

エピタキシー技術による 界面創発磁気輸送現象の高機能化

藤 田 貴 啓*

Realization of High-functionality Interfacial Emergent Magnetotransport Phenomena through Epitaxial Techniques

Takahiro C. FUJITA*

In this study, we investigated emergent magnetotransport phenomena at heterointerfaces composed of orthorhombic perovskite oxides. We fabricated heterostructures combining a non-magnetic metal CaRuO_3 with an antiferromagnetic insulator DyFeO_3 using pulsed laser deposition on LSAT(001) substrates. Transport measurements on these heterostructures revealed distinctive magnetotransport properties at low temperatures, including enhanced negative magnetoresistance and nonlinear Hall resistivity, which are plausibly induced by magnetic proximity effect from DyFeO_3 . Our findings demonstrate that epitaxial growth techniques enable precise control of heterointerfaces, offering a powerful platform for exploring emergent magnetotransport phenomena through the functional separation of conductivity and magnetism.

1. 研究背景・本研究の目的

近年の物性物理学では、物質中の幾何学的（トポロジカル）な性質が誘起する新奇物性の探索が大きな潮流となっている。特に磁性の分野では、結晶構造と磁気相互作用との競合によって出現する特異なスピン構造が生み出す物性が注目を集めている。とりわけ、トポロジカルに非自明なスピン構造は、波数空間において電子が感じる量子力学的ベリー位相と結びついて「創発磁場」として振舞うことが明らかになってきた¹⁾。この創発磁場は、エネルギーの散逸を伴わない「創発磁気輸送現象」を誘起することから、超低電力消費のエレクトロニクス応用に向けて、国内外にて精力的に研究が進められている。金属間化合物磁性体はそうした研究の中心であり、代表例であるB20型遷移金属化合物²⁾や、 Gd_2PdSi_3 ³⁾等のカゴメ格子化合物では、トポロジカルに非自明なスピン構造であるスキルミオン由来の創発磁場に起因する巨大な「トポロジカルホール効果」の発現が報告されてきた。従来の研究対象である金属間化合物磁性体では、電気伝導性とトポロジカルに非自明なスピン構造が単一の物質中に両立されている。これらを機能分離した二種の薄膜のヘテロ界面を活用すれば、研究対象を大幅に拡張できる（図1(a)）。さらに、従来では不可能な伝導性と磁性の独立制御によって、新たな電子素子応用や、より系統的な創発磁気輸送現象の理解を得ることも可能になる⁴⁾。このような背景から本研究では、直方晶ペロブスカイト型酸化物（ ABO_3 ）を用いたヘテロ界面接合を対象に、「界面創発磁気輸送現象」を探索した。

2. 実験手法

非磁性金属である CaRuO_3 と磁性絶縁体である DyFeO_3 を具体的な研究対象とした。試料はパルスレーザー堆積（PLD）法を用いて、LSAT(001)面基板上に作製した。アブレーションには波長248 nmのKrFエキシマレーザーを使用し、繰り返し周波数は5 Hz、エネルギー密度は 2 J/cm^2 とした。ヘテロ接合試料は、 $\text{DyFeO}_3/\text{CaRuO}_3/\text{SrTiO}_3/\text{LSAT}$ の順で堆積して作製した（図1(b)）。 DyFeO_3 層の厚みを15 nmで固定し、 CaRuO_3 層の厚みを4, 8, 10 nmで変化させた。 SrTiO_3 層は CaRuO_3 層の表面平坦性を向上させるための緩衝層として約1 nm挿入している。本研究の条件で作製した SrTiO_3 は絶縁体であり、磁気輸送特性に影響しない事を確認している。基板温度 670°C 、 10^{-6} Torrの酸素分圧において SrTiO_3 層を堆積し、 2×10^{-2} Torrの酸素分圧で CaRuO_3 層と DyFeO_3 層を堆積した。その後、試料の酸素欠損を抑制するために、基板温度 600°C 、100 Torrの酸素雰囲気中で30分間のアニール処理を行った。ヘテロ接合試料の他に比較対照用として、厚さ12 nmの DyFeO_3 単一薄膜、厚さ4 nmの CaRuO_3 単一薄膜も作製した。作製した試料に対して、X線回折測定、原子間力顕微鏡、透過電子顕微鏡を用いて構造評価を行った。Quantum Design製の物性測定装置（PPMS）を用いて、2–300 Kの温度範囲で $\pm 9 \text{ T}$ の磁場を印加しつつ磁気輸送測定を行った。

2025年2月24日 受理

* 豊田理研スカラー

東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻

3. 結果と考察

DyFeO₃は、約 50 K のスピン転移温度以下では基底状態として創発磁場を持たない $A_xG_yC_z$ 型の反強磁性秩序を取る一方で、 c 軸方向の印加磁場によって創発磁場を持つ $G_xA_yF_z$ 型への転移を誘起できる．ゆえに、この創発磁場をホール効果で検出するには、DyFeO₃ の c 軸が面直 (LSAT[001]) 方向に成長することが求められる．図 1 (c) に DyFeO₃/CaRuO₃ (4 nm) ヘテロ接合試料の断面透過電子顕微鏡像を示す．ペロブスカイト型構造を持つヘテロ界面がエピタキシャル成長している．更に DyFeO₃ 層に対して電子線回折測定を実施したところ、その c 軸が LSAT 基板の [001], [010], [001] 方向を向いた 3 種類の結晶ドメインが観測され、この条件を満たすことが確認された．

図 1 (d) および図 1 (e) に DyFeO₃/CaRuO₃ (4 nm) ヘテロ接合試料の磁気輸送特性の測定結果を示す．低温になるにつれて、負の磁気抵抗効果が増大していき、ホール抵抗率が磁場に対して非線形な振舞を示した．特に 25 K や 2 K では、磁気抵抗に明瞭な変曲点が現れており、磁場誘起の磁気転移が生じている事を示唆している．更に特筆すべきことに、その変曲点近傍において、ホール抵抗率は急峻な変化を示している．このような変化は、磁化に比例する一般的な異常ホール効果では説明できないため、先述した DyFeO₃ の磁気転移に伴う創発磁場の誘起が、この特異な異常ホール効果の起源であると考えられる．このような特異な磁気輸送現象は、CaRuO₃ 層の厚みを増やすにつれて減衰したほか、CaRuO₃ 単一薄膜では観測されなかったことから、DyFeO₃ 層からの磁気近接効果であることが示された．また、CaRuO₃ 単一薄膜のホール係数から見積もると、伝導電子は約 30 T という巨大な有効磁場を感じていることが明らかになった．

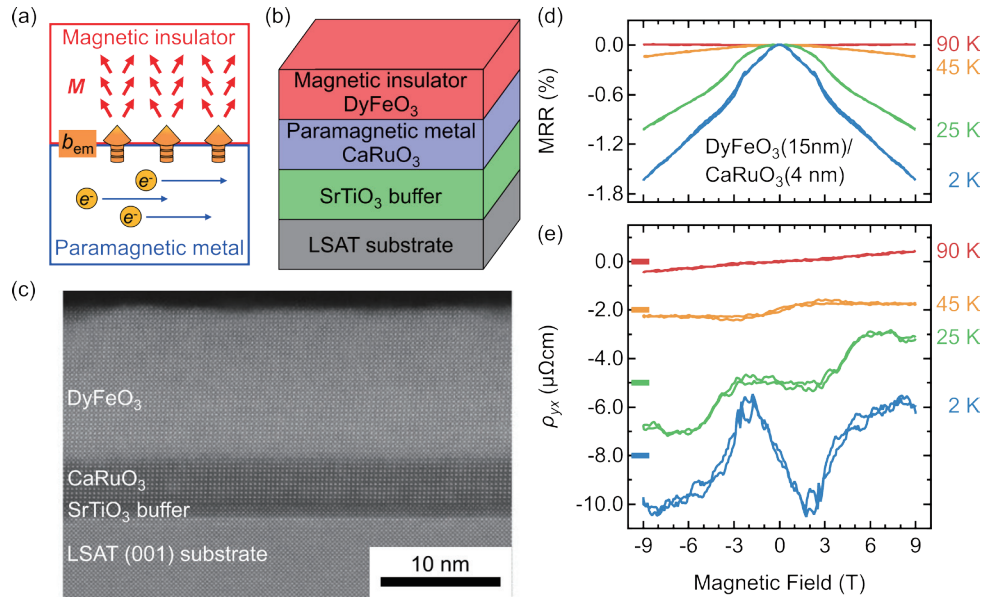


図 1 (a) 界面創発磁気輸送現象の模式図．(b) 本研究で作製したヘテロ接合構造の模式図．(c) ヘテロ接合構造試料の断面透過電子顕微鏡像．(d) DyFeO₃/CaRuO₃ (4 nm) ヘテロ接合試料の磁気抵抗率 (Magnetoresistance ratio : MRR) および (e) ホール抵抗率 (ρ_{yx}) の磁場依存性．ホール抵抗率のデータは縦方向にオフセットをかけてあり、原点は各データと同じ色の目盛で示している．

4. まとめと今後の展望

本研究ではCaRuO₃/DyFeO₃ヘテロ接合試料を対象に、DyFeO₃層の磁気転移とそれに伴う創発磁場の切り替わりを反映した、特異な界面磁気輸送現象の観測に成功した⁵⁾．この成功を契機として、他の直方晶ペロブスカイト型酸化物に対しても研究対象を拡大しており、今後の更なる発展が期待される．直方晶ペロブスカイト型酸化物は近年では、交替磁性を示す候補物質としても注目されており⁶⁾、酸化物ヘテロ界面はその観点からも新たな研究の舞台となると考えられる．

REFERENCES

- 1) Y. Tokura, M. Kawasaki and N. Nagaosa, *Nat. Phys.*, **13** (2017) 1056.
- 2) N. Kanazawa, S. Seki and Y. Tokura, *Adv. Mater.*, **25** (2017) 1603227.
- 3) T. Kurumaji, *et al.*, *Science*, **365** (2019) 914.
- 4) M. Ohno, T. C. Fujita and M. Kawasaki, *Sci. Adv.*, **10** (2024) eadk6308.
- 5) T. C. Fujita, K. Omura and M. Kawasaki, *Appl. Phys. Lett.*, **125** (2024) 011602.
- 6) M. Naka, Y. Motome and H. Seo, *npj Spintronics*, **3** (2024) 1.