

報告番号	甲 第 14493 号
------	-------------

主 論 文 の 要 旨

論文題目 **カイラル充填 β -Mn 構造を有する磁気スキルミオンのトポロジカル量子物性の研究
(Studies of topological quantum properties of magnetic skyrmions with the filled β -Mn-type chiral structure)**

氏 名 強 博文

論 文 内 容 の 要 旨

本論文では、トポロジカルの安定性と微小サイズのメリットから次世代スピントロニクスデバイスへの応用が期待されている磁気スキルミオンの作成と評価に関する研究成果をまとめた。具体的には、カイラル磁性体の中で充填型 β -Mn 構造をもち磁性元素を変えることでカイラル強磁性体 ($\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{N}$) とカイラル反強磁性体 ($\text{Co}_2\text{Mo}_3\text{N}$) が母物質となり、磁性元素サイトに重金属 Pd をドーピングすることで D/J 制御が可能な $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$ (FPMN) および $\text{Co}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$ (CPMN) に着目し、薄膜成長と重金属 Pd ドーピングによる D/J 制御を行った。得られた薄膜試料において磁気特性と量子輸送特性の評価を行い電気的検出手法と合わせて磁気相図を得た。また、実空間観察手法を用いて形成されるスキルミオン磁気構造の評価を行った。さらに、得られた磁気特性および量子特性の結果から D と J の値の導出を行い、充填型 β -Mn 構造カイラル磁性体における磁気構造の D/J 制御の効果について定性的な評価を行った。

本論文は全 8 章で構成され、それぞれの章の概要を以下に示す。

第 1 章では、スピントロニクスデバイスの応用分野における磁気スキルミオンの位置づけについて述べ、磁気スキルミオン構造の発現メカニズムを担う理論をカイラル磁性体中の Dzyalonskii-Moriya 相互作用 (DMI) を起源とするスキルミオンを例に示した。次に、スキルミオンの観察および電気的検出手法として本研究で用いたローレンツ透過型電子顕微鏡 (Lorentz-TEM) 観察、X 線磁気円二色性光電子顕微鏡 (XMCD-PEEM) 観察およびトポロジカルホール効果 (THE)、ノンコリニア磁気抵抗効果 (NCMR) の各手法についてその原

理と磁気スキルミオンの研究への適用事例についてそれぞれ述べた。さらに、カイラル磁性体における磁気スキルミオン観測のこれまでの研究においては、室温以上のスキルミオン動作温度の報告例はハーフホイスラー構造を有する $\text{Mn}_{1.4}\text{Pt}_{0.9}\text{Pd}_{0.1}\text{Sn}$ 合金と $\beta\text{-Mn}$ 構造を有する Co-Zn-Mn 系合金のみであり、そのスキルミオンサイズは 100nm 以上と比較的大きく、強磁性スキルミオンの報告のみであることを示した。これらの背景から、本研究において着目した、強磁性体および反強磁性体を母物質とし、DMI 相互作用の強さを重元素 Pd ドープにより制御可能な充填型 $\beta\text{-Mn}$ 構造を有するカイラル磁性体 FPMN および CPMN の構造的特徴と強磁性スキルミオンおよび反強磁性スキルミオンにおいて期待される THE 検出の結果について示した。以上から、本研究は、微小サイズで室温動作可能な強磁性および反強磁性スキルミオンの実現と反強磁性スキルミオン検出にも適用可能な電氣的検出手法を探索することを目的として行った。

第 2 章では、実験方法を示した。まず薄膜作製方法として用いた、マグネトロンスパッタリング法における Pd ドープ量制御の方法および薄膜作製条件を示し、エピタキシャル薄膜成長した薄膜を得る上で重要となる、FPMN および CPMN に対するミスマッチが少ない基板としてサファイヤ基板上を選択した結果、サファイヤ基板の C 面上における酸素終端に対して、充填型 $\beta\text{-Mn}$ 構造の (110) 面成長することで FPMN および CPMN に対して母物質で 1.5% および 0.7% と非常に小さなミスマッチが達成されることを示した。次に、NCMR を検出する上で必要となるトンネリングデバイス加工のプロセスおよび条件について説明した。また、X 線回折法 (XRD) による構造解析および高周波誘導結合プラズマ法 (ICP) およびエネルギー分散型 X 線分光法 (EDX) を用いた組成分析の方法について示した。さらに、磁化測定、電気抵抗測定、ホール効果および磁気抵抗効果測定の原理とセットアップ方法についてまとめた。また、Lorentz-TEM イメージング観察、XMCD 測定、XMCD-PEEM イメージング観察の原理、方法、セットアップについてもその概要を示した。

第 3 章から第 5 章では、強磁性 FPMN 薄膜における本研究の成果をまとめた。まず、第 3 章では、FPMN のエピタキシャル薄膜を得ることに成功した成膜条件の探索法を具体的に示し、面直格子定数が Pd 組成に対して線形となることから FPMN の 8c サイトにおける Fe サイトに Pd がドープされていることを明らかにした。次に磁気特性から、本研究で得られた FPMN が $x = 0.15, 0.32, 0.54$ 全ての組成において室温まで強磁性が達成されることを示した。また、トポロジカルホール効果測定の結果から、FPMN ($x = 0.32$) および FPMN ($x = 0.54$) の薄膜試料においてスキルミオン形成に伴うと考えられるトポロジカルホール効果が観測されることを示した。観測されるトポロジカルホール抵抗率は 100 K 近傍においてスキルミオン有効磁場の符号反転に起因することが予測される符号反転を示すことを明らかにした。さらに、FPMN ($x = 0.32$) 薄膜試料においては、100 K 以下でスキルミオンと共存したスピンキャンティング磁気転移が存在すると結論づけた。また、FPMN ($x = 0.32$)/MgO/Pt/Cu トンネリング素子における磁気抵抗効果測定の結果から、トポロジカルホール効果と類似した NCMR を観測することに成功したことを示した。

第4章では、FPMN ($x = 0.32$) 薄膜試料における 30 K での Fe $L_{2,3}$ 吸収端における XMCD 測定の結果をまとめた。FPMN ($x = 0.32$) 薄膜試料の 30 K における弱磁場下(+ 20 mT) の Fe $L_{2,3}$ 吸収端 XMCD 測定の結果、Fe 元素の磁性に由来する明確な XMCD が得られることを明らかにした。FPMN ($x = 0.32$) 薄膜試料の 30 K での Fe L_3 吸収端における XMCD 強度の磁場依存性から得られた磁気ヒステリシス曲線において、ゼロ磁場に対して非対称な弱磁場領域における異常が観測されることを見出した。観測された異常は強磁性体中に局所的にスキルミオンが形成されることにより生じる Fe 元素の磁気モーメント変化によるものであると結論づけた。

第5章では、Lorentz-TEM 法および XMCD-PEEM 法を用いて FPMN ($x = 0.32$) 薄膜試料における磁気スキルミオン構造の観察を行った結果をまとめた。まず、Lorentz-TEM 法を用いて FPMN 薄膜試料 ($x = 0.32$, 厚さ 50 nm) における磁気スキルミオン構造の観察を行った結果から、①室温ゼロ磁場近傍 (25 mT) の条件下で FPMN 薄膜試料において疎に配列するサイズ約 60 nm のスキルミオンがらせん磁気構造と共存する様子および②低温 (約 90 K) 低磁場 (205 mT) の条件で FPMN 薄膜試料において室温に比べて相対的に密に配列するサイズ室温と同程度の約 60 nm のスキルミオンを観測したことを示した。次に、XMCD-PEEM 法を用いて FPMN 薄膜試料 ($x = 0.32$, 厚さ 30 nm, 1.5 nm Pt キャップ層あり) における磁気スキルミオン構造の観察を行った結果から、PMN 薄膜試料を面直方向に着磁した後、室温無磁場の条件下で Fe L_3 CD 像と Fe L_2 CD 像の間で XMCD 強度が反転するサイズ約 30-40 nm の丸状ドメイン構造と長さ 100 nm、幅 30-40 nm の弓状ドメイン構造が観測されることを示した。

第6章では、反強磁性 CPMN 薄膜の磁気特性と量子輸送特性についてまとめた。まず、CPMN のエピタキシャル薄膜を得ることに成功した成膜条件の探索法を具体的に示し、面直格子定数が Pd 組成に対して線形となることから CPMN の 8c サイトにおける Co サイトに Pd がドーピングされていることを明らかにした。次に、CPMN 薄膜の磁気特性から、Spiral-I 相、AFM-I 相、Spiral-II 相および AFM-II 相の 4 つの磁気相が存在することを示した。Spiral-I 相および AFM-I 相は $\text{Co}_2\text{Mo}_3\text{N}$ バルク母相と同様のらせん磁気相および反強磁性相と帰結した。一方で、Spiral-II 相および AFM-II 相は Pd ドーピングにより DMI が増強し、価電子密度が増大した短周期らせん磁性相およびキャンピング反強磁性相と帰結した。さらに、トポロジカルホール効果と NCMR の結果から、Spiral-II 相においては両者が観測されることを見出し、磁場中で短周期らせん磁気相が強磁性スキルミオンに転移することを明らかにした。また、AFM-II 相においてはトポロジカルホール効果が消失するのに対して NCMR は観測されることを示した。さらに、Spiral-II 相および AFM-II 相でトポロジカルなスピン構造に由来すると考えられる巨大な異常ホール効果が存在することを明らかにした。これらの結果は、AFM-II 相においては、キャンピング反強磁性が磁場中で有効磁場を示さない反強磁性スキルミオンに転移することを示唆すると結論づけた。

第7章では、充填型 β -Mn 構造カイラル磁性体における磁気構造の D/J 制御の結果をま

とめた。本研究で得られた強磁性 FPMN と反強磁性 CPMN 薄膜における磁気特性および量子輸送特性から DM 相互作用 D および交換相互作用 J の値を導出した結果、FPMN の室温において見積もられる強磁性スキルミオンサイズは Lorentz-TEM における観察結果と同等の $\lambda \sim 60\text{nm}$ 程度で組成依存をほとんど示さないことを示した。一方、CPMN の Spiral-II 相において見積もられる強磁性スキルミオンサイズは最小値 $\lambda \sim 3.2\text{ nm}$ となることを示した。ここで、見積もられる極小サイズスキルミオンは磁気フラストレーションの効果によるものと考えている。次に、 D/J の Pd 組成依存性から、 D/J が最大となる Pd ドープ量が FPMN において $x = 0.32$ 、CPMN において $x = 1.38$ となることを示した。この結果は、Pd に対する価電子数の差の違いが Fe の方が Co に対して大きいことに起因して、フェルミ準位近傍における状態密度が変化することに起因すると考察した。さらに、DM 相互作用の最大値は FPMN($x=0.32$) において $25.4 \times 10^{-4}\text{ J/m}^2$ 、CPMN($x=1.38$) において $78.2 \times 10^{-4}\text{ J/m}^2$ となり、これまでに報告例のあるスキルミオンホストカイラル磁性体の値に比べ 10 倍以上大きいことが明らかになった。

最後に第 8 章では、結論として本研究の成果について総括し、今後の展望について示した。本研究により、FPMN 薄膜試料において Lorentz-TEM による実空間スキルミオン磁気構造の観測を含めてその実証がされ、CPMN 薄膜試料においてもトポロジカルホール効果の消失と巨大な異常ホール効果の観測により、ある程度高い可能性で室温反強磁性スキルミオンが生成されていることが示されたと結論づけた。さらに、NMR 検出が FPMN および CPMN の双方で示されたことにより、この手法が反強磁性スキルミオンに対しても適用可能な電氣的検出手法であることを示した。