交付決定額(研究期間全体):(直接経費)

科学研究費助成事業

研究成果報告書



2,900,000円

研究成果の概要(和文):電子スピンが渦状に並んだ磁気構造体「スキルミオン」は、その駆動電流密度が極め て小さいことから、近年、次世代の超低消費電力磁気メモリ素子として、国内外で大きな注目を集めている。本 研究ではナノドット構造を有するFe系材料に注目し、その室温スキルミオンの発現、並びに、低電流駆動実現の ための要素基盤技術の構築を目的とした。その結果、不規則化A2型ドット構造FeAI合金においてスキルミオン類 似のスピン状態が表面に生じることが明らかになった。また、電子ビーム描画法と集束イオンビーム加工法を駆 使した微細加工法がスキルミオン駆動実証用マイクロ素子作製基盤技術として極めて有効であることがわかっ た。

研究成果の概要(英文): Magnetic skyrmions, which are described as vortices configuration, have attracted much interest due to their ultralow current density drive and potential application in next-generation energy-saving magnetic memory devices. In this study, we have investigated magnetic properties in Fe-based materials with nanometer-scale dot structures. We have also examined fabrication techniques for low current density drive of magnetic skyrmions. As a result, skymion-like spin textures can be observed on the surface of FeAI alloy with disordered A2 structures. Moreover, the fabrication technique using electron beam lithography and focused ion beam processing method could be a strong tool for the demonstration of room-temperature motion of skyrmions driven by electrical currents.

研究分野:応用物性

キーワード: スキルミオン 磁気ナノ構造 スピントロニクス 微細加工 ジャロシンスキー守谷相互作用

1. 研究開始当初の背景

近年、物質中の電子スピンを利用した磁気 メモリは、半導体メモリを凌駕する大容量・ 高速・低消費電力を兼ね備えた廉価な不揮発 性磁気メモリとして大きな注目を集めてい る。中でも強磁性体細線中の磁壁を電流で操 作する電流駆動磁壁移動デバイスは室温で 動作することから国内外で盛んに研究が進 められている[1]。しかし、磁壁を駆動させる ためには10⁹ A/m²程度の大電流密度を必要と し、消費電力が大きいことが問題となってい た[2]。

このような中、最近、電子スピンが渦状に 並んだ磁気構造体「スキルミオン」を利用す る磁気デバイスが大きな注目を集めている。 スキルミオンは、その電子状態がトポロジカ ル的に保護されているため、低電流密度でも 駆動する。研究開始当初までに、FeCoSi、MnSi、 FeGe 等において、スキルミオンの存在が確認 され[3, 4]、FeGe では 10⁵ A/m²の低電流密度 でのスキルミオン駆動が実証されていた[5]。 しかしながら、それらの駆動温度は最高でも 270 K となっており、室温(~300 K)での動作は 実現していない[6]。

2. 研究の目的

本研究ではナノドット構造を有する Fe 系 材料に注目し、その室温スキルミオンの発現、 並びに、低電流駆動実現のための要素基盤作 製技術の構築を目的とした。

3. 研究の方法

我々のグループは、従来研究において①平 坦な規則化 B2型 FeAl 系合金にパルスレーザ ーを照射すると、その表面構造が不規則化 A2型構造になると同時に、その表面形態が ストライプ・ドット構造になること、②この 構造相転移に伴い、磁気特性が常磁性から強 磁性に転移することを見出した(北海道大学 渡辺教授、北見工業大学吉田助教、東北大学



図 1 FeAl 系合金へのパルスレーザー照射前 と後の表面構造と磁気特性。(a) 照射前の表 面状態、(b)照射後のストライプ構造、(c)照射 後のドット構造。(d) 照射前の常磁性特性、 (e) 照射後のストライプ構造における強磁性 特性、(f) 照射後のドット構造における強磁 性特性。

吉見教授との共同研究、図1)[7]。本研究では、 これまで推進してきた独自の磁気力顕微鏡 (MFM)、及び集光型磁気光学カー効果 (MOKE)測定技術により、ドット構造 FeAl 合 金に着目し、その磁化状態を調べた。

次に、ドット構造 FeAl 系合金を用いて、 図 2 に示すスキルミオン駆動実証用のマイク ロ素子を作製するための微細加工基盤技術 を検討した。作製には電子ビーム(EB)描画装 置(エリオニクス、ELS-F130HM)、及び集束イ オンビーム(FIB)加工装置(日立製作所、 FB-2100)を用いた。なお、本研究では、ドッ ト構造 FeAl 合金の作製基盤技術構築に先立 って、高圧合成法で作製した FeAs 系材料、 及び熱処理法で作製した Cu 酸化物材料を用 いたマイクロ素子作製基盤技術を検討した。 FeAs 系、及び Cu 酸化物材料に関しては慶應 義塾大学神原准教授・的場教授にご提供頂い た。



図 2 スキルミオン駆動実証用のマイクロ素 子

4. 研究成果

MFM 観察と MOKE 測定により、不規則化 A2型ドット構造 FeAl 系合金の磁化状態を詳 細に調べた結果、図3に示すように、スキル ミオン類似のスピン状態が表面に生じるこ とが明らかになった。不規則化 A2型ナノド ット構造 FeAl は、①その結晶構造が不規則 化 A2型となり空間反転対称性が破れた系に なっていること、②表面の結晶方位が(111)面 になっていること、③表面状態がナノドット 構造になっていることからジャロシンスキ 一守谷(DM)相互作用が非常に強くなると示 唆される。この強い DM 相互作用がへリカル スピン状態を誘起し、スキルミオン状態を引 き起こしたものと考えられる。

MFM



図3スキルミオン類似のスピン状態

次に、ドット構造 FeAl 合金を用いたマイ クロ素子作製基盤技術の構築に先立って、高 圧合成法により作製した FeAs 系材料、及び



図 4 EB 描画法により作製したガラス基板上 の Au/Cr 電極

熱処理法で作製した Cu 酸化物材料を用い てマイクロ素子を作製し、これによりマイク ロ素子作製基盤技術を検討した。

初めに、ガラス基板(サイズ:3.85 mm× 3.85 mm×0.5 mm) 上に EB 描画法を用いて Au/Cr 電極を作製した。レジスト塗布には ZEP520A(日本ゼオン)を用いた。チャージア ップ防止にはエスペイサーを用いた。Au/Cr の成膜にはスパッタ法を用いた。Au、Cr 薄 膜の膜厚はそれぞれ 100-150 nm、3 nm とした。 作製した Au/Cr 電極を図4に示す。中央部の 点線枠に FeAs 系合金を設置し、電極 A-C 間 に電流を流すことで、同合金に電子を注入す ることができる。FeAs 系合金の加工、設置に は FIB 装置を用いた。本装置にはマイクロサ ンプリングシステムが搭載されているため、 サンプルの切り出し、ピックアップ、セッテ ィングが可能である。本装置を用いて、バル ク体 FeAs 系合金からマイクロサイズ化した 同合金を切り出し、それをピックアップし、 Au/Cr マイクロワイヤ電極間(A-C 間)に架橋 した。本加工に用いた Ga イオン銃の加速電 圧は 30 kV、アパーチャー径は 300 μm、電流



図5 FeAs 系合金の(a)切削、(b)ピックアップ。 (c) ガラス基板上の Au/Cr 電極(図4の拡大図 に対応)。(d) マイクロサイズ化した FeAs 系 合金を Au/Cr 電極に設置。



図 6 (a) FeAs 系合金マイクロ素子の形成。(a) 上方、(b)斜方からの SEM 像。

値は 4.3 nA とした。形成過程を図 5 に示す。 Au/Cr 電極と FeAs 系合金間のコンタクト形 成にはタングステンデポジション法を用い た。図6に示すように、FeAs 系合金マイクロ 素子を形成することに成功した。また、本作 製・加工技術を用いることで、Cu酸化物マイ クロ素子を作製することにも成功した(図 7(a))。なお、電流電圧特性測定時に熱あるい は静電気の影響により電極に破断が見られ たため、Au/Cr 電極の幅を広くし、図 7(b)に 示す電極形状に変更した。このセットアップ で Cu 酸化物マイクロ素子の電圧電流特性を 調べた結果、図7(c)に示すように、室温にお いてオーミック特性 (抵抗 $R = 3.3 \text{ m}\Omega \text{cm}$)を 観測することに成功した。これにより、本作 製技術は構造形成のみならず、電気測定の観 点からも好適であることが明らかになった。

最後に、ドット構造 FeAl 合金についても 同様の加工を実施した。その結果、図8に示 すように、本技術を用いることでドット構造 FeAl 合金マイクロ素子を作製することに成 功した。本作製手法はスキルミオン駆動実証 用のマイクロ素子作製基盤技術として極め て有用であることがわかった。



図 7 (a) Cu 酸化物マイクロ素子の作製、(b)改 良した Au/Cr 電極、(c) Cu 酸化物マイクロ素 子の電圧電流特性。



図 8 ドット構造 FeAl 合金マイクロ素子の形 成。

<引用文献>

[1] A. Yamaguchi, et al.: Phys. Rev. Lett. 92, 077205 (2004).

[2] M. Yamanouchi, et al.: Nature **428**, 539 (2004).

[3] X. Z. Yu, et al.: Nature 465, 901 (2010).

[4] F. Jonietz, et al.: Science 330, 1648 (2010).

[5] X. Z. Yu, et al.: Nature Commun. 3, 988 (2012).

[6] X. Z. Yu, et al.: Nature Commun. 5, 3198 (2014).

[7] Y. Yoshida, et al.: Appl. Phys. Lett. 102, 183109 (2013).

<謝辞>

本研究を推進するにあたり、北海道大学大 学院工学研究院附属エネルギー・マテリアル 融合領域研究センター渡辺精一教授、北見工 業大学吉田裕助教、東北大学大学院工学研究 科吉見享祐教授、慶應義塾大学理工学部的場 正憲教授、神原陽一准教授、北海道大学電子 科学研究所ナノテク連携支援室松尾保孝准 教授、森有子氏、同研究所技術部武井将志氏、 大西広氏、平井直美氏には種々のご協力・御 助言を頂きました。深く感謝申し上げます。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計3件)

① T. Misawa, S. Mori, <u>T. Komine</u>, M. Fujioka, J. <u>Nishii</u>, and <u>H. Kaiju</u>: "Structural and magnetic properties of Ni₇₈Fe₂₂ thin films sandwiched between low-softening-point glasses and application in spin devices", Appl. Surf. Sci. Vol. 390, pp. 666-674, 2016, DOI: 10.1016/j.apsusc.2016.08.100, 査読有.

② M. Fujioka, M. Ishimaru, T. Shibuya, Y. Kamihara, C. Tabata H. Amitsuka, A. Miura, M. Tanaka, Y. Takano, <u>H. Kaiju</u>, and <u>J. Nishii</u>: "Discovery of the Pt-Based Superconductor LaPt₅As", J. Am. Chem. Soc. Vol. 138, pp. 9927-9934, 2016, DOI: 10.1021/jacs.6b04976,

査読有.

③ <u>H. Kaiju</u>, H. Kasa, <u>T. Komine</u>, S. Mori, T. Misawa, T. Abe, and <u>J. Nishii</u>: "Co Thickness Dependence of Structural and Magnetic Properties in Spin Quantum Cross Devices Utilizing Stray Magnetic Fields", J. Appl. Phys. Vol. 117, pp. 17C738-1-17C738-4, 2015, DOI: 10.1063/1.4917061, 査読有.

〔学会発表〕(計10件)

① Y. Matsumoto, M. Matoba, <u>H. Kaiju</u>, <u>J. Nishii</u>, S. R. Hall, and Y. Kamihara: "Approaches for transport properties of YBCO micro-wires using nano-technology", 1st Workshop on Novel Superconducting materials and biomimetic processes, 2016 年 7 月 26 日, Bristol (UK)

② I. Chelali, Y. Matsumoto, S. Kawaguchi, R. Sakagami, S. R. Hall, M. Matoba, <u>H. Kaiju</u>, J. <u>Nishii</u>, and Y. Kamihara: "Synthesis of Transition Metal-Based High-Tc Superconducting Micro-Wire Using Bio-Polymer"、平成 28 年度日本材料科学会学術講演大会、2016 年 6 月 29 日、産業技術総合研究所臨海副都心センター別館(東京・江東区)

③ T. Misawa, S. Mori, H. Kasa, M. Fujioka, <u>H. Kaiju</u>, and <u>J. Nishii</u>: "Magnetic and structural properties of Ni₇₈Fe₂₂ thin films sandwiched between borate glasses"、第 63 回応用物理学会 春季学術講演会、2016 年 3 月 21 日、東京工業大学大岡山キャンパス(東京・目黒区)

 ④ 松本裕介、的場正憲、<u>海住英生、西井準</u> <u>治</u>、S. R. Hall、神原陽一:「生体材料鋳型による YBa₂Cu₃O_{7-δ}マイクロ/ナノワイヤの合成と 評価」、第 63 回応用物理学会春季学術講演会、 2016 年 3 月 19 日、東京工業大学大岡山キャンパス(東京・目黒区)

⑤ <u>海住英生、西井準治</u>:「交流スピントロニクスの最前線」、第8回物質探索・設計セミナー、2016年2月26日、慶應義塾大学矢上キャンパス(神奈川・横浜市)

⑥ T. Misawa, S. Mori, H. Kasa, K. Nakamura, M. Fujioka, <u>H. Kaiju</u>, and <u>J. Nishii</u>: "Structural and magnetic properties of $Ni_{78}Fe_{22}$ thin films sandwiched between low-melting-point glasses", 13th Joint MMM-Intermag Conference, 2016年1月 15日, San Diego (USA)

 ⑦本庄周作、横野示寛、有田正志、福地厚、 <u>海住英生、西井準治</u>、高橋庸夫:「MgF₂/Fe/MgF₂ グラニュラー膜の磁気抵抗効果と微細構造」、 第51回応用物理学会北海道支部/第12回日本 光学会北海道支部合同学術講演会、2016年1 月10日、北海道大学学術交流会館(北海道・ 札幌市) ⑧ T. Misawa, S. Mori, H. Kasa, K. Nakamura, M. Fujioka, <u>H. Kaiju</u>, and <u>J. Nishii</u>, "Fabrication of spin injection devices using Ni₇₈Fe₂₂ thin-film edge between low-melting-point glasses", The 16th RIES-Hokudai International Symposium, 2015年11月10日, ガトーキングダムサッポ ロ (北海道・札幌市)

⑨ 三澤貴浩、森澄人、笠晴也、中村晃輔、藤岡正弥、<u>海住英生、西井準治</u>:「低融点ガラス間 Ni₇₈Fe₂₂ 薄膜エッジを利用したスピン注入デバイスの創製」、第76回応用物理学会秋季学術講演会、2015年9月15日、名古屋国際会議場(愛知・名古屋市)

 ⑩本庄周作、横野示寛、有田正志、福地厚、 <u>海住英生、西井準治</u>、高橋庸夫:「単層 Fe-MgF2 グラニュラー膜の微細構造と磁気特性」、第 39回日本磁気学会学術講演会、2015年9月 10日、名古屋大学(愛知・名古屋市)

[その他]

〇ホームページ

http://nanostructure.es.hokudai.ac.jp/

6. 研究組織

 (1)研究代表者 海住 英生(KAIJU, Hideo)
北海道大学・電子科学研究所・准教授 研究者番号:70396323

(2)研究分担者

西井 準治(NISHII, Junji) 北海道大学・電子科学研究所・教授 研究者番号:60357697

(3)連携研究者
小峰 啓史(KOMINE, Takashi)
茨城大学・工学部・准教授
研究者番号:90361287