# 室温で巨大な応答を示すワイル反強磁性体 Mn<sub>3</sub>Sn の薄膜化に成功

~反強磁性デバイス開発を大きく前進~

#### 研究の背景

我々の身の回りでは多くの磁性体が利用されている。中 でも、有限の磁化を持つ強磁性体は、磁化に比例した電気 や熱、光に対する応答を示し、その応答が磁化の向きに よって制御できるため、HDD の磁気ヘッドやセンサーな どの構成要素として広く用いられている。近年、情報技術 の高度化が著しく、膨大な量のデータを低消費電力・高速 で処理するために様々な技術開発が行われている。例えば、 不揮発性磁気固体メモリは実用段階にきているが、大きな 自発磁化を持つ強磁性体を用いると漏れ磁場の影響で素子 同士が磁気的に相互作用するため、高集積化に限界がある という課題に直面していた。その一方で、スピンが互いの 磁化を打ち消し合い、正味の磁化を持たない反強磁性体は、 漏れ磁場の影響がなく、かつ、高速データ処理を可能にす る材料として注目を集めている。しかし、反強磁性体では、 強磁性体で見られるような電気や光、熱などに対する巨大 な応答は期待できず、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た。

我々の研究グループは、これまで、Mn と Sn からなる 反強磁性体 Mn<sub>3</sub>Sn(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[1]や異常ネルンスト効果[2]、 磁気光学カー効果[3]が室温で自発的に現れることを実証

## <sup>a</sup> 量子物質研究グループ、<sup>b</sup>ナノスケール物性研究部門 肥後友也<sup>a</sup>、Danru Qu<sup>a</sup>、大谷義近<sup>b</sup>、中辻知<sup>a</sup>

してきた。最近の研究から、これらの応答の起源が反強磁 性秩序を持つクラスター磁気八極子(図 1b)[4]や時間反転 対称性の破れたワイル金属状態[5]と密接に関わっている ことが明らかにされ、MnsSn は「ワイル(反強)磁性体」 という新たな磁性体群に属することが分かってきている。 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 ルク試料においてのみ行われており、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た。

#### 実験結果

本研究[6]では、DCマグネトロンスパッタリング法によるワイル反強磁性体  $Mn_3Sn$  薄膜の作製を行った。室温での成膜の後、真空雰囲気下、 $500^{\circ}$ Cで1時間程度アニールを行うことで、単相の  $Mn_3Sn$  多結晶薄膜を  $Si/SiO_2$  基板上に作製することに成功した。室温においてホール抵抗率の磁場依存性を測定した結果、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応答をゼロ磁場で示すことが明らかとなった(図 2a 赤線)。その一方で、磁化測定では、一般的な強磁性体の示す磁化 ~1  $\mu$ Bの 1/1000 程度の無視できるほど小さな磁化しか観測されなかった(図 2a 青線)。また、ホール抵抗率の温度依存性の測定において、



図1(a) Mn<sub>3</sub>Sn は [0001] 方向に磁性原子の Mn (赤と青の大球) からなるカゴメ格子が積層した構造をもち、室温において、Mn のスピンが Inverse triangular スピン構造と呼ばれる非共線的な反強磁性秩序を示す。(b) 二層のカゴメ格子上の6つのスピンを見てみると、 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る。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磁場などの外場により制御することでコントロールが可能である。



図 2 (a) 室温 (300 K) でのホール抵抗率  $\rho_{\rm H}$  とホール抵抗  $R_{\rm H}$ 、面直磁化 M の磁場 B 依存性。強磁性体の 1/1000 程度の磁化しか持たな いー方で、非常に大きな異常ホール効果を示している。(b) ゼロ磁場異常ホール抵抗率  $\rho_{\rm H}(B=0)$ と抵抗率  $\rho$  の温度依存性。

室温で得られた巨大な異常ホール効果が260 Kから低温に 向かって急激に減少する振る舞いが観測された(図 2b)。 この振る舞いは、巨視的な時間反転対称性 (TRS)の破れ によりワイル金属状態が実現している Inverse triangular スピン構造 (260 – 430 K)から、TRS の破れのない Helical スピン構造 (< 260 K) への相転移に対応するもの だと考えられる。以上の結果は、今回作製した  $Mn_3Sn$  薄 膜がバルク単結晶試料と同様の特性を持ち、 $Mn_3Sn$  の特 徴的な磁気構造や電子構造がもたらす巨大なベリー曲率に 由来する異常ホール効果が  $Mn_3Sn$  薄膜においても現れて いることを強く示唆している。

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  $R_{\rm H}$  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るが、今回作製した薄 膜では異常ホール抵抗の変化量  $\Delta R_{\rm H}$  が約 0.8  $\Omega$  となり、  $Mn_3Sn$  のバルク試料に比べて実に 500 倍ほど大きな信号 が得られた(図 2a)。この信号は、CuMnAs[7]等の反強磁 性体薄膜において近年観測された異方性磁気抵抗効果と比 較しても 100 倍程度大きい。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 値の信号が異 なる符号を持つため、読み取り時の測定誤差を抑えること が可能であるという利点を持っている。

#### 今後の展開

強磁性体と同様に電気や光、熱に対して巨大な応答を示 す反強磁性体 Mn<sub>3</sub>Sn 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 される。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がまず挙げられるが、 バルク試料で既に確認されている熱や光に対する応答や新 奇な電流-スピン流変換特性[9]を用いることで、さらに幅 広い展開も期待できる。たとえば、熱などの未利用エネル ギーを用いて発電を行うエナジーハーヴェスティング分野 で注目されてい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る。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る。

### 謝辞

本研究は、米 Johns Hopkins 大の Yufan Li 氏、C. L. Chien 氏との共同研究、Lippma Mikk 氏、Jiyeon Lee 氏、 高橋竜太氏、石井理恵子氏によるサポート、三輪真嗣氏、 近藤浩太氏、小林鮎子氏、西川尚氏をはじめとする数多く の方々との議論を通して得られた成果である。 また、本研究は、JST-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)課題番号 JPMJCR15Q5 (研究代表者:中辻 知)、JST-CREST「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)課題番号 JPMJCR18T3 (研究代表者:中辻 知)、文科省 科研費 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)、課題番号 15H05883(研究代表:中 辻 知)、「ナノスピン変換科学」課題番号 26103002(研究 代表:大谷 義近)、日本学術振興会 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)の一環として行われた。

- S. Nakatsuji, N. Kiyohara, and T. Higo, Nature 527, 212 (2015).
- [2] M. Ikhlas, T. Tomita, T. Koretsune, M.-T. Suzuki, D. Nishio-Hamane, R. Arita, Y. Otani, and S. Nakatsuji. Nat. Phys. 13, 1085 (2017).
- [3] T. Higo, H. Man, D.B. Gopman, L. Wu, T. Koretsune, O.M.J. van 't Erve, Y.P. Kabanov, D. Rees, Y. Li, M.-T. Suzuki, S. Patankar, M. Ikhlas, C.L. Chien, R. Arita, R.D. Shull, J. Orenstein, and S. Nakatsuji, Nat. Photon. 12, 73 (2018).
- [4] M.-T. Suzuki, T. Koretsune, M. Ochi, and R. Arita, Phys. Rev. B 95, 094406 (2017).
- [5] K. Kuroda, T. Tomita, M.-T. Suzuki, C. Bareille, A.A. Nugroho, P. Goswami, M. Ochi, M. Ikhlas, M. Nakayama, S. Akebi, R. Noguchi, R. Ishii, N. Inami, K. Ono, H. Kumigashira, A. Varykhalov, T. Muro, T. Koretsune, R. Arita, S. Shin, T. Kondo, and S. Nakatsuji. Nat. Mater. 16, 1090 (2017).
- [6] T. Higo, D. Qu, Yufan Li, C. L. Chien, Y. Otani, and S. Nakatsuji, Appl. Phys. Lett. 113, 202402 (2018)."Featured Articles"
- [7] P. Wadley et al., Science 351, 587 (2016).
- [8] M. Kimata, H. Chen, K. Kondou, S. Sugimoto, P-K. Muduli, M. Ikhlas, Y. Omori, T. Tomita, A-H. MacDonald, S. Nakatsuji & Y. Otani, Nature 565, 627 (2019).