

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K15164

研究課題名(和文)トポロジカルな磁気構造を持つ室温磁性体の物性解明と新物質探索

研究課題名(英文)Development of room-temperature magnetic materials with topological spin textures

研究代表者

軽部 皓介 (Kosuke, Karube)

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・研究員

研究者番号：00755431

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、室温トポロジカル磁性体の物質開拓、物性解明を行った。まず、Co-Zn-Mn合金における頑強な準安定スキルミオン状態やスキルミオン格子の構造変化には、磁気異方性と、Mnスピンのフラストレート反強磁性相関がCoスピンに与える磁気的な乱れが重要であることを明らかにした。また、S4対称性を持つ新規室温アンチスキルミオン物質(Fe,Ni,Pd)3Pを発見し、アンチスキルミオンの安定性には容易軸型の磁気異方性と反磁場エネルギーの競合が重要であることを明らかにした。また、バルク単結晶においてノコギリ型およびフラクタルな構造を持つ磁区構造が発現することを発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究のCo-Zn-Mn合金の系統的な研究により、Mnのフラストレート磁性がスキルミオンを担うCoスピンに及ぼす磁気的な乱れがスキルミオンの準安定性や格子変形に重要であることが明らかとなり、Co-Zn-Mn系の複雑なスキルミオン状態の全貌が明かされた。また、本研究におけるS4対称性の室温アンチスキルミオン物質(Fe,Ni,Pd)3Pの発見は、これまでのD2d対称性のホイスラー合金のみにとどまっていたアンチスキルミオン研究のブレイクスルーとなり、アンチスキルミオンの複雑な安定化機構の解明にも繋がった。以上の成果は、室温(アンチ)スキルミオンを用いた磁気デバイスの実現に大きく貢献すると期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have investigated physical properties of room-temperature topological magnets and explored new materials. First, we found that the metastable skyrmion lattices of Co-Zn-Mn alloys are governed by magnetic anisotropy and magnetic disorder due to the frustrated Mn spins. Second, we discovered a new antiskyrmion-host magnet (Fe,Ni,Pd)3P with S4 symmetry, and revealed that the delicate balance between easy-axis magnetic anisotropy energy and demagnetization energy is essential for the stability of antiskyrmions. Furthermore, we found novel sawtooth and fractal magnetic domain structures near the surface of bulk single crystals of (Fe,Ni,Pd)3P.

研究分野：トポロジカル磁性

キーワード：スキルミオン アンチスキルミオン カイラル磁性体 フラストレート磁性体 S4対称性 新物質開拓

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 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、数 nm ~ 数 100 nm の渦状の磁気構造体である。スキルミオンは安定な粒子として振る舞い、非常に小さい電流密度で駆動できることから高性能の磁気メモリとして、スピントロニクスへの応用の観点から大きく注目されている。また、スキルミオンは、その非共面的なスピン構造により、伝導電子が創発磁場と呼ばれる巨大な仮想磁場を感じるため、トポロジカルホール効果など新奇な創発輸送現象を示すことが知られており、基礎科学としても精力的に研究されている。

スキルミオンは、2009年にカイラルな結晶構造を持つ磁性体である MnSi で初めて発見され、その後、関連する化合物で精力的に研究されてきた。これらのカイラル磁性体では、空間反転対称性の破れとスピン軌道相互作用を起源とする Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用により、強磁性的に揃ったスピンの徐々な捻じれ、長周期らせん磁気構造が実現しており、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。当初はスキルミオンの出現は低温領域に限られていたが、2015年に、 $\beta$ -Mn 型のカイラルな結晶構造を持つ Co-Zn-Mn 合金において、室温以上でらせん磁性およびスキルミオンが発現することが発見された。さらに、スキルミオンの頑丈な準安定状態や四角格子など興味深い現象も発見されている。

しかしながら、Co-Zn-Mn 合金は、Co と Mn の 2 つの磁性元素から構成されており、それぞれの物理的役割やスキルミオン状態の全体像の理解には至っていない。また、室温スキルミオン由来の創発磁場の検証や巨大化も重要な課題である。

また、スキルミオンと逆符号のトポロジカル数を持つ反渦型の「アンチスキルミオン」が新しいトポロジカル磁気構造として近年大きな注目を集めている。しかし、これまでに知られているアンチスキルミオン物質は、2017年に報告されたホイスラー合金  $Mn_{1.4}PtSn$  のみであり、アンチスキルミオンのトポロジカル物性の理解は遅れていた。そのため、アンチスキルミオンを室温で示す新物質の開発が求められている。

### 2. 研究の目的

本研究では、(1)Co-Zn-Mn 合金のスキルミオン状態の全体像を理解し、Co と Mn スピンの役割を明らかにする。また、(2)Co-Zn-Mn 合金の室温スキルミオン由来の創発輸送現象の観測を目指す。さらに、(3)アンチスキルミオンを室温で示す新物質を開拓し、アンチスキルミオンの安定化機構を明らかにする。

### 3. 研究の方法

(1)Mn を含まない  $Co_{10}Zn_{10}$  の単結晶試料を用いて、磁化率、小角中性子散乱測定を行い、スキルミオン格子の安定相、準安定相、異方性を調べる。これらの結果を、これまでに調べた Mn を含む組成 ( $Co_9Zn_9Mn_2$ 、 $Co_8Zn_8Mn_4$ 、 $Co_7Zn_7Mn_6$ ) と比較する。これらの結果を総合的に考察し、Co-Zn-Mn 合金における Co と Mn スピンの役割を明らかにする。

(2)Co-Zn-Mn 合金のホール効果を測定し、スキルミオンの創発磁場によるトポロジカルホール効果を検出する。

(3)室温アンチスキルミオンの候補物質として、 $S_4$  対称性を持つシュライバーサイト ( $Fe,Ni$ ) $_3P$  に着目し、様々な組成の単結晶試料を作製し、磁化測定、ローレンツ透過型電子顕微鏡観察、磁気力顕微鏡観察、小角中性子散乱測定を行い、アンチスキルミオンや関連する磁気構造を観測する。

### 4. 研究成果

#### (1)Co-Zn-Mn 合金の準安定スキルミオンの全体像の解明

室温スキルミオン物質 Co-Zn-Mn 合金において、Mn を含まない  $Co_{10}Zn_{10}$  の単結晶試料に対し磁化率測定、小角中性子散乱測定を行った結果、らせん磁気伝播ベクトル ( $q$  ベクトル) が低温で結晶軸の  $\langle 111 \rangle$  方向に固定されること、その磁気異方性の変化に伴い、410 K の熱平衡相から過冷却したスキルミオン格子が低温で菱形格子のように僅かに変形することを発見した。一方、Mn を含む  $Co_9Zn_9Mn_2$ 、 $Co_8Zn_8Mn_4$ 、 $Co_7Zn_7Mn_6$  では、 $q$  ベクトルが結晶軸の  $\langle 100 \rangle$  方向に向きやすく、Mn スピンの反強磁性相関により、 $|q|$  が低温で著しく増大し、それに伴い準安定スキルミオン格子が四角格子へ変形する。これらの系統的な結果から、Co-Zn-Mn 合金の準安定スキルミオン格子の構造変化は、スピン系の磁気異方性と Mn スピンが Co スピンに及ぼす磁気的な乱れの二つに支配されていることが明らかとなった。

#### (2)Co-Zn-Mn 合金のトポロジカルホール効果の検証

$Co_8Zn_8Mn_4$  の室温スキルミオン熱平衡相および低温スキルミオン準安定相のホール効果を測定したが、磁化に比例する異常ホール成分が支配的であり、スキルミオンの創発磁場由来のトポロジカルホール効果を観測することはできなかった。スキルミオンのサイズが 100 nm と大きく、スキルミオンのサイズの 2 乗に反比例する創発磁場が非常に小さいことが原因と考えられる。

### (3)新規室温アンチスキルミオン物質の開拓

#### $S_4$ 対称性を持つ新規室温アンチスキルミオン物質の発見

$S_4$ 対称性(空間群  $I-4$ )を持つシュライバーサイト( $\text{Fe,Ni})_3\text{P}$  に Pd をドーブした ( $\text{Fe}_{0.63}\text{Ni}_{0.30}\text{Pd}_{0.07}$ ) $_3\text{P}$  (=  $\text{Fe}_{1.9}\text{Ni}_{0.9}\text{Pd}_{0.2}\text{P}$ ) の単結晶試料をセルフフラックス法で作製することに成功し、磁化測定の結果、 $T_c \sim 400$  K で強磁性を示し、弱い容易軸異方性を持つことが分かった。所属機関内の共同研究によるローレンツ透過型電子顕微鏡観察の結果、狙い通り、室温を含む広い温度範囲でアンチスキルミオンが観察された。また、アンチスキルミオンと楕円型のスキルミオンが磁場や試料の厚さで相互変換することが分かった。さらに、厚い試料に対し磁気力顕微鏡観察を行った結果、 $-4$ 対称性で特徴づけられるノコギリ型の新奇な磁区構造が観察された。数値シミュレーションの結果、このノコギリ型磁区構造は、 $S_4$ 対称性を反映した異方的 DM 相互作用と反磁場エネルギーの協奏によって形成されることが分かった。

#### ( $\text{Fe,Ni})_3\text{P}$ 系の磁気異方性の組成変化とアンチスキルミオンの安定性の研究

( $\text{Fe,Ni})_3\text{P}$  のさまざまな組成および  $4d$  遷移金属 (Ru, Rh, Pd) をドーブした組成の単結晶試料を合成し、磁化測定により、磁気異方性の組成変化を系統的に調べた。その結果、 $\text{Fe}_3\text{P}$  の強い容易面型の磁気異方性が、Ni 置換で急速に弱まり、さらに Pd を少量ドーブすると磁気異方性が容易軸型に変化することが分かった。また、Rh をドーブすると、磁気異方性の方向が温度変化することが分かった。共同研究によるローレンツ透過型電子顕微鏡観察により薄片試料の磁気構造を調べた結果、アンチスキルミオンの安定化には、異方的 DM 相互作用に加え、容易軸型の磁気異方性エネルギーと反磁場エネルギーの適切なバランスが重要であることが分かった。

#### ( $\text{Fe,Ni,Pd})_3\text{P}$ バルク単結晶におけるフラクタル磁区構造の研究

薄片試料においてアンチスキルミオンが形成される ( $\text{Fe}_{0.63}\text{Ni}_{0.30}\text{Pd}_{0.07}$ ) $_3\text{P}$  は、バルク単結晶の表面付近では複雑に枝分かれしたフラクタル磁区構造が磁気力顕微鏡により観測された。このフラクタル磁区構造をさらに定量的に調べるために、PSI (スイス) との共同研究により小角中性子散乱測定を行った。その結果、 $[110]$ と $[-110]$ 方向に裾を持つ異方的な散漫散乱パターンが観測された。また、強度の  $q$  依存性が、べき乗則  $I \propto q^{-n}$  ( $n = 3.1$ ) に従うことが分かった。この結果により、バルク中の磁壁が表面フラクタル次元  $D_s = 6 - n = 2.9$  で特徴づけられる 3 次元的なフラクタル構造を形成することが明らかとなった。また、室温の高い  $q$  領域でプロードな肩構造が観測され、磁区内の磁化の不均一性に由来することが分かった。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計13件（うち査読付論文 13件 / うち国際共著 8件 / うちオープンアクセス 8件）

1. 著者名 Karube Kosuke, Peng Licong, Masell Jan, Hemmida Mamoun, Krug von Nidda Hans Albrecht, Kezsmarki Istvan, Yu Xiuzhen, Tokura Yoshinori, Taguchi Yasujiro	4. 巻 34
2. 論文標題 Doping Control of Magnetic Anisotropy for Stable Antiskyrmion Formation in Schreibersite (Fe,Ni)3P with S4 symmetry	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2108770 ~ 2108770
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202108770	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Preissinger M., Karube K., Ehlers D., Szigeti B., Krug von Nidda H.-A., White J. S., Ukleev V., Ronnow H. M., Tokunaga Y., Kikkawa A., Tokura Y., Taguchi Y., Kezsmarki I.	4. 巻 6
2. 論文標題 Vital role of magnetocrystalline anisotropy in cubic chiral skyrmion hosts	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 npj Quantum Materials	6. 最初と最後の頁 65-1 ~ 65-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41535-021-00365-y	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Karube K., White J. S., Ukleev V., Dewhurst C. D., Cubitt R., Kikkawa A., Tokunaga Y., Ronnow H. M., Tokura Y., Taguchi Y.	4. 巻 102
2. 論文標題 Metastable skyrmion lattices governed by magnetic disorder and anisotropy in -Mn-type chiral magnets	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 64408
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.064408	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Karube Kosuke, Peng Licong, Masell Jan, Yu Xiuzhen, Kagawa Fumitaka, Tokura Yoshinori, Taguchi Yasujiro	4. 巻 20
2. 論文標題 Room-temperature antiskyrmions and sawtooth surface textures in a non-centrosymmetric magnet with S4 symmetry	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Materials	6. 最初と最後の頁 335 ~ 340
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41563-020-00898-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ukleev V., Karube K., Derlet P. M., Wang C. N., Luetkens H., Morikawa D., Kikkawa A., Mangin-Thro L., Wildes A. R., Yamasaki Y., Yokoyama Y., Yu L., Piamonteze C., Jaouen N., Tokunaga Y., Ronnow H. M., Arima T., Tokura Y., Taguchi Y., White J. S.	4. 巻 6
2. 論文標題 Frustration-driven magnetic fluctuations as the origin of the low-temperature skyrmion phase in Co7Zn7Mn6	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 npj Quantum Materials	6. 最初と最後の頁 40
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41535-021-00342-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Ukleev Victor, Morikawa Daisuke, Karube Kosuke, Kikkawa Akiko, Shibata Kiyou, Taguchi Yasujiro, Tokura Yoshinori, Arima Taka hisa, White Jonathan S.	4. 巻 5
2. 論文標題 Topological Melting of the Metastable Skyrmion Lattice in the Chiral Magnet Co9Zn9Mn2	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Quantum Technologies	6. 最初と最後の頁 2200066 ~ 2200066
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/qute.202200066	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 White Jonathan S., Karube Kosuke, Ukleev Victor, Derlet P. M., Cubitt R., Dewhurst C. D., Wildes A. R., Yu X. Z., Ronnow H. M., Tokura Yoshinori, Taguchi Yasujiro	4. 巻 55
2. 論文標題 Small-angle neutron scattering study of mesoscale magnetic disordering and skyrmion phase suppression in the frustrated chiral magnet Co6.75Zn6.75Mn6.5	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Crystallography	6. 最初と最後の頁 1219 ~ 1231
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600576722007403	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Karube Kosuke, Ukleev Victor, Kagawa Fumitaka, Tokura Yoshinori, Taguchi Yasujiro, White Jonathan S.	4. 巻 55
2. 論文標題 Unveiling the anisotropic fractal magnetic domain structure in bulk crystals of antiskyrmion host (Fe,Ni,Pd)3P by small-angle neutron scattering	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Crystallography	6. 最初と最後の頁 1392 ~ 1400
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S1600576722008561	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Yu Xiuzhen, Iakoubovskii Konstantin V., Yasin Fehmi Sami, Peng Licong, Nakajima Kiyomi, Schneider Sebastian, Karube Kosuke, Arima Takahisa, Taguchi Yasujiro, Tokura Yoshinori	4. 巻 22
2. 論文標題 Real-Space Observations of Three-Dimensional Antiskyrmions and Skyrmion Strings	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 9358 ~ 9364
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.2c03142	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Karube Kosuke, Taguchi Yasujiro	4. 巻 10
2. 論文標題 High-temperature non-centrosymmetric magnets for skyrmionics	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 080902 ~ 080902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0097343	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Peng Licong, Iakoubovskii Konstantin V., Karube Kosuke, Taguchi Yasujiro, Tokura Yoshinori, Yu Xiuzhen	4. 巻 9
2. 論文標題 Formation and Control of Zero Field Antiskyrmions in Confining Geometries	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Science	6. 最初と最後の頁 2202950 ~ 2202950
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/advs.202202950	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 軽部皓介, L. C. Peng, J. Masell, 于秀珍, 賀川史敬, 十倉好紀, 田口康二郎
2. 発表標題 S4対称性を持つ磁性体で観測された室温アンチスキルミオンと磁区構造
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 軽部 皓介
2. 発表標題 磁気スキルミオンの安定性に関する探査と新物質開拓
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会 若手奨励賞受賞記念講演(領域8)(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kosuke Karube
2. 発表標題 Transformation of metastable skyrmion lattices in room-temperature chiral magnets
3. 学会等名 APW-RIKEN-Tsinghua-Kavli workshop "Highlights on condensed matter physics" (招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2020年~2021年

1. 発表者名 K. Karube, L. C. Peng, J. Masell, M. Hemmida, H.-A. Krug von Nidda, I. Kezsmarki, F. Kagawa, X. Z. Yu, Y. Tokura, Y. Taguchi
2. 発表標題 Antiskyrmion formation and tunable magnetic anisotropy in Pd-doped (Fe,Ni)3P with S4 symmetry
3. 学会等名 29th International Conference on Low Temperature Physics (LT29)(国際学会)
4. 発表年 2022年~2023年

1. 発表者名 軽部 皓介, L. C. Peng, J. Masell, M. Hemmida, H.-A. Krug von Nidda, I. Kezsmarki, 于 秀珍, 十倉 好紀, 田口 康二郎
2. 発表標題 (Fe,Ni)3P系における組成変化による磁気異方性とアンチスキルミオンの安定性の制御
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年~2023年

1. 発表者名 軽部皓介, V. Ukleev, 賀川史敬, 十倉好紀, 田口康二郎, J. S. White
2. 発表標題 小角中性子散乱によるアンチスキルミオン物質(Fe,Ni,Pd)3Pの異方的フラクタル磁区構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2022年～2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>理研プレスリリース(2021年1月26日) 「室温でアンチスキルミオンを示す新物質の発見 - トポロジカル磁気構造の基礎研究・デバイス応用に期待 - 」 <a href="https://www.riken.jp/press/2021/20210126_1/">https://www.riken.jp/press/2021/20210126_1/</a></p> <p>理研プレスリリース(2022年1月25日) 「磁気異方性制御によるアンチスキルミオンの安定化に成功 - トポロジカル磁気構造の安定化機構を解明 - 」 <a href="https://www.riken.jp/press/2022/20220125_1/">https://www.riken.jp/press/2022/20220125_1/</a></p>
--

6. 研究組織			
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ドイツ	University of Augsburg	Karlsruhe Institute of Technology		
スイス	Paul Scherrer Institut	EPFL		
フランス	Institut Laue-Langevin			