

巨大磁気抵抗効果を示す酸化物トポロジカル物質の開発

平井 大悟郎*

Material Investigation on Oxide Topological Materials with Extremely Large Magnetoresistance

Daigorou HIRAI*

“Topological materials,” which have a special electronic structure with intersecting linear dispersion bands, are actively studied as promising next-generation electronic materials. However, since existing topological materials are unstable or contain toxic elements, there is a strong demand for development of topological materials with high chemical stability and free of toxic elements from the viewpoint of practical use. In this study, we investigated oxide topological materials with excellent chemical stability. We grew single crystals of transition metal dioxides (TMO_2 ; TM = tungsten, ruthenium, and iridium) and measured resistivity and Hall effect. Large magnetoresistances, which are not seen in ordinary materials, were observed in the three studied compounds. Furthermore, Hall measurements on tungsten dioxide revealed an extremely high hole mobility of $25,000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$. These results indicate that TMO_2 ; TM = tungsten, ruthenium, and iridium are topological materials. Given their compositional simplicity and excellent chemical stability, transition metal dioxides provide a promising arena for the development of topological materials for applications.

1. 研究背景

直線のバンドが交差する特殊な電子構造を持つ「トポロジカル物質」は、グラフェンのように超高移動度のキャリアや、磁場に対して大きな抵抗変化を示す超巨大磁気抵抗など特異な電子物性を示す。これらの性質から次世代のエレクトロニクス材料として期待され、盛んに研究されている。しかし、既存の代表的なトポロジカル物質物質である Na_3Bi [1] や Cd_3As_2 [2] などは大気不安定であったり毒性元素を含むため、実用の観点からは化学的安定性が高く、毒性元素を含まないトポロジカル物質の開発が強く求められている。

本研究では耐熱性、耐酸化性などの優れた化学的安定性を有する酸化物に着目しトポロジカル物質の開発を行った。特に、比較的単純な組成を持ち、理論的にトポロジカル物質であることが予想されている遷移金属二酸化物に着目した [3, 4]。すでに、二酸化ルテニウムは、我々のグループがトポロジカル物質に特徴的な特異な電子物性を見出している [5]。一方で、結晶構造や電子数の異なる他の遷移金属二酸化物については詳細な伝導性の報告も限られている。そこで、遷移金属二酸化物の系統的な物質合成を行い、トポロジカル物性の評価を行うことで酸化物トポロジカル物質の確立を目的とした。

2. 実験方法

化学気相輸送法を用いて遷移金属二酸化物（組成式 TMO_2 ; TM = タングステン、ルテニウム、イリジウム）の純良かつ大型な単結晶を育成した（図1）。二酸化ルテニウムおよび二酸化イリジウムは酸素気流中で結晶育成を行い、二酸化タングステンには輸送剤としてヨウ素を用いて育成を行った。育成した結晶は、単結晶 X 線回折実験によって過去の報告と同様の結晶構造を有することを確認した。二酸化ルテニウムおよび二酸化イリジウムはルチル型構造を、二酸化タングステンは遷移金属同士の結合により歪んだルチル構造を形成する。これらは α -酸化鉛型構造を有する二酸化ルテニウムとは異なる構造である。

育成した単結晶は、単結晶 X 線回折実験によって決定した結晶軸方位に基づいて形状を成型し、四端子法による抵抗測定と、五端子法によるホール効果の測定を 2-300 K の温度範囲、-9-9 T までの磁場範囲で行った。



二酸化イリジウム



二酸化ルテニウム



二酸化タングステン

図1 本研究で育成した遷移金属二酸化物の純良単結晶の写真。

2024年2月27日 受理

* 豊田理研スカラー

名古屋大学大学院工学研究科応用物理学専攻

3. 結果

図2 (a)に9 Tまでの様々な磁場中で測定した二酸化タングステンの抵抗率の温度依存性を示す。磁場を印加していない0 Tのデータでは、抵抗率は300 Kにおける $86 \mu\Omega \text{ cm}$ から、2 Kにおける $0.2 \mu\Omega \text{ cm}$ まで400倍以上減少している。低温での抵抗率は不純物による散乱によって決まるため、室温と比較して低温での抵抗率が大きく減少していることは、試料が極めて純良であることを示している。二酸化ルテニウムおよび二酸化イリジウムに対しても同様の測定を行い、試料が純良であることを確認した。磁場を印加すると、100 K以下の低温で抵抗率が急激に増加する振る舞いがみられ、2 Kにおいて9 Tの磁場印加で13,000%を超える超巨大磁気抵抗が観測された。

さらに、ホール効果の測定を行うことで図2 (b)のようにキャリア密度と移動度を求めた。この結果、二酸化タングステンでは電子とホール両方のキャリアがほぼ同じキャリア密度で電気伝導に関与しており、低温においてホールが $25,000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ の極めて高い移動度を持つことがわかった。この値は、既存のトポロジカル物質に匹敵する大きさで、二酸化タングステンがトポロジカル物質であることを強く示唆する結果である。

二酸化ルテニウムおよび二酸化イリジウムに対しても磁場中での抵抗率の温度依存性を測定したところ、2 Kにおいて9 Tの磁場印加で二酸化ルテニウムでは40,000%、二酸化イリジウムでは2,000%の超巨大磁気抵抗が観測された。いずれの物質も通常の物質では説明できないほど大きな磁気抵抗効果が観測され、トポロジカル物質であることが示唆されるが、二酸化ルテニウムと二酸化イリジウムではその大きさに20倍もの差があり、この差が何に起因するのか今後検証する必要がある。

4. まとめ

本研究では、理論的にトポロジカル物質であると予想されていた遷移金属二산화物、二酸化ルテニウム、二酸化イリジウム、二酸化タングステンの純良単結晶を育成し、電子輸送特性を詳細に測定することでトポロジカル物質であることを実験的に検証した。磁場中の抵抗率測定とホール測定の結果、3つの物質すべてで、通常の物質では見られないほどの大きな磁気抵抗効果が観測された。さらに、二酸化タングステンに対するホール測定の結果、ホールが $25,000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ の極めて高い移動度を持つことがわかった。以上から、すでにトポロジカル物質であることが検証されている二酸化ルテニウムを含めて、結晶構造や電子数の異なる複数の遷移金属二산화物がトポロジカル物質であることが明らかになった。組成の単純性と耐熱性、耐酸化性などの優れた化学的安定性を考えると、遷移金属二산화物は応用に向けたトポロジカル物質開発の有望な舞台となることが期待される。一方で、磁気抵抗効果の大きさは物質によって大きく異なっており、物質間の電子物性の差が、結晶構造や電子数などの違いに起因するのかをさらに検証していくことで、より高性能なトポロジカル物質の開発につながると期待される。

REFERENCES

- 1) Z. K. Liu, *et al.*, *Science*, **343** (2014) 864.
- 2) S. Borisenko, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **113** (2014) 027603.
- 3) Y. Sun, *et al.*, *Phys Rev B*, **95** (2017) 235104.
- 4) S.-S. Wang, *et al.*, *Nat. Commun.*, **8** (2017) 1844.
- 5) D. Hirai, *et al.*, *JPSJ*, **90** (2021) 094708.

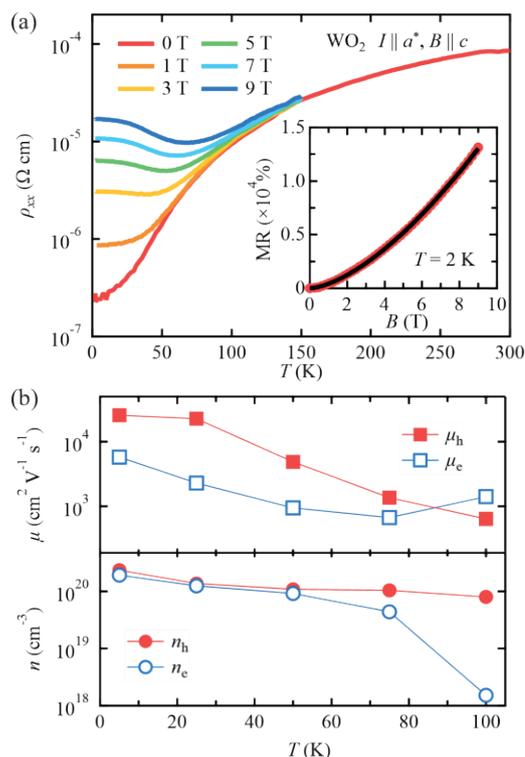


図2 (a) 二酸化タングステンの抵抗率の温度依存性の磁場変化。(b) ホール測定から求めた二酸化タングステンの電子およびホールのキャリア密度と移動度。