

戦略的創造研究推進事業 CREST  
研究領域「トポロジカル材料科学に基づく革新的機能  
を有する材料・デバイスの創出」  
研究課題「トポロジカル機能界面の創出」

## 研究終了報告書

研究期間 2018年10月～2024年03月

研究代表者：塚崎 敦  
(東北大学 金属材料研究所 委嘱教授)

## §1 研究実施の概要

### (1)実施概要

本課題では、実験と理論の協働研究により、トポロジカル物質群の薄膜界面に生じる特長的な性質をデバイス利用に繋げるための基盤技術確立を目指した。実施項目を以下に記載する。

#### ・トポロジカル磁性体を用いた磁気センサの開発

Fe のカゴメ格子が形成するトポロジカルバンド構造の大きな異常ホール効果を超高感度磁気センサに適用するため、Fe-Sn アモルファス薄膜(Sci. Rep.(2019))をベースに研究を展開した。トポロジカルバンド構造の特長を最大化するために、不純物添加によるフェルミ準位制御を検証した結果、感度向上を達成した(APL Mater.(2019))。ノイズ計測を実施して汎用利用される半導体ホール素子 Si や GaAs の特性と比較することで、感度と検出能の両面で同等の十分な性能を有することを実証した(Appl. Phys. Express(2019))。半導体ホール素子では達成できない新たな機能として、平面型単一磁気素子で 3 次元の磁場方位を検知する素子を開発した(Commun. Mater.(2021))。素子動作の基礎原理となる、アモルファス状態とトポロジカル電子状態を理解するモデルを提唱した。求グループで理論モデルを構築し、塚崎グループで短距離秩序の評価を実験的に検証して、それぞれを効果的に取り入れた議論を展開することで、短距離の Fe-Fe 間相互作用でベリー曲率の寄与を発現することを明らかにした(Nature Commun.(2023))。トポロジカル電子状態に由来する新たな動作原理であるため、トポロジカル物質群を用いた特性改善を含めて今後の展開が期待される。

#### ・磁性ワイル半金属の機能開拓

磁性ワイル半金属の代表例として知られる  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  の薄膜研究を推進した。 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  は Co カゴメ格子と Sn のハニカム格子を結晶中に内包し、強磁性転移温度約 180K で面直の磁化容易軸を有する強磁性である。2018 年にバルク単結晶で大きな異常ホール効果の観測が報告されて以来、活発に研究されている。本研究では、世界で最初に薄膜化を達成し、バルク単結晶同等の大きな異常ホール効果を観測した(Jpn. J. Appl. Phys.(2019))。その後、薄膜でこそ実施できる磁性ワイル半金属の原理解と機能開拓研究を展開した。膜厚依存性を系統的に評価することで磁性ワイル半金属の特性が消失する臨界膜厚を決定する(Commun. Mater.(2021))とともに、表面フェルミアークの金属的伝導を検出することに初めて成功した(Commun. Phys.(2021))。磁性ワイル半金属のトポロジカル性を実証するにあたり、系統的なフェルミ準位調整による物性制御を実施した。実際に、スピンホール効果(Phys. Rev. B(2023))と異常ネルンスト効果(Nature Phys.(2024))の組成依存性を測定することで、それぞれの物性値が大きく制御可能であることを実証した。野村グループでは、磁性ワイル半金属の電気伝導やスピン伝導に関する現象を数理的な側面から検討して、実験研究に指針を与えた。また、近年盛んに研究されるカゴメ格子の物質群を理解するために、カゴメ格子の電子フィリングと磁気構造を相図にまとめた(J. Phys. Soc. Jpn. (2022))。試料提供による共同研究と合同での協働観測実験を積極的に展開した。東大高橋グループとの共同研究では THz による異常ホール効果の検出と巨大な磁気光学効果を検出(Nature Commun.(2020))し、東大島野グループとの共同研究では、円偏光照射による磁化方位の反転に伴うワイル点の制御(Commun. Phys.(2022))を観測した。

#### ・マヨラナプラットフォームに適用できる薄膜界面構造の合成技術確立

キタエフスピン液体状態を実現する物質として、 $\alpha\text{-RuCl}_3$  など多数の候補が提案されており、信号制御素子として活用するためにはこれらの物質を薄膜素子化することが有効である。本研究では、候補物質の一つである  $\text{IrO}_6$  ハニカム格子を有する物質として、イルメナイト構造の薄膜と超格子化技術の確立に取り組んだ。安定なイルメナイト構造で知られる  $\text{MnTiO}_3$  をベースとする超格子において、バルク物質としては報告例のない  $\text{IrO}_6$  ハニカム格子を内包する Mn-Ir-O のイルメナイト積層構造を安定化できることを見出した(Commun. Mater.(2020))。この超格子では、 $\text{IrO}_6$  ハニカム格子を 2 層安定化できたが、求グループによるバンド計算によると、ギャップ構造に Mn の 3d 軌道が関与するため、理想的なモット絶縁体にならないことがわかった(Phys.

Rev. Mater.(2021))。理論計算の示唆を受けて、非磁性の  $\text{MgTiO}_3$  を薄膜化して(AIP Adv.(2021))、 $\text{MgTiO}_3$  ベースの超格子研究を推進した。高分解能電子顕微鏡像による構造評価、電子状態観測と光学ギャップの測定を実施して、スピン軌道結合モット絶縁体状態にあることを結論づける論文を投稿準備中である。将来的に、反強磁性イルメナイトとの積層界面を形成して、相互作用を活用する磁気構造の安定性制御に向けて、 $\text{MnTiO}_3$  の反強磁性を実験的に観測した(J. Appl. Phys. (2020))。

求グループの理論を中心に、マヨラナ粒子の存在を確認するための実験提案を実施した。本研究では  $\text{IrO}_6$  の薄膜合成を行っているため、酸化物などの物質選択や超格子、界面相互作用について理論と実験で緊密に議論しながら進めている。マヨラナ粒子の制御方法として、局所的な歪み変調やスピン輸送に関する現象を提唱して、マヨラナ粒子検出や制御に関する実験の指針を与えた。

#### ・実験と理論の協働研究展開について

本研究課題では、2 つの理論研究グループと 1 つの実験グループで研究を計画して推進してきた。研究議論を緊密に行うことで、協働研究を効果的に進めることができ、多くの共著論文として成果を挙げることができた。例えば、アモルファス  $\text{Fe-Sn}$  のトポロジカル電子状態と物性の理解や磁性ワイル半金属の極薄膜状態における電気伝導に関連する研究などが挙げられる。また、理論グループ間の議論も有効であり、数理的な見立てと大規模数値計算を両輪で進めることでより精緻な議論が可能になることを示した。

#### ・全体を通して

申請当初は形のなかった、アモルファス  $\text{Fe-Sn}$  の 3 次元磁気センサ、数値計算可能なアモルファス格子モデル、磁性ワイル半金属  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  薄膜、ゼロ磁場動作可能な異常ネルンスト効果発電素子やキタエフスピン液体向けイルメナイト酸化物超格子中の  $\text{IrO}_6$  ハニカム格子などデバイス化に繋がる成果を挙げられた。トポロジカル物質群をデバイスとして活用する足掛かりとなりうる室温動作の磁気センサや低温特性を活用する新規素子の動作を実証することにより、論文成果として報告した。本研究を推進する中でも、トポロジカル物質群の特性発現や素子活用において実験と理論の協働が非常に有効であった。

#### (2)顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

##### 1. 磁性ワイル半金属の薄膜化技術確立とトポロジカルバンドに由来する物性の実証

概要： 磁性ワイル半金属の代表例として知られる  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  の薄膜化に世界で初めて成功した。結晶構造中にコバルトのカゴメ格子が含まれる複雑な構造であるが、適切な合成ルートを最短でみつけることができ、その後の薄膜研究の世界的推進の一翼となった。バルク同等の大きな異常ホール効果特性を観測可能な薄膜品質に立脚して、膜厚と組成を系統的に変化させることとデバイス化によるスピホール効果と異常ネルンスト効果の測定を達成して、トポロジカルバンドに由来する物性を次々に明らかにした。

##### 2. アモルファス物質の計算モデルの確立と拡張適用

概要： アモルファスなど格子構造に周期性を持たない系に対して、バルク構造をフラグメント化して繋ぎ合わせたモデルを構築する理論手法を開発した。これにより、乱れの強い極限からバルクまで、系統的にトポロジカル物性を議論することが可能となった。この枠組みを、アモルファス  $\text{Fe-Sn}$  系を念頭に置いたカゴメ格子系に適用し、実験で観測された大きな異常ホール効果が、フラグメントに保持されたベリー曲率の効果として理解できることを明らかにした。

##### 3. キタエフスピン液体におけるマヨラナ粒子の操作に関する理論提案

概要： キタエフスピン液体において、スピンの自由度が分裂して生じるマヨラナ粒子やボルテックスを生成・制御する手法を複数提案した。まず、局所的なバンド変調により、ボルテックス

にマヨラナ粒子が結合した状態を産み出し、braiding や fusion といった量子計算に必要な操作が可能となることを示した。さらに、局所磁場による磁化伝播や、熱勾配によるスピントラップ効果を調べることで、マヨラナ粒子を介したスピン流が生じることも明らかにした。

#### < 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果 >

##### 1. トポロジカル物質群を用いるアモルファス薄膜の磁気センサ適用

概要： Fe と Sn で構成されるアモルファス薄膜の新たな磁気センサを開発して、動作実証や原理理解を進めるとともに、特許取得や企業との共同研究による応用展開を目指した活動を実施した。Fe と Sn の短距離秩序で構成される電子構造にトポロジカルバンドの寄与が発現することで、磁気センサとしての高い性能を有することを見出した。トポロジカルな電子構造の特徴を活用することによって、安全で安価な元素で構成され、簡易的手法で大面積に室温合成できるアモルファス薄膜でも新たな素子へと応用できる可能性を示唆する成果である。

##### 2. 磁性ワイル半金属の制御性確立とデバイス利用の指針確立

概要： 磁性ワイル半金属  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  の薄膜化を世界に先駆けて達成し、薄膜研究を展開した。トポロジカル電子構造に由来するスピントラップ効果と異常ネルンスト効果を最大化して利用する技術として、フェルミ準位の制御性を高めることに取り組んだ。室温動作の素子を作製して大きなスピントラップ効果の制御とデバイス活用の指針を報告した。異常ネルンスト効果の制御では、正負の符号反転制御を達した。正負の薄膜でサーモパイル素子を作製してゼロ磁場での磁気熱電変換を実証した。今後の磁性ワイル半金属を活用する指針を確立した。

##### 3. キタエフスピン液体候補物質を可能にする酸化物超格子技術の確立

概要： キタエフスピン液体を素子利用するために薄膜技術は欠かせない。酸化物の構造安定性を活用して、イリジウム酸化物のハニカム格子をイルメナイト構造の超格子で安定化可能であること実証した。バンド計算を積極的に取り入れたことで、電子状態計測と光学特性評価による  $J_{\text{eff}} = 1/2$  のモット絶縁体状態の実証研究を推進できた。さらに、様々なイルメナイト構造物質との界面相互作用を用いるキタエフスピン液体状態の新たな制御指針を理論的に提唱した。

#### < 代表的な論文 >

##### 1. Bipolarity of large anomalous Nernst effect in Weyl magnet-based alloy films

S. Noguchi, K. Fujiwara, Y. Yanagi, M. Suzuki, T. Hirai, T. Seki, K. Uchida, A. Tsukazaki  
Nature Physics **20**, 254 (2024).

概要： 磁性ワイル半金属の代表例として知られる  $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$  のフェルミ準位制御技術を確認し、その実証研究として、異常ネルンスト効果に着目した。精密に不純物濃度を調整することで、フェルミ準位の位置をワイル点の上下に制御できる。そうすると、同一磁化状態における異常ネルンスト効果の符号が正負反転することになる。ワイル点を有する特別な電子状態に起因する大きな異常ネルンスト係数をベースに正負の符号を制御できることから、それらを直列に接続してサーモパイルを作製して、その動作を実証した。この結果は、磁性ワイル半金属のフェルミ準位制御とそれに伴う大きな磁気熱電効果の素子活用に向けた指針になる成果である。

##### 2. Berry curvature contributions of kagomelattice fragments in amorphous Fe–Sn thin films

K. Fujiwara, Y. Kato, H. Abe, S. Noguchi, J. Shiogai, Y. Niwa, H. Kumigashira, Y. Motome, A. Tsukazaki  
Nature Communications **14**, 3399 (2023).

概要： アモルファス薄膜にもトポロジカルな電子構造の寄与が発現することを、実験と理論の協働で明らかにした論文。アモルファス物質に内在する短距離秩序がトポロジカルバンドの特徴を持っていれば、特長的な性質を活用できる可能性を示唆している。元素戦略の視点からも新たな物質開拓の指針となりうる成果であり、今後のトポロジカル物質の開拓とデバイス活用の両面において研究指針となる成果である。

3. Three-dimensional sensing of the magnetic-field vector by a compact planar-type Hall device  
J. Shiogai, K. Fujiwara, T. Nojima, A. Tsukazaki  
Communications Materials 2, 102 (2021).

概要：トポロジカルバンドの寄与によって生じる大きな磁気応答は、通常の磁性体にはないトポロジカル磁性体の特徴となる。Fe と Sn で構成されるアモルファス薄膜は短距離秩序のベリー曲率に起因して異常ホール効果とともに異常ネルンスト効果と一方向性磁気抵抗効果においても大きな応答を示す。これらの大きな応答を活用して、三次元の磁場方位を決定できる磁気センサを開発した。これらはトポロジカル物質の特徴を活かす素子であるため、今後の特性改善によって、既存の半導体磁気センサを置き換えるだけでなく、新たな用途が開拓されることを示す成果である。

## § 2 研究実施体制

### (1)研究チームの体制について

#### 1.研究チームの体制について

##### ①「機能界面実証グループ」

研究代表者：塚崎 敦(東北大学金属材料研究所 教授)

研究項目：各種のトポロジカル物質群の薄膜化技術確立とそれら試料を用いたデバイス開拓研究の推進。理論グループの提案を受けた実証研究の推進。

##### ②「大規模数値計算展開グループ」

主たる共同研究者：求 幸年(東京大学大学院工学系研究科 教授)

研究項目：大規模数値計算を用いたトポロジカル物質群の電子状態理解に関する研究と量子スピン液体に関する物性現象の提案研究の推進。実験グループへの研究提案。

##### ・③「数理的物性理論研究グループ」

主たる共同研究者：野村健太郎(九州大学大学院理学研究院 教授)

研究項目：トポロジカルな電子状態に立脚して生じる物性現象の提案と現象理解に関する原理提唱研究の推進。実験グループへの研究提案。

### (2)国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

実験を推進する塚崎グループは、薄膜を用いた実験を共同で実施する国内外のネットワークを形成して、研究を効果的に推進した。例えば、電子顕微鏡を用いた構造評価、放射光分光を用いた電子状態評価や各種の物性評価を共同研究で実施した。また、主たる共同研究者だけでなく、多くの理論研究グループとも共同研究を推進した。理論研究を推進する求グループは、国内外の多くの理論研究グループと連携するネットワークを形成して、大学院生の交換留学を含めた共同研究を行った。また、キタエフ磁性体に関する実験研究グループとラマン分光、熱ホール効果とトポロジカル相転移、核磁気共鳴について共同研究を行った。理論研究を推進する野村グループは、国内外の理論研究グループと多岐に渡る物性について共同研究を行い、共同研究ネットワークを形成した。また、磁性ワイル半金属の電流による磁性制御に関する共同研究を実験グループと共同で行った。