

不揮発性メモリや熱流センサー開発に繋がる 反強磁性体の普遍的機能性の実証

量子物質研究グループ 肥後 友也
中辻 知

【研究の背景】

私たちの身の回りでは多くの磁性体が利用されており、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。磁石として広く使われている強磁性体は電気・熱・光に対して磁化に比例した応答を示します。そのため、磁化によって応答の大きさを制御できます。例えば、パソコンやスマートフォンなどの情報処理端末を省電力化する技術として期待されている不揮発性磁気メモリ (MRAM) では、強磁性金属層-非磁性絶縁層-強磁性金属層からなるトンネル磁気抵抗素子が持つ強磁性層の磁化の向きによって変化する電氣的応答を「0」と「1」の情報記録単位として用いています。この素子では、磁化が膜に対して垂直方向に向くことで高密度・省電力化が期待できます。このような特性は磁石や他の強磁性体を用いたデバイスにおいても同様で、磁化が向き易い方向(磁化容易軸)を最適化することでその機能性が大きく向上します。

特定の方向に磁化容易軸を向けるために、結晶構造に由来する結晶磁気異方性や異種材料界面の効果に由来する界面磁気異方性を用いた材料や多層膜(界面)構造の設計

が行われています。その一方で、強磁性体は棒状であれば長手方向に、薄膜であれば膜に平行方向に磁化されやすい性質を持ちます。これは形状磁気異方性に由来するもので、強磁性体の持つ磁化の大きさに比例してその寄与も大きくなります。そのため、巨大な応答が期待される磁化の大きな強磁性体を用いたデバイスでは形状選択の自由度が低くなり、十分な特性を得るために形状・結晶・界面磁気異方性のバランスをよく考える必要がありました [1,2]。形状磁気異方性の影響を抑える方法としては、隣り合うスピン同士が互いを打ち消しあうために正味の磁化がゼロとなっている反強磁性体の利用が考えられます。しかし、磁化を持たないという反強磁性体の性質は、利点であると同時に強磁性体が示すような電気・熱・光に対する巨大な応答を得ることが困難であるというデバイス応用上の欠点でもあり、上記アイデアの実験的な検証は行われていませんでした。

本研究では、室温かつゼロ磁場において巨大な応答を示す反強磁性体 Mn_3Sn を用いて、自発磁化がない(もしくは非常に小さい)という反強磁性体の持つ普遍的な機能性の実証と不揮発性メモリやセンサーデバイスへの応用を試みました。

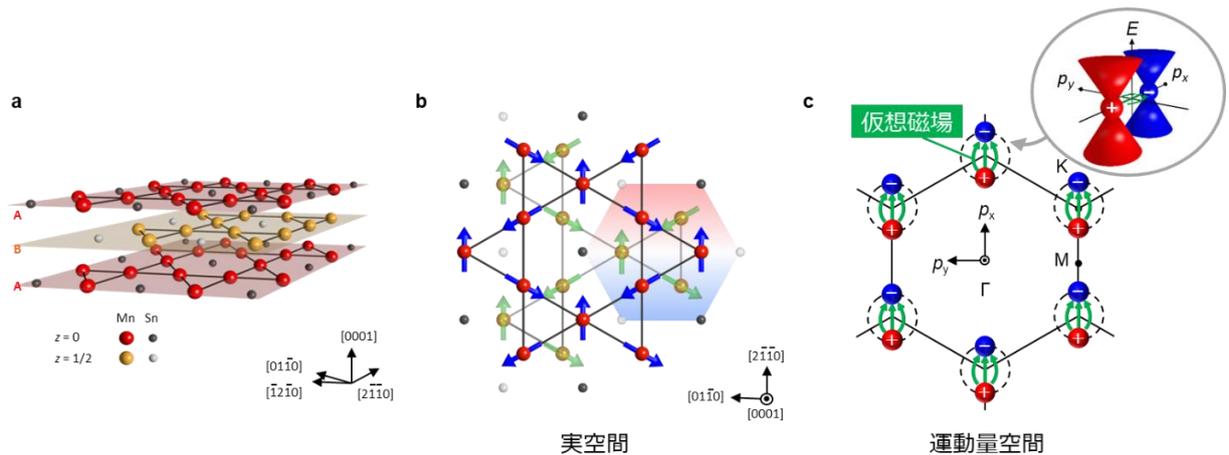


図1 トポロジカル反強磁性体 Mn_3Sn の結晶構造と磁気構造、運動量空間における仮想磁場

(a) Mn_3Sn は c 軸方向に磁性原子のマンガン(Mn、赤と黄の球)からなるカゴメ格子が積層した構造を持ち、420 K(約 150 °C)以下で、Mn のスピンの逆 120 度構造と呼ばれる反強磁性秩序を示します。(b) 二層のカゴメ格子上のスピンを見ると、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 6 つのスピンからなるユニットが同じ方向にそろっていることがわかります。(c) Mn_3Sn では、実空間での反強磁性スピン構造(クラスター磁気八極子)の向きと運動量空間におけるワイル点の対(赤(+))と青(-)の球、仮想磁場の向きが対応しています。磁気八極子の向きを変えることで仮想磁場を制御することができます。

ながら磁場掃引した実験において、多値記憶が可能であることを確認しました(図 2a と 2b)。異常ホール効果は仮想磁場の面直成分に比例します。そのため、読み出し信号の磁場方向による変化は、磁場方向に磁気八極子と仮想磁場がそろい、面直方向への投影成分が変化していることに対応しています。つまり、本結果は 3 次元空間の全方向に自在に仮想磁場(磁気八極子と平行)を向け、ゼロ磁場においてもその状態を保持できるという特性を示しています(図 2c)。この特性は Mn_3Sn の磁化が非常に小さく形状磁気異方性の影響を受けないことと、カゴメ格子面内に磁気容易軸/面を持つことに由来しています。また、単結晶(単一グレイン)試料においても、カゴメ格子に平行な 2 次元面内のみではあるものの、同様の多値記憶が可能であることを実証しました(図 2d)。形状磁気異方性に比べて十分大きな結晶磁気異方性を持つ強磁性体においても、多結晶試料では同様の機構での多値記憶が可能です。しかし、単結晶試料では大きな形状磁気異方性のために磁化の向く方向が一方向に制限され、2 値の信号しか取れません(図 3a)。反強磁性体 Mn_3Sn において見いだした新たな情報記憶手法は、数-数 10 nm の単一グレインからなる記憶素子において、「0」と「1」の 2 つの情報単位だけでなく、3 つ、あるいは、それ以上の情報を 1 つの素子で書き込み・読み出しできる可能性を示しています(図 3b)。今後、実際にメモリにおいて求められる素子サイズまで微細化した試料での原理実証が望まれます。

また、形状磁気異方性の影響が小さいという特性は、異常ネルンスト効果を用いた磁気デバイスにおいてもその機能を発揮します。異常ネルンスト効果は磁気的な性質を用いて熱を電気に変換する熱電効果ですが、ゼーベック効果

とは異なり熱流と垂直方向に発電できます(図 4a と 4b)。従来の薄膜関連技術が適用でき、安価に大面積・フレキシブルな熱電デバイス作製が可能という利点から、熱の流れを可視化する熱流センサーへの応用が期待されています。センサーの熱流感度は素子の長さに比例するため、細線構造が要求されます。面直方向に流れる熱流に対して測定する場合には、図 4b に示すように磁化(Mn_3Sn の場合は磁気八極子)を短辺に向けてそろえる必要があります。この磁化方向は形状磁気異方性に反したものであるため、強磁性体を用いた熱流センサーでは、結晶磁気異方性や膜の積層構造を最適化することで実用に足る機能をえています。一方で、仮想磁場由来の巨大な異常ネルンスト効果を示す Mn_3Sn では、形状磁気異方性の影響を受けずに磁気八極子や仮想磁場の向きをそろえることができるため、細線化した試料においてもその熱電特性が非常に簡単に維持できます。 Mn_3Sn 多結晶と電極の細線からなる熱流センサーを作製し(図 5a)、異常ネルンスト効果によって生じた電圧の磁場依存性を測定したところ、 1 W/cm^2 程度の熱流によりサブ mV 程度の大きな信号が、 $\pm 0.9 \text{ T}$ 程度の大きな磁場まで反転せずに現れていることを確認しました(図 5b)。また、ゼロ磁場におけるネルンスト電圧が熱流に対して線形に比例する特性を示し、熱流センサーとして機能することも確認しました(図 5c)。単位面積当たりの熱流感度は 1.3 mV/W とこれまで報告されていた強磁性体を用いた異常ネルンスト熱流センサーや市販の廉価版ゼーベック熱流センサーに匹敵する性能を示す一方で、外部磁場に対する安定性が 10-100 倍高くなる(上記の強磁性体を用いたセンサーでは反転磁場が $0.01-0.1 \text{ T}$ 程度)ことが分かりました。

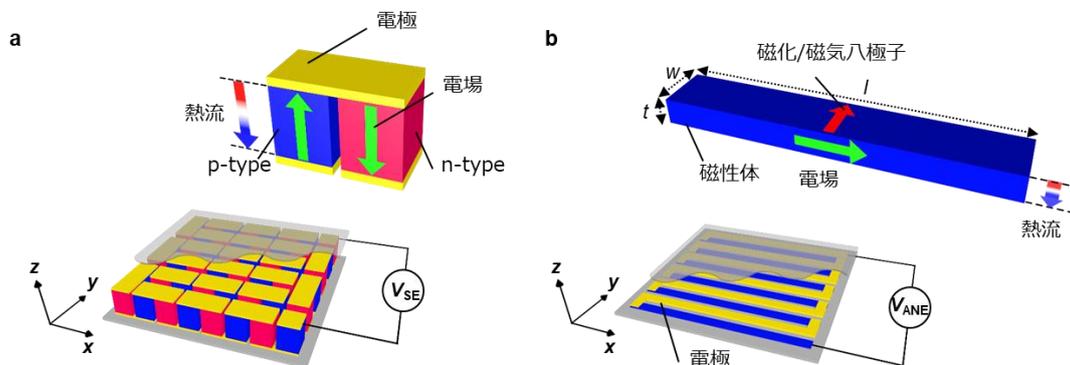


図4 ゼーベック効果と異常ネルンスト効果を用いた熱電デバイス

(a)ゼーベック効果を用いた 3 次元ピラー構造を持つ熱電デバイスの概略図。(b)異常ネルンスト効果を用いた 2 次元サーモパイル構造を持つ熱電デバイスの概略図。ゼーベック効果/ネルンスト効果では、それぞれ熱流に対して並行方向/垂直方向に起電力(電圧)が生じます。そのため、異常ネルンスト効果を用いたデバイスでは、従来の薄膜作製・加工技術を適用でき、大面積化もしくはフレキシブル化が容易です。

