合金と呼ばれる特殊な結晶構造の金属中でしか観測例がなかった。また、金属中の電流を用いた制御手法には、ジュール発熱に伴うエネルギー損失を生じるという欠点もある。こうした中、代表研究者は $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$ という絶縁体物質においてもスキルミオンが観測できることを発見し、さらに絶縁体中のスキルミオンが電気分極を運んでいることを明らかにした。上記の結果は、より多くの物質で普遍的にスキルミオンを生成できることを強く示唆するとともに、(ジュール発熱を伴う電流ではなく)絶縁体中の電場によってスキルミオンを制御できる可能性を示している。

そこで本課題では、スキルミオンを磁気バブルに代わる超高密度・超低消費電力・レアアースフリーな情報媒体として活用するための基礎学理の構築を目指し、特に

- ①スキルミオンを伴う新物質の開拓と、その形成条件・物質設計指針の確立
  - ②電場、光、スピン流といった外場による、スキルミオンのダイナミクスの制御
- の2つを目標として研究を行った。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

本課題では、①スキルミオンを伴う新物質の開拓と物質設計指針の確立、②電場・光・スピン流といった外場によるスキルミオンのダイナミクスの制御、の2点を目標としている。

①の物質開拓については、特に反転対称性の破れた一軸強磁性体を中心に探索を行い、実際に極性を伴った構造のY-Co-Sn合金系において、小角中性子散乱を通じてスキルミ

オンの三角格子状態と思われる 11nm 周期の磁気変調パターンを発見することに成功した。従来、スキルミオンの形成はキラルな対称性の立方晶においてのみ報告されていたが、今回の結果は極性を伴った強磁性体が普遍的にスキルミオンを生成しうることを強く示唆しており、新しい物質設計指針が得られたと考えられる。理論的には、キラル立方晶よりも極性晶系の方が広い温度・磁場領域でスキルミオンが安定化すると予測されており、今回得られたデータも上記の理論と一致する傾向を示している。

②の外場制御については、特にスキルミオンを伴う絶縁体  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  を対象に、(a)静電場、(b)振動磁場・振動電場、(c)スピン波スピン流、の3つの外場に対する応答を詳細に調べた。その結果、主な成果として、

(a)静電場の符号に依存して、スキルミオン相の安定性を制御できること

(b)振動磁場や振動電場によってスキルミオンの共鳴振動を励起でき、さらにこの共鳴振動に伴ってマイクロ波(光)のダイオード効果が現れること

(c)スピン波スピン流に対してスキルミオンがマグナス力(変化球の原理)を通じたホール効果を示すこと、またスキルミオンがスピン波スピン流のダイオードとして機能すること  
をそれぞれ発見した。絶縁体中の電場やスピン波スピン流は、金属中の電流(及びそれに付随して生じる磁場)とは異なり、ジュール発熱に伴う損失を伴わないため、上記の発見はスキルミオンを制御するためのよりエネルギー効率の高い手法を提案していると考えられる。

## (2) 詳細

### 研究テーマ①「スキルミオンを伴う新物質の開拓と、その形成条件・物質設計指針の確立」

スキルミオンの観測は、従来はいずれもキラル立方晶系に属する強磁性体に対してのみ報告されてきた。理論的には、スキルミオンは反転対称性の破れた結晶構造の下で生じる Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用によって安定化されるとされ、このことはキラル立方晶以外の晶系であっても、反転対称性が破れていれば同様にスキルミオンが形成されうることを示唆している。

そこで本研究では、特に反転対称性の破れた一軸強磁性体に焦点を絞り、スキルミオンを伴う新物質の探索を行った。その結果、極性強磁性体である Y-Co-Sn 合金系において、小角中性子散乱実験を通じてスキルミオンの三角格子と思われる 11nm 周期の磁気テクスチャを観測することに成功した。この物質中では六回対称な磁気 Bragg 反射が明瞭に観測されており、観察面内に磁場を加えても六回対称性が維持されたままであることから、これは単純な螺旋磁気ドメインの共存ではなく、3つの磁気変調を同時に満たしたシングルドメインの状態であることが強く示唆される。また、キラル立方晶のバルク結晶の場合には、磁気秩序温度付近のごく狭い温度磁場領域でのみスキルミオンが観測されるのに対し、本物質ではゼロ温度まで安定にスキルミオンが存在していると思われるデータが得られており、これは理論的な予測とも合致する。

上記の結果は、極性強磁性体が一般にスキルミオンを生じる可能性を強く示唆しており、新しい物質設計指針として非常に有用であると考えられる。この他、D2d の点群に属した反転対

称性の破れた一軸晶系の強磁性体(Cr-Ge 合金系)においても、有限のスキルミオン数を伴う渦状のスピンの構造を発見することができており、今後のさらなる物質の拡張が見込まれる。  
[いずれも投稿準備中]

## 研究テーマ②「電場、光、スピン流といった外場による、スキルミオンのダイナミクスの制御」

特にスキルミオンを伴う絶縁体  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  を対象に、(a)静電場、(b)振動磁場・振動電場、(c)スピン波スピン流、3つの外場に対する応答を詳細に調べた。

### (a)静電場に対する応答の解明

絶縁体中のスキルミオンは電気分極を運んでいることがわかっており、このことは外部からの電場によってそのダイナミクスを制御できることを強く示唆している。当初は、電場勾配を加えることによってスキルミオンの並進運動を駆動し、その様子をローレンツ電子顕微鏡で観察することを目指していたが、欠陥等によるピンニングの影響が大きいためか期待した並進運動は観測できなかった。

このため、方針を転換して静電場によるスキルミオンの安定性の制御を試みた。スキルミオン相は、競合する強磁性相・螺旋磁気相と比較して誘起される電気分極の符号・大きさが異なっていることがわかっており、このことは外部からの電場の符号に依存して、スキルミオンを安定化したり不安定化したりできることを示している。実際に、交流帯磁率の測定を通じて電場下における温度磁場相図を作成してみると、正の電場下ではスキルミオン相が拡大し、負の電場下ではスキルミオン相が縮小する様子を観測することができた。この結果は、電場によるスキルミオンの不揮発な生成・消滅が可能であることを示唆しており、スキルミオンの有無に基づく情報の書き込みのための新しい手法の開拓につながる成果であると考えられる。  
[学会発表(一般講演)3, 投稿中]

### (b) 光(振動磁場・振動電場)に対する応答の解明

一般に、磁性体は GHz~THz の帯域で、磁気共鳴に伴う吸収を示すことが知られている。今回、GHz 帯域の分光測定系を整備して  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  の吸収スペクトルを観測した結果、スキルミオン相において、他の磁気相とは明らかに異なる新しい共鳴吸収モードが現れることを発見した。理論的な解析の結果、これらのモードはスキルミオンの回転モードと Breathing モードに相当していることがわかった。通常、こうした磁気共鳴モードは振動磁場によってのみ励起されるが、絶縁体中のスキルミオンは電気分極と強く結合しているため、振動電場によっても励起が可能であることが期待される。こうした振動磁場と振動電場の両方で励起可能なモードはエレクトロマグノンと呼ばれ、双方の励起効果の干渉の結果、共鳴周波数で光のダイオード効果を示すことが予測される。実際に、 $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  に対して照射するマイクロ波の進行方向を反転させることで、スキルミオン相において巨大な光のダイオード効果(～数%程度)が現れ

ることがわかった。上記の結果は、振動電場によるスキルミオンの制御が実際に可能であることを示しており、特に共鳴条件下では電場とスピントクスチャの応答係数が飛躍的に増大することから、スキルミオンの効率的な電場制御の実現に寄与する可能性が期待される。[原著論文 1, 2, 4, 5, 6]

#### (c) スピン流に対する応答の解明

スピン角運動量の流れであるスピン流は、電荷の流れである電流と異なりジュール発熱を伴わないため、エネルギー効率の高い新しい情報伝送媒体として注目されている。絶縁体中のスピン流は、局在スピンの振動波であるスピン波によって担われる事が知られており、こうしたスピン波スピン流とスキルミオンがどのように相互作用するか、というのは非常に興味深い問題である。

スピン波スピン流は温度勾配や磁気共鳴によって生成出来ることが知られており、特にローレンツ電子顕微鏡による実空間観察時に自然に生じる同心円状の温度勾配の下で、スキルミオンの格子が自発的な回転運動を生じることを発見した。理論的には、スピン流の下ではスキルミオンはマグナス力(変化球と同じ原理)を通じてホール効果を示すことが予測されており、この力が同心円状に分布した結果、スキルミオン格子全体が回転しているのだと考えられる。[原著論文 3]

また、磁気共鳴を介したスピン波分光と呼ばれる手法を用いることで、スキルミオンを伴う物質中ではスピン波スピン流のダイオード効果が生じることを発見した。キラルな強磁性体中では、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の影響のためにマグノン分散が波数に対して非対称になると考えられ、これがスピン流に対するダイオード効果の起源であると考えられる。[学会発表(一般講演)1,2, 投稿中]

上記の研究に付随して、反強磁性体やより複雑なスピン構造を持つ磁性体中においても、スピン波がスピン流の担い手となることの実証にも成功した。[原著論文 7]

絶縁体中の電場やスピン波スピン流は、金属中の電流(及びそれに付随して生じる磁場)とは異なり、ジュール発熱に伴う損失を伴わないため、上述の一連の発見は、スキルミオンを制御するためのよりエネルギー効率の高い手法を提案していると考えられる。

### 3. 今後の展開

①の物質開拓については、極性を持った一軸強磁性体でもスキルミオンが生成されるという新たな物質設計指針を得ることができたため、今後はより小さなスキルミオン直径・室温以上の高い磁気秩序温度を伴い、かつ広い温度磁場領域でスキルミオンを安定に生成する物質を開拓することが課題となる。従来の「キラル立方晶」という制約に比べて、今回発見されたような極性を持った構造の強磁性体は比較的豊富に知られており、スキルミオンを伴う新物質の開拓が更に加速することが期待される。なお、極性強磁性体におけるスキルミオンは、従来の渦巻



き型ではなく放射型のスピン構造を持つことが理論的に予測されており、この特徴のためにローレンツ電子顕微鏡による実空間観測は原理的に困難であるという課題がある。この問題を回避するため、現在、別の実空間観察手法である位相差電子顕微鏡を用いて、放射型スキルミオンの観測を試みている段階である。

②の外場制御については、電場やスピン流といったエネルギー非散逸な外場によって絶縁体中のスキルミオンの安定性・ダイナミクスを制御できることが明らかになったことから、今後は、実用化を見据えたデバイスの作成を行っていくことも重要となる。実際に上記の物質を加工して一次元的な細線構造(スキルミオンのレーストラック)を作った上で、書き込み・読み出し用の素子(MRAMで使用されるようなMTJ素子など)とスキルミオンの整列パターンをシーケンシャル転送するため電極・アンテナを作り付けて、情報記憶素子としての原理実証を行っていくことを計画中である。一方で、理論的に予測されているながら実験的に確認できていない外場応答も存在し、たとえば静電場の空間勾配によるスキルミオンの並進運動の駆動には未だに成功できていない。これは駆動力の起源となるスキルミオン由来の電気分極の絶対値が小さく、結晶欠陥によるピニングに負けてしまっていることが一つの原因であるとも考えられ、 $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  よりも大きな電気分極を伴った新物質の開拓も課題となる。理論的には、磁気モーメントが大きくなるほど、またスピン軌道相互作用が強くなるほど電気分極は大きくなると考えられるため、こうした指針に基づく物質探索を進めていくことが一つのアプローチとして考えられる。

#### 4. 評価

##### (1) 自己評価

(研究者)

当初掲げた2つの研究課題である

①スキルミオンを伴う新物質の開拓と、その形成条件・物質設計指針の確立

②電場、光、スピン流といった外場による、スキルミオンのダイナミクスの制御

については、それぞれ極性強磁性体によるスキルミオン形成という新しい物質設計指針の発見、電場・光・スピン流の全ての外場によるスキルミオン制御に実際に成功したという点で、概ね期待通りの進展があった。いずれも、今後スキルミオンを磁気メモリへ応用していくために必要な基本的な原理を実証するものであり、少なくとも要素技術と基礎学理の確立という観点からは、将来的なスキルミオンメモリの実現に大きく資する成果が得られたと考えている。

上記の研究の遂行にあたっては、特に物質開拓のための迅速な単結晶育成環境の整備、振動磁場・振動電場やスピン流にまつわる GHz 帯の分光測定系の整備、という2点において、さがけ予算による支援が非常に効果的だった。また、領域会議の度に領域総括・アドバイザー・他のさがけ研究者の諸先生方に多くの議論・激励をしていただいたことも、大変支えになりました。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

本研究は、スキルミオンが存在する新物質の探査とその形成条件の確立、および外場によるスキルミオンの運動の制御を目的としたものである。前者の目的については、反転対称性の破れた一軸性の強磁性体を探索し、Y-Co-Sn 系合金でスキルミオンと思われるデータを得ている。位相差 TEM などの直接観察の結果が揃えば、これまでキラルな立方晶の磁性体での存在が報告されていた物質系が、一挙に拡大する可能性がでてくることを示唆しており、これからの展開が楽しみである。

後者の外場制御については本研究によってスキルミオンも存在が分かった Cu<sub>2</sub>OSeO<sub>3</sub> を対象に、静電場の符号のよるスキルミオン相の安定性の制御できることや、マイクロ波によってその共鳴振動の励起が可能で、これによってマイクロ波のダイオード効果を生じることを見出している。また、スピン波スピン流に対してスキルミオンがホール効果を示すこと、またスキルミオンがスピン波スピン流のダイオードとして機能することをそれぞれ発見している。

スキルミオンは、将来的にバブルメモリーを凌ぐ省電力な高密度記憶素子としての展開が期待されている。本研究成果はその基礎研究の部分に明確な寄与を成し、これからのさらなるジャンプが期待できそうな芽を見出したという点で評価できる。これから数年間が極めて重要なフェーズになると思われる。正攻法で確り、かつ大胆に攻めて頂きたい。

## 5. 主な研究成果リスト

### (1) 論文(原著論文)発表

1. “Magnetoelectric resonances and predicted microwave diode effect of the skyrmion crystal in a multiferroic chiral-lattice magnet” ,  
M. Mochizuki and S. Seki  
Phys. Rev. B **87**, 134403 (2013 年4月).
2. “Microwave magnetoelectric effect via skyrmion resonant modes in a helimagnetic multiferroics”  
Y. Okamura, F. Kagawa, M. Mochizuki, M. Kubota, S. Seki, S. Ishiwata, M. Kawasaki, Y. Onose, and Y. Tokura  
Nature Communications **4**, 2391 (2013 年8月).
3. “Thermally driven ratchet motion of a skyrmion microcrystal and topological magnon Hall effect”  
M. Mochizuki, X. Z. Yu, S. Seki, N. Kanazawa, W. Koshibae, J. Zang, M. Mostovoy, Y. Tokura, and N. Nagaosa  
Nature Materials **13**, 241 (2014 年1月).
4. “Magnetochiral dichroism resonant with electromagnons in a helimagnet”  
S. Kibayashi, Y. Takahashi, S. Seki, and Y. Tokura  
Nature Communications **5**, 4583 (2014 年8月).
5. “Ultrafast optical excitation of magnetic skyrmions”  
N. Ogawa, S. Seki and Y. Tokura

Scientific Reports **5**, 9552 (2015 年4月).

6. “Microwave Magnetochiral Dichroism in the Chiral-Lattice Magnet Cu<sub>2</sub>OSeO<sub>3</sub>”

Y. Okamura, F. Kagawa, S. Seki, M. Kubota, M. Kawasaki, and Y. Tokura

Phys. Rev. Lett. **114**, 197202 (2015 年5月).

7. “Thermal generation of spin current in an antiferromagnet”

S. Seki, T. Ideue, M. Kubota, Y. Kozuka, R. Takagi, M. Nakamura, Y. Kaneko, M. Kawasaki, and Y. Tokura

Phys. Rev. Lett. (in press).

他一件

## (2)特許出願

研究期間累積件数:2件

1.

発 明 者: 関真一郎, 岡村嘉大, 賀川史敬, 久保田将司, 石渡晋太郎, 小野瀬佳文, 望月維人, 十倉好紀, 川崎雅司

発明の名称: スキルミオンを利用したマイクロ波整流デバイス

出 願 人: 理化学研究所

出 願 日: 2013/11/20

出 願 番 号: 2013-240064

2.

発 明 者: 高橋陽太郎, 木林駿介, 関真一郎, 十倉好紀

発明の名称: 電磁波透過率制御素子

出 願 人: 理化学研究所

出 願 日: 2013/12/12

出 願 番 号: 2013-257354

## (3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

### ■学会発表(招待講演):

1. “Magnetoelectric Skyrmions in Multiferroics”

(2015 年5月 INTERMAG, Beijing)

S. Seki

2. “Observation and Manipulation of Magnetic Skyrmions”

(2015 年3月 Annual Meeting of German Physical Society (DPG), Berlin)

S. Seki

3. “Skyrmions in Multiferroic Insulator”

(2014 年8月 Congress and general assembly of International Union of Crystallography)

(IUCr), Montreal)

S. Seki

4. “Observation and manipulation of skyrmions in multiferroics”

(2013 年11月 Annual Magnetism and Magnetic Materials (MMM) Conference, Denver)

S. Seki

5. “Observation of Skyrmions in a Multiferroic Material”

(2013 年3月 American Physical Society (APS) March Meeting, Baltimore)

S. Seki

他に海外招待講演4件、国内招待講演5件

■学会発表(一般講演)[原著論文として未出版のもの]:

1. 「キラルな強磁性絶縁体  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  におけるスピン波スピン流の非相反伝播特性」

関真一郎, 岡村嘉大, 近藤浩太, 柴田基洋, 久保田将司, 高木里奈, 賀川史敬, 川崎雅司, 多々良源, 大谷義近, 十倉好紀

日本物理学会 2015 年秋季大会(9月)

2. 「キラルな強磁性金属 B20 合金におけるスピン波スピン流の非相反伝搬特性」

高木里奈, 関真一郎, 岡村嘉大, 近藤浩太, 金澤直也, 森川大輔, 柴田基洋, 吉川明子, 多々良源, 大谷義近, 十倉好紀

日本物理学会 2015 年秋季大会(9月)

3. 「マルチフェロイクス  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  におけるスキルミオン相の電場制御」

岡村嘉大, 賀川史敬, 関真一郎, 十倉好紀

日本物理学会 2015 年秋季大会(9月)

■著作物:

1. “Skyrmions in Magnetic Materials” (書籍)

S. Seki, M. Mochizuki

Springer, ISBN 978-3-319-24649-9 (2015 年 12 月)

2. “Dynamical magnetoelectric phenomena of multiferroic skyrmions” (レビュー論文)

M. Mochizuki, S. Seki

J. Phys.: Condens. Matter 27, 503001 (2015 年 12 月).



3. “Multiferroics of spin origin” (レビュー論文)

Y. Tokura, S. Seki, N. Nagaosa

Rep. Prog. Phys. 77, 076501 (2014 年 7 月).

4. 「絶縁体中の磁気スキルミオン相が示す電気磁気ダイナミクス」(解説記事)

望月維人、関真一郎

日本物理学会誌 69, 132 (2014 年 3 月)

5. 「マルチフェロイックス物質中の磁気スキルミオン」(解説記事)

関真一郎、于秀珍、石渡晋太郎、十倉好紀

固体物理 48, 179 (2013 年4月)

■受賞:

1. 科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞 (2014 年 4 月・文部科学省)

「電場による磁性の制御に関する研究」

2. 日本物理学会若手奨励賞 (2014 年 3 月・日本物理学会)

「マルチフェロイックス物質中における磁気スキルミオンの発見」