

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「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」

研究終了報告書

研究期間 2018年10月～2024年03月

研究代表者：中辻 知
(東京大学 物性研究所 特任教授)

§ 1 研究実施の概要

(1)実施概要

電子構造のトポロジック性を利用した機能性磁性体材料を開発し、従来型強磁性体を置き換えることで、既存の問題を一挙に解決する革新的スピントロニクスデバイスの創製を目指す研究を行った。特に、磁性体において実現するトポロジカルな電子構造（線形分散の交差により形成されるワイル点）に注目し、その磁気構造の制御により巨大な電気磁気応答を示す磁性体の研究開発を行った。

まず、ワイル反強磁性体 Mn_3X ($X = Sn, Ge$) の純良単結晶を合成し、トポロジカル電子構造由来の物性研究を実験と理論の両面から行った。その結果、トポロジカル電子構造に由来した巨大応答を示すデバイス化に適した反強磁性体であることを見出した。またワイル強磁性体 $Co_2MnGa \cdot CoMnSb$ やノーダルライン強磁性体 $Fe_3Ga \cdot Fe_3Al$ 、ノーダルプレーン強磁性体 Fe_3Sn の横熱電係数が室温での世界最高値を更新し、安価で応用に適していることを明らかにした。これらの研究成果を基に、メモリ素子・熱流センサの開発を推進した。さらにデバイス化に必須となる薄膜試料の作製を行い、バルク単結晶に匹敵する巨大応答を示す Mn_3Sn 、 Co_2MnGa 、 Fe_3Ga 、 Fe_3Al 薄膜を得ることができた。特に、 Mn_3Sn のエピタキシャル薄膜では、エピタキシャル歪みにより、六回対称の磁気容易軸を二回対称の垂直磁気異方性に変化させることができることを見出した。

中辻・大谷・薬師寺・有田グループでは、実験と理論の両面から Mn_3Sn での磁気多極子ドメインの制御手法を発見・解明した。具体的には、 Mn_3Sn 多結晶およびエピタキシャル薄膜と Pt や W などの重金属層からなるメモリ素子において、拡張磁気八極子で特徴付けられる反強磁性秩序とそれに付随したワイル反強磁性状態をスピン軌道トルクで制御可能であることを世界で初めて実証した。さらに、強磁性体の素子に加えて 1/10 程度の書き込み電流密度で、素子全域 100% のエリアの磁気ドメインを制御可能であること、垂直磁気記録が可能であることを明らかにした。書き込み機構に加えて、読み出し機構の研究も進め、 Mn_3Sn の多層膜の積層構造や成膜プロセスを改良し、 Mn_3Sn メモリ素子のホール読み出し信号の増強に成功した。さらに、当初研究計画になかったものの、異常ホール効果以外の読み出し手法の開発を進め、 $Mn_3Sn/MgO/Mn_3Sn$ の反強磁性体からなる MTJ 素子においてトンネル磁気抵抗効果 (TMR) を世界で初めて観測した。観測された磁気抵抗の変化は数パーセントであるが、理論的には現在強磁性体で見られる値と同程度まで増強可能であることも明らかにした。現在の不揮発メモリとして耐久性の観点で最も注目される MRAM の高速化、低消費電力化に直接資する成果であり、今後の大きな発展が期待され、世界的にも大きな関心を集めている。

大谷・中辻・有田グループでは反強磁性体 Mn_3Sn 単結晶を FIB により加工し作製した素子で磁化方向に依存する非従来型磁気スピンホール効果を発見し、それが界面に垂直方向のスピン蓄積と磁場ライクトルクを生むことを実験・理論の両面で明らかにした。これはスピンホール効果が時間反転対称性であるという従来の常識を破るものであり、「磁気スピンホール効果」と名付けた。これにより垂直磁化を持つ磁気メモリのゼロ磁場での低消費反転機構に道が開けた。また、 Mn_3Sn では形状磁気異方性の影響が無視できるほど小さく、単一ビットでの多値記憶が原理上可能であるという反強磁性体特有の新しい機能を見出した。

また、巨大な異常ネルンスト効果を示すトポロジカル磁性体の応用出口として、中辻グループ・薬師寺グループを中心に、熱流センサの開発を進めた。 Mn_3Sn 薄膜を用いた熱流センサでは、「反磁界が非常に小さく自己減磁に強い」という特性を活かし、1 T の非常に大きな磁場擾乱においても高精度な熱流センシング特性を失わない機能性を実証した。さらに Fe_3Ga の合金薄膜が室温成膜でも巨大異常ネルンスト効果を失わないという利点を生かして、安価なフレキシブル基板である PET を用いたフレキシブル熱流センサの開発に成功した。

(2)顕著な成果

＜優れた基礎研究としての成果＞

1. ワイル反強磁性体 Mn_3X の実験と理論の両面からの統一的理解

概要:これまで、ワイル半金属状態を示す反強磁性体として確立しているのは Mn_3Sn のみであったが、同一磁気構造を持つ Mn_3Ge が類似のトポロジカル状態を持つことを、巨大な異常ホール効果

、異常ネルンスト効果、カイラル異常とプラナーホール効果の観測を通して確認した [1]。Mn₃GeはMn₃Snと異なり、サブミリKの低温まで非共線磁気構造を維持しているため、非弾性散乱と電子の熱励起による寄与を抑えて、ワイル半金属状態の物性を明らかにすることが可能である。また化学的に安定であるため、消費電力を抑えた巨大なデータ蓄積ならびに高速動作が可能な不揮発性磁気メモリ材料としても期待できる。

[1] Taishi Chen, Takahiro Tomita, Susumu Minami, Mingxuan Fu, Takashi Koretsune, Motoharu Kitatani, Ikhlas Muhammad, Daisuke Nishio-Hamane, Rieko Ishii, Fumiyuki Ishii, Ryotaro Arita & Satoru Nakatsuji, “Anomalous transport due to Weyl fermions in the chiral antiferromagnets Mn₃X, X = Sn, Ge”, Nature Communications **12**, 572 (2021).

2. 磁気スピンホール効果の学理構築

概要:トポロジカル反強磁性体Mn₃Snでは、従来のスピンホール効果とは全く異なる“磁気スピンホール効果”が発現することが知られている。この効果では、Mn₃Snの磁化方向（拡張磁気八極子の偏極方向）を変化させることで、表面に蓄積するスピンの偏極方向を制御できる [2]。今回、面直方向に偏極したスピン蓄積が、隣接する強磁性体に対して巨大な垂直方向の磁場ライクトルクとして作用することを実験的に明らかにした。また、その変換効率が白金よりも数倍高くなることも示した [3]。故にMn₃Snをスピントルク源として用いることで、従来の常磁性重金属に比べて、より低消費電力で駆動可能なスピントロニクス素子の設計・提案・実現が期待される。

[2] Motoi Kimata, Hua Chen, Kouta Kondou, Satoshi Sugimoto, Prasanta K. Muduli, Muhammad Ikhlas, Yasutomo Omori, Takahiro Tomita, Allan. H. MacDonald, Satoru Nakatsuji & Yoshichika Otani, “Magnetic and magnetic inverse spin Hall effects in a non-collinear antiferromagnet” Nature **565**, 627 (2019).

[3] Kouta Kondou, Hua Chen, Takahiro Tomita, Muhammad Ikhlas, Tomoya Higo, Allan H. MacDonald, Satoru Nakatsuji & YoshiChika Otani, “Giant field-like torque by the out-of-plane magnetic spin Hall effect in a topological antiferromagnet” Nature Communications **12**, 6491 (2021).

3. トポロジカル磁性体の制御と非平衡状態の学理構築

概要:トポロジカル反強磁性体Mn₃Snの非平衡ダイナミクスの学理構築および磁気八極子偏極の制御を電流パルスや歪みにより試みた。【歪み制御】巨大なピエゾ磁気効果を室温で発見し、それを用いてMn₃Snの磁気八極子偏極の方向の反転に成功した[4]。磁場では無く歪みで異常ホール効果の符号を反転させたのは初めての試みである。【電流パルス制御】世界で初めて反強磁性体の電流誘起磁化反転に成功[5]、その後薄膜の単結晶化に成功し、100%の反転を実現した[6]。さらに、時間分解カー効果により非平衡ダイナミクスを研究し、10 ps級の磁気スイッチングが可能であることを示した[7]。これらは次世代不揮発メモリの書き込み技術の基盤となる。

[4] M. Ikhlas, S. Dasgupta, F. Theuss, T. Higo, Shunichiro Kittaka, B. J. Ramshaw, O. Tchernyshyov, C. W. Hicks & S. Nakatsuji, “Piezomagnetic switching of anomalous Hall effect in an antiferromagnet at room temperature”, Nature Physics **18**, 1086 (2022).

[5] Hanshen Tsai*, Tomoya Higo*, Kouta Kondou, Takuya Nomoto, Akito Sakai, Ayuko Kobayashi, Takafumi Nakano, Kay Yakushiji, Ryotaro Arita, Shinji Miwa, Yoshichika Otani & Satoru Nakatsuji, “Electrical manipulation of a topological antiferromagnetic state”, Nature **580**, 608 (2020).

[6] Tomoya Higo*, Kouta Kondou*, Takuya Nomoto, Masanobu Shig, Shoya Sakamoto, Xianzhe Chen, Daisuke Nishio-Hamane, Ryotaro Arit, Yoshichika Otan, Shinji Miwa & Satoru Nakatsuji “Perpendicular full switching of chiral antiferromagnetic order by current” Nature **607**, 474–479

(2022).

[7] Shinji Miwa, Satoshi Iihama, Takuya Nomoto, Takahiro Tomita, Tomoya Higo, Muhammad Ikhlas, Shoya Sakamoto, YoshiChika Otani, Shigemi Mizukami, Ryotaro Arita, Satoru Nakatsuji, “Giant Effective Damping of Octupole Oscillation in an Antiferromagnetic Weyl Semimetal”, *Small Sci.* **1**, 2000062 (2021).

＜科学技術イノベーションに大きく寄与する成果＞

1. ワイル反強磁性体 Mn_3Sn におけるデバイス基盤技術の開発

概要：反強磁性体は強磁性体のような応答を示さないため、長らく使えないと思われてきたがワイル反強磁性体 Mn_3Sn の巨大な電気・熱・光応答の発見により応用の可能性が急速に高まった。一方、長い歴史のある強磁性体に比べ依然その知見は少ない。そこで、さらにその巨大応答の開発研究を行った。その結果、「巨大応答を示す薄膜の作製[4]」「巨大応答の電氣的制御 [5,6]」、「超高速動作につながる巨大な有効ダンピング [7]」、「多値記憶特性 [8]」、量子トンネル磁気抵抗効果[9] の実証に世界に先駆けて成功した。本成果により、反強磁性体を用いたメモリ素子や熱電変換素子といった磁気デバイス開発における飛躍的な進展が期待できる。

[4] Tomoya Higo, Danru Qu, Yufan Li, Chia-Ling Chien, Yoshichika Otani, & Satoru Nakatsuji, “Anomalous Hall effect in thin films of the Weyl antiferromagnet Mn_3Sn ”, *Appl. Phys. Lett.* **113**, 202402 (2018). “Featured Articles”

[5] Hanshen Tsai*, Tomoya Higo*, Kouta Kondou, Takuya Nomoto, Akito Sakai, Ayuko Kobayashi, Takafumi Nakano, Kay Yakushiji, Ryotaro Arita, Shinji Miwa, Yoshichika Otani, & Satoru Nakatsuji, “Electrical manipulation of a topological antiferromagnetic state”, *Nature* **580**, 608 (2020).

[6] Tomoya Higo*, Kouta Kondou*, Takuya Nomoto, Masanobu Shiga, Shoya Sakamoto, Xianzhe Chen, Daisuke Nishio-Hamane, Ryotaro Arita, Yoshichika Otani, Shinji Miwa, & Satoru Nakatsuji “Perpendicular full switching of chiral antiferromagnetic order by current” *Nature* **607**, 474 (2022).

[7] Shinji Miwa, Satoshi Iihama, Takuya Nomoto, Takahiro Tomita, Tomoya Higo, Muhammad Ikhlas, Shoya Sakamoto, YoshiChika Otani, Shigemi Mizukami, Ryotaro Arita, & Satoru Nakatsuji, “Giant Effective Damping of Octupole Oscillation in an Antiferromagnetic Weyl Semimetal”, *Small Sci.* **1**, 2000062 (2021).

[8] Tomoya Higo, Yufan Li, Kouta Kondou, Danru Qu, Muhammad Ikhlas, Ryota Uesugi, Daisuke Nishio-Hamane, C. L. Chien, YoshiChika Otani, & Satoru Nakatsuji, “Omnidirectional Control of Large Electrical Output in a Topological Antiferromagnet”, *Adv. Funct. Mater.* **31**, 2008971 (2021).

[9] Xianzhe Chen*, Tomoya Higo*, Katsuhiko Tanaka*, Takuya Nomoto, Hanshen Tsai, Hiroshi Idzuchi, Masanobu Shiga, Shoya Sakamoto, Ryoya Ando, Hidetoshi Kosaki, Takumi Matsuo, Daisuke Nishio-Hamane, Ryotaro Arita, Shinji Miwa, & Satoru Nakatsuji, “Octupole-driven magnetoresistance in an antiferromagnetic tunnel junction”, *Nature* **613**, 490 (2023).

2. 異常ネルンスト効果を用いた発電デバイスならびに薄膜型熱流センサへの展開

概要：これまで不可能であった異常ネルンスト効果のハイスループット第一原理計算を世界で初めて実現し、物質探索の効率化を行った。それにより、室温で過去最大値に匹敵する巨大な異常ネルンスト効果を示す新規トポロジカル磁性体 Fe_3Ga , Fe_3Al , Fe_3Sn の発見に繋がった[10,11,12]。豊富で廉価な材料で構成されており、熱電応用のブレークスルーとなった。実際に日東電工との共同研究により、量産可能なロール・ツー・ロールスパッタでのフィルム型フレキシブル熱流センサの開発に成功した[13]。

[10] Akito Sakai*, Susumu Minami*, Takashi Koretsune*, Taishi Chen*, Tomoya Higo*, Yangming Wang, Takuya Nomoto, Motoaki Hirayama, Shinji Miwa, Daisuke Nishio-Hamane, Fumiyuki Ishii, Ryotaro Arita, & Satoru Nakatsuji, “Iron-based binary ferromagnets for transverse thermoelectric

conversion”, Nature **581**, 53 (2020).

[11] Zili Feng*, Susumu Minami*, Shuhei Akamatsu, Akito Sakai, Taishi Chen, Daisuke Nishio-Hamane, & Satoru Nakatsuji “Giant and Robust Anomalous Nernst Effect in a Polycrystalline Topological Ferromagnet at Room Temperature”, Adv. Funct. Mater., 2206519 (2022).

[12] Taishi Chen, Susumu Minami, Akito Sakai, Yangming Wang, Zili Feng, Takuya Nomoto, Motoaki Hirayama, Rieko Ishii, Takashi Koretsune, Ryotaro Arita, & Satoru Nakatsuji, Science Advance **8**, eabk1480 (2022).

[13] Hirokazu Tanaka*, Tomoya Higo*, Ryota Uesugi, Kazuto Yamagata, Yosuke Nakanishi, Hironobu Machinaga, & Satoru Nakatsuji, “Roll-to-Roll Printing of Anomalous Nernst Thermopile for Direct Sensing of Perpendicular Heat Flux”, Adv. Mater., 2303416 (2023).

<代表的な論文>

1. 磁気スピンホール効果由来の巨大な垂直磁場ライクトルクの観測

概要: Mn_3Sn のスピン蓄積ベクトルの方向が磁気八極子偏極の回転に伴い変化することを見出した。この現象は、従来のスピンホール効果とは異なり、磁気構造の変化に対応して応答が変化することから、「磁気スピンホール効果」と名付けた。これまで未開拓であったスピンホール効果と磁性との協奏現象であり、より効率的に動作する磁気記録素子の創成に貢献することが期待される [1]。その後、面直方向に偏極したスピン蓄積が隣接する強磁性体に対して巨大な磁場ライクトルクとして作用することを明らかにした。この成果により、 Mn_3Sn をスピントルク源として用いることで、従来の常磁性重金属に比べ省エネ化が期待される。

Motoi Kimata, Hua Chen, Kouta Kondou, Satoshi Sugimoto, Prasanta K. Muduli, Muhammad Ikhlas, Yasutomo Omori, Takahiro Tomita, Allan. H. MacDonald, Satoru Nakatsuji & Yoshichika Otani, “Magnetic and magnetic inverse spin Hall effects in a non-collinear antiferromagnet” Nature **565**, 627-630 (2019).

2. ワイル反強磁性体の電氣的制御の原理検証実験

概要: ワイル反強磁性体 Mn_3Sn の電氣的制御と異常ホール効果による検出に世界で初めて成功した。本成果は反強磁性体を用いたメモリ機能の原理検証実験に成功しただけでなく、これまで強磁性体において行われてきた種々のスピントロニクス実験が反強磁性体でも可能であることを示している。反強磁性体で期待されているTHz帯のスピンドYNAMICS等に関する理解が得られると期待される。

Hanshen Tsai*, Tomoya Higo*, Kouta Kondou, Takuya Nomoto, Akito Sakai, Ayuko Kobayashi, Takafumi Nakano, Kay Yakushiji, Ryotaro Arita, Shinji Miwa, YoshiChika Otani, & Satoru Nakatsuji, “Electrical Manipulation of a Topological Antiferromagnetic State”, Nature **580**, 608 (2020).

3. 反強磁性体における垂直2値状態の実現と電氣的制御手法の構築

概要: Mn_3Sn エピタキシャル薄膜作製に成功し、そのエピタキシャル歪みにより垂直磁気異方性を導入することに成功した。それを用いて Mn_3Sn と重金属との多層膜からなる素子を作製し、書き込み電流によるホール電圧を測定した。その結果、素子が出力する信号を電流によって100%反転可能であることを確認した。この結果は、拡張磁気八極子偏極を素子全域において電流制御できていること、メモリの高集積化に必須の垂直磁気記録が実現できたことを示している。数値計算の結果、スピンホール効果により生じたスピン流のスピン偏極方向に対して、磁気八極子偏極の回転面を垂直に配置することが、高効率な情報記憶の鍵であることが分かった。

Tomoya Higo*, Kouta Kondou*, Takuya Nomoto, Masanobu Shiga, Shoya Sakamoto, Xianzhe Chen, Daisuke Nishio-Hamane, Ryotaro Arita, Yoshichika Otani, Shinji Miwa & Satoru Nakatsuji

“Perpendicular full switching of chiral antiferromagnetic order by current”, Nature 607, 474 (2022).

§2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 「中辻」グループ

研究代表者: 中辻 知 (東京大学理学系研究科物理学専攻・教授)

研究項目

- ・ ワイル反強磁性体の実験的開発と評価
- ・ ワイル反強磁性体の薄膜作製
- ・ 磁気スピンホール効果の学理構築とそのスピントロニクス技術の開発
- ・ ワイル反強磁性体と他の金属との接合による磁気抵抗効果の開拓
- ・ 多結晶薄膜における結晶粒サイズの制御と素子作製

② 「大谷」グループ

主たる共同研究者: 大谷 義近 (東京大学物性研究所・教授)

研究項目

- ・ 磁気ダイナミクスと磁壁状態の実験的確認
- ・ 磁気スピンホール効果の学理構築とそのスピントロニクス技術の開発
- ・ スピン軌道トルクによる多結晶薄膜素子の反強磁性磁気ドメイン反転の実現
- ・ 不揮発性ホール素子メモリの性能評価

③ 「有田」グループ

主たる共同研究者: 有田 亮太郎 (理化学研究所創発物性科学研究センター・チームリーダー)

研究項目

- ・ ワイル反強磁性体の理論的開発
- ・ 磁気多極子ドメインの制御手法の理論構築
- ・ ナノ結晶における軌道電流・軌道磁化のネットワーク解明

④ 「薬師寺」グループ

主たる共同研究者: 薬師寺 啓 (産業技術総合研究所 スピントロニクス研究センター・研究チーム長)

研究項目

- ・ 磁気ドメインの熱安定性の確認
- ・ ホール素子メモリのデザイン
- ・ 不揮発性ホール素子メモリの作製
- ・ 不揮発性ホール素子メモリの性能評価

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

本事業で得られた基礎学理を一部用いることで、光電インターフェースや熱電モジュールの社会実装を目指し、企業の参画を前提とした以下の事業への取り組みを開始した。

・ JST 未来社会創造事業・大規模プロジェクト型「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」(2020 年度採択)

・ NEDO エネルギー・環境新技術先導研究プログラム「ワイル磁性体を用いた熱発電デバイスの研究開発」(2019 年 7 月～2021 年 7 月)

・ NEDO エネルギー・環境新技術先導研究プログラム「サーマルデータを可視化するセンシング機器の研究開発」(2022 年 5 月～2024 年 3 月)