

## 論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 14493 号
------	---------------

氏 名 強 博文

### 論 文 題 目

カイラル充填  $\beta$ -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  $\beta$ -Mn-type chiral structure)

### 論文審査担当者

主査	名古屋大学	シンクロトロン光研究センター	准教授	伊藤 孝寛
委員	名古屋大学	シンクロトロン光研究センター	教授	高嶋 圭史
委員	名古屋産業科学研究所	研究部	上席研究員	浅野 秀文
委員	名古屋大学	未来材料・システム研究所	教授	加藤 剛志
委員	名古屋大学	未来材料・システム研究所	准教授	栞原 真人
委員	名古屋大学	未来材料・システム研究所	准教授	宮町 俊生

## 論文審査の結果の要旨

強博文君提出の論文「カイラル充填  $\beta$ -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」は、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、充填型  $\beta$ -Mn構造をもつカイラル強磁性体および反強磁性体の薄膜成長と重金属PdドーブによるD/J制御を行い、得られた薄膜試料における磁気特性と量子輸送特性を多角的な検出／観察手法を用いて評価した結果をまとめたものであり、全体で8章から構成されている。各章の概要は以下の通りである。

第1章では、スピントロニクスデバイス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、Dzyaloshinskii-Moriya相互作用 (DMI) を起源とするカイラル磁性体中のスキルミオンを例に磁気スキルミオン構造発現メカニズムを担う理論的背景、および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) を用いたスキルミオン観察および電氣的検出手法の原理と現状についてまとめている。さらに、カイラル磁性体において報告されている磁気スキルミオンで、室温以上のスキルミオン動作温度の報告例は100nmサイズ以上と比較的大きな強磁性スキルミオンにおけるもののみであることを示し、充填  $\beta$ -Mn構造を有するカイラル磁性体Fe<sub>2-x</sub>PdxMo<sub>3</sub>N (FPMN) およびFe<sub>2-x</sub>PdxMo<sub>3</sub>N (CPMN) を対象とした本研究の着眼点と経緯について目的とともに述べている。

第2章では、マグネトロンスパッタリング法におけるPdドーブ量制御方法および薄膜作製条件について示している。特に、FPMNおよびCPMN薄膜を得る基板としてc面サファイヤ基板を選択することで、充填型  $\beta$ -Mn構造の(110)面との非常に小さなミスマッチが達成される、という着眼点は本研究において結晶性の高いエピタキシャル薄膜を成長する上で重要なポイントとなっている。次に、NCMR検出のための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、XRD、ICPおよびEDXを用いた構造解析および組成分析の方法、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それぞれの原理と方法をまとめ、Lorentz-TEMイメージング観察、XMCD測定およびXMCD-PEEMイメージング観察の原理と方法についてその概要を示している。

第3章から第5章では、強磁性FPMN薄膜における成果がまとめられている。

第3章では、FPMNエピタキシャル薄膜を得ることに成功した成膜条件とその探索法について詳細に示し、充填型  $\beta$ -Mn構造の8c FeサイトにPdをドーブすることで得た、 $x=0.15$ 、 $0.32$ 、 $0.54$ の磁気特性から、すべ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ている。また、 $x=0.32$ および $x=0.54$ 薄膜試料においては、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、観測されるトポロジカルホール抵抗率が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ている。さらに、トポロジカルホール抵抗率の詳細解析の結果から $x = 0.32$  薄膜試料において観測される100 K以下のトポロジカルホール効果の増大はスキルミオン有効磁場の符号反転と独立したスピンキャンティング磁気転移の存在によるものと結論づけている。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ている。特に、トポロジカルホール効果と対応付けられるNCMRの観測結果は、反強磁性スキルミオン検出にも適用可能な磁気スキルミオンの電氣的検出手法として本研究で初めて成功した結果であり、特筆すべき成果であるといえる。

第4章では、FPMN ( $x = 0.32$ ) 薄膜試料における30 KでのFe L<sub>2,3</sub>吸収端におけるXMCD測定の結果から、FPMN ( $x = 0.32$ ) 薄膜試料の30 Kにおける弱磁場下(+20 mT)のFe L<sub>2,3</sub>吸収端において明確なXMCDが得られること、および、Fe L<sub>3</sub>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示し、観測された異常が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ている。

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についてまとめられている。まず、Lorentz-TEM観察から、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) の条件下でFPMN薄膜試料において室温に比べて相対的に配列する室温と同程度の約60 nmサイズのスキルミオンを観測に成功した結果が示されている。この結果は、FPMN ( $x = 0.32$ ) 薄膜における60nmサイズの室温強磁性スキルミオン形成を明確に実証した結果であり、特に顕著な成果と言える。さらに、XMCD-PEEM観察から、FPMN ( $x = 0.32$ ) 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<sub>3</sub> CD像とFe L<sub>2</sub> 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の形成を示唆する結果について示している。

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ている。まず、CPMNエピタキシャル薄膜を得ることに成功した成膜条件とその探索法について詳細に示し、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ている。さらに、①AFM-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は観測されることと②Spiral-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から、AFM-II相においては、キャント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

## 論文審査の結果の要旨

論づけている。特に、AFM-II相が室温以上まで存在すると考えられることは、室温反強磁性スキルミオンの可能性を初めて示した結果であり、磁気散乱の影響を受けない次世代スピントロニクスデバイス開発の見地からも重要な成果と言える。

第7章では、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を用いて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から、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、一方で、CPMNのSpiral-II相における強磁性スキルミオンサイズは最小値 $\lambda \sim 3.2\text{nm}$ と見積もられる結果を示している。さらに、D/JのPd組成依存性から、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 $78.2 \times 10^{-4} \text{ J/m}^2$ と見積もられ、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倍以上大きいことを明らかにし、重金属PdドーブによるD/J制御の実現によりスキルミオンの高い動作温度と微小サイズの両立が実現したものと結論づけている。

第8章では、本研究の成果を要約・結論づけた上で、FPMN薄膜試料における室温微小サイズ強磁性スキルミオンのLorentz-TEM観察による実証と、CPMN薄膜試料における室温極小サイズ反強磁性スキルミオンの生成を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およびNCMR検出により示した結果についてまとめ、総括としている。

以上のように本論文では、充填型 $\beta$ -Mn構造を有するカイラル磁性体における磁気スキルミオンのトポロジカル量子物性を、薄膜試料作成から磁気・伝導特性評価、量子輸送現象観測および空間磁気ドメイン構造の観測までを包括的に行うことにより明らかにしている。さらに、強磁性および反強磁性スキルミオンの双方で適用可能なNCMR測定の実証し、D/J制御の効果に対する系統的な考察も示している。これらの成果は、微小サイズ室温動作強磁性/反強磁性スキルミオンの次世代スキルミオンデバイスへの応用を実現する上で重要であり、工学の発展に寄与するところが大きいと判断できる。よって、本論文の提出者である強博文君は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格があると判断した。