

カイラル反強磁性体における量子計量の室温操作

電気通信研究所 内村 友宏 (uchimura.tomohiro.s8@dc.tohoku.ac.jp)
深見 俊輔 (s-fukami@tohoku.ac.jp)

1. はじめに

量子固有状態の幾何学的性質は量子幾何テンソルによって特徴付けられ、それは実部の量子計量と虚部のベリー曲率の 2 つの異なる物理量から構成される[1,2]。このうち、ベリー曲率は量子ホール効果や異常ホール効果など幅広い物理現象を説明することが知られている[3,4]。一方、量子計量はこれまでの研究で殆ど無視されてきたが、近年、異常ランダウ準位やフラットバンド超伝導などの非自明な現象を説明するための重要な概念として徐々に注目を集めている[5,6]。

量子計量の輸送測定による検出手法の一つとして、2 次のホール効果、すなわち非線形ホール効果が挙げられる。これは、物質が量子計量の双極子構造を有する場合に、印加電流の 2 乗に比例してホール電圧が発生する現象である。この効果は Gao らによって理論的に予測され、近年、反強磁性トポロジカル絶縁体 Mn_2BiTe_4 において初めて実証された[7–9]。重要なのは、磁性材料では電子構造と磁気構造が密接に結びついているため、反強磁性秩序の制御を通じて量子計量そのものを操作できる点である。このような制御性は基礎研究・応用研究の両面で極めて重要であるが、これまでの報告は 25 K 以下の低温および 8 T という強磁場条件に限られていた。

量子計量非線形ホール効果を室温で観測し、その状態を磁場で制御するための鍵は、室温においてトポロジカルな電子構造を示す磁性材料である。本研究では、その候補としてカイラル反強磁性体である $D0_{19}\text{-Mn}_3\text{Sn}$ に着目した。 Mn_3Sn は六方晶 Ni_3Sn 型の結晶構造を持ち、Mn 原子が(0001)面上でカゴメ格子を形成する。このとき、Mn 磁気モー

メント間の交換相互作用とジャロシンスキー・守谷相互作用 (DMI: Dzyaloshinskii–Moriya interaction) の組み合わせにより、室温でカイラル反強磁性スピン構造が形成される (図 1)。この特徴的なスピン構造を有する Mn_3Sn は巨視的に時間反転対称性を破り、従来の磁性体には見られない特異な物性を発現する[10]。その代表例が、トポロジカルな電子構造であるワイル半金属状態の実現であり、これにより豊富な量子幾何学的構造が誘起される[11]。よって、本研究では Mn_3Sn を用いて室温における量子計量非線形ホール効果の観測と、その磁場制御を実証することを目指した。

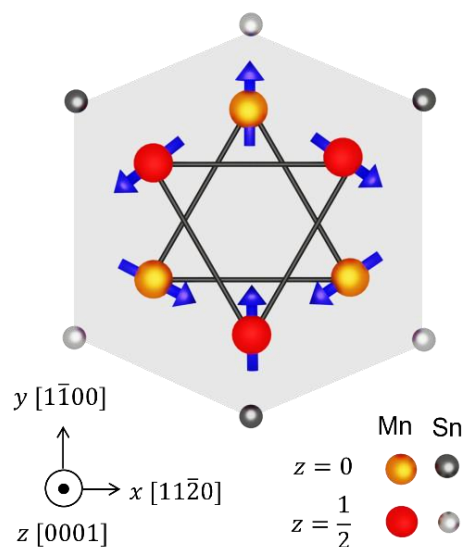


図 1 カイラル反強磁性体 $D0_{19}\text{-Mn}_3\text{Sn}$ の結晶・磁気構造。

2 次の非線形ホール効果の発現には空間反転対称性を破ることが必須条件となる。しかし、 Mn_3Sn はその結晶構造によって空間反転対称性を保持しているため、これを破るにはヘテロ構造の導入が必要である。そこで本研究は(0001)配向 $\text{Mn}_3\text{Sn}/\text{Pt}$

構造における界面 DMI に着目し、この問題の解決を試みた(図 2(a))。界面 DMI とは反対称的交換相互作用であり、界面でねじれたスピン構造を誘起する。先行研究では、図 2(b)に示すように $\text{Mn}_3\text{Sn}/\text{Pt}$ 界面において Mn スピンがカゴメ面直方向にキャンテすることが報告されている[12,13]。したがって、我々は界面 DMI によってスピン構造の反転対称性が膜面直方向に破れると考えた。

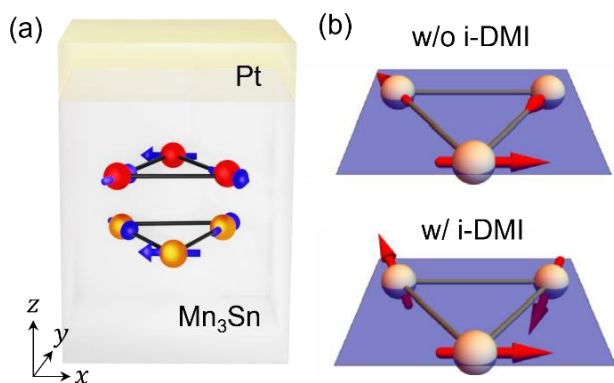


図 2 (a) (0001)配向 $\text{Mn}_3\text{Sn}/\text{Pt}$ ヘテロ構造。(b) 界面 DMI によるスピン構造のねじれ。

2. 実験方法

DC/RF マグネトロンスパッタリング法により、 $\text{MgO}(111)$ 単結晶基板上に Ru (5 nm)/ Mn_3Sn (15 nm)/ Pt (5 nm) の積層構造を作製した。このとき、 MgO 基板と Ru バッファ層の組み合わせにより、カゴメ面が膜面内に揃った(0001)配向 Mn_3Sn エピタキシャル薄膜が形成される。得られたサンプルは、フォトリソグラフィと Ar イオンミリングによりマイクロスケールのホール素子へと加工した。非線形ホール効果は、交流電流 I_{ac} を印加し、ロックインアンプを用いてホール電圧の第 2 次高調成分 $V_H^{2\omega}$ を測定することで評価を行った。また、この配向の Mn_3Sn はゼロ磁場で多磁区構造を形成することが知られているため、測定中は面内磁場を印加することで反強磁性秩序を単磁区化した。

3. 実験結果

まず、我々は外部磁場を xy 平面内で回転させながら 2 次のホール電圧を測定した。その結果、図 3(a)に示すように、 $\cos\alpha$ に従う角度依存性を示す

2 次のホール電圧が観測された。このような磁場の反転による 2 次のホール電圧の符号反転は、観測された非線形ホール効果が時間反転に対して奇であることを示しており、量子計量双極子の対称性と一致している。また、この結果は、時間反転に対して偶であるベリー曲率双極子が起源ではないことを示唆している[14]。次に、印加電流を変化させて同様の実験を行い、 $\alpha = 0^\circ, 90^\circ, 170^\circ, 360^\circ$ の結果を図 3(b)にまとめた。結果的に $\alpha = 0^\circ, 180^\circ$ における 2 次のホール電圧は印加した電流の 2 乗に比例していることが確認され、観測された効果が 2 次的な性質を持つことが明らかになった。さらに詳細は省略するが、我々は積層構造の異なる試料で同様の測定を行い、スピン軌道トルクや熱効果(異常ネルンスト効果、スピンゼーベック効果など)に起因する 2 次のホール電圧は無視できるほど小さいことを確認した。

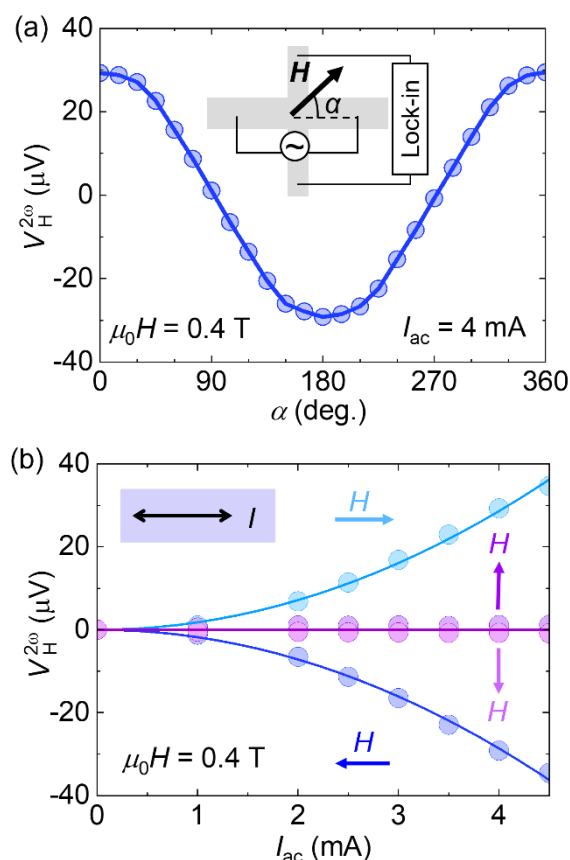


図 3 (a) 2 次のホール電圧の磁場角度依存性。挿入図は測定回路と印加磁場角度の定義を示している。(b) 様々な方向に磁場をかけたときの 2 次のホール電圧の電流依存性。

不純物散乱による外因性効果も 2 次のホール効果に寄与することが知られており、それは量子計量と同じ対称性を有している。しかしながら、両者は散乱時間に対する依存性が異なるため、その関係を調べることで切り分けることができる。具体的には、量子計量は散乱時間に依存しないのに対して、外因性効果は散乱時間の 1 乗もしくは 2 乗に比例する。よって、我々は 2 次のホール効果の温度依存性を測定することで両者の切り分けを試みた。図 4 は温度を変化させたときの 2 次のホール電圧を示している。観測された 2 次のホール電圧は温度の上昇により徐々に増加し、300 K 付近でピークを迎えたのちに、330 K 付近で消失した。このうち、高温での消失はネール温度に達したことによる常磁性体への変化が要因だと考える。一方、低温では時間反転対称性を保つスピンスパイラルもしくはスピングラス状態が安定化する。この磁気相転移は組成や試料作製条件に強く依存するが、50 K 以下の非線形ホール効果の消失はそのような相転移に起因している可能性がある。ここで特に注目すべき挙動は、温度を 100 K から 300 K へと上昇させると、2 次のホール電圧が増加する点である。一般的に散乱時間は低温ほど長くなるため、もし外因性効果が支配的であれば温度低下とともに信号が増大するはずである。しかし実際には高温側で増強が観測されたことから、観測された 2 次のホール効果は散乱時間に依存しない量子計量に起因している可能性が高いと考えられる。

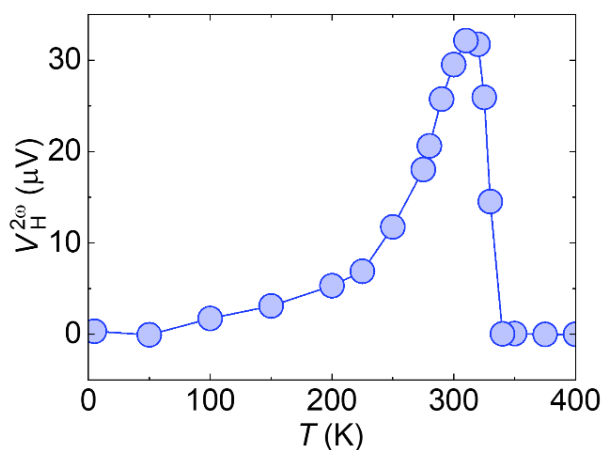


図 4 2 次のホール電圧の温度依存性。

最後に我々は理論計算を行い、実験との比較を行った。ここでは、 $\text{Mn}_3\text{Sn}/\text{Pt}$ における界面 DMI を考慮してスピン構造を決定し、得られたスピン構造をもとにタイトバインディングモデルによって電子構造の計算を行った。図 5 は最終的に得られた 2 次のホール伝導度の磁場角度依存性を示している。計算結果から明らかなように、量子計量双極子(青)は実験結果の角度依存性を良く再現しているのに対し、ベリー曲率双極子(グレー)は異なる角度依存性を示し、その値も量子計量双極子に比べて著しく小さいことが分かる。この定量的な差異は、前述したような両者の散乱時間依存性の違いに起因すると考える。よって、以上の結果から、 $\text{Mn}_3\text{Sn}/\text{Pt}$ ヘテロ構造における非線形ホール効果は量子計量に由来することが示され、室温での量子計量制御が可能であることが明らかとなった。

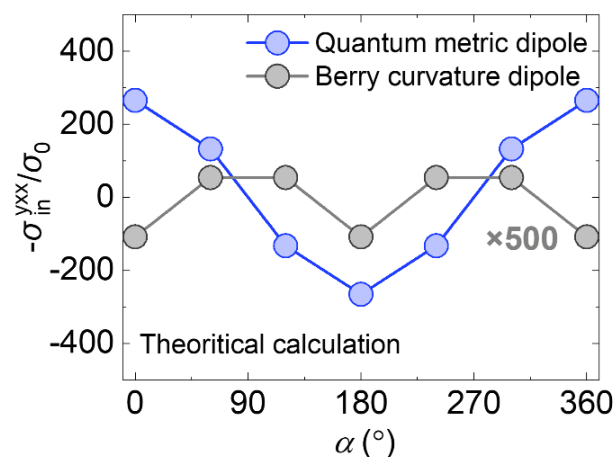


図 5 理論計算で得られた 2 次のホール伝導度の磁場角度依存性。青は量子計量双極子、グレーはベリー曲率双極子に起因する非線形ホール効果を示している。

4. まとめ

本研究では、トポロジカルな電子構造を有するカイラル反強磁性体 $\text{Mn}_3\text{Sn}/\text{Pt}$ ヘテロ構造において、室温で量子計量構造を操作できることを明らかにした。ここでは、量子計量は 2 次の非線形ホール効果として検出され、その効果は室温付近で大きく増強された。本成果は、量子計量を用いた整流素子や THz 検出器などの高効率な非線形電子デバイスの基盤となることが期待される。さらに、本

研究は物性物理学における非線形応答の理解を深めるとともに、スピントロニクスや電子工学など異分野間の学際的研究の発展にも寄与するものである[15]。

謝辞

ここで紹介した内容は、東北大学の大野英男氏、金井駿氏、山根結太氏、Jiahao Han 氏、竹内祐太朗氏、Ju-Young Yoon 氏、日本原子力研究開発機構の荒木康史氏、家田淳一氏との共同研究による成果である。ここに感謝申し上げます。また、本研究は日本学術振興会科学研究費助成事業(JP19H05622, JP 22K03538, JP 22KF0035)、同会外国人研究者招へい事業、文部科学省「次世代X-nics 半導体創生拠点形成事業」No. JPJ011438の支援の下で行われたものです。

参考文献

- [1] J.P. Provost, and G. Vallee, Commun. Math. Phys. **76**, 289 (1980).
- [2] M.V. Berry, Proc. R. Soc. A **392**, 45 (1984).
- [3] D. J. Thouless *et al.*, Phys. Rev. Lett. **49**, 405 (1982).
- [4] S. Murakami *et al.*, Science **301**, 1348 (2003).
- [5] J. W. Rhim *et al.*, Nature **584**, 59 (2020).
- [6] H. Tian *et al.*, Nature **614**, 440 (2023).
- [7] Y. Gao *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 166601 (2014).
- [8] A. Gao *et al.*, Science **381**, 181 (2023).
- [9] N. Wang *et al.*, Nature **621**, 487 (2023).
- [10] S. Nakatsuji *et al.*, Nature **527**, 212 (2015).
- [11] K. Kuroda *et al.*, Nat. Phys. **16**, 1090 (2017).
- [12] J. J. Liu *et al.*, Rare Met. **41**, 3012 (2022).
- [13] N. Jiang *et al.*, Appl. Phys. Lett. **123**, 072401 (2023).
- [14] Q. Ma *et al.*, Nature **565**, 337 (2019).
- [15] J. Han, T. Uchimura (Equal contribution) *et al.*, Nat. Phys. **20**, 1110 (2024).