

高温稳定性磁斯格明子的材料发现及性能调控*

侯志鹏^{1,2} 王文洪^{1,†} 吴光恒¹

(1 中国科学院物理研究所 磁学国家重点实验室 北京 100190)

(2 华南师范大学 先进材料研究所 广州 510006)

2020-01-19收到

† email:wenhong.wang@iphy.ac.cn

DOI: 10.7693/wl20200203

Discovery of high temperature magnetic skyrmions and current-induced helicity reversal in a nanostructured frustrated magnet

HOU Zhi-Peng^{1,2} WANG Wen-Hong^{1,†} WU Guang-Heng¹

(1 Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(2 Guangdong Provincial Key Laboratory of Optical Information Materials and Technology & Institute for Advanced Materials, South China Academy of Advanced Optoelectronics, South China Normal University, Guangzhou 510006, China)

摘要 文章报道了阻挫型磁体 Fe_3Sn_2 中高温稳定性磁斯格明子材料的发现以及利用电流实现斯格明子自旋手性翻转的一系列工作。作者首先基于合金化设计的思想,解决了晶体取向生长困难和易发生包晶反应这两个关键技术难题,生长出了高质量的 Fe_3Sn_2 单晶样品。通过原位洛伦兹电镜观测发现,该材料体系具有室温磁性斯格明子,并具有多种拓扑形态,而且在外部磁场作用下可以相互转化。作者进一步利用聚焦离子束(FIB)技术,采用空间几何受限方法,制备出了磁斯格明子单链排列的“赛道”纳米条带样品。实验发现,该样品中斯格明子可以在室温到630 K极宽温区内保持其尺寸及间距不变,这表明该材料中斯格明子具有极高的温度稳定性。在这些研究工作基础上,作者在“赛道”纳米条带样品中进一步实现了电流驱动的斯格明子自旋手性翻转。作者这一系列关于高温稳定性磁斯格明子材料以及相关器件的探索工作,从材料和器件两个方面推进了磁斯格明子材料的实用化。

关键词 磁斯格明子, 阻挫型磁体, 室温宽温域, “赛道”型存储器

Abstract Skyrmionic spin configurations have attracted considerable attention for their intriguing magneto-electrical properties. Here, we report the observation of frustrated magnetic skyrmions with extremely high temperature stability in the magnetic alloy Fe_3Sn_2 , and also the fabrication of skyrmion-based race-track memory devices. In this compound, the magnetic skyrmions possess various spin textures and can transform into each other under certain external magnetic fields. Furthermore, by using focused ion beam technology, a single skyrmion chain was fashioned into a geometrically confined race-track shape Fe_3Sn_2 nanostripe with a width of 600 nm. It was found that this single chain has extremely high temperature stability, and the size

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2017YFA0303202)、国家自然科学基金(批准号: 11974406)资助项目, 国家自然科学基金青年项目(批准号: 51901081)和中国科学院重点部署项目(批准号: KJZD-SW-M01)

and interspacing of the skyrmion bubbles remain unchanged from room temperature up to a record-high 630 K. We also observed the current-induced helicity reversal of Bloch-type skyrmions in a nanostructured Fe_3Sn_2 frustrated magnet. The critical pulse current density required to trigger the helicity reversal is $10^9 - 10^{10} \text{ A/m}^2$ with a corresponding pulse-width range of $1 \mu\text{s} - 100 \text{ ns}$. Our realization of this new type of extremely stable magnetic skyrmion and the fabrication of skyrmion-based race-track memory devices represent important steps towards the application of skyrmion-based spintronic devices.

Keywords magnetic skyrmions, frustrated magnet, room temperature and wide temperature window, race-track memory device

1 引言

磁斯格明子是一种具有拓扑保护的涡旋磁畴结构。由于它具有小尺寸、拓扑保护、低驱动电流密度(比驱动传统畴壁低5—6个数量级),以及对磁场、温度、电流、电场等多物理作用响应的特性,被认为是下一代高密度、高速度、低能耗存储器件的信息载体^[1-5]。现阶段,磁斯格明子的研究多集中于具有非中心对称结构的磁性材料中。在这些材料中,材料结构的对称破缺可以引入 Dzyaloshinskii—Moriya interaction (DM 相互作用),同时再考虑磁交换作用、磁各向异性以及外磁场,在一定的磁场和温度区间内就可以形成手性统一的磁斯格明子。目前,具有手性斯格明子的材料多集中于具有 B_{20} 结构的晶体以及具有重金属的多层膜结构中,例如 Co-Zn-Mn ^[6]、 MnSi ^[7-10]、 FeGe ^[11, 12]、 Cu_2OSeO_3 ^[13-15],以及具有多层结构的 Pt/Co/Ta 薄膜^[16, 17]等。

最近研究表明,斯格明子也可以存在于磁阻挫体系中。在这些材料中,磁竞争交换作用、磁偶极相互作用、轴各向异性以及外磁场之间的相互作用,起到了稳定斯格明子的作用。最早, Pereiro 等人^[18]理论预测在具有

Kagome 晶格的阻挫磁体中的斯格明子温度稳定性较好。最近, Zhang 等人^[19]通过微磁学模拟发现阻挫斯格明子的自旋手性可以在自旋极化电流的激发下实现连续翻转。这些新物理性质的发现,极大地激发了人们研究阻挫斯格明子的兴趣。然而现阶段,阻挫斯格明子方面的研究多集中于理论研究,本文将介绍我们近期在阻挫斯格明子实验方面的一系列进展,主要包括:首次在六角磁阻挫 Fe_3Sn_2 单晶中发现高温稳定性斯格明子以及基于 Fe_3Sn_2 单晶实现电流驱动斯格明子自旋手性翻转^[20-23]。

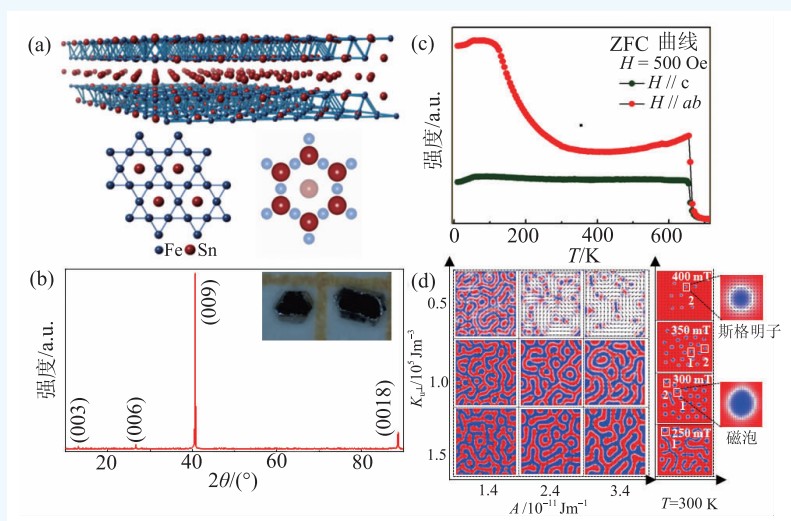


图1 Fe_3Sn_2 晶体结构、磁性能、磁畴模拟^[27] (a) Fe_3Sn_2 结构示意图; (b) Fe_3Sn_2 单晶样品沿 c 轴 X 光衍射图; (c) 在 500 Oe 外加磁场下,沿单晶不同轴向测量得到的磁性随温度变化曲线; (d) 利用 oommf 软件模拟得到的 200 nm 厚 Fe_3Sn_2 单晶薄片中的磁畴随轴各向异性常数 K_m 、磁交换常数 A 和外加磁场 H 的变化图

2 磁斯格明子的材料发现及性能调控

2.1 高温稳定性阻挫斯格明子发现

Fe_3Sn_2 是目前发现的少有的集高居里温度(640 K)和阻挫非共线自旋结构于一身的磁性材料^[24-27]。其具有空间群为 $R\bar{3}$ 的菱方结构,其结构图如图1(a)所示。其中,Fe-Sn双原子层和Sn原子层沿 c 轴交替排列,同时Fe原子和Sn原子在 ab 面内可以规则排列为Kagome晶格。基于前期文献^[25]以及我们的磁性测量结果(图1(b)),可以发现当外界温度接近 Fe_3Sn_2 居里点时,其易磁化轴沿 c 轴方向;而当温度降低时,其易磁化轴会逐渐向 ab 平面内偏转;当温度低于100 K时,其自旋将会无序排列,由长程铁磁态变为自旋玻璃态^[24-26]。

实验结果表明, Fe_3Sn_2 在100 K到640 K的极宽温度范围内都能具有稳定的非共线磁结构,这使得在其中发现具有极高温稳定性斯格明子成为可能。接下来,我们首先通过高

温助熔剂方法制备出了高质量的 Fe_3Sn_2 单晶样品。如图1(c)所示, Fe_3Sn_2 晶体呈六角薄片状,这与其晶体结构相吻合。我们通过X光衍射发现,该六角晶面的法线沿 $[001]$ 方向。进一步通过能谱分析,可以确定该晶体中Fe元素和Sn元素的原子比接近3:2,与理想原子比相吻合。同时我们也测量了其电阻率随温度的变化,发现其剩余电阻比($R_{300\text{K}}/R_{2\text{K}}$)可以达到70。以上结果表明,我们制备的 Fe_3Sn_2 晶体具有较高的质量。另外,我们测量了在不同温度下沿 Fe_3Sn_2 不同晶轴的 $M-H$ 曲线,这样可以得到温度对应的饱和磁化强度 M_s 和轴各向异性常数 K_u 。基于上述实验参数,通过微磁模拟oommf软件,我们模拟出了 Fe_3Sn_2 中的磁畴随轴各向异性常数 K_u 、饱和磁化强度 M_s 以及外加磁场 H 的变化,如图1(d)所示。可以发现,其磁畴形态变化受 M_s 影响较小而与 K_u 大小紧密相关。更为重要的是,在一定磁场下磁斯格明子可以出现,见图1(d),这表明在 Fe_3Sn_2 中非常有希望发现斯格明子。

为了实验验证微磁模拟的结果,我们利用聚焦离子束(FIB)技术从高质量的 Fe_3Sn_2 单晶中沿 (001) 方向切割出长、宽、厚分别为20 μm 、10 μm 、250 nm的单晶薄片样品。基于该样品,我们利用洛伦兹电镜在室温下观测其磁畴随外加磁场的变化,如图2(a-d)所示。在不加外场的情况下,样品中出现的是条纹畴,其相应的周期长度约为150 nm,如图2(a)所示。当外加磁场增加时,条纹畴的宽度逐渐减小,并逐渐收缩成哑铃状磁畴,而这些哑铃状的磁畴进一步收缩就生成了泡状磁畴。在图2(b)中出现的是哑铃状磁畴与泡状磁畴的共存态。当我们进一步增加外磁场时,哑铃状磁畴逐渐消失,泡状畴的数量逐渐增多。当外加磁场大于800 mT时,哑铃畴完全转化为泡状畴,如图2(c、d)所示。我们进一步对不同磁场下的泡状畴的自旋

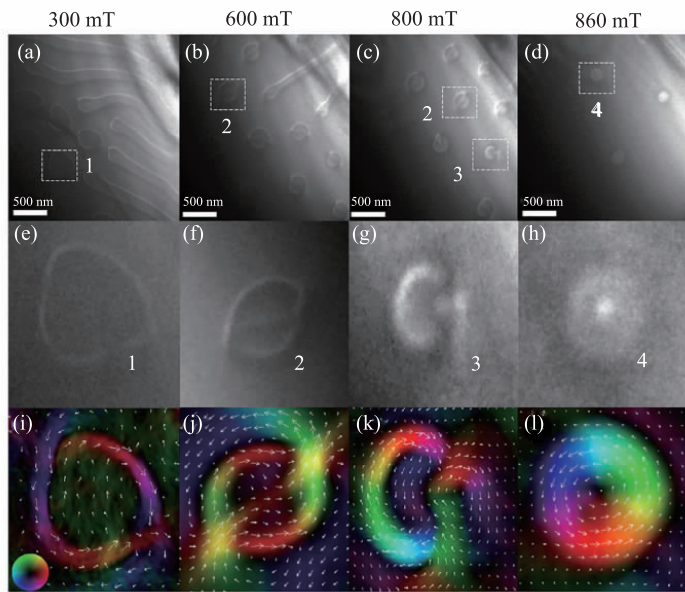


图2 室温下 Fe_3Sn_2 磁畴随磁场的变化^[20] (a—d)分别为在0 mT、400 mT、800 mT、860 mT外加磁场下洛伦兹电镜图片;白色方框内为具有不同自旋结构的磁泡;(e—g)“1”、“2”、“3”类泡状磁畴的电镜放大图;(i—k)“1”、“2”、“3”类泡状磁畴对应的自旋结构示意图;(h)和(l)分别是类Bloch型磁斯格明子电镜放大图和自旋结构示意图

结构进行了分析, 发现其自旋拓扑结构可以随外加磁场的变化而发生改变。如图2(a—c)所示, 白色方框标识了三种典型的泡状畴(分别用数字“1”、“2”、“3”表示), 其相对应的自旋结构分别对应图2(e—g)。可以发现, “1”型泡状畴由两个手性相反的布洛赫畴壁环绕组成, 由于自旋结构不闭合, 因此其对应的拓扑数等于0。随着外磁场增加, “1”型平庸型磁泡中一条布洛赫畴壁逐渐收缩闭合, 形成了“2”型泡状结构。由于其自旋结构的闭合性, “2”型磁泡对应的拓扑数是非0的, 因此其自旋结构是拓扑非平庸的。当磁场进一步增加到800 mT时, “2”型泡状畴中的布洛赫畴壁进一步收缩进而形成了“3”型泡状畴。“4”型泡状畴具有与Bloch型斯格明子相同的自旋结构, 因此其对应的拓扑数也为1。“3”型泡状畴和“4”型类Bloch磁斯格明子畴具有相同的拓扑数, 并且我们发现“3”型泡状畴可以随着外加磁场的增加通过畴壁移动连续变换成“4”型Bloch磁斯格明子畴, 因此二者是拓扑同胚的。以上实验结果表明, 在一定磁场区间内, 阻挫型磁体 Fe_3Sn_2 中在室温同样可以产生磁斯格明子。更有趣的是, 其并不像手性斯格明子具有单一的自旋结构, 本材料中的斯格明磁泡具有多种拓扑形态并可以随磁场连续发生变化。我们的结果为深入探索磁斯格明子的形成和稳定机理提供了新的方向。

2.2 阻挫斯格明子“赛道”样品制备

上述实验结果表明, 在一定的磁场区间内, 阻挫磁体 Fe_3Sn_2 中可以产生室温斯格明子。但是, 在该体系中斯格明子呈现出多拓扑

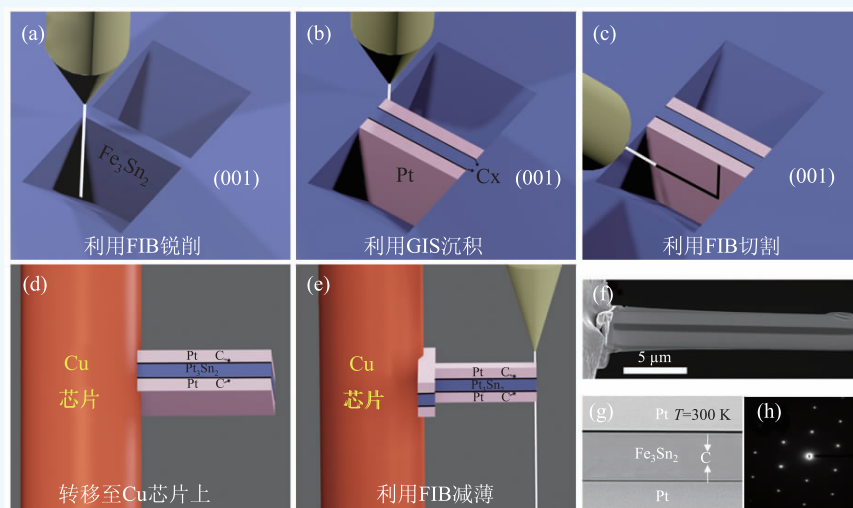


图3 基于高质量 Fe_3Sn_2 单晶制备“赛道”存储器件^[27] (a—e) 利用FIB技术制备“赛道”存储器件流程图; (f) 600 nm宽、250 nm厚“赛道”样品的扫描电镜图; (g) “赛道”样品在STEM模式下的透射电镜图; (h) “赛道”样品的电子衍射图

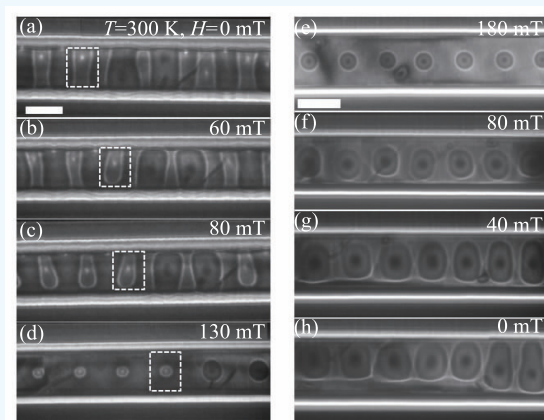


图4 基于高质量 Fe_3Sn_2 单晶制备“赛道”存储器件^[22] (a—d) 600 nm宽、250 nm厚“赛道”磁畴随磁场增加的变化; (e—h) “赛道”样品磁畴随磁场降低的变化

态并且其产生磁场很高(860 mT), 不利于实际应用。因此, 我们下一步的工作重点是如何实现单一拓扑态、如何降低斯格明子产生需要的临界磁场。下面我们将介绍我们利用几何边界受限解决上述问题的一系列工作。基于FIB技术, 我们首先制备出了具有高度几何受限作用的“赛道”样品^[27]。在图3(a—e)中我们展示了基于FIB技术制备“赛道”样品的示意图。图3(f)是宽度为600 nm、厚度为250 nm的“赛道”样品扫描电镜图片。

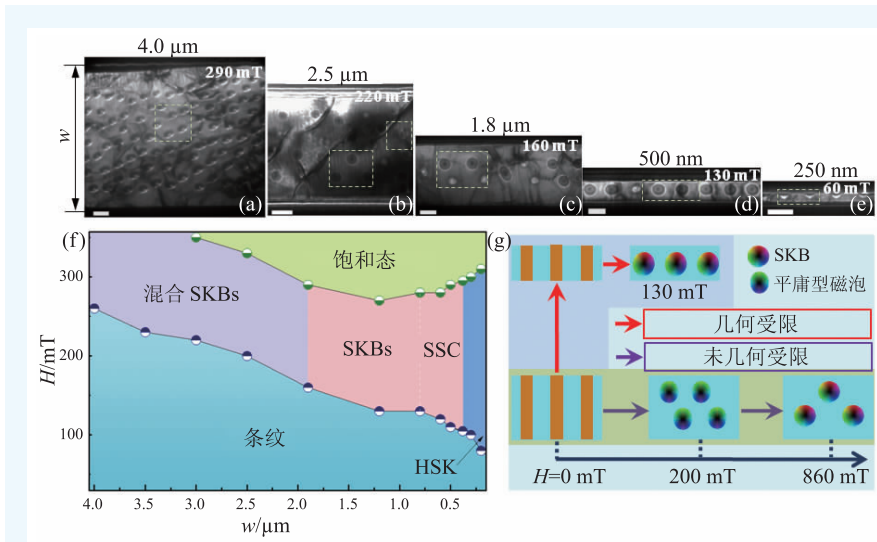


图5 Fe_3Sn_2 中磁畴演化随“赛道”样品宽度的变化相图^[22] (a—e)不同宽度样品中产生泡状磁畴状态以及临界磁场; (f) Fe_3Sn_2 中磁畴演化随“赛道”样品宽度的变化相图; (g) 几何受限和未几何受限样品中磁畴演化示意图

在图 3(g) 中我们给出了“赛道”样品在 STEM 模式下的电镜图。可以发现，样品由三层结构组成：最内层是 600 nm 宽的 Fe_3Sn_2 单晶层，通过电子衍射可以知道其法线沿 [001] 方向； Fe_3Sn_2 外面两层分别为 C 层和 Pt 层，这两层不仅可以减少边界处的菲涅尔条纹，同时可以降低 FIB 制备过程中对单晶层的损坏。

下面我们通过洛伦兹电镜观测对室温下 600 nm 宽的“赛道”样品中的磁畴随外磁场的变化关系进行详细研究，如图 4(a—d) 所示。在零外场时，我们可以发现样品中的条纹畴沿着“赛道”的长轴方向整齐排列，其周期为 180 nm，略微大于上面薄片样品中条纹畴的周期 150 nm。当外加磁场增大时，条纹畴会逐渐收缩，然后在“赛道”的边界处环绕成一个类似“半斯格明子”的磁畴结构。随着磁场进一步增加至 130 mT 以上时，“半斯格明子”进而收缩成完整的斯格明子从边界处脱离出来，并沿“赛道”链状排列。与前面提到的未几何受限的样品比较，“赛道”样品中条纹畴直接转化为传统的斯格明子，没有磁泡以及多拓扑态斯格明子形成，并且产生斯格明子的临界磁场也从 860 mT 降低到 130 mT。另外，我们发现

即使将外加磁场去掉斯格明子依然可以稳定存在。以上结果表明，几何受限作用可以调控 Fe_3Sn_2 中斯格明子的产生临场和拓扑形态。

为了进一步验证几何受限对 Fe_3Sn_2 中磁畴演化的影响，我们利用 FIB 制备出了具有不同宽度的“赛道”样品，如图 5(a—e) 所示。我们发现随着样品宽度的降低，样品中的磁泡逐渐消失而斯格明子逐渐增多，当样品宽度降低到 500 nm 时，只有斯格明子产生，并且沿“赛道”呈链状排列。同时，其临界磁场也随宽度的降低而逐渐减小。另外，我们发现，当样品尺寸降低到 250 nm 时，由于样品宽度低于斯格明子的直径，在临界磁场下，无法形成完整的斯格明子，而是形成“半斯格明子”。基于上述实验数据，我们进一步描绘出了磁畴随磁场演变与样品宽度的相图，如图 5(f—g) 所示。我们发现，在 Fe_3Sn_2 中几何受限可以引起其磁畴拓扑形态的转变，并且这种拓扑形态转变是一种连续变化的过程，并且可以降低斯格明子产生的临界磁场。以上结果无论对拓扑物理研究还是斯格明子的实际应用都具有重要的意义。

2.3 高温稳定性阻挫斯格明子单链

2.3 高温稳定性阻挫斯格明子单链

我们进一步利用洛伦兹电镜，对制备的斯格明子单链的温度稳定性进行深入研究。图 6(a—d) 展示了 600 nm 宽样品中磁斯格明子单链在其临界场下随温度变化的洛伦兹电镜图片。从图中可以看到，一方面随着温度的上升其临界磁场显著降低，另一方面，磁斯格明子非常的稳定，甚至当温度高达 630 K 时 (Fe_3Sn_2 单晶居里温度 T_c 为

640 K)依然能够稳定存在,这也是迄今为止报道的具有最高稳定温度的磁性斯格明子^[10, 28-30]。

2.4 电流驱动斯格明子自旋手性翻转

上述工作表明,我们可以通过空间几何受限的方法,获得具有高温区稳定性的磁斯格明子单列结构。进一步,我们通过FIB技术,成功制备出单列磁斯格明子微纳器件,如图7所示。随后我们利用高分辨洛伦兹透射电镜并结合电流脉冲技术,实时观测到电流驱动磁斯格明子自旋手性的反转现象。

如图8所示,在外加脉冲电流的能量密度达到 10^9-10^{10} A/m²这个门槛值(比驱动传统磁畴壁低2—3个数量级)时,磁斯格明子自旋排列的手性在左旋(counterclockwise)和右旋(clockwise)之间交替变换。进一步,我们结合微磁理论模拟获得了自旋手性反转过程的一个完整物理图像。

如图9所示,当能量较小的极化电流通过单列磁斯格明子微纳器件,在自旋转移力矩的作用下,几何受限磁斯格明子的形状会发生扭曲。但由于受拓扑保护,扭曲的磁斯格明子拓扑自旋结构不会发生改变。而由于左旋和右旋手性的磁斯格明子具有相同的能量,当注入的极化电流能量足够跨越两种自旋态之间的势垒时,磁斯格明子的自旋手性会在自旋转移力矩驱动下,在左旋和右旋之间发生连续反转,整个(左旋→右旋或右旋→左旋)翻转过程在几个纳秒之内完成。我们揭示的几何受限磁斯格明子自旋手性反转的物理图像,不仅对磁斯格明子自旋结构的多场调控研究具有重要价值,同时也对磁斯格明子材料器件应用化具有重要的指导意义。

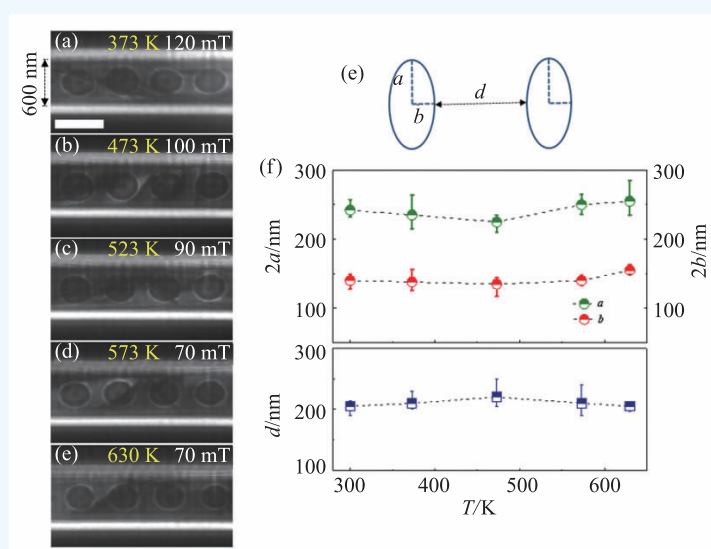


图6 600 nm宽“赛道”样品中斯格明子的温度稳定性研究^[21] (a—d) 600 nm宽赛道样品中斯格明子单链随温度的变化; (e) 假设斯格明子为椭圆形的示意图; (f) 斯格明子长轴、短轴以及相邻两个斯格明子之间距离随温度的变化

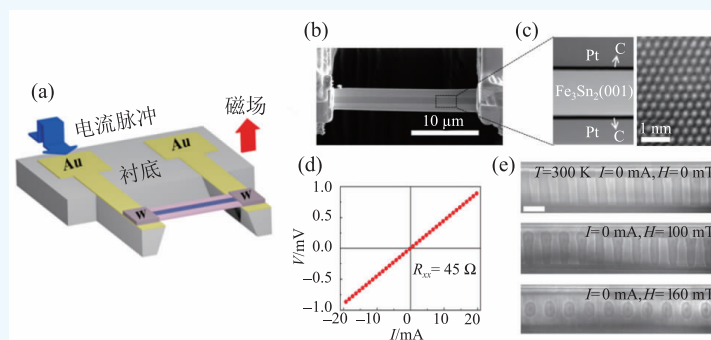


图7 基于Fe₃Sn₂单晶的磁斯格明子电流器件制备^[23] (a)斯格明子电流器件图; (b)“赛道”样品的扫描电镜图; (c)“赛道”样品局部区域的高分辨透射电镜图; (d)器件的I—V曲线图; (e)“赛道”样品中磁畴随磁场变化图

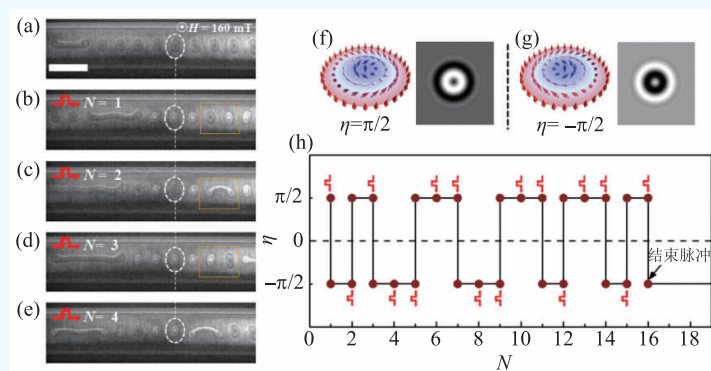


图8 电流驱动斯格明子自旋手性翻转^[23] (a—e)磁畴随通入电流脉冲的变化图; (f—g)不同自旋手性斯格明子自旋结构图与模拟电镜图片; (h)斯格明子自旋手性值随脉冲电流的变化图

3 结论

磁斯格明子是一种具有拓扑保护的涡旋磁畴结构。由于它具有小尺寸、拓扑保护、低驱动电流密度(比驱动传统畴壁低5—6个数量级),以及对磁场、温度、电流、电场等多物理作用响应的特性,被认为是下一代高密度、高速度、低能耗存储器件的信息载体。本文报道了阻挫型磁体 Fe_3Sn_2 中高温稳定性磁斯格明子材料的发现以及利用电流实现斯格明子自旋手性翻转的一系列工作。我们首先生长出了高质量的 Fe_3Sn_2 单晶样品。通过洛伦兹电镜观测发现,该材料体系具有室温磁性斯格明子。这种斯格明子具有多种拓扑形态,并可以在一定磁场下相互转化。我们进一步利用FIB技术,制备出了磁斯格明子单链排列的“赛道”样品。实验发现,该样品中斯格明子可以在室温到630 K极宽温区内保持其高度稳定性。在此基础上,我们在“赛道”样品中进一步实现了电流驱动的斯格明子自旋手性翻转。

参考文献

- [1] Skyrme TH R. Nucl. Phys., 1962, 31:556
- [2] Yamada K, Kasai S, Nakatani Y *et al.* Nat. Mater., 2007, 6:269
- [3] Hertel R, Schneider C M. Phys. Rev. Lett., 2006, 97:177202
- [4] Fert A, Cros V, Sampaio J. Nat. Nanotech., 2013, 8:152
- [5] Nagaosa N, Tokura Y. Nat. Nanotech., 2013, 8:899
- [6] Tokunaga Y, Yu X Z, White J S *et al.* Nat. Commun., 2015, 6:7638
- [7] Mühlbauer S, Binz B, Jonietz F *et al.* Science, 2009, 323:915
- [8] Neubauer A, Pfleiderer C, Binz B *et al.* Phys. Rev. Lett., 2009, 102:186602
- [9] Pappas C, Lelivre-Berna E, Falus P *et al.* Phys. Rev. Lett., 2009, 102:197202
- [10] Tonomura A, Yu X Z, Yanagisawa K *et al.* Nano Lett., 2012, 12:1673
- [11] Yu X Z, Kanazawa N, Onose Y *et al.* Nat. Mater., 2011, 10:106
- [12] Wilhelm H, Baenitz M, Schmidt M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2011, 107:127203
- [13] Seki S, Yu X Z, Ishiwata S *et al.* Science, 2012, 336:198
- [14] Adams T, Chacon A, Wagner M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2012, 108:237204
- [15] Seki S, Ishiwata S, Tokura Y. Phys. Rev. B, 2012, 86:060403

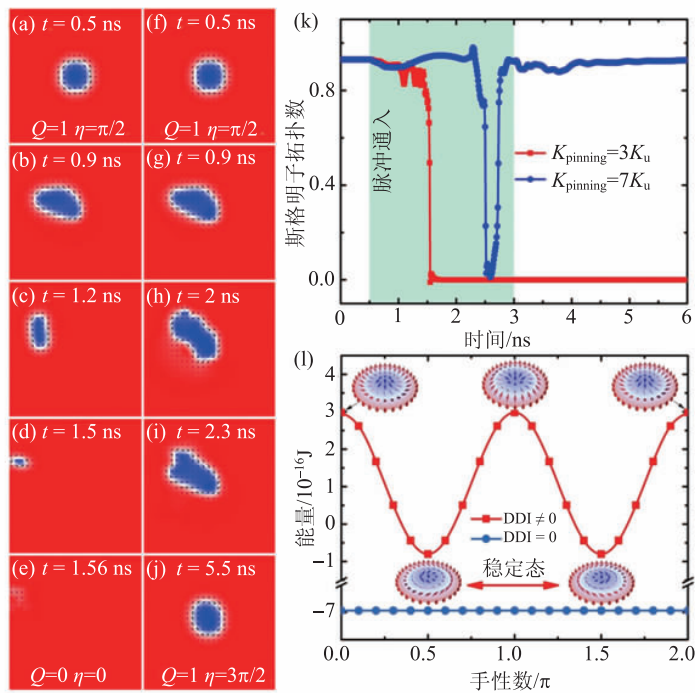


图9 微磁模拟斯格明子自旋手性翻转^[23] (a—e)斯格明子在弱钉扎下随通入电流脉冲的变化图;(f—j)斯格明子在强钉扎下随通入电流脉冲的变化图;(k)斯格明子的拓扑数随脉冲电流的通入时间变化图;(l)不同类型斯格明子的能量随手性数的变化图

我们这一系列关于高温稳定性磁斯格明子材料以及相关器件的探索工作,从材料和器件两个方面推进了磁斯格明子材料的实用化。

- [16] Wang L, Liu C, Mehmood N *et al.* ACS Appl. Mater. Interfaces, 2019, 11:12098
- [17] Woo S, Litzius K, Krüger B *et al.* Nat. Mater., 2016, 15:501
- [18] Pereiro M, Yudin D, Chico H *et al.* Nat. Commun., 2014, 5:4815
- [19] Zhang X C, Xia J, Zhou Y *et al.* Nat. Commun., 2017, 8:1717
- [20] Hou Z, Ren W, Ding B *et al.* Adv. Mater., 2017, 29:1701144
- [21] Hou Z, Zhang Q, Xu G *et al.* Nano Lett., 2018, 18:1274
- [22] Hou Z, Zhang Q, Xu G Z *et al.* ACS Nano, 2019, 13:922
- [23] Hou Z, Zhang Q, Zhang X *et al.* Adv. Mater., 2019, 32:1904815
- [24] Fenner L A, Dee A A, Wills A S. J. Phys.: Condens. Matter., 2009, 21:452202
- [25] Wang Q, Sun S S, Zhang X *et al.* Phys. Rev. B, 2016, 94:075135
- [26] Kida T, Fenner L A, Dee A A *et al.* J. Phys.: Condens. Matter., 2011, 23:112205
- [27] Hou Z, Ding B, Li H *et al.* Acta Physica Sinica, 2018, 67:137509
- [28] Wang W H, Zhang Y, Xu G *et al.* Adv. Mater., 2016, 28:6887
- [29] Phatak C, Heinonen O, Graef M D *et al.* Nano Lett., 2016, 16:4141
- [30] Nayak A K, Kumar V, Ma T P *et al.* Nature, 2017, 548:566