

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料
〔令和5（2023）年度 中間評価用〕

令和5年3月31日現在

研究期間：2021～2025
課題番号：21H04990
研究課題名：マクロな時間反転対称性の破れた反強磁性体の物質設計と電氣的制御
研究代表者氏名（ローマ字）：関 真一郎（SEKI Shinichiro）
所属研究機関・部局・職：東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・准教授
研究者番号：70598599

研究の概要：

磁化を持たない反強磁性体は、通常は時間反転対称性が保たれており、強磁性体と同様の手法による情報処理は不可能であると考えられてきた。本研究では、特殊な結晶構造の下での実現が予測されている「時間反転対称性の破れた反強磁性体」を新たに開拓し、そこで生じる巨大な仮想磁場を利用することによって、強磁性体の磁化が従来担ってきた物質機能を、反強磁性体の仮想磁場によって代替することを目指す。

研究分野：物性物理学、磁性

キーワード：反強磁性、スピントロニクス、トポロジー、対称性

1. 研究開始当初の背景

現在の磁気記憶素子で用いられている、スピンの平行に整列した強磁性体では、時間反転対称性の破れに起因して、磁気情報の保持・読み出し・書き込みが可能となっている。一方、スピンの反平行に整列した反強磁性体の場合、通常は時間反転対称性が保たれており、強磁性体と同様のアプローチによる情報処理は不可能である。しかし最近の理論研究によると、特殊な結晶構造を利用すれば、実は単純な反平行スピン構造であっても時間反転対称性を破ることが可能であり、この場合は磁化がゼロであるにも関わらず、物質内部に量子力学的位相に由来した巨大な仮想磁場が生じることがわかっている。この仮想磁場は、物質内部では磁化と同等の役割を果たすため、強磁性体が従来担ってきた様々な物質機能を、時間反転対称性の破れた反強磁性体で代替できることが強く期待される。

2. 研究の目的

そこで本研究では、これまで実験的に未開拓だった時間反転対称性の破れた反強磁性体の集中的な探索を行うとともに、その特異な仮想磁場の存在から期待される様々な物質機能（通常の反強磁性体では不可能と考えられてきた「 $\uparrow\downarrow$ 」「 $\downarrow\uparrow$ 」状態の電氣的な読み出し・書き込み等）を実証することを目指す。時間反転対称性の破れた反強磁性体は、強磁性体に代わる次世代の情報機能材料として活用できるポテンシャルを秘めており、その包括的な理解と応用に向けた、新たな基礎学理の構築に取り組む。

3. 研究の方法

上記の目的を達成するために、本研究では特に、
「 $\uparrow\downarrow$ 」「 $\downarrow\uparrow$ 」の区別が可能な、時間反転対称性の破れた反強磁性物質の系統的開拓
仮想磁場に由来した様々な物質機能（ $\uparrow\downarrow$ ・ $\downarrow\uparrow$ 状態の電氣的な読出・書込等）の実証
の2つの課題に実験・理論の両面から取り組む。

については、時間反転対称性の破れた反強磁性体の網羅的な物質カタログ・データベースを理論面から構築するとともに、その予測に従って望ましい特性（高い動作温度・巨大応答など）を示す新物質の実験的な開拓を行う。については、仮想磁場に起因したホール効果を利用した $\uparrow\downarrow$ ・ $\downarrow\uparrow$ 状態の電氣的な読出や、スピン軌道トルクを利用した $\uparrow\downarrow$ ・ $\downarrow\uparrow$ 状態の電氣的な書き込みの実証を目指す。

また、単純な「 $\uparrow\downarrow$ 」型の反平行なスピン配列だけでなく、より複雑なスピン配列を持った反強磁性秩序の場合にも、やはり適当な結晶格子と組み合わせることで時間反転対称性を破れることが期待される。後者についても、同様に積極的な物質開拓を行うことで、磁化を持たない反強磁性体における仮想磁場の生成機構および巨大化に向けた指針について、一般的な理解を得ることを目標とする。

4. これまでの成果

理論解析に基づく、時間反転対称性の破れた反強磁性体の網羅的な物質データベースの構築

磁気対称性に基づく既約表現の解析から、結晶構造と磁気構造がどのような条件を満たしていれば仮想磁場の発現が許されるのか、あらゆる可能性を網羅した「地図」を作成し、対称性指標を指定可能な結晶構造データベースを併用することで、時間反転対称性の破れ・仮想磁場の発現が許される反強磁性体の候補物質の機械的な抽出を行うことに成功した。抽出された候補物質のリストは、実際に以下で述べるような実験的な新物質開拓に極めて有効に活用できることが判明している[論文2]。さらに第一原理計算による各種物性の定量的な予測手法を確立することで、巨大な仮想磁場を伴う、時間反転対称性の破れた反強磁性体の網羅的なカタログ・データベースの構築を行うための環境を整備した。

室温動作や巨大応答を実現する、時間反転対称性の破れた反強磁性体の実験的な開拓

(a) 室温における[]/[]状態の電気的な読み出しの実現

単純な型の反平行スピン配列を持つ室温反強磁性体において、明らかに磁化に比例しない、大きな自発ホール効果を観測することに成功した。この物質では、ノンシンモルフィックな結晶構造に起因して、[]/[]の2つの状態が並進操作によって一致なくなっており、このために時間反転対称性が破れて、仮想磁場に起因した自発ホール効果が生じていると理解できる。上記の結果は、反強磁性金属における[]/[]状態の電気的な読み出しを初めて実証したもので、磁化を持たない反強磁性体をベースにした、全く新しいスピントロニクス構築に貢献することが期待される。[研究代表者を責任著者とした原著論文を投稿中]

(b) 非共面なスピン配列を持つ反強磁性体における巨大なトポロジカルホール効果の発見

非共面なスピン配列の下で運動する伝導電子は、隣接する3つのスピンが生み出す立体角(スピンカイラリティ)に比例した仮想磁場を感じることで、「トポロジカルホール効果」と呼ばれる現象を生じることが予言されている。本研究では、四面体状の非共面なスピン配列を持つ反強磁性体(CoTa_3S_6)において、強磁性体に匹敵する巨大なトポロジカルホール効果を実証することに成功した。磁化を持たない反強磁性体でトポロジカルホール効果が観測されたのはこれが初めてであり、磁気情報の新しい効率的な読み出し原理として活用できることが期待される [論文1: Nature Physics]。

巨大な仮想磁場の起源となる、非共面なスピン配列の新しい形成機構および観察手法の開拓

巨大な仮想磁場の起源となる非共面なスピン配列の代表的な例としては、スピンの渦巻き状に配列した「スキルミオン」と呼ばれる秩序状態が知られている。本研究では、スキルミオン形成に伴う仮想磁場に由来して、トポロジカルホール効果を示す単純な二元合金 EuAl_4 の発見に成功し、その形成機構が遍歴電子が媒介する相互作用の競合でよく説明できることを明らかにした[論文3: Nature Communications]。また、X線磁気トモグラフィと呼ばれる手法を活用することで、こうした非共面磁気相におけるスピン配列の3次元空間分布を直接実験的に観測することにも成功した[論文4: Nature Materials]。

5. 今後の計画

今後は、

巨大な仮想磁場を生じる反強磁性体の、網羅的な物質データベースの完成

応用上より望ましい特性を備えた、時間反転対称性の破れた反強磁性体の新物質開拓

反強磁性体における磁気情報の読み出し・書き込み手法のさらなる拡張

といったテーマに取り組むことで、時間反転対称性の破れた反強磁性体の情報機能材料としてのポテンシャルを解き明かすとともに、その特異な仮想磁場にまつわる様々な新現象の系統的理解・開拓を目指す。

6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

- (1) “Spontaneous topological Hall effect induced by non-coplanar antiferromagnetic order in intercalated van der Waals materials”, H. Takagi, R. Takagi, S. Minami, T. Nomoto, K. Ohishi, M.-T. Suzuki, Y. Yanagi, M. Hirayama, N. D. Khanh, K. Karube, H. Saito, D. Hashizume, R. Kiyonagi, Y. Tokura, R. Arita, T. Nakajima, S. Seki, *Nature Physics* (in press). [https://doi.org/10.1038/s41567-023-02017-3]
- (2) “Generation of modulated magnetic structures based on cluster multipole expansion: Application to $\alpha\text{-Mn}$ and CoM_3S_6 ”, Y. Yanagi, H. Kusunose, T. Nomoto, R. Arita, and M.-T. Suzuki, *Phys. Rev. B* **107** 014407 (2023)
- (3) “Square and rhombic lattices of magnetic skyrmions in a centrosymmetric binary compound”, R. Takagi, N. Matsuyama, V. Ukleev, L. Yu, J. S. White, S. Francoual, J. R. L. Mardegan, S. Hayami, H. Saito, K. Kaneko, K. Ohishi, Y. Onuki, T. Arima, Y. Tokura, T. Nakajima, S. Seki, *Nature Communications* **13**, 1472 (2022).
- (4) “Direct visualization of the three-dimensional shape of skyrmion strings in a noncentrosymmetric magnet”, S. Seki, M. Suzuki, M. Ishibashi, R. Takagi, N. D. Khanh, Y. Shiota, K. Shibata, W. Koshibae, Y. Tokura, T. Ono, *Nature Materials* **21**, 181 (2022).

7. ホームページ等

<http://sekilab.net/>