

平成 30 年 5 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K13682

研究課題名(和文)磁性酸化物におけるトポロジカル伝導

研究課題名(英文)Topological conduction in magnetic oxides

研究代表者

小塚 裕介(Kozuka, Yusuke)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・講師

研究者番号：70580372

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 2,800,000円

研究成果の概要(和文):従来のスピントロニクス素子では主に強磁性体が使われていた。しかしながら、反強磁性体を用いることができれば、漏れ磁場の影響が少なくより低消費電力の素子が構成可能である。本研究では、パイロクロア型結晶構造を持つIr酸化物のall-in-all-outと呼ばれる反強磁性スピン構造を用いて磁気ドメインを制御し、ドメイン壁に現れると予測されている伝導層の制御を行った。結果として、パイロクロア型Ir酸化物のヘテロ構造の各層の磁気ドメインの独立制御に成功した。さらに、人工的に形成された磁壁では電気伝導が起こることを示した。本研究成果では、反強磁性ドメイン制御を実証することができた。

研究成果の概要(英文):For conventional spintronic elements, ferromagnetic materials have been mainly used. However, with using antiferromagnetic materials, elements with less power consumption can be fabricated owing to smaller effects of stray field. In this study, we aim at controlling magnetic domains and conducting layers at the domain boundary of pyrochlore iridates, where a spin configuration called all-in-all-out is realized. As a result, we succeeded in independently controlling the magnetic domains of each layer of a pyrochlore iridate heterostructure. In addition, we find conducting layer at the artificial magnetic domain walls. In this study, we demonstrate successful control of antiferromagnetic domains.

研究分野：酸化物エレクトロニクス

キーワード：酸化物薄膜 電子相関 スピン軌道相互作用

### 1. 研究開始当初の背景

現在、エレクトロニクスの分野において、低消費電力素子の必要性が急務となっている。その候補として、強磁性金属の磁壁を電流で移動させる「レーストラックメモリ」や、電流による結晶-非晶質転移を利用した相変化メモリが、不揮発性を有する次世代エレクトロニクス素子として注目されている。本研究では、反強磁性体を用いた低消費電力のメモリなどの素子を念頭に置き、反強磁性絶縁体のドメイン壁に形成される、界面スピン伝導の素性を解明することを目的とした。この提案は、図1に示される結晶構造を持つパイロクロア型 Ir 酸化物 ( $R_2Ir_2O_7$ 、 $R$ :希土類元素) の磁気ドメイン界面に金属的な状態が発現することが、理論的に予測されていることに基づいている[1,2]。この物質は図1に示される、Ir 四面体副格子のスピンのすべて内向きまたは外向きを向く all-in-all-out と呼ばれる特徴的なスピン構造を有している。All-in-all-out 構造は反強磁性であるにもかかわらず、強磁性体のように明確に区別できる2つの磁気ドメイン(ここでは便宜的にAドメイン、Bドメインと呼ぶ)が存在する。この物質群はスピン軌道相互作用が極めて強く、バルク内部は絶縁体であるが、トポロジカル絶縁体と同様の金属層が反強磁性の磁壁に現れることが、バルク多結晶の実験から示唆されている[3]。磁壁を制御することで伝導層の生成・消滅を行えると考えられるが、これまで単結晶薄膜の作製は行われておらず、人工ヘテロ構造の作製はされていない。

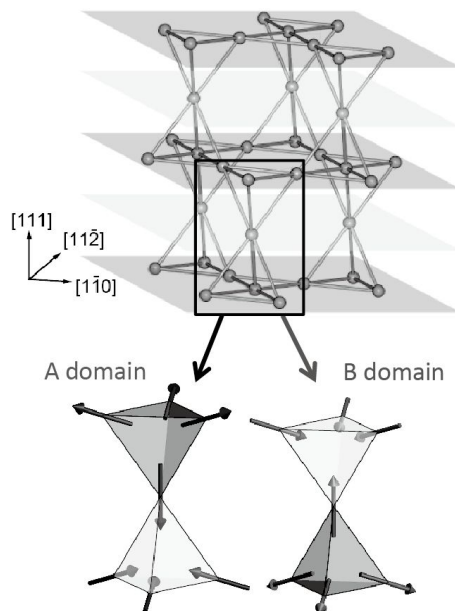


図1.  $R_2Ir_2O_7$ パイロクロア格子。Irの副格子のみ示してある。下図はスピン構造の2つのドメインを示している

### 2. 研究の目的

そこで、本研究提案ではパイロクロア Ir 酸化物薄膜のヘテロ界面に人工的に磁壁を導

入し、磁壁の制御を行うことで、磁壁伝導の生成・消滅を制御することを目的とした。これまで、我々はパルスレーザー堆積法を用いて世界で初めて成功したパイロクロア Ir 酸化物の単結晶薄膜の作製に成功した[4]。この薄膜作製技術を用いて、ヘテロ構造を作製し、磁壁制御を目指す。

### 3. 研究の方法

#### (1) 希土類組成による磁気ドメインの決定

$R_2Ir_2O_7$  薄膜を YSZ 基板上に成膜し、磁気輸送特性を測定する。一般的には、パイロクロア型 Ir 酸化物薄膜は作製が困難であり、報告がない。しかしながら、上述のように申請者らは近年、高品質な  $Eu_2Ir_2O_7$  単結晶薄膜の作製に成功した[4]。磁気輸送特性は通常観測されない線形項を持ち、その符号から図1の磁気ドメイン(Aドメイン、Bドメイン)の判別を行うことができる。この結果に基づき、同様の手法を用いて作製した  $R=Pr, Nd, Gd, Tb$  の薄膜に対して、A, Bドメインの安定化機構を探った。

#### (2) 走査型 SQUID 顕微鏡による磁気ドメインの観測

磁気ドメインの観測には走査型 SQUID 顕微鏡を用いた。All-in-all-out 磁気構造は反強磁性であるので、磁気モーメントを持たないが、歪などにより有限の磁気モーメントが発現すれば、AドメインとBドメインで逆のモーメントを出すため、磁気ドメインを可視化することが可能である。

#### (3) 磁壁の生成・消滅制御

以上の知見を元に、異なる  $R$ (希土類)を持つパイロクロア型 Ir 酸化物を用いて、ヘテロ接合を作製し、磁壁の生成・消滅を制御し、界面の伝導特性を測定する。

### 4. 研究成果

#### (1) 様々な希土類を含むパイロクロア型 Ir 酸化物薄膜の作製

上述の  $Eu_2Ir_2O_7$  薄膜の作製と同様にパルスレーザー堆積法を用いて、 $R=Nd, Gd, Tb$  のパイロクロア型 Ir 酸化物薄膜の作製を行った。成長条件の最適化を行うことで  $Eu_2Ir_2O_7$  薄膜と同様に薄膜の作製ができた。その中で、 $R=Eu$  と  $Tb$  に関して磁気抵抗を測定した結果を図2に示す。上述のように、 $Eu_2Ir_2O_7$  薄膜では磁場冷却することで磁気抵抗が磁場の正負で非対象となる線形成分を含む。この線形成分の符号は all-in-all-out のドメインを示しているため、冷却磁場の符号により安定化するドメインを固定できていることがわかる。一方、 $Tb_2Ir_2O_7$  薄膜では冷却磁場に寄らず、およそ  $\pm 8$  T 付近でヒステリシスを持つ反強磁性体に特徴的な磁気抵抗を描き、このヒステリシスの磁場で磁気ドメインが反転していると考えられる。これは、 $Eu^{3+}$  が非磁性であり、磁場に応答しないのに対し、

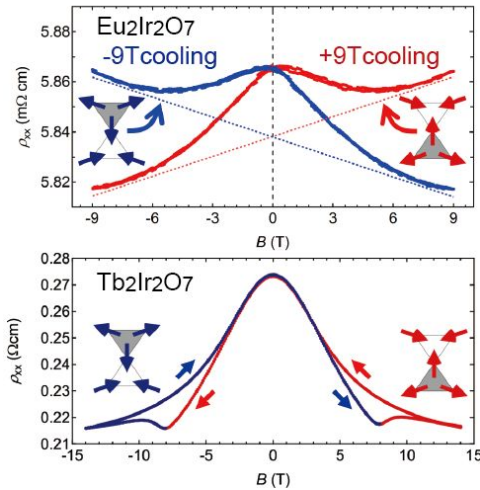


図 2 .  $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  薄膜 (上図) と  $\text{Tb}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  薄膜 (下図) の  $T=2\text{ K}$  における磁気抵抗の比較

$\text{Tb}^{3+}$  は  $J = 6$  という大きな磁気モーメントを持つため、磁場によって  $\text{Tb}$  の磁気ドメインが反転し、 $\text{Ir}$  スピンも交換相互作用を通じてドメインが反転するためである。

#### (2) 走査型 SQUID 顕微鏡による磁気ドメインの観測

磁場冷却によって、安定化する all-in-all-out 磁気ドメインを走査型 SQUID 顕微鏡によって可視化することを試みた。ゼロ磁場冷却後  $T = 4.7\text{ K}$  において測定をすると、ランダムな磁気ドメインが観測された (図 3 (a))。このドメインは A ドメインと B ドメインに相当すると考えられる。次に、温度を  $50\text{ K}$  に昇温後、永久磁石によってマイナス磁場 ( $-0.1\text{ T}$  程度) を試料に印加しながら冷却し、SQUID 顕微鏡測定を行った。その結果、磁場冷却をしたにもかかわらず、ドメインに変化はなかった。これは、 $\text{Tb}$  スピンの秩序は  $50\text{ K}$  ではほとんど消失しているが、 $\text{Ir}$  スピンはまだオーダーを保っているため、外部磁場より  $\text{Ir}$  からの交換相互作用が強く働き磁気ドメインが保たれていると考えられる。その確認として  $\text{Ir}$  スピンの秩序が消失する  $130\text{ K}$  まで昇温しプラス磁場中で冷却を行うと、測定磁場はほぼ一般的なマイナス磁場を示した。

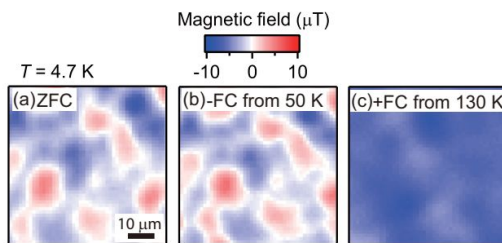


図 3 . (a) ゼロ磁場冷却後、(b)  $50\text{ K}$  よりマイナス磁場中冷却後、(c)  $130\text{ K}$  よりプラス磁場冷却後の SQUID 顕微鏡像。測定温度は  $4.7\text{ K}$ 、磁場は  $\text{NdFeB}$  永久磁石により  $0.1\text{ T}$  程度を印加した。

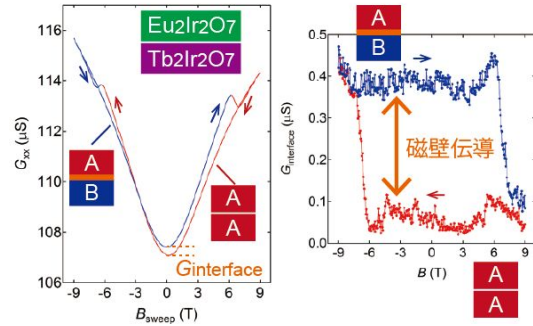


図 4 . 磁場  $9\text{ T}$  で冷却したときの  $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7/\text{Tb}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  ヘテロ構造の伝導性 (左図) とその磁壁伝導成分 (右図) の磁場依存性

よって、 $\text{Ir}$  の反強磁性転移点以上から弱磁場によって磁場中冷却を行うことで、片方の磁気ドメインを固定することができるが、SQUID 顕微鏡によって、可視化することに成功した。また、図 2 の磁気抵抗の結果から  $\text{Tb}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  は磁場によってドメインを反転することもできるため、 $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7/\text{Tb}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  ヘテロ構造を作製し、各々の層の磁気ドメインを独立に制御することで、その界面において磁壁の生成・消滅を制御することが可能である。

#### (3) 磁壁の生成・消滅制御

$\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7/\text{Tb}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  ヘテロ構造を単層膜と同様の手法で作製した。この試料を  $9\text{ T}$  の磁場で冷却し、磁気伝導度を  $2\text{ K}$  において測定した結果を図 4 に示す。まず磁気伝導度の 2 つの特徴として、 $6\text{ T}$  付近でのヒステリシスと正負磁場の非対称性が挙げられる。図 3 の単層膜のデータと比べるとヒステリシスは  $\text{Tb}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  に由来し、正負磁場の非対称性は  $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  に由来すると考えられ、ともに単層膜の性質を表している。もう一つの特徴として、ゼロ磁場における伝導度が磁場掃引方向によって異なることが顕著である (図 4 左図  $G_{\text{interface}}$  で示される部分)。この磁場掃引方向による伝導度の差を図 4 右図に示す。 $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  と  $\text{Tb}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  のドメインが異なる時のみ伝導度が上昇しており、ドメイン壁の伝導を示している。この結果は磁壁をヘテロ構造によって生成・消滅を制御した初めての成果である。

#### (4) 今後の展望

本研究では、パイロクロア  $\text{Ir}$  酸化物の反強磁性の磁壁における伝導層の制御を行ってきた。この磁壁伝導は理論ではこの物質群のトポロジカルなバンド構造に起因していると予想されている。このようなトポロジカルなバンドに起因する伝導ではスピンの向きによって電子の運動方向が異なるなど、スピントロニクスへの応用が期待できる。今後は磁壁伝導層のトポロジカルな性質を明らかにしていくことが必要である。

<引用文献>

- [1] Y. Yamaji and M. Imada, Phys. Rev. X **4**, 021035 (2014).  
[2] Y. Yamaji and M. Imada, Phys. Rev. B **93**, 195146 (2016).  
[3] E. Y. Ma, Y.-T. Cui, K. Ueda, S. Tang, K. Chen, N. Tamura, P. M. Wu, J. Fujioka, Y. Tokura, and Z.-X. Shen, Science **350**, 538 (2015).  
[4] T. C. Fujita, Y. Kozuka, M. Uchida, A. Tsukazaki, T. Arima, and M. Kawasaki, Sci. Rep. **5**, 9711 (2015).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計4件)

- T. C. Fujita, Y. Kozuka, J. Matsuno, M. Uchida, A. Tsukazaki, T. Arima, M. Kawasaki, All-in-all-out magnetic domain inversion in  $Tb_2Ir_2O_7$  with molecular fields antiparallel to external fields, Phys. Rev. Mater., 査読有、Vol. 2, 2018, pp. 011402(R)-1-5  
Y. Kozuka, T. C. Fujita, M. Uchida, T. Nojima, A. Tsukazaki, J. Matsuno, T. Arima, M. Kawasaki, Visualizing ferroic domains in an all-in-all-out antiferromagnet thin film, Phys. Rev. B, 査読有、Vol. 96, 2017, pp. 224417-1-5  
T. C. Fujita, M. Uchida, Y. Kozuka, W. Sano, A. Tsukazaki, T. Arima, M. Kawasaki, All-in-all-out magnetic domain wall conduction in pyrochlore iridate heterointerface, Phys. Rev. B, 査読有、Vol. 93, 2016, pp. 064419-1-6  
T. C. Fujita, M. Uchida, Y. Kozuka, S. Ogawa, A. Tsukazaki, T. Arima, M. Kawasaki, All-in-all-out magnetic domain size in pyrochlore iridate thin films as probed by local magnetotransport, Appl. Phys. Lett., 査読有、Vol. 108, 2016, pp. 022402-1-5

[学会発表](計4件)

- 小塚裕介, 藤田貴啓, 打田正輝, 野島勉, 塚崎敦, 松野丈夫, 有馬孝尚, 川崎雅司, 走査型 SQUID 顕微鏡を用いた  $Tb_2Ir_2O_7$  薄膜の all-in-all-out 反強磁性ドメインの可視化、第 78 回応用物理学会 秋季学術講演会、福岡市、2017 年 9 月 5 日-8 日  
藤田貴啓, 小塚裕介, 松野丈夫, 打田正輝, 塚崎敦, 有馬孝尚, 川崎雅司、磁気抵抗による  $Tb_2Ir_2O_7$  薄膜の all-in-all-out 反強磁性ドメインのプロブ、第 78 回応用物理学会 秋季学術講演会、福岡市、2017 年 9 月 5 日-8 日  
Y. Kozuka, T. C. Fujita, M. Uchida, T.

Nojima, A. Tsukazaki, J. Matsuno, T. Arima, M. Kawasaki, Visualizing ferroic domains of all-in-all-out antiferromagnet in a pyrochlore iridate thin film, 2016 MRS Fall Meeting, Boston(USA), November 27-December 2

T. C. Fujita, M. Uchida, Y. Kozuka, W. Sano, A. Tsukazaki, T. Arima, M. Kawasaki, Metallic domain wall at all-in-all-out pyrochlore iridate heterointerface, 23rd International Workshop on Oxide Electronics, Nanjing(China), October 12-14

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小塚 裕介 (KOZUKA Yusuke)

東京大学・大学院工学系研究科・講師

研究者番号： 70580372