磁性体における内因性異常ホール効果の超高速非平 衡ダイナミクス

物性研究所 極限コヒーレント光科学研究センター 松田 拓也 物性研究所 極限コヒーレント光科学研究センター 松永 隆佑

研究背景

磁性体に電場を印加すると時間反転対称性の破れに起因して電子の軌道が曲げられ、電場と垂直方向にも電流が流れる。これは異常ホール効果として古くから知られ、経験的に大きな磁化を持つ強磁性体で巨大に現れる現象であると考えられてきた。しかし近年、物質のトポロジーの観点から理解が進展し、磁化というより運動量空間上のベリー曲率が重要であることがわかってきた。この寄与は内因性異常ホール効果と呼ばれ、ホール伝導度は

$$\sigma_{xy}^{\text{int}} = \frac{e^2}{\hbar} \sum_{n} \int \frac{\mathrm{d}\boldsymbol{k}}{(2\pi)^3} f(\epsilon_n(\boldsymbol{k})) B_{n,z}(\boldsymbol{k})$$
 (1)

のように電子分布関数 $f(\epsilon_n(\mathbf{k}))$ とベリー曲率 $B_{n,z}(\mathbf{k})$ の積分で表すことができる。縦伝導は電子や不純物などの散乱によってジュール熱が発生するのに対して、内因性の異常ホール伝導は散乱現象とは無関係に起こり、エネルギーを消費しない無散逸電気伝導が生じるという点でも興味が持たれている。一方、不純物との散乱によって生じる外因性異常ホール効果も知られており、異常ホール効果が観測されるとその起源が内因性か外因性かが必ず議論の対象となっている。

異常ホール効果の微視的起源を探る手法として、ゲート 電圧や元素置換によってフェルミエネルギーや散乱確率を 制御して、縦伝導度と異常ホール伝導度の関係性を調べる 方法がよく知られている。従来のこのような研究は、熱平 衡あるいはそれに近い状況を前提として、直流電気抵抗測 定により調べられてきた。一方、物質の性質が時々刻々と 変化していく非平衡状態における異常ホール効果を調べる 研究例はわずかしかなく、その時間スケールも 100 ピコ 秒(ps)程度に留まっている。よって、それよりも速い時間 スケールで異常ホール効果がどのように振る舞うのかは全 くの未解明であった。

そこで我々は、非平衡下の磁性体における異常ホール効果の超高速ダイナミクスを調べる研究を立案し、その舞台としてトポロジカル磁性体 Mn₃Sn に注目した。 Mn₃Sn は全体としての磁化が非常に小さい反強磁性体であるにも関わらず、特異な磁気構造によって強磁性体並みに巨大な異常ホール効果を室温で示すことが 2015 年に物性研究所(当時)の中辻教授、肥後特任准教授らによって明らかにされた[1]。 2018 年にはバルク単結晶に匹敵する巨大応答を示す Mn₃Sn 薄膜の作製も報告され[2]、高速磁気情報処理デバイスの実現に向けて大きく注目されている。 我々は2020年に Mn₃Sn 薄膜に対するテラヘルツ波パルスの偏光回転計測を行い、DC 極限の異常ホール伝導度を 0.1 ps 以下の非常に短い時間で観測することに成功した[3]。本研究[4]ではその技術を用いて、非平衡下における異常ホール伝導の超高速ダイナミクスの時間分解計測を行った。

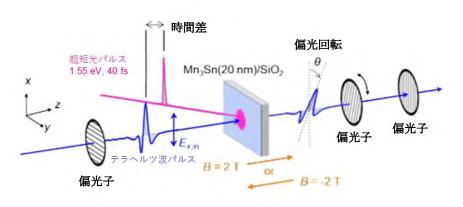


図 1 実験系の模式図。超短光パルスを試料に照射し、それと時間差をつけたテラヘルツ波パルスを入射して、透過した偏光面の回転を検出することで、ホール伝導度の変化を調べることができる。

実験結果

図1に示すように、 SiO_2 基板上に作製された厚み $20\,\mathrm{nm}$ の Mn_3Sn 薄膜に対してフォトンエネルギー $1.55\,\mathrm{eV}$ 、パルス幅 $40\,\mathrm{fs}$ の超短光パルスレーザーを照射し、それによって生じる超高速変化をテラヘルツ波パルスの偏光回転を通して観測した。図 2(a)および 2(b)はある励起密度においてそれぞれ光パルスを照射してから $0.52\,\mathrm{ps}$ 経ったときの縦伝導度スペクトル $\sigma_{xx}(\omega)$ とホール伝導度スペクトル $\sigma_{xx}(\omega)$ を示している。光照射によって $\sigma_{xx}(\omega)$ はほとんど変化せず、散乱確率がたかだか 3%ほど変化したのみであった。一方、 $\sigma_{xy}(\omega)$ は 40%にも及ぶ劇的な変化を示すことがわかった。この実験結果から、ホール伝導度 $\sigma_{xy}(\omega)$ は、散乱によって生じる縦伝導度 $\sigma_{xx}(\omega)$ とは本質的に異なるメカニズムで生じていることがわかる。これは外因性異常ホール効果では説明できないことを意味している。

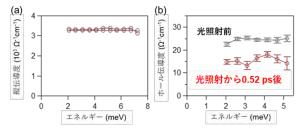


図 2 光パルス照射前とその直後の縦伝導度とホール伝導度の周波 数特性。光パルス照射前後で(a)縦伝導度はほぼ変化しないが、 (b)ホール伝導度は40%も変化が生じる。

一般に、物質に超短光パルスを当てた直後の 0.1 ps ほどの時間帯スケールでは、物質中の電子だけが光のエネルギーを受け取って電子の温度が瞬間的に数 100 K まで急上昇するが、格子やスピンはまだほとんど変化を受けておらず、電子系とそれ以外の温度が分離した特殊な状態が現れる。

2 温度モデルによるシミュレーションから、本研究の実験条件では、 Mn_3Sn では光照射直後に電子温度が 700 K 近く上昇する一方、格子温度はほぼ変化していないと考えられる(図 3(a))。すなわち、超短光パルス照射後 0.1 ps ほどの超高速時間領域では、バンド構造そのものは変化せず、電子分布関数 $f(\epsilon_n(k))$ のみが変化しているものと考えられる。その場合内因性異常ホール伝導度 σ_{xy}^{int} の電子温度依存性は式(1)から比較的簡単に計算することが可能であり、から実験結果と計算結果が良い一致を示すことが分かった(図 3(b))。これは光パルス照射による異常ホール効果の超高速変化が内因性機構でよく説明できることを意味している。

内因性異常ホール効果は式(1)が示すようにフェルミエネルギー E_F 以下の電子状態とベリー曲率で決まる。ただしベリー曲率 $B_{n,z}(\mathbf{k})$ はバンド構造の(反)交差点で極大となり、図 $3(\mathbf{c})$ に示すように各(反)交差点の上下のブランチは逆符号のベリー曲率 $B_{n,z}(\mathbf{k})$ を持っている。そのため E_F より十分下の状態の寄与は式(1)の積分を実行することでほとんどキャンセルされ、実際の内因性異常ホール効果は E_F 近傍の電子分布の影響を受けやすい。したがって、本研究は超短光パルスを照射して電子温度を瞬間的に急上昇させたことで、異常ホール効果の巨大な変化を引き出すことに成功した。本研究によって、異常ホール効果の超高速変化を調べることでそのミクロな起源を判別可能であることが初めて明らかになった。

磁性体に光を当てると電子温度上昇がすぐに磁化に影響を与え、磁化が高速に変化することも古くから知られている。これは超高速消磁と呼ばれており、本研究の実験結果も一見すると電子温度上昇ではなく消磁が起こったためのようにも考えられる。その点を検証するため、本研究では

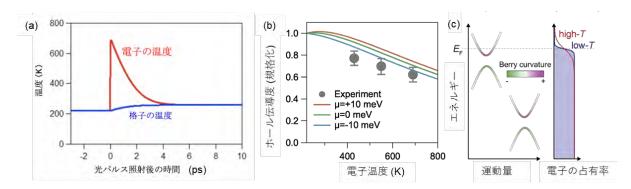


図 3 (a)光パルス照射後の電子温度と格子温度変化の計算結果。光照射によってまず電子温度が急激に上昇し、その後で電子格子相互作用を通してエネルギーが移り格子温度が上昇する。(b)ホール伝導度の電子温度依存性。灰色丸が実験値で実線が理論計算値である。(c) 左が(反) 交差点周りのベリー曲率の模式図、右がエネルギーに対する電子の占有率を表している。青実線は電子温度が低い時で光照射により電子温度が急上昇し電子分布関数が赤破線のように変化する。

Mn₃Sn が約 200 K を境に起こす特殊な相転移に注目した。 200 K 以下では図 4(a)のようにクラスター八極子相からへ リカル相へ転移し、異常ホール効果が減少する。よって、 もしヘリカル相で光パルスを照射して超高速消磁に相当することが起これば、光励起後に異常ホール効果が増強する と考えられる。実際に 150 K で実験を行った結果、光励起後 0.1 ps の異常ホール効果は減少し、その後 2-3 ps の時間をかけて増強に転じることがわかった。これは 0.1 ps 程度の時間で起こる変化は超高速消磁では説明できず、あくまで電子系の変化によるものであることを明確に示している (図 4(b))。

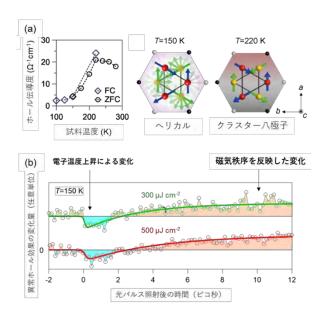


図 4 (a)左がホール伝導度の温度依存性、右が試料温度 150 K の時と 220 K の時のスピン配置。(b)試料温度 150 K で計測された異常ホール効果の変化の時間発展。光パルス照射直後に異常ホール効果がまず減少し、時間が経過してから今度は符号が変わって増強に転じた。それぞれが電子温度の上昇と、磁気秩序の発達に相当する変化を表している。

今後の展開

本研究によって、磁性体の異常ホール効果の微視的起源が超高速非平衡ダイナミクスから判別可能にする全く新しい手法を切り拓くことに成功した。従来の手法は試料の質そのものが変化してしまう可能性があったが、本手法は光学的に非接触に判別可能という大きな利点がある。また異常ホール効果を利用すると磁気秩序の向きを電流として読み出すことが可能であるが、高速磁気情報処理デバイス開発という点でも異常ホール効果の超高速変化のメカニズムは重要である。本研究から、磁化を高速に書き込んでさらに高速に読み出すためには、電子温度の上昇を抑えることが本質的に重要であるという設計指針が得られた。また本

手法は強磁性体、フェリ磁性体やトポロジカル磁性体を対象とした実験へ波及すると考えられ、今後の非平衡物性物理学のほか高速スピントロニクスの研究にも大きく資することが期待される。

謝辞

本研究は東京大学物性研究所(当時)の神田夏輝助教、同 大学大学院理学系研究科の中辻知教授、島野亮教授、肥後 友也特任准教授、吉川尚孝助教、平井誉主在氏、松尾拓海 氏、Hanyi Peng 氏および東北大学の是常隆准教授との共 同研究によるものです。ここに感謝申し上げます。なお本 研究は、科学技術振興機構(JST) 戦略的創造研究推進事 業 さきがけ「トポロジカル材料科学と革新的機能創出」 研究領域(研究総括:村上 修一)における研究課題「トポ ロジカル半金属を用いたテラヘルツ高速エレクトロニクス・ スピントロニクス素子開拓」課題番号 JPMJPR20LA(研究 者:松永 隆佑)、未来社会創造事業「スピントロニクス光 電インターフェースの基盤技術の創成」課題番号 JPMJMI20A1(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)「モノサイクル高強度テラへ ルツ磁場発生技術開拓とワイル磁性制御」課題番号 19H01817(研究代表者:松永 隆佑)、特別研究員奨励費 「空間反転対称性の破れたワイル半金属における非線形テ ラヘルツ応答の解明」課題番号 21K13858(研究代表者: 松 田 拓也)、若手研究「テラヘルツ分光によるワイル反強磁 性体の電磁応答の解明と高速制御」課題番号 20J01422(研 究代表者:松田 拓也)、および基盤研究(A)「ワイル磁性 体における電気磁気応答の発現機構の解明」課題番号 JP19H00650(研究代表者:中辻 知)の一環として行われ ました。

参考文献

- [1] S. Nakatsuji, N. Kiyohara, and T. Higo, Nature 527, 212 (2015).
- [2] T. Higo, D. Qu, Y. Li, C. L. Chien, Y. Otani, and S. Nakatsuji, Appl. Phys. Lett. 113, 202402 (2018).
- [3] T. Matsuda, N. Kanda, T. Higo, N. P. Armitage, S. Nakatsuji, and R. Matsunaga, Nat. Commun. 11, 909 (2020).
- [4] T. Matsuda, T. Higo, T. Koretsune, N. Kanda, Y. Hirai, H. Peng, T. Matsuo, N. Yoshikawa, R. Shimano, S. Nakatsuji, and R. Matsunaga, Phys. Rev. Lett. 130, 126302 (2023).