

1. 氏名	藤田 貴啓
2. 所属機関	東京大学工学系研究科
3. 研究題目	量子磁性体酸化物ヘテロ界面における創発磁気輸送現象の検出

4. 研究の目的:

三角形や四面体を基調とした結晶構造を有する磁性体においては、磁氣的相互作用の結果、結晶格子に配置された磁氣的スピンの局所的なエネルギーを同時に最小化できない場合が往々にして生じる。このような系は幾何学的フラストレーション系として知られ、量子磁性体と呼ばれる新奇な凝縮系物理の舞台として盛んに研究されており、量子情報の分野においても応用が期待されている(図 1)。一方で、量子磁性体の多くは絶縁体であるため、電荷キャリアを情報担体とする現状の電子回路・エレクトロニクス技術との親和性が低い。

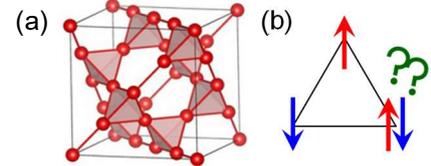


図 1:(a)典型的な幾何学的フラストレーション系であるパイロクロア格子。(b)三角格子における反強磁性磁気フラストレーション。

そこで本研究では、申請者および所属グループの培ってきた高品質酸化物薄膜作製技術を活かし、典型的な量子磁性体として知られるパイロクロア型酸化物($A_2B_2O_7$)と、電気伝導性のパイロクロア型酸化物とのヘテロ界面構造を作製することで、量子磁性体特有のスピンの構造や磁気転移を創発磁気輸送現象として電気的に検出することを目指した。

5. 研究の内容(手法、経過、評価など。書ききれない場合には、同一様式のページを追加してください。):

本研究では、「古典スピンアイス」として知られる典型的な量子磁性体である、 $Dy_2Ti_2O_7$ をヘテロ界面構造における磁性層として採用した。一方で導電層は、(i) $Dy_2Ti_2O_7$ との格子不整合度が小さい、(ii)非磁性かつ電気伝導性である、という条件を持つパイロクロア型酸化物である必要がある。これらを満たす物質は限られているが、その中でも本研究では $Bi_2Rh_2O_7$ を採用した。

薄膜・ヘテロ界面構造試料は、パルスレーザー堆積(PLD)法を用いて作製した。作製した試料は X 線回折測定によって結晶性の評価を行った。加えて、幾つかの試料に対しては透過電子顕微鏡を用いた断面像観察および元素マッピング測定を行い、薄膜表面・界面における結晶構造の評価や元素拡散の有無を確認した。物性評価としては、 $Dy_2Ti_2O_7$ 薄膜に対して最低温 2 K までの温度領域において、7 T までの磁場範囲で SQUID を用いた磁化測定を行った。電気輸送特性は、試料を 100 マイクロメートル程度の微小なホールバー形状に加工したうえで、最低温 2 K までの温度領域かつ 9 T までの磁場範囲で、試料の抵抗率およびその磁場依存性を測定した。加えて回転試料ステージを使用して、それらの磁場印加角度依存性も測定した。

磁性層である $Dy_2Ti_2O_7$ については、PLD 法による薄膜作製報告が既に存在しており、バルク単結晶試料と同様の磁氣的性質を示す高品質薄膜が得られた。一方で導電層である $Bi_2Rh_2O_7$ は、1970 年代にバルク多結晶を用いた先行研究が僅かに存在するのみであり、単結晶薄膜の作製条件を最適化するのにかなりの時間を要した。しかしながら、パイロクロア型構造を持つバッファー層の挿入や、高酸素雰囲気下での *ex-situ* アニールを用いた固相反応エピタキシー法の導入により、高品質な $Bi_2Rh_2O_7/Dy_2Ti_2O_7$ ヘテロ界面構造試料の作製に成功した。 $Bi_2Rh_2O_7/Dy_2Ti_2O_7$ 試料において、磁場の印加角度や温度を制御しながら電気磁気輸送測定を行う事で、 $Dy_2Ti_2O_7$ が有する特異な磁気構造に由来した「創発磁場」が、ヘテロ界面において $Bi_2Rh_2O_7$ に伝播し、トポロジカルホール効果という創発磁気輸送現象を発現する事を世界で初めて観測した。

6. 研究の成果と結論、今後の課題:

$Dy_2Ti_2O_7$ は古典スピナイスであり、6重縮退した 2-in-2-out 構造と呼ばれる基底状態から、[111]方向の磁場印加によって 1-in-3-out 構造と呼ばれる強磁性状態へと磁気転移する。これらはいずれも非共面と呼ばれる立体角を持つ磁気構造であり、伝導電子の波動関数と結びついて「創発磁場」として振舞う。更に興味深い点は、この磁気転移の前後で創発磁場の符号が変化することである。図 2 に $Bi_2Rh_2O_7/Dy_2Ti_2O_7$ 試料の電気磁気輸送測定の結果を示す。まず磁気抵抗の角度依存性に注目すると、磁気構造の切り替わりに対応する角度において、ピークが現れている。これは、この角度において磁気ドメイン境界におけるスピンの揺らぎとそれに伴う磁気抵抗が増大したことを示唆している。このピーク構造が高温において消滅することから、この角度依存磁気抵抗がスピナイス由来であることが裏付けられた。続いて低温における異常ホール効果に着目すると、低磁場領域における特徴的なピーク構造とそれに続く符号反転が観測された。これは創発磁場が磁気転移に伴って符号変化するという、上述した描像と合致しており、ヘテロ界面における創発磁場の伝播を観測した初めての例である。

本研究では、創発磁場の界面伝播をより明らかに示すために古典スピナイスである $Dy_2Ti_2O_7$ を使用した。今後の発展として、より量子性の高い「量子スピナイス」や「量子スピン液体」へと磁性層を展開していくことは基礎・応用物理の両面において興味深い。また今後の課題としては、本現象の決定因子および普遍性の検証が挙げられる。パイロクロア型酸化物においては、非磁性かつ電気伝導性を持つ物質に限られるため、本研究では *ex-situ* アニールを要する $Bi_2Rh_2O_7$ を用いざるを得なかった。このため導電層の膜厚制御が困難であり、創発磁場の界面における侵入長が決定出来なかった。加えて、界面の効果をより大きくするための極薄膜を作製する事が不可能であった。これらの問題を解決し、かつ創発磁場の界面伝播の普遍性を検証すべく、ペロブスカイト型と呼ばれる異なる結晶構造を持つ酸化物にも研究対象を拡大している。パイロクロア型酸化物と異なり、薄膜試料を用いたエレクトロニクス応用を指向した研究がペロブスカイト型酸化物では先行しており、また物質選択の幅も広い。したがって、*in-situ* 条件でより高精度に膜厚制御されたヘテロ界面構造作製が可能であり、本現象の更なる理解とデバイス応用に向けた進展が期待される。

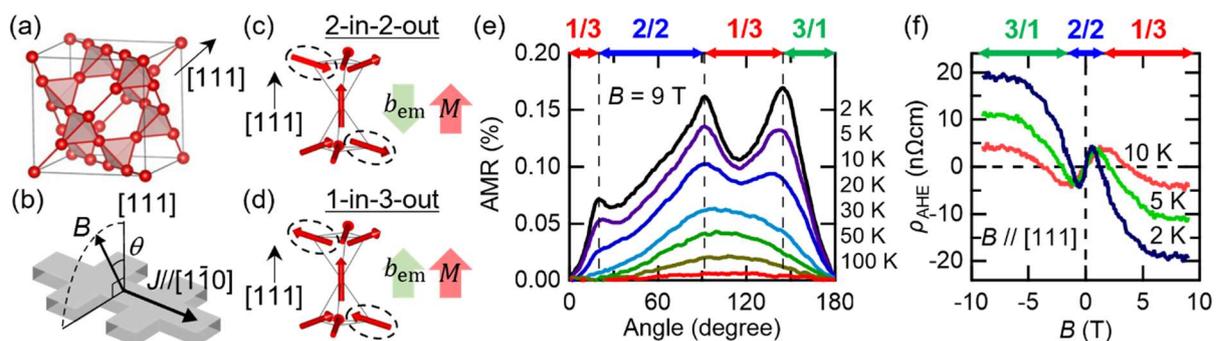


図 2: (a) パイロクロア型酸化物($A_2B_2O_7$)の A サイトの結晶構造。(b) 電気磁気輸送測定用ホールバー素子の概形図。 $Dy_2Ti_2O_7$ の Dy スピンが低温で取る非共面(c) 2-in-2-out スピン配置(2/2)と、[111]方向の正磁場で磁気転移した(d) 1-in-3-out スピン配置(1/3)。転移の前後において創発磁場(b_{em})と磁化(M)の相対方向が反転する。[111]方向に負磁場を印加すると、1/3 を全て反転した 3-in-1-out スピン配置(3/1)となる。(e) 図(b)の配置で 9 T の回転磁場下で測定した異方性磁気抵抗(AMR)比。低温では各スピン配置の境界で磁気散乱が増大し、ピークを示す。(f) 低温でのホール抵抗率。[111]方向の磁場が(c),(d)に示した磁気転移と創発磁場の反転を誘起し、1 T 付近でピークを示す。

7. 成果の価値

7.1_学術的価値:

物質中の特異な磁気構造が生み出す創発磁場に起因した「創発磁気輸送現象」の発現は、現在では広く認知されている一方で、従来の研究対象は単一の金属磁性体に集中していた。本研究の成果は、特異な磁気構造を持つ磁性絶縁体と非磁性金属という、機能分離されたヘテロ界面で創発磁場が伝播する事を明らかにしており、新たな種類の磁気近接効果を見出したという点で、学術的に極めて高い価値がある。

7.2_社会的価値:

創発磁場は、物質中の伝導電子に対して数 1000 テスラにも相当する磁気応答を生じさせるため、その巨大応答を利用した素子応用が期待されている。本研究で明らかになった創発磁場の界面伝播は、研究対象となり得る材料系を大きく拡大させることから、従来の単一材料系では不可能であった創発磁気輸送現象の高機能化へと繋がると期待される。また、量子磁性絶縁体中の磁気励起は擾乱に強いトポロジカル量子ビットとして扱えることが理論的に提案されており、本研究成果はその電気的検出手法としても期待できる。

7.3_研究成果:

・「研究論文(原著)」 全て申請者が責任著者

- [1] M. Ohno, **T. C. Fujita**, Y. Masutake, H. Kumigashira, and M. Kawasaki, “Novel supercell compounds of layered Bi–Rh–O with *p*-type metallic conduction materialized as a thin film form”, *APL Materials* **11**, 51107 (2023)
- [2] M. Ohno, **T. C. Fujita**, and M. Kawasaki, “Impact of iso-structural template layer on stabilizing pyrochlore $\text{Bi}_2\text{Rh}_2\text{O}_7$ ”, *Applied Physics Letters* **122**, 251601 (2023)
- [3] M. Ohno, **T. C. Fujita (equal contribution)**, and M. Kawasaki, “Proximity effect of emergent field from spin ice in an oxide heterostructure”, *Science Advances* **10**, eadk6308 (2024) 【別刷り添付】

・「国際会議発表」

- [1] M. Ohno, **T. C. Fujita**, Y. Masutake, H. Kumigashira, and M. Kawasaki, “Metallic Bi-Rh-O thin films with *p*-type conduction”, *APS March Meeting 2023*, Las Vegas, U.S.A., March 5–10 (2023)
- [2] M. Ohno, **T. C. Fujita**, and M. Kawasaki, “Epitaxially stabilized pyrochlore $\text{Bi}_2\text{Rh}_2\text{O}_7$ thin films by using iso-structural template layer”, *29th International Workshop on Oxide Electronics (iWOE29)*, Busan, Korea, October 15–18 (2023)
- [3] **T. C. Fujita**, M. Ohno, and M. Kawasaki, “Proximity effect of spin ice”, *29th International Workshop on Oxide Electronics (iWOE29)*, Busan, Korea, October 15–18 (2023)
- [4] **T. C. Fujita**, M. Ohno, and M. Kawasaki, “Epitaxially stabilized pyrochlore $\text{Bi}_2\text{Rh}_2\text{O}_7$ phase by using iso-structural $\text{Eu}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ template layer” *CEMS Symposium on Emergent Quantum Materials 2024*, Tokyo, Japan, February 20–22 (2024)
- [5] M. Ohno, **T. C. Fujita**, and M. Kawasaki, “Proximity effect of spin ice in pyrochlore oxide heterostructures”, *CEMS Symposium on Emergent Quantum Materials 2024*, Tokyo, Japan, February 20–22 (2024)
- [6] **T. C. Fujita**, “Proximity effect of emergent field from spin ice in epitaxial pyrochlore heterostructures” *APS March Meeting 2024*, Minneapolis, U.S.A., March 3–8 (2024) [招待]

・「マスコミ報道」

- [1] 東大プレスリリース「酸化物ヘテロ界面における創発磁場伝播の観測に成功 —創発磁気輸送現象の高機能化に道筋—」、<https://www.t.u-tokyo.ac.jp/press/pr2024-03-14-001>