## MgO(001)単結晶基板上における Mn-N 薄膜のエピタキシャル成長

桑山亮太<sup>1</sup>・今村光佑<sup>1</sup>・大竹充<sup>1</sup>・磯上慎二<sup>2</sup>・川井哲郎<sup>1</sup>・二本正昭<sup>1</sup>・桐野文良<sup>3</sup>・稲葉信幸<sup>4</sup> (<sup>1</sup>横浜国大,<sup>2</sup>物材機構,<sup>3</sup>東京藝大,<sup>4</sup>山形大)

Epitaxial Growth of Mn-N Thin Films on MgO(001) Single-Crystal Substrates

Ryota Kuwayama<sup>1</sup>, Kosuke Imamura<sup>1</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup>, Shinji Isogami<sup>2</sup>, Tetsuroh Kawai<sup>1</sup>,

Masaaki Futamoto<sup>1</sup>, Fumiyoshi Kirino<sup>3</sup>, Nobuyuki Inaba<sup>4</sup>

(<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>NIMS, <sup>3</sup>Tokyo Univ. Arts, <sup>4</sup>Yamagata Univ.)

**<u><b>はじめに**</u> 窒化マンガンの  $\varepsilon$ 相(Mn<sub>4</sub>N, ピアソン記号: *cP5*, 空間群: *Pm3m*)は, エピタキシャル成長した薄膜の形体で  $K_u$ =8.8×10<sup>5</sup> erg/cm<sup>3</sup><sup>1</sup>)程度の比較的高い垂直磁気異方性を有することから,磁気ランダムアクセスメモリなどのスピントロニクス応用に向けて盛んに研究されている化合物相である<sup>1-4)</sup>. これまで,物理気相成長法を活用して  $\varepsilon$  相を含む Mn-N 薄膜が形成され,構造や磁気特性などが調べられている.また,デバイス応用を見据えた場合,特にスパッタリング法による膜形成が有効である.しかしながら,スパッタ条件と  $\varepsilon$  を含む相形成の対応関係は必ずしも系統的には明らかにされておらず,Mn-N 系における各相の形成条件を明確化する必要がある.本研究では,反応性スパッタリング法を用いて Mn-N 薄膜を MgO(001)単結晶基板上に形成し,広範に N<sub>2</sub> 分圧比を変化させることにより,相形成と膜成長を詳細に調べた.また,各相が単相で形成されるN<sub>2</sub>分圧比の条件において,基板温度を RT から 600 °C の間で変化させ,最適な形成温度の検討も行った.

**実験方法** 超高真空 RF マグネトロン・スパッタリング装置を用いて、全圧が 0.67 Pa となるように調整した Ar と N<sub>2</sub>の混合ガス雰囲気下で Mn と N をスパッタすることにより MgO(001)基板上に 40 nm 厚の Mn-N 薄膜を形成 した. 基板温度を RT~600 °C, N<sub>2</sub>分圧比を 0~10% (概要掲載データ)の間で変化させた. 構造評価には RHEED, XRD, XPS, AFM, 磁気特性評価には AHE 測定装置を用いた.

**実験結果** 400 °C の MgO(001)基板上に N<sub>2</sub>分圧比を 0~10% で変化させることにより形成した膜の RHEED パターン を Fig. 1(a-1)-(c-1)に示す. 純 Ar でスパッタした N<sub>2</sub>分圧比が 0%の場合, Fig. 1(a-2)に模式的に示す  $\alpha$  相 (ピアソン記 号: cl58, 空間群: l43m) の Mn(001)単結晶表面に対応する回折パターンが現れており, Mn(001)[110] || MgO(001)[100] の方位関係で単結晶 Mn 薄膜がエピタキシャル成長していることが分かった (格子ミスマッチ: -7.2%). N<sub>2</sub>分圧比 を 3% まで増加させると, Fig. 1(b-2)に示す  $\epsilon$ -Mn<sub>4</sub>N(001)表面に対応する回折パターンが観察されており, Mn<sub>4</sub>N(001)[100] || MgO(001)[100]の関係で単結晶 Mn<sub>4</sub>N 薄膜が得られた (格子ミスマッチ: -8.3%). 更に N<sub>2</sub>分圧比 を 10% まで増やすと, Fig. 1(c-2)に示す  $\eta$  相 (ピアソン記号: t10, 空間群: 14/mmm) の Mn<sub>3</sub>N<sub>2</sub>(001)表面からの反射 が現れており, Mn<sub>3</sub>N<sub>2</sub>(001)[110] || MgO(001)[100]の関係で単結晶 Mn<sub>3</sub>N<sub>2</sub>薄膜が形成された(格子ミスマッチ: -0.7%).

Fig. 1(a-3)-(c-3)に上記の膜に対して測定 した面外 XRD パターンを示す.0%,3%, 10%の N<sub>2</sub>分圧比で形成した膜は、それぞ れ、 $\alpha$ 、 $\epsilon$ 、 $\eta$  相のみからの回折が生じて おり、RHEED 解析結果と一致している. また、N<sub>2</sub>分圧比 0%と 3%の間では $\alpha$ と  $\epsilon$ 相、3%と 10%の間では $\epsilon$ と $\eta$  相が膜中に 混在した.当日は、基板温度を変化させ た膜および N<sub>2</sub>分圧比 10%以上の条件で 形成した膜の構造と磁気特性について も報告する.

- 1) K. Kabara and M. Tsunoda: J. Appl. Phys., **117**, 17B512 (2015).
- S. Isogami, K. Masuda, and Y. Miura: *Phys. Rev. Mater.*, 4, 014406 (2020).
- Y. Yasutomi, K. Ito, T. Sanai, K. Toko, and T. Suemasu: *J. Appl. Phys.*, **115**, 17A935 (2014).
- W. Li, R. Tanaka, T. Usami, T. Gao, T. Harumoto, Y. Nakamura, J. Shi: *Mater. Lett.*, **311**, 131615 (2022).





## (111) 面配向したノンコリニア Mn<sub>4</sub>N 単一磁性層における 無磁場中電気的磁化反転と磁気異方性との相関

<sup>○</sup>磯上慎二, ナガリンガム ラジャマニカン, 小塚裕介, 高橋有紀子 (国立研究開発法人物質・材料研究機構)

## Co-relationship between current-driven magnetization switching and magnetic anisotropy in a 111-oriented Mn<sub>4</sub>N magnetic single layer <sup>O</sup>S. Isogami, N. Rajamanickam, Y. Kozuka, and Y. K. Takahashi

(National Institute for Materials Science)

**1. はじめに** 逆ペロブスカイト型マンガン窒化物 (Mn<sub>3</sub>XN) は,電子バンド構造のトポロジーを起源 とする巨大異常ホール効果を示すことから注目を集めている<sup>1)</sup>.また,同じ結晶構造を有する強磁性 Fe4N, フェリ磁性 Mn<sub>4</sub>N においても興味深い磁気特性やスピン輸送現象が古くから報告されており<sup>2)-7)</sup>,これ らの遷移金属窒化物系は今後のスピントロニクス新材料候補として期待が高まっている<sup>8),9)</sup>.最新の研 究では,垂直磁化したフェリ磁性薄膜 Mn<sub>4</sub>N(60 nm) / Pt(4 nm)接合体において電流誘起スピン軌道トルク による磁化反転が報告されている<sup>10)</sup>.しかし反転電流密度は 10<sup>7</sup> A/cm<sup>2</sup>になっており,実用的な観点で は約 1 桁程度の低減が望まれる.よって本研究では,Mn<sub>4</sub>N 薄膜が本質的に示す比較的強い垂直磁気異 方性<sup>11)</sup>を低減しつつ磁気構造の熱安定性を維持するアプローチをもって,電流誘起磁化反転の更なる低 減を試みた.その結果,10<sup>6</sup> A/cm<sup>2</sup>台の反転電流密度が達成されたと同時に,スピンホール Pt 層の接合 無し,且つ無磁場下にて磁化反転する興味深い現象を導出したので報告する<sup>12)</sup>.

**2. 実験方法** 試料の膜構成は、MgO(111)単結晶基板/Mn4N(30)/Al(2)(膜厚単位:nm)とした.Mn4N 膜の成長には窒素反応性 DC マグネトロンスパッタリング法を用いた.結晶構造解析と磁化過程評価にはそれぞれ、X 線回折装置、透過電子顕微鏡と振動試料型磁力計を用いた.Mn4N 薄膜は基板上に(111)面双晶を伴いながら成長し、磁化容易軸は垂直には存在しないことが判った.電流誘起磁化反転を実証するため、微細加工にて8端子素子を作製し、磁化反転には面内に流す電流パルス(Jw)を、磁化状態検出には異常ホール測定を用いた.比較のため、従来の垂直磁化した Mn4N サンプルを作製し、同様の方法で測定を行った.

<u>3. 実験結果</u> Figure 1(a)は、(111)面配向した  $Mn_4N$  薄膜に対し、極性の異なる 2 つの  $J_w$  を流した後の 磁区状態に対応する異常ホール信号 ( $\rho_{xy}$ ) をプロットしたものである.ここで  $J_w$  の絶対値は 1  $MA/cm^2$ , パルス幅は 1 s に固定した.また、 $J_w$  パルス印加毎に行う $\rho_{xy}$  の測定を 1 サイクルと定義した.その結果、  $J_w$  の極性反転の前後で $\rho_{xy}$  に急峻な変化が観測され、 $\rho_{xy}(J_w=0)$  値をゼロとする縦軸オフセット処理した

ときの振幅はほぼ同等であった.これは Mn<sub>4</sub>N の磁区状態が  $J_w$  に対応して反転したことを示 唆する. Figure 1(b)は,比較のために作製した (001)面配向のサンプルに関する結果であるが, 磁化反転は認められなかった.これらは,(111) 面配向でノンコリニア化した Mn<sub>4</sub>N の磁気構造 が,無磁場中の電流誘起磁化反転に有利であっ たことを示唆している.講演会では磁気構造の 詳細を含め, Mn<sub>4</sub>N 単一膜で磁化反転が実現す る原理を議論する予定である.



Fig.1 Current-driven magnetization switching in 111-oriented (a) and 001-oriented (b)  $Mn_4N$  films using positive and negative writing current ( $J_w$ ).

#### <u>参考文献</u>

1) V.T.N. Huyen, et al., PRB 100, 094426 (2019). 2) S. Isogami, et al., APEX. 3, 103002 (2010). 4) K. Ito, et al., JAP. 116, 053912 (2014). 5) S. Isogami, et al., APEX. 10, 073005 (2017). 7) S. Isogami, et al., APL. 118, 092407 (2021). 8) 角田匡清ら, 日本磁気学会報「まぐね」11, 125 (2016). 10) H. Bai, et al., Adv. Electron. Mater. 8, 2100772 (2021). 11) S. Isogami, et al., PRMater. 4, 014406 (2020).

3) S. Kokado, et al., JPSJ. 81, 024705 (2012). 6) T. Hajiri, et al., APL. 115, 052403 (2019). 9) 磯上慎二, 日本磁気学会報「まぐね」17, 89 (2022). 12) S. Isogami, et al., AIP Adv. 11, 105314 (2021).

## 非金属軽元素の操作によるノンコリニア型 Mn4N 磁気構造の制御

# ○磯上慎二<sup>1</sup>, 大竹 充<sup>2</sup>, 高橋有紀子<sup>1</sup> (<sup>1</sup>物質・材料研究機構, <sup>2</sup>横浜国立大学) Tailored non-collinear magnetic structures of Mn₄N thin films by light elements <sup>○</sup>S. Isogami <sup>1</sup>, M. Ohtake <sup>2</sup>, and Y. K. Takahashi <sup>1</sup>

#### (<sup>1</sup> National Institute for Materials Science, <sup>2</sup> Yokohama National University)

1. はじめに ノンコリニア磁気構造の効率的な制御は電流誘起磁化反転素子の反転電流密度の低減に 直結するため、研究が盛んになってきている. 例えば、Mn<sub>3</sub>Sn ワイル反強磁性体<sup>1)</sup>、Mn<sub>3</sub>GaN 反強磁性 体<sup>2)</sup>などの薄膜において、磁区状態の電気的制御や反転が報告された. Mn<sub>4</sub>N は垂直磁気異方性をもつ コリニア型のフェリ磁性体として広く知られるが<sup>3)</sup>、我々はこれまで(111)配向させた Mn<sub>4</sub>N 薄膜を作製 し、単一層にて1 MA/cm<sup>2</sup>の反転電流密度を実証した<sup>4)</sup>. これはノンコリニア型への磁気構造の変化が 主要因として考えられるが、その詳細は理論計算以外に確認されていなかった<sup>5)</sup>. よって本研究ではス ピンのトポロジー性を起源として検出されるトポロジカルホール効果(THE)の測定、および磁化の温 度依存性の評価を通して、間接的にノンコリニア磁気構造の解明を試みた. その結果、室温から低温領 域まで安定して THE が観測されたことから、比較的安定なノンコプラナー型の磁気構造が存在するこ とが判った. また発展として、非金属軽元素:ホウ素(B)を僅か数 at.%加えるだけで磁気構造の安定 性を意図的に制御できることも判明したので報告する<sup>6)</sup>.

2. 実験方法 試料の膜構成は、MgO(111)単結晶基板/ Mn₄N (23) / Al (2) (膜厚単位:nm)とした. Mn₄N 膜の成長には窒素反応性 DC マグネトロンスパッタリング法を用いた. 単結晶基板を数 mm サイズにカットし、THE および磁化の温度依存性の測定はそれぞれ、PPMS および MPMS 装置を用いて行った. 測定温度は室温から5Kまでとした. 添加したBの定量分析は誘導結合プラズマ発光分析装置を用いて行った. 結晶構造解析にはX線回折装置を用いた.

<u>3. 実験結果</u> Figure 1(a)の赤色で示す履歴曲線は、測定温度 300 K における THE の面直磁場依存性を 示す. ここで THE 成分はホール効果測定全体(Total)から、異常ホール効果による成分(AHE)を差 し引いた値に相当する.比較的小さな磁場 $\mu_0H_z \sim 0.1$  T 近傍で THE の履歴曲線がピーク値を示すことか ら、(111)面配向 Mn<sub>4</sub>N 薄膜におけるノンコプラナー型の磁気構造は、室温で安定であることが判った. Figure 1(b)は THE 成分の AHE 成分に対する比を測定温度に対してプロットした結果を示す.温度が低 下するにつれ徐々に増大し、ほぼ1に接近したが、これは(111)配向 Mn<sub>4</sub>N 薄膜におけるノンコプラナー

型磁気構造の安定性が低温側でより顕在化したものと考えられる.さらにBを最大2.1 at.% 添加した場合は,比の値が全温度領域について一様に低減することが判った.これは B の添加に対して,スピンの相対位置関係は維持しながらも,スピン間に働く交換相関結合が希釈されたものと推察される.講演会では,更に(110)配向させた場合の結果を加味しながら,磁気構造を意図的に操作する上での軽元素(B)の役割を議論する.

#### 参考文献

- 1) Y. Takeuchi, et al., Nat. Mater. 20, 1364 (2021).
- 2) T. Hajiri, et al., APL. 115, 052403 (2019).
- 3) 例えば S. Isogami, et al., PRMater. 4, 014406 (2020).
- 4) S. Isogami, et al., AIP Adv. 11, 105314 (2021).
- 5) M. Uhl, et al., PRB. 55, 2995 (1997)
- 6) S. Isogami, et al., JAP. 131, 073904 (2022).



Fig.1 (a,b) Extraction of the anomalous and topological Hall resistivity from the total transverse Hall resistivity ( $\rho_{xy}$ ) (a) and temperature (*T*) dependence of the topological Hall amplitude ( $\rho_{xy}^{\text{THE}} / \rho_{xy}^{\text{AHE}}$  ratio) (b) for the (111)-oriented Mn<sub>4</sub>N films with B-doping, where the ordinary Hall resistivity was subtracted.

-107 -

## Mn<sub>4</sub>N単結晶薄膜におけるNサイトのB原子による部分置換の可能性

今村光佑<sup>1</sup>•中村優太<sup>1</sup>•野呂翔太<sup>1</sup>•磯上慎二<sup>2</sup>•大竹充<sup>1</sup> (1横浜国大,2物材機構)

## Possibility of N Site Replacement with B Atom in Mn<sub>4</sub>N Single-Crystal Thin Film Kosuke Imamura<sup>1</sup>, Yuta Nakamura<sup>1</sup>, Shota Noro<sup>1</sup>, Shinji Isogami<sup>2</sup> and Mitsuru Ohtake<sup>1</sup> (<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>NIMS)

はじめに MnAN 薄膜は、格子歪を伴って垂直磁気異方性を示し、磁壁の移動速度が大きいことなどから、スピントロニ クス・デバイスへの応用に向けて注目されている <sup>15</sup>. Mn,N は Mn の fcc 格子の体心位置に N が侵入した L'1 型の結晶構造 をとるフェリ磁性体 (ε相, プロトタイプ: Fe<sub>4</sub>N, 空間群: Pm3m) で,角位置の Mn を他元素で置き換ることが可能であ り、これまで、Co, Ni, Zn, Ga, Ge などで置換し、特性評価が行われているの. 我々はNサイト側の他元素置換の可能性 を探るために, 軽元素のうちNと原子半径の同程度であるBに注目した<sup>5</sup>. MnとBの原子半径比は0.54で, 侵入型金属 間化合物の存在可能性を経験的に示す Hagg 則の範囲内であるものの、安定相として L'1 型の MndB なる化合物については 報告されていない.一方,窒化物への軽元素添加の例として FetaN2への C 添加なども試みられていることから <sup>ヵ</sup>,Mn<sub>4</sub>N に 微量添加する形で N サイトの一部を B に置換できる可能性がある. そこで本研究では、 Mn N への B 添加による化学結合 状態の変化と磁気特性に与える影響を調べた.

実験方法 超高真空マグネトロン・スパッタリング法により、Ar と N2の混合ガス下で Mn および B ターゲットをコス パッタすることで, MgO(001)基板上に 30 nm 厚の Mn-B-N 膜を形成した. このとき, Mn ターゲットに対する DC 投入電 力および Ar に対する № 流量比は,それぞれ Mn,Nの形成が確認できた 30 W および 30%とし,一方, B ターゲットに加 える RF 電力は0~60W の間で変化させた. 表面粗さの増大を抑制しつつ規則度および結晶性を向上させるために, 基板 温度 250 °C で膜形成を行った後,450 °C まで昇温して1 時間の熱処理を施した. 室温に冷却後,2 nm 厚の Al 保護層を 形成した.構造評価に XRD, XPS, ICP-OES, AFM, 磁気特性評価には VSM, トルク磁力計<sup>8</sup>, AHE 測定装置を用いた.

実験結果 0~60 W で B ターゲットをスパッタし, B 添加量を変化させたいずれの場合においても, L'1 構造をもつ膜が エピタキシャル成長していることを確認し, ICP 発光分析法にて評価した B 組成比は 0~8.5 at. % であった. 0, 30, 60 W と した場合の膜のBlsの光電子スペクトルをFig.1(a)に示す.格子内にBが存在し,Nの代わりにBがMnと結合しているこ とを示すピークを確認できる. 一方, 一部の B は N と結合していることが分かる. そして, B-Mn と B-N 結合の割合は, 30 と 60 W の膜で逆転しており、B 添加量が少ない場合は B-Mn 結合が優勢であり、B 添加量が増加すると固溶限界を超え たBはNと結合してしまうことが示唆される. Fig. 1(b)にAHEループを示す. Bを添加した場合においても、多少弱まる ものの,垂直磁気異方性が得られていることが分かる. Fig. 1(c)にKuを示す. B 添加によりKuが少しずつ減少していくこと が分かる.本研究により, Mn<sub>i</sub>N構造におけるNサイトのB原子による部分置換の可能性が実験的に示され,また,添加量 の制御により垂直磁気異方性の維持も可能であることが示された.



(a) XPS spectra of B 1s, (b) AHE loops, and (c)  $K_u$  measured for single-crystal Mn<sub>4</sub>(N,B) films. Fig. 1

- 1)
- 2)
- 3) 4)
- 5)
- K. Kabara and M. Tsunoda: J. Appl. Phys., 117, 17B512 (2015).
  Y. Yasutomi, K. Ito, T. Sanai, K. Toko, and T. Suemasu: J. Appl. Phys., 115, 17A935 (2014).
  X. Shen, A. Chikamatsu, K. Shigematsu, Y. Hirose, T. Fukumura, and T. Hasegawa: Appl. Phys. Lett., 105, 072410 (2014).
  W. Li, R. Tanaka, T. Usami, T. Gao, T. Harumoto, Y. Nakamura, and J. Shi: Mater. Lett., 311, 131615 (2021).
  S. Isogami, M. Ohtake, and Y. K. Takahashi: J. Appl. Phys., 131, 073904 (2022).
  K. Takenaka, M. Ichigo, T. Hamada, A. Ozawa, T. Shibayama, T. Inagaki, and K. Asano: Sci. Tech. Adv. Mater, 15, 1 (2014).
  M. Tobise, Y. Nomura, M. Kodama, T. Murakami, and S. Saito: IEEE Trans. Magn., 1 (2022) [in press].
  T. Ono, N. Kikuchi, S. Okamoto, O. Kitakami, and T. Shimatsu: Appl. Phys. Express, 11, 033002 (2018). 6)

## 垂直磁気異方性を示す(001)面配向した Mn4N 多結晶薄膜の形成

中村優太<sup>1</sup>・今村光佑<sup>1</sup>・野呂翔太<sup>1</sup>・磯上慎二<sup>2</sup>・大竹充<sup>1</sup> (<sup>1</sup>横浜国大,<sup>2</sup>物材機構)

## Preparation of (001)-Oriented Mn<sub>4</sub>N Poly-Crystalline Thin Film with Perpendicular Magnetic Anisotropy Yuta Nakamura<sup>1</sup>, Kosuke Imamura<sup>1</sup>, Shota Noro<sup>1</sup>, Shinji Isogami<sup>2</sup>, Mitsuru Ohtake<sup>1</sup> (<sup>1</sup>Yokohama Nat. Univ., <sup>2</sup>NIMS)

**はじめに** Mn<sub>4</sub>N 薄膜は格子歪に起因して垂直磁気異方性が発現し(*K*<sub>u</sub> = 8.8×10<sup>-5</sup> erg/cm<sup>3</sup>)<sup>1</sup>),飽和磁化も小さく(*M*<sub>s</sub> = 110 emu/cm<sup>3</sup>)<sup>1</sup>),また,磁壁の移動速度が速い(900 m/s)<sup>2</sup>)ことから,スピントロニクス関連のメモリやストレージへの応用に向けて注目されている.これまでの研究では,(001)単結晶基板上に Mn<sub>4</sub>N 単結晶膜をエピタキシャル成長させている場合が多い<sup>1-6</sup>).デバイス応用のためには多結晶膜を形成することも重要であるが,MnO下地層上における形成報告<sup>7,8</sup>が僅かにあるだけで,多結晶膜形成に関する研究は十分には行われていない.本研究では,熱酸化 Si 基板上に形成した(001)面配向の MgO 下地層上に,垂直磁気異方性を有す Mn<sub>4</sub>N 多結晶薄膜を形成することを試みた.

**実験方法** 膜形成には DC/RF マグネトロン・スパッタリン グ装置を用いた. 熱酸化 Si 基板上に 3 nm 厚の Ta シード層 および 10 nm 厚の MgO 下地層を形成した. 次に, Ar と N<sub>2</sub> の混合ガス雰囲気下(全圧:0.27 Pa, N<sub>2</sub>分圧比:35%)で Mn ターゲットをスパッタすることにより 22 nm 厚の Mn-N 膜を形成した. 最後に, 3 nm 厚の MgO キャップ層を形成 した. 製膜時の基板温度は室温とし, その後, 250~450 ℃ の間の一定温度で熱処理を施した. 構造評価には XRD, XPS, AFM, 磁気特性評価には AHE 測定装置を用いた.

**実験結果** 250~450 ℃ のいずれの温度で熱処理を施した 試料においても,(001)面配向した Mn4N 薄膜が得られた. Fig. 1 に 450 ℃ で熱処理した Mn-N 膜の XRD パターンを例 として示す. 基板と下地層からの Si(004)および MgO(002) 反射に加えて, Mn4N(002)反射が現れていることが分かる. Fig. 2 には熱処理前 (as depo.) と 250~450 ℃ で熱処理し た膜の AHE ループを示す. 熱処理温度が上昇するにつれ 保磁力と角型の増大が認められたことから, Mn4N 薄膜の (001)面配向性が促進したものと考えられる.

- 1) K. Kabara and M. Tsunoda: J. Appl. Phys., 117, 17B512 (2015).
- T. Gushi, M. J. Klug, J. P. Garcia, S. Ghosh, J. P. Attané, H. Okuno, O. Fruchart, J. Vogel, T. Suemasu, S. Pizzini, and L. Vila: *Nano Lett.*, **19**, 8716 (2019).
- 3) S. Nakagawa and M. Naoe: J. Appl. Phys., 75, 6568 (1994).
- Y. Yasutomi, K. Ito, T. Sanai, K. Toko, and T. Suemasu: J. Appl. Phys., 115, 17A935 (2014).
- 5) S. Isogami, K. Masuda, and Y. Miura: Phys. Rev. Mater., 4, 014406 (2020).
- 6) X. Shen, A. Chikamatsu, K. Shigematsu, Y. Hirose, T. Fukumura, and T. Hasegawa: Appl. Phys. Lett., 105, 072410 (2014).
- 7) K. -M. Ching, W. -D. Chang, and T. -S. Chin: J. Alloys Compd., 222, 184 (1995).
- 8) W. Li, R. Tanaka, T. Usami, T. Gao, T. Harumoto, Y. Nakamura, and J. Shi: Mater. Lett., 311, 131615 (2021).



**Fig. 1** Out-of-plane XRD pattern of Mn-N film annealed at 450 °C.



**Fig. 2** Anomalous Hall resistivity loops of Mn-N films annealed at different temperatures.

## Frustrated magnetic skyrmions: from two dimensions to three dimensions

X. Zhang<sup>1</sup>, J. Xia<sup>1</sup>, O. A. Tretiakov<sup>2</sup>, H. T. Diep<sup>3</sup>, J. Yang<sup>4</sup>, G. P. Zhao<sup>5</sup>, M. Ezawa<sup>6</sup>, Y. Zhou<sup>7</sup> and X. Liu<sup>1</sup> <sup>1</sup> Department of Electrical and Computer Engineering, Shinshu University, Nagano, Japan <sup>2</sup> School of Physics, The University of New South Wales, Australia

<sup>3</sup> Laboratoire de Physique Théorique et Modélisation, CY Cergy Paris Université, France

<sup>4</sup> State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, School of Physics, Peking University, China

<sup>5</sup> College of Physics and Electronic Engineering, Sichuan Normal University, China

<sup>6</sup> Department of Applied Physics, The University of Tokyo, Tokyo, Japan

<sup>7</sup> School of Science and Engineering, The Chinese University of Hong Kong (Shenzhen), China

Skyrmions are typical topological spin textures that can be stabilized in frustrated magnetic systems with competing exchange interactions [1-3]. They have multiple degrees of freedom, which could be manipulated by external driving forces and thus, may lead to novel applications, such as the helicity-based information processing. Therefore, it is important to understand the fundamental physical properties of frustrated skyrmions and to explore their potential applications. In this talk, I will first briefly introduce topological spin textures in magnetic systems [4]. I will then talk about the static and dynamic properties of isolated skyrmions in a magnetic monolayer with frustrated exchange interactions [3]. I will focus on the discussion of the dynamic behaviors of isolated skyrmions driven by spin torques, including linear motion and circular motion. Besides, I will discuss the current-induced bifurcation of a three-dimensional skyrmion string in a frustrated multilayer system [5]. I will show that three types of bifurcations could be realized by applying different current injection geometries, which lead to the transformation from I-shaped topological skyrmion strings to Y-, X-, and O-shaped ones. Finally, at the end of the talk, I will share some views on possible future directions for the study of topological spin textures, which are not limited to the frustrated magnetic systems.

## **References**

- 1) A. O. Leonov and M. Mostovoy, Nat. Commun. 6, 8275 (2015).
- 2) S.-Z. Lin and S. Hayami, Phys. Rev. B 93, 064430 (2016).
- 3) X. Zhang *et al.*, Nat. Commun. **8**, 1717 (2017).
- 4) X. Zhang et al., J. Phys. Condens. Matter 32, 143001 (2020).
- 5) J. Xia et al., Phys. Rev. B 105, 214402 (2022).



Fig. 1: Different types of two-dimensional (2D) and three-dimensional (3D) topological spin textures, including skyrmion, bimeron, skyrmionium, bimeronium, skyrmion string, bimeron string, and bifurcated skyrmion string.

## 磁気フラストレーション系における螺旋磁化構造の磁気特性

## 金田純、大江純一郎

#### (東邦大)

#### Numerical study on the helical magnetic structure in frustrate magnets

#### J. Kaneta, J. Ohe

(Toho Univ.)

## はじめに

強磁性結合と1軸 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用が共存する磁性体中では、螺旋磁化構造が形成される。 さらに、螺旋軸に垂直な磁場を印加することによって、カイラルソリトン格子と呼ばれる磁化構造ができる。 そこでは、ねじれた磁化構造がソリトンとしてふるまいトポロジカルに安定のため、磁化曲線はヒステリシ スを示す。微少薄膜試料を用いた実験ではヒステリシスが観測されているが、バルク試料ではヒステリシス は観測されていない[1]。この違いを明らかにするため、今回は磁気フラストレーション系における螺旋磁化 構造に注目し、その磁化構造の磁場による変化を数値シミュレーションを用いて解析した。

#### 解析方法

J<sub>1</sub>-J<sub>2</sub>の古典ハイゼンベルグ模型を用いて、磁化のダイナミクスを表す Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を数値 的に解いた。最近接相互作用の強さ J1 を強磁性、1 次元方向の次近接相互作用の強さ J2 を反強磁性にし、螺 旋軸に対して垂直方向に磁場を印加することで、磁化曲線の計算を行った。有限温度の効果として、揺動散 逸定理から求められるランダム磁場を印加した。

#### 解析結果

Fig.1 に Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用がある場合の、螺旋 磁化構造の磁化曲線を示す。増磁過程において、トポロジカ ルに安定なねじれた磁化構造は解消されず、ある閾磁場にお いて、強制強磁性状態になる。減磁過程においては、ねじれ た磁化構造は系の端からしか生成することができず、ゼロ磁 場近くの閾磁場において螺旋磁化構造になる。一方、磁気フ ラストレーションに現れる螺旋磁化構造での磁化曲線を Fig.2 に示す。Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用による螺旋磁化 構造の場合とは異なり、ヒステリシス構造は現れない。フラ ストレーション系では、ねじれた磁化構造は安定ではなく、 増磁過程において連続的に解消されてしまう。減磁過程にお いても、ねじれた磁化構造は個々のソリトンとして生成され ず、系全体に連続的に生成される。この違いは薄膜とバルク 結晶を用いた実験結果の違いを説明できる可能性がある。発 表では、別のフラストレーション系として、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用の向きが試料内で変化するような場合につい ての計算結果を報告する。

#### 参考文献

1) M. Mito et al., Phys. Rev. B 97, 024408 (2018).



Fig.1 Magnetization curves of helical magnetization structures due to Dzyaloshinskii-Moriya interaction with temperature effect



Fig.2 Magnetization curves of helical magnetization structures due to magnetic frustration.

## 円偏光によるフラストレート磁性体の磁化構造制御

宮田 麻那, 多々良 源\*, 大江 純一郎 東邦大学, 理研 CEMS\* Topological charge control of structure in frustrated magnets M. Miyata, G. Tatara\* and J. Ohe (Toho Univ., \*RIKEN CEMS)

円偏光を利用したフラストレート磁性体のトポロジカルチャージの制御に対して、数値的研究を行なった。*J<sub>1</sub>-J<sub>2</sub>-J<sub>3</sub>*相互作用を持つ古典ハイゼンベルク模型では、トポロジカルチャージが量子化された磁気スカーミオンが形成される[1]。フラストレーション系での磁気スカーミオンはトポロジカルチャージが逆の構造が縮退していて、系の中にランダムに分布する。先行研究により、光の有効ゲージ場と伝導電子と局所スピンの s-d 相互作用を考慮することで、円偏光がトポロジカルチャージとカップルすることがわかっている [2]。この効果をトポロジカル逆ファラデー効果と呼ぶ。本研究では、トポロジカル逆ファラデー効果の有効磁場の存在下で Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式を計算することによって、スピンダイナミクスを解明した。特に、有限温度において、スカーミオン構造が点対称にならない系や、スカーミオン構造が壊れてしまう系においての円偏光の効果を調べた。

LLG 方程式を数値的に解くために 4 次の Runge-Kutta 法を用いた。基底状態は磁化のランダム状態からの 緩和過程を利用して得た。トポロジカルチャージが系の中にランダムに分布した基底状態のスカーミオン構 造に円偏光を照射したときに、一部の負のトポロジカルチャージを持つスカーミオンだけがポロジカル逆フ ァラデー効果の影響を受け、正のトポロジカルチャージにスイッチングすることがわかった。

また、トポロジカル逆ファラデー効果の温度依存性を調べた。フラストレーション系での磁気スカーミオンは 30K 未満で出現する(Fig.1)。偏光の強度を L=0.4×10<sup>-8</sup> Tm<sup>2</sup> としたときの照射時間と温度の依存性を Fig.2 に示した。*C/C*<sub>0</sub>は初期状態と照射後のスカーミオンのトポロジカルチャージの比率を表している。スカーミオンが温度によって変更をうける領域でもトポロジカルチャージを制御でき、さらにスカーミオン構造 が壊れる領域でも、トポロジカルチャージ自体は系全体で制御できることが明らかになった。

計算や結果、本研究の応用先の詳細については講演にて報告する。





Fig.1 Temperature dependence of the skyrmion structure.

Fig.2 Temperature dependence of the control of the topological charge by using the light intensity (L=0.4 x 10-18 Tm2). C/C<sub>0</sub> represents the ratio of the topological charge between t=0 and after the pulse field is applied.

[1] T. Okubo, S. Chung, and H. Kawarura, Phys. Rev. Lett. 108, 017206 (2012)

<sup>[2]</sup> K. Taguchi, J. Ohe, and G. Tatara Phys. Rev. Lett. 109, 127204 (2012)

## ストレイントロニクスのための非対称形状セルラ・オートマトン

若林大河、後藤穣\*、鈴木義茂\*、野村光\* (大阪大学基礎工学研究科、\*大阪大学 CSRN) Asymmetric cellular-automaton for straintronics T. Wakabayashi, M. Goto\*, Y. Suzuki\*, and H. Nomura\* (Osaka Univ., \*CSRN Osaka)

MQCA (magnetic quantum cellular automata)とは、磁気的に相互作用しているナノドットの配列を用いて情報 の記憶・伝搬や論理演算を行う素子である。省エネルギー性の観点から注目されており、NAND/NOR 論理ゲ ートやシフトレジスタなどが提案されている<sup>1)</sup>。近年、この MQCA に歪みを印加することで駆動するストレ イントロニクスという手法が注目を集めている<sup>2)</sup>。この手法を応用することで更なる省エネルギー化や、歪 みに応答するデバイスの開発が可能となる。しかし、MQCA を歪みにより駆動する場合、従来の外部磁場駆 動の MQCA と比較して情報の伝搬方向制御が難しくなるという問題がある。そこで我々は、非対称形状のナ ノドットを用いることで、情報の伝搬方向の制御を試みた。これまでにナノドット端部の形状に依存し磁化 反転挙動が変化することが明らかとなっている<sup>3)</sup>。そこで本研究は、マイクロマグネティックシミュレータ (MuMax3<sup>4</sup>)を用い、非対称形状のナノドットを用いたストレイントロニクスデバイスにより情報の伝搬方向 が制御可能な素子を提案することを目的とした。

図 1(a)にシミュレーションに用いたナノドットの形状を、図 1 (b)にこのナノドットを3つ用いた情報伝搬素子の概要図を示 す。また図 2(a), (b)に2つの異なる初期磁化状態を示す。図 2(c), (d)に、図 2(a),(b)のそれぞれの初期磁化状態に対して、x 軸から 50度の向きに57 mTの一様な補助磁場を印加し、45度の向き に歪みをかけた際の磁化状態を示す。ここで、ナノドットの磁 化のx成分の平均値が0よりも大きい場合1、それ以外を0と する。 右向きこの結果から、非対称形状のナノドットを持つ 事で、一方向からの情報の影響を受けやすくなっていることが 明らかとなった。本手法を用いることで、ストレイントロニク スデバイスにおいても情報の伝搬方向を制御可能となる。

本研究は JST, CREST Grant Number JPMJCR20C6 の助成を受けて行われました。



Fig.1 Schematic illustrations of (a) asymmetric nanomagnet and (b) MQCA wire with asymmetric nanomagnets.



Fig.2 Magnetization state of initial state with binary state of (a) (0, 0, 1) and (b) (1, 0, 0). Simulation results. (c), (d) Relaxed magnetization state under an uniform magnetic field and strain with initial state of (a) and (b), respectively.

#### 参考文献

- 1) H. Nomura et al., Appl. Phys. Express 10, 123004 (2017).
- 2) N. D'Souza et al., Nano letters 16, 1069 (2016).
- 3) J. Li et al. AIP Advances 11, 045010 (2021).
- 4) Vansteenkiste et al., AIP Adv. 4, 107133 (2014).