

# Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜磁相变的输运表征\*

谭碧<sup>1)2)</sup> 高栋<sup>1)2)</sup> 邓登福<sup>1)2)</sup> 陈姝瑶<sup>1)2)</sup>

毕磊<sup>1)2)</sup> 刘冬华<sup>3)†</sup> 刘涛<sup>1)2)‡</sup>

1) (电子科技大学, 国家电磁辐射控制材料工程技术研究中心, 成都 611731)

2) (电子科技大学, 多频谱吸波材料与结构教育部重点实验室 (B类), 成都 611731)

3) (电子科技大学, 材料与能源学院, 成都 611731)

(2023 年 11 月 7 日收到; 2023 年 12 月 19 日收到修改稿)

六角笼目 (Kagome) 相拓扑反铁磁材料近年来引起了人们极大的研究兴趣, 这主要是因为它们拥有众多独特的性能, 例如虽然净磁矩跟反铁磁材料一样接近零, 但确有与铁磁性材料强度相当的磁电、磁光和磁热效应, 极具应用价值。以上的这些特性绝大多数都与其磁结构紧密相关, 然而人们却发现其磁结构对于生长条件和材料成分非常敏感。因此, 开发一种简单、普适的 Kagome 相拓扑反铁磁材料磁结构相变测量方法, 对于大多数难以获得高能中子衍射等先进实验手段的实验室来说, 无论是材料的生长优化还是物理现象机理的理解都具有重要的意义。本文采用脉冲激光沉积方法在 (1̄102) 取向的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 单晶衬底上成功外延制备了高质量 (11̄20) 取向的六角 Kagome 相 Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜, 并系统地测量了不同温度下该 Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜的磁性和磁输运特性。结果发现, 该 Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜的磁化曲线、霍尔电阻率曲线和磁电阻曲线在其三类磁相变温度中的某些或全部均表现出一定的异常特征。这些特征可以作为该六角 Kagome 相 Mn<sub>3</sub>Sn 薄膜中磁相变的证据, 甚至用于测量这些磁相变的温度。本工作有助于进一步推动六角 Kagome 相拓扑反铁磁材料在自旋电子器件中的应用。

**关键词:** 拓扑反铁磁, 磁相变, 反常霍尔电阻, 各向异性磁电阻

**PACS:** 75.50.Ee, 75.50.Pp, 85.75.-d, 72.15.Gd

**DOI:** [10.7498/aps.73.20231766](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231766)

## 1 引言

相对于铁磁或亚铁磁材料来说, 反铁磁材料具有众多优点, 例如: 1) 无杂散场, 抗外磁场干扰的能力强; 2) 内秉频率高, 响应速度快; 3) 磁各向异性强, 极限单元尺寸小。因此, 基于反铁磁材料的自旋电子器件具有高稳定性、高读写速度和超高密度的特点, 优于传统基于铁磁或亚铁磁材料的自旋电子器件, 具有更好的应用前景。基于以上原因, 反铁磁材料近几年来在自旋电子学领域受到了极

大的关注<sup>[1–5]</sup>。而在众多当前被研究的反铁磁材料中, 最引人注目的当属一类被称为拓扑反铁磁的材料, 即具有由 Mn 原子组成平面笼目 (Kagome) 结构的 Mn<sub>3</sub>X ( $X = \text{Sn}, \text{Ge}, \text{Ga}, \text{Pt}, \text{Ir}$  等)。此类材料的最大特点是, 虽然它们与其他反铁磁相同, 具有接近零的净磁矩, 但是其动量空间存在极大的由 Mn 原子拓扑磁矩结构所引起的贝利曲率 (Berry curvature), 从而使得他们可同时拥有与传统铁磁材料强度相当的反常霍尔 (AHE) 效应<sup>[6,7]</sup>、磁光克尔效应<sup>[8]</sup> 和反常能斯特效应<sup>[9]</sup>。拓扑反铁磁的这一特征, 使得它们可以同传统铁磁材料一样,

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2021YFB2801600)、四川省自然科学基金 (批准号: 2022NSFSC1990) 和四川省科技部 (批准号: 99203070) 资助的课题。

† 通信作者. E-mail: [dhliu@uestc.edu.cn](mailto:dhliu@uestc.edu.cn)

‡ 通信作者. E-mail: [liu.tao@uestc.edu.cn](mailto:liu.tao@uestc.edu.cn)

采用简单的电学、光学或热学方法来读取它们的磁化状态,从而很好地解决了普通共线反铁磁材料在应用中的最大的难题.不仅如此,还发现拓扑反铁磁  $Mn_3X$  实际也是一种磁性外尔半金属材料<sup>[10,11]</sup>,其体能带结构中的外尔点和表面态中的费米弧使得它们可能会拥有更多奇特的性质,而以上二者的形成和位置也与其拓扑磁结构紧密相关.

总之,拓扑反铁磁材料  $Mn_3X$  拥有多类由其拓扑磁结构引起的独特性能,使得它们无论是从基础研究的角度还是从器件应用的角度考虑,都极具价值.然而,在尝试制备此类薄膜材料时发现,它们的晶体结构和磁结构对于生长条件和材料成分都非常敏感.到目前为止,制备高质量纯平面 Kagome 相的拓扑反铁磁  $Mn_3X$  薄膜仍然极具挑战<sup>[12]</sup>.另外,考虑到拓扑反铁磁  $Mn_3X$  的各类物理性能与其磁结构的紧密关系,使得对于制备所得薄膜材料磁结构和磁相变温度的测量尤为重要.这无论是对于材料制备工艺的优化,还是对于器件应用相关的各类物理现象背后机理的深入理解都是至关重要的.然而,对反铁磁材料磁结构的精确的测量需要借助中子衍射等非常规的高能实验手段<sup>[13,14]</sup>,而绝大多数研究团队并不拥有这些实验条件.为此,本文首先采用脉冲激光沉积(pulsed laser deposition, PLD)的方法在  $(1\bar{1}02)$  取向的  $Al_2O_3$  单晶衬底上成功外延制备 Kagome 相的  $Mn_3Sn$  薄膜;然后,系统测量  $Mn_3Sn$  薄膜磁性和输运特性,包括霍尔电阻和磁电阻随温度的变化;最后,讨论了采用这些可简单测量的物理参数随温度变化中的异常表现,来表征其磁相变温度的可能性.

## 2 研究方法

本文中所研究的  $Mn_3Sn$  薄膜样品,是采用 PLD 方法在  $(1\bar{1}02)$  取向的  $Al_2O_3$  单晶衬底上生长所得到的.其中,激光器为 248 nm KrF 气体准分子脉冲激光器,生长中其输出能量密度为  $2.5 \text{ J/cm}^2$ ;  $Mn_3Sn$  靶材和  $Al_2O_3$  单晶衬底置于真空腔体中,其本底气压在样品开始制备前,低于  $1 \times 10^{-4} \text{ Pa}$ ;  $Mn_3Sn$  靶材与  $Al_2O_3$  单晶衬底表面垂直距离为 5.5 cm.具体的制备过程为:首先,保持衬底温度为 500 °C,用激光轰击旋转靶材制备约 50 nm 厚  $Mn_3Sn$  薄膜;随后,原位将衬底温度升高到 520 °C,并进一步保温 1 h;最后,将衬底温度降低到室温,

进一步制备约 4 nm 厚 Pt 层作为保护层.样品制备完成以后,先采用 Bruker D8 型号 X 射线衍射仪测量其衍射图谱(XRD)和倒空间图(RSM)以确定其晶体结构特征;采用超导量子干涉仪(SQUID)测量其磁化曲线.最后,采用常规的紫外曝光、氩离子刻蚀等微纳加工方法将  $Mn_3Sn$  薄膜制备成长 400 μm、宽 25 μm 的霍尔条形(Hall bar),并采用物性测量系统(PPMS)测量其磁输运特性.

## 3 结果与讨论

### 3.1 微观结构测量

图 1(a) 显示了对该样品结构表征的 XRD  $2\theta-\omega$  扫描衍射图谱结果.可以看到,除了衬底  $Al_2O_3$  的衍射峰以外,只有另外两个均来自于六角 Kagome 拓扑反铁磁相  $Mn_3Sn$  的衍射峰可以被清晰辨别.其中,  $2\theta = 31.6^\circ$  和  $65.9^\circ$  的衍射峰分别对应于  $Mn_3Sn$  ( $11\bar{2}0$ ) 和  $Mn_3Sn$  ( $22\bar{4}0$ ).考虑到  $Al_2O_3$  ( $1\bar{1}02$ ) 晶面和  $Mn_3Sn$  ( $11\bar{2}0$ ) 晶面均为矩形晶格,且二者晶格失配率为 4.79%,较为适中,因此图 1(a) 的  $2\theta-\omega$  扫描衍射图谱结果说明本文所制备的  $Mn_3Sn$  薄膜很可能是沿着  $Al_2O_3$  ( $1\bar{1}02$ ) 衬底表面,以  $(11\bar{2}0)$  晶面匹配外延生长的.

为了证明以上猜想,进一步采用薄膜样品面内  $\varphi$  扫描和 RSM 测量的方法研究了  $Mn_3Sn$  薄膜和  $Al_2O_3$  ( $1\bar{1}02$ ) 衬底表面的可能外延生长关系.图 1(b) 显示了该样品的  $Mn_3Sn$  ( $20\bar{2}1$ ) 衍射峰和  $Al_2O_3$  ( $11\bar{2}3$ ) 衍射峰的  $\varphi$  扫描对比图.可以看出,衬底  $Al_2O_3$  ( $11\bar{2}3$ ) 衍射峰呈二重对称性,而  $Mn_3Sn$  ( $20\bar{2}1$ ) 衍射峰呈四重对称性,并且  $Mn_3Sn$  ( $20\bar{2}1$ ) 衍射峰的 4 个  $\varphi$  角度值中的两个与  $Al_2O_3$  ( $11\bar{2}3$ ) 衍射峰的两个  $\varphi$  角度对应得很好.以上结果证明  $Mn_3Sn$  薄膜的确是沿着衬底  $Al_2O_3$  ( $1\bar{1}02$ ) 面外延生长的,二者晶格相对取向关系可确定为  $Al_2O_3$  [ $11\bar{2}0$ ] //  $Mn_3Sn$  [ $1\bar{1}00$ ](或者  $Mn_3Sn$  [0001]).图 1(c) 所示为该样品在衬底  $Al_2O_3$  ( $4\bar{2}\bar{2}6$ ) 附近的 RSM 测量结果.图中,除了衬底  $Al_2O_3$  ( $4\bar{2}\bar{2}6$ ) 很强的衍射点以外,还可以很清晰地看到  $Mn_3Sn$  ( $4\bar{2}\bar{2}6$ ) 的衍射点.该结果进一步证明,本文所制备的  $Mn_3Sn$  薄膜为外延薄膜.

另外,还采用原子力显微镜(AFM)测量了在同样条件下制备的  $Mn_3Sn$  薄膜但不覆盖 Pt 保护层样品的表面形貌.为了尽可能避免因表面氧化而

造成的形貌改变, 在样品从真空腔体中取出后就立马对其进行测量, 图 1(d) 为测量结果。可以看出, 其表面较为平整, 粗糙度约为 1.32 nm。

### 3.2 室温磁性和磁输运性能

如引言部分所述, 根据以往来自不同课题组对  $Mn_3Sn$  的研究可知, 即便是很纯的六角 Kagome 相, 其磁结构仍然对其成分(如 Mn 含量)和微观结构(如缺陷浓度)等都有很强的依赖关系<sup>[15,16]</sup>。因此, 为进一步探究所制备的  $Mn_3Sn$  薄膜的质量, 特别是在室温下是否存在导致各类奇特物性的拓

扑反铁磁磁结构相, 接下来测量了该样品在室温下的磁化曲线和反常霍尔效应电阻率曲线。图 2(a) 为 SQUID 测量所得室温下(300 K)沿面外方向的磁化曲线。为了扣除来自衬底的抗磁信号, 在完全相同的条件下测量了同样尺寸的  $Al_2O_3$  衬底的磁化曲线。可以看出明显的迟滞, 矫顽场仅为 710 Oe ( $1 \text{ Oe} = 10^3/(4\pi) \text{ A/m}$ ), 但自发磁化在 1.5 T 磁场下才趋于饱和, 该表现与之前拓扑反铁磁相单晶  $Mn_3Sn$  所报道的基本一致<sup>[6]</sup>。另外, 更重要的是它的饱和磁化强度仅仅约为  $6.3 \text{ emu/cm}^3$ , 该值与之前拓扑反铁磁相单晶  $Mn_3Sn$  所报道的值同样相当<sup>[6]</sup>,

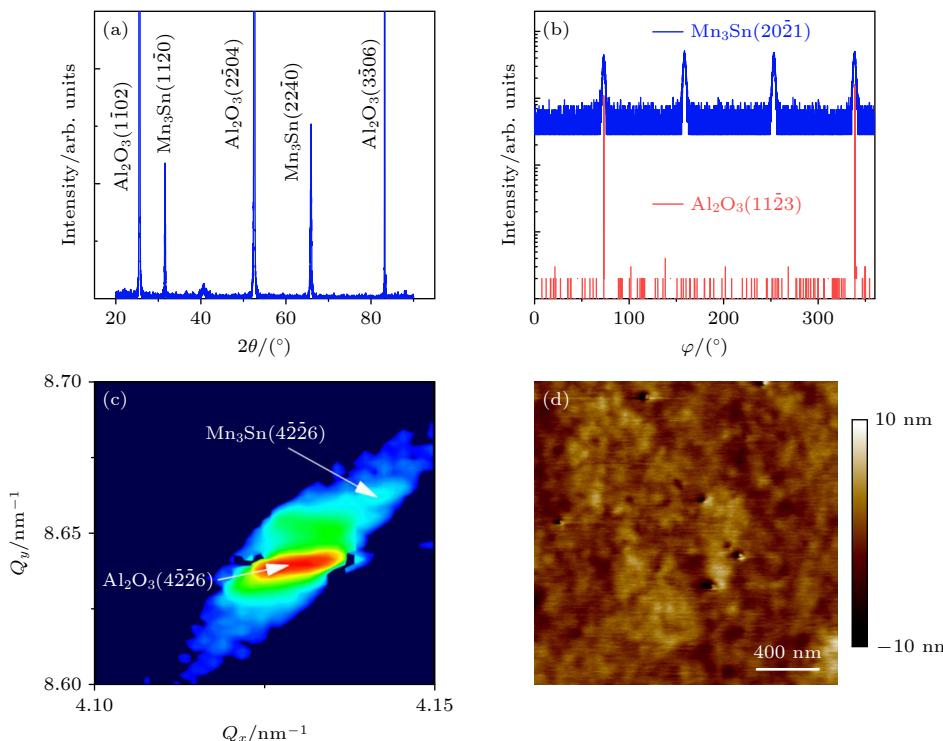


图 1 微观结构测量结果 (a)  $2\theta-\omega$  扫描衍射图谱; (b) 面内  $\varphi$  扫描图谱; (c) RSM; (d) AFM 图

Fig. 1. Microstructure measurement results: (a)  $2\theta-\omega$  scan XRD spectrum; (b) in-plane  $\varphi$  scan XRD; (c) RSM; (d) AFM image.

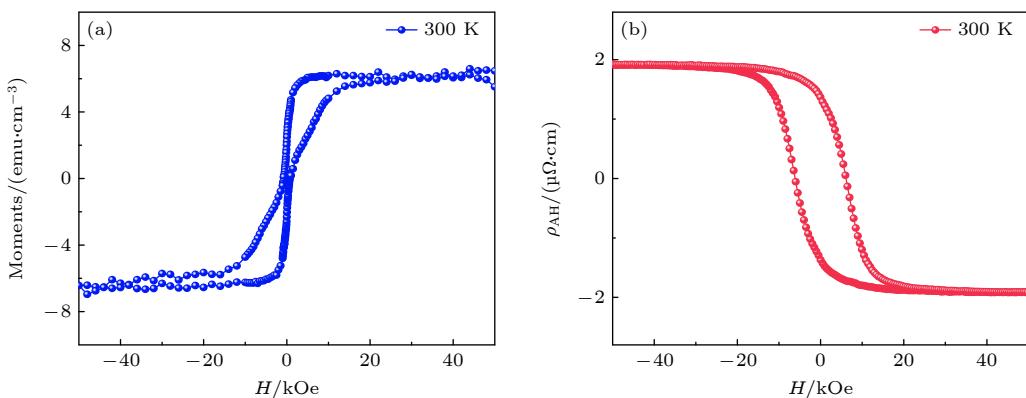


图 2 室温下  $Mn_3Sn$  薄膜的 (a) 垂直磁化曲线, 以及 (b) AHE 电阻率随磁场的变化

Fig. 2. Room temperature magnetic and transport properties: (a) Out-of-plane hysteresis loop; (b)  $\rho_{AH}-H$  loop.

约为传统铁磁坡莫合金的 1/150, 约为传统亚铁磁材料钇铁石榴石的 1/25.

图 2(b) 所示为室温下的 AHE 曲线测量结果, 它是由霍尔电阻率曲线扣除正常霍尔电阻率(即高场磁化饱和部分的斜率)所得到的. 测量中, 磁场同磁化曲线测量时情况一样, 沿垂直于膜面方向施加, 即与  $\text{Al}_2\text{O}_3[1\bar{1}02]$ (或  $\text{Mn}_3\text{Sn}[11\bar{2}0]$ ) 平行; 而电流则沿着面内平行于  $\text{Al}_2\text{O}_3[11\bar{2}0]$ (或  $\text{Mn}_3\text{Sn}[1\bar{1}00]$ ) 方向施加. 首先, 同样可以在 AHE 电阻率随磁场变化的曲线中看到明显磁滞现象, 但是 AHE 曲线的形状明显与图 2(a) 中的磁化曲线不同. 这证明  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜的 AHE 与传统铁磁或亚铁磁不同, 与净磁矩并无直接的关系, 而是起源于动量空间的贝利曲率. 其次, 该样品室温下饱和 AHE 电阻率达到  $1.85 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ , 此数值略低于单晶拓扑反铁磁相  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  中所报道的结果<sup>[6]</sup>, 但高于此前溅射制备的  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  外延膜所报道的值<sup>[17,18]</sup>, 并与传统的铁磁材料相当.

上述室温磁化曲线和 AHE 曲线进一步证明, 采用 PLD 方法制备的六角 Kagome 相  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜的质量较高, 室温下具有与此前单晶  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  中报道的相同的拓扑反铁磁相磁结构.

### 3.3 磁性和磁输运特性随温度的变化

总结以往采用中子衍射或其他方法对于六角 Kagome 相  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  磁结构的研究结果可知<sup>[19,20]</sup>, 随着温度的降低, 可能出现的完整磁结构转变过程如下. 首先, 在高温下处于顺磁态; 然后, 随着温度的降低, 在奈尔温度  $T_N(\sim 420 \text{ K})$  以下转变为反三角结构拓扑反铁磁态 (inverse triangular state); 接下来, 随着温度进一步降低到  $T_1(\sim 270 \text{ K})$ , 磁结构转变为非公度螺旋类型 (incommensurate spiral state), 且其磁化易轴与反三角结构相保持一致, 沿 Kagome 面内  $[11\bar{2}0]$  方向; 再进一步降低温度到  $T_2(\sim 200 \text{ K})$ , 此状态下磁结构仍然为非公度螺旋类型, 但磁化易轴转变到 Kagome 面外沿  $c$  轴  $[0001]$  方向; 最后, 当温度降低到  $T_g(\sim 50 \text{ K})$ , 非公度螺旋磁结构转变为自旋玻璃态 (spin glass). 需要说明的是, 由于六角 Kagome 相  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  的磁结构对于成分和制备条件都非常敏感, 所以很多课题组所制备的单晶或者薄膜样品并非能观测到以上所有的磁结构和磁相变过程, 另外, 所观察到的相变温度与以上所列值也可能有一定的差别. 正因如

此, 才更有必要通过简单的测试方法探测所制备的  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜中的磁结构和磁相变温度, 并以此为依据来进一步优化其制备条件. 基于以上分析, 本文接下来将主要关注在  $T_1$ ,  $T_2$  和  $T_g$  三个可能的相变温度附近, 所制备的  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  样品磁性能和电输运性的表现行为, 并进一步讨论这些物理量随温度变化曲线显现的异常现象来表征  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜中磁相变的可能性. 这里需要说明的是, 基于以下 3 个原因, 本工作并没有关注、测量  $T_N$  附近的磁性能和电输运性能: 1) 从反铁磁态到顺磁态的磁相变过程, 是反铁磁材料内普遍的磁相变过程, 而并非拓扑反铁磁  $\text{Mn}_3X$  所特有的; 对于  $T_N$  的磁性或输运测量已有一些被普遍采用的方法, 如横向电阻率随温度变化曲线中出现的拐点和交换偏置效应的消失等; 2) 从以往的报道来看, 六角 Kagome 结构相  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  中  $T_N$  对于成分和制备条件的依赖不如其他的磁结构相变敏感, 基本在  $420\text{--}430 \text{ K}$ <sup>[6,21]</sup>, 因此对于材料优化的参考价值不如其他磁结构相变重要; 3) 通用的磁性或输运测量设备 (包括我们的 SQUID 和 PPMS), 最高只能升温到  $400 \text{ K}$ , 无法进行  $T_N$  附近的测量. 另外, 最近有研究报道了  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜中还可能形成一些更复杂有趣的磁结构<sup>[22,23]</sup>, 如磁斯格明子. 从广义角度来说, 这些复杂磁结构之间的转变也属于磁相变, 因此磁电输运性能上也会有一些相应的证据, 例如磁斯格明子所导致的拓扑霍尔电阻. 但此类复杂磁结构往往需要外磁场来稳定; 并且, 往往都起源于界面效应, 如界面 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用, 对  $50 \text{ nm}$  厚的  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜的磁电输运性能影响较弱.

首先, 研究了磁化曲线随温度的变化情况. 测量中, 外磁场始终沿着垂直于膜面的方向施加, 即平行于  $\text{Mn}_3\text{Sn}[11\bar{2}0]$ , 与图 2(a) 情况一致. 图 3(a) 所示为不同温度下测量所得的磁化曲线. 考虑到  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  的磁结构与电子结构存在紧密关联<sup>[10]</sup>, 磁相变的过程中会导致对称性的升高或降低, 从而会很大程度上改变电子结构和相关联的物理参量. 这些物理参量具体是与磁化曲线测量相关, 主要是交换能和磁晶各向异性等改变所导致的饱和磁化强度 ( $M_s$ ) 和矫顽力 ( $H_c$ ) 的改变. 为此, 我们从磁化曲线中总结了  $M_s$  和  $H_c$  随温度的变化. 如图 3(b), (c) 所示, 随着温度的降低,  $M_s$  和  $H_c$  表现得非常相似. 在反三角拓扑相向非公度螺旋相转变温度  $T_1$  附近, 二者均出现升高的趋势, 其中  $M_s$  升高得尤为

明显; 随后继续降温, 在  $T_1$  和  $T_2$  之间,  $M_s$  和  $H_c$  都基本不随温度变化; 而当磁结构转变为第 2 类非公度螺旋相以后,  $M_s$  和  $H_c$  又开始随着温度降低而升高. 因此, 在  $T_2$  附近可以看到两曲线的斜率均有较明显的变化; 但是在第 2 类非公度螺旋相向自旋玻璃相转变中,  $M_s$  和  $H_c$  均变化较为平缓, 在  $T_g$  附近没有较明显的异常行为. 总的来说, 结合分析  $M_s$  和  $H_c$  的结果, 可确定磁性能在  $T_1$  和  $T_2$  附近均表现出较明显的异常, 可以用来作为该温度附近磁结构发生相变的证据.

采用同一个  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜样品制备霍尔条形(Hall bar) 样品, 在不同温度下测量其霍尔电阻. 图 4(a) 所示为不同温度下, 霍尔电阻率( $\rho_{xy}$ ) 随磁场( $H$ ) 的变化. 所测得的  $\rho_{xy}$  包括两部分, 即  $\rho_{xy} = \rho_{\text{OHE}} + \rho_{\text{AH}}$ . 其中,  $\rho_{\text{OHE}}$  为普通霍尔效应项, 来源于洛伦兹力对  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  中载流子的作用, 与磁场成正比, 且无磁滞;  $\rho_{\text{AH}}$  为反常霍尔效应项, 如引言部分所述主要由  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  动量空间的贝利曲率所引起.

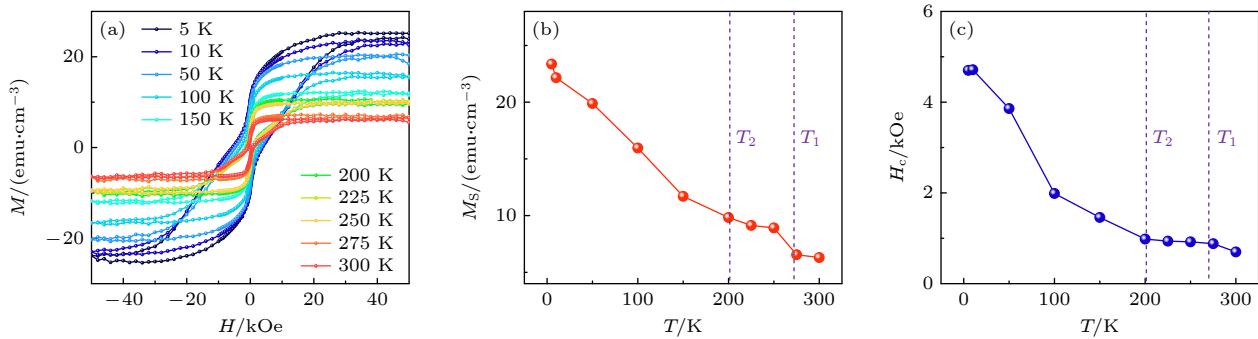


图 3 (a) 不同温度下的磁化曲线 ( $1 \text{ emu}/\text{cm}^3 = 10^3 \text{ A/m}$ ); (b) 饱和磁化强度 ( $M_s$ ) 和 (c) 矫顽力 ( $H_c$ ) 随温度的变化

Fig. 3. Temperature dependence of magnetic properties: (a) Out-of-plane hysteresis loops at different temperatures; (b)  $M_s-T$ ; (c)  $H_c-T$ .

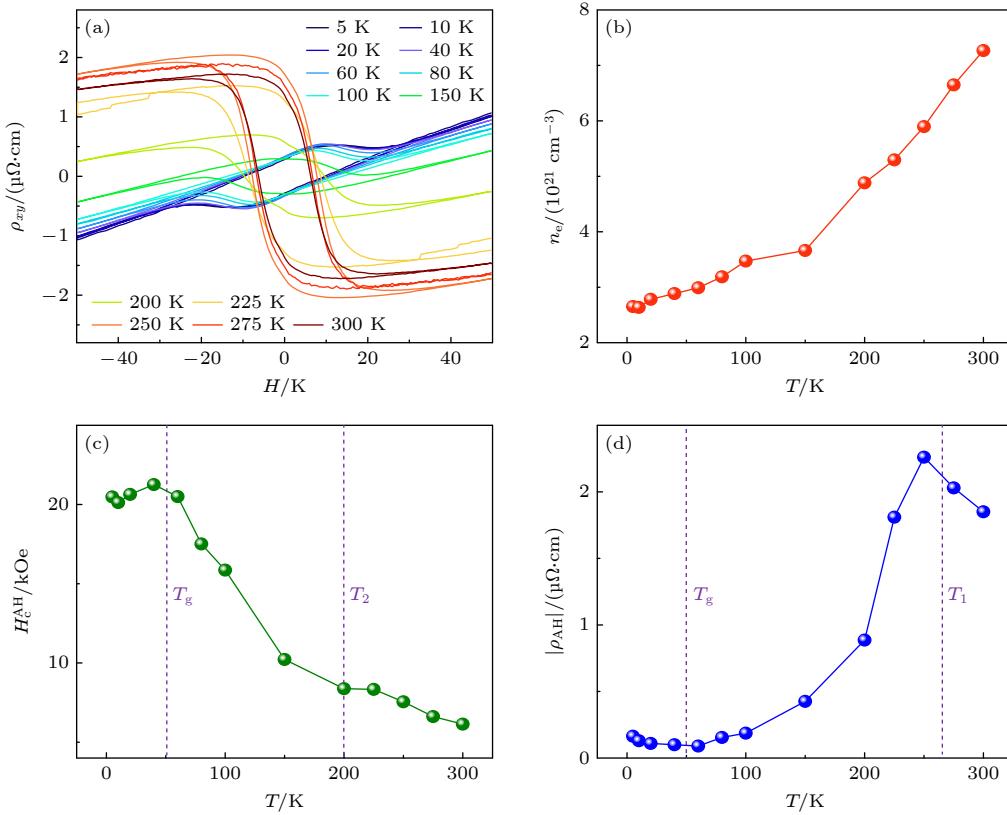


图 4 (a) 霍尔电阻率 ( $\rho_{xy}$ ) 随磁场 ( $H$ ) 的变化; (b) 载流子浓度 ( $n_e$ )、(c) 霍尔矫顽力 ( $H_c^{\text{AH}}$ ) 和 (d) 饱和反常霍尔电阻率 ( $|\rho_{\text{AH}}|$ ) 随温度的变化

Fig. 4. Temperature dependence of Hall resistance: (a)  $\rho_{xy}-H$  loops at different temperatures; (b)  $n_e-T$ ; (c)  $H_c^{\text{AH}}-T$ ; (d)  $|\rho_{\text{AH}}|-T$ .

需要说明的是, 这里的  $\rho_{\text{AH}}$  虽然不同于传统铁磁材料的反常霍尔效应, 并不正比于磁化强度, 但是动量空间的贝利曲率同样由实空间磁结构决定, 因而  $\rho_{\text{AH}}$  对磁场也会有类似的响应, 即存在磁滞和磁化饱和现象。基于以上原因, 这里可以采用同样的方法将  $\rho_{xy}$  中以上两项分开, 即先由曲线高场部分的斜率确定  $\rho_{\text{OHE}}$ , 剩下的就是  $\rho_{\text{AH}}$ 。[图 4\(b\)](#) 所示为基于分离出来的  $\rho_{\text{OHE}}$  计算得到的载流子浓度 ( $n_e$ ) 随温度的变化; [图 4\(c\), \(d\)](#) 所示为基于分离出来的  $\rho_{\text{AH}}$  总结得到的霍尔矫顽力 ( $H_c^{\text{AH}}$ ) 和饱和反常霍尔电阻率 ( $|\rho_{\text{AH}}|$ ) 随温度的变化。对于  $n_e$ , 可以看到它只是随着温度的降低, 在平缓单调减小。即便是在  $T_1$  附近,  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜由拓扑非平庸的外尔半金属态转变为拓扑平庸的电子结构态,  $n_e$  随温度变化曲线中也没有表现出明显的反常特征。而对于  $H_c^{\text{AH}}$  和  $|\rho_{\text{AH}}|$  随温度的变化曲线, 首先它们跟磁化曲线中  $H_c$  和  $M_s$  的表现不同, 这里两者的变化趋势完全不同, 其原因可归结为二者的本质机理不同。如前面所述  $|\rho_{\text{AH}}|$  主要来源于动量空间的贝利曲率, 主要由电子结构和磁结构的拓扑特性决定。[\[10\]](#) 因此,  $|\rho_{\text{AH}}|$  应主要来自于反三角拓扑相的贡献。而我们的测量结果与之基本相符, 在  $T_1$  附近

观测到最大值峰, 而当温度降低到  $T_g$  时,  $|\rho_{\text{AH}}|$  减小到最小值, 随后基本不随温度变化。对于  $H_c^{\text{AH}}$ , 虽然同样来自于  $\rho_{\text{AH}}-H$  曲线, 但它本质上反映的仍然是外磁场驱动 Mn 磁矩转动的难易程度, 而与  $\rho_{\text{AH}}$  的饱和值基本无关。因此,  $H_c^{\text{AH}}$  很大程度上, 仍然由  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜的本征磁性能如磁晶各向异性等主导。可以看到在两螺旋磁结构相变温度  $T_2$  附近,  $H_c^{\text{AH}}$  随温度的变化明显变快, 可以在[图 4\(c\)](#) 曲线上看到斜率明显的变化, 这很可能跟两螺旋相中磁化易轴方向不同相关。[\[20\]](#) 另外, 在  $T_g$  温度以下, 明显看到  $H_c^{\text{AH}}$  曲线的饱和平台。总的来说, 反常霍尔电阻率随温度变化曲线中, 在各相变温度点附近都可以观测到明显的异常特征。

六角 Kagome 相  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜中可能存在各类横向磁电阻效应, 例如: 1)  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  中应具有磁性金属普适的各向异性磁电阻; 2) 另外, 由于  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜中同时具有与其磁结构相关和不相关的自旋霍尔效应。[\[24\]](#) 因此存在自旋霍尔磁电阻; 3) 同时,  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜还具有与拓扑表面电子态中费米弧相关的负磁电阻效应。[\[25\]](#) 所以, 最后还研究了  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜磁电阻随温度的变化。如[图 5\(a\)–\(c\)](#) 所示为不同温度下磁电阻 (MR) 随磁场 ( $H$ ) 的变化。

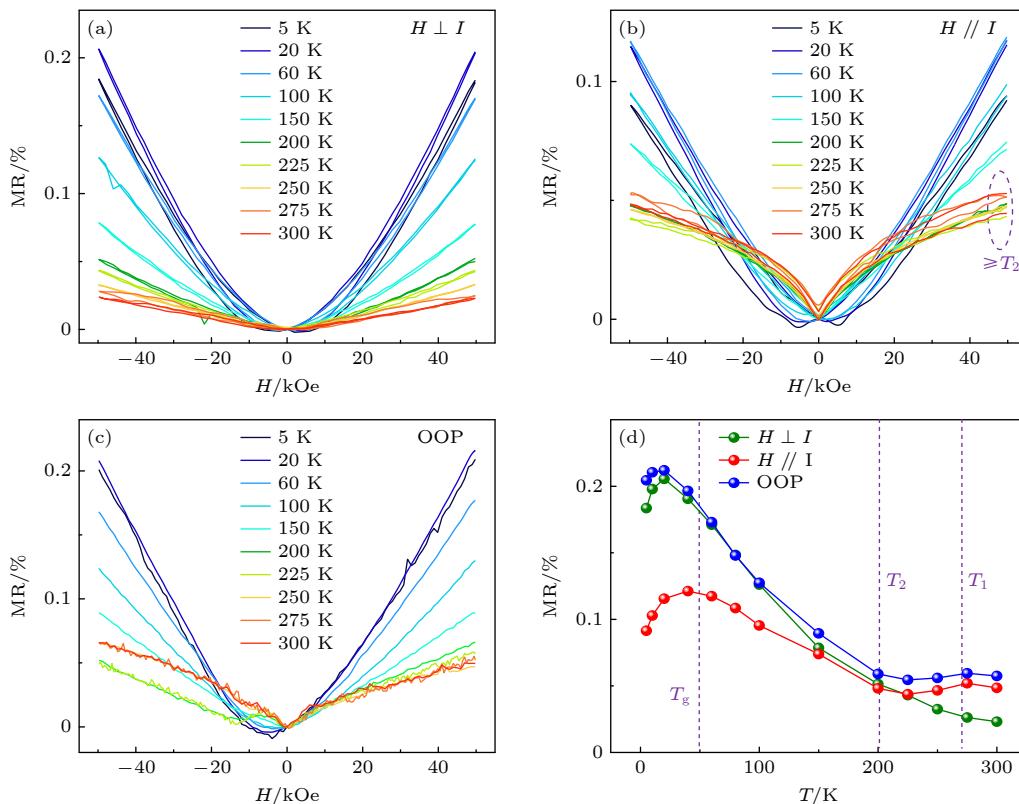


图 5 (a)–(c) 不同温度下磁电阻 (MR) 随磁场 ( $H$ ) 的变化; (d) MR 随温度的变化

Fig. 5. Temperature dependence of anisotropic magnetoresistance: (a)–(c) MR- $H$  loops at different temperatures; (d) MR- $T$ .

这里 MR 的定义为  $MR = [(R(H) - R(0))/R(0)] \times 100\%$ , 其中  $R(0)$  和  $R(H)$  是零磁场和磁场  $H$  下的电阻值. 图 5(a)—(c) 中, 所施加的磁场方向分别垂直于膜面 (OOP)、平行于电流 ( $H // I$ ) 和垂直于电流 ( $H \perp I$ ). 图 5(d) 为总结的  $H = 5$  T 磁场下, 3 个不同方向的 MR 值随温度的变化. 需要说明的是, 图 5(c) 中低温下的曲线关于零磁场有明显的不对称, 这可能是霍尔条带器件结构的不对称, 导致横向电阻测量中混入了非对称的磁电阻成分, 如霍尔电阻所造成的. 可以看到, 以  $T_2$  为分界线, 在此温度以上, OOP 曲线与  $H // I$  曲线几乎重合, 而与  $H \perp I$  曲线差别明显; 相反, 在  $T_2$  温度以下, OOP 曲线反而与  $H \perp I$  曲线几乎重合, 而与  $H // I$  曲线差别明显. 磁电阻随温度变化的以上特点, 可以很好地用来判别两螺旋磁结构之间的磁相变. 但需要说明的是, 以上现象背后的物理机制尚不完全明确, 需进一步的深入研究. 对于  $T_1$  和  $T_g$ , MR 值随温度的变化曲线中同样有相对应的异常特征.  $T_1$  温度附近, OOP 和  $H // I$  曲线有一个轻微的峰; 而  $T_g$  温度附近,  $H // I$  曲线有一个较明显的峰. 同样有趣的是, 如图 5(b) 所示,  $H // I$  方向 MR-H 回线在  $T_2$  温度以上和以下的形状明显不同. 可以看到, 对于曲线低磁场部分的曲率在  $T_2$  温度以上为负 (紫色虚线环), 而在  $T_2$  温度以下为正. 总的来说, 磁电阻随温度变化曲线中, 在各相变温度点附近也都可以观测到异常的特征; 特别是对于两螺旋磁结构之间的磁相变温度  $T_2$ , 磁电阻曲线测量结果中有多个较明显特征与之对应.

## 4 结 论

采用 PLD 的方法在  $(\bar{1}\bar{1}02)$  取向的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  单晶衬底上成功外延制备了高质量  $(11\bar{2}0)$  取向的六角 Kagome 相  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜. 系统测量了不同温度下该  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜的磁性和磁输运特性发现, 对于它的磁化曲线、霍尔电阻率和磁电阻随温度变化曲线, 在 3 类磁相变温度中的某些或全部均表现出一定的异常特征. 这些特征可以很好地作为六角 Kagome 相  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜中磁相变的证据, 甚至测量这些磁相变的温度. 结果表明, 简单、普适的变温磁性和磁输运测量可作为高能中子衍射测量的有效补充, 帮助普通实验室对于他们所制备的  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜的磁结构特征获得较好的初步认识. 考虑到磁结构对  $\text{Mn}_3X$  薄膜各类性能影响的重要性, 本工作

将有助于进一步推动六角 Kagome 相拓扑反铁磁材料在自旋电子器件中的应用.

## 参 考 文 献

- [1] Xiong D R, Jiang Y H, Shi K W, Du A, Yao Y X, Guo Z X, Zhu D Q, Cao K H, Peng S Z, Cai W L, Zhu D P, Zhao W S 2022 *Fundam. Res.* **2** 522
- [2] Jungwirth T, Marti X, Wadley P, Wunderlich J 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 231
- [3] Bai H, Zhang Y C, Han L, Zhou Y J, Pan F, Song C 2022 *Appl. Phys. Rev.* **9** 041316
- [4] Zhang B, Zeng Y, Zhao Z J, Qiu D P, Zhang T, Hou Y L 2022 *Rare Met.* **41** 2921
- [5] Mak K Y, Xia J, Zhang X C, Li L, Fattouhi M, Ezawa M, Liu X X, Zhou Y 2022 *Rare Met.* **41** 2249
- [6] Nakatsuji S, Kiyohara N, Higo T 2015 *Nature* **527** 212
- [7] Zhao Z P, Guo Q, Chen F H, Zhang K W, Jiang Y 2021 *Rare Met.* **40** 2862
- [8] Higo T, Man H Y, Gopman D B, et al. 2018 *Nat. Photo.* **12** 73
- [9] Li X K, Xu L C, Ding L C, Wang J H, Shen M S, Lu X F, Zhu Z W, Behnia K 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 056601
- [10] Yang H, Sun Y, Zhang Y, Shi W J, Parkin S S P, Yan B H 2017 *New J. Phys.* **19** 015008
- [11] Kuroda K, Tomita T, Suzuki M T, et al. 2017 *Nat. Mater.* **16** 1090
- [12] Gao D, Peng Z, Zhang N B, Xie Y F, Yang Y C, Yang W H, Xia S, Yan W, Deng L J, Liu T, Qin J, Zhong X Y, Bi L 2022 *Appl. Phys. Lett.* **121** 242403
- [13] Brown P J, Nunez V, Tassett F, Forsyth J B, Radhakrishna P 1990 *J. Phys. Condens. Matter.* **2** 9409
- [14] Cable J W, Wakabayashi N, Radhakrishna P 1994 *J. Appl. Phys.* **75** 6601
- [15] Zimmer G J, Kren E 1972 *AIP Conf. Proc.* **5** 513
- [16] Liu J J, Meng K K, Chen J K, Wu Y, Miao J, Xu X G, Jiang Y 2022 *Rare Met.* **41** 3012
- [17] Yoon J Y, Takeuchi Y, Itoh R, Kanai S, Fukami S, Ohno H 2020 *Appl. Phys. Express* **13** 013001
- [18] Kurdi S, Zilske P, Xu X D, Frentrup M, Vickers M E, Sakuraba Y, Reiss G, Barber Z H, Koo J W J 2020 *Appl. Phys.* **127** 165302
- [19] Sung N H, Ronning F, Thompson J D, Bauer E D 2018 *Appl. Phys. Lett.* **112** 132406
- [20] Duan T F, Ren W J, Liu W L, Li S J, Liu W, Zhang Z D 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 082403
- [21] Deng Y C, Liu X H, Chen Y Y, Du Z Z, Jiang N, Shen C, Zhang E Z, Zheng H Z, Lu H Z, Wang K Y 2023 *Nat. Sci. Rev.* **10** nwac154
- [22] Liu X H, Feng Q Y, Zhang D, Deng Y C, Dong S, Zhang E Z, Li W H, Lu Q Y, Chang K, Wang K Y 2023 *Adv. Mater.* **35** 2211634
- [23] Jiang N, Deng Y C, Liu X H, Zhang D, Zhang E Z, Zheng H Z, Chang K, Shen C, Wang K Y 2023 *Appl. Phys. Lett.* **123** 072401
- [24] Kimata M, Chen H, Kondou K, Sujimoto S, Muduli P K, Ikhlas M, Omori Y, Tomita T, Macdonald A H, Nakatsuji S, Otani Y 2019 *Nature* **565** 627
- [25] Chen T S, Tomita T, Minami S, Fu M X, Koretsune T, Kitatani M, Muhammad I, Nishio-Hamane D, Ishii R, Ishii F, Arita R, Nakatsuji S 2021 *Nat. Commun.* **12** 572

# Transport characterization of magnetic phase transition in Mn<sub>3</sub>Sn thin films\*

Tan Bi<sup>1)2)</sup>    Gao Dong<sup>1)2)</sup>    Deng Deng-Fu<sup>1)2)</sup>    Chen Shu-Yao<sup>1)2)</sup>  
 Bi Lei<sup>1)2)</sup>    Liu Dong-Hua<sup>3)†</sup>    Liu Tao<sup>1)2)‡</sup>

1) (National Engineering Research Center of Electromagnetic Radiation Control Materials,  
*University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 611731, China*)

2) (Key Laboratory of Multi-spectral Absorbing Materials and Structures of Ministry of Education,  
*University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 611731, China*)

3) (School of Materials and Energy, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 611731, China)

(Received 7 November 2023; revised manuscript received 19 December 2023)

## Abstract

In recent years, topological antiferromagnetic material with hexagonal Kagome structure has attracted great research interest due to its unique properties. Although its net magnetic moment is close to zero, the topological antiferromagnet exhibits the strong magnetoelectric, the magneto-optical, and the magnetothermal effect, with a strength comparable to that of ferromagnetic material, which makes it highly valuable for various applications. After several years of extensive studies, it has been realized that most of the unique properties of topological antiferromagnet are actually closely related to its magnetic structure. However, it has been found that the magnetic structure of the material is highly sensitive to its chemical composition and growth condition. Therefore, it is crucial to develop a universal and simple method of measuring the magnetic structure and determining the magnetic phase transition of hexagonal Kagome topological antiferromagnetic material, which can serve as a good supplement for the current high-energy neutron diffraction approach that is not accessible for ordinary laboratories. In this study, we have successfully prepared high-quality (11̄20)-oriented hexagonal Kagome antiferromagnetic Mn<sub>3</sub>Sn thin films on (1̄102)-oriented Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> single crystal substrates by using the pulsed laser deposition method. After systematically measuring how the magnetic and transport properties of the Mn<sub>3</sub>Sn thin film change with temperature, it is found that its magnetization curve, Hall resistivity curve, and magnetoresistance curve exhibit certain anomalous features at some or all of its three magnetic phase transition temperatures. These features can serve as good evidences of magnetic phase transitions in this hexagonal Kagome antiferromagnetic Mn<sub>3</sub>Sn thin film, or even could be used to measure the temperatures of these magnetic phase transitions. Our work contributes to the further advancement of the application of hexagonal Kagome topological antiferromagnetic materials to spin electronic devices.

**Keywords:** topological antiferromagnet, magnetic phase transition, anomalous Hall resistance, anisotropic magnetoresistance

**PACS:** 75.50.Ee, 75.50.Pp, 85.75.-d, 72.15.Gd

**DOI:** [10.7498/aps.73.20231766](https://doi.org/10.7498/aps.73.20231766)

\* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2021YFB2801600), the Natural Science Foundation of Sichuan Province, China (Grant No. 2022NSFSC1990), and the Science and Technology Department of Sichuan Province, China (Grant No. 99203070).

† Corresponding author. E-mail: [dhliu@uestc.edu.cn](mailto:dhliu@uestc.edu.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [liu.tao@uestc.edu.cn](mailto:liu.tao@uestc.edu.cn)



## Mn<sub>3</sub>Sn薄膜磁相变的输运表征

谭碧 高栋 邓登福 陈姝瑶 毕磊 刘冬华 刘涛

### Transport characterization of magnetic phase transition in Mn<sub>3</sub>Sn thin films

Tan Bi Gao Dong Deng Deng-Fu Chen Shu-Yao Bi Lei Liu Dong-Hua Liu Tao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 067501 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20231766

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231766>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

---

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

Eu<sub>0.9</sub>*M*<sub>0.1</sub>TiO<sub>3</sub>(*M*=Ca,Sr,Ba,La,Ce,Sm)的磁性和磁热效应

Magnetic and magnetocaloric effects of Eu<sub>0.9</sub>*M*<sub>0.1</sub>TiO<sub>3</sub> (*M*=Ca, Sr, Ba, La, Ce, Sm) compounds

物理学报. 2018, 67(24): 247502 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181750>

具有大磁晶各向异性能的单层BaPb的室温量子反常霍尔效应

Room-temperature quantum anomalous Hall effect in monolayer BaPb with large magnetocrystalline anisotropy energies

物理学报. 2021, 70(15): 157502 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210014>

双二次交换作用和各向异性对反铁磁体相变温度的影响

Effect of biquadratic exchange and anisotropy on the critical temperature of antiferromagnet

物理学报. 2020, 69(10): 107501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200077>

铁磁/非磁金属异质结中的拓扑霍尔效应

Topological Hall effect in ferromagnetic/non-ferromagnetic metals heterojunctions

物理学报. 2018, 67(13): 131202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180369>

垂直各向异性Ho<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>薄膜的外延生长与其异质结构的自旋输运

Epitaxial growth of Ho<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub> films with perpendicular magnetic anisotropy and spin transport properties in Ho<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>/Pt heterostructures

物理学报. 2021, 70(7): 077501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201737>

间隙原子H,B,C对LaFe11.5Al1.5化合物磁性和磁热效应的影响

Influences of interstitial atoms H, B and C on magnetic properties and magnetocaloric effect in LaFe11.5Al1.5 compound

物理学报. 2018, 67(7): 077501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172250>