



反強磁性体の磁壁における強固な強磁性と電気伝導性の発見

1. 発表者：

廣瀬 陽代（東京大学新領域創成科学研究科物質系専攻 博士3年）

山浦 淳一（東京工業大学元素戦略研究センター 准教授）

廣井 善二（東京大学物性研究所 教授）

2. 発表のポイント：

- ◆ パイロクロア型オスミウム酸化物の反強磁性秩序に形成される磁壁において、外部磁場に対して非常に強固に振る舞う強磁性が生じていることを明らかにした。
- ◆ この磁壁が同時に金属的な電気伝導性を有し、強固な強磁性と結合した特異な磁気伝導現象を示すことを発見した。
- ◆ 反強磁性秩序の磁壁を利用した新しい原理に基づく微小デバイスの実現が期待される。

3. 発表概要：

遷移金属酸化物では、電子のもつスピンや電子間に働く強い相互作用に由来して多彩な物性が現れます。今回、東京大学物性研究所の廣瀬陽代氏と廣井善二教授、東京工業大学の山浦淳一准教授の研究グループが注目したパイロクロア型オスミウム酸化物は、約 228K 以下の低温で金属から絶縁体に変化し、この時、止まった電子の磁気モーメントが互いに打ち消し合って並ぶ反強磁性秩序を形成することが知られていました。この反強磁性秩序に付随して非常に小さな強磁性成分が現れること、および、絶縁体に転移した後でもある程度の電気伝導性を保つことが謎として残されていました。

今回、同研究グループは、良質な単結晶試料を用いて磁化と電気抵抗率の振る舞いを詳細に調べました。その結果、強磁性成分が結晶全体に均一に存在するのではなく、原子オーダーの厚みを持つ磁壁にのみ生じていることを発見し、さらに、この強磁性成分が強い外部磁場の下でも反転しない非常に強固な性質をもつことを示しました。また、この磁壁が同時に金属的な電気伝導性を有することを見出し、強固な強磁性と電気伝導性の共存により通常では有り得ない特異な磁気抵抗現象が現れることを示しました。このような磁壁の性質を応用すれば、その強固な磁化を用いて情報を安定に記録し、これを電氣的に読み取ることでできる微小なメモリーデバイスなどを実現できる可能性があります。以上の結果は、「ドメインウォール・ナノエレクトロニクス」分野の発展に大きな寄与をすると期待されます。本研究は、英国科学誌「Scientific Reports」で公開されます（2月14日（火）オンライン版掲載）。

4. 発表内容：

【研究背景】

電子間の強いクーロン相互作用により多様な物性を示す遷移金属酸化物は、機能性材料として様々な応用に用いられています。さらに応用の幅を広げるためには、これまでに知られていない新しい物性を開拓することが必要です。新規な物性はしばしば長い間未解決な問題として残されている現象の背後に期待されます。

本研究グループが注目したパイロクロア酸化物 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の物性には、そのような謎がいくつか残されていました。この物質の結晶構造では、パイロクロア格子と呼ばれる四面体が頂点を共有して連なったネットワーク上に Os 原子が並んでいます（図 1 a）。Os の 5d 電子は

高温で動き回って金属伝導性を示しますが、約 228K 以下の低温で完全に止まって絶縁体となります。この時、Os 原子上に局在したスピンの四面体ごとに全て内側または全て外側を向き、スピンの磁気モーメントを全体で打ち消しあう all-in/all-out 型と呼ばれる反強磁性秩序 (図 1 a) を形成します。この反強磁性相では、磁気モーメントが全て打ち消し合っているにも関わらず、小さな強磁性成分が現れることが謎とされていました。また、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ は、絶縁体状態においてもかなり低い電気抵抗率を示し、この原因もまた謎とされてきました。

近年、磁気二色性共鳴 X 線回折実験により、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の反強磁性秩序では、互いにスピンを反転させた関係にある 2 種類の磁気ドメイン (注 1) からなる微細構造の存在が確認されました。ドメイン構造を形成する物質では、ドメインを隔てるドメイン壁においてドメイン内部とは異なる物性が現れる例が多数報告されています。そのため、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の物性の謎に磁気ドメイン構造の磁壁 (注 2) が関わっている可能性が示唆されていました。

【研究内容】

本研究グループは、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ の単結晶を育成し、磁場中における磁化と電気抵抗率を高精度に測定しました。その結果、反強磁性秩序と同時に現れる弱い強磁性成分が、高温から反強磁性転移温度をまたいで冷却する際の冷却磁場に対しては敏感に応答する一方で、反強磁性転移温度より十分低い温度では±7 テスラという強い外部磁場の下でも全く変化しないことを見出しました (図 1 b)。このような強固な振る舞いから、この強磁性が結晶全体で均一に生じているのではなく、Os 原子 1~2 層分の非常に薄い磁壁 (図 1 c) における強磁性的なスピン配列から生じていることが導かれます。

一方、電気抵抗率の値をゼロ磁場冷却と磁場中冷却で比較した結果、後者の方がより高い値になることが分かりました。All-in/all-out 型の反強磁性秩序では、磁場中冷却を行うことで磁気ドメイン構造の形成がある程度抑制され、磁壁の密度が減少します。したがって、この結果は絶縁体的な結晶中に形成された磁壁が伝導性を有し、磁場中冷却では磁壁の形成が抑制されたために電気抵抗率が増加したことを示唆しています。さらに、磁場中冷却後の 2K における磁気抵抗率の磁場依存性に、通常の偶関数的な成分に加えて、冷却磁場の向きにより符号の反転する奇関数成分が現れることが分かりました (図 3)。これは冷却磁場の方向に偏極した磁壁の強固な強磁性成分に由来するものと考えられます。以上の結果から、磁場に対して強固な強磁性成分と電気伝導性が磁壁に共存していることが明らかとなりました。

【本研究の意義、今後の展望】

従来のメモリーデバイスは強磁性や強誘電性などのバルクの性質を利用しているため、デバイスの微小化には限界があります。これに対して、近年、これらの秩序状態に生じる原子サイズのドメイン壁を情報メディアとして利用し、新しい機構に基づくデバイス開発を目指す「ドメインウォール・ナノエレクトロニクス」が注目されています。本研究はこれまでほとんど研究されてこなかった反強磁性秩序の磁壁が有用な性質を示すことを初めて明らかにしました。例えば、磁壁の強固な磁化を用いて情報を記録し、電気伝導性により情報を読み取るという微小なメモリーデバイスなどを実現できる可能性があります。一方、学術的には、磁壁に生じる金属状態の起源が未だ明らかとなっておらず、その背後には新しい物理が潜んでいると思われます。今後、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ のみならずその他の物質においてドメイン壁の物性研究が進み、新たな物性研究が発展すると期待されます。

5. 発表雑誌：

雑誌名：「Scientific Reports」 (英国時間 2017 年 2 月 14 日にオンライン掲載)

論文タイトル：Robust ferromagnetism carried by antiferromagnetic domain walls

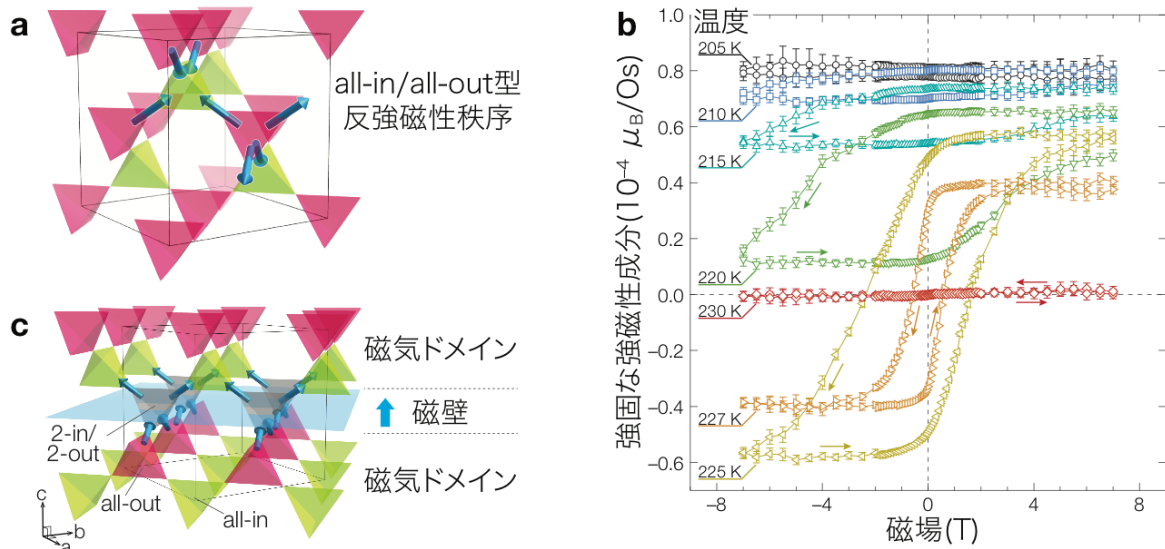
著者：Hishiro T. Hirose, Jun-ichi Yamaura, and Zenji Hiroi

6. 用語解説：

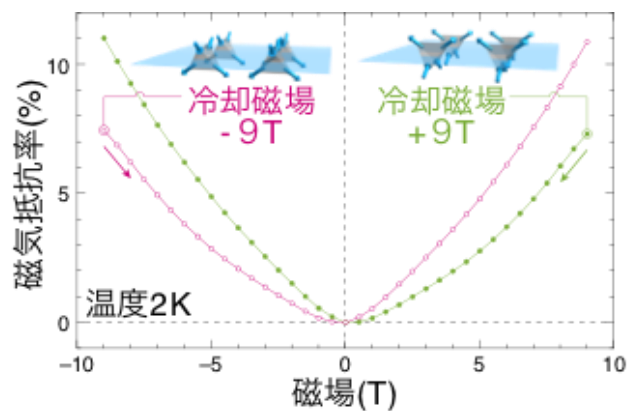
(注1) 磁気ドメイン：磁性体の磁気秩序において、磁気モーメントの向きが規則正しく並ぶ領域。

(注2) 磁壁：磁気モーメントの異なる配列をもつ磁気ドメイン同士を隔てる界面。磁壁では、対面する2つの磁気ドメインの配列を連続的につなぐような、ドメインの内部とは異なる磁気配列が形成される。

7. 添付資料



(図1) 反強磁性体 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ における磁壁の強磁性。(a) all-in/all-out 型の反強磁性秩序。Os 原子は各四面体の頂点にあり、矢印で示す磁気モーメントを有する。赤、緑の四面体では、それぞれ、全ての磁気モーメントが外、内を向いている。(b) 強固な強磁性成分の磁場依存性。205K 以下の温度では±7T の外部磁場に対して全く変化しないが、これより高温ではヒステリシスを示し、反強磁性秩序の転移温度である約 228K より高温では消失する。(c) 強固な強磁性成分の起源である磁壁の磁気配列。磁壁では2つの磁気モーメントが内を向き、2つが外を向く四面体が存在し、打ち消されない強磁性成分が誘起される。



(図2) プラスとマイナスの磁場中で冷却した後の温度 2K における磁気抵抗率の磁場依存性。冷却磁場の符号と共に反転する奇関数的な磁気抵抗成分が生じている。