

〈一般研究課題〉 反強磁性スピンの低電流制御を目的とした物質開発

助成研究者 名古屋大学 浦田 隆広



反強磁性スピンの低電流制御を目的とした物質開発

浦田 隆広
(名古屋大学)

Search for materials to achieve a low-current control of antiferromagnetic spins

Takahiro Urata
(Nagoya University)

Abstract :

In recent years, there has been active research on replacing ferromagnetic materials used in storage medias with antiferromagnetic materials. Large number of studies have been done to control antiferromagnetic state by application of electric currents. However, the Joule heat generated by the application of a large current causes energy loss, which has been a problem. In this study, our purpose is to search for materials that enable a low-current control of their antiferromagnetic states. In a previous study, we found that PrMnSb_2 showed complicated magnetic phase diagrams and metamagnetic transitions associated with the two antiferromagnetic states. In such a material, we can control the system close to the critical points, where the spins can be rearranged by small external field due to the fluctuation, by applying the magnetic fields or changing temperature. It would open a possibility for a low-current control of antiferromagnetic states with an assistance of magnetic fields or/and heats.

In this study, we grew single crystals of PrMnSb_2 and CeMnSb_2 and measure the magnetic and transport properties in detail. It was found that the magnetic phase diagram of CeMnSb_2 was complex as well as PrMnSb_2 but the metamagnetic transition took place for different field directions. This reflects a difference of the magnetic anisotropies of the two materials. In addition, the magnetic phase diagram of PrMnSb_2 was expanded to three dimensions. Finally, we fabricated micron-sized devices of PrMnSb_2 to investigate the coupling between the antiferromagnetic spins and electric currents.

1. はじめに

近年、IoT技術に代表される様に、我々の周りのあらゆるものが情報を蓄積・処理する時代が到来しつつある。この生活変化に伴う情報量の増加は、磁気記憶媒体で支えられていると言っても過言ではない。ここで使用されている磁性材料は殆どの場合で強磁性体であるが、最近、これを反強磁性体に置き換える研究が活発に行われている。この理由として、反強磁性体はマクロな磁化を持たないため、外部磁場による擾乱に対して情報の保持に優れる点が挙げられる。一方、この性質は磁気情報の書き込みが難しいという問題の裏返しでもある。そんな中、近年特殊な磁気構造を有する反強磁性体に、直流電流を印加することで磁気情報を制御できることが報告され、注目を集めている[1]。しかし、大電流の印可によって生じるジュール熱がエネルギー損失となり、問題となっている。

そこで本研究では、熱及び磁場の効果を補助的な場として用いた反強磁性スピンの低電流制御手法を実現するための物質開発を行う。これまでに我々は、反強磁性体 PrMnSb_2 において、複数の反強磁性相に起因するメタ磁性転移を観測し、温度(T)-磁場(H)平面上で磁気相図を明らかにしてきた[2]。図1に磁気相図の模式図を示した。さらに、この物質は、電流によって反強磁性スピンに有効的な磁場が生じる

条件を満たしている。本研究では、この複雑な磁気相図を利用して、反強磁性スピンの制御を低電流で行える可能性を検討する。特に、磁気臨界点の周辺では揺らぎが大きくなることから、小さな外場でもスピンの向きが変わりやすいことを利用する。磁気臨界点は、温度変化もしくは磁場印可で到達可能であることから、熱及び磁場が補助的な場として働くことになる。また、対象を LnMnSb_2 系(Ln :ランタノイド元素)に広げ、磁気相図の解明および、電流印可の効果を検証する。

2. 試料及び実験方法

2.1 結晶・磁気構造

図2に PrMnSb_2 の結晶・磁気構造を示す。結晶構造は正方晶に属し、空間群は $P4/nmm$ である。 LnMnSb_2 系(Ln :ランタノイド元素)は、全て同じ結晶構造を持つことが知られている。 PrMnSb_2 は、粉末中性子回折実験により、磁気構造が決定されている[3]。室温から温度低下に伴い、まず190K付近でMn由来のモーメントのみが反強磁性秩序するAFM I相に転移し、より低温の32K付近でPrのモーメントも秩序する(AFM II相)。磁気相転移に伴い、単位胞は c 軸方向に2倍になる。

2.2 単結晶育成

本研究では、 PrMnSb_2 及び CeMnSb_2 の単結晶育成を行った。まずSnをフラックスとして用いて育成を行い、単結晶試料を得ることが出来た。また、原料を化学量論比で混合し、冷却速度を落と

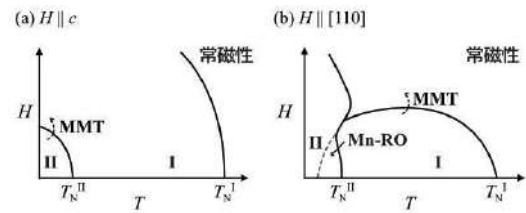


図1. PrMnSb_2 の磁気相図の模式図。磁場は(a)結晶の c 軸もしくは(b)[110]方向に印可している。MMTはメタ磁性転移を表す。Mn-ROはMnモーメントが再配向する領域。

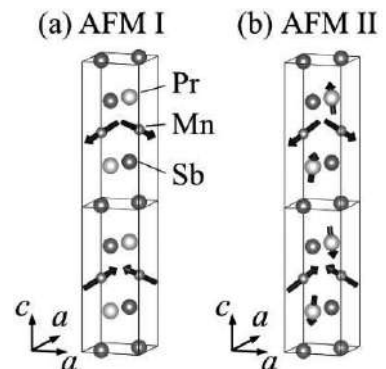


図2. PrMnSb_2 の結晶及び磁気構造。黒棒は単位胞である。

すことによっても単結晶試料が得られることが分かった。この手法で得られた試料はSnフラックス法のものよりも薄く、磁化測定などある程度の重量が必要な測定には向かないものの、後に述べる集束イオンビームによる加工には適したものであった。単結晶はいずれの手法で得られた試料もMnが少量欠損していることが分かった。この欠損は過去の多結晶を用いた先行研究でも見られている[4]。

2.3 実験方法

試料の結晶性評価には面直X線回折および透過ラウエ測定を用い、組成に関してはエネルギー分散型X線分光から評価した。電気輸送特性および磁化の測定は申請者が所属する研究室にて保有する日本カンタムデザイン社製PPMS及びMPMSを用いて行った。集束イオンビームによる微細加工は名古屋大学の超高压電顕施設にて行った。

3. 実験結果

3.1 磁化および磁気抵抗効果

ここでは、 CeMnSb_2 の結果について述べる。 PrMnSb_2 に関しては、既に磁気相図を発表済みである(模式図として、図1参照)が、それと比較して異なる振る舞いを得られた。図3に、4.2 Kで測定した、磁場を c 軸もしくは ab 面に平行に印可して測定した磁化(M)の磁場依存性を示す。 $H \parallel ab$ の結果を見ると、磁場に対して急峻に磁化が上昇し、またヒステリシスループを描くことが分かる。これは磁場印可によってメタ磁性転移が生じていることを示している。 PrMnSb_2 では、同じ温度においては $H \parallel ab$ の時にのみに生じることから、これらの物質間で磁気異方性が異なっていることが示唆される。

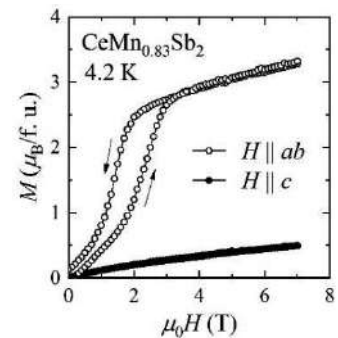


図3. $\text{CeMn}_{0.83}\text{Sb}_2$ の磁化の磁場依存性.

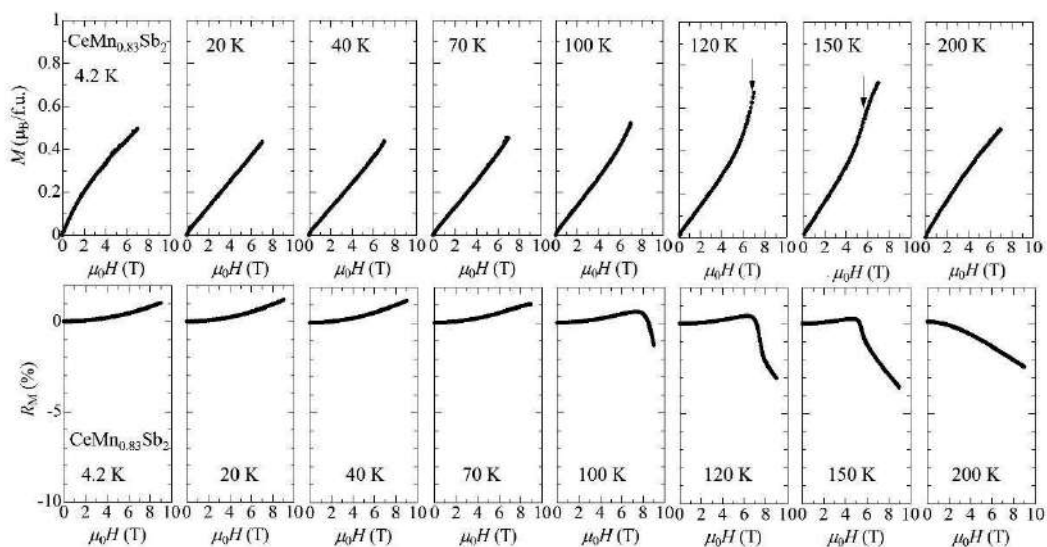


図4. $\text{CeMn}_{0.83}\text{Sb}_2$ の磁化(上段)および磁気抵抗効果(下段)の磁場依存性.

図4に、様々な温度で測定したCeMn_{0.83}Sb₂の磁化(上段)および磁気抵抗効果(下段)の磁場依存性を示す。120及び150Kにおいて、高磁場で磁化と磁気抵抗効果ともに急峻な変化がみられる。これは一般的なCeモーメントの秩序温度と比較すると高いことから、Mnのモーメントに起因するメタ磁性転移が生じていると考えられる。

3.2 CeMnSb₂の磁気相図

CeMnSb₂における磁化の温度と磁場依存性から転移点を見積もり、得られた磁気相図を図5に示す。低温で3つの反強磁性相の存在が明らかになった。磁場印可の方向に依存し、現れる相境界の形状は大きく異なることが見て取れる。PrMnSb₂でも異方的な磁気相図が観測されたが、メタ磁性転移が生じる磁場の向きはPr系とCe系で異なっている。これは先述の通り、磁気異方性が異なることに起因していると考えられるが、現在その起源について考察を行っている。また、相転移の次数に関しても明らかではなく、今後は比熱などの相転移に対して敏感な測定手法を用いて磁気相図についてさらなる知見を得る予定である。

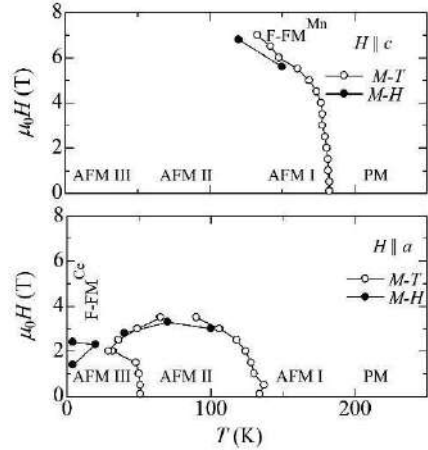


図5. 磁化の温度依存性(M-T)及び磁場依存性(M-H)から得られたCeMn_{0.83}Sb₂の磁気相図. F-FMは強制強磁性を表す

3.3 PrMnSb₂の3次元磁気相図

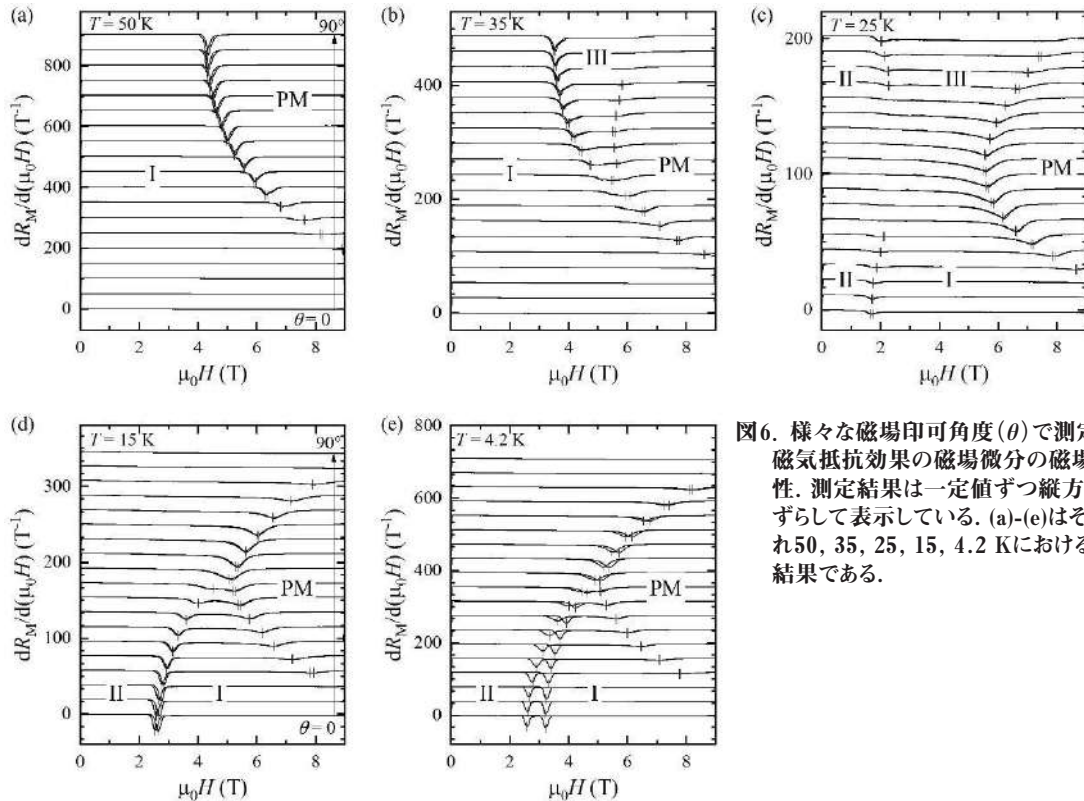


図6. 様々な磁場印可角度(θ)で測定した磁気抵抗効果の磁場微分の磁場依存性. 測定結果は一定値ずつ縦方向にずらして表示している. (a)-(e)はそれぞれ50, 35, 25, 15, 4.2 Kにおける測定結果である.

これまで我々は、PrMnSb₂において磁場がa軸、c軸、[110]方向を向くときの(磁場)-(温度)空間での磁気相図を明らかにしてきた。本研究では、これを3次元に拡張すべく、それ以外の任意の方向

に磁場を印可して磁気抵抗効果を測定した。図6に、様々な磁場印可角度(θ)で測定した磁気抵抗効果の磁場微分の磁場依存性を示す。角度 θ は c 軸から[110]方向に測った角度である。メタ磁性転移が生じ、急激に磁気抵抗効果が変化するとき、それは磁気抵抗効果の微分には負のピークとして現れる。それぞれの曲線に現れる極小値の位置に縦棒で印を示している。この結果は、 T - H_c - $H_{[110]}$ 空間における磁気相図の T 一定の断面図とみなすことが出来る。以上を組み合わせ、3次元相図を作成することができた。現在、この成果に関する論文を査読付き雑誌に投稿中である。

3.4 集束イオンビームによる微細加工

図7に、集束イオンビーム(FIB)により加工したPrMnSb₂の電子顕微鏡像を示す。様々なビーム条件と試料の選定を行い得られたデバイスである。特定の結晶軸と平行に電流を印可し、かつ電流密度を上昇させるために、試料形状を細く加工し、電極はホールバー形状に成形した。

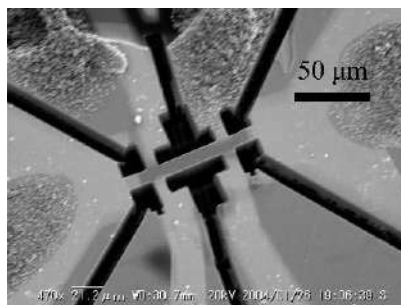


図7. 集束イオンビームにより加工したPrMnSb₂の電子顕微鏡像。

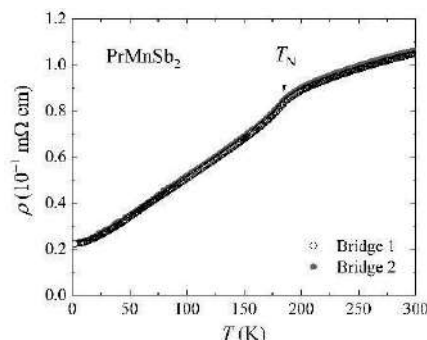


図8. 加工後のPrMnSb₂の電気抵抗の温度依存性。

FIBによる加工が試料の伝導特性に影響を与えている可能性を検討するために、電気抵抗の温度依存性を測定したものを図8に示す。電気抵抗は図7中の上下二つの電圧端子(Bridge 1, 2)を用いて測定した。その結果、Mnモーメントの反強磁性転移に対応する明瞭なキックが観測され、バルク試料と同様の温度依存性を示すことが分かった。また、Bridge 1, 2の間に差がほとんど見られないことから、電流は試料部分に流れており、短絡経路が無いことが示唆される。今後は、この試料を用いて、電流印可の効果を調べていく予定である。

4. 総括

本研究では、反強磁性スピンの定電流制御を念頭に、PrMnSb₂及びCeMnSb₂の物質開発を行った。CeMnSb₂に関しては、磁化測定から磁気相図を解明した。その結果、PrMnSb₂と同じく複雑な相境界の形状が明らかとなった。CeMnSb₂に関しては、 c 軸と[110]方向の間の任意の方向に磁場を印可し磁気抵抗効果を測定することにより、3次元磁気相図の解明を行った。以上の磁気相図を基に、電流印可の効果を検証するため、本研究では、さらに集束イオンビームを用いた微細加工を行った。また、この加工による伝導特性への影響は殆どないことが分かった。本研究の期間内では、電流による磁気特性の制御を検証するまでは至らなかったが、その基礎となる磁気相図の情報と、加工の実験技術を得ることが出来た。

参考文献

- [1] P. Wadley *et al.*, Science **351**, 587 (2016).
- [2] Y. Takahashi, T. Urata, and H. Ikuta, Phys. Rev. B **104**, 054408 (2021).

- [3] S. K. Malik *et al.*, *J. Appl. Phys.* **91**, 7842 (2002).
- [4] O. Sologub, K. Hiebl, and O. Bodak, *J. Alloys Compd.* **227**, 40 (1995).