

## 論文の内容の要旨

論文題目:

“Real-space observation and structural control of magnetic skyrmions”

(磁気スキルミオンの実空間観察と構造制御)

氏名: 柴田 基洋

### 研究要旨

近年、磁気スキルミオンと呼ばれる渦状のナノスケールスピン構造が物質中で形成されることが発見された。B20 型結晶構造などのカイラルな結晶構造を有するらせん磁性体においては、スキルミオンが三角格子状に整列したスキルミオン結晶が形成される。スキルミオン及びスキルミオン結晶はその特殊なスピン構造に由来する多彩な物性を示すことに加え、マルチフェロイックな特性や低電流密度駆動など工学的に優れた特性も有するため注目されている。スキルミオンの学理構築や応用にあたっては、これらの特性を担うスキルミオン結晶自体の、格子定数(スキルミオン間隔)、スキルミオンの巻く向き(ヘリシティ)、内部構造といった構造パラメータの理解や制御手段の開拓が重要である。そこで本研究では、電子顕微鏡による磁気構造の実空間観察を用いて、スキルミオンの構造の分析と制御を目指した。

B20 型  $Mn_{1-x}Fe_xGe$  においては、組成による電子ファイリング制御によってスキルミオンの大きさとヘリシティーを連続的に変調できることを示した。一軸引張応力下での B20 型  $FeGe$  の磁気構造観察では、結晶構造の歪みによってジャロシンスキー・守谷相互作用が異方的に変調され、スキルミオン結晶および個々のスキルミオンが僅かな原子格子歪み( $\sim 0.3\%$ )に対して大きく歪む( $\sim 15\%$ )ことを明らかにした。電子線ホログラフィーを用いた B20 型  $FeGe$  におけるスキルミオンの構造分析では、スキルミオンの内部構造の温度・磁場依存性を明らかにした。また、空間反転対称性を有する M タイプヘキサフェライト  $BaFe_{12-x}Sc_xMg_{0.05}O_{19}$  ( $x=1.8$ )においては、ローレンツ電子顕微鏡法で観測された熱励起による磁気バブルのヘリシティーの反転について、動画解析とシミュレーションから活性化エネルギーの見積もり(数 eV)とダイナミクスについて考察を行った。

## I. $Mn_{1-x}Fe_xGe$ におけるスキルミオンの大きさとヘリシティの制御

B20 型結晶構造を有するらせん磁性体においては、強磁性的な交換相互作用とジャロシンスキー・守谷相互作用との競合で物質固有の磁気周期が決まっており、スキルミオンの大きさはらせん磁気構造の周期と同程度であることが知られている。そこで、大きく異なる磁気周期を有する 2 つの B20 型らせん磁性体、 $MnGe$  (磁気周期 3—6 nm) と  $FeGe$  (磁気周期 70 nm) に着目し、それらの混晶である一連の多結晶  $Mn_{1-x}Fe_xGe$  を高压合成法により合成することで、スキルミオンの大きさの組成による制御を目指した。

ローレンツ電子顕微鏡法によるスキルミオン結晶とらせん磁気構造の実空間観察、エネルギー分散型 X 線分光法による組成分布の取得、収束電子回折法による結晶のカイラリティの判別を  $x = 0.3—1.0$  の広い組成範囲で行った結果、磁気周期は組成に対して非単調に変化し、 $x = 0.8$  において発散する振る舞いを示すことが分かった。さらに、磁性のヘリシティと結晶のカイラリティとの間の相関が組成  $x = 0.8$  付近で反転することを明らかにした。これらの系統的な組成依存性は、電子フィリングの変化により連続的なジャロシンスキー・守谷相互作用が符号反転も含めて連続的に変化するためと考えられる。

## II. 一軸引張応力によるスキルミオンの異方的変形

らせん磁性体  $Mn_{1-x}Fe_xGe$  において電子フィリングでジャロシンスキー・守谷相互作用を変調できたことから、バンド構造変調によってもジャロシンスキー・守谷相互作用を変調できる可能性がある。そこで、異方的な応力の印加がスキルミオン結晶の構造に与える影響をローレンツ電子顕微鏡法による実空間観察で調べた。

高い転移温度 (~280 K) を有し広い温度領域でスキルミオンが発現するらせん磁性体  $FeGe$  について、熱応力によって低温で一軸の引張応力が生じるような構造の試料を集束イオンビーム微細加工により作製し、温度を変えて磁気構造を観察した。熱応力が小さい高温領域ではスキルミオン結晶は 6 回対称な構造を持ち歪みは観測されなかった。一方、熱応力が大きく結晶構造の歪みが 0.3% 程度と考えられる低温領域では、応力印加方向にスキルミオン結晶及び個々のスキルミオンの形状が大きく歪む (20%) 様子が観察された。これは、本来ほぼ等方的であると考えられるジャロシンスキー・守谷相互作用が、一軸応力で生じた原子格子歪みにより異方的に変調された可能性を示唆する結果である。そこで、異方的に変調されたジャロシンスキー・守谷相互作用を含むモデルについて磁気構造シミュレーションと解析計算を行ってスキルミオン結晶および個々のスキルミオンに生じる歪みを評価したところ、実験結果を定性的に再現する結果が得られた。

## III. 電子ホログラフィーによるスキルミオンの内部構造の観察

電子線ホログラフィーにより  $FeGe$  におけるスキルミオンの磁気構造の温度依存性と磁場依存性を観察した。ホログラムから再構成した位相分布の分析を行い、中心部分から外周部への磁気モーメントの回転角の動径方向の距離依存性を調べた。温度依存性については、温度による内部構造変化は小さいこと、局所磁気モーメントの大きさの温度依存性は平均場近似でおおよそ説明できることが分かった。磁場依存性については、スキルミオン結晶状態を保っている間は印加磁場に対してスキルミオン結晶中のスキルミオンの中心間距離はあまり変化しないが、スキルミオン中心から磁気モーメントの面内成分が最大となる箇所までの距離は磁場増大に応じて短くなることが分かった。この振る舞いは、先行研究の理論曲線で定性的に説明できる。また、スキルミオン結晶においては、スキルミオンの中心部分は面直方向の軸に対して軸対称であるのに対して、周辺部では最近接スキルミオンの存在によりわずかに六角形状に変形していることを明らかにした。

## IV. 磁気バブルのヘリシティ反転

$M$  タイプヘキサフェライト  $BaFe_{12-x}Sc_xMg_{0.05}O_{19}$  ( $x = 1.8$ ) におけるローレンツ電子顕微鏡法による観察で、へ

リシティーの異なる右巻きと左巻きの 2 種の磁気バブルが発現すること、さらに転移温度近傍の高温領域でヘリシティーが動的に振動することが観察された。これは、試料の結晶構造が空間反転対称性を有するために右巻きと左巻きの磁気構造のエネルギーが縮退しており、熱的な励起によってそれらの状態間の遷移が生じるためだと考えられる。ダイナミクスを調べるため、ローレンツ顕微鏡法で観察可能なフレームレート(30 fps)以上の挙動も含めてモーションナルナローイングなどからヘリシティー反転に要する典型的な時間スケールを見積もり、アレニウスの式から反転の励起エネルギーを数 eV と見積もった。さらに、磁気バブルを単純化した一次元円環スピン系のシミュレーションから、磁壁中のキंक対生成がヘリシティー反転の原因と考えられることが分かった。また、理論的にも転移温度直下 ( $T \sim T_c - 15$  K) でのキंक対構造生成エネルギーは 1 eV 程度と、実験とオーダーで一致する結果を得た。

## 結論

B20 型  $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ge}$  においては組成によってスキルミオンの大きさとヘリシティーが系統的に制御できることを示した。また、B20 型  $\text{FeGe}$  においては一軸引張応力によってスキルミオン結晶および個々のスキルミオンに大きな歪みが生じることを示した。これらの結果からスキルミオンの構造を支配するジャロシンスキー・守谷相互作用が電子状態に依存しており、組成・応力印加による電子フィリング制御やバンド構造変調がスキルミオン及びスキルミオン結晶の構造制御に有効であることを見出した。

電子線ホログラフィーを用いた B20 型  $\text{FeGe}$  におけるスキルミオンの観察では、温度・磁場依存性を詳細に調べ、スキルミオンの内部構造の変調と周辺部の歪みを明らかにした。

空間反転対称性を有する M タイプヘキサフェライト  $\text{BaFe}_{12-x}0.05\text{Sc}_x\text{Mg}_{0.05}\text{O}_{19}$  ( $x=1.8$ ) においては、熱励起による磁気バブルのヘリシティーの反転について活性化エネルギーの見積もり(数 eV)とダイナミクスの考察を行った。

以上のように、電子顕微鏡を用いた磁気構造の実空間観察により、スキルミオンの構造とその制御手段について重要な知見が得られた。