

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 6 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2023

課題番号：20K14419

研究課題名（和文）磁気スカーミオンを用いた非平衡熱力学の構築

研究課題名（英文）Nonequilibrium collective dynamics of magnetic skyrmion

研究代表者

杉本 聡志（SUGIMOTO, Satoshi）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・磁性・スピントロニクス材料研究センター・主任研究員

研究者番号：90812610

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：粒子状のトポロジカル磁気構造である磁気スカーミオンについて、これまで注目を集めていた固定質点近似される線形運動ではなく、あらたに長距離集団運動を示す非線形応答についての研究を進めた。既存の群速度と分布勾配の定量的なモデルの構築に加え、スカーミオン個数制御手法を新たに検証した。これらを用いて、物理リザーバーに要求される(i)多次元性、(ii)メモリ効果、(iii)非線形性の3つの特性を担保することで、磁気スカーミオンをもちいたリザーバーコンピューティングを初めて実証した。加えて、高温・低磁場下で有効なスカーミオン安定材料の開発と、高効率駆動に向けた異方性トルクの生成研究も行われた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果は、L2クラスメモリとして注目を集める不揮発性メモリの研究開発に直結する。磁気スカーミオンは小型、かつトポロジカル効果による低電流駆動が可能な磁区構造として、その採用は、不揮発性メモリの障壁であった書き込み電流の大幅な低下を実現する可能性を秘めている。また、本研究で確認された非線形応答は、そのまま物理リザーバーの構築に適用できることが検証され、古典的なメモリデバイスの枠を超えた新規デバイス構築の実現性も示唆される結果となった。また、研究の一環で観察された異方性トルクは、電流操作磁化反転においても極めて新規的な性質を示している。

研究成果の概要（英文）：The nonlinear dynamics of magnetic skyrmions, particle-type magnetic domains with finite topological number, have been systematically investigated for ultrathin heavy metal and ferromagnetic heterostructures. Such nonlinear response shows unique group velocity organized by thermal potential model, and additional multiplication process is newly developed in this research. By integrating these three properties as (i) multi-dimensionality, (ii) memory effect, (iii) nonlinear response, the physical reservoir of magnetic skyrmions is developed for the first time. Successful wave recognition is implemented using such skyrmion reservoir, indicating protected topological properties are suit for Non Von Neumann computing. As the second project, material research for skyrmionics materials has been implemented for thin-film inverse Heusler compounds, aiming at room temperature stabilization of skyrmion crystals for sputtered thin films.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：磁気スカーミオン 薄膜 磁性 非線形応答 遷移金属化合物 トポロジカル絶縁体

## 様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

磁気スカーミオンは粒子状の磁区構造であり、その磁気秩序が“トポロジカル不変量”を構成するため、物性応答にさまざまなトポロジカル効果が現れる[1]。2010年代前後のバルク磁性材料における磁気スカーミオンの発見以降、産業化への展望から、特に不揮発性メモリの省エネ化・小型化につながる線形応答が注目を集めていた。一方、スカーミオンはその非線形応答において特徴的な多体運動を示すことが理論研究により報告されており、こちらは非ノイマン型演算といった、新奇的な磁気デバイス構築につながる可能性が示唆されていた。そんな中、代表者らは超薄膜ヘテロ構造において、実験的に室温における磁気スカーミオンの非線形応答を初めて確認した[2]。さらに、その非線形多体運動においては、熱力学的なポテンシャルモデルを導入することで定量的に議論され、固定質点運動で近似される線形応答とは全く異なる応答を示すことが明らかとなった[3]。

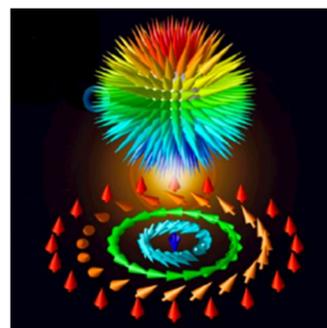


図1：磁気スカーミオン (ref.1より抜粋)

以上の背景を踏まえ、代表者らは磁気スカーミオンの非線形応答についての研究とその発言に適した薄膜材料の開拓を行い、その背景物理の理解と、線形応答とは異なる切り口による産業応用に向けた可能性を議論することを目指した。

### 2. 研究の目的

本研究では、特殊な多体運動を示す磁気スカーミオンの非線形応答について、その物性の解明とこれを利用したデバイス構築、更にはその発現に適した機能性材料の開拓を目的とする。

### 3. 研究の方法

本研究は以下のふたつの項目に分割される：1. 非線形スカーミオン応答の解明とデバイス応用、及び2. 磁気スカーミオンの安定化・制御に適した材料系の探索。

#### 1. 非線形スカーミオン応答の解明とデバイス応用

代表者らがすでにスカーミオンの室温安定化、並びにその非線形応答を検出可能な、重金属 (HM: Heavy metal) と磁性薄膜 (FM: Ferromagnet) を含む超薄膜積層構造：HM1/Co/HM2、或いは HM/CoFeB/MgO を用いて、実際に非線形応答を磁気光学 Kerr 効果顕微鏡やトポロジカルホール効果の検出によって、磁気スカーミオンの非線形応答を検出した。また、同材料系の非ノイマン型デバイス応用として、物理リザーバーの構築を新しく検証した。

#### 2. 磁気スカーミオンの安定化・制御に適した材料系の探索

将来的な産業応用を見越して、Mn 基反ホイスラーや遷移金属化合物を薄膜化し、より高温・低磁場でのスカーミオンの安定化と検出手法の確立を目指す。また、磁気スカーミオンの高効率駆動のため、1. に採用する HM/FM(/HM) 構造において、より優れたスピ流注入材料を研究した。本項目は、複合スパッタ装置を駆使して行われ、スカーミオン安定化の評価はローレンツ顕微鏡や、磁気ホログラフィー法といった直接観察に加え、トポロジカルホール効果による検出も併用した。高効率駆動のための高い電流-スピ流変換を示す材料系の評価は、共鳴トルク法や2次高調波ホール測定を採用した。

### 4. 研究成果

#### 1. 非線形スカーミオン応答の解明とデバイス応用

代表者はこれまでの研究開発により、磁気スカーミオンの非線形応答過程において、群速度と分布勾配の定量的な観察が可能であった。一方で、非線形応答デバイス演算と考える場合、新たにスカーミオン個数によって倍数化されたトポロジカル不変量を外場によって制御することが求められる。これに対し、代表はまず、パルス電流印加により、トポロジカル不変量が増殖する過程 (Skyrmion multiplication) を検証した (図2)。これにより、不均一膜による若干の対称分の低下を含み、トポロジカル不変量、即ちスカーミオン個数を細密数近傍まで増加させることを確認した。

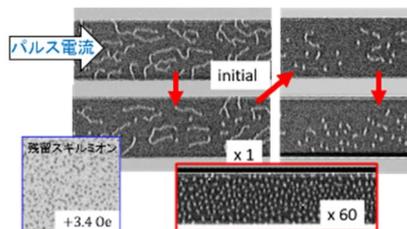


図2：パルス電流による高密度スカーミオン格子の安定化。

次に、このような非線形応答にて Skyrmion multiplication をしめす超薄膜 Pt/Co/Ir 積層構造を用いて、実際にスカーミオンを物理リザーバーとして機能させることを検証した。物理リザーバーには、(i)多次元性、(ii)メモリ効果、(iii)非線形性の発現が要求され、それぞれを、(i)トポロジカル不変量数（スカーミオン個数）(ii)不揮発性、そして(iii)Skyrmion multiplication で相当させることにより、実際にホールバー形状に微細加工された超薄膜 Pt/Co/Ir 積層構造において、スカーミオン・リザーバーとしての機能を初めて実証した（図3）[4]。ac 外部磁場を入力信号とすることで、波形認識タスクについて9割以上の成功率を達成し、既存の古典的磁壁構造では構成できないリザーバーコンピューティングが可能な磁気秩序系であることが確認された。この結果は、本項目が目標とした、スカーミオン非線形応答をデバイス単位で活用した成功例と言える。

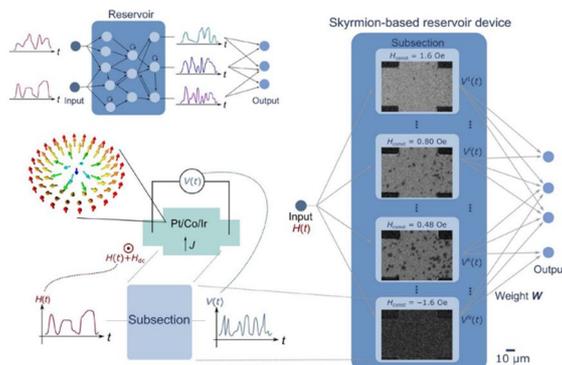


図3：スキルミオン・リザーバー（ref.4より抜粋）

## 2. 磁気スカーミオンの安定化・制御に適した材料系の探索

成果1.と平行して、代表者らが既に磁気スカーミオンを室温安定化させることが可能である HM/FM/HM の積層構造の他に、高スピン偏極や磁気相転移を伴う機能性材料を薄膜化し、スカーミオン安定化材料とすることを目的として材料研究を進めた。本項目は将来的な産業化を意識し、スパッタ法による大規模生産が可能な材料系に限定している。

代表者は先ず、Mn 基反ホイスラーに着目した。この材料系は、その反転対称性 ( $I4m2$ ) から異方性のジャロシンスキー守谷相互作用 (DMI) を示し、バルク合金を用いた室温近傍でのアンチスキルミオン構造の安定化が報告されている [5]。実際にコスパッタ法により、MgO 基板上に反ホイスラー  $Mn_2PtSn$  規則合金を薄膜成長することに成功し、更に、少量の Cu をドーピングすることで固溶性が増し、エピタキシャル成長が可能であることを発見した（図4(a)）。この高品質薄膜は 150K という比較的高温でスピン再配列を示し、その温度領域以下で、非常に強いトポロジカル信号をホール成分に示すことが観測された（図4(b)）[6]。更に、図4(c)に示すように  $Mn_2PtSn$  薄膜の THE 強度は先行研究と比較しても大きく、金属材料系では最大値 ( $\rho_{xy}^{THE} \sim 1 \mu\Omega \cdot cm$ ) に比類する値が得られた。これは、同材料系での高密度のアンチスカーミオン/カイラル磁壁が実際に薄膜試料において安定化したことを示唆している。

次に、室温近傍でのスカーミオン/カイラル磁壁の安定化を目指し、より高温でスピン再配列を示す材料系の探索を行った。その過程で、従来の直交配列に起因するスカーミオン構造ではなく、カイラル相互作用と平行な面内配列に安定化する“IMA スカーミオン”に着目した [7]。代表者は、これまで薄膜において先行研究報告の乏しい IMA スカーミオンの安定化材料として、スパッタ法による  $CaCu_5$  型の  $NdCo_5$  合金の薄膜化を行った（図5(a)）。 $NdCo_5$  合金においては、Nd サイトと Co サイトの異方性競合から、室温近傍でスピン再配列温度が発生す

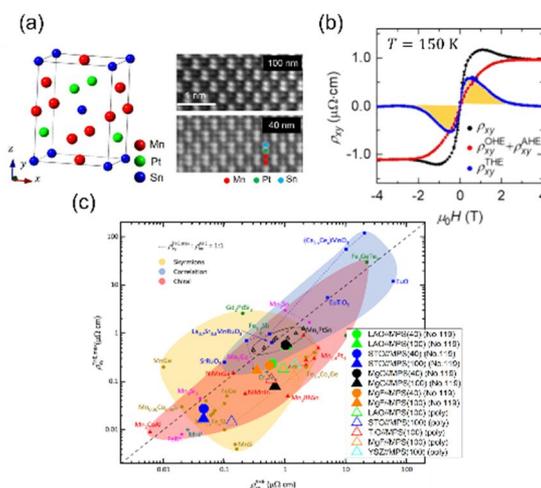


図4：(a)  $Mn_2PtSn$  単結晶薄膜。(b) トポロジカルホール信号。(c) 先行研究との THE 強度比較。

この高品質薄膜は 150K という比較的高温でスピン再配列を示し、その温度領域以下で、非常に強いトポロジカル信号をホール成分に示すことが観測された（図4(b)）[6]。更に、図4(c)に示すように  $Mn_2PtSn$  薄膜の THE 強度は先行研究と比較しても大きく、金属材料系では最大値 ( $\rho_{xy}^{THE} \sim 1 \mu\Omega \cdot cm$ ) に比類する値が得られた。これは、同材料系での高密度のアンチスカーミオン/カイラル磁壁が実際に薄膜試料において安定化したことを示唆している。

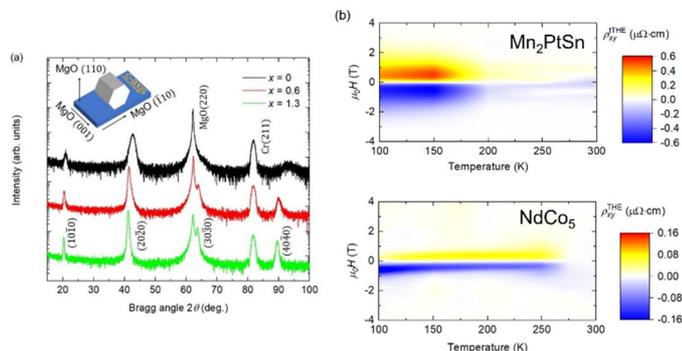


図5： $NdCo_5$  スパッタ薄膜における室温近傍でのトポロジカルホール信号検出と  $Mn_2PtSn$  薄膜との比較。

室温近傍でスピン再配列温度が発生す

ることが知られている。この薄膜を  $c$  軸面内に配向させることで、スピン再配列温度近傍での異方性回転時に IMA スカームオンに要請されるカイラル相互作用と異方性相互作用の競合を狙いスピン再配列温度近傍におけるトポロジカルホール信号を初めて検出した (図 5 (b)) [8]。上述の  $\text{Mn}_2\text{PtSn}$  反ホイラー薄膜と比較し、トポロジカルホール信号の検出温度が最大で 270K まで増加、最大化磁場強度も 1000 Oe 以下まで低下し、材料探索の指標とされる室温・零磁場近傍でのスカームオン安定条件により漸近する結果となった。本材料のスピン再配列温度はドーピングによる Co サイトの異方性強度に強く依存し、今後の薄膜エンジニアリングによる展望が期待される。

最後に、より高効率・制御性の良いスカームオン電流操作を実現するため、駆動力となるスピンの流れ (スピン流) の新規生成材料についての研究成果を行った。電流注入によるスピン流生成の中でも、HM/FM のヘテロ構造におけるスピン軌道トルクは、スピン軌道結合により面直方向への高効率スピン流を生成する手法として、現在では電流操作手法におけるもっとも基本的な技術体系となっている。スピン軌道トルクの特長評価には、電流密度に対するスピン流生成密度：スピンホール角の大きさが専ら議論されてきたが、近年はその非従来型の射影成分、すなわち発生するスピン流の偏極方向に対する議論が注目を集めている [9]。

このような背景の中、代表者らは HM/FM ヘテロ構造におけるフェルミ面の対称性操作により、これまで原理的に許容されなかった垂直・及び平行方向のスピン流を生成する手法を開発した [10]。本研究の骨子は、菱面体晶  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  薄膜の (001) 面に対し原子スケールの膜厚傾斜を加えることで、フェルミ面の点群対称性を最低次  $C_1$  まで低下させることにある。スピン運動量ロッキングを示すトポロジカル物質である  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  を採用することで、膜厚傾斜によるフェルミ面変調の効果を増幅させ、対称性の議論から従来の直交スピン偏極に加え、新たに面直、および平行方向の偏極成分を有する異方性スピントルクが解禁された。

実験では、エピタキシャル成長した  $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$  アモルファスの HM/FM において共鳴トルク法を行うことで、磁場 (電流) 極性反転に対する明確な非相反性として検出された (図 6)。先行する非従来型スピン軌道トルク研究報告と比較しても、この非相反現象は明らかに大きく面直・平行方向の偏極強度がほぼ最大値をとっていることが判明した。更には、このように極めて異方的なスピントルクを用いることで、電流誘起磁化反転において方向性依存が生じることが新たに観察された。このような 3 次元的な偏極成分も示す異方性スピントルクの発生は、原理・定量性の両観点からも特異な事例で、今後のスピン軌道トルク関連実験における展望に期待が持たれる。

上述の結果により、a) 磁気スカームオンの非線形応答制御とそれをを用いたデバイス構築、b) 機能性材料の薄膜化と高温・低磁場におけるスカームオン/カイラル磁壁の安定化、c) 高効率・非従来型のスカームオン制御を可能とするスピントルクの開発、という 3 点で一定の成果を創出した。

上記の結果により、a) 磁気スカームオンの非線形応答制御とそれをを用いたデバイス構築、b) 機能性材料の薄膜化と高温・低磁場におけるスカームオン/カイラル磁壁の安定化、c) 高効率・非従来型のスカームオン制御を可能とするスピントルクの開発、という 3 点で一定の成果を創出した。

[1] Y. Tokura *et al.*, Chem. Rev. **121**, 2857 (2021). [2] S. Sugimoto *et al.*, Appl. Phys. Exp. **12**, 073002 (2019). [3] S. Sugimoto *et al.*, Sci. Rep. **10**, 1009 (2020). [4] T. Yokouchi, S. Sugimoto *et al.*, Sci. Adv. **8**, 39 (2022). [5] A. K. Nayak *et al.*, Nature **548**, 561 (2017). [6] S. Sugimoto *et al.*, Appl. Phys. Exp. **14**, 103003 (2021). [7] K.-W. Moon, *et al.*, Phys. Rev. Appl. **12**, 064054 (2019). [8] S. Sugimoto, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **121**, 182404 (2022). [9] I. M. Miron *et al.*, Nature (London) **476**, 189 (2011).

[10] S. Sugimoto, Y. Araki *et al.*, *submitted*.

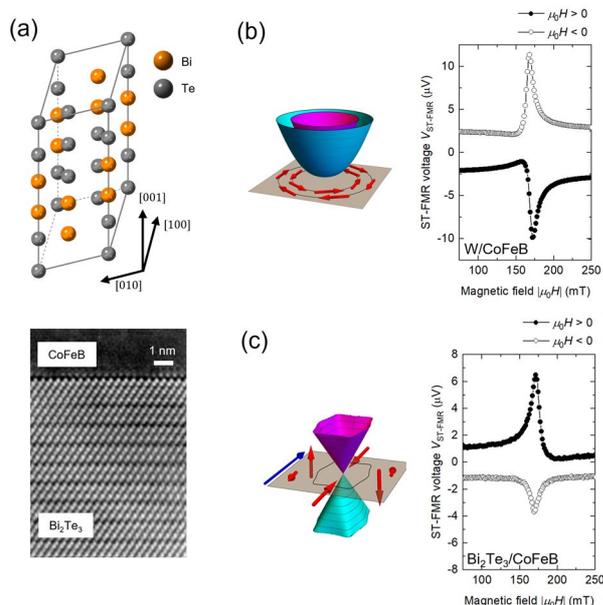


図 6 : 対称性の操作による異方性スピントルク生成の概略図。(a)エピタキシャル成長された菱面体晶  $\text{Bi}_2\text{Te}_3$  薄膜と(b)古典的フェルミ面对称性  $C_{2v}$  における FMR トルク測定と、(d)対称性操作された  $C_1$  界面における非相反的 FMR 検出。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Sugimoto Satoshi, Takahashi Yukiko K., Kasai Shinya	4. 巻 121
2. 論文標題 Near-room temperature topological Hall effect at spin reorientations in sputtered NdCo <sub>5</sub> -xCu <sub>x</sub> thin film	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 182404 ~ 182404
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0128572	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 Yokouchi Tomoyuki, Sugimoto Satoshi, Rana Bivas, Seki Shinichiro, Ogawa Naoki, Shiomi Yuki, Kasai Shinya, Otani Yoshichika	4. 巻 8
2. 論文標題 Pattern recognition with neuromorphic computing using magnetic field-induced dynamics of skyrmions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.abq5652	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 Das Saikat, Sugimoto Satoshi, Kushwaha Varun Kumar, Kozuka Yusuke, Kasai Shinya	4. 巻 11
2. 論文標題 Observation of charge-to-spin conversion with giant efficiency at Ni <sub>0.8</sub> Fe <sub>0.2</sub> /Bi <sub>2</sub> WO <sub>6</sub> interface	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 041113 ~ 041113
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0142695	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 Sugimoto Satoshi, Takahashi Yukiko, Kasai Shinya	4. 巻 14
2. 論文標題 Transition of topological Hall effect for tetragonal Heusler Mn <sub>2</sub> PtSn thin film	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 103003 ~ 103003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ac223f	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 Iwakiri Shuichi, Sugimoto Satoshi, Niimi Yasuhiro, Kozuka Yusuke, Takahashi Yukiko K., Kasai Shinya, Kobayashi Kensuke	4. 巻 103
2. 論文標題 Negative correlation between the linear and the nonlinear conductance in magnetic tunnel junctions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/physrevb.103.245427	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 Sugimoto Satoshi, Nakatani Yoshinobu, Yamane Yuta, Ikhlas Muhammad, Kondou Kouta, Kimata Motoi, Tomita Takahiro, Nakatsuji Satoru, Otani Yoshichika	4. 巻 3
2. 論文標題 Electrical nucleation, displacement, and detection of antiferromagnetic domain walls in the chiral antiferromagnet Mn <sub>3</sub> Sn	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Communications Physics	6. 最初と最後の頁 111~111
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s42005-020-0381-8	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 Wang Jian, Sugimoto Satoshi, Kasai Shinya, Takahashi Yukiko K	4. 巻 53
2. 論文標題 Interlayer exchange coupling modulated all-optical magnetic switching in synthetic ferrimagnetic heterostructures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Physics D: Applied Physics	6. 最初と最後の頁 475002 ~ 475002
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-6463/ababd0	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 Sasaki Y., Sugimoto S., Takahashi Y. K., Kasai S.	4. 巻 10
2. 論文標題 Spin injection efficiency through the pumping in epitaxial Co <sub>2</sub> MnSi/Pt thin film	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 085311 ~ 085311
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0008393	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 Iwakiri Shuichi, Sugimoto Satoshi, Niimi Yasuhiro, Kobayashi Kensuke, Kozuka Yusuke, Takahashi Yukiko K., Kasai Shinya	4. 巻 117
2. 論文標題 Generation of multipeak spectrum of spin torque oscillator in non-linear regime	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 022406 ~ 022406
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0013102	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 Sugimoto Satoshi, Iwakiri Shuichi, Kozuka Yusuke, Takahashi Yukiko, Niimi Yasuhiro, Kobayashi Kensuke, Kasai Shinya	4. 巻 10
2. 論文標題 Multiple modes of a single spin torque oscillator under the non-linear region	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 075115 ~ 075115
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0013105	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5件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 杉本 聡志、葛西 伸哉、高橋 有紀子
2. 発表標題 Transition of Topological Hall signal for Mn-based inverse Heusler thin films
3. 学会等名 24th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 杉本 聡志、佐々木 悠太、葛西 伸哉、高橋 有紀子
2. 発表標題 薄膜形成技術に向けた磁気光学顕微鏡
3. 学会等名 日本磁気学会 第236回研究会 / 第69回化合物新磁性専門研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 杉本 聡志, 葛西 伸哉, 高橋 有紀子
2. 発表標題 Mn系規則合金薄膜における 巨大なトポロジカルホール効果の検出
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 杉本 聡志, 高橋 有紀子
2. 発表標題 Mn 系規則合金薄膜の輸送特性と磁気異方性の発現
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 杉本 聡志, 葛西 伸哉, 高橋 有紀子
2. 発表標題 非線形領域でのマルチモード生成
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 加藤 克司, 牧野 秀樹, 小森 雅晴, 他57名	4. 発行年 2022年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 673
3. 書名 次世代EV/HEV用モータの高出力化と関連材料の開発	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
---------	---------