

令和元年6月6日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H02209

研究課題名(和文)トポロジカル反強磁性体の実験的開拓

研究課題名(英文) Experimental exploration for topological antiferromagnets

研究代表者

中辻 知 (NAKATSUJI, SATORU)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：70362431

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 36,600,000円

研究成果の概要(和文)：磁気ワイルフェルミオン(時間反転対称性の破れたワイル半金属)をカイラル反強磁性体Mn₃Snにおいて世界で初めて発見した。また同物質において反強磁性体で始めて巨大な異常ネルンスト効果、磁気光学カー効果を観測し、室温で巨大な異常ホール効果を示す薄膜の作製に成功した。ラッティンジャー半金属として知られるパイロクロア型イリジウム酸化物Pr₂Ir₂O₇の薄膜作製に世界で初めて成功した。その電子相関が非常に強いことや、歪みや外部磁場を加えることでワイル半金属となることを実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

理論が先行していた磁気ワイルフェルミオンの実験的理解が急速に進んだ。また本研究を契機に様々な物質において磁気ワイルフェルミオンが発見され始めた。さらに、スピントロニクスや熱電分野において磁気ワイルフェルミオンを用いたデバイスの研究開発が進み始めている。世界各国で薄膜作製が試みられながらも成功例が全くなく、不可能と思われていたPr₂Ir₂O₇の薄膜作製を成功させたことは材料科学の観点から大変意義がある。また、ラッティンジャー半金属から摺動によりワイル半金属相が誘起されることを実験的に初めて示し、電子相関の強いトポロジカル相の理解を深め、開拓の場を拡げた。

研究成果の概要(英文)：The magnetic Weyl fermion, time-reversal broken Weyl semimetal, is discovered for the first time in the chiral antiferromagnet Mn₃Sn. In the same material, large anomalous Nernst effect and magneto-optical Kerr effect are observed for the first time in antiferromagnets. The high quality thin film of Mn₃Sn is also fabricated, exhibiting large anomalous Hall effect at room temperature. We succeeded in fabricating epitaxial thin films of pyrochlore iridate Pr₂Ir₂O₇ for the first time, which is known as a Luttinger semimetal. We demonstrated experimentally that the electronic correlation in Pr₂Ir₂O₇ is very strong, and that a Weyl semimetal state can be induced either by lattice strain or by applying an external magnetic field.

研究分野：物性物理

キーワード：トポロジー ワイル半金属 ラッティンジャー半金属 フラストレート磁性 異常ホール効果 異常ネルンスト効果 磁気光学カー効果

1. 研究開始当初の背景

21世紀の物質科学は、グラフェンやトポロジカル絶縁体など、電子構造の有する電子状態の位相幾何学的(トポロジカル)な性質の発見により大きなパラダイムシフトが起こりつつある。しかし、これまでの発見は、電子相関が重要でない系に限られており、強相関電子系における電子構造のトポロジカルな性質の解明は、次の必然的なステップであることは、世界的に認識されている。すなわち、これまでの物性研究の主な舞台は、電子相関とスピン軌道相互作用のどちらか一方を有する物質であったが、強い電子相関と強いスピン軌道相互作用の両者を兼ね備えた電子系は未開拓であり、新奇なトポロジカル量子相が理論予想されることから、次なるフロンティアとして世界的に大きく注目されている。実際、電子相関とスピン軌道相互作用の両者が同程度のエネルギースケールを持って競合するイリジウム酸化物においてワイル半金属が初めて予言されるなど、理論的な発展が顕著にみられ、その理論・実験研究は爆発的な広がりを見せている。しかし、実験的には、スピン構造の有するより単純なトポロジカルな性質を利用したものは、最近まで未確認であった。

2. 研究の目的

ここでは、電子構造のトポロジカルな異常、特にワイルノードを有する「トポロジカル反強磁性体」の典型例の確立を目指した系統的研究を行う。その具体的な対象として、強相関電子系では初めて電子構造の観点から、トポロジカル量子相の母物質として性質が明らかになったパイロクロア型イリジウム酸化物と、さらに、反強磁性体で初めて異常ホール効果を示すことが明らかになったカイラル反強磁性体 Mn_3Sn を取り上げる。パイロクロア型イリジウム酸化物においては、磁場、一軸圧力下で現れる常磁性状態でのフェルミノード相から反強磁性ワイル相へのトポロジカル量子相転移を解明する。反強磁性体において大きな異常ホール効果の存在が明らかになった Mn_3Sn について、電子状態の系統的研究により、それが有するトポロジカルな仮想磁場の起源を解明し、それが誘起する異常ネルンスト効果やスピン流の生成効果等を解明する。これらを統合しトポロジカルな反強磁性体の学理を確立する。

3. 研究の方法

(1)【 Mn_3Sn の仮想磁場の起源の解明】:

カイラル反強磁性体 Mn_3Sn において現れた巨大な異常ホール効果のトポロジカルな起源を解明するため、第一原理計算からバンド構造による理論解析と、純良な Mn_3Sn の単結晶試料を用いた光電子分光 (ARPES) 並びに磁気輸送特性の実験から電子構造の系統的研究を行った。バンド構造解析は東京大学(研究当時・理化学研究所)の有田グループと光電子分光 (ARPES) は東京大学・物性研究所の近藤グループ(分担者)との共同研究として遂行した。

(2)【反強磁性体における異常ネルンスト効果】:

異常ホール効果の電流印可を熱流印可に変えることで発生する異常ネルンスト効果は反強磁性体においてこれまで報告例はなかった。本研究ではブリッジマン法を利用することで単結晶 Mn_3Sn の更なる高純度化に成功した。特に $Mn_{3+x}Sn_{1-x}$ の過剰 Mn における組成変化により電子ドーピングが可能でフェルミ準位を上昇させる効果を持つ。この原理を利用し、異なる Mn 組成の純良単結晶試料 $Mn_{3+x}Sn_{1-x}$ を用いたネルンスト効果とホール効果を実験的に検証し、理論と比較・解析を行った。第一原理計算を用いたバンド構造解析は東京大学(研究当時・理化学研究所)の有田グループとの共同研究により遂行した。

(3)【トポロジカル反強磁性体 Mn_3Sn における磁気光学カー効果】:

磁気光学カー効果(MOKE)は、直線偏光した光を磁性体に照射した際に反射光の偏光面が回転する現象で、磁気光学素子の原理であるほか、磁気特性や磁気ドメインを非破壊・非接触で簡便に観察できる手段として広く用いられている。この効果は、マクロな磁化とスピン軌道相互作用により生じるため、磁化がゼロの反強磁性体ではその検出が困難であると考えられてきた。本研究では、まず、 Mn_3Sn 単結晶試料を用いて、MOKE の磁場依存性、波長依存性を測定し、理論との対比を行った。また、 Mn_3Sn 表面で得られた MOKE を用いて、反強磁性ドメインのイメージングも行った。また、単結晶のみならずトポロジカル反強磁性体のデバイス応用のために必須となる薄膜試料の作製も DC マグネトロンスパッタ法を用いて行い、バルク試料と同様に異常ホール効果や MOKE を測定した。MOKE の測定は米国 NIST の Shull グループ、UC Berkley の Orenstein グループ、NRL の Van 't Erve 博士、Johns Hopkins の Chien グループと、第一原理計算を用いた MOKE の計算は東京大学(研究当時・理化学研究所)の有田グループとの共同研究により遂行した。薄膜作製は Johns Hopkins の Chien グループと東京大学の太谷グループと共同で行った。

(4)【ラッティンジャー半金属 $Pr_2Ir_2O_7$ における非常に強い電子相関】

ゼロギャップ半導体に潜む物理は、これまで電子相関の弱い物質においてのみ研究されてきた。一方で、放物線的なバンド分散を持つ価電子帯と伝導帯がフェルミ準位上の一点で接するラッティンジャー半金属と呼ばれる状態（図 3(a)）では強い電子相関が通常の金属では期待できない新しい電子状態を作り出すことが 40 年以上前に予測されていた。しかし、これまで知られている -スズやテルル化水銀といった物質では有効質量が小さく電子相関も弱いという問題があった。そこで、有効質量が大きいラッティンジャー半金属として知られる $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ にテラヘルツ波を照射し、その電荷応答を観測・解析することで電子相関の大きさを見積もった。テラヘルツ分光測定は、米国ジョンス・ホプキンス大学ピーター・アーミテージ教授のグループと共同で行った。

(4) 【ラッティンジャー半金属 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ に誘起されるワイル半金属相】

ラッティンジャー半金属である $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ は格子歪みや外部磁場によってワイル半金属となることが理論的に予測されていたが、実験的に証明されていなかった。そこで、格子歪みを導入する目的で薄膜作製を行い、パルスレーザー蒸着法と固相エピタキシーの組み合わせによって、イットリア安定化ジルコニア基板上に高品質な $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ エピタキシャル薄膜を得た。結晶構造の評価は X 線回折と透過電子顕微鏡を用いて行った。ワイル半金属が現れていることを示すため、ホール効果測定やカイラル異常（負の縦磁気抵抗効果とプレーナーホール効果）の測定を行った。

4. 研究成果

(1) 【 Mn_3Sn の仮想磁場の起源の解明】:

Mn_3Sn のバンド構造からワイル半金属の特徴であるワイルノードがフェルミ準位近傍に存在することが理論的に明かとなった(図 1a,b)。従来知られていた非磁性体で現れる非磁性ワイル点の実験報告例はあったが、磁性体で現れる磁気ワイル点の存在は未確認であった。今回、光電子分光 (APRES) の実験から、バンド構造で予言された磁気ワイル点の存在を世界で初めて確認した (図 1c)。バンド構造内のワイルノードが持つ線形分散から、磁場と電場が平行な際にカイラル異常と呼ばれる負の磁気抵抗を誘起することが知られており、本研究では磁気抵抗測定の角度回転から負の磁気抵抗の観測にも成功した(図 1d)。この結果、フェルミ準位近傍に磁気ワイルフェルミオンの存在を明かにし、ワイルフェルミオンが創る巨大な仮想磁場が巨大な異常ホール効果と異常ネルンスト効果の発現機構に重要な役割を担っていることを解明した。また Mn_3Sn では 100 ガウスの磁場を与えるだけで、100~1000 テスラに匹敵する巨大な仮想磁場が発生することを解明した。

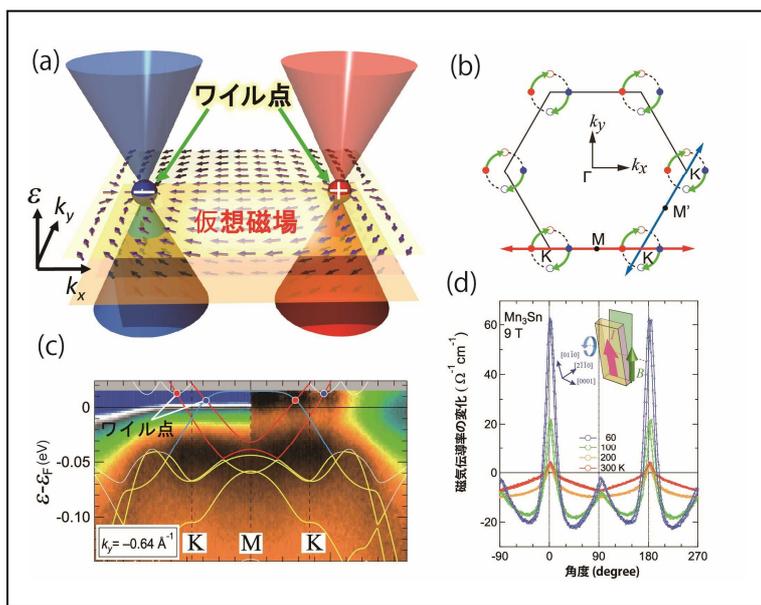


図 1(a)フェルミ面近傍の正負のワイルノードと仮想磁場。(b) Mn_3Sn のブリルアンゾーンと磁場方位によるワイル点の位置。 k_x - k_y 面内の磁場方位の変化により K 点のまわりをワイル点回る。(黒丸が x 方向の磁場。白抜きが y 方向の磁場)。(c)APRES の実験により得られたワイル点。実線が理論。(d)カイラル異常により誘起された B/E での磁場中の正の電気伝導率 (負の磁気抵抗) [文献 7]

(2) 【反強磁性体における異常ネルンスト効果】:

Mn_3Sn での測定から、反強磁性体において世界で初めて自発的に巨大な異常ネルンスト効果が発現することを発見した。強磁性体で現れるネルンスト効果は磁化の大きさに比例した熱起電力が現れるのが一般的であったが、反強磁性体 Mn_3Sn では 100 分の 1 以下の磁化を持つにも関わらず強磁性体と同程度以上の巨大熱起電力効果を示す。更に異なる組成比 x の純良単結晶試料 $\text{Mn}_{3+x}\text{Sn}_{1-x}$ を用いフェルミ準位を変化させることに成功し、ネルンスト効果とホール効果の振る舞いがともに理論計算と良い一致を示すことを見いだした。この結果、本研究から見いだされた巨大な仮想磁場はバンド構造由来の内因性機構、即ちワイルフェルミオンの発生に起因する巨大なベリー曲率によるものと考えられる。今回発見した異常ネルンスト効果は室温でも現れ、温度差と磁化と起電力が互いにすべて垂直方

向を取るため、新しい熱電素子としての活用も期待される。

(2) 【トポロジカル反強磁性体 Mn_3Sn における磁気光学カー効果】:

鏡面研磨した Mn_3Sn 単結晶試料での磁気光学カー効果(MOKE)の磁場依存性の測定から、室温・ゼロ磁場下において約 20 ミリ度という強磁性体に匹敵する巨大なカー回転角が自発的に現れ、その回転角の符号が 100 ガウス(10 mT)程度の外部磁場で制御できることを観測した(図 2a)。また、MOKE の波長依存性の測定から、カー回転角は 580 nm 程度で最大値を示すことを明らかにした。第一原理計算により求めたカー回転角の波長依存性との比較により、巨大な磁気光学カー効果は微小な磁化の有無によらず、時間反転対称性を巨視的に破る非共線反強磁性スピン構造(クラスター磁気八極子)がその微視的な起源であることを解明した。さらに、磁気光学顕微鏡を用いた観察により、磁気八極子を持つ反強磁性ドメインの反転に伴ったコントラストの変化をイメージングすることにも初めて成功した(図 2b)。コントラストを示す 2 つの反強磁性ドメイン(図 2c)はこれまで Mn_3Sn において観測されてきた巨大な異常ホール効果や異常ネルンスト効果の起源である符号の異なる ~100 T の仮想磁場の向きに対応している[文献 6]。

上記研究に加え、 Mn_3Sn 薄膜の作製も試み、Si/SiO₂ 基板上に単相の Mn_3Sn 多結晶薄膜を成膜することに成功した。この薄膜においても、単結晶試料に匹敵するほど大きな異常ホール効果[文献 3]や MOKE 信号を観測した。

本研究では、MOKE はトポロジカル反強磁性体の示す巨大な応答を担う磁気ドメインを直接観測する手法として非常に有効であり、基礎研究・デバイス研究への広範囲な応用・展開が可能であることを示した。

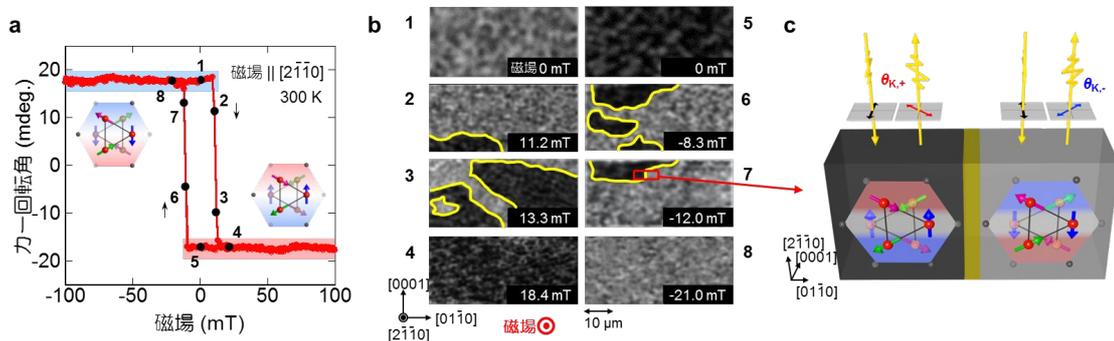


図 2 (a) 300 K における Mn_3Sn の磁気光学カー効果の磁場依存性。Inset: カー回転角に対応する磁気八極子。(b) 室温での試料表面の観察像。1-8 の番号は図 2(a)中での各点における測定に対応している。面直方向へ加えられる外部磁場によりコントラストが変化(灰色黒色)している。黄色部分は磁壁を示している。(c) コントラストに対応した磁気八極子ドメインの概要図。

(3) 【ラッティンジャー半金属 $Pr_2Ir_2O_7$ における強い電子相関】

$Pr_2Ir_2O_7$ のテラヘルツ分光を行ったところ、5 K において約 180 という非常に大きな比誘電率が得られた(図 3(b))。これは -スズやテルル化水銀に比べて数十倍以上大きな値である。また、ラッティンジャー半金属では、比誘電率は電子相関の大きさを見積もる尺度となる。これを利用して電子相関の大きさを見積もると、電子相関は電子の運動エネルギーに比べて 2 桁程度も大きいことが明らかとなった。このことは、フェルミ準位を価電子帯と伝導帯とが接するエネルギーにチューニングすることで、通常の電子描像が破綻する新しい電子状態が現れることを強く示唆している。

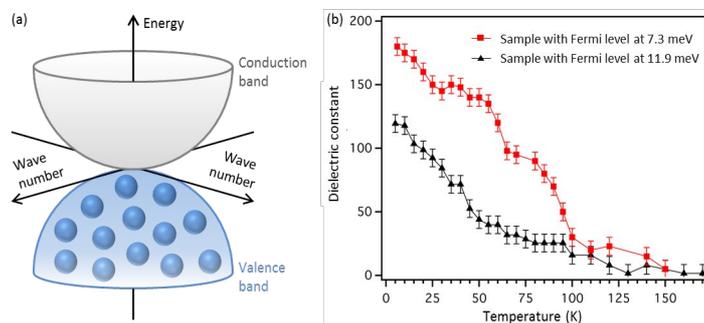


図 3. (a) ラッティンジャー半金属のバンド構造。(b) $Pr_2Ir_2O_7$ 薄膜における比誘電率の温度依存性。

(4) 【ラッティンジャー半金属 $Pr_2Ir_2O_7$ に誘起されるワイル半金属相】

室温でパルスレーザー蒸着した薄膜を大気中で加熱して結晶化させることで $Pr_2Ir_2O_7$ エピタキシャル薄膜の作製に世界で初めて成功した。結晶構造を詳細に調べたところ、格子

歪みが導入された結晶粒と格子緩和した結晶粒とが共存していることが分かった。この薄膜を用いてホール効果測定を行ったところ、50 K 以下で自発的ホール効果を示すことが明らかになった(図4(a))。これはイリジウムの磁気モーメントが all-in-all-out 構造をとっていて時間反転対称性が破れているためと考えられる。この場合、格子歪みが導入されている部分に関しては、立方対称性と時間反転対称性が同時に破れており、理論的に予測されているワイル半金属が現れる条件を満たしている。また、格子緩和している部分は本来のラッティンジャー半金属であるが、外部磁場によって時間反転対称性が破れると磁性ワイル半金属が現れると考えられる。これを実証するために、ワイル半金属の電気・磁気応答であるカイラル異常を測定したところ、カイラル異常に関連する現象である負の縦磁気抵抗(図4(b))ならびにプラナーホール効果(図4(c))を観測することに成功した。以上のように、ラッティンジャー半金属である $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ に歪みや外部磁場を加えることでワイル半金属が誘起されることを実験的に示すことができた。

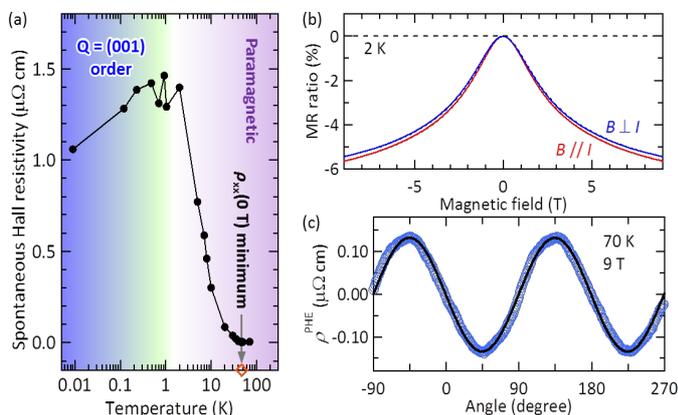


図 4. $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ 薄膜の輸送特性。(a)自発的ホール抵抗率の温度依存性。(b)磁気抵抗比の磁場依存性。磁場と電流が平行(赤線)の方が負の磁気抵抗がより大きくなっている。この差分がカイラル異常に起因している。(c)プラナーホール効果。青丸(実験データ)と黒線(理論的な予測)は非常によく一致している。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 37 件)

- [1] M. Kimata, H. Chen, K. Kondou, S. Sugimoto, P. K. Muduli, M. Ikhlas, Y. Omori, T. Tomita, A. H. MacDonald, S. Nakatsuji, and Y. Otani, *Nature* **565**, 627-630 (2019), "Magnetic and magnetic inverse spin Hall effects in a non-collinear antiferromagnet". [査読有]
- [2] T. Ohtsuki, Z. Tian, A. Endo, M. Halim, S. Katsumoto, Y. Kohama, K. Kindo, M. Lippmaa, and S. Nakatsuji, "Strain-induced spontaneous Hall effect in an epitaxial thin film of a Luttinger semimetal", *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **116**, 8803-8808 (2019). 査読有.
- [3] T. Higo, D. Qu, Yufan Li, C. L. Chien, Y. Otani, and S. Nakatsuji, "Anomalous Hall effect in thin films of the Weyl antiferromagnet Mn_3Sn ", *Appl. Phys. Lett.* **113**, 202402 (2018). "Featured Articles" [査読有]
- [4] D. Qu, T. Higo, T. Nishikawa, K. Matsumoto, K. Kondou, D. Nishio-Hamane, R. Ishii, P. K. Muduli, Y. Otani, and S. Nakatsuji, "Large enhancement of the spin Hall effect in Mn metal by Sn doping", *Phys. Rev. Materials* **2**, 102001(R) (2018). "Editor's Suggestion" [査読有]
- [5] K. Kuga, Y. Matsumoto, M. Okawa, S. Suzuki, T. Tomita, Keita Sone, Y. Shimura, T. Sakakibara, D. Nishio-Hamane, Y. Karaki, Y. Takata, M. Matsunami, R. Eguchi, M. Taguchi, A. Chainani, S. Shin, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, S. Nakatsuji, *Science Advances* **4**(2), 3547 (2018), "Quantum valence criticality in a correlated metal". [査読有]
- [6] T. Higo, H. Man, D. B. Gopman, L. Wu, T. Koretsune, O. 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, "Large magneto-optical Kerr effect and imaging of magnetic octupole domains in an antiferromagnetic metals", *Nature Photonics* **12**, 73-78 (2018). [査読有]
- [7] 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, "Evidence for magnetic Weyl fermions in a correlated metal", *Nature Materials* **16**, 1090-1095 (2017).
- [8] M. Ikhlas+, T. Tomita+, T. Koretsune, M.-T. Suzuki, D. Nishio-Hamane, R. Arita, Y. Otani, and S. Nakatsuji, "Large anomalous Nernst effect at room temperature in a chiral antiferromagnet", *Nature Physics* **13**, 1085-1090 (2017). [査読有]
- [9] B. Cheng, T. Ohtsuki, D. Chaudhuri, S. Nakatsuji, M. Lippmaa, and N. P. Armitage, "Dielectric anomalies and interactions in the three-dimensional quadratic band touching Luttinger semimetal $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ ", *Nat. Commun.* **8**, 2097 (2017). [査読有].
- [10] M. Nakayama, T. Kondo, Z. Tian, J. J. Ishikawa, M. Halim, C. Bareille, W. Malaeb, K. Kuroda, T. Tomita, S. Ideta, K. Tanaka, M. Matsunami, S. Kimura, N. Inami, K. Ono, H. Kumigashira, L. Balents, S. Nakatsuji, and S. Shin, "Slater to Mott crossover in the metal to insulator transition of $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ ", *Phys. Rev. Lett.* **117**, 056403 (2016). [査読有]
- [11] N. Kiyohara, T. Tomita, S. Nakatsuji, "Giant Anomalous Hall Effect in the Chiral Antiferromagnet Mn_3Ge ", *Phys. Rev. Applied* **5**, 064009 (2016). [査読有]

〔学会発表〕(計 161 件)

- [1] 中辻知, “Topological Weyl Semimetal: from multipole to room temperature functions”, [基調講演] 21st International Conference on Magnetism, 2018/7/20, San Francisco Moscone Center・米国.
- [2] 中辻知, “Large Transverse Responses at Room Temperature in the Weyl Antiferromagnets Mn_3X ” [招待講演], March Meeting 2018, Symposium on “Anomalous Transverse Transport in Mn_3X Non-collinear Antiferromagnets”, 2018/3/6, Los Angeles Convention Center, ・米国.
- [3] 中辻知, “Anomalous Transport in Topological Frustrated Magnets” [招待講演], Gordon Research Conference Topological & Correlated Matter, 2017/6/20, The Hong Kong University of Science and Technology・中国.
- [4] 中辻知, “Anomalous Transport Phenomena in Non-Collinear Antiferromagnets”, [招待講演] International Conference on Topological Materials Science 2017、2017/5/9、Tokyo Institute of Technology.
- [5] 中辻知, “Novel Topological Phases and Quantum Criticality in Correlated Electron Systems”, [招待講演] Correlated Electron Systems Gordon Research Conference, 2016/6/27、Mount Holyoke College, South Hadley・米国.
- [6] 中辻知, “Novel Topological Phases in Correlated Electron Systems”, [基調講演] Annual Conference of the Institute for Complex Adaptive Matter, 2016/5/16、Ohio・米国.

〔図書〕(計 5 件)

- [1] 富田崇弘, 肥後友也, 中辻知, アグネ技術センター・固体物理, トピックス「反強磁性体において実現した室温での巨大異常ネルンスト効果-磁気ワイルフェルミオンが織りなすトポロジカル現象-」, 2019, Vol.54, P85-99.
- [2] 中辻知, トポロジーを利用した反強磁性スピントロニクスとエネルギーハーベスティング, 日本磁気学会「まぐね」13 (No. 5), 216-222 (2018).
- [3] 中辻知, 反強磁性体における巨大異常ホール効果, 応用物理 Vol. 86 4月号, 310-314 (2017)

〔産業財産権〕

出願状況(計 4 件)

名称: メモリ素子
発明者: 中辻知
権利者: 国立大学法人東京大学
種類: 得願
番号: 530866
出願年: 2017
国内外の別: 国内

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等: 中辻研究室 <https://satoru.issp.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名: 近藤 猛

ローマ字氏名: KONDO TAKESHI

所属研究機関名: 東京大学

部局名: 物性研究所

職名: 准教授

研究者番号(8桁): 40613310

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。