

博士論文 (要約)

フラストレートした反強磁性体における
非共面スピン構造による磁気・輸送特性

(Magnetic and transport properties
due to non-coplanar spin structure
in frustrated antiferromagnets)

肥後 友也

フラストレートした反強磁性体における非共面スピン構造による磁気・輸送特性

(Magnetic and transport properties due to non-coplanar spin structure in frustrated antiferromagnets)

肥後 友也

1. 背景

幾何学的フラストレーションを有する磁性体では、基底状態が縮退することにより、スピン液体等の新奇な物理現象やハイゼンベルク型ハミルトニアン $-J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ では説明できない非共線・非共面スピン構造の発現が期待

され、精力的に研究が行われてきた。非共線・非共面スピン構造では、ベクトルスピカイラリティ $\kappa_{ij} \sim \mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$ やスカラースピカイラリティ $\chi_{ijk} \sim \mathbf{S}_i \cdot (\mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_k)$ といった複数のスピンによって構成される高次の自由度が有限となることが期待され、実際、電気磁気効果[1]やトポロジカルホール輸送現象[2]、カイラルスピン液体状態[3]などの振る舞いが、フラストレート格子を有する磁性体で観測されている。上記の振る舞いは、主に強磁性相関が主要な系において観測されてきたが、近年、 $5d$ 遷移金属パイロクロア酸化物 $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ [4-6]や $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ [7]、 $\text{Cd}_2\text{Os}_2\text{O}_7$ [8]において、頂点共有する正四面体上で実現する All-in/All-out (AIAO) 反強磁性秩序状態(図 1(b))が観測され、反強磁性体で実現する非共面スピン構造が注目を集めている。

AIAO 反強磁性秩序状態では、(111)面単層のみを考えると χ_{ijk} が有限となり、上述のようなエキゾチックな振る舞いが発現する可能性が有る。さらに、巨視的な八極子秩序とも考えられる特徴的なスピン構造故に、磁化はゼロとなることが期待される一方で、時間反転操作で交換できる 2 種のドメインが存在し、強磁性の場合と同様に多磁区状態となることが報告されている[9,10]。また、スピン軌道相互作用の強い Ir 系においては、トポロジカルに非自明な基底状態が実現する可能性が複数の理論計算によって示唆され [11-13]、実験においても $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ で起源不明な磁気モーメントの出現[4]が、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ では異常なドメイン間磁気伝導[14]が観測されており、その反強磁性磁気ドメインの詳細な機構解明が求められているが、モデル物質が少なく体系的な理解が進められていなかった。

そこで、我々は新たなモデル物質となりうるパイライト構造を有する $3d$ 遷移金属反強磁性体 NiS_2 [15-17]と MnTe_2 [18-20]に着目し、研究を行った。 NiS_2 (MnTe_2)では、 $S = 1$ ($5/2$)の磁性イオン Ni^{2+} (Mn^{2+})がフラストレート格子である面心立方格子に配列し、 $30 \text{ K} < T \leq 38 \text{ K}$ ($T \leq \sim 87 \text{ K}$)において図 1(a)に示した 3Q 構造が実現する。3Q 構造は辺共有した四面体上で実現する AIAO 構造と考えることが出来、AIAO 構造と同様に巨視的な八極子秩序状態である為に、磁化がゼロの反強磁秩序であるにもかかわらず、マクロに時間反転対称性が破れた状態が期待されるスピン構造である。

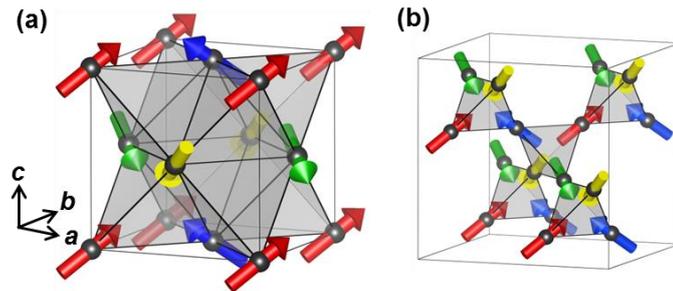


図1 (a)3Qスピン構造. (b)AIAOスピン構造.

2. 目的・手段

系が磁化を持たない反強磁性秩序であるにも関わらず、巨視的に時間反転対称性を破る 3Q 構造を有する NiS₂ と MnTe₂ の純良単結晶試料を用いて磁化や輸送特性測定等を行うことで、反強磁性非共面スピン構造固有の磁性や輸送特性を明らかにする。

3. 結果・考察

3-1. NiS₂ の磁性:

NiS₂ では 3Q 構造が $30 \text{ K} < T \leq T_{N1} = 38 \text{ K}$ で現れ、 $T \leq T_{N2} = 30 \text{ K}$ では 3Q 構造が [100] へ微小にキャントし弱強磁性(WF)が現れる事が報告されている[17,21]。

図 2 に NiS₂ 単結晶の 0.1 T 下での帯磁率 $\chi(T) = M(T)/H$ を示す。

先行研究と同様、 $T_{N1} = 38 \text{ K}$ と $T_{N2} = 30 \text{ K}$ に 3Q 相と WF 相に対応する異常が観測されている。図 3-inset に示した $\chi(T)$ の測定から、3Q 相において微小な強磁性モーメントの存在を示唆するヒステリシスが観測された。このヒステリシスは中性子散乱[22]や比熱測定[15]から磁気長距離秩序形成によるものだとわかっている。また、AIAO 構造を有する Eu₂Ir₂O₇[4]で観測されたヒステリシスと同様に、磁場方向に依存しない等方的な振る舞いを見せており、反強磁性非共面スピン構造由来の性質である可能性も考えられる。その起源を明らかにする為、3Q 構造からなる磁気ドメインの磁場制御を試みた。

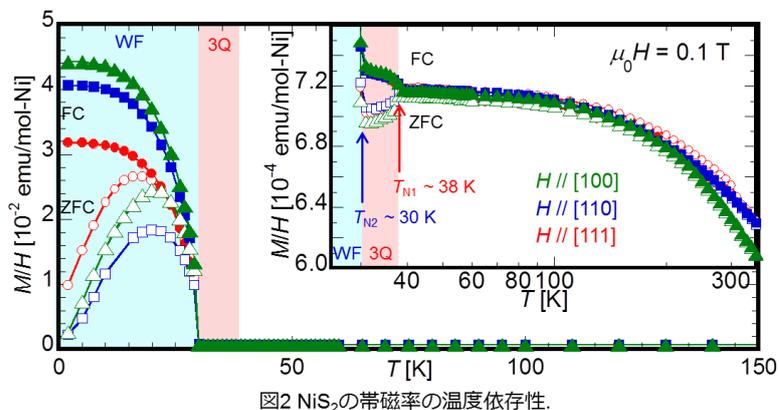


図2 NiS₂の帯磁率の温度依存性.

3-2. NiS₂ の 3Q 相で生じる強磁性の起源解明と 3Q 構造ドメインの磁場制御の試み:

3Q 構造では系全体の磁化がゼロとなることが期待される。AIAO 構造を有する系で理論的に示唆されているのと同様に、3Q 構造からなる磁気ドメイン(3Q ドメイン)の磁壁に強磁性モーメントが生じている可能性を考えた場合[23]、単一の 3Q ドメインが実現した際には、試料中に磁壁が存在しない為、強磁性が現れないことが予想される。上記の仮定を検証する為、磁化を有さない 3Q ドメインを WF 相での WF ドメインの磁場制御により間接的に制御することを試みた。その手順を以下に示す。

(1)磁場中冷却(FC)磁場 $\mu_0 H_{FC} = -0.1 \sim 5 \text{ T}$ において磁場中冷却を 2 K(WF 相)まで行う[FC2K プロセス]と 31 K(3Q 相)まで行う[FC31K プロセス]という 2 種類の条件で試料を冷却する

(2)最低温度(2 K もしくは 31 K)で 0.1 T に磁場を変え、昇温過程にて帯磁率 $\chi(T)$ を測定する

先行研究のスピントルク測定より、WF ドメインは $H // [100] > \sim 2 \text{ T}$ での FC で単一ドメインとなることが報告されている為[24]、[100]方向へ磁場を印加した。また、3Q 相での微小な強磁性モーメントの変化を体系的に理解する為、 T_{N1} 直上の常磁性相の温度 39 K からの帯磁率(磁化)の変化量 $\Delta\chi(T) = (\chi(T) - \chi(39\text{K})) / \chi(39\text{K}) \times 100\%$ をその指標として用いた。図 3 (a)に[FC2K プロセス]後(WF ドメインによる 3Q ドメインの間接的な制御を行なった場合)に測定した NiS₂ 単結晶の $\Delta\chi$ の温度依存性を示す。 $-0.1 \text{ T} \leq \mu_0 H_{FC} \leq 0.1 \text{ T}$ では H_{FC} の増加に比例して $\Delta\chi$ が増加しているものの、 $\mu_0 H_{FC} > 0.1 \text{ T}$ では $\Delta\chi$ が減少し、WF ドメインが単一であると予想される $\mu_0 H_{FC} = 3 \text{ T}$ と 5 T では、ZFC(0 T)の場合とほ

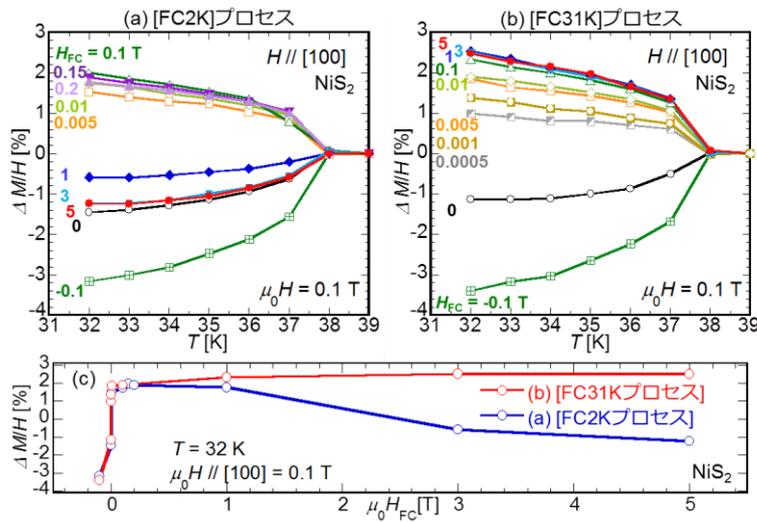


図3 NiS₂の
 (a)[FC2Kプロセス]後
 に測定した
 $\Delta\chi(T) = \Delta M(T)/H$.
 (b)[FC31Kプロセス]後
 に測定した $\Delta\chi(T)$.
 いずれの測定も
 $H_{FC} // [100]$,
 $\mu_0 H // [100] = 0.1 \text{ T}$
 で行った.
 (c)図3(a)(b)の32 Kに
 おける $\Delta\chi$ の $\mu_0 H_{FC}$ 依存性.

ば同様の振舞いを見せるという異常な H_{FC} 依存性が見られた。磁性不純物やスピנקヤント、スピングラスが起源である場合には、 $\Delta\chi$ は H_{FC} の増加に伴って単調増加することが期待されるが、上で予測した 3Q ドメインの磁壁を考えると異常な H_{FC} 依存性を説明することが出来る。また、図 3(b) に示した [FC31K プロセス] 後 (WF ドメインによる 3Q ドメインの間接的な磁場制御を行わなかった場合) の $\Delta\chi$ は、 H_{FC} の増加に伴い単調増加しており、これは多磁区状態で磁壁のモーメントのみが配向する場合を考えると理解することが出来る。以上の測定より、帯磁率というマクロな物理量からの推察ではあるものの、WF 相へ磁場中冷却を行うことによる WF ドメインの単一化に対応し間接的に 3Q ドメインが単一化されていくことを示唆する結果が得られた。また、その H_{FC} 依存性(図 3(c)) は 3Q 相で生じる強磁性成分の起源を 3Q 構造が作る磁壁と考えた場合によく説明することが出来る。

3-3. MnTe₂ の 3Q 相における異方的圧力による 3Q 構造ドメインの磁場制御の試み:

MnTe₂ では、3Q 構造が $T \leq T_N \sim 87 \text{ K}$ と、NiS₂ に比べて高温から発現することが先行研究によって明らかにされている[20]。まず、3Q 相に NiS₂ 同様に強磁性モーメントが現れるか確認する為に、 $T \gg T_N$ から FC 冷却磁場 $\mu_0 H_{FC} = -0.1 \sim 5 \text{ T}$ で 5 K まで FC した ([FC5K プロセス] とする) 後、磁場を 0.1 T に変更し、昇温過程において MnTe₂ 単結晶の帯磁率 $\chi(T)$ を測定した。その結果、図 4(a) に示す様に、 H_{FC} の増加に伴って χ が単調増加する振る舞い (NiS₂ の多磁区状態と類似) が確認できた。上述の NiS₂ の実験から、その 3Q ドメインは 5 T 程度の外部磁場では制御が難しく、WF ドメイン等の磁化を有するドメインによる制御が必要という結果が得られたが、MnTe₂ では WF 相が現れない為、3Q ドメインの磁場制御は難しい。そこで、系に異方的圧力を印加し 3Q 構造自体に自発磁化を誘起し、磁場でその自発磁化が誘起された 3Q ドメインを制御/単一化することを試みた。MnTe₂ の磁気構造から予測される磁化誘起が可能な圧力方向: [111] に 0.1 kbar 程度の圧力を印加したところ、 $10^3 \mu_B$ オーダーの磁化を誘起することに成功した。さらに、図 4(b) に示す様に、誘起された自発磁化が $\mu_0 H_{FC} = \pm 5 \text{ Oe}$ という微小な磁場での FC で上凸 (+5 Oe) と下凸 (-5 Oe) に分かれ、磁場を正方向に大きくした場合は上凸 (+5 Oe) に、磁場を負方向に大きくした場合には下凸 (-5 Oe) に一致する振る舞いが見られた。この振る舞いは、自発磁化が誘起された 3Q ドメインが FC により、単一方向に揃ったことを支持する。

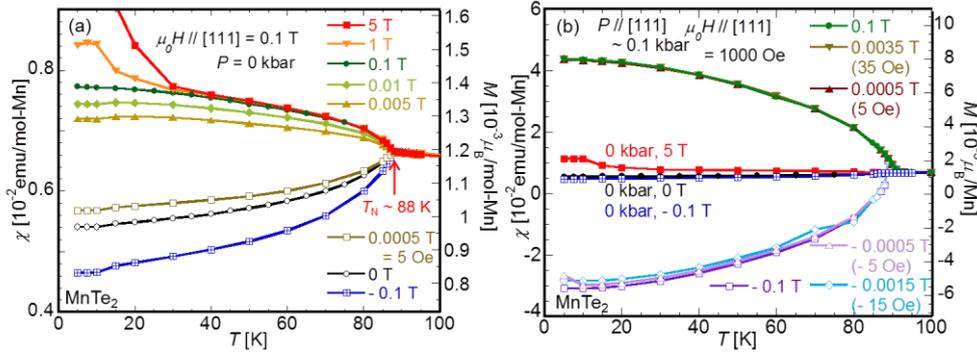


図4 MnTe₂の
(a)[FC5Kプロセス]後に測定した $\chi(T)$.
(b) 圧力 $P // [111] \sim 0.1$ kbar下で[FC5Kプロセス]後に測定した $\chi(T)$.
いずれの測定も
 $H_{FC} // [111]$,
 $\mu_0 H // [111] = 0.1$ T
で行った.

4. まとめ・展望

特徴的な非共面スピン構造を有する反強磁性体の物性を明らかにするために、3Q 構造(辺共有型 AIAO 構造)を有するパイライト型反強磁性体を用いて磁気・輸送特性測定を行った。NiS₂では、低温相に存在する WF ドメインを FC により制御することで、通常磁場制御できない磁化ゼロの反強磁性ドメイン(3Q ドメイン)の間接的な磁場制御に成功した。また、3Q 相で現れた強磁性モーメントの起源が 3Q-磁壁であることを示唆する実験結果を得た。MnTe₂においても多磁区状態の NiS₂ と類似の $\chi(T)$ の振舞いを観測し、さらに、3Q 構造に異方的圧力を印加し自発磁化を誘起することで、その自発磁化の向きが微小な磁場の FC によって揃えられることを明らかにした。特徴的な反強磁性非共面スピン構造で期待される非対称非線形磁化やスカラースピカイリティに関係した振る舞いは、単一ドメインにすることでより顕著に現れる事が期待され、今回我々が得た結果は非共面スピン構造を有する反強磁性体を研究する上で重要な指針になると考える。

一方で、今後ドメインの直接観測を行い、そのドメインの詳細なダイナミクスを明らかにする必要がある。特徴的な反強磁性非共面スピン構造に由来するその他の物性の探索も今後の課題である。

5. 参考文献

- [1] Y. Tokura, et al., Rep. Prog. Phys. **77**, 076501 (2014).
- [2] Y. Taguchi, et al., Science **291**, 2573 (2001).
- [3] Y. Machida, et al., Nature **463**, 210 (2010).
- [4] J. J. Ishikawa, et al., Phys. Rev. B **85**, 245109 (2012).
- [5] S. Zhao, et al., Phys. Rev. B **83**, 180402 (2011).
- [6] H. Sagayama, et al., Phys. Rev. B **87**, 100403 (2013).
- [7] K. Tomiyasu et al., J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 034709 (2012).
- [8] J. Yamaura, et al., Phys. Rev. Lett. **108**, 247205 (2012).
- [9] T.-h. Arima, J. Phys. Soc. Jpn. **82**, 013705 (2013).
- [10] S. Tadif et al., arxiv : 1407.5401.
- [11] D. Pesin, et al., Nature Phys. **6**, 376 (2010).
- [12] B.-J. Yang, et al., Phys. Rev. B **82**, 085111 (2010).
- [13] X. Wan, et al., Phys. Rev. B **83**, 205101 (2011).
- [14] K. Ueda, et al., Phys. Rev. B **89**, 075127 (2014).
- [15] N. Matsuura et al., Phys. Rev. B **68**, 094409 (2003).
- [16] K. Kikuchi, et al., J. Phys. Soc. Jpn. **44**, 410 (1978).
- [17] K. Kikuchi, et al., J. Phys. Soc. Jpn. **45**, 444 (1978).
- [18] J. M. Hastings, et al., Phys. Rev. **115**, 13 (1959).
- [19] M. S. Lin, et al., Sol. Stat. Comm. **6**, 687 (1968).
- [20] P. Burlet, et al., Phys. Rev. B **56**, 14013 (1997).
- [21] T. Thio, et al., Phys. Rev. B **52**, 3555 (1995).
- [22] K. Kikuchi, et al., J. Phys. Soc. Jpn. **47**, 484 (1979).
- [23] Y. Yamaji et al., Phys. Rev. X **4**, 021035 (2014).
- [24] H. Nagata, et al., Jpn. J. Appl. Phys. **15**, 1507 (1976).