

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年5月25日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K18355

研究課題名(和文)高温カイラル磁性体における新奇スキルミオン状態の探索と解明

研究課題名(英文) Exploration and elucidation of new skyrmion states in high-temperature chiral magnets

研究代表者

軽部 皓介 (Karube, Kosuke)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・特別研究員

研究者番号：00755431

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、高温カイラル磁性体Co-Zn-Mn合金において、スキルミオンの安定領域の拡大化、および、新奇スキルミオン状態の探索を目的としており、以下の研究成果が得られた。Co<sub>9</sub>Zn<sub>9</sub>Mn<sub>2</sub>において、室温以上かつゼロ磁場を含む広範囲の温度・磁場領域に頑丈な準安定スキルミオン状態を作り出すことに成功した。また、Co<sub>7</sub>Zn<sub>7</sub>Mn<sub>6</sub>において、通常スキルミオン安定相とは別に、磁気フラストレーションが誘起する新たなスキルミオン状態の安定相が存在することを発見した。更に、Co-Zn-Mn合金にFeを置換することで、スキルミオンのサイズやスピンの巻き方向を制御することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

室温かつゼロ磁場を含む非常に広い範囲に存在する準安定スキルミオンの発見は、スキルミオンのトポロジ的な頑丈性が高温でも十分発揮されることを証明しており、スキルミオンの基礎研究およびデバイス化を目指した応用研究に大きく貢献する。また、磁気フラストレーションで安定化する新奇スキルミオン相の発見は、多くの磁性体に内在する磁気フラストレーションがスキルミオンの安定性に有利に働くことを実証し、今後のスキルミオン研究において重要である。また、組成変化によりスキルミオンのサイズやスピンの巻き方向を制御できることを示した成果は、スキルミオン発現の微視的機構の理解に大いに役立つ。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to create skyrmions over a wide temperature and magnetic field region, and to explore new skyrmion states in high-temperature chiral magnets Co-Zn-Mn alloys. We found that in Co<sub>9</sub>Zn<sub>9</sub>Mn<sub>2</sub> once-created skyrmions around 390 K under a magnetic field persist over a much wider temperature and magnetic field region, including room temperature and zero magnetic field, as a robust metastable state by performing a field cooling. In Co<sub>7</sub>Zn<sub>7</sub>Mn<sub>6</sub>, a frustration-induced novel equilibrium skyrmion phase was discovered at low temperatures, in addition to a conventional equilibrium skyrmion phase at high temperatures. Furthermore, we demonstrated that the Dzyaloshinskii-Moriya interaction, which governs the size and spin swirling direction of the skyrmions, critically depends on the band filling and is tunable by compositions in Fe-doped Co-Zn-Mn alloys.

研究分野：物性物理学

キーワード：スキルミオン カイラル磁性体 フラストレーション

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

スキルミオンは、固体中の電子スピンによって形成される渦状のトポロジカルな磁気構造体であり、これまでに、MnSi などカイラルな結晶構造を持つ磁性体において観測されてきた。これらのカイラル磁性体では、空間反転対称性の破れを反映した Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用により、スピンの螺旋状に配列したヘリカル磁性が基底状態となり、磁気転移温度  $T_c$  付近の磁場中ではスキルミオンが三角格子を組んだ結晶状態として出現する。スキルミオンは、安定な粒子として振る舞い、低い電流密度で駆動できることから、高性能の磁気メモリーデバイスとしての応用の観点からも注目されている。

2015 年には、 $-Mn$  型と呼ばれるカイラルな結晶構造を持つ Co-Zn-Mn 合金において、室温以上でスキルミオン格子の形成が発見され大きな注目を集めた。しかしながら、一般に、スキルミオン格子が熱平衡状態として安定に存在できるのは  $T_c$  直下の狭い温度・磁場領域のみに限られる。したがって、室温を含む広い温度・磁場領域にスキルミオンを安定化させることが、スキルミオンの応用の実現に必要な不可欠である。

本研究の開始当初、研究代表者は、室温に熱平衡スキルミオン相が存在する  $Co_9Zn_9Mn_4$  において、図 1 に示すように、一度形成されたスキルミオン格子が室温以下のすべての温度領域およびゼロ磁場を含む広い磁場領域に準安定状態として存在できることを発見した(引用文献)。更に、この冷却過程でスキルミオン格子が通常の三角格子から四角格子へ構造転移することも発見した。この結果は、スキルミオンの存在領域を広い温度・磁場領域に拡大できることを実証し、また、スキルミオンが頑丈な粒子であることを再認識させた。

このように、Co-Zn-Mn 合金は、スキルミオンの基礎研究および応用研究に大きく貢献する可能性を秘めている物質である。今後、様々な組成を調べることで、スキルミオン存在領域の更なる拡大化、および、新奇スキルミオン状態の発見が期待できる。

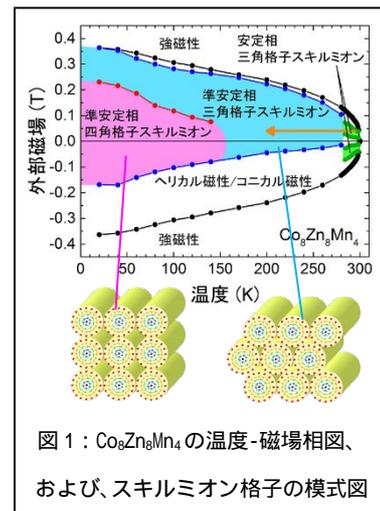


図 1:  $Co_9Zn_9Mn_4$  の温度-磁場相図、および、スキルミオン格子の模式図

### < 引用文献 >

K. Karube, J. S. White, N. Reynolds, J. L. Gavilano, H. Oike, A. Kikkawa, F. Kagawa, Y. Tokunaga, H. M. Rønnow, Y. Tokura, Y. Taguchi, Robust metastable skyrmions and their triangular-square lattice structural transition in a high-temperature chiral magnet, Nature Materials、査読有、15 巻、2016、1237

### 2. 研究の目的

本研究は、Co-Zn-Mn 合金の様々な組成について詳細な測定を行うことで、以下を達成することを目的としている。

- (1) 室温かつゼロ磁場を含む広い温度・磁場領域にスキルミオン状態を作り出す。
- (2) 新奇スキルミオン状態を探索し、これまでに発見している四角格子スキルミオンも含め、その発現機構を解明する。

### 3. 研究の方法

Co-Zn-Mn 合金の様々な組成の純良かつ大型のバルク単結晶試料を作製し、磁化・交流磁化率測定を行った。また、Paul Scherrer Institute(スイス)、および、Institut Laue-Langevin(フランス)の中性子施設を利用して、小角中性子散乱測定を行うことで磁気構造を明らかにした。また、共同研究によるローレンツ透過型電子顕微鏡観察によって、実空間の視点から磁気構造を明らかにした。また、共同研究による第一原理計算により、得られた実験結果を理論的に考察した。

### 4. 研究成果

#### (1) 室温ゼロ磁場スキルミオンの実現

スキルミオンの応用の実現には、室温以上の広い温度領域かつゼロ磁場を含む磁場領域にスキルミオンを安定化させることが必要不可欠である。そこで、これまでの  $Co_9Zn_9Mn_4$  のスキルミオンの準安定化を、より  $T_c$  の高い  $Co_9Zn_9Mn_2$  に適用することで、スキルミオン相の更なる拡大化を試みた。結果は予想に合致し、図 2 に示すように、390 K 付近の熱平衡スキルミオン相を通して磁場中冷却することで、室温かつゼロ磁場を含む広範囲の温度・磁場領域に準安定スキルミオンを作り出すことに成功した。また、この準安定スキルミオンは 360 K 以下では実質的に無限大の寿命を持つことを定量的に明らかにした。この結果は、準安定スキルミオンを一度作ってしまえば、試料を測定装置の外に出して

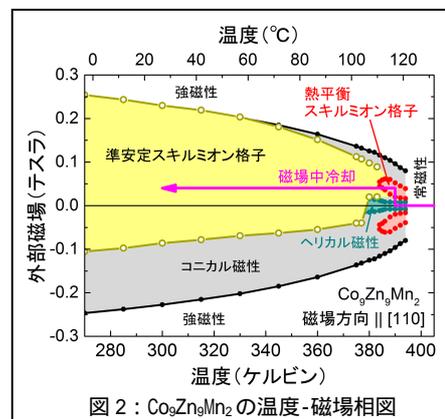


図 2:  $Co_9Zn_9Mn_2$  の温度-磁場相図

も試料内部はスキルミオンが存在したままであることを意味しており、スキルミオンの基礎研究から応用研究まで非常に重要な成果である。また、スキルミオンのトポロジ性・粒子性が室温以上の高温でも十分に保たれることが実証された。(論文、発表、)

### (2) 磁気フラストレーションで安定化する新奇スキルミオン

Co-Zn-Mn合金の磁気状態の組成依存性を明らかにするために、ヘリカル磁性を示す $\text{Co}_{10}\text{Zn}_{10}$ と、磁気フラストレーションによりスピン液体を示す $\text{Mn}_{20}$ を繋ぐ $(\text{Co}_{0.5}\text{Zn}_{0.5})_{20-x}\text{Mn}_x$ の磁気相図を作成した。その結果、磁気フラストレーションの影響を反映したスピングラス相、および、ヘリカル磁性相とスピングラス相の共存領域が存在することが分かった。磁気フラストレーションがスキルミオンにどのような影響を与えるのかを調べるため、ヘリカル磁性とスピングラスの共存領域を示す $\text{Co}_7\text{Zn}_7\text{Mn}_6$ について詳細な測定を行った。その結果、図3に示すように、 $T_c$ 直下の通常スキルミオン格子安定相とは別に、低温のスピングラス転移温度直上で三次元的に乱れた新奇スキルミオン状態が安定相として存在することを発見した。一般的に、スキルミオン格子相は $T_c$ 近傍の熱揺らぎによって安定化されるが、この新奇スキルミオン相は、Mnスピンの局所的なフラストレーションが関与する新しい機構によって安定化されたと考えられる。この結果は、多くの磁性体に内在する磁気フラストレーションがスキルミオンの安定性に有利に働くことを実証し、今後のスキルミオン物質の探索の指針になると期待される。(論文、発表)

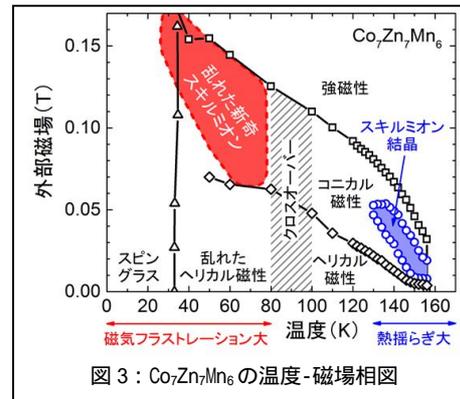


図3:  $\text{Co}_7\text{Zn}_7\text{Mn}_6$ の温度-磁場相図

### (3) 組成変化によるスキルミオンのヘリシティ制御

スキルミオンのサイズとスピンの巻き方向(ヘリシティ)はそれぞれDM相互作用の絶対値と符号で決まるため、DM相互作用を制御することはスキルミオン研究において非常に重要である。しかし、金属中のDM相互作用の微視的機構は完全には解明されていないのが現状である。Co-Zn-Mn合金のDM相互作用を詳しく調べるために、電子数を減らす方向に制御できるFeドープ系 $\text{Co}_{8-x}\text{Fe}_x\text{Zn}_8\text{Mn}_4$ に着目した。純良な試料を作製し、Fe濃度 $x$ に対して系統的な測定を行った結果、図4に示すように、 $x = 2.7$ 付近でDM相互作用の符号が反転することを発見した。この実験結果は、第一原理計算に基づいた理論計算でも再現されており、複雑なバンド構造内の電子フィリングの変化で説明できることが分かった。この結果は、DM相互作用の著しい変化や符号反転は、バンドフィリングを制御できる金属カイラル磁性体に普遍的な現象であることを意味しており、金属中のDM相互作用を理解するのに非常に重要である。また、室温付近のスキルミオンのサイズやヘリシティを制御できることを示したこの結果はスキルミオンの応用研究においても重要である。(論文、発表)

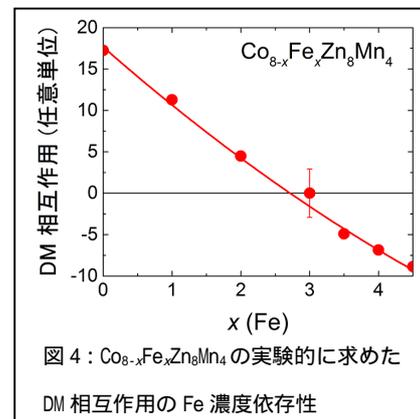


図4:  $\text{Co}_{8-x}\text{Fe}_x\text{Zn}_8\text{Mn}_4$ の実験的に求めたDM相互作用のFe濃度依存性

### (4) $\text{Co}_{10}\text{Zn}_{10}$ のスキルミオン状態

Co-Zn-Mn合金は、CoとMnの二つの磁性元素を含むため、これまでに観測されている様々なスキルミオン状態の起源を解明するには、Mnを含まない組成を調べるのが重要である。そこで、Mnを含まない組成である $\text{Co}_{10}\text{Zn}_{10}$ の詳細な測定を行った。その結果、ヘリカル磁性の螺旋伝播方向がCo-Zn-Mn合金の場合と異なることが分かった。また、 $\text{Co}_{10}\text{Zn}_{10}$ の準安定スキルミオン格子は低温でも三角格子のままであり、 $\text{Co}_8\text{Zn}_8\text{Mn}_4$ で観測された磁気周期の大きな変化や四角格子スキルミオンへの構造転移は起こらないことが分かった。この結果は、四角格子スキルミオンへの構造転移は、Mnスピンのもたらす磁気異方性や磁気周期の変化に起因していることを示唆しており、Co-Zn-Mn合金のスキルミオン状態を理解する上で非常に重要である。(発表)

## 5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計3件)

K. Karube, K. Shibata, J. S. White, T. Koretsune, X. Z. Yu, Y. Tokunaga, H. M. Rønnow, R. Arita, T. Arima, Y. Tokura, Y. Taguchi, Controlling the helicity of magnetic skyrmions in a -Mn-type high-temperature chiral magnet, Physical Review B, 査読有、98巻、2018、155120

DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.155120>

K. Karube, J. S. White, D. Morikawa, C. D. Dewhurst, R. Cubitt, A. Kikkawa, X. Z. Yu, Y. Tokunaga, T. Arima, H. M. Rønnow, Y. Tokura, Y. Taguchi, Disordered skyrmion phase stabilized by magnetic frustration in a chiral magnet, Science Advances, 査読有, 4 巻, 2018, eaar7043  
DOI: 10.1126/sciadv.aar7043

K. Karube, J. S. White, D. Morikawa, M. Bartkowiak, A. Kikkawa, Y. Tokunaga, T. Arima, H. M. Rønnow, Y. Tokura, Y. Taguchi, Skyrmion formation in a bulk chiral magnet at zero magnetic field and above room temperature, Physical Review Materials, 査読有, 1 巻, 2017, 074405  
DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevMaterials.1.074405>

〔学会発表〕(計6件)

軽部皓介, J. S. White, V. Ukleev, 吉川明子, 徳永祐介, H. M. Rønnow, 十倉好紀, 田口康二郎, Co<sub>10</sub>Zn<sub>10</sub> パルク単結晶におけるスキルミオン格子と磁気状態, 日本物理学会第 74 回年次大会, 2019 年 3 月 15 日

軽部皓介, 柴田基洋, J. S. White, 是常隆, 于秀珍, 徳永祐介, H. M. Rønnow, 有田亮太郎, 有馬孝尚, 十倉好紀, 田口康二郎, -Mn 型カイラル磁性体 Co<sub>8-x</sub>Fe<sub>x</sub>Zn<sub>8</sub>Mn<sub>4</sub> における Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の符号反転, 日本物理学会 2018 年秋季大会, 2018 年 9 月 11 日

K. Karube, J. S. White, M. Bartkowiak, D. Morikawa, X. Z. Yu, A. Kikkawa, Y. Tokunaga, T. Arima, H. M. Rønnow, Y. Tokura, Y. Taguchi, Robust magnetic-field-free skyrmions above room temperature in a bulk chiral magnet, SPIE Nanoscience + Engineering, 2018 年 8 月 23 日 (国際会議, 招待講演)

軽部皓介, J. S. White, 森川大輔, C. D. Dewhurst, R. Cubitt, 吉川明子, 于秀珍, 徳永祐介, 有馬孝尚, H. M. Rønnow, 十倉好紀, 田口康二郎, -Mn 型カイラル磁性体で観測されたフラストレーションで安定化される新奇スキルミオン相, 日本物理学会第 73 回年次大会, 2018 年 3 月 25 日

K. Karube, J. S. White, N. Reynolds, J. L. Gavilano, M. Bartkowiak, D. Morikawa, X. Z. Yu, H. Oike, A. Kikkawa, F. Kagawa, Y. Tokunaga, T. Arima, H. M. Rønnow, Y. Tokura, Y. Taguchi, Robust metastable skyrmions in high-temperature chiral magnets, 62<sup>nd</sup> Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, 2017 年 11 月 10 日 (国際会議, 招待講演)

軽部皓介, J. S. White, 森川大輔, M. Bartkowiak, 吉川明子, 徳永祐介, 有馬孝尚, H. M. Rønnow, 十倉好紀, 田口康二郎, Co<sub>9</sub>Zn<sub>9</sub>Mn<sub>2</sub> パルク試料における室温ゼロ磁場を含む準安定スキルミオン, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 21 日

〔その他〕

ホームページ等

軽部皓介, 田口康二郎, 十倉好紀, 三次元的に乱れた新しいスキルミオン相の発見 - 従来のスキルミオン相とは別の安定な存在領域 -, 理研プレスリリース, 2018 年 9 月 15 日報道  
[http://www.riken.jp/pr/press/2018/20180915\\_1/](http://www.riken.jp/pr/press/2018/20180915_1/)

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

### (2)研究協力者

研究協力者氏名: Jonathan S. White, Marek Bartkowiak, Charles D. Dewhurst, Robert Cubitt, Henrik M. Rønnow, 柴田 基洋, 森川 大輔, 吉川 明子, 于 秀珍, 是常 隆, 有田 亮太郎, 徳永 祐介, 有馬 孝尚, 十倉 好紀, 田口 康二郎

ローマ字氏名: Jonathan S. White, Marek Bartkowiak, Charles D. Dewhurst, Robert Cubitt, Henrik M. Rønnow, Kiyou Shibata, Daisuke Morikawa, Akiko Kikkawa, Xiuzhen Yu, Takashi Koretsune, Ryotaro Arita, Yusuke Tokunaga, Taka-hisa Arima, Yoshinori Tokura, Yasujiro Taguchi

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。