

令和元年6月12日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H05990

研究課題名(和文)共鳴軟X線小角散乱による磁気テクスチャの観測

研究課題名(英文)Development of resonant soft x-ray small-angle scattering method for observing magnetic texture

研究代表者

山崎 裕一 (Yamasaki, Yuichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・統合型材料開発・情報基盤部門・主任研究員

研究者番号：70571610

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：磁気スキルミオンと呼ばれるナノメートルスケールの渦状磁気構造体を共鳴軟X線小角散乱手法によって観測することを目的に研究を行った。共鳴軟X線散乱は対象とする元素の吸収端に対応したエネルギーの軟X線をつかうことで元素選択的に磁気状態を観測できる手法である。本手法を使い、電場によって磁気スキルミオンを生成・消滅する様子や、引っ張り応力によって磁気スキルミオンから磁気カイラルソリトン格子へと磁気構造が変化する様子を観測した。また、コヒーレントな軟X線を使って得られる回折図形から位相回復アルゴリズムによって数十ナノメートルの空間分解能で元素選択的に実空間像を再構成することにも成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁気スキルミオンはトポロジカルに安定な構造であるためスピントロニクスデバイスなどへの応用が期待されている。その特性を理解し性能を向上させるためには、デバイスが駆動している状態で磁気スキルミオンの挙動を観測し解明することが求められる。本研究で確立した共鳴軟X線小角散乱法は、動作状態での磁気スキルミオンを観測するのに適した手法であり、スピントロニクス材料の開発やデバイスのオペランド計測において強力な先端計測手法になり得ることを示せた。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study was to observe nanometer-scale vortex-like magnetic structures called magnetic skyrmions by means of resonant soft x-ray small-angle scattering. Resonant soft x-ray scattering is an element-selective method that can observe the magnetic state by using soft x-rays of energy corresponding to the absorption edge of the target element. Using this method, we observed how magnetic skyrmions are generated and annihilated by an application of external electric field, and how magnetic structures change from magnetic skyrmions to magnetic chiral soliton lattices by tensile strain from the substrate. We also succeeded in reconstructing a real space image element-selectively with a spatial resolution of several tens of nanometers by a phase retrieval algorithm from a diffraction pattern obtained using coherent soft x-rays.

研究分野：物性物理

キーワード：共鳴X線散乱

1. 研究開始当初の背景

電荷・スピン・軌道状態といった電子がもつ自由度のうち、電荷を使った従来の半導体エレクトロニクスに対して、スピンの自由度も積極的に活用したデバイス技術であるスピントロニクスが近年盛んに研究されている。電子のスピン角運動量の流れであるスピンドラフトを使うことで、磁場を介さない磁化の制御（電気信号による直接的な磁気モーメントの制御）や、これに基づく情報の制御、熱勾配によって起電力が発現する熱電効果など、次世代デバイスへの応用が期待される特性が多く観測されている。近年、スピントロニクスデバイスへの応用が期待される新たな基本原理として、空間反転対称性が破れたカイラルな格子をもつ磁性体において、磁気スキルミオン(skyrmion)と呼ばれるトポロジカルなナノメートルスケールのスピン渦構造が発見された[S. Mühlbauer, et al., *Science* 323, 915 (2009); X. Z. Yu et al., *Nature* 465, 901 (2010)]。磁気スキルミオンは外的要因に対して安定なトポロジカル磁気構造を形成しているため、電流や電場、熱流、光による制御が可能となり、より高密度・低消費電力・高速で駆動するスピントロニクスデバイスへの応用が期待される。今後、磁気スキルミオンのような長周期秩序構造（磁気テクスチャ）が中心的な舞台となり、スピントロニクスデバイスの応用研究が飛躍的に発展すると期待されている。また、スピンの長周期秩序構造はスピン以外の電子状態とも強く関連しており、磁気抵抗効果やマルチフェロイクス物質における電気磁気効果の発現とも強い関連が示唆されている。実際に、電流や電場、応力、光照射といったさまざまな外場に対して巨大な応答を示すことも見出され始めている。スピントロニクスデバイスへの応用に向けては、磁気秩序構造と関連した電子状態の基礎物性観測、実空間像のイメージング計測、高速スピンドナミクス、外場応答を解明して行くことが非常に重要となる。このような観点からも、長周期の磁気テクスチャ、及びそれと関連を持つ電子状態に関して、高感度・高速・高分解能・In-situでの観測が可能な実験手法の需要が今後ますます高まっている。

2. 研究の目的

本研究では、放射光を用いた共鳴軟 X 線小角散乱法により、ナノメートルスケールの長周期磁気構造(磁気テクスチャ)の秩序構造やダイナミクスの観測を行った。共鳴 X 線小角散乱は、放射光の特性を活用することで、高波数分解能(高エネルギー分解能)、スペクトル測定による電子状態の高感度測定、微小結晶での測定などが可能となる長所が挙げられる。これらの利点を最大限に活かし、軟 X 線のコヒーレンス特性を用いた磁気散乱測定から位相回復アルゴリズムにより数十 nm の空間分解能を持つ磁気テクスチャの実空間イメージング測定や、共鳴 X 線散乱のスペクトル測定による磁気秩序と関連を持つ軌道や電荷といった電子状態秩序の観測、外場下での磁気散乱測定から磁気テクスチャの外場応答、パルス軟 X 線を用いることによるスピンドナミクス観測を目指した。

3. 研究の方法

コヒーレント軟 X 線を用いた共鳴 X 線散乱は、研究代表者らが開発した軟 X 線小角散乱装置(右図)で行った。軟 X 線は高真空中を通す必要があるため、真空チャンバー内に測定システムを設置する必要がある。測定装置は、試料を回転する軸や XYZ ステージ、ダイレクトビームキャッチャ、フォトダイオードなどで構成され、入射 X 線と平行方向に磁場を印可するためのヘルムホルツコイル(最大磁場は 0.5 T)を真空チャンバーの外側に設置している。小角領域(通常、5 度以下)の軟 X 線小角散乱を試料後方に設置された CCD カメラで検出する。

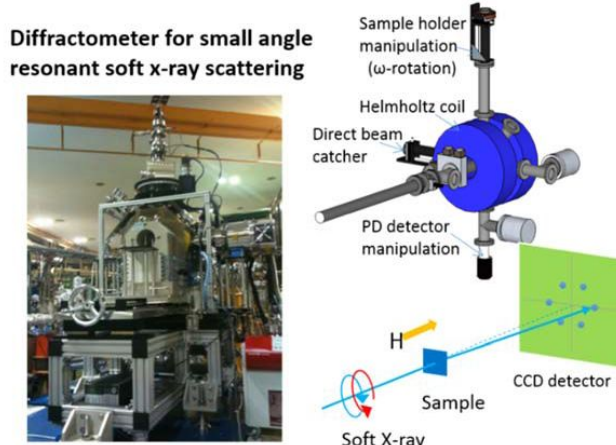


図 1: 軟 X 線小角散乱装置

測定試料は、FIB 装置によって軟 X 線が透過する程度に薄い薄片に加工し、数 μm の穴が開いたシリコン基板上に設置する。典型的な試料サイズとしては、面積が $5\mu\text{m}^2$ 角で、厚さが数百 nm 程度のものを用いる。コヒーレント軟 X 線ホログラフィーを行う時には、参照波用の穴 ($0.5\mu\text{m}$ 程度の穴) が開いた金の板を試料に隣接するように設置して行う。本研究では、今後、さまざまな試料に対応できるようにサンプルホルダの改良やダイレクトビーム、サンプル位置制御の高度化を進めた。

コヒーレント(可干渉性)な X 線を用いてナノスケールの磁気テクスチャの実空間イメージングを行った。この手法は、結像型の顕微鏡とは異なりレンズレスのため振動に強く、

高い空間分解能、元素選択性、電子状態の観測などの利点がある。一般的に、X線の散乱強度の観測によって得られる情報は構造因子の絶対値のみであり、散乱強度から逆フーリエ変換で実像に戻すためには構造因子の位相を明らかにする必要がある(位相回復問題)。位相の情報を得るために、散乱光と参照光を干渉させたホログラフィー像の観測やオーバーサンプリングされた試料の回折像から位相回復アルゴリズムによって実像を求める解析手法を試みた。

4. 研究成果

電場による磁気スキルミオンの制御観測

絶縁体で磁気スキルミオンが発現するマルチフェロイクス物質 Cu_2OSeO_3 は、強電場を印加すると磁化率が変化することが観測されており、電場によって磁気構造が変化する可能性が報告されていた。本研究では、強電場を印加しながら共鳴軟X線回折を行えるような装置を開発し、電場印可に伴う磁気構造の変化を測定した。その結果、ある方向に電場を印加するとスキルミオン格子に対応する6個の磁気散乱からヘリカル磁性体に対応する2個の磁気散乱へと変化する様子が観測された(図2)。これは、磁気スキルミオン構造とヘリカル磁気構造の間で電場誘起相転移が起きたことを示唆している。

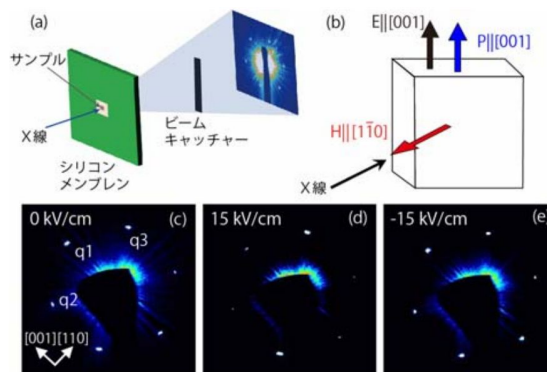


図2: (a) 軟X線小角散乱の概念図、(b) 実験のセットアップ、(c)-(e) 電場印加下での回折図形(0, +15, -15 kV/cm)

一軸応力によるカイラルソリトン格子の観測

電場を印加するために取り付けられた電極の影響によって新たな磁気構造が発現することを発見した。試料を冷却すると試料と基板の間で熱収縮率が異なるため、試料を固定した電極間で試料に引っ張りの応力が印加されることになる。 Cu_2OSeO_3 では一軸の加圧によって磁気相転移が起きることが観測されているが、引っ張り応力によってらせん磁気構造の変調ベクトルが電極間方向に向いて安定化することが見られた。この状況で磁場を印加すると、通常は磁気スキルミオンが発現するのに対して、本実験では磁気カイラルソリトン格子が発現することを見出した。磁気カイラルソリトン格子は、磁場を印加するのに伴って磁気変調ベクトルが減少し、磁気モーメントの回転が孤立波となって等間隔に並んだ状態となる。そのような磁気構造が実現すると磁気散乱では高次反射が観測されるが、その理論計算値が実験で得られた値と一致したことから磁気カイラルソリトン格子の発現を実証することができた。

コヒーレント軟X線回折による磁気スキルミオンの実空間観測

コヒーレントな軟X線を用いた共鳴軟X線回折では、磁気モーメントの実空間イメージング像を得ることが可能となる。実空間像観測には、磁気構造因子の位相情報を得る必要があるが、本研究では低対称なマスクを用いたオーバーサンプリング条件を課した位相回復アルゴリズムによって、高効率・高精度に実空間像を得ることに成功している。この手法によって磁気スキルミオン格子の実空間像を数十nm程度の空間分解能で観測することに成功した。また、コヒーレントな軟X線を用いて計測された回折から位相回復アルゴリズムによって磁気スキルミオンの実空間像を観測することにも成功した。磁気スキルミオンが室温に近い温度から発現するFeGeを薄片に加工し、低対称なアパーチャー上に固定した試料を準備し共鳴軟X線散乱を測定した。得られた回折図形を反復的フーリエ変換による位相回復アルゴリズムで解析し、20nm程度の空間分解能で実空間像を観測した(図3)。

また、室温において磁気スキルミオンが発現する

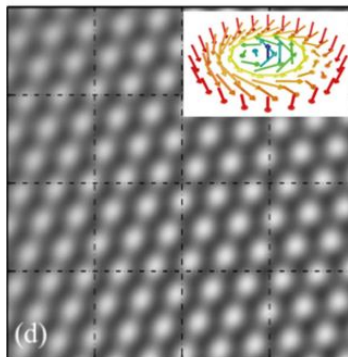
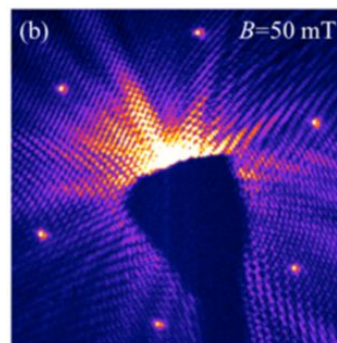


図3: 磁気スキルミオン格子からの回折図形と位相回復アルゴリズムによって得られた実空間像。

CoZnMn においては、Co と Mn のそれぞれの吸収端において磁気回折図形を観測し、同様に位相回復アルゴリズムによって実空間像を得た。これによって元素選択的に磁気構造を観測することができた。

5. 主な発表論文等

(雑誌論文)(計 11 件)

1. Yuichi Yokoyama, Taka-hisa Arima, Masato Okada, Yuichi Yamasaki, Sparse Phase Retrieval Algorithm for Observing Isolated Magnetic Skyrmions by Coherent Soft X-ray Diffraction Imaging, Journal of the Physical Society of Japan 88[2] (2019) 024009, 10.7566/jpsj.88.024009, 査読有
2. V. Ukleev, Y. Yamasaki, D. Morikawa, K. Karube, K. Shibata, Y. Tokunaga, Y. Okamura, K. Amemiya, M. Valvidares, H. Nakao, Y. Taguchi, Y. Tokura, T. Arima, Element-specific soft x-ray spectroscopy, scattering, and imaging studies of the skyrmion-hosting compound $\text{Co}_8\text{Zn}_8\text{Mn}_4$, Physical Review B 99 [14] (2019) 144408, 10.1103/physrevb.99.144408, 査読有
3. Y. Yokoyama, Y. Yamasaki, M. Taguchi, Y. Hirata, K. Takubo, J. Miyawaki, Y. Harada, D. Asakura, J. Fujioka, M. Nakamura, H. Daimon, M. Kawasaki, Y. Tokura, H. Wadati, Tensile-Strain-Dependent Spin States in Epitaxial LaCoO_3 Thin Films, Physical Review Letters 120 [20] (2018) 206402, 10.1103/physrevlett.120.206402, 査読有
4. Hironori Nakao, Chihiro Tabata, Youichi Murakami, Yuichi Yamasaki, Hiroyuki Yamada, Sumio Ishihara, Masashi Kawasaki. Charge disproportionation of Mn 3d and O 2p electronic states depending on strength of p-d hybridization in $(\text{LaMnO}_3)_2(\text{SrMnO}_3)_2$ superlattices, Physical Review B 98 [24] (2018) 245146, 10.1103/physrevb.98.245146, 査読有
5. K. Yamamoto, Y. Hirata, M. Horio, Y. Yokoyama, K. Takubo, M. Minohara, H. Kumigashira, Y. Yamasaki, H. Nakao, Y. Murakami, A. Fujimori, H. Wadati, Thickness dependence and dimensionality effects on charge and magnetic orderings in $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ thin films, Physical Review B 97 [7] (2018) 075134, 10.1103/physrevb.97.075134, 査読有
6. Victor Ukleev, Yuichi Yamasaki, Daisuke Morikawa, Naoya Kanazawa, Yoshihiro Okamura, Hironori Nakao, Yoshinori Tokura, Taka-hisa Arima, Coherent Resonant Soft X-ray Scattering Study of Magnetic Textures in FeGe, Quantum Beam Science 2 [1] (2018) 3, 10.3390/qubs2010003, 査読有
7. T. Osaka, H. Takahashi, H. Sagayama, Y. Yamasaki, S. Ishiwata, High-pressure synthesis of an unusual antiferromagnetic metal CaCoO_3 with GdFeO_3 -type perovskite structure. Physical Review B 95 [22] (2017) 224440, 10.1103/physrevb.95.224440, 査読有
8. R. Masuda, Y. Kaneko, Y. Yamasaki, Y. Tokura, Y. Takahashi, Role of commensurability of spin order for optical magnetoelectric effect with electromagnons in multiferroic YMn_2O_5 . Physical Review B 96 [4] (2017) 041117, 10.1103/physrevb.96.041117, 査読有
9. Takaaki Sudayama, Hironori Nakao, Yuichi Yamasaki, Youichi Murakami, Shinichiro Asai, Ryuji Okazaki, Yukio Yasui, Ichiro Terasaki, Spin State of Co^{3+} in $\text{LaCo}_{1-x}\text{Rh}_x\text{O}_3$ Studied Using X-ray Absorption Spectroscopy, Journal of the Physical Society of Japan 86 [9] (2017) 094701, 10.7566/jpsj.86.094701, 査読有
10. Y. Okamura, Y. Yamasaki, D. Morikawa, T. Honda, V. Ukleev, H. Nakao, Y. Murakami, K. Shibata, F. Kagawa, S. Seki, T. Arima, Y. Tokura. Emergence and magnetic-field variation of chiral-soliton lattice and skyrmion lattice in the strained helimagnet Cu_2OSeO_3 . Physical Review B 96 [17] (2017) 174417, 10.1103/physrevb.96.174417, 査読有

11. Y. Okamura, Y. Yamasaki, D. Morikawa, T. Honda, V. Ukleev, H. Nakao, Y. Murakami, K. Shibata, F. Kagawa, S. Seki, T. Arima, Y. Tokura, Directional electric-field induced transformation from skyrmion lattice to distinct helices in multiferroic Cu_2OSeO_3 , Physical Review, 95[18] (2017) 184411, 10.1103/physrevb.95.184411 査読有

(学会発表)(計 22 件)

- [1] 共鳴軟 X 線散乱による LaCoO_3 薄膜の電子状態観測、第二回コバルト研究会 - 強相関材料と新機能 -、山崎裕一、2019 年、招待講演
- [2] コヒーレント軟 X 線回折イメージングデータからの磁気構造の情報抽出、日本分析化学会第 67 年会特別シンポジウム、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [3] コヒーレント軟 X 線回折イメージングとインフォマティクスの融合、PF 研究会「量子ビームと新規合成手法の融合による酸化物の新機能探索」、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [4] スパースモデリングを活用したコヒーレント軟 X 線回折イメージング、東京大学物性研 LASOR セミナー、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [5] スパースモデリングを活用したコヒーレント軟 X 線回折磁気イメージング、放射光学会若手研究会「放射光科学 X インフォマティクス」、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [6] スパースモデリングを用いたコヒーレント回折イメージング、先端ナノデバイス・材料テクノロジー第 151 委員会、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [7] スパース位相回復法によるコヒーレント軟 X 線回折磁気イメージング、MI・計測 合同シンポジウム、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [8] スパース位相回復法によるコヒーレント軟 X 線回折磁気イメージング、顕微鏡学会超高分解能研究会、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [9] スパース位相回復法によるコヒーレント軟 X 線回折磁気イメージング、日本結晶学会年会シンポジウム、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [10] 共鳴軟 X 線散乱による磁気スキルミオンの外場制御と実空間観測 平成 30 年度磁性材料研究会、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [11] 共鳴軟 X 線小角散乱による超伝導磁束格子観測の可能性、つくば-柏-本郷 超伝導かけはしプロジェクト ワークショップ、山崎裕一、2018 年、招待講演
- [12] コヒーレント共鳴軟 X 線散乱による磁気テクスチャの観測、ISSP-Workshop SPring-8 BL07LSU が 照らした物質機能の起源、山崎裕一、2017 年、招待講演
- [13] コヒーレント軟 X 線共鳴回折による磁気イメージング、SLIT-J イメージングエンドステーションに関する ミニワークショップ、山崎裕一、2017 年、招待講演
- [14] スパース位相回復法による磁気イメージング、第 4 回放射光連携研究ワークショップ、山崎裕一、2017 年、招待講演
- [15] スパース位相回復法による磁気イメージング、物質・材料研究機構/九州シンクロトロン光研究センター合同シンポジウム、山崎裕一、2017 年、招待講演
- [16] スパース位相回復法を用いた磁気イメージング、情報理論を用いた原子・電子構造のインタースケールイメージング、山崎裕一、2017 年、招待講演
- [17] スパース位相回復法を用いた磁気イメージング 第 271 回 SPring-8 セミナー、山崎裕一、2017 年、招待講演
- [18] 共鳴軟 X 線回折による薄膜試料の電子状態観測 応用物理学会秋季学術講演会、山崎裕一、2017 年、招待講演

[19] 共鳴軟 X 線回折による表面・界面電子秩序観測の現状と展望、科学研究費基盤 A 研究会「酸化物薄膜界面の異方的磁性とスピン-軌道結合」、山崎裕一、2017 年、招待講演

[20] 共鳴軟 X 線回折による磁気構造の観察、日本物理学会 2017 年秋季大会、山崎裕一、2017 年、招待講演

[21] 共鳴軟 X 線コヒーレント回折イメージングの現状と展開、PF 研究会「PF 挿入光源ビームライン BL-19 の戦略的利用に関する研究会」、山崎裕一、2017 年、招待講演

[22] 共鳴軟 X 線小角散乱による磁気テクスチャの観測、第 30 回日本放射光学会年会 放射光科学合同シンポジウム、山崎裕一、2017 年、招待講演

(図書)(計 3 件)

[1] 山崎裕一，中尾裕則．共鳴軟 X 線小角散乱による磁気スキルミオンの観測．PF NEWS. [1] (2018)

[2] 柴田基洋，中島多朗，山崎裕一，磁気スキルミオンの先端量子ビーム計測，まぐね 13 (6) 316 (2018)

[3] 山崎裕一，中尾裕則．共鳴軟 X 線回折法の新展開．放射光. 30 [1] (2017) 1-10

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。