

令和 3 年 5 月 19 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K22124

研究課題名（和文）ディラック磁性体の開発とスピントロニクス応用

研究課題名（英文）Spin transport phenomena in Dirac magnets and their applications for spintronics

研究代表者

塩見 雄毅（Shiomi, Yuki）

東京大学・大学院総合文化研究科・准教授

研究者番号：10633969

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000 円

研究成果の概要（和文）：主にディラック磁性体の候補である 相FeMnの薄膜に焦点を当てた。 $\gamma$ -FeMnでは、強結合近似のもとでフェルミ準位付近にスピン縮退したディラック構造が見られ、歪みによりスピンホール効果が観測されることが期待されていた。圧電材料基板上に作製したFeMn/Ni-Fe薄膜試料に対して、歪みと外部磁場を同時に印加した状態でアニールした。室温でスピンゼーベック/異常ネルンスト効果測定を行い、スピンホール効果の大きさを計測したが、歪みによる信号強度の制御は、測定精度の範囲内で観測されなかった。一方、測定された熱起電力信号に交換バイアス効果が見られ、その大きさはこの系で報告された値の中でも最大値に近かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究ではスピントロニクス材料として新しい種類のトポロジカル磁性体である「ディラック磁性体」を提案した。近年スピン縮退の解けた線形バンドの交差点であるワイル点を有する特異な電子構造に由来した高効率なスピン流と電流の変換効果（スピンホール効果）が注目を集めている。一方、本研究ではスピン縮退した線形バンドが交差するディラック点を有する磁性体をディラック磁性体と定義し、その機能開発を行った。特に、歪みの印加により発生すると期待される、ディラック点のベリー位相磁場の効果によるスピンホール効果を観測することを目指して研究を行った。

研究成果の概要（英文）：We mainly focused on thin films of  $\gamma$ -phase FeMn, which is a candidate for Dirac magnets. In  $\gamma$ -FeMn, a spin-degenerate Dirac cone was predicted near the Fermi level under a tight-binding approximation, and it was predicted that a spin Hall effect shows up due to strain. We prepared FeMn/Ni-Fe thin films on a piezoelectric substrate and annealed them under the presence of strain and an external magnetic field. For these samples, we measured spin Seebeck/anomalous Nernst effects at room temperature to estimate the magnitude of the spin Hall effect. However, evidence of the spin Hall effect was not obtained within the measurement accuracy. On the other hand, a large exchange bias effect was observed in the measured thermoelectric signals, and its magnitude is found to be as large as the maximum value reported so far in this bilayer system.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：ディラック磁性体 スピントロニクス スピンホール効果 トポロジー ベリー位相

### 1. 研究開始当初の背景

電流は現代情報化社会の礎となるエレクトロニクスの柱である。一方、近年見出されたスピン流は、スピン角運動量を運ぶ流れとして概念が確立され、低消費電力デバイスの実現の重要な構成要素として精力的な研究がなされている。スピン流素子の実現のためには、損失を少なく電氣的にスピン流を生成・検出することが重要であるが、スピン流と電流の変換効率は典型的材料である Pt においても 10% 以下である。変換効率の一桁程度の改善によって応用への可能性は飛躍的に高まると予想され、そのための材料開発は急務である。その意味で、トポロジカル絶縁体を代表としたトポロジカル物質はその特異なスピン物性により最大 100% の効率でスピン流-電流変換が期待されるため有望と目されたが、常に重畳するトポロジカルに自明なバルク伝導のために、優れたスピン物性を示すトポロジカル表面状態の伝導は室温において主要にならないこと、また試料作製に高価な真空装置である分子線エピタキシー(MBE)装置が必要であることこの理由から、室温デバイス応用は進んでいない。

そこで本研究では、以上の課題を踏まえ、新しいトポロジカル物質「ディラック磁性体」を提案して課題解決に取り組んだ。

### 2. 研究の目的

ディラック磁性体とは、申請者が新たに提案する概念であり、運動量空間にディラック点を有する磁性体である。本研究で注目する  $\bar{1}\text{-FeMn}$  という反強磁性金属は、強結合近似のもとで運動量空間のフェルミ準位付近の電子構造が線形分散で近似できる(ディラック電子)。線形分散はスピン縮退しており、フェルミ準位で交差点、すなわちディラック点を構成する。このように  $\bar{1}\text{-FeMn}$  の低エネルギー電子励起はディラック電子で説明される。歪みが無い場合はディラック電子が質量をもたず(エネルギーギャップが無く)トポロジ効果は発現しないが、歪みを与えてディラック電子が質量をもつ(エネルギーギャップをもつ)とトポロジ効果が発現する(図1)、最大で1万テスラに相当する巨大なベリー位相磁場由来するスピン流-電流変換(異常ホール効果及びスピンホール効果)が発現することが期待される。

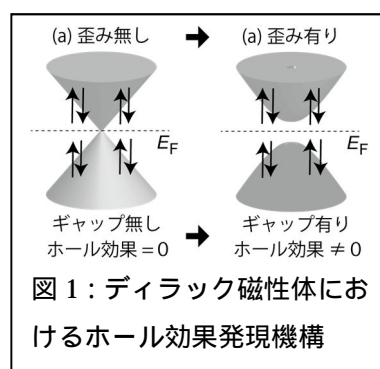


図1: ディラック磁性体におけるホール効果発現機構

本研究では、ディラック磁性体  $\bar{1}\text{-FeMn}$  の薄膜試料を開発し、期待される巨大なスピンホール効果及び異常ホール効果を観測することを目指す。トポロジカル表面状態を利用せずベリー位相効果を利用することで室温におけるスピン流-電流変換を高効率化し、安価で実用に適したスパッタ法で試料作製できる点で、上記の課題を解決する新しいアプローチを提案する。

### 3. 研究の方法

本研究は以下の2工程にブレイクダウンされる。

(1) 歪みを印加した  $\bar{1}\text{-FeMn}$  薄膜の作製

(2)  $\bar{1}\text{-FeMn}$  薄膜における異常・スピンホール効果の歪み依存性の観測

$\bar{1}\text{-FeMn}$  の薄膜作製は研究室の設備であるコスパッタ装置を用いて行った。相の FeMn は fcc 基板上でないと成長しないことが知られているため、最初にスピン流注入源となる強磁性体パーマロイ ( $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ) を成膜し、その後  $\text{Fe}_{50}\text{Mn}_{50}$  を成膜した。歪み効果を利用するために、基板として圧電材料 z-cut の  $\text{LiTaO}_3$  を選んだ。成膜温度は室温か 500 とした。FeMn 層の厚みは 20 nm とし、パーマロイ層の厚さは 1.25 nm から 10 nm まで変化させた。単一ドメイン状態を作るために、歪みと外部磁場を印加しつつ 200 ( $\bar{1}\text{-FeMn}$  の磁気転移温度 180 以上の温度)において Ar ガス雰囲気中でアニールした(図2(a))。試料評価は、X線回折により行った。

室温において、縦スピンゼーベック効果配置を使って、上記試料に対して異常ネルスト効果/スピンゼーベック効果の測定を行った(図2(b))。測定は電磁石をとりつけた真空チャンバ中で行った。試料の上面にチップ抵抗を取り付け、ジュール熱を発生させることで面直方向に温度勾配を生成した。生じた温度差は E 型熱電対

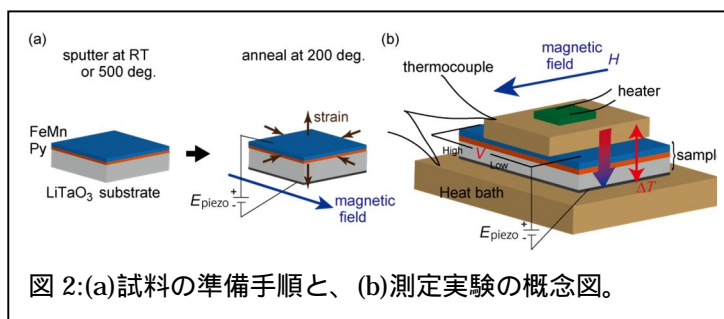


図2:(a)試料の準備手順と、(b)測定実験の概念図。

で測定した。本研究においては温度差は 10 K で固定した。温度勾配と面内磁場を印加した状態で、両者に垂直な方向に生じた起電力信号をナノボルトメータで測定した。さらに、信号の歪み依存性を調べるために、圧電基板の背面に銀ペーストで電極を作製した。以下の図では特に断ら

ない限り、圧電基板への電圧はオフにした状態で測定している。

#### 4. 研究成果

図 3(a)に室温と 500 で成膜した二層膜 (FeMn(20nm)/パーマロイ(10nm)) の熱起電力信号を示す。どちらも強磁性の磁化過程を反映した信号が見えており、その符号は正の磁場で正である。これはパーマロイの異常ネルンスト電圧や、FeMn/Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>におけるスピントラッキング電圧の符合と整合している。

電圧信号の大きさは、500 で成膜したほうが 2 倍程度小さく、また保磁力については大きくなっている。パーマロイは軟磁性であるので、500 で成膜した試料には、試料作製の過程でパーマロイ以外の強磁性相が現れたことを示唆する。

過去の文献によると、FeMn 薄膜においては高温で強磁性の  $\gamma$ -Fe 相が容易に形成されることが知られている。しかし、 $\gamma$ -Fe の異常ネルンスト効果の符合は負であることから、実験結果を説明できない。 $\gamma$ -Fe 以外の強磁性相が出現していると考えられる。

そこで試料の化学組成について知見を得るために、図 3(b)に幾つかの試料の X 線回折パターンを示す。基板のピーク (39°) に加えて、薄膜からの 2 つのピークが観測された (図の (i) と (ii))。 (i) は FeMn の (111) ピークに相当し、(ii) はパーマロイの (111) 面である。室温成膜の試料および 500 成膜の試料のどちらにおいても (i) と (ii) の両方のピークが見られるが、高温で成膜した方がピークがブロードになっている。これは FeMn 相とパーマロイ相の間で原子の移動 (マイグレーション) が起きていることを示唆する。同様の振る舞いは、パーマロイがより薄い試料でも確認された。

図 4 に、500 で成膜した FeMn(20nm)/パーマロイ (2.5nm) の試料に対する熱起電力の磁場依存性を示す。この試料においてもヒステリシスを有する起電力信号が見られた。パーマロイ 10nm の試料よりもヒステリシスが小さいのは強磁性相の厚さが薄く体積が小さいためと考えられる。

図 4 のインセットに示されるように、この試料においてはヒステリシスの中心が正の磁場方向にずれており、交換バイアス効果が見られた。緑色の領域で示されるように、交換バイアス磁場の大きさは 10 mT 程度である。特筆すべきことに、この大きさは、過去に FeMn/パーマロイ系で報告された交換バイアス磁場 1~2.5 mT と比べて優位に大きい。前述した FeMn 相とパーマロイ相の間の原子移動が交換バイアス効果を増大させることがわかった。詳細なメカニズムについては現在調査中である。

異なるパーマロイ層の厚さの試料を作製し、系統的に熱起電力を調べた (図 5) ここで全ての試料は 500 の温度で成膜された。図 5(a) と (b) に、熱起電力信号の大きさ (抵抗で割り算した値) と保磁力の大きさのパーマロイ層厚さ依存性を示した。熱起電力の大きさは、パーマロイ層の厚さが厚くなると大きくなるが、5 nm で最大値をとり減少する。薄いパーマロイ層の試料においては強磁性層の体積が小さくなるため異常ネル

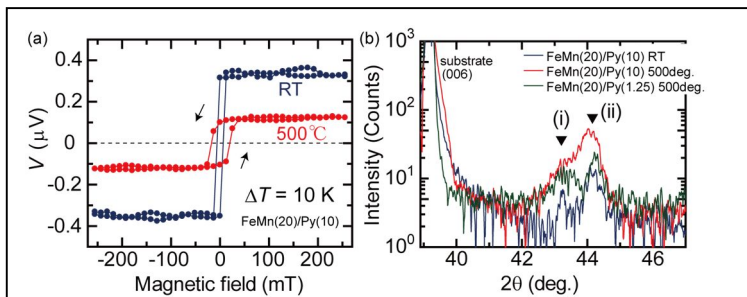


図 3:(a)成膜温度が異なる 2 つの試料に対する熱起電力信号の磁場依存性。(b)幾つかの試料の X 線回折パターン。

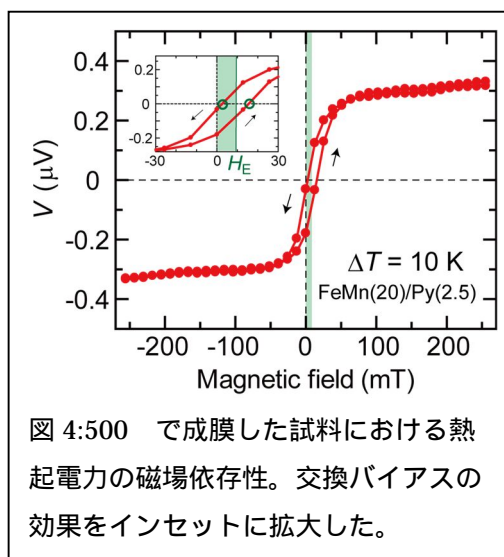


図 4:500 で成膜した試料における熱起電力の磁場依存性。交換バイアスの効果をインセットに拡大した。

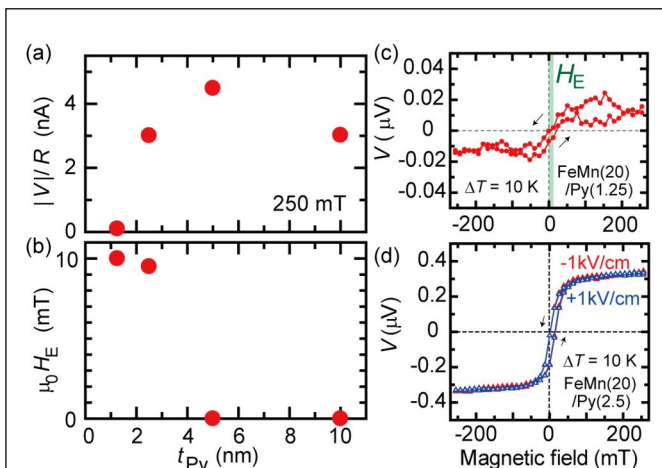


図 5:(a),(b)熱起電力信号を抵抗で割った値と交換バイアス磁場のパーマロイ厚さ依存性。(c)パーマロイ層の厚さが 1.25nm の試料の熱起電力の磁場依存性。(d)熱起電力信号に対する歪み効果。

スト電圧の大きさは、パーマロイ層の厚さが厚くなると大きくなるが、5 nm で最大値をとり減少する。薄いパーマロイ層の試料においては強磁性層の体積が小さくなるため異常ネル

ンスト/スピンゼーベック信号の大きさが小さくなると考えられる。それでもパーマロイ 1.25 nm 厚さの試料でも明瞭な起電力信号が見られる(図 5(c))。交換バイアスの効果はパーマロイ層が 10 nm のときと 5 nm の時は見られないが、それより薄い領域では 10 mT ほどの交換バイアス磁場が観測された。

最後に、観測された熱起電力信号に対する歪みの効果を調べた。試料の準備段階において磁場と歪みをかけながら FeMn のネール温度を超える温度(200 )でアニールしており、FeMn 内のカイラルドメインは揃っていると期待され、歪みにより信号の変調が期待できる。図 5(d)に、 $\pm 1$  kV/cm の電場を圧電基板に印加しながら熱起電力の測定を行った結果を示す。残念ながら、期待した変調は測定精度の範囲内で観測できなかった。歪みの大きさが十分でない可能性などが考えられ引き続き研究を行う必要がある。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Shiomi Y., Koike Y., Abe N., Watanabe H., Arima T.	4. 巻 100
2. 論文標題 Enhanced magnetopiezoelectric effect at the Neel temperature in CaMn <sub>2</sub> Bi <sub>2</sub>	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 54424
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.100.054424	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hirobe Daichi, Sato Masahiro, Hagihala Masato, Shiomi Yuki, Masuda Takatsugu, Saitoh Eiji	4. 巻 123
2. 論文標題 Magnon Pairs and Spin-Nematic Correlation in the Spin Seebeck Effect	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 117202
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.123.117202	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nakagawa K., Asano H., Miyazaki Y., Shiomi Y.	4. 巻 126
2. 論文標題 Magnetotransport properties of magnetite-hematite composite oxides	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 183904
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5129079	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nakagawa Kurea, Miyazaki Yu, Mitsuishi Natsuki, Sakano Masato, Yokouchi Tomoyuki, Ishizaka Kyoko, Shiomi Yuki	4. 巻 89
2. 論文標題 Enhanced Thermopower in the Antiferromagnetic Phase of Mn <sub>2</sub> -xCrxSb	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124601 ~ 124601
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.89.124601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kato Takemi, Sugawara Katsuaki, Ito Naohiro, Yamauchi Kunihiro, Sato Takumi, Oguchi Tamio, Takahashi Takashi, Shiomi Yuki, Saitoh Eiji, Sato Takafumi	4. 巻 4
2. 論文標題 Modulation of Dirac electrons in epitaxial Bi2Se3 ultrathin films on van der Waals ferromagnet Cr2Si2Te6	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 84202
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.4.084202	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shiomi Yuki, Masuda Hidetoshi, Takahashi Hidefumi, Ishiwata Shintaro	4. 巻 10
2. 論文標題 Large Magneto-piezoelectric Effect in EuMnBi2 Single Crystal at Low Temperatures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 7574
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-64530-2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

#### 6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

#### 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

#### 8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------