

## 室温で巨大な応答を示す“ワイル反強磁性体”の薄膜化に成功 —機能性反強磁性デバイス開発を大きく前進—

### 1. 発表者：

肥後 友也 (東京大学物性研究所 ナノスケール物性研究部門/同量子物質研究グループ 特任研究員)

Danru Qu (東京大学物性研究所 量子物質研究グループ 特任研究員)

大谷 義近 (東京大学物性研究所 ナノスケール物性研究部門/同量子物質研究グループ 教授)

中辻 知 (東京大学物性研究所 量子物質研究グループ 教授)

### 2. 発表のポイント：

- ◆強磁性体に匹敵するほど大きな異常ホール効果を示す機能性反強磁性体(ワイル反強磁性体)薄膜の作製に成功した。
- ◆開発した反強磁性体薄膜はシリコン基板上に作製でき、室温において駆動する。
- ◆磁気デバイスのさらなる低消費電力化・高密度化・高速化の実現や、反強磁性体を用いたメモリ素子・熱電変換素子の開発が飛躍的に進展することが期待される。

### 3. 発表概要：

東京大学物性研究所の肥後友也 特任研究員、中辻 知 教授らの研究グループは、同研究所 大谷義近 教授、米国 Johns Hopkins 大学 Chia-Ling Chien 教授らの研究グループと共同で、室温において強磁性体に匹敵するほど大きな異常ホール効果を自発的に示す反強磁性体薄膜の開発に成功しました。

近年、磁気メモリをはじめとする磁気デバイスの高集積・高速化への期待から、強磁性材料の反強磁性材料への代替が高まっています。その有力候補となるのが、マンガン(Mn)とスズ(Sn)からなるワイル反強磁性体  $Mn_3Sn$  (注 1) です。これは、通常、強磁性体のみで現れる異常ホール効果 (注 2) や異常ネルンスト効果 (注 3)、磁気光学カー効果 (注 4) などの巨大な応答が室温・ゼロ磁場下で現れ、外部磁場による制御が可能であるため、反強磁性体と強磁性体両方の有益な機能を併せ持つ「次世代の磁性材料」として盛んに研究されている材料です。しかしながら、これらの物性はバルク試料のみで観測されており、デバイスとして実用化するためには、同等の機能性を薄膜で実現することが必要とされていました。

今回、本研究グループは、スパッタリング法を用いて、バルクに匹敵する巨大な異常ホール効果を室温・ゼロ磁場下で示す純良な  $Mn_3Sn$  薄膜をシリコン基板上に作製することに成功しました。本成果により、反強磁性体を用いたメモリ素子や熱電変換素子といった磁気デバイスの開発が飛躍的に進展することが期待されます。

本研究結果は米国物理学協会発行の学術誌 *Applied Physics Letter* において、その重要性から **Featured Article** (注目論文)として選出されました。2018年11月12日付けオンライン版に公開される予定です。

#### 4. 発表内容：

##### ① 研究の背景

私たちの身の回りでは多くの磁性体（注 5）が利用されており、その代表的なものとして強磁性体と反強磁性体が知られています。強磁性体はスピンの方向が一様な方向に向く性質があり、大きな磁化を持っています。この磁化が電気や熱・光との応答を示し、その応答が磁化の向きによってコントロールできるため、HDD の磁気ヘッドやセンサーなどの構成要素として用いられています。また、近年のインターネットの普及による社会の高度情報化は著しく、膨大な量のデータを低消費電力・高密度・高速で処理するためにさまざまな技術開発が行われており、例えば、電源をオフにすると情報が消えてしまう揮発性メモリから電源オフの状態でも情報の維持が可能な不揮発性メモリへの代替が検討されています。強磁性体を用いた「磁気メモリ」は実用段階にきていますが、大きな磁化を持つ強磁性体では、漂遊磁界（注 6）の影響で素子同士が磁氣的に干渉するため、高密度化に限界があるという問題に直面していました。その一方で、反強磁性体はスピンの方向が互いの磁化を打ち消し合い、正味の磁化を持たないため、漏れ磁場の影響がなく、かつ、高速データ処理を可能にする物質群として注目を集めるようになりました。しかし、強磁性体で見られるような外場（電気や熱・光）に対する巨大な応答は期待できないため、強磁性体と反強磁性体両方の利点を持った新たな磁性材料の開発が必要とされています。

本研究グループは、これまで、マンガンとスズからなる反強磁体  $Mn_3Sn$ （図 1a）において、強磁性体に匹敵するほど大きな異常ホール効果や異常ネルンスト効果・磁気光学カー効果室温で自発的に現れることを明らかにしてきました。最近の研究では、これらの応答の起源が反強磁性秩序の持つクラスター磁気八極子（図 1b、注 7）の自由度や、ワイル点（注 8）と呼ばれる電子構造のトポロジーと密接に関わっており、このような特性を持つ反強磁性体は“ワイル反強磁性体”という新たな物質群に属することが明らかになっています。しかしながら、ワイル反強磁性体に関する研究は単結晶バルク試料において行われており、その機能を用いたデバイス開発を行う上で、バルクに匹敵する性能を持つ薄膜の作製が強く望まれていました。

##### ② 研究内容と成果

本研究では、有望な次世代磁性材料であるワイル反強磁性体  $Mn_3Sn$  を、スパッタリング法を用いてシリコン基板上に作製することに成功しました。さらに、数十 nm の  $Mn_3Sn$  多結晶薄膜が、バルク単結晶試料や強磁性体に匹敵するほど大きな異常ホール効果を示すことを実証しました。本薄膜では、[1]  $Mn_3Sn$  自体が無毒・安価な元素で構成されている、[2] 均一性の高い大面積の薄膜作製が可能なスパッタリング法を用いている、[3] 製造コスト面に優れ、既に成熟しているシリコンデバイス関連技術を適用できるシリコン基板での作製が可能である点がデバイス応用上の顕著な利点として挙げられます。

図 2a に示すように、試料の長辺方向に電流を流し、電流に垂直に配置した電極に生じる異常ホール抵抗  $R_H$ （= 電圧  $V_H$  / 電流  $I$ ）を測定した結果、今回作製した  $Mn_3Sn$  薄膜が、強磁性体に匹敵するほど大きな異常ホール効果を室温・ゼロ磁場で示すことがわかりました（図 2b）。その一方で、磁気特性の測定では一般的な強磁性体の示す磁化  $\sim 1 \mu_B$  の 1/1000 程度の無視できるほど小さな磁化しか示さず、バルク単結晶試料と同様に、 $Mn_3Sn$  の特徴的な磁気構造・バンド構造が作り出す仮想磁場由来して異常ホール効果が現れていることを示しています。デバイス化した際に読み出し信号として用いられる異常ホール抵抗  $R_H$  は膜厚  $d$  に反比例して大きくなるため、薄膜化することで信号強度が増強されますが、今回作製に成功した薄膜では異常ホール抵抗の変化量  $\Delta R_H$  が約  $0.8 \Omega$  となり、 $Mn_3Sn$  のバルク試料に比べて実に 500 倍ほど大きな抵抗を得ることに成功しました。今回観測された異常ホール抵抗は、近年、反強磁性体において観測されている異方性磁気抵抗効果の 100 倍程度大きな信号です。また、異常ホ

ール効果は、メモリ内で記憶する情報である“0”と“1”に対応する2値の信号(バイナリー信号)が異なる符号を持つため、読み取り時の測定誤差を各段に抑えることが可能であるという特徴を持っています。本研究成果は、反強磁性体を用いた磁気メモリを実現するために重要な研究であり、革新的な磁気デバイス開発の大きな進展が期待されます。

### ③ 今後の展望

強磁性体と同様に電気・熱・光に対して巨大な応答を示す反強磁性体  $Mn_3Sn$  は、強磁性体と反強磁性体の両方の機能性を併せ持つ次世代の磁性材料であり、本研究の成果である薄膜技術を用いることで、今後実用化を目指した機能性反強磁性体の応用研究が急速に進んでいくことが期待されます。その具体的な応用例として、今回、本研究グループが薄膜試料において観測した「異常ホール効果」を用いた高速・高密度な不揮発性磁気メモリ (図3) がまず挙げられますが、バルク試料で既に確認されている熱・光に対する応答を用いることで、さらに幅広い展開も期待できます。たとえば、熱、光、振動などの未利用エネルギーを用いて発電を行うエネルギーハーヴェスティング分野で注目されている“熱を電気に変換する”異常ネルンスト効果を用いた熱電変換素子への適用が考えられます。異常ネルンスト効果では、熱流に垂直に配置された電極間に電圧が生じるため、本薄膜作製技術を用いて素子の大面積化・高集積化を行うことでより大きな発電電圧を得ることが可能となります。 $Mn_3Sn$  において現れる電気や熱に対する巨大な応答は、ワイル点と呼ばれる電子構造のトポロジーと密接に関わっており、このような特性を持つ反強磁性体“ワイル反強磁性体”は  $Mn_3Sn$  の発見を契機に世界中で盛んに研究が行われています。今後、新たなワイル反強磁性体の探索を行うとともに、実用化へ向けたデバイス作製とその機能性の開拓を行っていきます。

本研究は、科学技術振興機構(JST) 戦略的創造研究推進事業 チーム型研究(CREST) 「微小エネルギーを利用した革新的な環境発電技術の創出」研究領域 (研究総括：谷口 研二、研究副総括：秋永 広幸) における研究課題「トポロジカルな電子構造を利用した革新的エネルギーハーヴェスティングの基盤技術創製」課題番号 JPMJCR15Q5 (研究代表者：中辻 知) 並びに、「トポロジカル材料科学に基づく革新的機能を有する材料・デバイスの創出」研究領域 (研究総括：上田 正仁) における研究課題「電子構造のトポロジーを利用した機能性磁性材料の開発とデバイス創成」課題番号 JPMJCR18T3 (研究代表者：中辻 知)、文部科学省 科学研究費補助金 新学術領域「J- Physics : 多極子伝導系の物理」課題番号 15H05882 (研究代表：播磨尚朝) における研究計画班「A01: 局在多極子と伝導電子の相関効果」課題番号 15H05883 (研究代表者：中辻 知) の一環として行われました。本研究成果は、日本学術振興会の戦略的国際研究交流推進事業「頭脳循環を加速する戦略的国際研究ネットワーク推進プログラム」における事業課題「新奇量子物質が生み出すトポロジカル現象の先導的研究ネットワーク」(主担当者：瀧川 仁) の助成を通して、海外の研究者との共同研究・交流により研究を展開させていった中で得られたものです。

### 5. 発表雑誌：

雑誌名：*Applied Physics Letter*

論文タイトル：Anomalous Hall Effect in Thin Film of the Weyl Antiferromagnet  $Mn_3Sn$

著者：Tomoya Higo, Danru Qu, Yufan Li, C. L. Chien, Yoshichika Otani,  
and Satoru Nakatsuji

## 6. 問い合わせ先：

### 【研究内容に関すること】

東京大学物性研究所 ナノスケール物性研究部門（量子物質研究グループ併任）

特任研究員 肥後 友也（ひご ともや）

TEL：04-7136-3239

E-mail：tomoya@issp.u-tokyo.ac.jp

東京大学物性研究所 量子物質研究グループ

教授 中辻 知（なかつじ さとる）

TEL：04-7136-3240

E-mail：satoru@issp.u-tokyo.ac.jp

### 【報道に関すること】

東京大学物性研究所 広報室

TEL：04-7136-3207

E-mail：press@issp.u-tokyo.ac.jp

## 7. 用語解説：

(注 1) ワイル反強磁性体  $Mn_3Sn$

$Mn_3Sn$  はカゴメ格子と呼ばれるカゴの網目のような格子が積層した構造をとり、Mn 原子とそのスピンの正三角形の頂点に配置されています (図 1a)。この時、隣り合うスピンの互いに反対方向を向こうとする力が働き、それぞれが 120 度傾いた状態で安定になります。また、2 層のカゴメ格子にスピンの 6 つ配置された単位構造を見ると、クラスター磁気八極子と呼ばれる複数のスピンの構成される新しい自由度を持っていることがわかります (図 1b)。このスピン構造 (磁気八極子) は非常に小さい外部磁場をかけることで操作が可能で、磁気八極子の反転に伴って、100 T に相当する仮想磁場が反転し、異常ホール効果や異常ネルンスト効果が制御できることが明らかになっています。仮想磁場の起源として、運動量空間におけるワイル点が重要であることが最近の研究によりわかってきています。

#### (注 2) 異常ホール効果

電気を流すことが可能な物質において、互いに垂直に磁場と電流を与えた際に、電流として流れている電子の運動方向が磁場により曲げられ、磁場・電流と垂直の方向に起電力が生じる現象をホール効果と呼びます。自発的に磁化を持つ強磁性体や、仮想磁場（波数空間に存在する有効磁場で、電子構造のトポロジーに起因する新しい物理概念）を持つ特殊な反強磁性体ではゼロ磁場においてもホール効果が生じ、これらを異常ホール効果と呼びます。

#### (注 3) 異常ネルンスト効果

電気を流すことが可能な物質において、互いに垂直に磁場と温度差を与えることで、高温側から低温側へ向かう電子の流れが磁場により曲げられた際に、磁場・温度差と垂直な方向に起電力が生じる現象をネルンスト効果と呼びます。自発的に磁化を持つ強磁性体や、仮想磁場を持つ特殊な反強磁性体ではゼロ磁場でもネルンスト効果が発生し、これを異常ネルンスト効果と呼びます。異常ネルンスト効果の場合、外部から磁場を印加する必要がなく、温度差のみで発電が可能です。

#### (注 4) 磁気光学カー効果

磁性体に直線偏光を入射した際に、試料の持つ磁化の向きに応じて反射光の偏光面が回転する現象を磁気光学カー効果といい、光磁気ディスクや光アイソレータといった身近で利用される磁気光学素子の原理として用いられています。最近の研究により、磁化だけでなく、磁気多極子の秩序に由来して現れることも明らかにされています。

#### (注 5) 磁性体（強磁性体・反強磁性体・常磁性体）

磁性体は、電子の自転運動に起因した「微小な磁石（スピン）」を有する物質で、巨視的な数のスピンの何らかのパターンで整列する磁気秩序を示します。① スピンが一樣な方向に揃うことで磁石のように大きな磁化を示す強磁性体、② 隣り合うスピンの反平行や互いを打ち消しあうように配列することで正味の磁化がゼロもしくは非常に小さくなっている反強磁性体、に分類されます。また③ スピンが整列せずに揺らいでいる状態の物質は常磁性体に分類されます。

#### (注 6) 漂遊磁界

磁性体から外部へ出ている磁界のことを漂遊磁界といいます。漂遊磁界は磁化の大きさに比例しており、自発的に磁化をもつ強磁性体の場合に大きな値となります。磁石にクレジットカードを近づけるとデータが消えてしまうのと同様に、高集積記憶デバイスにおいて、漂遊磁界が隣の素子に作用し、情報を誤って書き換えてしまうなどの問題が生じることがあります。

#### (注 7) クラスタ磁気八極子

磁石はN極とS極の2つの極を持っていますが、磁性体の各格子点に配置されたスピンも2つの極を持ち、これは磁気双極子とも呼ばれています。複数の格子点に配置されたスピンの1つのユニットを考えた際に作られる特徴的なスピンの組み合わせをクラスタ磁気多極子といい、構成するスピンの数が1、2、3つと増えるにつれて、磁気双極子、四極子、八極子というようにその組み合わせの名前が変わっていきます。反強磁性金属  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  のスピン構造では、3種類のスピンのユニットを考慮ことができ、図 1b に示すようにクラスタ磁気八極子を持っていると考えることができます。クラスタ多極子が強的に配列している物質では、磁化の総和がゼロとなる組み合わせにおいても、強磁性体で見られるような巨視的な応答が現れることがわかってきています。

(注 8) ワイル点・ワイル反金属・ワイル磁性体

1921年にヘルマン・ワイルが提唱したワイル方程式に従って記述される質量ゼロの粒子（ワイル粒子）を持つ物質はワイル半金属と呼ばれています。ワイル半金属では異なるカイラリティ（右巻き・左巻きの自由度）を持つ対となって発生し、磁石のN極とS極に相当する2つのワイル点を運動量空間において形成します。通常ワイル半金属では物質の結晶構造に由来したワイル点が創出されますが、磁性によって創出されるワイル点を持つ磁性体をワイル磁性体といい、磁場などの外場によって磁気構造を制御することで、ワイル点とそれに付随した仮想磁場の制御が可能であるなどの応用する上でも魅力的な特徴が見つかっています。ワイル点間に生じる仮想磁場は100 Tもの外部磁場に相当するほど大きなもので、巨大な異常ホール効果等の起源であることが明らかとなってきました。

8. 添付資料：

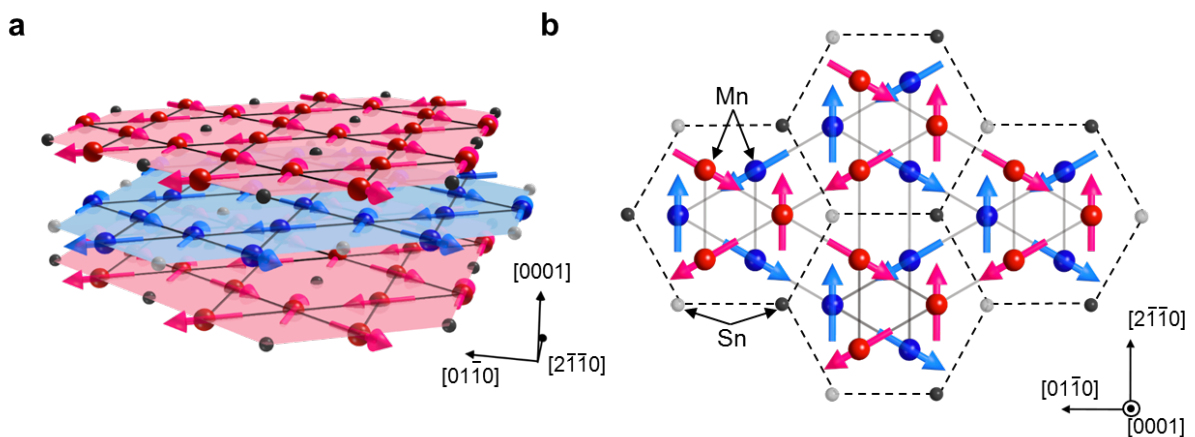


図1 反強磁性体  $Mn_3Sn$  の結晶構造と磁気構造。

(a)  $Mn_3Sn$  は  $[0001]$  方向に磁性原子の Mn (赤&青の大球) からなるカゴメ格子が積層した構造をもち、420 K (約  $150^{\circ}C$ ) 以下で、Mn のスピンの逆 120 度構造と呼ばれる非共線的な反強磁性スピン構造を示します。(b) 二層のカゴメ格子上的 6 つのスピンをしてみると、六角形で示されているクラスター磁気八極子と呼ばれるスピン秩序のユニットが強的に整列していることがわかります。仮想磁場の向きや異常ホール効果は、このユニットの向きを外部磁場により制御することでコントロールすることが可能です。

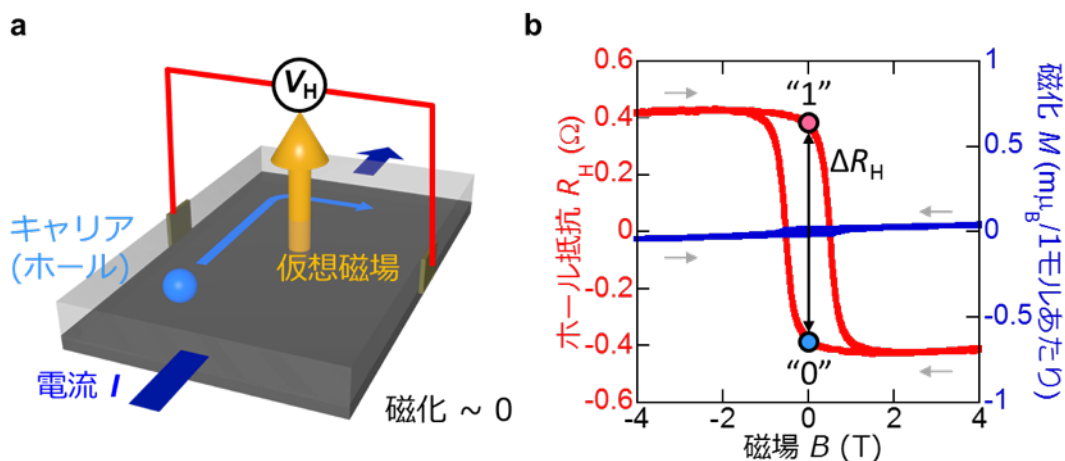


図2 反強磁性体  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜における異常ホール効果。  
 (a)  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  において生じる異常ホール効果の概要図。 $\text{Mn}_3\text{Sn}$  では磁化は無視できるほど小さく、磁化に由来した異常ホール効果は期待できないものの、特徴的な磁気構造・バンド構造によって運動量空間に仮想磁場が存在します。この仮想磁場が伝導キャリア（電子やホール）に作用することで強磁性体に匹敵する異常ホール効果（ホール抵抗  $R_H = \text{ホール電圧 } V_H / \text{電流 } I$ ）が生じていると考えられています。(b)室温（300 K）でのホール抵抗と面直磁化の磁場依存性。強磁性体の 1/1000 程度の磁化しか持たない一方で、非常に大きな異常ホール抵抗を示します。

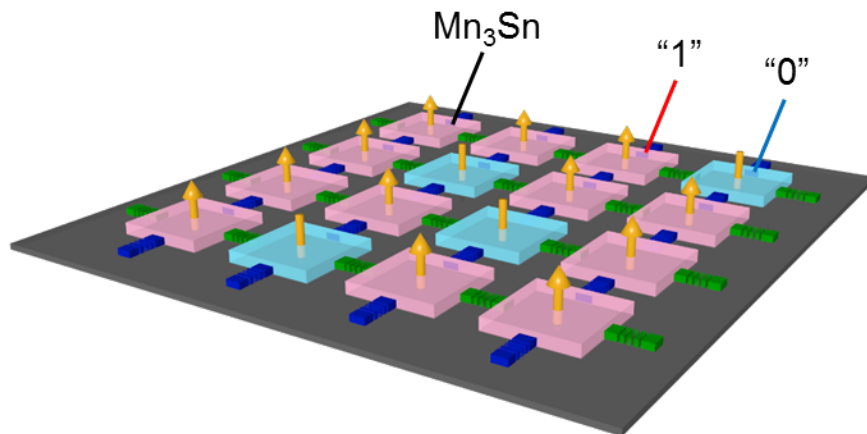


図3 反強磁性体  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜を用いた異常ホールメモリのイメージ。  
 $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜において生じる仮想磁場に由来した巨大な異常ホール効果を用いることで、磁化や漂遊磁界が無視できるほど小さい、高集積・高速な異常ホールメモリの実現が期待されます。実際のメモリ作成に向けて、今後、電流などの外部磁場以外の外場による異常ホール効果の符号反転技術の開発や熱安定性の検証が非常に重要となります。