

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 9 月 26 日現在

機関番号：32508

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25287087

研究課題名(和文)カイラル結晶構造に宿る新磁性機能の探索

研究課題名(英文)Search for magnetic functions in chiral magnets

研究代表者

岸根 順一郎(Kishine, Junichiro)

放送大学・教養学部・教授

研究者番号：80290906

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,200,000円

研究成果の概要(和文)：左右対称性の概念は自然科学のあらゆる分野で重要な役割を果たす。我々は、左右対称性の破れた結晶において実現するカイラルらせん磁性体が、対称性の破れを直接反映する機能性を持つことに着目し、その機構を記述する理論基盤の構築とそれを実験検出に結び付ける指導原理の策定を進めてきた。

本研究の結果、「1軸的らせん磁性体のグローバル相図」、「有限領域に閉じ込めたカイラルソリトン格子の共鳴ダイナミクス」という二つの問題を解明することに成功した。これらの成果は、今後もまだまだ続くと思われるカイラル磁性研究の分野において重要な里程碑となる。

研究成果の概要(英文)：The concept of left and right symmetry plays an important role in all areas of natural science. In this project, we have studied unique class of magnetic crystal where the left-right symmetry is broken. In this class of magnet, called chiral helimagnets, are expected to have inexhaustible functionality that directly reflects the symmetry breaking. During the period of this project, we made out two problems. First, we made clear "global phase diagram of mono-axial chiral helimagnet", and second "resonant dynamics of the chiral soliton lattice confined to a finite region". These achievements is an important milestone in the field of chiral magnetic research that seems to still continue.

研究分野：物性理論

キーワード：対称性の破れ カイラリティ 磁性 スピントロニクス

## 1. 研究開始当初の背景

21世紀に入って以降、磁性体中の電子スピンを操ることで高感度磁気センサーや高速磁気メモリの実現を目指す「スピントロニクス」の分野が大きく進展している。この分野はスピンの量子性をいかに操るかという基礎物理学的な問題に根差しつつも、磁気電子素子の高密度化、低消費電力化、高機能化といった産業応用に直結する分野であり、ハードディスク(HDD)を中心とする情報ストレージ技術の限界を突破する役割が期待されている。しかし、実用化までの道のりにはボトルネックが存在する。まず、(1) 量子スピンの自由度を制御し、メモリ効果、情報転送、電気伝導などマクロな機能に転換する方法の確立が必要である。これは、量子論的世界と古典力学的世界をいかに繋ぐかという問題である。次に、磁性体内部に現れる互いに磁化の向きが異なる小区画から成る内部構造である「磁気ドメイン(空間パターン)」の構造や振舞いを制御する方法が確立できていない現状がある。この問題の解決には(2) 磁気ドメイン構造を巨視的スケールに渡って均等に発現させ、磁気ドメインの振舞いを制御するための設計戦略の確立が必要である。

以上の課題に対して、岸根らは左右対称性つまり**カイラル対称性の破れ**を伴う磁性結晶(**カイラル磁性結晶**)において「スピン軌道相互作用を通して結晶の非対称性をスピン配向の空間パターン形成に反映させ、これを制御して物性機能に繋げる」という視点で研究を重ねてきた。カイラル対称性とその破れは素粒子の世界から銀河の形成まで自然界のあらゆるスケールで重要な役割を果たしている。我々は、カイラル磁性結晶内部では結晶場のらせん分布が**スピン軌道相互作用**を介して**ジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用**としてスピン間に作用する結果、スピン磁気モーメントが左右いずれかの巻き

方(カイラリティ)を保持して配列した**カイラルらせん磁気構造**が安定な秩序構造として現れることに着目し、そこで期待される新奇現象を予測・解明してきた。この高い安定性は結晶の構造カイラリティに保護されたものであり、カイラル磁気構造は電子のスピン磁気モーメントが示す頑丈な**巨視的スピン位相秩序構造**である。

電子スピンの量子力学的位相をマクロに制御することは上記の課題(1)の解決に直結する。さらに上記の課題(2)に関して、0.1テスラ程度という従来の磁気デバイスと比べてはるかに弱い磁場によってカイラル磁気構造の周期をナノスケールから無限大(試料サイズ)まで周期的に変調することができる。これがカイラル磁性体に特有の**カイラルソリトン格子(CSL)**と呼ばれるスピンの非線形位相構造である。これは結晶対称性が誘導する非線形磁気パターン形成とみなせる。2012年には、岸根(代表者)・戸川・秋光(分担者)らは六方晶カイラル磁性結晶である $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$ において実際にCSLが実現していることをローレンツ電子顕微鏡像による実空間観測により実証し、理論との整合性を確定させた。この成果はアメリカ物理学会“spotlighting exceptional research”に選ばれ、“New state of matter”としてCSLが紹介された。

岸根らはこれまでに、CSLが集団的に並進運動することで**磁気情報転送**が可能となることや、マクロ構造ゆえの**巨大スピン起電力**が生じること(2)を見出している。さらにCSLを形成する局在スピンと伝導電子が結合すると**多値的磁気抵抗効果**が生じる。この効果は、CSLが伝導電子に対する磁気超格子ポテンシャルの役割を果たし、伝導電子の散乱を引き起こすことに起因する。CSLつまり超格子の周期を磁場で変化させると伝導電子の波動の進行と停止を磁場で多段階制御することができる。現状の磁気抵抗素子

におけるスピンバルブ効果は on-off の 2 値センサーとして利用されるが、CSL はこの限界を打破する**超高感度多値センサー**として活用できることになる。この可能性は、HDD の容量を飛躍的に増大させる技術に繋がるものであり、垂直磁気記録、トンネル磁気抵抗型ヘッドなどのイノベーションに新境地を開き得るものとして日本、ロシアのメディアで広く取り上げられ社会的注目を集めており、実験的検証が強く期待されている。本研究では、CSL 特有の非線形・非対称構造に由来する特異なダイナミクスを中心に我々自身が開拓したこれまでの研究成果を結集し、理論・実験両面からカイラル磁性結晶に宿る新磁性機能を探索することを企図した。これにより、革新的次世代高性能磁石として有用なカイラル磁性物質群を舞台とする新しいスピントロニクス分野の確立を期した。

## 2. 研究の目的

カイラル対称性（左右対称性）が破れた結晶構造を持つ磁性体では、電子スピンの軌道相互作用を通して結晶場の非対称分布を見る。その結果現れるのがカイラルらせん磁気秩序である。この秩序構造に磁場を印加すると、磁場によってらせんの捻じれが周期的にほどけたカイラルソリトン格子（CSL）と呼ばれる構造が安定化する。これはスピン配向（位相角）の空間分布が結晶構造に保護される形で凍結した位相の空間秩序パターンであり、欠陥に対して極めて安定である上に弱磁場によって周期をナノからバルクスケールまで連続制御できる。さらに CSL 特有の非線形・非対称構造に由来する特異なダイナミクスは、伝導電子との結合を通して多値的磁気抵抗効果、磁気情報転送、巨大スピン起電力など際立った物性機能をもたらす。本研究では、理論研究と実験研究が直接連携することでこれまでの研究成果を統

合発展させ、カイラル磁性結晶に宿る物性機能の全貌解明と制御機構の確立を目指した。

## 3. 研究の方法

岸根（代表者）が理論研究の重点課題である「**電子状態計算にもとづく有効模型構築**」、**「非線形磁気パターン形成の数理**」、**「非線形ダイナミクスの全貌**」、**「カイラル構造と物性機能の関連**」の各項目を推進した。理論研究の手法としては結晶群の表現論、場の理論など数理的手法に加えて新規に導入するワークステーションを用いた電子状態計算、数値実験を併用した。本研究課題最大の特徴は理論研究と実験研究が密接に連携することで互いのシナジー効果を最大限に引き出す点である。秋光（分担者）が「**結晶学的カイラリティ制御を伴う戦略的物質創製**」を推進し、戸川（分担者）が「**スピンの非対称・非線形構造の観測と機能抽出（戸川）**」に的を絞った実験研究を展開した。実験装置は現有のものを用い、経費は本研究に的を絞った合成試薬の購入および装置高度化に充当した。特にカイラルソリトン格子（CSL）の時空間分解観測を行うため、極低温環境下でローレンツ顕微鏡を活用する。以上の研究体制により、**カイラル磁性結晶に宿る新磁性機能**についての基盤学理を構築することに成功した。

## 4. 研究成果

### 電子状態計算にもとづく有効模型構築

本研究課題を実現する舞台として最適な**単結晶**群として、我々は六方晶カイラル空間群に属する遷移金属層間化合物  $T_{1/3}MX_2$  ( $T$  = **遷移金属**、 $M$  = **遷移金属**、 $X$  = **カルコゲン**) を突き止めた。この物質群では  $T$  が局在スピンを供出し  $MX_2$  が遍歴電子を供出するため、**局在・遍歴共存電子系**が実現している。さらに六方晶ゆえカイラル軸が 1 本に定まり、局在スピンの安定なカイラルらせん磁気秩序

が実現する。まずこれらの物質群の電子状態を磁性表現論、バンド計算、結晶場理論の知見に基づいて系統的に解明することに成功した。

### 非線形ダイナミクスの全貌解明

スピンの位相秩序状態であるCSLを構成する局在スピン磁気モーメントと伝導電子スピンの結合は、**多値的磁気抵抗効果、磁気情報転送、巨大スピン起電力**という際立った物性機能を引き起こす。特にCSLの内部ダイナミクスは上記の物性機能を駆動する素過程となるため、その解明に力を注いだ。CSLは「カイラルサイン・ゴルドン模型」と呼ばれる非線形な場の理論で記述され、小振幅の揺らぎについては楕円関数を用いて空間構造から外場に対する応答までをすべて厳密に解析することができる。このような数理解析的な論理と方法は岸根、Ovchinnikovの研究によってすでに体系化されている。一方で、残された重要課題として大振幅の揺らぎや非平衡輸送の問題など解析的に扱い難い領域のダイナミクスが手付かずで残っていた。そこで本研究では、スピンの運動方程式を数値的に解く手法も取入れて理論的にカバーできる範囲を広げ、非線形ダイナミクスの全貌を解明した。この作業を通して**非対称結晶構造・非線形磁気秩序・非平衡電気伝導**という自然界の根源的な**時空非対称性**が物質のマクロ機能として発現する機構の全容を解明する道筋が明確になった。

### カイラル構造と物性機能の関連

上述したCSLの機能を実験研究と結びつけ、実験的な検出と制御を実現するための指導原理を策定した。まず、多値的磁気抵抗効果はCSLが伝導電子に対する「磁気超格子ポテンシャル」として働き、CSLの周期変化に応じて多段階の磁気抵抗ピークが現れる現象である。さらにCSLによる電子散乱はトポロジカル欠陥（個数の数えられる欠陥）による散乱であるため、多値的磁気抵抗

ピークの背景抵抗として**トポロジカルホール抵抗**が現れる。

次に、スピン起電力はスピン配向の空間変動が伝導電子に対するゲージ場として働くことに起因する効果であり、スピントロニクスの分野においてその概念が確立している。CSLはマクロな数の磁壁を含むことに相当するため、試料端に**ミリボルト程度**の極めて大きなスピン起電力が生じると期待される。

最後に、磁気情報転送はCSLの並進運動によって実現する。並進に伴ってスピンの巻いている部分に自発的な磁化が生じ、これをマーカーとして利用することで磁気情報記録が可能となる。CSLに並進運動を引き起こす具体的な方法として、我々はすでにそのための理論機構を提案している。以上の効果はいずれも試料の**メサ・ブリッジ構造化**によって大きく増強される。分担者の戸川を中心に、この方向で実績を上げることができた。

### 結晶学的カイラリティ制御を伴う戦略的物質創製

カイラルらせん磁気秩序がカイラリティ構造を有する正方・六方・立方晶系の空間群に属する磁性体で実現されうることに着目し、物質探索を行った。特に物質の空間群の制御という観点から、 $T_{1/3}MX_2$ に的を絞った。この物質群は「磁性イオンの波動関数の対称性が低く、伝導電子との混成の度合いが低くてスピンの局在性が良い」、「軌道の揺らぎによりカイラル磁気構造のカギを握るジャロシンスキー・守谷相互作用が強められている」という特徴を持ち、明確な物質設計指針を有している。この知見を利用して戦略的なカイラル磁性体の合成を進め、より高い転移温度（150 K以上）を有するカイラル磁性体の合成を目指した。結果、「 $T=Cr$ の系がのみがカイラル磁性体として顕著な有利性を持つ」ことが明白になった。

### スピンの非対称・非線形構造の観測と機能

## 抽出

ローレンツ電子顕微鏡は磁気的な空間パターン構造の時間的・空間的な変化を観測するための最適な手法のひとつである。例えば強磁性体の磁区構造、磁壁の内部構造などがローレンツ顕微鏡を用いた実空間観察により明らかにされてきた。らせん磁気構造の場合、実空間像と逆空間像をともに解析することではじめて特徴的なスピニ位相構造を実証できる。実際に  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  における CSL の同定に成功している。本研究では、ローレンツ電子顕微鏡法と自己開発した小角電子線散乱法を用い、実空間および逆空間において、カイラル磁気秩序に特徴的な磁気構造（スピニ位相構造）を解析した。また、電流や磁場などの外場に駆動されるカイラル磁気秩序の非平衡ダイナミクスを時間分解計測によって観測した。

### 5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

学術論文（計 16 件）

- (1) Jun-ichiro Kishine, I. Proskurin, I. G. Bostrem, A. S. Ovchinnikov, and Vl. E. Sinitsyn, Resonant collective dynamics of the weakly pinned soliton lattice in a monoaxial chiral helimagnet, Physical Review B, accepted.
- (2) K. Tsuruta, M. Mito, H. Deguchi, J. Kishine, Y. Kousaka, J. Akimitsu, and K. Inoue, Phase diagram of chiral magnet  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  in magnetic field, Physical Review B, in press.
- (3) Victor Laliena, Javier Campo, Jun-Ichiro Kishine, et al., Incommensurate-commensurate transitions in the monoaxial chiral helimagnet driven by the magnetic field, Physical Review B, accepted.
- (4) Y. Togawa, T. Koyama, Y. Nishimori, Y. Matsumoto, S. McVitie, D. McGrouther, R. L. Stamps, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, I. G. Bostrem, Vl. E. Sinitsyn, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, Magnetic soliton confinement and discretization effects arising from macroscopic coherence in a chiral spin soliton lattice, Physical Review B (Rapid Communication), 92,220412
- (5) M. Mito, T. Tajiri, K. Tsuruta, H. Deguchi, J. Kishine, K. Inoue, Y. Kousaka, Y. Nakao, and J. Akimitsu, Investigation of structural changes in chiral magnet  $\text{Cr}_{1/3}\text{NbS}_2$  under application of pressure, Journal of Applied Physics, 117, 183904 (2015)
- (6) M. Mito, H. Matsui, K. Tsuruta, H. Deguchi, J. Kishine, K. Inoue, Y. Kousaka, S. Yano, Y. Nakao, J. Akimitsu, Study of magnetic domain dynamics using nonlinear magnetic responses: Magnetic diagnostics of the itinerant magnet MnP, JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN, in press
- (7) Daichi Yoshizawa · Jun-ichiro Kishine · Yusuke Kousaka · Yoshihiko Togawa · Masaki Mito · Jun Akimitsu · Katsuya Inoue · Masayuki Hagiwara, Magnetic Resonance in the Chiral Helimagnet  $\text{CrNb}_3\text{S}_6$ , Physics Procedia, 75,926-931
- (8) Jun-ichiro Kishine, I. G. Bostrem, A. S. Ovchinnikov, and Vl. E. Sinitsyn, Topological magnetization jumps in a confined chiral soliton lattice, PHYSICAL REVIEW B, 89, 014419 (2014)
- (9) A. S. Ovchinnikov,\* Vl.E.Sinitsyn, and J. Kishine, INFLUENCE OF IMPURITIES ON THE SPIN-MOTIVE FORCE IN THE FERMI-GAS MODEL WITH THE sd INTERACTION, Theoretical and Mathematical Physics, 179(3): 747–752 (2014)

- (10) Yusuke Kousaka, Yuki Takahashi, Naoki Ikeda, Hideki Matsui, Jun-ichiro Kishine, Yoshihiko Togawa, Marina Miyagawa, Sadafumi Nishihara, Katsuya Inoue, and Jun Akimitsu, Weak Ferromagnetism in Chiral Inorganic Compound CrSi, JPS Conf. Proc., 3, 014037 (2014) [4 pages]
- (11) Y. Togawa, T. Koyama, S. Mori, Y. Kousaka, J. Akimitsu, S. Nishihara, K. Inoue, A. S. Ovchinnikov, J. Kishine, Chiral Soliton Lattice in Chiral Magnetic Crystal CrNb<sub>3</sub>S<sub>6</sub>, Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, Vol. 61 (2014) No. S1 pp. S34-S36
- (12) Yusuke Kousaka, Naoki Ikeda, Takahiro Ogura, Toha Yoshii, Jun Akimitsu, Kazuki Ohishi, Jun-ichi Suzuki, Haruhiko Hiraka, Marina Miyagawa, Sadafumi Nishihara, Katsuya Inoue, and Jun-ichiro Kishine, Chiral Magnetic Soliton Lattice in MnSi, JPS Conf. Proc., 2, 010205 (2014) [6 pages]
- (13) A. S. Ovchinnikov, V. E. Sinitsyn, I. G. Bostrem, J. Kishine, Generation of spin-motive force in the soliton lattice, Journal of Experimental and Theoretical Physics, 116, 791-795 (2013)
- (14) Y. Togawa, Y. Kousaka, S. Nishihara, K. Inoue, J. Akimitsu, A. S. Ovchinnikov, and J. Kishine, Interlayer Magnetoresistance due to Chiral Soliton Lattice Formation in Hexagonal Chiral Magnet CrNb<sub>3</sub>S<sub>6</sub>, PHYSICAL REVIEW LETTERS, 111, 197204 (2013)
- (15) M. Mito, T. Nagano, K. Tsuruta, H. Deguchi, S. Takagi, J. Kishine, Y. Yoshida, and K. Inoue, Multiple spectra of electron spin resonance in chiral molecule-based magnets networked by a single chiral ligand, J. Appl.

Phys., 114, 133901 (2013)

〔学会発表〕(国際会議招待講演計3件)

(1) J. Kishine, theory of mono-axial chiral helimagnet, International Research Symposium on Chiral Magnetism, 2014年12月, 広島市

(2) J. Kishine, Spintronic applications of mono-axial chiral helimagnet, International workshop on Dzyaloshinskii-Moriya Interaction and Exotic Spin Structures, 2015年5月, サンクトペテルブルク(ロシア)

(3) J. Kishine, Chiral helimagnet through the polarized probes, European Conference on Neutron Scattering 2015 基調講演, 2015年9月, サラゴサ(スペイン)

〔図書〕(計1件)

J. Kishine and A. S. Ovchinnikov, Theory of Monoaxial Chiral Helimagnet, Solid State Physics, Vol.66, Pages 1-130

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

岸根 順一郎 (Junichiro Kishine)

放送大学・教養学部・教授

研究者番号: 80290906

### (2) 研究分担者

秋光 純 (Jun Akimitsu)

広島大学・理学研究科・特任教授

研究者番号: 80013522

戸川 欣彦 (Yoshihiko Togawa)

大阪府立大学・工学部・准教授

研究者番号: 00415241

### (3) 連携研究者

松浦 弘泰 (Hiroyasu Matsuura)

東京大学・理学系研究科・助教

研究者番号: 40596607

高阪 勇輔 (Yusuke Kousaka)

広島大学・理学研究科・助教

研究者番号: 60406832