

博士論文（要約）

$\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ における磁壁の物性

(Physical properties of magnetic domain walls in $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$)

廣瀬 陽代

Hishiro T. Hirose

強い電子相関と強いスピン軌道相互作用の共存する電子系では、これまでにない新奇な電子相とそれにとまなう新しい物性の発現が期待される[1]。パイロクロア酸化物の $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ はその一つである。この物質は $T_{\text{MI}} = T_{\text{N}} \sim 227 \text{ K}$ の温度で金属絶縁体転移と共に反強磁性秩序を示す[2]。主に Os の $5d^3$ に由来する遍歴電子が高温では半金属的なバンドを構成し、反強磁性秩序の形成に伴いギャップを生じる。この反強磁性秩序は、パイロクロア格子上的 Os の磁気モーメントが四面体ごとに全て内側/外側を向いた all-in/all-out (AIAO) 型の秩序であり、空間反転対称性を保つという特徴を有する。

$\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の物性では次の3つが謎として残されていた。1つ目は絶縁体相の低温においても絶縁性が低いことである。 T_{MI} 以下の温度では 80 meV のバンドギャップの存在が光学伝導度の測定から確認されているが[4]、最低温の電気抵抗率は 1–100 Ωcm と極めて低い[3]。2つ目は弱強磁性の起源である。AIAO 秩序では、弱強磁性の最も一般的な起源である傾角反強磁性の発現が対称性から禁止されている。それに関わらず、反強磁性秩序相が弱強磁性を伴うことが報告されている[3]。3つ目は大きな試料依存性である。単結晶の試料においても、電気抵抗率の温度依存性や弱強磁性の大きさが結晶ごとに大きく異なることが報告されている[3]。

これらの性質の起源として、磁壁の関与が考えられる[3]。AIAO 秩序では、お互いに時間反転対称の関係にある2種類の秩序、AIAO と all-out/all-in (AOAI) からなるドメイン構造が形成される。このドメイン構造の存在は、2種類のドメインを区別できる磁気二色性共鳴 X 線回折の手法により実験的にも確認されている[5]。一般に、自発磁化をもたない反強磁性体ではエネルギー的に不安定な磁壁は消滅する傾向にあるが、結晶の欠陥によりトラップされた磁壁は低温まで残留しうる。磁壁ではドメインの内部とは異なる磁気構造が局所的に形成されることが知られている[6]。したがって、磁壁はドメインの内部とは異なる物性を示す可能性を秘めており[7]、上記の物性の謎への関与が予想される。

注目すべき関連物質に、パイロクロア酸化物の $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ がある。この物質では、反強磁性秩序のドメインの内部が絶縁的な低温において、磁壁だけが金属的な伝導を示すことが報告されている[8,9]。その理論的な解釈は完全には確立していないものの、バルクの Weyl 半金属状態と関連してトポロジカルに保護された金属状態が磁壁に生じている可能性が指摘されている[10]。この物質の物性は、金属絶縁体転移と同時に AIAO 型の反強磁性秩序を示すという点で、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ と大いに類似している。 $\text{Ir}^{4+}(5d^5)$ と $\text{Os}^{5+}(5d^3)$ の $5d$ 電子数の違いから、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ と $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の電子状態は大きく異なる。

るものの[11,12]、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の磁壁が $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ と同様に金属的な伝導を示す可能性も予想される。

このような $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ における物性の謎と、磁壁における物性の可能性、および類縁物質の磁壁における伝導性の発見に基づき、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の磁壁が磁性や伝導性を有する可能性について検証し、その特性を明らかにすることを本研究の目的とした。具体的な研究手法として、化学輸送法により育成した $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の単結晶試料を用いて、詳細な基礎物性の測定を様々な冷却条件の下で行った。AIAO型の反強磁性秩序では、磁場の方向に対して非対称な磁化成分や奇対称な磁歪成分が存在し、その符号がドメインによって異なることが指摘されている[13]。そのため、例えばゼロ磁場冷却（ZFC）と磁場中冷却（FC）ではドメイン構造や磁壁の分布が異なることが実際に確かめられている[5]。このような異なる冷却条件の下で磁壁の分布や密度などが異なる状態を用意し、その物性を比較することで、磁壁の物性について議論することができる。また、磁壁の物性を直接測定するために、マイクロな単結晶を用いて1枚の磁壁のみを測定するというアプローチも行った。このような研究の結果、次のことを明らかにすることに成功した。

1. 磁壁の磁気特性：AIAO秩序の弱強磁性が非常に強固な性質をもち、磁壁に由来していることを明らかにした。具体的には、まず、単結晶試料で精密に測定した磁化の解析から、弱強磁性のモーメントが $T < 0.9T_N$ の温度では $\pm 7\text{ T}$ の磁場スイープに対して全く変化を示さず、強固に振る舞うことを発見した。次に、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ に存在する強いイジング異方性[14]に基づいて、磁壁に形成される局所的な磁気構造とその面方位として、2-in/2-out型の $\{001\}$ 方位、および3-in/1-out型の $\{110\}$ 方位と $\{111\}$ 方位の3種類が安定であることを導いた。この内、 $\{001\}$ 方位の磁壁では、面に対して垂直な方向に非補償な磁化が存在し、この磁化が小さな磁場では反転しない強固な振舞いを示すと考えられる。そのため、この $\{001\}$ 方位の磁壁が強固な弱強磁性の起源であると考えられる。一方、 $\{110\}$ 方位と $\{111\}$ 方位の磁壁にも非補償な磁化が存在し、これは強固には振る舞わず、擬フリースピンの振る舞うと考えられる。実際に、これに対応していると考えられるフリースピンの磁化が低温で観察されており、これらの磁壁もまた実際に形成されていると考えられる。これら3種類の磁壁が共存しうるのは、イジングモデルに基づいたドメイン構造のシミュレーションにより確認された。シミュレートされたドメイン構造は、実験的に観察されたドメイン構造[5]の特徴をよく再現しており、イジングモデルに基づく磁壁についての考察や磁壁による弱強磁性の理解が妥当であることが確認された。

2. 磁壁の伝導特性：磁壁が電気伝導性を示し、磁壁の弱強磁性と共存していることを明らかにした。具体的には、まず、低温の電気抵抗率が ZFC と FC で異なることを発見した。ZFC と FC では磁壁の分布や密度が異なるため、磁壁の配置が伝導性に影響していることが導かれる。さらに、絶縁体相の磁気抵抗が、FC 時の冷却磁場の方向に依存して変化することを見出した。この磁気抵抗の振舞いは、磁壁における強固な弱強磁性の偏極状態と対応していることが磁気異方性の測定から確認された。これらの結果から、絶縁的なバルクの中に存在する磁壁において強固な強磁性と金属的な伝導性が共存しており、両者の相互作用が特異な磁気抵抗の起源であることを明らかにした。

3. 単一磁壁の測定：マイクロな単結晶を用いることで、1 枚の磁壁のみを測定することが可能であり、磁壁の電子が 2 次的に伝導することを明らかにした。ドメイン構造を観察した先行研究[5]において、電流をかけながら T_N をまたいで冷却した際に磁壁が電極をつなぐ位置に形成される現象が確認されていた[15]。この現象に基づいて、集束イオンビーム加工装置を用いてドメインの平均サイズより小さな $32 \times 24 \times 4 \text{ }\mu\text{m}^3$ の平板を大きな結晶から削り出し、同様の電流下冷却を試みた。その結果、横磁気抵抗の磁気異方性に 2 次元伝導的な振舞いを検出した。この振舞いの磁気異方性は磁壁の方位を反映しており、平らな磁壁が試料中に 1 種類しか形成されていないことを示していた。また、再現性の検証から、この手法が 1 枚の磁壁を測定する方法として有効であることが示された。この方法は、磁壁伝導における量子振動などの更に詳しい物性を今後測定する上で重要なものである。

これらの発見に基づいて、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の磁壁の伝導性が Weyl 半金属相に関係している可能性を検証したが、この可能性を肯定する結果は得られていない。そのため、磁壁の伝導性の起源を明らかにするためのより詳しい研究が今後さらに求められる。また、磁壁におけるこれらの物性の発見は、ドメイン壁の物性を応用する新しい技術の発展を後押しするものであり、関連する物質や物性の探索を強く刺激するものである。

[1] W. W.-Krempa *et al.*, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **5**, 57 (2014).
[2] J. Yamaura *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 247205 (2012).
[3] Z. Hiroi *et al.*, *APL Mater.* **3**, 041501 (2015).
[4] C. H. Sohn *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 266402 (2015).
[5] S. Tardif *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 147205 (2015).
[6] C. Mitsumata and A. Sakuma, *IEEE Trans. Mag.* **47**, 3501 (2011).
[7] G. Catalan *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 119 (2012).
[8] E. Y. Ma *et al.*, *Science* **350**, 538 (2015).

[9] K. Ueda *et al.*, *Phys. Rev. B* **89**, 05127 (2014).
[10] Y. Yamaji and M. Imada, *Phys. Rev. X* **4**, 021035 (2014).
[11] X. Wan *et al.*, *Phys. Rev. B* **83**, 205101 (2011).
[12] H. Shinaoka *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 247204 (2012).
[13] T. Arima, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 013705 (2013).
[14] N. A. Bogdanov *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 127206 (2013).
[15] S. Tardif *et al.*, *JPS ann. meeting* 28pCE-9 (2014).