

称号及び氏名	博士（工学） 島本 雄介
学位授与の日付	令和4年3月31日
論文名	「キラルスピンソリトン格子の 集団運動におけるマイクロ波デバイス機能」
論文審査委員	主査 戸川 欣彦 副査 石原 一 副査 藤村 紀文

論文要旨

情報通信技術の発達に伴い、300 MHz から 3 THz の電磁波であるマイクロ波を使った無線通信は今後もますます増えていくであろう。通信システムを大容量化、高速化するための方法の1つとして、使用する周波数帯域を拡張することが挙げられる。例えば、第6世代移動通信システム（6G）では、第5世代移動通信システム（5G）技術よりもさらに高い周波数である 90 GHz から数 100 GHz の高周波技術の開発が期待されている。

磁性材料はマイクロ波デバイスの材料として現在も研究開発されている。磁性材料はマイクロ波を共鳴吸収することができ、さらに印加する磁場強度に応じて共鳴周波数は変調される。このような特性を活かして、例えば、帯域可変バンドパスフィルター、すなわち、ある周波数の信号だけを透過して、かつ、その周波数を変調できるフィルタに磁性材料は利用されている。この周波数可変特性は、高周波素子の特性評価を行うネットワーク・アナライザなどの高周波計測装置やもっと大規模には電波望遠鏡に利用されており、磁性材料は高周波技術開発に必要な素材であると言える。しかし、既存の強磁性材料では、動作可能な周波数は数 GHz から 70 GHz 以下とされており、6G 技術の開発が期待されている周波数帯には届かない。6G 技術の開発のためには、全く新しい磁性材料に着目する必要があるだろう。

強磁性材料よりも高い周波数帯で磁気共鳴を実現する方法として、周期変調が可能な長周期磁気構造を使うことが挙げられる。物体の周期構造は、固体物理において重要な概念の1つである。結晶中を運動する電子の分散関係には、周期的ポテンシャルのためバンド構造が形成されるように、物質中に存在する周期構造は粒子や波の性質を変化させる。最近ではフォトニック結晶に代表されるように、微細加工技術を利用して超格子や超構造を人工的に作製することで、フォノン、プラズモン、マグノンといった準粒子の分散関係やバンド構造を制御しようとする研究が盛んに行われている。フォトニック結晶などの人工超構造の研究において、周期が変調できる超構造というのは、大変興味深い研究対象である。しかし、外場

を使って周期を変えられる物質は限られている。例えば、キラルスピンソリトン格子 (CSL) と呼ばれる磁気構造やチューナブルなフォトニック結晶として知られるキラルネマティック液晶など、結晶中に自然に形成される超構造において周期が可変であることが知られている。

本研究の対象である CSL は、スピンがらせん状にねじれた部位 (ソリトン) が周期的に整列した磁気構造である。CSL では印加する磁場強度を変えることで、ソリトン同士の間隔、つまり、らせん周期を連続的に変調することができる。これは、CSL 形成過程が秩序変数 (ソリトン密度) に従うためである。また、結晶キラリティによって保護されており、外部擾乱に対して堅牢に振る舞う。CSL はマクロなスケールでコヒーレントであり、周期変調が可能な磁気超構造とみなすことができる。

磁気超構造の並進対称性の破れに応じて、CSL フォノンモードと呼ばれる集団運動が出現することが理論研究で予言されている。磁気超構造の格子振動に該当するモードである。CSL フォノンの分散関係には、CSL の周期に応じて、ブリルアンゾーン (BZ) が形成される。分散関係のブランチは BZ の境界でパタパタと折りたたまれ、磁気共鳴の高次モードが広い周波数範囲で出現する。興味深いことに、CSL の周期を延ばすと、それに伴って BZ は小さくなり、高次モード間のエネルギーギャップは小さくなっていく。

つまり、CSL の周期を変調することで、従来の強磁性共鳴よりも高周波かつ広帯域な共鳴モードが期待できる。このように CSL は、6G の周波数帯域を担う新たな高周波磁性材料としての可能性を秘めているが、CSL の集団運動に関する実験研究は全くと言っていいほど報告されていない。

基礎物性の視点では、CSL や磁気キラルスキルミオンといったトポロジカルな磁気構造は、最近ホットな研究対象の 1 つである。CSL に関する研究は、2012 年にローレンツ透過型電子顕微鏡でその存在が直接観察されたのを皮切りに、急速に発展している。CSL の形成過程は、カイラルサインゴールドン模型と呼ばれる理論モデルを使って、解析的に記述することができる。そのため、理論研究の良い舞台となる。実際に、CSL の集団運動に関する理論研究では、CSL フォノンモードの他にも多彩なダイナミクスの存在が予言されている。このように、CSL の磁気共鳴に関する実験は、基礎物性の観点からも非常に興味深い。

これまでに述べてきたように、CSL の集団運動の観測は基礎と応用の両面から重要な研究課題である。そこで本研究では、CSL の高い構造制御性や安定性に着目し、CSL に固有なマイクロ波デバイス機能を実証することを研究目的とし、CSL の集団運動を実験的に精査した。

本論文は全 9 章から構成されており、以下に各章の概要を述べる。

第 1 章には、本研究の背景や目的、また、本論文の構成について記載している。第 2 章では、予備知識となる CSL 形成の理論解析についてまとめている。第 3 章では、CSL を発現するプロトタイプの物質として知られる CrNb_3S_6 結晶の作製方法を説明する。化学輸送法を用いて単結晶合成を行い、集束イオンビーム加工装置を用いてマイクロメートルサイズの微細結晶に加工した。第 4 章では、数値制御型フライスや電子線リソグラフィ法を使った高周波回路の作製方法を説明する。第 5 章は、磁気共鳴の計測技術についてまとめている。

第 6 章で、本研究の最大の成果である、CSL フォノンモードの観測について述べる。CSL フォノンの高次モードを 16 GHz から 40 GHz という広い周波数帯域で観測した。共鳴周波数を変化させるために必要な磁場の変化幅は、1 つ目の高次モードは 50 mT、2 つ目の高次モードは 6 mT、3 つ目の高次モードは 3 mT であり、小さな磁場変化で周波数を変調させることが可能である。また、1 次元カイラルサインゴールドン模型から導出される理論式にリーズナブルなパラメーターを加え、実験値をよく再現するフィッティング式を求めた。データフィッティングより得たパラメーターから、 CrNb_3S_6 結晶の反対称性相互作用 (ジャロシンスキー・守谷相互作用) の大きさを 2.67 K、ハイゼンベルグ型の対称性交換相互作用の大きさを 13.1 K と見積もった。強制強磁性相の共鳴モードのデータフィッティングから、一軸磁気異方定数を 1 K と見積もった。得られた CSL フォノンの理論曲線を外挿すると、3 つ目の高次モードは 100 GHz を超えるまで成長していくことが予測できる。つまり、CSL フ

オンモードは従来の強磁性共鳴よりも高周波かつ広帯域な範囲に現れる。最近になって CSL の存在が証明された CrTa_3S_6 結晶では、その物質パラメーターから CSL フォノンの周波数がさらに高くなり、サブテラヘルツ帯まで到達することが予測される。このように CSL は、6G の周波数帯域をカバーできる可能性を秘めた新しい磁性材料となりうる。

また、CSL フォノンモードは 2009 年に理論予言されてからこれまで誰も観測することができなかった CSL に固有の素励起である。磁気構造の並進対称性が破れることで現れる集団運動であり、その存在を実験的に証明したことは、基礎物性においても重要な役割を果たすであろう。そういった未知のモードを観測するために、良質な単結晶を合成するところから本研究はスタートしている。厳選した結晶に合わせてマイクロ波回路をデザインし、これまで行ってきた CSL の磁気共鳴実験の経験に基づいて戦略を練り、CSL フォノンモードを初めて観測した意義は大きい。

第 7 章では、マイクロメーターサイズの CrNb_3S_6 微細結晶を用いて、磁気共鳴の ON/OFF スwitching を実証した。コプレーナ線路の周りに発生する振動磁場分布を考慮し、結晶らせん軸を基板の面外方向に配置したデバイス構造をデザインした。微細加工技術を用いて磁気共鳴検出デバイスを作製し、振動磁場に対して静磁場を平行に印加した際に、強制強磁性相で磁気共鳴を 2 桁以上大きく抑制することに成功した。一方、CSL 相では、振動磁場に対して静磁場が平行な場合でも垂直な場合でも、磁気共鳴が出現する。つまり、臨界磁場以上の大きさの静磁場を振動磁場に対して平行に印加した状態では磁気共鳴が OFF 状態になり、静磁場の強度を小さくしたり静磁場の向きを変えることで、磁気共鳴を ON 状態にスイッチできる。そのような磁気共鳴のスイッチング応答は、シグナル分離デバイスへ応用することができるであろう。また、微細試料中のソリトン数が増えることに伴って共鳴周波数が離散的に変化する様子が明瞭に観測された。

第 8 章では、 CrNb_3S_6 微細結晶のマイクロ波伝搬実験において観測した異方的な伝搬特性について述べる。磁性材料中を伝搬するマイクロ波は、新たな省エネルギー電子情報技術の担い手として注目を集めている。そういった研究分野はマグノニクスと呼ばれている。マグノニクスでは、マイクロ波の伝搬特性の制御方法の確立が重要な研究課題の 1 つとされている。本研究では、CSL の高い構造制御性を利用して、マイクロ波伝搬特性を制御することを試みた。CSL やゼロ磁場で発現するキララらせん磁気構造 (CHM) の一軸性由来の対称性から、らせん軸に対してマイクロ波が平行に伝搬する配置と垂直に伝搬する配置の特性をそれぞれ調べた。マイクロ波の伝搬方向がらせん軸と平行になる配置では、磁場強度を大きくすることで、マイクロ波の伝搬強度が大きくなる様子が観測された。つまり、試料中のソリトンの数を減らすことでマイクロ波の伝搬が効率的になる。すなわち、この実験配置では、ソリトンがマイクロ波伝搬を阻害するものとして働いている。一方、マイクロ波の伝搬方向がらせん軸と垂直になる配置では、ゼロ磁場近傍の CHM 状態でのみ、伝搬強度が急激に大きくなる様子が観測された。CHM 状態の伝搬強度は、CSL 相に比べて約 9 倍程度大きくなっており、さらには強制強磁性状態の伝搬強度を凌駕する。つまり、この実験配置では、非線形な CSL ではなく線形な CHM 状態がマイクロ波伝搬の良導体として振る舞うことを意味している。これはマイクロ波の伝搬方向がらせん軸と平行になる配置とは対照的である。本研究成果は、CSL や CHM に固有の異方的なマイクロ波伝搬を利用することで、マイクロ波の強度や周波数だけでなく、伝搬方向も制御できる可能性を示唆している。

第 9 章で、本研究の総括を行う。本研究では、CSL の高周波特性を調べ、CSL フォノンモードの存在を実証した。CSL フォノンモードは、従来の強磁性共鳴よりも、高周波かつ広帯域な周波数領域で現れる。CSL は 6G の周波数帯域をカバーできる新たな磁性材料の候補となるだろう。CSL フォノンをさらに高周波するためには、らせん周期を短くする必要がある。その他にも、室温動作や絶縁性物質など、新たな CSL 材料の開発が今後の課題である。

審査結果の要旨

本論文は、キラルソリトン格子(Chiral Soliton Lattice: CSL)と呼ばれるキラル磁性結晶中に形成される磁気超構造が示す集団運動の基礎特性を解明し、マイクロ波デバイス機能を実証することを目的として研究したものであり、以下の成果を得ている。

(1) キラル磁性結晶 CrNb_3S_6 において磁気超構造の並進対称性の破れに応じて出現する素励起の検出を試み、格子振動に対応する CSL フォノンモードと呼ばれる集団素励起の検出に成功した。分散関係のブリルアンゾーンが CSL 周期に応じて折りたたまれることで高次モードが発生し 16 GHz から 40 GHz という広い周波数帯で現れることを観測した。モード解析から高次モードが 100 GHz を超えて現れること、元素置換した CrTa_3S_6 結晶では出現周波数が数百 GHz となりサブテラヘルツ帯に到達することを示した。

(2) 数マイクロメートルに微細化した CrNb_3S_6 結晶から成る磁気共鳴検出デバイスにおいて、磁場を用いた磁気共鳴スイッチング機能を実証した。強制強磁性状態では磁場印加方向を制御して磁気共鳴強度を 2 桁以上抑制できることを見出し、CSL では磁場の強度や印加方向を変えることで磁気共鳴のオン/オフ状態の切り替えが可能であり、共鳴周波数の離散応答が現れることを明らかにした。これらの特性が信号分離デバイスへ適応可能であることを示した。

(3) CrNb_3S_6 微細結晶を用いて作製したマイクロ波伝搬デバイスにおいて、マイクロ波の伝搬方向と結晶らせん軸の配置により伝搬特性が大きく異なることを見出した。平行配置では強磁場中で CSL 消失に伴い伝搬強度が大きくなること、垂直配置ではゼロ磁場で伝搬強度が 9 倍程度に増強されることを観察した。CSL の構造制御性を反映する伝搬特性であり、マイクロ波伝搬の強度・周波数・方向に関する制御性をもたらすことを示した。

以上の成果は、キラル磁性結晶に現れる CSL 磁気超構造が示す集団運動の基本特性を解明するもので、基礎学術の発展に貢献すること大である。マイクロ波デバイス機能を実証し、次世代通信システムでのサブテラヘルツ帯域を担う高周波エレクトロニクス磁性材料としてのキラル磁性結晶の有用性を示し、デバイス設計指針の構築へ寄与する。また、申請者が自立して研究活動を行うのに必要な能力と学識を有することを証したものである。学位論文審査委員会は、本論文の審査ならびに最終試験の結果から、博士(工学)の学位を授与することを適当と認める。