# 反強磁性金属薄膜におけるテラヘルツ異常ホール効 果の観測

## 極限コヒーレント光科学研究センター 松田 拓也、神田 夏輝、松永 隆佑 量子物質研究グループ 肥後 友也、中辻 知

### 研究背景

物質が持つスピン自由度を活用したスピントロニクスデ バイスは、ハードディスクを始めとして我々の日常生活に 普及しており、現在も精力的に研究が進められている。既 存のスピントロニクスで用いられる代表的な材料は、スピ ンが一様な方向に揃い大きな磁気秩序(磁化)が現れる強磁 性体であり、磁化を情報の単位としてデータ処理が行われ ている。ただしデータ処理の速度は強磁性スピンの歳差運 動の速さであるギガヘルツ(GHz=10<sup>9</sup> Hz)周波数で制限さ れている。近年、スピン情報処理のさらなる高速化を目指 す試みの中で、強磁性とは対照的に隣り合うスピンが互い に打ち消しあった反強磁性体が注目されている。反強磁性 スピンの歳差運動は強磁性スピンと比べて2-3桁ほど速く テラヘルツ(THz=10<sup>12</sup> Hz)周波数で駆動することが可能 である。さらに全体としての磁化がほぼゼロであるため漏 れ磁場が小さく隣接素子への磁気的影響が無視できること などから、反強磁性体は次世代の高速スピントロニクス材 料として期待されている。しかし反強磁性スピンの外場に 対する応答は強磁性スピンと比べて非常に小さいため、磁 気秩序の情報を読み出すことが難しく、これが反強磁性体 の実用化を阻んでいた。

2015年に中辻教授らのグループによって、マンガン (Mn)とスズ(Sn)の化合物である反強磁性金属化合物 Mn<sub>3</sub>Sn が強磁性並みに大きな異常ホール効果を室温で示 すことが報告された[1]。Mn<sub>3</sub>Sn は温度などに依存して 様々なスピン秩序が現れるフラストレーション磁性体の1 種であり、室温付近では積層カゴメ格子上のMn原子のスピ ンが ab 面内で逆 120 度構造と呼ばれるスピン配置をとる。 このときスピンが打ち消し合って全体としての磁化はほぼ ゼロであるが、複数のスピンがクラスター八極子という秩 序(図 1(a))を形成しているため、時間反転対称性が破れて いるという特徴がある[2]。これによって異常ホール効果



図1 室温における反強磁性金属 Mn<sub>3</sub>Sn のスピン秩序と Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜におけるテラヘルツ周波数帯の異常ホール効果。 (a) Mn<sub>3</sub>Sn の反強磁性スピン秩序。スピンの向きはすべて打ち消し合っているが、複数のスピンが集まった1つのユニット「クラスター 八極子」を単位として時間反転対称性を破る秩序を形成している。(b) Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜にテラヘルツ光を入射し、それが持つ交流電場に対し て異常ホール効果が生じると、反強磁性スピン秩序の向きに応じて、透過した光の偏光が回転する。青矢印は光の偏光方向を表す。 (c) 開発したテラヘルツ時間領域分光システムの偏光計測精度。(d) Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜を透過したテラヘルツ光の偏光回転角スペクトル。

のほか、異常ネルンスト効果[3]、磁気光学カー効果[4]が 相次いで報告されるなど、Mn<sub>3</sub>Sn は反強磁性としての高 速スピン運動と強磁性に匹敵する外場への巨大応答の両方 を併せ持つ物質として現在大きな注目を集めている。 Mn<sub>3</sub>Sn のスピン運動速度に相当するテラヘルツ周波数帯 における異常ホール効果の振る舞いを調べること、さらに テラヘルツの速さで磁気情報を高速に読み出すことは需要 な課題である。

本研究では、2018年に中辻教授らのグループが開発した高品質 Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜[5]を用いて、異常ホール効果をテラ ヘルツ周波数帯で観測する実験に取り組んだ。以下ではそ の実験結果について紹介する。

#### 実験結果

テラヘルツ周波数帯の電気伝導計測を行うために、超短 パルスレーザーによってテラヘルツ光パルスを発生・検出 するテラヘルツ時間領域分光(THz-TDS)を用いた。THz-TDS は、Kramers-Kronig 変換なしに光学伝導度などの 応答関数の実部と虚部を計測できること、1 ピコ秒以下の時 間分解能で高速に伝導度を測定できることなどが挙げられ る。テラヘルツ光を Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜に入射した際に異常ホール 効果が生じると試料を透過した光の偏光面が回転すること に注目し(図1(b))、偏光回転を精密に計測することができる テラヘルツ偏光分解計測装置を開発した[6]。図 1(c)は本研 究で開発したシステムの偏光計測精度の評価を示しており、 0.5-1.5 THz の周波数帯において 20 分の積算時間で 0.05 mrad 以下という極めて高精度な分光系を構築した。この 光学系を用いて、室温で Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜を透過したテラヘル ツ光の偏光回転計測を行ったところ、図1(d)に示すように 4 mrad ほどの偏光回転角が観測された。クラスター八極

子秩序の異なった向きに応じて偏光回転が逆方向に生じる 振る舞いも確認されたほか、この観測された偏光回転角か ら異常ホール伝導度 $\sigma_{xy}(\omega)$ に換算すると $\sigma_{xy}(\omega) \sim 20 \Omega^{-1}$ cm<sup>-1</sup> <sup>1</sup>となり、直流電気抵抗測定で観測されていた値とよく一致 する。これらの結果はテラヘルツ周波数帯における異常 ホール効果が観測されたことを意味している[6]。

通常直流で計測される異常ホール伝導はキャリアが無散 逸に流れることが特徴であるが、周波数が高くなるといず れ損失が生じると考えられる。本研究では 6 THz ほどの 広い帯域にわたって異常ホール伝導度 σ<sub>xv</sub>(ω)の計測が可能 なテラヘルツ偏光分解計測装置を構築し、広帯域測定を 行った[6]。図 2(a)は σ<sub>xy</sub>(ω)の実部(無散逸電流)および虚部 (散逸電流)のスペクトルを示す。1THz付近の周波数にお ける  $\sigma_{xy}(\omega)$ の虚部は 0.4  $\Omega^{-1}$ cm<sup>-1</sup> であり、実部に比べて十 分小さく、テラヘルツ周波数においてもほぼ無散逸な異常 ホール電流が生じることがわかった。一方、1 THz より高 周波で徐々に損失が目立ってくることが見いだされた。こ れはバンド間遷移の寄与が現れているものと考えられる。 またテラヘルツ異常ホール効果の温度依存性を計測したと ころ、室温から冷却すると 250 K 近傍で σ<sub>xy</sub>(ω)が消失する ことを確認した(図 2(b))。これは、各 ab 面内の逆 120 度 構造のスピン配置が c 軸に沿って回転して螺旋状のスピン 秩序を形成するスピン再配置相転移が生じ、時間反転対称 性が回復する方向に働くためであると考えられる。

本研究のもう一つの特徴は、まったくのゼロ磁場下で異 常ホール効果が計測されたことにある。異常ホール効果自 体は本来磁場なしで起こる現象であるが、従来の直流電気 抵抗計測による異常ホール効果の測定では微弱な信号から 電極の接触抵抗の影響などを排除するために外部から磁場 を正と負の方向にそれぞれ与えてスピン秩序を再配置し、



図2 テラヘルツ時間領域分光で計測された異常ホール伝導度 σ<sub>vy</sub>(ω)。 (a) 散逸性及び無散逸性の異常ホール伝導度の周波数変化。(b) テラヘルツ異常ホール伝導度の温度依存性。250 K 付近を境にした急激 な減少がスピン再配置相転移に対応すると考えられる。

その差分から異常ホール効果を検出するのが一般的である。 しかし本研究ではテラヘルツ周波数帯の光によって非接触 に計測を行うため、計測中に全く磁場を必要としない。そ の結果、いったん磁場を与えてから半年以上経過した Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜においても異常ホール効果を測定することが 可能となり、磁場を与えた直後と変わらない値を示すこと を確かめた。これは Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜における磁気秩序情報が 非常に長期間持続することを示している。

#### 今後の展開

本研究では光学的に非接触な手法でテラヘルツ周波数帯 の応答を調べたが、最近では基板上でテラヘルツ電流の発 生から検出まで行ってホール伝導を観測する技術も報告さ れており[7]、Mn<sub>3</sub>Sn の微小領域の異常ホール効果をオン チップで捉えることも可能になると考えられる。さらに高 強度テラヘルツ磁場を用いて反強磁性スピンの向きを非熱 的に高速に反転させる可能性も注目されており、今後テラ ヘルツ非線形応答の研究も興味深い。

また反強磁性体 Mn<sub>3</sub>Sn が示す異常ホール効果は、その 発現機構自体が学術的にも興味が持たれているテーマであ る。これまでの研究で、Mn<sub>3</sub>Sn がワイル粒子と磁性を併 せ持つ新しいトポロジカル物質であることが明らかになっ ており[8]、ワイル粒子の電磁応答を調べる上でも本研究 で開発されたテラヘルツ偏光回転を用いた分光手法が非常 に有効であると考えられる。本研究から1ピコ秒以下の非 常に短い時間で異常ホール効果を観測可能になったことを 示したため、物質の状態が高速に変化する非平衡状況下に おける時間変化を詳細に調べることが可能となった。異常 ホール効果の発現機構には、物質のトポロジーに由来する 内因的機構と、不純物に由来する外因的機構があることが 知られており、今後は非平衡状態における高速ダイナミク スを調べることでメカニズムが明らかになることが期待さ れる。

#### 謝辞

本研究はジョンズホプキンズ大学の N. P. Armitage 教 授との共同研究である。また物性研究所の三輪真嗣准教授 および黒田健太助教との議論と、徳永将史准教授および木 下雄斗特任助教の実験協力のもと行われた。

また本研究は、JST さきがけにおける研究課題「高強度 テラヘルツ電場による量子多体系の非平衡物理の探索」 (研究代表者:松永隆佑)、JST-CREST 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」(研究代表者:中辻知)、並びに文部科 学省科学研究費補助金 基盤研究(B)における研究課題「モ ノサイクル高強度テラヘルツ磁場発生技術開拓とワイル磁 性制御」(研究代表者:松永隆佑)、基盤研究(A)における 研究課題「ワイル磁性体における電気磁気応答の発現機構 の解明」(研究代表者:中辻知)および新学術領域(研究領 域提案型)「J-Physics:多極子伝導系の物理」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」 (研究代表者:中辻知)の一環として行われた。

- S. Nakatsuji, N. Kiyohara, and T. Higo, Nature 527, 212 (2015).
- [2] M.-T. Suzuki, T. Koretsune, M. Ochi, and R. Arita, Phys. Rev. B 95, 094406 (2017).
- [3] M. Ikhlas, T. Tomita, T. Koretsune, M.-T. Suzuki, D. Nishio-Hamane, R. Arita, Y. Otani, and S. Nakatsuji. Nat. Phys. 13, 1085 (2017).
- [4] T. Higo, H. Man, D. B. Gopman, L. Wu, T. Koretsune, Olaf 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).
- [5] T. Higo, D. Qu, Y. Li, C. L. Chien, Y. Otani, and S. Nakatsuji, Appl. Phys. Lett. 113, 202402 (2018).
- [6] T. Matsuda, N. Kanda, T. Higo, N. P. Armitage, S. Nakatsuji, and R. Matsunaga, Nat. Commun. 11, 909 (2020).
- [7] J. W. McIver, B. Schulte, F.-U. Stein, T. Matsuyama,
  G. Jotzu, G. Meier & A. Cavalleri, Nat. Phys. 16, 38 (2020).
- [8] 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