

「磁気スキルミオン素子の構築と新規材料探索」

研究期間：2018年9月～2022年3月

研究者：葛西 伸哉

1. 研究のねらい

磁気スキルミオンは強磁性体に発現する極小の磁区構造であり、また駆動に必要な電流密度が極めて小さいことから、新規不揮発性磁気メモリとしての応用が期待されている。当初磁気スキルミオンはバルク材料にて発見されたが、その後薄膜ヘテロ接合でも検出・制御が行われるようになり、世界的な研究潮流となった。特に薄膜ヘテロ接合は、現行スピントロニクス技術で作製可能なものであり、デバイス実証まで極めて短い時間で達成されるものと考えられていた。

しかし実際には、薄膜ヘテロ接合では、(a)スキルミオン駆動に必要な電流密度がバルク材料に比べて極めて高い、(b)そもそもスキルミオンが観察される薄膜ヘテロ接合は極めて限定されている、という二つの問題がある。当該問題を解決するためには、新規なスキルミオン薄膜材料の開拓が必要と同時に、スキルミオンの制御手法についても検討する必要がある。

2. 研究成果

(1) 概要

磁気スキルミオンに基づくデバイス構築のための材料・物性研究を行った。現行スピントロニクス技術とマッチする材料系としては、Pt/Co 接合および CoFeB/MgO 接合の二種類がある。このうち前者については、Ir/Co/Pt 接合を作製、検討を行った。Ir/Co/Pt 接合では熱平衡スキルミオンが実現可能であり、直流電流の印加に対してその直交方向に著しい蓄積を示す。さらにブリッジ型の試料を作製することによって、非平衡状態ではスキルミオンが非局所蓄積・仮想的にトンネルしうることを実験的に示した。非局所蓄積はスキルミオンに化学ポテンシャルを仮定することによって定性的に説明をすることができる。

また、スキルミオンの駆動効率を向上させるため、Ir に代わる材料として、Ru および W の二種類の材料を試した。スピン軌道トルクの観点からは W がもっとも有効であると考えられたが、実際には Ru が最も有効であった。言い換えると、現状スキルミオン材料は、成長手法や界面でのミキシングなどによる乱れに起因したピンングに敏感であり、物理的知見に基づく設計は必ずしも有効ではない。なお、乱れの強い系においては、非線形状態でスキルミオンの増殖が観測される。

W/CoFeB/Ir/MgO 接合では、熱平衡スキルミオン・非平衡スキルミオンの双方が観測された。熱平衡スキルミオン、非平衡スキルミオンともにスキルミオンの移動速度は Co/Pt 系に比べて約 100 倍大きい。これはスキルミオンの駆動方式の違いによるものであると考えられる。さらに、非平衡スキルミオンについては、パルス電流によってスキルミオンを多数生成することに成功した。併せて、従来問題であった保磁力の低さ(1-2 Oe)を大幅に改善(~20 Oe)することができた。また、ゲート電圧によるスキルミオンの制御が可能であることを示した。

現行スピントロニクス材料に加え、新規スキルミオン材料候補の探索も行った。アモルファスフェリ磁性体である GdFeCo の薄膜化を行い、スキルミオンの観測は行ったが、微細加

エプロセスによるダメージが顕著であり、素子化には適さない。また、MnPtSn これまでバルクについての報告はあったが、我々の研究によって結晶性の良い Mn₂PtSn を薄膜成長し、大きなトポロジカルホール効果を観測することに成功した。今後 Mn_{1.5}PtSn へと組成をずらすことができるかどうか重要である。

(2) 詳細

研究テーマ A「Co/Pt ヘテロ接合におけるスキルミオン特性」

X/Co/Pt 接合は磁気スキルミオンが観察される典型的な系である。本研究を開始するにあたり、Ir/Co/Pt からなる三層膜におけるスキルミオンの生成および電流駆動について検討を行った。スキルミオンを安定生成するためには、DMIと有効的な垂直磁気異方性Kの比を大きくする必要がある。界面 DMI の定量評価は困難であるため、強磁性体膜厚を制御することで、K を極小化するのが有効である。K の極小点は厚膜側、薄膜側と二つ存在するが、今回は多くの文献でスキルミオンが報告されている薄膜側について検討を行った。結果、Co膜厚 $t=0.7$ nm 付近にて、熱平衡スキルミオンの観測に成功した。なお、スキルミオンの生成範囲は極めて狭く、熱平衡スキルミオンを観測する膜厚範囲は 0.1 nm 以下である。

当該素子に直流電流を流すと、スキルミオンは電流方向に動きつつ、電流直交方向に蓄積する様子が観察される。これは一般的なスキルミオンホール効果によるものであると考えられる。当該素子について以下のような三つの研究を行った。

① スキルミオンの非局所蓄積

スキルミオンホール効果を間接的に調べようと、図 1 に示すような三本の細線をブリッジした試料を作製した。当該試料の中心細線に電流を流すと、当然ながら細線直交方向にスキルミオンの蓄積が観測されるが、同時に電流の流れていない上部細線でもスキルミオンの蓄積が観測される。他方、下部細線では、スキルミオン数の減少が見られる。上下の細線におけるスキルミオンの総数は一定であることを考えると、スキルミオンに対して、化学ポテンシャルを仮定することができる。

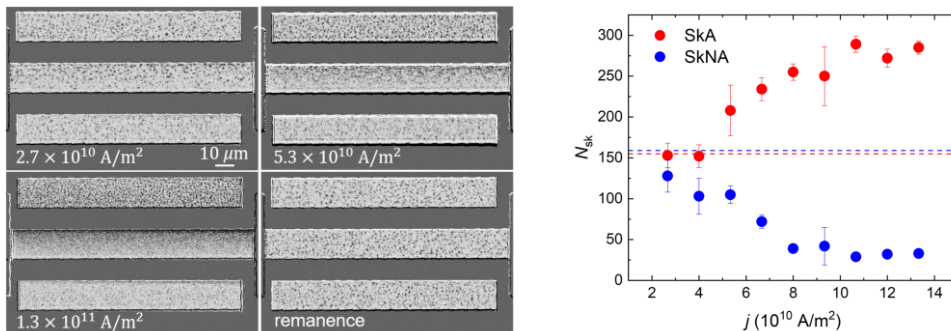


Fig.1 電流による非局所スキルミオン蓄積。左図：各電流密度に対するスキルミオンの MOKE 観察像。右図：スキルミオン数の電流密度依存性。

② スキルミオンの非線形増殖

前項よりも電流密度を上げると、スキルミオンの駆動速度が上がるだけでなく、スキルミオンの数も非線形に増大する。この増殖は電流印加中、つまりスキルミオンの運動中にのみ観測されるものであり、電流を切ると元のスキルミオン密度へと戻る。理論的には磁気的不均一性の存在により、運動中にスキルミオンの増殖が起こることが報告されており、本実験はそれを観測したものと考えられる。

③ 高効率スキルミオン駆動のための材料検討

キャップ層 X として、下地層であるPtとは異なるスピンホール効果の符号を持つ材料を用いれば、より高効率なスキルミオン駆動が実現できるものと予測して検討を行った。図 2 に、X=Ir、Ru、W の三種について、スキルミオン速度の電流密度依存性を示す。スピン軌道トルクの観点からは W がもっとも有効であると考えられたが、実際には Ru が最も有効であった。言い換えると、現状スキルミオン材料は、成長手法や界面でのミキシングなどによる乱れに起因したピンギングに敏感であり、物理的知見に基づく設計は必ずしも有効ではない。なお、乱れの少ないと考えられるRu キャップ層の試料では、前述の大電流下におけるスキルミオン増殖は観測されず、スキルミオンの非線形増殖の起源が磁気的な不均一性であるというモデルと矛盾しない。

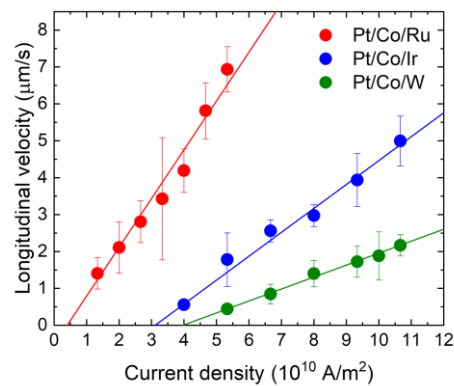


Fig.2 スキルミオン駆動速度の電流密度依存性

④ スピン配列の同定

バルク材料の場合は Bloch 型のスキルミオンが、薄膜ヘテロ接合の場合、DMI が界面近傍に限定されるため、Neel 型のスキルミオンが実現されるといわれている。バルク材料の場合には、Lorentz 顕微鏡が使用可能のため、高精度でスピン構造の同定ができる一方で、薄膜ヘテロ接合、特に電流駆動可能な超薄膜においては、スピン構造の同定が困難である。Kerr 顕微鏡によるイメージングの際、複数のモード(polar, longitudinal, transverse)を組みわせることで、我々の積層膜では、Neel 型が支配的であることを示した。なお、本実験に先立ち、スピンゼーベック効果によるスキルミオン同定を試みたが、異常ネルンスト効果の分離が困難であった。

⑤ 表面弾性波によるスキルミオン形成

理研との共同研究として、表面弾性波による駆動を試みた[T. Yokouchi et al., Nature Nanotechnol. 15, 361 (2020)]. LiNbO₃ 基板上に成膜した Ir/Co/Pt 積層膜に対して、表面弾性波を励起すると、スキルミオンの生成が観測された。生成するスキルミオンの数密度は、表面弾性波の波長と相関がある。数値シミュレーションとの比較により、核生成ではスキルミオン・アンチスキルミオン対が生成するが、アンチスキルミオンが不安定のため消失し、スキルミオンのみが残るというモデルで、当該現象は説明できる。他方、当初目的としていた表面弾性波によるスキルミオン駆動は観察できなかったが、これは系のピンギングが強すぎるためと推測される。逆に、これを利用することで、一部ニューロモロフィック演算機能を実現している。

研究テーマB「CoFeB/MgO ヘテロ接合におけるスキルミオン特性」

スキルミオンを実現しうるスピントロニクス材料としては、CoFeB/MgO 接合も候補として挙げられる。CoFeB/MgO 接合の場合には、磁化の方向検出が可能な磁気トンネル接合と一体成長することができるというメリットもあり、Co/Pt 系材料よりもデバイス実証には向いている。

しかし、我々のグループでは当初、スキルミオンの電流駆動ができなかったこともあり、むしろゲート電圧によるスキルミオンの制御に着手した。障壁層MgOを介してCoFeB界面に電圧をかけることにより、磁気異方性を変調することができるため、これを利用してスキルミオンの電圧制御をしようという試みである。その後、CoFeB/MgO 接合においても、スキルミオンの電流駆動が可能となり、最密充填、集団運動の検出を目指して研究を行った。

① 電圧による異方性変調を利用したスキルミオンメモリ機能の実証

Fe/MgO に代表される強磁性金属/酸化物絶縁体界面では、Fe-O 結合によって垂直磁気異方性が発現する。ここにゲート電圧をかけることで、垂直磁気異方性を制御できる。これを指導原理として、電圧によるスキルミオン生成と消去が可能なメモリ構造の実現を行った。作製したヘテロ接合は Ta/W/CoFeB/MgO/CoFeB/Ta/W からなる磁気トンネル接合で、上部が磁化固定層、下部がスキルミオン層となる。微細加工を行うことで、直径 1 μm –4 μm のピラー状の素子に加工した。ゲート電圧を印加しつつ、磁気抵抗曲線を測定すると、ヒステリシスの磁化反転近傍でステップ状の抵抗変化が見られる。この抵抗変化がスキルミオンの生成に相当する。試料サイズの小さな素子では常に一個のスキルミオンが観測されるが、大きな素子では、最大 3 個のスキルミオンに相当する信号が観測される。当該素子にパルス電圧を入力することによって、スキルミオンの生成および消去が可能である。単一パルスの場合、生成確率は最大で96%に達する。他方、サイズの大きな素子においては、外部磁場によって、スキルミオンの生成数を制御できる。磁場ヒステリシスで観測される 1 つ、3 つの状態に加え、準安定な 2 つの状態の実現も可能である[S. Kasai et al., APEX 12, 083001 (2019)]。

② 電流によるスキルミオン操作

スキルミオン電流駆動のため、MgO/Ir/CoFeB/W からなるヘテロ接合の試作を行った。このヘテロ接合はIrの成膜条件に極めて敏感であり、Irを高パワーで成膜した場合には熱平衡スキルミオン、低パワーで成膜した場合には非平衡スキルミオンが得られる。双方に共通しているのは、スキルミオンの駆動速度が Co/Pt 系に比べておよそ 100 倍の数値を示す。他方、スキルミオンの蓄積についてはほとんど観察されない。これは、スキルミオンの駆動方式の違いによるものと考えられる。つまり、Co/Pt 接合ではPtからのスピントルク効果が主であり、CoFeB では、CoFeB 内を流れる電流によるスピントルクが主因となる。非平衡スキルミオンの生成には、一般に電流狭窄が必要であると考えられているが、本試料では、狭窄なしでストライプからスキルミオンを生成することに成功している。パルス電流を繰り返し入力することで、スキルミオンの充填が可能である。なお、従来研究との最大の違いは、スキルミオン制御可能な磁場範囲であり、従来 1–2 Oe 程度であったものを最大 20 Oe まで拡大することに成功している。

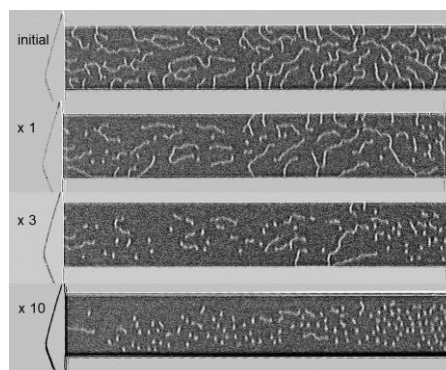


Fig.3 パルス電流によるスキルミオンの生成

③ その他関連研究

上記 MgO/Ir/CoFeB/W 接合について、強磁性体膜厚の薄い極限においてもスキルミオンの検出を試みた。電流の印加によって迷図からの磁区構造変化は観測されるが、スキルミオンではなく電流方向に平行なストライプ磁区となった。当該現象は、スピントランスファートルクによる磁壁の駆動、ピンングサイトの導入によって直感的な説明が可能であるが、シミュレーションでは初期の迷図磁区が再現できないことから、現象の再現には至っていない。

その他、スキルミオンデバイス化のために、(下地層が極めて薄い)超薄膜磁気トンネル接合について検討を行った。一連の研究によって、スピントルクによる準安定状態の検出、マルチモード出力可能なスピントルクオシレーター構築(実験的には外因性だが、シミュレーションでは内因性の可能性を示唆)[S. Iwakiri et al., APL 117, 022406 (2020), 114, 092407 (2019), S. Sugimoto et al., AIP Adv. 10, 075115 (2020)], さらに非線形トンネル過程 [S. Iwakiri

et al., PRB 103, 245427 (2021)]について研究を行った。

研究テーマC「新規スキルミオン材料探索」

高い熱安定性を有し、低い電流密度で駆動可能な新規スキルミオン材料の探索を行った。最初に着手したのは、フェリ磁性体GdFeCoである。フェリ磁性体の場合、静磁エネルギーが小さいため、相対的に界面DMIの増大が期待できる。実際に、超薄膜GdFeCoの成長、熱平衡スキルミオンの観察に成功したが、微細加工プロセスに適合しないため、研究を断念した。

次に注目をしたのはMnPtSn合金である。特にPdをドーピングしたMn_{1.5}PtSnでは、バルク材料ではあるが、室温におけるアンチスキルミオンの形成が報告されている。これを薄膜化できればデバイス化へ向けて大きなインパクトになると考えた。実際には、薄膜成長で得られたのはMn₂PtSnであり、アンチスキルミオンの形成に必要なMn_{1.5}PtSnの成長には現段階で成功していない。当初、平坦性と表面からのSn脱離が問題であったが、これらを解決したMn₂PtSnでは巨大なトポロジカルホール効果を示すことが確認された[S. Sugimoto et al., APEX 14, 103003 (2021)]。その他、Co₂(Fe, Mn)Si(CMS)等、高スピン偏極材料についても、薄膜化・スキルミオン検出を試みたが、スキルミオン生成に必要なレベルまでの薄膜化はできていない。ただ、超薄膜CMSが成長できるようになったことで、高効率スピン変換、大強度THz波生成について示すことができた[Y. Sasaki et al., AIP Adv. 10, 085311 (2020), APEX 13, 093003 (2020)]。

3. 今後の展開

当初磁気スキルミオンは、レーストラックメモリ等、スピントロニクス分野におけるメモリ応用が期待されていたが、熱安定性、微細化という二つの観点からは、どうしても新規材料の適用が必要となる。本研究期間では新規「スキルミオン材料の」達成することはできなかったが、これまで困難であったCo基以外のホイスラー合金薄膜の成長を示したことには一定の価値がある。ホイスラー合金自体がトポロジカル材料としてのポテンシャルを有していることもあり、今後更なる研究が進む可能性がある。

一方で、現行スピントロニクス材料については、超薄膜領域の物性の理解を進めたい。当該領域は長年磁性分野ではよくわからない領域として避けられていたが、磁化の減少、異方性の減少に対してDMIがどのようにふるまうかについては興味がある。実際、他の多くのスキルミオン研究において、“駆動可能な”スキルミオンが観察されているのはまさにこの領域であり、既存のモデルでは説明しきれない状況が実現されている可能性がある。デッドレイヤーの理解は現行MRAMにおいて重要な課題である、超薄膜ヘテロ接合における界面誘導磁気異方性の改善についても貢献するものである。

4. 自己評価

研究目的の達成状況、研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)

当初研究目的として、「無磁場下でのスキルミオンメモリ機能の実証」を目指していたが、成膜条件の変化などもあり、有限磁場下での動作に留まっている。また、多くの材料系を試したが、スキルミオンに適した材料(=界面DMIの大きな材料)を見つけることができず、現時点でも必ずしも制御性は良くはない。このように、研究目的に直結する部分では達成状況には満

足していない。他方、研究の進め方という点では、成膜・評価他多くの部分を自動化することで高効率化し、さらに現在は機械学習を導入しようとしている段階である。これが確立すれば、目的材料を AI が自動的に探索するという、新たな研究潮流が生まれる。また、一部まとめきれなかった成果については、少し整理したのち論文化を行う予定である。

研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果

本研究課題で得られた知見は必ずしも実用に直結するものではないが、今後のスピントロニクスデバイス応用においては一定の価値があると考ええる。現スピントロニクスの最大の応用先は MRAM であるが、磁気スキルミオンはニューロモロフィックコンピューティング、ブラウンアンコンピューティングなど、現行応用とは異なる新規応用の創出に貢献することが期待できる。他方で、3. 今後の展開でも述べたように、超薄膜ヘテロ接合におけるデッドレイヤーの理解が進めば、スキルミオン応用に限定されず、あらゆるスピントロニクスデバイスの発展に貢献するものと考ええる。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 12件

1. Shinya Kasai, Satoshi Sugimoto, Yoshinobu Nakatani, Ryo Ishikawa, Yukiko K. Takahashi. Voltage-controlled magnetic skyrmions in magnetic tunnel junctions. Applied Physics Express. 12, 083001-1-4 (2019)
磁気トンネル接合を組み合わせたスキルミオン素子を構築した。絶縁体障壁を介したゲート電圧によって、磁気異方性を制御し、これを用いることでスキルミオン状態を実現した。抵抗変換から評価されるスキルミオンの直径はおよそ 200nm である。スキルミオンの生成・消去はナノ秒パルス電圧で可能であり、メモリ機能の一部を実証したことになる。
2. Satoshi Sugimoto, Wataru Koshibae, Shinya Kasai, Naoki Ogawa, Yukiko Takahashi, Naoto Nagaosa, Yoshinori Tokura. Nonlocal accumulation, chemical potential, and Hall effect of skyrmions in Pt/Co/Ir heterostructure. Scientific Reports 10, 1-10 (2020)
Ir/Co/Pt からなる超薄膜ヘテロ接合におけるスキルミオンの非局所蓄積について報告した。当該素子では熱平衡スキルミオンが実現されるが、電流の印加に対して、その直交方向に強いスキルミオン蓄積を生じる。特にブリッジ上の試料を作製することで、スキルミオンの非局所蓄積・反蓄積を観察した。一連の現象はスキルミオンに化学ポテンシャルという概念を仮定することで説明することができる。
3. Satoshi Sugimoto, Yukiko Takahashi, Shinya Kasai. Transition of topological Hall effect for tetragonal Heusler Mn_2PtSn thin film. Applied Physics Express 14, 103003-1-6 (2021)
Mn_2PtSn 薄膜の成長と輸送特性評価を行った。異常ホール効果に重畳するトポロジカルホール効果はバルク値と同程度である。THE はヒステリシスに応じて二種類に分類することができ、一方が近接スピンのねじれに起因した non-coplanar な成分、もう一方がアンチスキルミオンの形成によるものと考えられる。これら寄与はスピン再配列温度の前後で符号を反転するなど、特徴的な振る舞いを示す。

(2) 特許出願

研究期間全出願件数: 0 件(特許公開前のものも含む)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. **KASAI, Shinya.** Electric operation of magnetic skyrmions. The Future of Topological Materials. 2019
2. **KASAI, Shinya.** Electric operation of magnetic Skymions. 3rd KU – VUW Workshop 2019. 2019
3. **葛西 伸哉.** 電流による非平衡スキルミオンダイナミクス. 第 43 回日本磁気学会学術講演会. 2019
4. **葛西 伸哉.** 磁気スキルミオンの電流・電圧制御. 第 89 回ナノマグネティックス専門研究会. 2019