

## 極低温ローレンツ電顕法による スキルミオン格子の可視化

### Observation of Skyrmion Lattice by Cryo-Lorentz Transmission Electron Microscopy

于 秀珍<sup>a</sup>, 小野瀬佳文<sup>a, b</sup>, 金澤 直也<sup>b</sup>,  
永長 直人<sup>b, c</sup>, 十倉 好紀<sup>a, b, c</sup>, 松井 良夫<sup>d</sup>

Xiuzhen Yu, Yoshinori Onose, Naoya Kanazawa, Naoto Nagaosa,  
Yoshinori Tokura and Yoshio Matsui

<sup>a</sup>独立行政法人科学技術振興機構・ERATO・

十倉マルチフェロイックプロジェクト

<sup>b</sup>東京大学大学院工学系研究科

<sup>c</sup>独立行政法人理化学研究所基幹研究所

<sup>d</sup>独立行政法人物質材料研究機構

**要旨** スキルミオン (Skyrmion) と呼ばれる渦状のスピンの状態は、1960年代に素粒子物理学者 (Skyrme) により予言されていた。物質中にスキルミオンが存在すると、特異な電磁気効果を誘起することが期待されているが、その生成過程および基本構造ははっきり分かっていない。そこで今回我々は、非中心対称性の B20 型立方晶構造を持つらせん型磁性体  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  に着目し、電子顕微鏡の磁界型レンズの垂直磁場を巧みに制御することにより、らせん型スピン構造を、渦状スキルミオン構造に変化させ、更にこれをローレンツ電子顕微鏡像として可視化することに世界で初めて成功した。

**キーワード**：ローレンツ電顕法，強度輸送方程式法，スキルミオン格子

#### 1. はじめに

酸化物超伝導体に代表される「強相関物質」においては、電子と結晶格子の強い相関効果による、電荷、軌道そしてスピンの秩序現象がしばしば観察される<sup>1-3)</sup>。このような秩序状態は、電磁気応答などの物性と深く関わっており、このため従来にない新奇なスピン秩序状態とそれに起因する電気磁気機能を探索することは、スピントロニクス発展に多大な寄与をもたらすことが期待されている<sup>4)</sup>。本稿で取り上げる  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  は非中心対称性の B20 型立方晶構造を持つらせん磁性体 (図 1a) であり、スピンの三次元的にらせん配列していることは、中性子回折<sup>5)</sup> や、ローレンツ電子顕微鏡観察<sup>6)</sup>

によって実際に確認されている。このらせん磁気構造物質に、僅かな磁場を印加すると、スキルミオン (Skyrmion) 格子と呼ばれる新規な磁気構造が出現することが、中性子小角散乱実験を基に主張されていた<sup>7)</sup>。スキルミオンは素粒子分野の理論研究者である Tony Skyrme<sup>8)</sup> が提唱した、トポロジカルなスピン配列状態である。具体的には、図 1c に模式的に示す「渦状」のスピンの配列であり、渦の中心ではスピンは外部磁場と反対方向を、一方外側ではスピンは外部磁場と同一方向に整列する<sup>8-10)</sup>。しかしながら三次元のバルク状態では、スキルミオンの規則配列構造は必ずしも安定ではなく<sup>7)</sup>、中性子小角散乱実験では、 $T_N$  直下の僅か数ケルビンの狭い温度領域でのみ観察されていた<sup>7,11)</sup>。一方、試料を薄膜化することによって、元のらせん磁気構造を特定面内に制限し、これに磁場をかけることによって、2次元のスキルミオン格子が比較的安定に存在しうることが、モンテカルロ・シミュレーションおよびローレンツ電顕観察によって判明した<sup>12,13)</sup>。らせん磁性体から、磁場印加によるスキルミオンへの変化機構、更には単一スキルミオンの磁気構造の詳細な知見を得ることは、今後スキルミオンを磁気デバイスへ応用する上で非常に重要である。

通常、強磁性体や反強磁性体のスピン秩序の平均的な状態を調べるには、中性子回折がよく使われる<sup>14)</sup>。しかし、スキルミオン格子の欠陥や単一スキルミオンの構造を知るには、実空間観察が必要不可欠であると考えられるが、これまで報告例はなかった。高い空間分解能を持つローレンツ電子顕微鏡法<sup>15)</sup> は、磁気構造の局所観察能力に優れており、特に位相計測法 (TIE) と併用することによって、磁化の空間分布をナノレベルで可視化することが出来る<sup>12,16)</sup>。今回、我々は冷陰極電界放出型電子銃を備えた、300 kV 分析電子顕微鏡 (Hitachi HF-3000S) の磁界型対物レンズの励磁を制御して、らせん磁性体  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  に百ガウスオーダーの磁場をかけ、スキルミオン格子を生成させ、さらにこれをローレンツ電顕

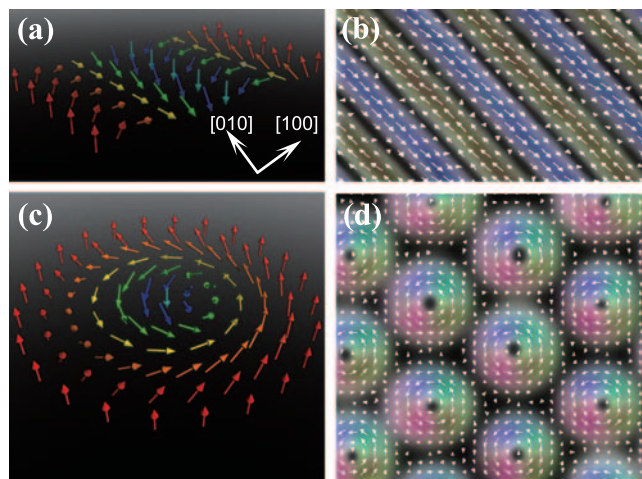


図 1 らせん磁性体 (a-b)、スキミオン (c-d) の三次元模式図 (a, c) とモンテカルロ・シミュレーションにより理論的に得られた 2次元スピントクスチャー (b, d)。矢印は磁化を示す。

<sup>a</sup> 〒113-8656 東京都文京区本郷 7-3-1

TEL: 048-462-1111 (ext. 6434)

E-mail: yu\_x@riken.jp

2010年9月17日受付

像として可視化することに世界で初めて成功した<sup>12,13)</sup>。本稿はこの手法の概要を解説する。

## 2. ローレンツ電子顕微鏡法と磁場印加

従来我々がマンガ氧化物等の磁区観察に用いてきたローレンツ電顕 (Hitachi: HF-3000L) は、試料自身には磁場をかけない状態で、強磁性体の自発磁化を観察する方法であった。しかし、今回取り上げるスキルミオンを観察するためには、まずらせん型磁性体に垂直な磁場をかけて、スキルミオンに変化させる必要がある。垂直磁場印加機構を有する専用電子顕微鏡の開発例はいくつか報告されているが<sup>17,18)</sup>、今回我々はあえて市販の汎用型電子顕微鏡をベースに、本来結像レンズとして使われている磁界型対物レンズ (図 2 (a)) の磁場を利用し、弱いレンズ励磁によって、スキルミオン生成に必要な弱い垂直磁場を発生することで、スキルミオン格子のローレンツ電子顕微鏡法観察を試みた。TEM の通常観察モードでは高い倍率と原子レベル分解能を得るために、レンズ電流を大量に流し、焦点距離を短くするのが一般的である。この場合図 2 (a) の青色の結像光路のように、加速電圧 300 kV の場合、試料面ではおよそ 2T-3T の強磁場が発生しており、試料の磁化は一般に飽和してしまう。スキルミオンもこのような強磁場下では存在できない。一方、図 2 (a) の水色で示した結像光路のように、レンズ電流を減らすと、試料面での磁場が減少し、うまく制御すればスキルミオン生成条件 (数百ガウス) を得ることが原理的に可能となる。また焦点距離が長くなる、言い換えればカメラ長が長くなることによって、回折図形の拡大倍率が相対的に増大するため、試料中の自発磁化に対応した電子線の偏向の検出がより容易になる。つまり、対物レンズ電流を減少させることによって、スキルミオンを生成させ、かつそれをローレンツ観察することが可能になると考えられる。図 2 (b) は、ローレンツ電顕法による磁性体の観察原理を模式的に示す。試料内部の、入射電子線と平行な磁化成分は、電子線の偏向に寄与せず、磁気コントラストは現れない。一方、入射電子線と垂直な磁化成分 (薄い試料の面内成分) には、ローレンツ力が働くため、電子線は偏向され、収束像 (明るい) や発散像 (暗い) が像面に形成され、磁気コントラストが得られる。ローレンツ電顕鏡では、このコントラストから観測面に平行な磁化の情報を得ることが出来る。

本研究では、浮遊帯域溶融法 (FZ)<sup>19)</sup> によって作製した単結晶  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  試料を 20 nm 程度まで薄くし、電顕観察用の液体ヘリウムホルダに取り付けた後、市販の冷陰極電界放出型電子顕微鏡 (日立 HF-3000S, 300 kV) の対物レンズ電流を変化させ、らせん磁性体に垂直な磁場を印加しながら、磁区構造の観察を行った。磁化分布を求めるため、位相計測法・強度輸送方程式法 (計算は QPt (HREM Ltd.) ソフトを使用した)<sup>16)</sup> を用いて、焦点を外した二枚 (アンダーフォーカスとオーバーフォーカス) のフレネル型ローレンツ電顕像の位相変化を抽出し、磁化の空間分布マッピング像を得た。

## 3. らせん状態の磁化分布

図 3 (a, b) は 25K・無磁場条件での  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  のローレンツ電顕像である。白黒の縞状 (ストライプ) パターンが観察されるが、アンダーフォーカス像 (a) とオーバーフォーカス像 (b) のコントラストが反転していることから磁気構造を反映していることが分る。強度輸送方程式法 (TIE) でこれらのローレンツ像の z 方向 (電子線と平行) の位相変化を計算することにより、試料面内の 2 次元磁化分布が得られる。図 3 (c) にその結果を示すが、各カラーと矢印が磁化の方向および大きさの対応関係を表している。この磁化分布はモンテカルロ・シミュレーションにより理論的に得られた 2 次元系らせん磁気構造 (図 1b) とよく一致しており、 $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  が極低温・無磁場条件ではらせん型スピン構造を持つことと対応する。また、らせんスピンの繰り返し周期とその方向は、それぞれ 90 nm と [100] であり、中性子散乱実験の結果と一致していることが分かった。

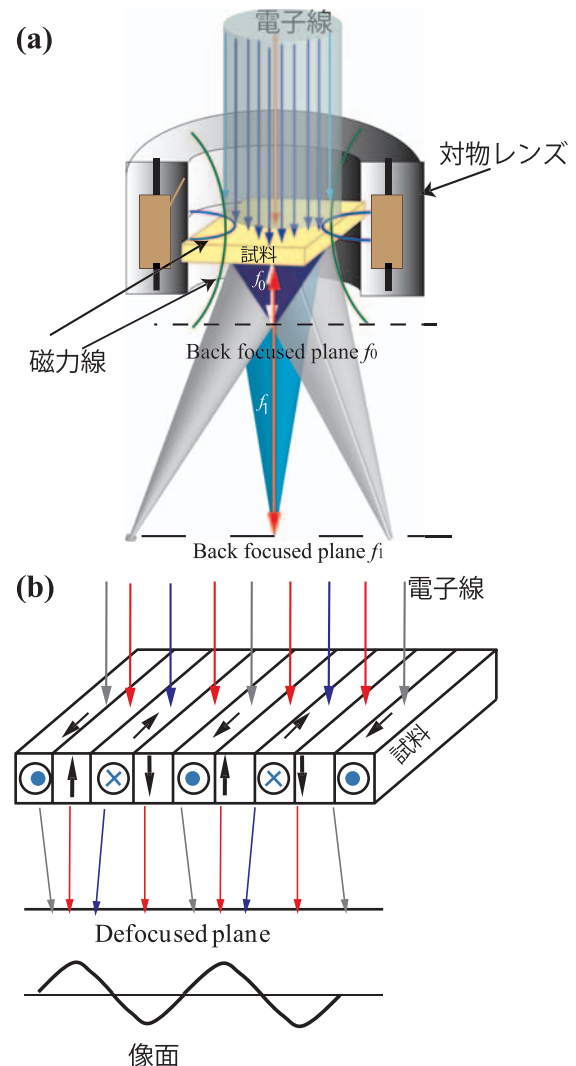


図 2 (a) 対物レンズ電流を変化させた時の電子顕微鏡の結像光路図。(b) ローレンツ電顕法の模式図。

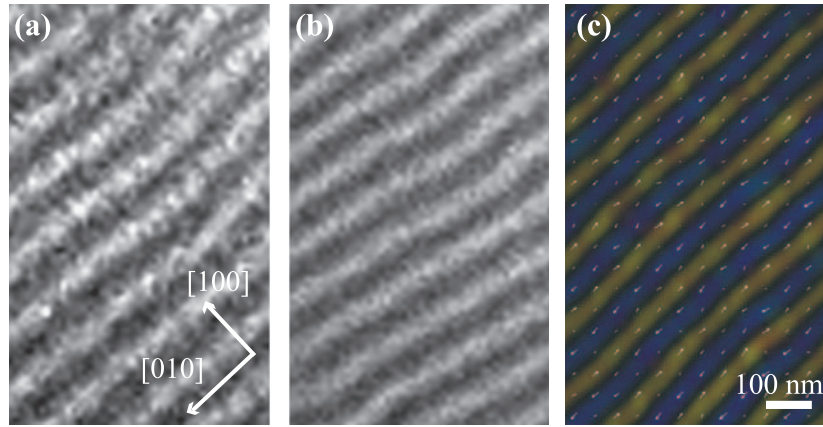


図3 Fe<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Siにおける、自発的ならせん磁気構造. (a) オーバーフォーカス像. (b) アンダーフォーカス像. (c) 磁化分布.

#### 4. 弱磁場印加によるスキルミオンの生成および消滅

図4には、 $T = 25\text{K}$ における様々な磁場におけるローレンツ電顕像（オーバーフォーカス像）を示す。前章で述べた無磁場のらせん磁気構造が観察された。このらせん磁気構造に、徐々に磁場を印加すると、図4(b), (c)に示すように縞状パターンが崩れ始め、同時にスキルミオンに対応する白い粒状のパターンがところどころに現れ始める。このようならせん磁性とスキルミオンとの共存相では比較的スキルミオン単体

が独立して運動しうることが期待できる。磁場を50 mT (500 ガウス) まで増加すると縞状パターンはほぼ完全に消失し、スキルミオンの三角格子が形成された。さらに磁場を70 mT (700 ガウス) まで増加させると、スキルミオン格子が崩れはじめ、スピンの外部磁場方向（試料と垂直方向）に沿って揃った強磁性状態がところどころ現れ、スキルミオンと強磁性相が共存している状態が観察された。さらに磁場を80 mT (800 ガウス) まで増加すると、スキルミオンはほぼ完全に消失、強磁性の単一ドメインが形成されるため、ローレンツ像は一様なものとなる。

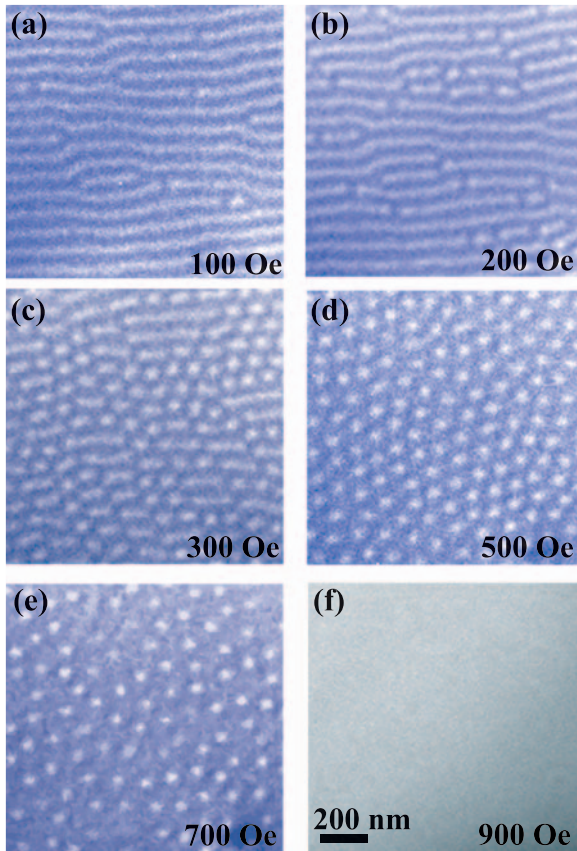


図4 Fe<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Si の、25Kにおけるローレンツ電子顕微鏡像の磁場変化.

#### 5. 単一スキルミオン内の磁化分布

図5に  $T = 25\text{K}$ における、磁場下 ( $B = 50\text{ mT}$ ) のローレンツ顕微鏡像 (a-b) とその磁化分布 (c) を示す。この図は位相計測法・強度輸送方程式法を用いて、高分解能ローレンツ実空間像 (a-b) を解析することにより得られた磁化の面内成分の空間分布マップである。図5dは図5cの拡大像である。色は磁化の方向を表しており、例えば磁化が右を向いている場合には赤色に対応する。また、鮮やかな色ほど磁化の面内成分が大きいことを示しており、黒い領域では磁化の面内成分は存在しない。スキルミオンの直径とスキルミオン格子の格子定数はほぼ等しく、およそ90 nmである。実空間観察したスキルミオン格子の磁化分布と、モンテカルロ・シミュレーションにより理論的に得られた2次元系スキルミオンの面内磁化成分 (図1(c)) は非常によく一致しており、中心および外周のスピンの方向が面に垂直であることが確認された。中心部と外周部の面積を比較すると、外周部が大きいいため、外周部のスピンは磁場と同一の方向を、一方中心部では磁場と反平行に整列していると考えられる。

#### 6. 終わりに

今回我々は、らせん磁性体 Fe<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>Si に対して、対物レンズ磁場を巧みに印加することにより、電子顕微鏡内で渦状スキルミオン格子を生成し、さらにこれをローレンツ電子顕微鏡像として実空間観察 (可視化) することに世界に先駆けて

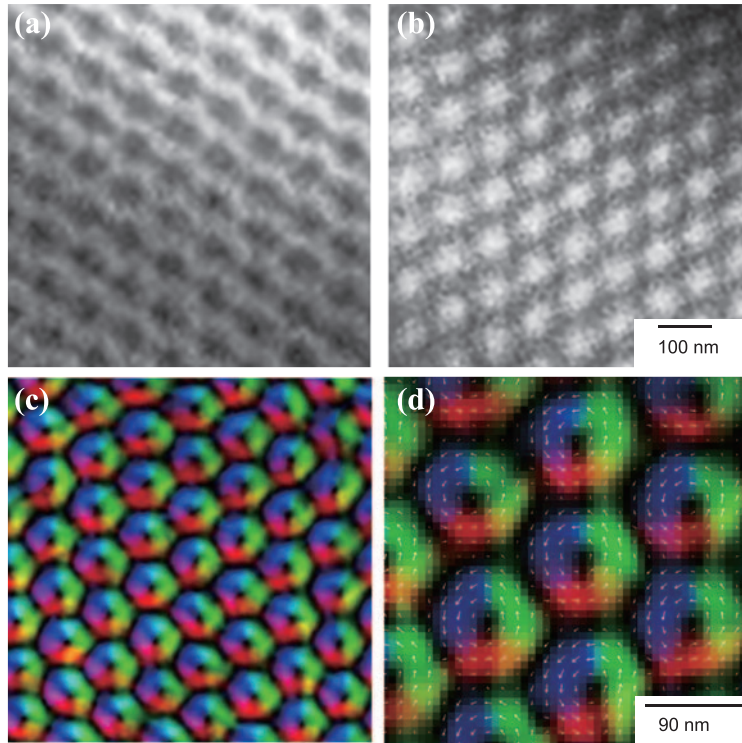


図5 スキルミオン格子のローレンツ像 (a-b), TIE による磁化分布 (c) とその拡大像 (d).

成功した. 実空間観察により得られた2次元スキルミオンのスピン構造はモンテカルロ・シミュレーションにより理論的に得られた2次元系構造とよく一致することが分かった. スキルミオンは出発状態(無磁場)のらせん磁気構造に, 百 Gauss オーダーの磁場をかけることによって, 徐々に生成するが, 約 500 Gauss で, 完全なスキルミオン三角格子となることが確認できた. また, 実空間観察という特性を生かして, 渦状スキルミオンと縞状らせん磁気, あるいは渦状スキルミオンと強磁性の共存状態をナノレベルで観察することにも成功し, 相境界では単一のスキルミオンが独立に運動しうることなどの知見を得た. モンテカルロ・シミュレーションによれば, スキルミオンは二次元系(薄膜)で特に安定に存在すると予測されているため, 薄膜試料を前提とする透過型ローレンツ電顕法は, このような非線形のトポロジカルスピン構造の解析に多大な貢献が出来ることを期待される.

#### 謝 辞

本稿で紹介した成果は科学技術振興機構・ERATO・十倉マルチフェロイックプロジェクト, 物質・材料研究機構(NIMS), 東京大学, 理化学研究所, 韓国 Sung Kyun Kwan 大学との共同研究で得られたもので, 2次元スキルミオンのスピン構造を計算して頂いた共同研究者 Jung Hoon Han 氏, Jin Hong Park 氏に感謝いたします. また電子顕微鏡のヘリウム冷却実験を補助して頂いた物質・材料研究機構の張偉珠氏に感謝いたします. さらに有益な助言を頂いた, 石塚和夫, 木本浩司, 浅香透, 原徹, 金子良夫の各氏に感謝いたします. 最後に, 物質・材料研究機構における, 電子顕微鏡データの

取得にあたっては, 文部科学省のナノテクノロジーネットワーク(ナノネット)による支援を受けたことを付記します.

#### 文 献

- 1) Wigner, E.P.: *Phys. Rev.*, **46**, 1002–1011 (1934)
- 2) Tokura, Y. and Nagaosa, N.: *Science*, **288**, 462–468 (2000)
- 3) Tranquada, J.M. *et al.*: *Nature*, **375**, 561–563 (1995)
- 4) 永長直人, 十倉好紀: 日本物理学会誌, **64**, 413 (2009)
- 5) Ishikawa, Y., Tajima, K., Bloch, D. and Roth, M.: *Solid State Commun.*, **19**, 525–528 (1976)
- 6) Uchida, M., Onose, Y., Matsui, Y. and Tokura, Y.: *Science*, **311**, 359–361 (2006)
- 7) Mühlbauer, S. *et al.*: *Science*, **323**, 915–919 (2009)
- 8) Skyrme, T.: *Nuclear Physics*, **31**, 556–569 (1962)
- 9) Rajaraman, R.: *Solitons and Instantons*. Elsevier North-Holland, Amsterdam (1987)
- 10) Sondhi, S.L., Karlhede, A., Kivleson, S.A. and Rezayi, E.H.: *Phys. Rev. B*, **47**, 16419–16426 (1993)
- 11) Grigoriev, S.V. *et al.*: *Phys. Rev. B*, **76**, 224424 (2007)
- 12) Yu, X.Z. *et al.*: *Nature*, **465**, 901–904 (2010)
- 13) 小野瀬佳文, 于 秀珍, 金澤直也, 松井良夫, 永長直人, 十倉好紀: 固体物理, **45**, 31 (2010)
- 14) Marshall, W. and Lovesey, S.W.: *Theory of Thermal Neutron Scattering*. Oxford University Press, London (1971)
- 15) Grundy, P.J. and Tebble, R.S.: *Adv. Phys.*, **17**, 153–242 (1968)
- 16) Ishizuka, K. and Allman, B.: *J. Electron Microsc.*, **54**, 191–197 (2005)
- 17) Tonomura, A. *et al.*: *Nature*, **412**, 620–622 (2001)
- 18) Grundy, P.J. and Herd, S.R.: *Phys. Stat. sol. (a)*, **20**, 295–307 (1973)
- 19) Onose, Y., Takeshita, N., Terakura, C., Takagi, H. and Tokura, Y.: *Phys. Rev. B*, **72**, 224431 (2006)