

令和 6 年 6 月 20 日現在

機関番号：11401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04626

研究課題名（和文）合金組織制御により創出されたキラル磁性体ナノ構造における磁気スキルミオン直接観察

研究課題名（英文）Direct observation of magnetic skyrmions in a nano-sized chiral magnet fabricated by controlling microstructure

研究代表者

肖 英紀 (So, Yeong-Gi)

秋田大学・理工学研究科・准教授

研究者番号：10719678

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：磁気スキルミオンと呼ばれるナノスケール磁気渦構造が、次世代磁気メモリの担体として期待されている。本研究では、メカニカルアロイング法により典型的なスキルミオンホスト材料であるB20型FeGeナノ結晶を作製し、微分位相コントラスト走査透過型電子顕微鏡DPC-STEMを用いてナノ結晶組織中の磁気構造観察を実施した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

情報化社会において代表的な情報記録媒体である磁気メモリの情報高密度化は重要課題である。磁気スキルミオンを用いた次世代メモリは従来メモリを凌駕する記録密度や省エネが見込まれる。メモリ中のようなナノスケール空間内で磁気スキルミオンがどのような状態で形成するのか明らかにすることは、今後のメモリ開発において基礎となる知見を与える。

研究成果の概要（英文）：Magnetic skyrmions are promising for use in future data storage devices because of their topological stability at nanometer-scale dimensions. In this study, B20-type FeGe alloy, a typical example of chiral magnets that host stable magnetic skyrmions, was synthesized by means of mechanical alloying, and magnetic structure in the nano-grained B20-FeGe was observed using differential phase-contrast scanning transmission electron microscopy.

研究分野：金属物性

キーワード：合金 磁気スキルミオン 電子顕微鏡

1. 研究開始当初の背景

近年、図1のような磁気スキルミオンと呼ばれるナノスケールの磁気渦構造が種々の磁性体中に見出され、注目を集めている[1]。スキルミオン一つの典型的なサイズは数 nm から数 100 nm である。中性子回折実験による物質中の磁気スキルミオン発見以来[1]、その特徴的な磁気渦構造に由来する巨大な異常ホール効果、超低電流密度での磁気スキルミオン駆動などが実験的に示され、スキルミオンを情報担体とした新規な磁気記録デバイスへの応用も検討されている[1,3]。スキルミオンを磁気メモリ担体として用いるためには、メモリ内の狭い空間内におけるスキルミオンの性質を明らかにすることが求められる。IBM が提案しているレーストラックメモリ[4]にスキルミオンを用いる場合、ナノスケールの狭い空間内に閉じ込められたスキルミオンは常に結晶界面あるいは表面等の結晶欠陥に囲まれている状況にあるため、これまで数多く研究されてきた単結晶中スキルミオンとは異なることが予想されるが、空間的制限がスキルミオン形成に及ぼす影響を体系的に理解するための実験研究は限られていた。一方、磁気構造と結晶欠陥のようなナノ構造を同時観察可能な微分位相コントラスト走査透過型電子顕微鏡(Differential phase-contrast scanning transmission electron microscopy, DPC-STEM)法[5]が開発され、種々の結晶欠陥におけるスキルミオンの状態の観察が進められてきており[7,8]、ナノ空間中のスキルミオンの性質を効果的に明らかにすることが可能となっている。

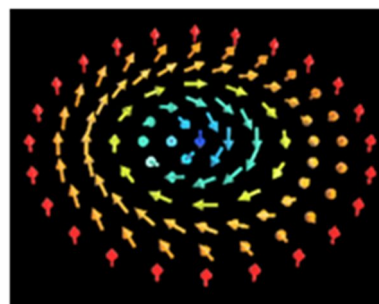


図1. 磁気スキルミオン模式図

2. 研究の目的

本研究では、結晶界面に完全に囲まれた狭い空間内におけるスキルミオン状態を明らかにすることを目的として、ボールミルを用いたメカニカルアロイング法により代表的なスキルミオン発現物質である B20 型 FeGe のナノ結晶組織を作製し、そのナノ結晶中における磁気構造の DPC-STEM 直接観察を試みた。

3. 研究の方法

試料は全て高純度原料粉末を原子量比で Fe : Ge = 1 : 1 となるように秤量し、遊星型ボールミル装置(Fritsch, Premium line PL-7)を用いて作製した。ジルコニア容器(45 ml)中にジルコニアボール(5 mm)および原料粉末を入れ、600 rpm ~ 1000 rpm の回転(公転)速度で合成した。このときの原料対ボール重量比は 3 g : 51 g とした。安定性の評価および結晶性の制御のために、得られた合金粉末を Ta 箔に包み、石英管に真空封入した後、電気炉を用いて適宜熱処理を施した。各試料の相同定および結晶サイズの評価には粉末 X 線回折(XRD)および走査透過型電子顕微鏡(STEM)を用いた。磁化測定は振動試料型磁力計(VSM)を用いて、200 Oe の直流磁場中室温から 150 K の温度範囲で行った。磁気構造の観察には上述の DPC-STEM を用いた。

4. 研究成果

FeGe 合金に対して種々のボールミル条件におけるメカニカルアロイングを実施し、B20 相形成に最適な実験条件を検討した。図 2 にメカニカルアロイング後種々の温度で 100 h 熱処理を施した FeGe 合金の XRD パターンを示す。未熱処理、773 K、873 K、923 K 熱処理合金では、主要な回折ピークは全て B20 型構造として指数付けできた。熱処理温度が高いほど回折ピークがよりシャープになっていることから、結晶子サイズの増大が示唆されるとともに、各熱処理温度において B20 相が安定であることを示している。一方、973 K 熱処理では B20 構造は他の結晶相へ変化していた。未熱処理試料の結晶子サイズはおおよそ 10 nm であり、873 K 熱処理試料では

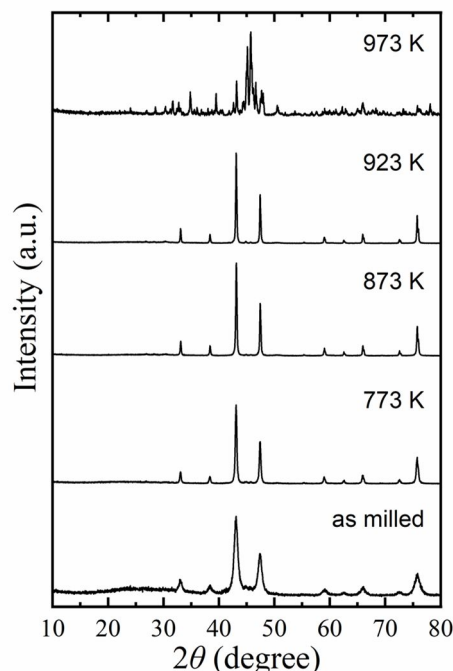


図2. メカニカルアロイング後種々の熱処理を施した FeGe 合金の粉末 X 線回折図形

70 nm と見積もられた。したがって、熱処理を施すことによって結晶子サイズをある程度制御できるがわかった。ただし、一般的な合金の結晶粒径と比較すると微細である（例えば高压合成で作製した FeGe では 10 数 μm である [11]）。

続いて、実際にナノ結晶組織を形成しているのかを確認するため、STEM による直接観察を実施した。図 3 は、メカニカルアロイング後 873 K の熱処理を施した FeGe 合金の STEM 明視野像である。STEM 像より、数 10 nm ~ 数 100 nm の結晶子から成る結晶組織を形成していることが確認できる。この STEM 像から結晶子サイズ分布を評価した結果を図 4 に示す。観察視野の結晶子サイズは 40 nm ~ 100 nm に集中しており、その最頻値は 40 nm ~ 60 nm、平均値は 98.8 nm であった。この試料の XRD から見積もった結晶子サイズは 70 nm であり、概ね一致することを確認した。

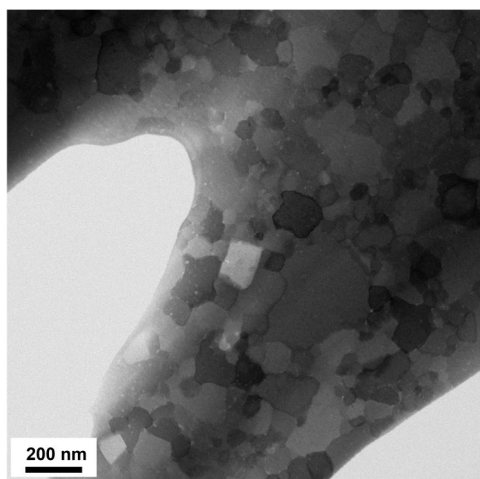


図 3. 873 K 熱処理した FeGe 合金の STEM 明視野像

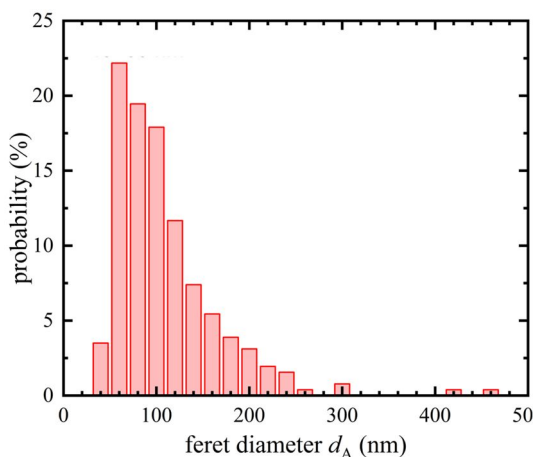


図 4. STEM 像から見積もった結晶子サイズ分布

図 5 に 873 K 熱処理した B20 型 FeGe の磁化測定結果を示す。図中、磁化の変化率も示してある。強磁性転移を示す磁化の急激な上昇が見られ、キュリー温度が 266 K と見積もられた。この値は高压合成で作製された FeGe のキュリー温度と概ね一致した。この試料について、DPC-STEM による磁気構造観察を実施した結果を図 6 に示す。図 6 はキュリー温度以下 95 K の条件で磁場 0 T および 160 mT の磁場を印加した際のナノ結晶中磁気構造の様子を示している。図中点線および破線はそれぞれおよそ 200 nm および 80 nm サイズの結晶粒を示しており、矢印はピット(穴)を示している。磁場印加前では大きい方の粒子内にはせん磁気構造を示すストライプが観察されたが、小さい粒子ではストライプは観察できなかった。一方、磁場印加後では、小さい方の粒子内にスキルミオン 1 個と思われる磁気構造が観察できた。現状ではナノ結晶の回折コントラストの影響や結晶粒界の歪の影響がシビアであり、詳細な検討には至っていないが、ナノ結晶組織中の磁気構造を捉えることには成功した。

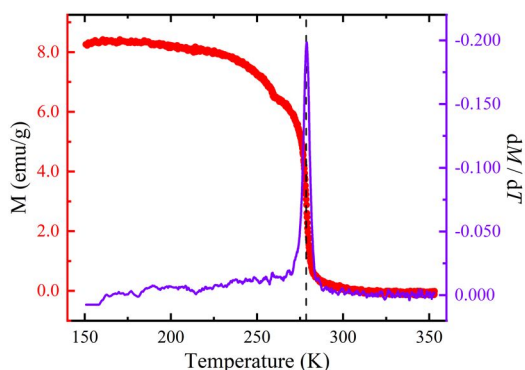


図 5. B20 型 FeGe の磁化の温度依存性

本研究では、メカニカルアロイング法を用いた B20 型 FeGe のナノ結晶組織の作製法を確立し、DPC-STEM 法によるナノ結晶組織中の磁気構造観察に展開した。メカニカルアロイング法は熱処理と組み合わせることにより、スキルミオンサイズ 70 nm と同等程度、あるいは小さいものから大きいものまで幅広く結晶子サイズを制御したナノ結晶組織を作製可能である。結晶粒界の影響や非常に狭い空間内で磁気スキルミオンがどのような状態で形成するのか興味深い問題であり、今後大小様々な結晶中のスキルミオン観察を実施し、ナノ結晶組織中の

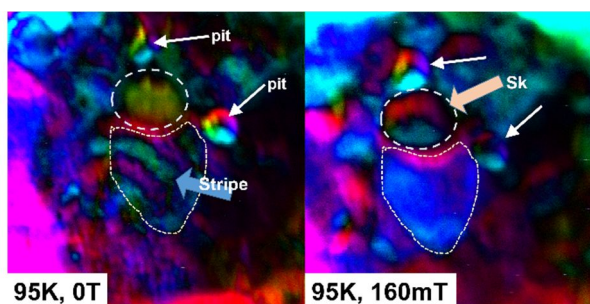


図 6. 873 K 熱処理した B20 型 FeGe の磁気構造像

スキルミオンの全容を明らかにしていく足がかりとなる成果が得られた。

参考文献

- [1] N. Nagaosa and Y. Tokura, “Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions”, *Nature Nanotechnology*, 8, pp.899-911 (2013).
- [2] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii and P. Böni, “Skyrmion Lattice in a Chiral Magnet”, *Science*, 323, pp.915-919 (2009).
- [3] A. Fert, V. Cros and J. Sampaio, “Skyrmions on the track”, *Nature Nanotechnology*, 8, pp.152-156 (2013).
- [4] S.S.P. Parkin, M. Hayashi and L. Thomas, “Magnetic Domain-Wall Racetrack Memory”, *Science*, 320, pp.190-194 (2008).
- [5] X.Z. Yu, N. Kanazawa, W.Z. Zhang, T. Nagai, T. Hara, K. Kimoto, Y. Matsui, Y. Onose and Y. Tokura, “Skyrmion flow near room temperature in an ultralow current density”, *Nature Communications*, 3, pp.988 1-6 (2012).
- [6] N. Shibata, S.D. Findlay, Y. Kohno, H. Sawada, Y. Kondo and Y. Ikuhara, “Differential phase-contrast microscopy at atomic resolution”, *Nature Physics*, 8, pp.611-615 (2012).
- [7] T. Matsumoto, Y.-G. So, Y. Kohno, H. Sawada, Y. Ikuhara, and N. Shibata, “Direct observation of $\sqrt{7}$ domain boundary core structure in magnetic skyrmion lattice”, *Science Advances*, 2, pp. e1501280 1-5 (2016).
- [8] T. Matsumoto, Y.-G. So, Y. Kohno, H. Sawada, R. Ishikawa, Y. Ikuhara, and N. Shibata, “Jointed magnetic skyrmion lattices at a small-angle grain boundary directly visualized by advanced electron microscopy”, *Scientific Reports* 6, pp.35880 1-8 (2016).
- [9] X.Z. Yu, N. Kanazawa, Y. Onose, K. Kimoto, W.Z. Zhang, S. Ishiwata, Y. Matsui and Y. Tokura, “Near room-temperature formation of a skyrmion crystal in thin-films of the helimagnet FeGe”, *Nature Materials*, 10, pp.106-109 (2011).
- [10] T. Hiroto, Y.-G. So and K. Kimura, “Synthesis and Thermal Stability of B20-Type TMGe (TM = Mn, Fe and Co) Intermetallic Compounds Prepared by Mechanical Milling”, *Materials Transactions*, 59, pp.1005-1008 (2018).
- [11] M. Nagao, Y.-G. So, H. Yoshida, K. Yamaura, T. Nagai, T. Hara, A. Yamazaki and K. Kimoto, “Experimental observation of multiple-Q states for the magnetic skyrmion lattice and skyrmion excitations under a zero magnetic field”, *Physical Review B*, 92, pp.140415R 1-5 (2015).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Shimizu Daigo, Nagase Tomoki, So Yeong-Gi, Kuwahara Makoto, Ikarashi Nobuyuki, Nagao Masahiro	4. 巻 5
2. 論文標題 Nanoscale Characteristics of a Room-Temperature Coexisting Phase of Magnetic Skyrmions and Antiskyrmions for Skyrmion?Antiskyrmion-Based Spintronic Applications	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 13519 ~ 13528
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.2c03162	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 市瀬智也, 船津和哉, 肖英紀	4. 巻 46
2. 論文標題 メカニカルアロイング法によるB20型TMGe (TM= Cr, Mn, Fe, Co)合金の作製	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 映像情報メディア学会技術報告	6. 最初と最後の頁 53 ~ 58
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 市瀬智也, 船津和哉, 廣戸孝信, 肖英紀
2. 発表標題 メカニカルアロイングおよび放電プラズマ焼結によるB20型FeGeバルク体の作製
3. 学会等名 日本金属学会2023年春期(第172回)講演大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 肖英紀
2. 発表標題 日本金属学会2023年春期(第172回)講演大会, 東京大学駒場 キャンパス
3. 学会等名 日本金属学会2022年秋季(第171回)講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 市瀬智也, 船津和哉, 肖英紀
2. 発表標題 メカニカルアロイング法によるB20型TMGe (TM= Cr, Mn, Fe, Co)合金の作製
3. 学会等名 日本金属学会2022年秋季(第171回)講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 市瀬智也, 船津和哉, 肖英紀
2. 発表標題 メカニカルアロイング法によるB20型TMGe (TM= Cr, Mn, Fe, Co)合金の作製
3. 学会等名 映像情報メディア学会マルチメディアストレージ研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 肖英紀, 池田虎ノ介
2. 発表標題 Fe-Ge-Si系における希薄Si濃度B20型合金の作製と評価
3. 学会等名 日本金属学会2022年春季(第170回)講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y.-G. So
2. 発表標題 Facile synthesis of B20-type FeGe alloys via dilute Si-doping and mechanical alloying
3. 学会等名 2021 Global Research Efforts on Energy and Nanomaterials (GREEN 2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 S. Narita and Y.-G. So
2. 発表標題 Substitution effect on magnetic properties of δ -Mn type Co-Zn based alloys
3. 学会等名 2021 Global Research Efforts on Energy and Nanomaterials (GREEN 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 市瀬智也, 船津和哉, 肖英紀
2. 発表標題 メカニカルアロイング法によるB20型Co-Si合金の作製
3. 学会等名 第20回日本金属学会東北支部研究発表大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田虎ノ介, 肖英紀
2. 発表標題 希薄SiドーブFeGe合金におけるB20型構造の形成II
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 船津和哉, 肖英紀
2. 発表標題 メカニカルアロイング法により作製したB20型合金の微細組織と磁性
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔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
---------	---------