

博士論文（要約）

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)

柴田 基洋

背景と目的 (第1章)

近年、スキルミオンと呼ばれるトポロジカルに安定な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。特に B20 型結晶構造などのカイラル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、低電流密度での高駆動性やマルチフェロイックな特性など工学的に優れた特性も有するため注目されている。このような背景のもと、スキルミオン結晶が持つ格子定数、スキルミオンの巻く向き（ヘリシティ）、内部の詳細構造といった構造についての理解と外場制御手段の開拓は重要となっている。

そこで本論文では、磁気構造を実空間で観察できる強力なプローブである電子顕微鏡によりスキルミオンの磁気構造の実空間観察を行い、その構造分析と制御を行った。

Size and Helicity Control of Skyrmions in $Mn_{1-x}Fe_xGe$ (第3章)

異なる磁気周期を有するらせん磁性体 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 $Mn_{1-x}Fe_xGe$ を高圧合成法により合成した。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 $x \sim 0.8$ において反転することを明らかにした。さらに、磁気周期は組成に対して非単調に変化し、 $x \sim 0.8$ において発散する振る舞いを示すことを示した。ジャロシンスキー・守谷 (DM) 相互作用が、対称性と組成に由来していることを考えると、これらの組成依存性は、電子フィリングにより連続的な DM 相互作用が符号反転も含め連続的に変調されたためであると結論できる。

本研究成果は遍歴磁性体における DM 相互作用の制御の重要な実験例として理論研究を活性化し、その後の DM 相互作用のバンド構造中のバンド交差点を起源とした理解、及びそれに基づく定量化法の構築のきっかけとなった。

Large Anisotropic Deformation of Skyrmions under Uniaxial Tensile Strain (第4章)

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。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試料を集束イオンビーム微細加工により作製し、磁気構造を観察した。熱応力が小さい高温領域においてはスキルミオンの歪みが見られなかったが、熱応力が大きい低温領域では、試料の結晶構造の歪み (0.3%) に対して、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 (15%) 様子が観察された。本来等方的なジャロシンスキー・守谷相互作用が一軸応力で生じた格子歪により異方的に変調されたとする理論モデルをたて、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に生じる歪みを評価したところ、実験結果を再現する結果を得た。

本成果は、結晶歪を利用したバンド構造制御を通じた遍歴磁性体における DM 相互作用の制御の重要な実験例として、DM 相互作用の制御に関する理論研究に影響を与えた。

Internal Skyrmion Structure Observation by Electron Holography (第5章)

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。その結果、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が平均場的な温度依存性を示すことが分かった。さらに磁場印加に対してスキルミオン間の距離はあまり変化しないものの、内部構造が顕著に変調されることを明らかにした。また、スキルミオ

ン結晶の単位胞の端ではスキルミオンの構造が完全な円形ではなく六角形状に僅かに歪んでいる様子が確認できた。

Helicity reversal of magnetic bubbles (第6章)

空間反転対称性を有する磁性体では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、右巻きと左巻きというカイラルな磁性体には現れない自由度がエネルギー的に許容されると考えられる。

実際に我々は M タイプヘキサフェライト $\text{BaFe}_{12-x}0.05\text{Sc}_x\text{Mg}_{0.05}\text{O}_{19}$ ($x = 1.8$)におけるローレンツ電子顕微鏡法による観察で、無磁場下においてヘリシティの異なる右巻きと左巻きの2種の磁気バブルが三角格子状に整列した状態が発現すること、さらに転移温度近傍の高温領域で各々のバブルのヘリシティが三角格子を保ったまま動的に振動することをローレンツ顕微鏡法の観察で明らかにした。観察可能なフレームレート (30 fps) 以上の挙動も含めモーショ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 と算出した。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、スキルミオンナンバーとワインディングナンバーを保った磁壁中のキルク対生成及び対消滅がヘリシティー反転の過程であることが示唆された。また、理論的にも転移温度直下 ($T \sim T_c - 15$ K) でのキルク対構造生成エネルギーは 1 eV のオーダーとなり、実験とオーダーで一致する結果を得た。

結論 (第7章)

B20 型 $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ge}$ においては、組成による電子フィ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 (第3章)。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 ($\sim 0.3\%$) に対して大きく歪む ($\sim 15\%$) ことを示した (第4章)。これらの結果は組成・及び応力による DM 相互作用の変調として統一的に理解でき、遍歴磁性体における DM 相互作用の制御の重要な実験例として理論研究を活性化した。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 (第5章)。空間反転対称性を有する M タイプヘキサフェライトにおいて、熱励起による磁気バブルのヘリシティーの反転をローレンツ電子顕微鏡法の実空間観測で明らかにし、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) とヘリシティー反転の動的な過程の考察を行った (第6章)。

総じて、本論文ではスキルミオンの構造を透過型電子顕微鏡の実空間観察手法により包括的に研究し、スキルミオンの詳細構造の解明及びその構造制御法の開拓を行うのみならずその起源についても考察を行った。スキルミオンの磁性体メモリへの応用に向けての有用な知見が得ることができた。