

# 研究終了報告書

## 「磁気メモリの革新に向けたスキルミオン物質の開発と機能開拓」

研究期間:2020年12月～2024年3月

研究者:高木 里奈

### 1. 研究のねらい

情報技術を高度に活用した社会の実現は、持続的な経済発展と社会問題の解決を両立する可能性を秘めている。情報社会を支える基盤技術の発展には、メモリ素子の大容量化・高速化・低消費電力化といった性能向上が最重要課題の一つである。「スキルミオン」と呼ばれる粒子性を伴う電子スピンの渦構造は、次世代磁気メモリを実現するための新しい情報担体の候補として注目を集めている。スキルミオンは元々、空間反転対称性の破れた構造を有するバルク結晶や積層薄膜において研究が進められてきたが、スキルミオンを生成する物質は数が非常に限られており、応用を指向した物質開発が課題となっている。特に、メモリの超高密度化に向けてスキルミオンの更なる小型化が求められている。また現状、積層薄膜ではバルク結晶と比べてスキルミオンの駆動に必要な電流密度が高いという問題もある。こうした課題の解決に向けて、本研究では、従来の空間反転対称性の破れではなく、磁性金属中の伝導電子に起因する新しい機構を用いることで微小なスキルミオンを生成する新物質を開発し、その機能開拓を行うことを目的とした。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

スキルミオンを生じる物質の設計自由度を高めるとともに、スキルミオンの小型化も実現可能なアプローチとして、磁性金属中で働く磁気相互作用に基づく新しいスキルミオン生成機構に着目して新物質探索を行った。研究期間の前半では、希土類元素を含む金属間化合物のバルク単結晶におけるスキルミオン生成に取り組んだ。その結果、直径数 nm の微小なスキルミオンを示す新物質を複数、発見することに成功した。これらの物質では、微小なスキルミオンが作る巨大な仮想磁場によって生じる大きなホール効果が観測され、従来の系と比べてスキルミオンの電氣的検出においても優位性を持つと期待される。また、磁気構造の詳細な温度・磁場依存性を調べ、理論計算と比較することで、スキルミオンの安定性や配列構造が伝導電子系のフラストレーション効果や磁気異方性によって大きく変化することを明らかにした。これらの発見をもとに研究期間の後半では、より応用を指向したスキルミオン物質探索を行い、無磁場でスキルミオン生成を示唆する結果を得ることができた。また実際のデバイス実証に向けては、スキルミオン物質の薄膜化が必須であることから、微小なスキルミオンを伴う Gd 系化合物の薄膜作製にも取り組んだ。薄膜試料におけるスキルミオン生成には至らなかったが、三元系化合物の組成比制御に成功し、今後の多元系化合物の薄膜作製の基盤を確立することができた。

さらにメモリ以外の機能性開拓として、①スキルミオンが多数凝集した際に自発的に形成する周期構造(スキルミオン結晶)を利用したマグノン(スピンの集団励起)制御、②微小なスキルミオンに由来するネルンスト効果(熱流と直交する方向に起電力を生じる現象)の観測にも取り組んだ。①では、磁気共鳴によって励起したスキルミオンのダイナミクスを詳細に測定・解析す

ることで、スキルミオン結晶相においてマグノンモード混成を観測することに成功し、スキルミオン結晶を利用したマグノン制御が可能であることを明らかにした。また②では、微小サイズのスキルミオンに由来するネルンスト効果(熱流と直交する方向に起電力を生じる現象)の観測を行い、スキルミオンを生じる温度・磁場下において巨大なネルンスト効果を示唆する信号が観測され、熱電機能の開拓に繋がる結果を得ることができた。

この他、関連する成果として、スキルミオンとは異なるものの、非共面的なスピン構造を有する物質を発見し、その特殊なスピン構造に由来する巨大なホール効果の観測にも成功した。

## (2) 詳細

### 研究テーマ A「微小なスキルミオンを伴う新物質の探索」

スキルミオンを生じる物質の設計自由度を高めるとともに、スキルミオンの小型化も実現可能なアプローチとして、磁性金属中で働く磁気相互作用に基づく新しいスキルミオン生成機構に着目した。この新しい機構では、伝導電子を介した局在スピン間の相互作用(RKKY相互作用)とその高次の相互作用が重要となるため、伝導電子と局在スピンの強く相互作用するような磁性金属物質として、希土類元素を含む金属間化合物を中心に新物質探索を行った。特に、スキルミオンのような非共面的なスピン構造の形成には  $Gd^{3+}$  や  $Eu^{2+}$  の等方的なスピンが有利であると考え、研究期間の前半では、 $Gd^{3+}$  または  $Eu^{2+}$  を含む金属間化合物のバルク単結晶においてスキルミオンの生成に取り組んだ。その結果、 $GdRu_2Ge_2$  と  $EuAl_4$  において、それぞれ直径 2.7nm、3.5nm のスキルミオンを観測することに成功した。これらの物質では、ナノサイズのスキルミオンが作る巨大な仮想磁場に由来する大きなホール効果(トポロジカルホール効果)を観測しており、スキルミオンの電氣的検出において優位性を持つことが期待される。また、共鳴 X 線散乱や中性子散乱によって磁気構造の詳細な温度・磁場依存性を調べ、理論モデルに基づく磁気構造シミュレーションと比較した。その結果、伝導電子系におけるフラストレーション効果や磁気異方性によってスキルミオンの安定性や凝集状態における配列構造が大きく変化することを明らかにした。

上記の発見をもとに研究期間の後半では、より応用を指向したスキルミオン物質として無磁場や室温でスキルミオンを生成する物質探索を行った。その結果、無磁場で微小なスキルミオンが生成されていることを示唆する結果を得ることができた。スキルミオンの直接観測は今後の課題であるが、従来、スキルミオンは磁場下において安定に存在できると考えられていたため、無磁場でのスキルミオン生成が実証されれば大きな波及効果が期待される。一方、これまで発見してきた物質では低温でのみスキルミオンが生成されていたことから、磁性イオンの密度を高めることでより高温でのスキルミオン生成を試みた。その結果、 $Gd_7Pt_3$  において室温付近でスキルミオンの観測に成功したが、スキルミオンの直径は 100nm 程度と大きく、従来の機構によるスキルミオン生成が示唆される。以上のようなこれまでの研究期間全体を通して得られた物質開発指針を今後、さらに拡張していくことで、実際に磁気メモリとして応用可能なスキルミオン物質の発見に繋がると考えている。

また関連する成果として、上記の物質探索を行う過程で、層間化合物  $\text{Co}_{1/3}\text{NbS}_2$  および  $\text{Co}_{1/3}\text{TaS}_2$  において巨大なホール効果を観測した。この起源解明のため磁気構造解析を行った結果、この物質ではスキルミオンとは異なるものの、立体的な非共面スピン構造が実現しており、その特殊なスピン構造に由来して巨大なトポロジカルホール効果が生じていることを明らかにした。

#### 研究テーマ B「ナノサイズのスキルミオンを生じる単一組成物質の薄膜作製」

スキルミオンのデバイス実証に向けては、スキルミオン物質を薄膜化し、その機能開拓を行うことが必須である。従来、薄膜試料におけるスキルミオンの生成には、主にヘテロ接合界面における空間反転対称性の破れを利用している。しかしこうした積層薄膜系で生成されるスキルミオンの典型的なサイズは数百 nm～数  $\mu\text{m}$  と大きい。また、スキルミオン駆動に必要な電流密度もバルク結晶と比べて非常に大きく、界面の乱れによってスキルミオンの運動がピン止めされやすくなっている可能性が考えられる。こうした課題の解決に向け、研究テーマ A で開拓したような単一組成物質でナノサイズのスキルミオンを生じる物質の薄膜化にも取り組んだ。超高真空スパッタリング装置を新たに立ち上げ、直径数 nm 程度のスキルミオンを生じる  $\text{GdRu}_2\text{Si}_2$  や  $\text{GdRu}_2\text{Ge}_2$  を対象物質としてエピタキシャル薄膜成長を試みた。構成元素の組成比制御には成功したが、スキルミオンの生成には至っておらず、結晶性の良い薄膜作製が今後の課題である。

#### 研究テーマ C「スキルミオンに由来する機能性の開拓」

スキルミオンは磁気メモリだけでなく、様々な機能性材料としての応用が期待されており、例えば、マグノン情報担体とする電子技術(マグノニクス)や熱電変換技術があげられる。前者では、マグノン制御法の確立が急務となっており、主に人工的に作製した磁気的な周期構造が利用されている。一方、本研究で着目しているスキルミオンは、多数凝集した際に「スキルミオン結晶」と呼ばれる周期構造を自発的に形成するため、このスキルミオン結晶状態を利用したマグノン制御を試みた。磁気共鳴によってスキルミオンのダイナミクスを励起し、その特性を詳細に測定・解析することで、スキルミオン結晶相においてマグノンモード混成を観測することに成功し、スキルミオン結晶を利用したマグノン制御が可能であることを明らかにした。

またスキルミオンが作る大きな仮想磁場は、ホール効果以外にも様々な電磁応答現象を巨大化することが予測されており、その一つにネルンスト効果があげられる。熱電変換技術としてよく知られているゼーベック効果では熱流と同じ方向に起電力が生じるのに対し、ネルンスト効果では熱流と直交する方向に起電力が生じることからデバイス化における優位性が期待されている。微小なスキルミオンを生成する Gd 系化合物においてネルンスト効果の測定を行ったところ、スキルミオンを生じる温度・磁場下において巨大なネルンスト効果を示唆する横起電力の観測に成功した。今後、研究テーマ A で発見した様々なスキルミオン物質に対しても測定を行い、熱電性能の最大化に向けた物質開発指針を確立することで、スキルミオンを用いた熱電技術の実現に繋がることが期待される。

### 3. 今後の展開

本研究により、微小なスキルミオン生成のための物質設計指針が明らかになってきており、詳細な物性理解も進めることができた。一方で、本研究成果を社会実装に繋げるためには、スキルミオン物質薄膜の開発が必須である。今後は、磁気メモリの実現に向けて物質の最適化を進めるとともに薄膜デバイスを創製してメモリ機能の実証へと研究を展開していきたい。また本研究でも取り組んだようにスキルミオンはマグノニクスや熱電材料など、磁気メモリ以外にも様々な技術へ活用できる可能性があり、スキルミオン薄膜が実現できれば大きな波及効果が期待される。

### 4. 自己評価

微小なスキルミオンを伴う物質開発や機能性の解明といった当初からの計画に関しては、実験装置の拡充により概ね順調に研究を進めることができた。現在進行中の研究も含めて、複数の重要な成果をあげることができ、当該研究分野における新たな方向性の開拓に貢献できたと考えている。さらに、同さきがけ研究領域内での議論や共同研究を通じて、スキルミオン物質の薄膜作製・デバイス化という新たな方向性へ研究を展開することができた。薄膜試料における微小なスキルミオン生成・制御には至らなかったが、さきがけ研究期間中に成膜装置の立ち上げ、成膜・評価技術の習得、精密測定環境の整備、共同研究ネットワークの構築、といった今後の研究を加速する準備は整えられたと考えている。

### 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: 8件

1. “Spontaneous topological Hall effect induced by non-coplanar antiferromagnetic order in intercalated van der Waals materials”, H. Takagi, R. Takagi, S. Minami, T. Nomoto, K. Ohishi, M.-T. Suzuki, Y. Yanagi, M. Hirayama, N. D. Khanh, K. Karube, H. Saito, D. Hashizume, R. Kiyonagi, Y. Tokura, R. Arita, T. Nakajima, S. Seki, *Nature Physics* **19**, 961-968 (2023).

層間化合物  $\text{Co}_{1/3}\text{NbS}_2$  および  $\text{Co}_{1/3}\text{TaS}_2$  で観測される巨大なホール効果の起源解明に向け、中性子散乱実験による詳細な磁気構造解析を行った結果、四面体状の非共面的なスピン配列が実現していることを見出した。この結果から、これらの物質で生じる巨大なホール効果は、非共面的なスピン配列に由来するトポロジカルホール効果であることが実証された。

2. “Square and rhombic lattices of magnetic skyrmions in a centrosymmetric binary compound”, R. Takagi, N. Matsuyama, V. Ukleev, L. Yu, J. S. White, S. Francoual, J. R. L. Mardegan, S. Hayami, H. Saito, K. Kaneko, K. Ohishi, Y. Ōnuki, T. Arima, Y. Tokura, T. Nakajima, S. Seki, *Nature Communications* **13**, 1472 (2022).

単純な結晶構造を持つ  $\text{EuAl}_4$  という物質に着目し、中性子・X線散乱実験を行った結果、直径 3.5nm の超高密度な磁気スキルミオンの生成を発見した。さらに、磁場や温度によって磁気スキルミオンの並び方が正方格子から菱形格子へと変化することを見出し、その起源が物質中を動き回る電子が媒介する相互作用に由来していることを明らかにした。本研究は超高密度

な磁気スキルミオンの設計や外場制御に新たな指針を与えており、今後の物質探索や機能開拓の礎となることが期待される。

3. “Hybridized magnon modes in the quenched skyrmion crystal”, R. Takagi, M. Garst, J. Sahliger, C. H. Back, Y. Tokura, S. Seki, *Physical Review B* **104**, 144410 (2021).

磁気スキルミオンが凝集した際に自発的に形成する「スキルミオン結晶」を伴うキラル磁性絶縁体において、磁気共鳴スペクトルのギャップ構造を観測し、磁気異方性によって誘起された磁気共鳴に不活性なモード(スキルミオンの六極子モード・八極子モード)との混成が起源であることを明らかにした。これらの結果から、スキルミオン結晶を活用することで外場制御可能な新たなマグノン制御法の開拓に繋がることが期待される。

## (2)特許出願

研究期間全出願件数: 0 件(特許公開前のものは件数にのみ含む)

## (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)

### ・招待講演

1. R. Takagi, “Square and rhombic lattice of magnetic skyrmions in a centrosymmetric itinerant magnet”, Asia-Pacific Conference on Condensed Matter Physics 2021(AC2MP2021), 2021/12/3
2. R. Takagi, “Formation and structural transition of magnetic skyrmion lattices in a centrosymmetric metallic magnet”, 2023 MRS Fall Meeting, 2023/12/7

### ・受賞

2023 年 第 4 回日本物理学会米沢富美子記念賞

### ・プレスリリース

1. 「反強磁性体におけるトポロジカルホール効果の実証に成功—磁気情報の新しい読み出し手法としての活用に期待」(2023 年 4 月 21 日)
2. 「超高密度な磁気渦を示すシンプルな二元合金物質を発見—次世代磁気メモリへの応用に期待」(2022 年 3 月 30 日)