

博士論文（要約）

Magnetic domain control and  
magnetotransport phenomena  
in pyrochlore iridate thin films and  
heterostructures

(パイロクロア型イリジウム酸化物薄膜・ヘテロ界面における  
磁気ドメイン制御と磁気輸送現象)

藤田 貴啓

## 背景と目的

相対論的量子力学に起因するスピン軌道相互作用は、固体中の量子力学的な素励起が持つ位相（ベリー位相）と結びつき、トポロジカル電子相と呼ばれる非自明なバンド構造をもった電子状態を誘起することから、凝縮系物理学の背景にある概念として精力的な研究が行われている。遷移金属酸化物においては、電子相関の効果によるモット転移等の多体効果が古くから研究されてきた。近年イリジウム酸化物は、 $5d$ 遷移金属であるイリジウムに由来する強いスピン軌道相互作用が、電子相関や結晶場分裂と同程度のエネルギースケールを持ち、その結果としてスピン軌道相互作用モット絶縁体と呼ばれる電子相を持つことが明らかになってきている。特に希土類元素とイリジウムから成るパイロクロア型イリジウム酸化物においては、結晶構造に由来してall-in-all-out構造と呼ばれる反強磁性磁気秩序が生じ、その時間反転対称性の破れに起因したワイル半金属相と呼ばれるトポロジカル電子相や磁気ドメイン壁伝導状態の出現が報告されている。それらの新規トポロジカル電子相は、本物質系に固有の磁気ドメイン構造と強く結びついており、電子相制御の手法開拓が望まれる。本博士論文では、パイロクロア型イリジウム酸化物を薄膜・ヘテロ界面化することで、all-in-all-out磁気構造に内在するドメイン構造を制御し、それらが誘起する新規輸送現象の観測と機構解明を目的として研究を行った。

## I. $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ におけるall-in-all-out反強磁性秩序起源の線形磁気抵抗効果

パイロクロア型イリジウム酸化物 $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ において、all-in-all-out磁気構造への反強磁性転移温度 $T_N$ 以下の温度領域で、磁場に対して奇関数的な依存性を持った線形磁気抵抗が生じることを明らかにした。線形磁気抵抗の磁場に対する係数は冷却磁場に対して反対称的な依存性を示すことから、線形磁気抵抗がall-in-all-out磁気構造に内在する2種類のドメイン構造に由来していることが示唆された。また、all-in-all-out磁気構造に特徴的な非線形帯磁率が各ドメインで異なることを利用して、冷却磁場に応じて磁気ドメインを制御可能であることを明らかにした。さらに、非磁性である $\text{Eu}^{3+}$ の特徴を反映して、一度磁場冷却によって固定された磁気ドメイン構造は掃引磁場に対して安定であることを示した。

## II. パイロクロア型イリジウム酸化物薄膜におけるall-in-all-out反強磁性磁気ドメインの局所観測

$\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ 薄膜において、無磁場冷却下で自発的に形成されるall-in-all-out磁気ドメインサイズ等に関する理解を深めた。薄膜上に微細加工技術を用いて数マイクロメートルスケールの微小な電気測定チャンネルを作製し、I.の線形磁気抵抗効果を利用して磁気輸送測定による磁気ドメインの検出を行った。モデル計算との比較から、直径数マイクロメートル程度のドメインを形成していることが示唆された。

### III. Tb<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>におけるall-in-all-out反強磁性磁気ドメインの掃引磁場反転

Tb<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>薄膜において、磁場掃引による磁気ドメインの反転に起因する特徴的なヒステリシス構造を伴った磁気抵抗を観測した。ドメイン反転はTb<sup>3+</sup>の磁気副格子がall-in-all-out反強磁性秩序を取ると考えられる低温度領域のみで生じており、Tb<sup>3+</sup>の持つイジング型の強い磁気異方性が起源であることを強く示唆する。同様に大きな磁気モーメントを持ちながら、ハイゼンベルク型で磁気異方性のないGd<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>薄膜においては、こうした振る舞いが見られなかったことから、Aサイトの希土類イオンの磁気異方性が本物質系の磁場応答に本質的に関与していることを明らかにした。

### IV. パイロクロア型イリジウム酸化物ヘテロ界面におけるall-in-all-out磁気ドメイン壁の制御とドメイン壁伝導状態の観測

磁場掃引に対して異なる応答性を持ったパイロクロア型イリジウム酸化物のヘテロ界面試料において磁気ドメイン状態を制御し、ヘテロ界面に誘起されたドメイン壁伝導状態を観測した。界面伝導度はEu<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>/Tb<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>界面では数十ケルビン以下において減衰する傾向を示し、伝導キャリアの局在化を示唆した。一方、Eu<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>/Nd<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>界面においては、数百ミリケルビンの低温に至るまで金属的な温度依存性を示した。Nd<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>と比較してTb<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>は電子相関の影響が強く、モット絶縁体的な基底状態を取る傾向にあるため、界面伝導状態がヘテロ界面を構成する各層の電子相を反映している可能性が示唆された。

### 結論

パイロクロア型イリジウム酸化物において、all-in-all-out型の反強磁性秩序に起因した、磁場に対して奇関数的な依存性を持った線形磁気抵抗を初めて観測し、その起源が時間反転対称性の破れた磁気ドメイン構造にあることを解明した。さらに、パイロクロア格子のAサイトに含まれる希土類イオンの磁気異方性を反映し、外部掃引磁場によって磁気ドメインの反転が引き起こされることを明らかにするとともに、線形磁気抵抗による磁気ドメイン決定の可能性を見出した。

ヘテロ界面試料における磁気輸送特性研究では、各層の磁気ドメイン状態を独立に制御することで磁気ドメイン壁伝導状態をヘテロ界面に誘起することに成功し、また各層の電子相と電気伝導性との関連性に対する知見を得た

総じて、パイロクロア型イリジウム酸化物において、その単結晶薄膜化を行い、時間反転対称性の破れたall-in-all-out型反強磁性秩序に由来する磁気輸送現象を観測するとともに、その磁気ドメイン壁界面に現れる新規な伝導相の制御方法を開拓した。