

研究終了報告書

「磁気構造と電子構造のトポロジーを利用した巨大創発電磁場の生成と制御」

研究期間：2018年10月～2022年3月

研究者：関 真一郎

1. 研究のねらい

物質中の電子は、現代社会における情報・エネルギーの処理・伝達に欠かせない存在となっており、その振る舞いを自在に制御することは、エレクトロニクスにおける最も基本的な課題である。通常、電子の運動は、外部から与えられた電場や磁場によって制御される。一方で最近、物質中の磁気構造や電子構造が特殊なトポロジーを伴う場合、伝導電子がベリー位相を介して「曲がった空間」を感じることによって、しばしば巨大な仮想電磁場(創発電磁場)が生じることが明らかにされつつある。具体的には、「スキルミオン」と呼ばれる実空間のスピンの渦構造や、「ワイル点」と呼ばれる波数空間における電子構造のバンド交差点が、創発電磁場の発現の鍵を握っているとされ、その積極的な活用は、物質中の電子の制御手法を根底から変える可能性を秘めている。

本研究では、こうしたトポロジカルな秩序構造に起因した巨大な創発電磁場の生成が期待できる物質系として、特に

- ①磁気スキルミオン物質
- ②時間反転対称性の破れた反強磁性体

の2つに着目して研究を行った。

①の磁気スキルミオンは、トポロジーによって保護された安定なオブジェクトとしての性質をもつ渦巻き状のスピン構造のことを指しており、2次元系では粒子として、3次元系では紐としての性質を持つことが知られている。スキルミオンは、数～数百ナノメートルの小さな直径を持ち、かつ磁壁に比べて数桁小さな電流で駆動できることから、次世代の超高密度・超低消費電力な磁気記憶素子のための新しい情報担体の候補としても注目されている。本研究では、特に

(1-1) 遍歴電子を利用した新機構に基づく、極小サイズのスキルミオンを生じる新物質の開拓と巨大創発電磁場の観測

(1-2) スキルミオンの3次元構造の直接観測と、そのダイナミクスの解明

の2つを目的に研究を行った。

また、②の時間反転対称性の破れた反強磁性体は、磁化がゼロであるにも関わらず物質内部に巨大な創発電磁場の発現が許されることが期待され、強磁性体に代わる新たな磁気情報材料としての活用が期待される。本研究では、特に

(2-1) 時間反転対称性の破れた反強磁性体の新物質開拓と巨大創発電磁場の観測

(2-2) 反強磁性体における時間反転ドメインの新しい電氣的制御手法の開拓

を目的として研究を行った。

2. 研究成果

(1) 概要

「研究のねらい」でも述べたとおり、本研究では、トポロジカルな秩序構造に伴う巨大な創発電磁場の発現が期待できる、①磁気スキルミオン物質と②時間反転対称性の破れた反強磁性体の2つの物質系に着目して研究を行った。

①の磁気スキルミオンについては、遍歴電子が媒介する新しいスキルミオン形成機構を活用することにより、既知の化合物としては世界最小サイズ(直径 1.9nm)のスキルミオンを生じる新物質 GdRu_2Si_2 を発見することに成功した。さらに、この物質の Si を Ge に置換していくことにより、巨大な創発磁場を伴う合計3種類のスキルミオン結晶相(円形スキルミオンの2種類の正方格子秩序相・楕円側スキルミオンの斜方格子秩序相)が生じること、この過程でメロン・アンチメロンの様々な秩序構造が現れること、さらにこうした多彩なトポロジカル相の発現が、複数の磁気感受率ピークのフラストレーションを考慮することで理論的によく再現できることを明らかにした。また、X線トモグラフィと呼ばれる実験手法を用いて世界で初めてスキルミオンひもの3次元構造を直接観測することに成功したほか、伝搬スピン波分光法と呼ばれる手法を使ってそのダイナミクスを調べることで、スキルミオンひものが3つの固有振動モードを介してひもの直径の1000倍以上の距離にわたって情報伝送を行えることも明らかにした。

また、②の時間反転対称性の破れた反強磁性体については、時間・空間反転対称性が破れた新しい反強磁性体 CoTa_3S_6 を発見することに成功した。この物質は、磁化あたりの異常ホール伝導度が史上最大の値を示すことがわかっており、偏極中性子散乱実験による詳細な磁気構造解析を通じて、all-in all-out 型の non-coplanar な磁気構造が実現しており、これが時間反転対称性を破ることで巨大な創発磁場が生じていることを突き止めた。また、時間・空間反転対称性が同時に破れているという性質を利用することで、2つの時間反転ドメインがゼロ磁場で逆符号の非相反電気伝導を示すことを発見し、この現象を反強磁性ドメインの新しい電氣的読み出し手法として利用できることを明らかにした。

(2) 詳細

研究テーマ(1-1)「遍歴電子を利用した新機構に基づく、極小サイズのスキルミオンを生じる新物質の開拓と巨大創発電磁場の観測」

従来、スキルミオンの安定化には、空間反転対称性の破れた特殊な結晶構造の下で生じる DM 相互作用が必須であるとされ、この場合には数十～数百 nm 程度の直径のスキルミオンが実現することが知られていた。しかし、巨大な創発磁場(∞ スキルミオン密度)を実現し、超高密度な情報担体としてスキルミオンを活用するためには、ありふれた結晶構造の物質で、より小さな直径のスキルミオンを実現することが重要である。本研究では、遍歴電子を利用した全く新しいスキルミオン生成機構に着目することで、空間反転対称性の保たれた単純な結晶構造を持つ新物質 GdRu_2Si_2 において、既知の物質としては世界最小となる直径 1.9 nm のスキルミオンを発見することに成功した。上記の結果は、従来のように空間反転対称性の破れた特殊な結晶構造を利用しなくても、遍歴電子の媒介する相互作用を利用すれば、ありふれた構造の物質で普遍的に極小サイズのスキルミオンを安定化できることを示しており、

全く新しいスキルミオン物質の設計指針を与えていると考えられる。スキルミオンを情報担体として捉えたとき、その直径を小さくすることはそのまま情報の高密度化に直結するため、上記の世界最小サイズのスキルミオンの発見は、応用上も極めて大きなインパクトがあると言える。

さらに、この物質の Si を Ge に置換していくことにより、創発磁場に由来したトポロジカルホール効果で特徴付けられる、合計3種類のスキルミオン結晶相(円形スキルミオンの2種類の正方格子秩序相・楕円側スキルミオンの斜方格子秩序相)が生じること、この過程でメロン(ハーフスキルミオン)・アンチメロンの様々な秩序構造が現れること、さらにこうした多彩なトポロジカル相の発現が、複数の磁気感受率ピークのフラストレーションを考慮することで理論的によく再現できることを明らかにした。また、同様の機構によって、類似の正方晶構造を持つ EuAl_4 においても、2種類のスキルミオン結晶相が発現することを発見し、新機構による極小サイズのスキルミオンの一般的な物質設計指針を確立することに成功した。

研究テーマ(1-2)「スキルミオンの3次元構造の直接観測と、そのダイナミクスの解明」

渦巻き状のスピン構造であるスキルミオンは、理想的な2次元系では粒子として振舞うのに対し、現実の3次元系では竜巻のような「ひも」としての性質を持つことが理論的に予測されている。本研究では、CT スキャンで利用される X 線トモグラフィー(試料を回転させながら様々な方向から2次元透過像を撮影することで3次元構造を再構築する)の手法を応用することで、スキルミオンひもの3次元形状を直接観測することに、世界で初めて成功した。電流や電場によって効率的にスキルミオンを制御するためには、物質中の不純物・欠陥によってスキルミオンひもがどのようにピン止め・変形を受けるかを理解することが極めて重要である。今回開発された新しい3次元観察手法を利用することで、これまで未解明だったスキルミオンの生成・消滅・駆動プロセスの詳細に迫ることが可能となり、さらに高効率な制御手法の開拓につながることを期待される。

さらに本研究では、このスキルミオンひもの振動を利用した情報伝送の可能性に着目し、伝搬スピン波分光法と呼ばれる測定手法を用いて、「ひも」の中を振動が伝わる様子を詳細に調べた。その結果、スキルミオンひもが GHz 周波数帯域に3つの固有振動モードを持つこと、またこの励起モードが「ひも」の直径の 1000 倍以上の非常に長い距離にわたって信号を伝達できることを発見した。スキルミオンひもは、超伝導体・超流動体における渦糸や、宇宙論の分野で議論されている宇宙紐と類似した性質を持ち、トポロジーによる保護に由来して自由に曲げることができるほか、その励起モードは曲がった「ひも」に沿って伝搬することが理論的に予測されている。スキルミオンひもの振動は、電線上の電気信号と異なりジュール損失を生じないことから、上記の結果は、スキルミオンひもをフレキシブルで超低消費電力な新しい情報伝送路として活用できる可能性を示していると考えられる。

研究テーマ(2-1)「時間反転対称性の破れた反強磁性体の新物質開拓と巨大創発磁場の観測」

現在の磁気記憶素子で用いられている強磁性体では、自発磁化による時間反転対称性の破れに起因して、磁気情報の保持・読み出し・書き込みが可能となっている。一方、磁化がゼロの反強磁性体の場合、通常は時間反転対称性が保たれており、強磁性体と同様のアプローチによる情報処理は不可能である。しかし最近の理論研究によると、特殊な non-collinear/non-coplanar 磁気構造を利用すれば、反強磁性体においても時間反転対称性を破ることが可能であり、この場合は磁化がゼロであるにも関わらず、物質内部にバンド構造の Berry 曲率に由来した巨大な仮想磁場が生じることがわかっている。この仮想磁場は、物質内部では磁化と同等の役割を果たすため、強磁性体が従来担ってきた様々な物質機能を、時間反転対称性の破れた反強磁性体で代替できることが強く期待される。

従来、このような物質例としては Mn_3Sn とその類縁物質しか知られていなかったが [Nakatsuji *et al.*, Nature **527**, 212 (2015)], 本研究では新たに、時間空間反転対称性に加えて空間反転対称性も同時に破れた新しい反強磁性体 CoTa_3S_6 を発見することに成功した。この物質は、磁化あたりの異常ホール伝導度が史上最大の値を示すことがわかっており、偏極中性子散乱実験による詳細な磁気構造解析を通じて、all-in all-out 型の non-coplanar な磁気構造が実現しており、これが時間反転対称性を破ることで巨大な創発磁場が生じていることを突き止めた。

研究テーマ(2-2)「反強磁性体における時間反転ドメインの新しい電氣的制御手法の開拓」

時間反転対称性の破れた反強磁性体においては、これまでに電氣的な手法による時間反転ドメインの読み出し・書き込み手法として、異常ホール効果および多層膜界面を介したスピン軌道トルクがそれぞれ報告されている。一方、時間・空間反転対称性が同時に破れている CoTa_3S_6 においては、その特殊な対称性を利用して異なるアプローチによる時間反転ドメインの電氣的読み出し・書き込みが可能となることが期待される。本研究では、後者の対称性の系で期待される非相反電氣伝導現象(一種のダイオード効果)に着目し、実際に2つの時間反転ドメインがゼロ磁場で逆符号の非相反電氣伝導を示すことを発見した。この現象は、反強磁性ドメインの新しい電氣的読み出し手法として利用でき、さらに逆効果として電流パルスによるドメインの書き込み(電流を流しやすい方のドメインが選択される)が可能であることも期待される。これらの新しいアプローチは、バルク物質に2端子電極をつけるだけで磁気情報の読み書きができることを示唆しており、反強磁性体をベースにしたスピントロニクス素子の構造を大幅に簡素化できる可能性を秘めた画期的な成果であると考えられる。

3. 今後の展開

磁気スキルミオンに関しては、(a)世界最小サイズ(≒世界最高の情報密度)のスキルミオンを実現する新物質の発見、(b)スキルミオンの3次元形状を可視化する新しい観測手法の開拓、(c)スキルミオンひもを介した情報伝送の実証、といった複数の画期的な成果を上げており、これらはスキルミオンの超高密度・超低消費電力な情報担体としての応用展開を目指す上で、極めて重要な成果であると考えられる。今後は、室温動作可能な極小スキルミオン物質の開拓や、スキルミオンひもの生成・消去・駆動過程の3次元観測と行った課題に取り組むことで、応用展開への可能性をさらに追求したい。

また、時間反転対称性の破れた反強磁性体についても、(a)時間・空間反転対称性が破れた新しいタイプの反強磁性体の発見と巨大創発磁場の観測、(b)反強磁性ドメインの新しい電氣的読み出し・書き込み手法の開拓といった複数の成果を上げており、これらは強磁性体が従来担ってきた物質機能を磁化ゼロの反強磁性体で置き換えられる可能性を強く示唆していることから、やはり応用上重要な成果であると考えられる。最近では、未発表ながら室温動作可能な新物質を発見することにも成功しており、薄膜化・デバイス化のために必要な設備・財源を今後確保することで、時間反転対称性の破れた反強磁性体をベースにした全く新しいスピントロニクス素子の構築に向けて、さらに研究を発展させたい。

4. 自己評価

当初計画には主に(1-1)のトピックのみを記載していたが、さらに(1-2), (2-1), (2-2)の新しい研究テーマにも展開してそれぞれ大きな成果を挙げることができ、当初の予想以上に研究を発展させることができた。いずれも、新しいスピントロニクス応用につながることを期待され、研究期間内に筆頭著者ないし最終著者として Nature/Science 姉妹紙に6報の原著論文を発表したほか、それぞれ関連するプレスリリースも発表しており、社会的にも大きな波及効果が期待される。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 23件

<p>“Direct visualization of the three-dimensional shape of skyrmion strings in a noncentrosymmetric magnet” <u>S. Seki</u>, M. Suzuki, M. Ishibashi, R. Takagi, N. D. Khanh, Y. Shiota, K. Shibata, W. Koshibae, Y. Tokura, T. Ono Nature Materials 21, 181 (2022).</p>
<p>CT スキャンで利用される X 線トモグラフィーの手法を応用することで、スキルミオンひもの 3 次元形状を直接観測することに、世界で初めて成功した。電流や電場によって効率的にスキルミオンを制御するためには、物質中の不純物・欠陥によってスキルミオンひもがどのようにピン止め・変形を受けるかを理解することが極めて重要である。今回開発された新しい 3 次元観察手法を利用することで、これまで未解明だったスキルミオンの生成・消滅・駆動プロセスの詳細に迫ることが可能となり、さらに高効率な制御手法の開拓につながることを期待される。</p>
<p>2. “Nanometric square skyrmion lattice in a centrosymmetric tetragonal magnet” N. D. Khanh, T. Nakajima, X. Z. Yu, S. Gao, K. Shibata, M. Hirschberger, Y. Yamasaki, H. Sagayama, H. Nakao, L. C. Peng, K. Nakajima, R. Takagi, T. Arima, Y. Tokura, <u>S. Seki</u> Nature Nanotechnology 15, 444 (2020).</p>
<p>遍歴電子を利用した新しいスキルミオン生成機構の理論に着目することで、世界最小の直径 (~1.9 nm) のスキルミオンを生じる新物質 (GdRu₂Si₂) を発見することに成功した。従来、スキルミオンの典型的な直径は数十~数百ナノメートル程度であり、情報密度の更なる向上のため、より小さな直径のスキルミオンの実現が強く求められていた。上記の成果は、世界最高の情報密度を持つスキルミオンの全く新しい物質設計指針を与えるもので、応用上も極めて大きなインパクトが期待できる。</p>
<p>3. “Propagation dynamics of spin excitations along skyrmion strings” <u>S. Seki</u>, M. Garst, J. Waizner, R. Takagi, N. D. Khanh, Y. Okamura, K. Kondou, F. Kagawa, Y. Otani, Y. Tokura Nature Communications 11, 256 (2020).</p>
<p>伝搬スピン波分光法とよばれる測定手法を用いて、スキルミオンひもの中を振動が伝わる様子を詳細に調べることで、GHz 周波数帯域に 3 つの固有振動モードが存在すること、またこの振動モードが「ひも」の直径の 1000 倍以上の長距離にわたって信号を伝達できることを発見した。スキルミオンひもの振動は、電線上の電気信号と異なりジュール損失を生じないため、上記の結果は、スキルミオンひもをフレキシブルで超低消費電力な新しい情報伝送路として活用できる可能性を示していると考えられる。</p>

(2)特許出願

なし。

(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)

◇プレスリリース

1. 磁石の中の竜巻(スキルミオンひも)の三次元形状の可視化に成功 ～新しい磁気情報処理手法の開拓に期待～(2021年11月12日)
https://www.t.u-tokyo.ac.jp/soe/press/setnws_202111111846383011574983.html
2. 伝導電子に浮かび上がる磁気構造～ナノスケールの磁気渦構造をなす新機構への手がかり～(2020年11月24日)
https://www.t.u-tokyo.ac.jp/foe/press/setnws_202011241121263381510926.html
3. 微小な磁気渦の内部変形が引き起こす渦の配列変化(2020年11月11日)
https://www.t.u-tokyo.ac.jp/soe/press/setnws_202011111556129198531571.html
4. 新機構が生み出す過去最小の磁気渦粒子を発見 ～超高密度な次世代情報担体としての活用に期待～(2020年05月19日)
https://www.t.u-tokyo.ac.jp/soe/press/setnws_202005190901563548026362.html
5. 「スキルミオンひも」を用いた信号伝達に成功 -フレキシブルで超低消費電力な新しい情報伝送路の実現に期待-(2020年01月15日)
https://www.t.u-tokyo.ac.jp/soe/press/setnws_202001151043359119734981.html