

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 29 日現在

機関番号：11301

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2021

課題番号：20K22409

研究課題名（和文）ノンコリニア反強磁性体のスピントルク誘起ダイナミクスの解明とその応用

研究課題名（英文）Unveiling the spin torque induced dynamics of non-collinear antiferromagnet and its application

研究代表者

竹内 祐太郎（Takeuchi, Yutaro）

東北大学・材料科学高等研究所・特任助教

研究者番号：10882136

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究ではノンコリニア反強磁性体薄膜の量子効果ならびにスピントルク誘起ダイナミクスを解明するとともに、その応用を目指して行われたものである。ノンコリニア反強磁性体Mn₃Sn薄膜の異常ホール効果、磁気光学カー効果の発生機構を明らかにし、スピントルクによるノンコリニア反強磁性体の反転に加えて、回転効果という従来の磁気秩序には見られなかった現象を観測することにも成功した。当該現象によってメモリ、乱数発生器や発振素子などが期待され、ノンコリニア磁気構造を利用した新規スピントロニクス素子への応用にに向けた道を切り拓くことに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピントロニクスでは「磁性材料の電氣的制御」が最重要課題の一つである。従来、強磁性体はその制御の対象として研究されてきたが、近年、磁化がゼロの反強磁性体が注目されている。本研究ではその中でも巨大な異常ホール効果などの特異な性質を持つ、ノンコリニア反強磁性体に着目した。スピントルクによるノンコリニア反強磁性体のスピン構造の電流誘起反転を示すと同時に、新規現象であるスピン構造の回転現象を発見した。加えてノンコリニア反強磁性体薄膜の種々の量子効果の生成因子も明らかにした。本研究によって、ノンコリニア反強磁性体を用いた新機能・高効率なスピントロニクスデバイスへの展開が期待される。

研究成果の概要（英文）：This study aims to investigate quantum effects and spin torque-induced dynamics in non-collinear antiferromagnetic thin films and their applications. We have clarified the mechanisms of anomalous Hall and magneto-optical Kerr effects in non-collinear antiferromagnetic Mn₃Sn thin films. In addition to spin torque-induced switching of non-collinear antiferromagnet, we have succeeded in observing the chiral-spin rotation, which is a phenomenon not seen in conventional collinear magnetic systems. These phenomena can be used for memory, random number generator, oscillation device, etc. And this research has successfully paved the way for the application of novel spintronics devices based on noncollinear magnetic structures.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス 反強磁性 スピントルク ワイル半金属 スピン軌道トルク

1. 研究開始当初の背景

磁気秩序の電氣的制御はスピントロニクス分野における最重要課題の一つである。近年、バルクやヘテロ構造における対称性の破れや元素由来のスピントラック・相互作用によって生じるスピントラックトルク(図 1)による磁気秩序の電氣的制御の研究が活発になっている。従来、その電氣的制御の対象は強磁性体(図 2a)が中心であったが、ここ数年でスピントラックが反平行に配列し、全体として磁化がゼロの共線的(コリニア)反強磁性体(図 2b)のスピントラックトルクによる制御が報告され、反強磁性スピントロニクスなる新興領域が形成されつつある。しかしながら、反強磁性体は磁気秩序の反転に伴う電気抵抗の変化が微弱であり、電氣的検出が難しいという課題を抱えている。別の反強磁性体として、幾何学的フラストレーションが作用しスピントラックが非共線的に配列したノンコリニア反強磁性体がある(図 2c)。ノンコリニア反強磁性体はこれまでバルク材料を中心に物性物理学の分野で研究されており、最近になって全体のスピントラックが消失しているにも関わらず巨大な異常ホール効果を示すことが報告され、スピントロニクス分野でも急激に注目されている。以上のように、特異な量子効果などで注目されているノンコリニア反強磁性体であるが、これまではバルク材料を用いた研究が中心で、薄膜を用いた研究の報告はごく最近である。また、それゆえにノンコリニア反強磁性体薄膜を用いた機能性スピントロニクスデバイスの実証をはじめとするノンコリニア反強磁性体によるスピントロニクス研究の報告はきわめて限定的であり、当該分野は発展途上の段階である。

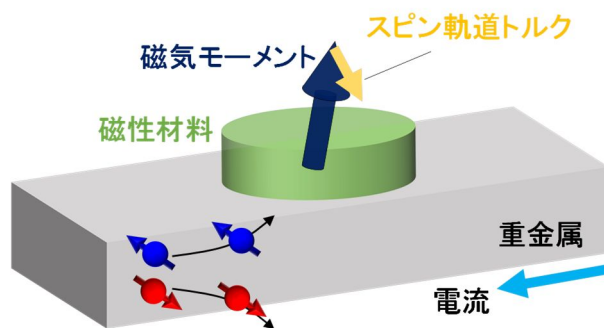


図 1 スピントラックトルクの模式図。重金属/磁性体などのヘテロ構造において膜面内に電流を印加すると重金属中のスピントラック効果等によって磁性材料の磁気モーメントにトルクを作用させる。

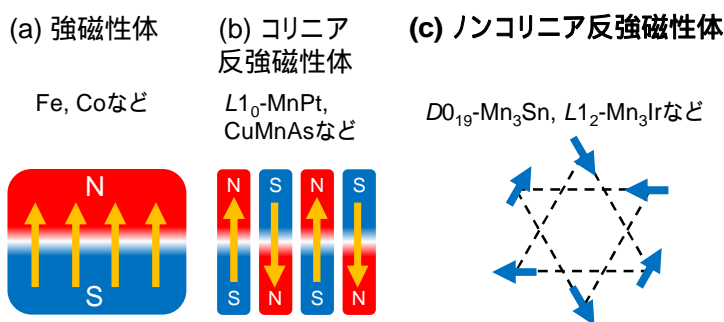


図 2(a)強磁性体、(b)コリニア反強磁性体、(c)ノンコリニア反強磁性体とその磁気秩序および代表的な材料。

2. 研究の目的

以上のような研究背景のもと本研究代表者は世界初のノンコリニア反強磁性体のエピタキシャル薄膜の作製とその異常ホール効果の観測など、ノンコリニア反強磁性体を用いたスピントロニクス研究の発展に向けた材料研究の成果を報告してきた。本研究はこれらの材料基盤技術を活用し、機能性スピントロニクスデバイスの実証やスピントラックダイナミクスの解明を目指す。具体的には、M 面配向ノンコリニア反強磁性体 Mn_3Sn エピタキシャル薄膜の異常ホール効果の増大とその解明、スピントラックによるノンコリニア反強磁性体の電氣的制御、磁気光学カー効果によるノンコリニア反強磁性体の磁区観測と反転機構の解明を行う。

3. 研究の方法

DC/RF マグネトロンスパッタを用いて MgO(110)基板上に W/Ta バッファー層を介してノンコリニア反強磁性体 Mn_3Sn 薄膜を成膜した。キャップ層薄膜には MgO/Ru ならびに Pt を用いてい

る。成膜した薄膜をフォトリソグラフィおよび Ar イオンミリングを用いてマイクロメートルスケールのホール素子に加工した。作製したホール素子において直流 4 端子法によって異常ホール効果の測定を行っている。成膜後また、スピン軌道トルクの誘起には W, Ta, Pt などの重金属層を用いた重金属/Mn₃Sn のヘテロ構造において、膜面内にパルス電流を印加することでノンコリニア反強磁性体 Mn₃Sn 層のカイラルスピン構造にスピン軌道トルクを作用させている。ヘテロ構造の模式図と透過型電子顕微鏡(TEM)による Mn₃Sn 層の断面図を図 3 に示す。パルス電流のパルス幅は 100 ミリ秒で、電流の振幅を変えながら Mn₃Sn のホール抵抗を測定する ($R-I$ 曲線)。磁気カー光学によるノンコリニア反強磁性体の磁区観測には 658 nm の波長の半導体レーザーを試料に照射し、反射波を CCD カメラによって検出している。

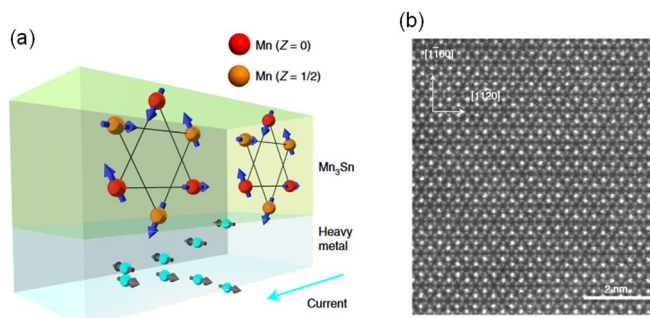


図 3 (a) 重金属/Mn₃Sn ヘテロ構造におけるスピン軌道トルク誘起の模式図。(b) Mn₃Sn 薄膜層の断面 TEM 図。Mn₃Sn は(1 $\bar{1}$ 00)面すなわち M 面が膜面に平行に成長している。このため、電流印加方向は[11 $\bar{2}$ 0]および[0001]の 2 つの方向に印加可能である。(a)では[11 $\bar{2}$ 0]方向に電流を印加することでスピン蓄積が[0001]方向に発生している。[Y. Takeuchi *et al.*, Nature Materials **20**, 1364-1370 (2021).]

4. 研究成果

図 4(a)はバッファー層を介して成膜した 50nm の膜厚の M 面配向 Mn₃Sn のホール抵抗率の外部磁場依存性を各熱処理温度で評価したものである。熱処理温度 450°C 以上でノンコリニア反強磁性体由来の負の異常ホール抵抗が観測された。また、異常ホール抵抗率は熱処理温度増加に伴い、増加し、600°C の熱処理温度では 1.4 $\mu\Omega\text{cm}$ とバルクの値に迫るホール抵抗が得られた。次にこれらの試料についてホール伝導率の温度依存性を調べた。図 4(b)にその結果を示す。熱処理温度 500°C 以上の試料では測定温度 200K でホール伝導率がゼロになった。これはノンコリニア反強磁性体のカイラルスピン構造による異常ホール効果が消失によるものと考えられる。一方で、熱処理温度 450°C 以下の試料では 250 K 以下で負の異常ホール伝導率すなわち強磁性の発現が見られた。これは強磁性体 Mn_{1.75}Sn の形成によるものだと考えられ、単相 Mn₃Sn の形成が異常ホール効果増大に寄与することが明らかになった。本研究では他にも異常ホール効果と Mn₃Sn 中の Mn 組成の関係を調べており、組成の変化による Mn₃Sn 格子定数の変化を観測し、その格子定数が異常ホール効果と大きな相関関係があることも明らかになった。

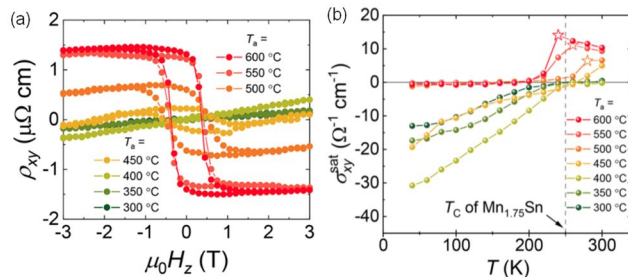


図 4 M 面配向 Mn₃Sn 薄膜の(a)ホール抵抗率の磁場依存性および(b)異常ホール伝導率の温度依存性を各熱処理温度で評価した結果。[J. Yoon, Y. Takeuchi *et al.*, AIP Advances **11**, 065318 (2021).]

次に W/Ta/Mn₃Sn/Pt のヘテロ構造を作製し、電流印加によって M 面配向のノンコリニア反強磁性体 Mn₃Sn 層のカイラルスピン構造にスピン軌道トルクを作用させ、そのダイナミクスを調べた。図 5(a)および(b)はホール抵抗のパルス電流振幅依存性(R_H-I 曲線)を各電流方向で測定した結果である。スピン軌道トルクの印加によって、閾値電流以上でのホール抵抗の中間状態への遷移、閾値電流以上でのホール抵抗の擾乱の増大、電流の印加方向に依存して閾値電流が大きく変化という 3 つの特徴的な振る舞いが観測された。得られた特徴的な振る舞いを解明するために LLG 方程式を数値的に解くことで Mn₃Sn のカイラルスピン構造のダイナミクスをシミュレーションした。その結果、本研究で観測されたノンコリニア反強磁性体はスピン軌道トルクによってそのスピン構造が恒常回転していることが分かった (図 6(a))。さらに、ノンコリニア反強磁性

体 Mn_3Sn において保磁力とスピン軌道トルクによるカイラルスピン構造の回転の閾値電流密度の比であるスイッチング効率について調べた。図 6(b)はスイッチング効率の Mn_3Sn 膜厚依存性である。膜厚の増加に伴い、スイッチング効率は減少するが、その効率の値が強磁性体やフェリ磁性体などの従来のコリニア系の磁性材料よりも 1~2 桁大きいことがわかった。本研究によって電流印加によるノンコリニア反強磁性体のカイラルスピン構造の回転という新規現象の発見に成功するとともに、高効率な反強磁性体の電氣的制御が実証された。

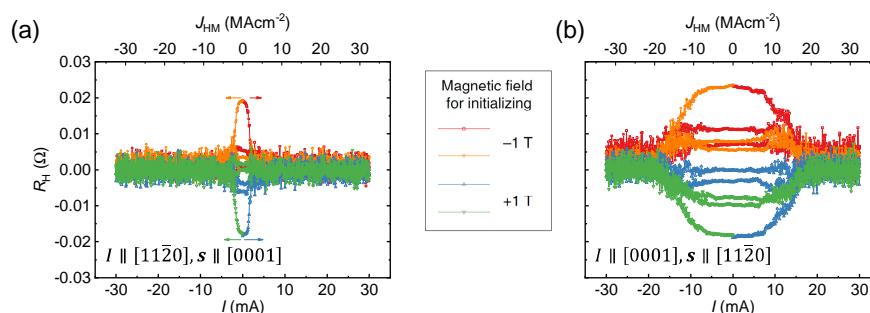


図 5 W/Ta/ Mn_3Sn /Pt ヘテロ構造の R_H - I 曲線。電流は(a)[$11\bar{2}0$]および(b)[0001]方向に印加している。この場合、スピン蓄積ベクトル s の方向はそれぞれ[0001]および[$11\bar{2}0$]となる。[Y. Takeuchi *et al.*, Nature Materials **20**, 1364-1370 (2021).]

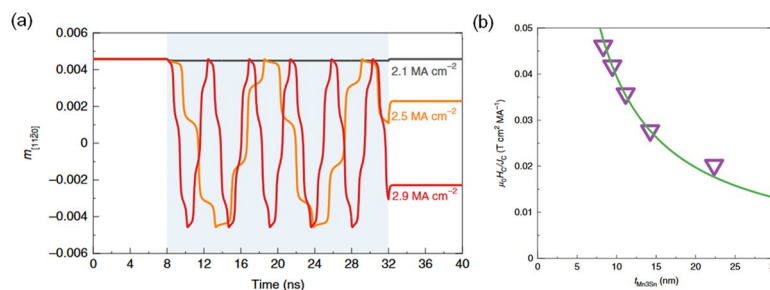


図 6 (a)ノンコリニア反強磁性体のカイラルスピン構造のダイナミクスの計算結果。青い枠内で電流を印加し、スピン軌道トルクを作用させている。電流増大によってスピン構造が回転している。(b) スwitching 効率の Mn_3Sn 膜厚依存性。[Y. Takeuchi *et al.*, Nature Materials **20**, 1364-1370 (2021).]

最後に同じく M 面配向したノンコリニア反強磁性体 Mn_3Sn エピタキシャル薄膜において磁区構造を磁気光学カー効果によって観察した。図 7 は各外部磁場における Mn_3Sn 薄膜の磁区構造の観察画像である。外部磁場が 0 mT から -988 mT に変化するにつれ、カイラルスピン構造の反転領域が増加している。また、反転時は各領域で反転核の生成が起こり、反転領域の拡張が見られた。より詳細な反転機構の解明のため、画像処理によって反転領域のアスペクト比 $L_{[11\bar{2}0]}/L_{[0001]}$ を調べた。図 8 にその結果を示す。図 8 からわかるように外部磁場の増加に伴い、アスペクト比 $L_{[11\bar{2}0]}/L_{[0001]}$ のヒストグラムのピーク位置が変化していることが確認される。すなわち Mn_3Sn の反転ドメインは[$11\bar{2}0$]方向に拡がりやすいという性質を有することがわかった。この現象は従来の磁性材料では報告されなかった異方的な磁壁伝搬であり、交換スティフネスや磁気異方性等をはじめとする各磁気特性が結晶方向に依存して変化していることが原因の一つとして予想される。本研究によってノンコリニア反強磁性体薄膜の磁化反転機構が明らかになるとともに、高効率な磁壁駆動デバイス実現のための指針が得られた。

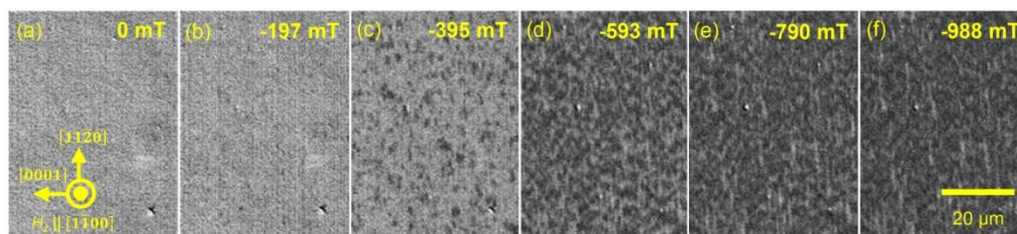


図 7 M 面配向 Mn_3Sn 薄膜の磁区構造を各外部磁場で観測した結果。[T. Uchimura, J.-Y. Yoon, Y. Sato, Y. Takeuchi *et al.*, Appl. Phys. Lett. **120**, 172405 (2022).]

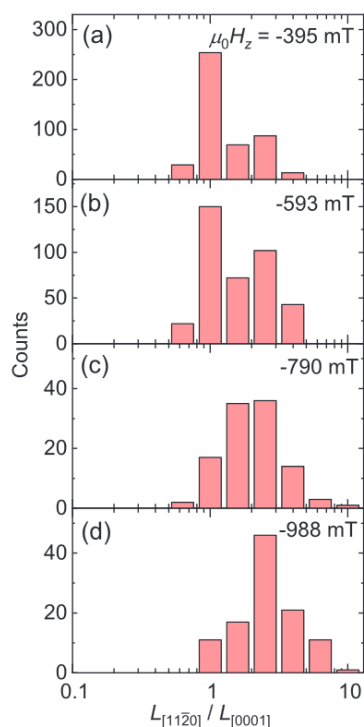


図 8 Mn₃Sn 薄膜の反転領域のアスペクト比のヒストグラムを外部磁場ごとに評価した結果。

上述の通り、当研究機関での一連の研究によってノンコリニア反強磁性体の異常ホール効果増大やスピン軌道トルクによるカイラルスピン構造の恒常回転という新現象の発見、ノンコリニア反強磁性体の反転機構の解明に成功し、ノンコリニア反強磁性体を用いた高効率な機能性デバイス実現のための基盤技術を確認することができた。本研究をより発展させることで、ノンコリニア反強磁性体による高速かつ高密度なメモリ素子、乱数発生素子など従来のスピントロニクスデバイスをより高効率化することに加え、周波数可変なスピントルク発振素子などの新規デバイスへの展開も期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 Takeuchi Yutaro, Yamane Yuta, Yoon Ju-Young, Itoh Ryuichi, Jinnai Butsurin, Kanai Shun, Ieda Jun'ichi, Fukami Shunsuke, Ohno Hideo	4. 巻 20
2. 論文標題 Chiral-spin rotation of non-collinear antiferromagnet by spin-orbit torque	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Materials	6. 最初と最後の頁 1364 ~ 1370
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41563-021-01005-3	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 Yoon Ju-Young, Takeuchi Yutaro, DuttaGupta Samik, Yamane Yuta, Kanai Shun, Ieda Jun'ichi, Ohno Hideo, Fukami Shunsuke	4. 巻 11
2. 論文標題 Correlation of anomalous Hall effect with structural parameters and magnetic ordering in $Mn_{3-x}Sn_{1+x}$ thin films	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 065318 ~ 065318
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0043192	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 -

1. 著者名 Uchimura Tomohiro, Yoon Ju-Young, Sato Yuma, Takeuchi Yutaro, Kanai Shun, Takechi Ryota, Kishi Keisuke, Yamane Yuta, DuttaGupta Samik, Ieda Jun'ichi, Ohno Hideo, Fukami Shunsuke	4. 巻 120
2. 論文標題 Observation of domain structure in non-collinear antiferromagnetic Mn_3Sn thin films by magneto-optical Kerr effect	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 172405 ~ 172405
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0089355	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 -

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 9件）

1. 発表者名 Ju-Young Yoon, Yutaro Takeuchi, Yuta Yamane, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Anomalous Hall effect in Mn-Sn thin film - correlation with structural parameters and magnetic ordering
3. 学会等名 The 4th International Symposium for The Core Research Cluster for Spintronics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ju-Young Yoon, Yutaro Takeuchi, Yuta Yamane, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Anomalous Hall effect in Mn-Sn thin films - correlation with crystal structure
3. 学会等名 65th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yutaro Takeuchi, Yuta Yamane, Ju-Young Yoon, Ryuichi Itoh, Butsurin Jinnai, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Chiral-spin rotation of non-collinear antiferromagnetic Mn ₃ Sn by spin-orbit torque
3. 学会等名 15th Joint MMM-INTERMAG Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ju-Young Yoon, Yutaro Takeuchi, Yuta Yamane, Ryuichi Itoh, Butsurin Jinnai, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Sputter-deposited epitaxial non-collinear antiferromagnetic Mn ₃ Sn thin films and spin-orbit torque driven chiral-spin rotation
3. 学会等名 KAIST spintronics group seminar (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yutaro Takeuchi, Yuta Yamane, Ju-Young Yoon, Ryuichi Itoh, Butsurin Jinnai, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Chiral-spin rotation driven by spin-orbit torque in non-collinear antiferromagnetic Mn ₃ Sn
3. 学会等名 1st Online RIEC International Workshop on Spintronics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Keisuke Kishi, Yutaro Takeuchi, Yuta Yamame, Ju-Young Yoon, Ryota Takechi, Butsurin Jinnai, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Effect of spin-orbit torque on non-collinear antiferromagnet Mn ₃ Sn
3. 学会等名 The 5th Symposium for The Core Research Clusters for Materials Science and Spintronics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ju-Young Yoon, Yutaro Takeuchi, Yuta Yamane, Ryuchi Itoh, Samik DuttaGupta, Butsurin Jinnai, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Properties and Functionalities of Non-Collinear Antiferromagnetic Mn _{3+x} Sn _{1-x} Thin Films
3. 学会等名 The 5th Symposium for The Core Research Clusters for Materials Science and Spintronics, online (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ju-Young Yoon, Yutaro Takeuchi, Samik DuttaGupta, Yuta Yamane, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Anomalous Hall Effect of Non-collinear Antiferromagnetic Weyl Semimetal Mn _{3+x} Sn _{1-x} Thin Films: Correlation with Crystalline, Magnetic, and Electronic Structures
3. 学会等名 24th International Conference on Electronic Properties of Two-Dimensional Systems 20th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (EP2DS-24/MSS-20) meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Keisuke Kishi, Yutaro Takeuchi, Yuta Yamame, Ju-Young Yoon, Ryota Takechi, Butsurin Jinnai, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Determination of spin-orbit torque efficiency in non-collinear antiferromagnet / heavy metal heterostructures
3. 学会等名 15th Joint MMM-INTERMAG Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yutaro Takeuchi, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Electrical control of ferromagnets and non-collinear antiferromagnets by spin-orbit torque
3. 学会等名 800th Advanced Science Research Seminar (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yutaro Takeuchi, Yuta Yamane, Ju-Young Yoon, Ryuichi Itoh, Butsurin Jinnai, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Spin-orbit torque induced chiral-spin rotation of non-collinear antiferromagnet
3. 学会等名 The 82nd Japan Society of Applied Physics Autumn Meeting 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Keisuke Kishi, Yutaro Takeuchi, Yuta Yamane, Ju-Young Yoon, Ryota Takechi, Butsurin Jinnai, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Spin-orbit torque efficiency in non-collinear antiferromagnet / heavy metal heterostructures
3. 学会等名 The 82nd Japan Society of Applied Physics Autumn Meeting 2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tomohiro Uchimura, Yuma Sato, Yutaro Takeuchi, Yuta Yamane, Ju-Young Yoon, Ryota Takechi, Keisuke Kishi, Shun Kanai, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Anomalous Hall effect and magneto-optical Kerr effect in non-collinear antiferromagnetic Mn ₃ Sn thin films
3. 学会等名 40th Electronic Materials Symposium EMS-40
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Keisuke Kishi, Yutaro Takeuchi, Yuta Yamame, Ju-Young Yoon, Ryota Takechi, Butsurin Jinnai, Shun Kanai, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Spin-orbit torque efficiency in non-collinear antiferromagnet Mn3Sn /heavy metal heterostructures
3. 学会等名 40th Electronic Materials Symposium EMS-40
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tomohiro Uchimura, Ju-Young Yoon, Yuma Sato, Yutaro Takeuchi, Shun Kanai, Ryota Takechi, Keisuke Kishi, Yuta Yamane, Samik DuttaGupta, Jun'ichi Ieda, Hideo Ohno, and Shunsuke Fukami
2. 発表標題 Observation of non-collinear antiferromagnetic domain structure in epitaxial Mn3Sn thin films
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 電子デバイス、その製造方法及びその使用方法	発明者 竹内 祐太郎、深見 俊輔、ほか	権利者 国立大学法人 東北大学
産業財産権の種類、番号 特許、2021-071582	出願年 2021年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔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
---------	---------