

## 論文の内容の要旨

論文題目 磁気光学的手法を用いたペロブスカイト型遷移金属酸化物の磁気ドメイン観察

氏名 徳永 祐介

ペロブスカイト型 Mn 酸化物、Ti 酸化物においては共にスピン・軌道・電荷の自由度の結合が多彩な電子相を生んでいる。Mn 系においては巨大磁気抵抗効果の発現などからも、磁性と伝導の結合は明らかであり、微視的な磁気情報を得ることはまた伝導をも制御する鍵となると考えられる。これらの系における磁気ドメイン観測についてはいくつか報告がなされているが、多くの研究は低磁場領域にかぎられており、そのダイナミクスについてはそれほど調べられていないのが現状である。比較的大きな磁場中で起こる巨大磁気抵抗効果との相関を調べるには、磁場中での磁気ドメイン観察を行う必要がある。また、Ti 系酸化物のなかでも GdFeO<sub>3</sub> タイプの歪みの大きな YTiO<sub>3</sub> は *t<sub>2g</sub>* 軌道秩序を持ちモット絶縁体でありながら強磁性体でもあるという稀な例となっているが、その強磁性磁区についてはこれまで観察例がなかった。本研究ではインジゲータ磁性膜の磁気光学効果を用いてこれらの系のいくつかについてミクロスコピックな磁気的情報を得ることを目的とした。

### 1、層状ペロブスカイト型 Mn 酸化物 La<sub>2-2x</sub>Sr<sub>1+2x</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(*x*=0.32)

La<sub>2-2x</sub>Sr<sub>1+2x</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> はその層状構造に起因する異方性から *x*=0.3 付近に一軸異方性をもつ温度・組成領域を有する。Welp らは *x*=0.32 の組成において低温で迷路状磁区を観測している。Mn 酸化物においては磁性と伝導は密接に結びついており、これらの磁区構造を操作できれば伝導特性をも制御できる可能性がある。本研究では磁区構造の外場による操作を試みた。試料は La<sub>2-2x</sub>Sr<sub>1+2x</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub>(*x*=0.32) 単結晶のへき開面(*ab* 面)を用いた。試料は 120 K 付近で強磁性転移し、*ab* 面を磁化容易面とするが、70 K 付近から低温では一軸異方性を持ち、この低温領域では迷路磁区構造が報告されている。*c* 軸方向への磁場の印加に関しては前述の Welp らにより磁区構造にはそれほど大きな変化がおこらないことが報告されているので、ここでは主に面内に磁場を印加した場合に話を限る。20 K において、*ab* 面内方向に磁場を印加すると、迷路状磁区が磁場方向へ引き伸ばされていくのが観測された(図 1 (c))。さらに磁場を印加していくと、2800 Oe 程度の磁場の印加により磁区は磁場方向に揃えられたストライプ状になった(図 1 (b))。さらに興味深いことに *c* 軸方向に 500 Oe 程度のバイアス磁場を印加した状態で *ab* 面内方向に磁場したときには、磁区構造はストライプではなくバブル状になることが見出された(図 1 (d))。

これらの構造は印加磁場を切っても安定であった。これらの構造を形成するのに必要な面内磁場の大きさには顕著な温度依存性が認められた。この温度依存性は試料の一軸異方性定数の温度変化に対応するものであると考えられる。生成される磁区構造のサイズが試料の厚さに対して顕著

に変化することも厚さ勾配をつけた試料を観察することで確かめた。以上のように、この系での

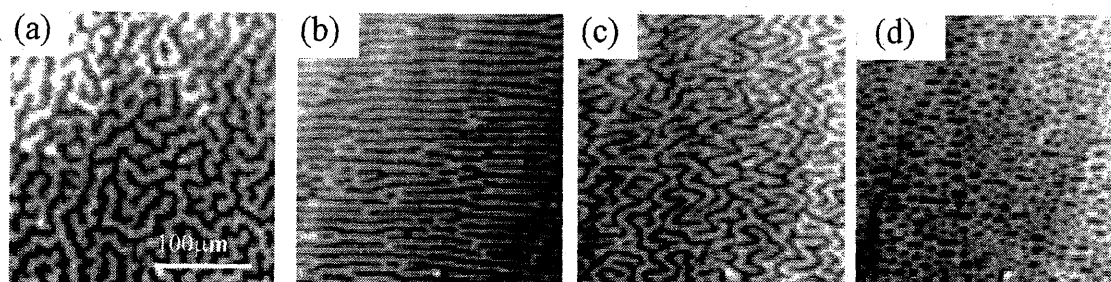


図 1 :  $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x=0.32$ ) の磁区構造の変化。

磁区構造が外部磁場、特に面内成分の大きな磁場の印加により操作可能であることが分かった。

## 2、層状ペロブスカイト型 Mn 酸化物 ( $\text{La}_{1-z}\text{Nd}_z$ ) $_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ( $z=0.4$ )、 ( $\text{La}_{1-z}\text{Pr}_z$ ) $_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ( $z=0.6$ )

$\text{La}_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  は  $d_{x^2-y^2}$  型軌道がドミナントな容易面型の強磁性体であるが、La サイトをイオン半径の小さな Nd や Pr で置換してゆくと  $a/c$  が小さくなり、軌道タイプは  $d_{3z^2-r^2}$  型へ移行していき、強磁性金属 (FMM) 相が抑制されて基底状態が常磁性絶縁体 (PI) へと移っていくことが報告されている。置換率が中間の領域では二つの相は競合しており、( $\text{La}_{1-z}\text{Nd}_z$ ) $_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $z=0.4$ ) や ( $\text{La}_{1-z}\text{Pr}_z$ ) $_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $z=0.6$ ) では無磁場下では低温まで PI であるが、数 T の磁場の印加により、磁場誘起の PI-FMM 転移が起こることが報告されている。転移後の FMM 状態は  $c$  軸を磁化容易軸とし、低温では磁場を切っても安定であり、長い寿命をもつ。この転移過程と転移後の磁気ド

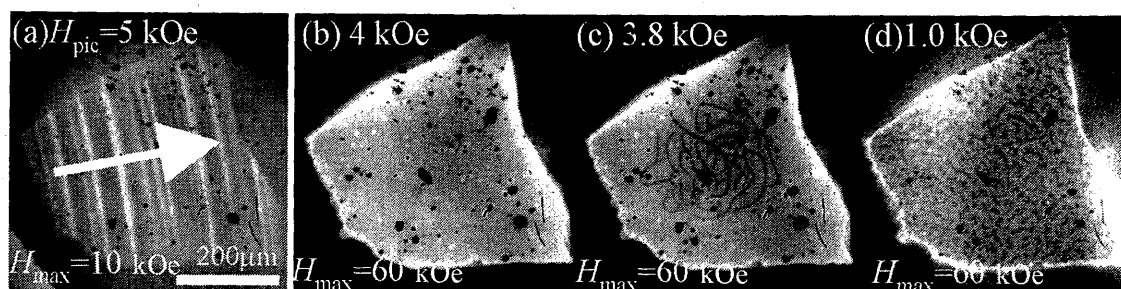


図 2 : ( $\text{La}_{1-z}\text{Nd}_z$ ) $_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $z=0.4$ ) の磁区構造の変化。矢印は結晶成長方向。

メイン構造の変化を調べる目的で、磁性膜の磁気光学効果を用いた観測を行った。ここでは常磁性膜である EuSe 膜をインジゲータ膜として用いることにより、数 kOe 以上の磁場中での観測が可能としている。サンプルは単結晶試料のへき開または研磨面 ( $ab$  面) を用いた。観測は 10 K でまず  $c$  軸方向に磁場  $H_{\text{max}}$  を印加し、その後印加磁場  $H_{\text{pic}}$  まで下げた状態で行った。 $H_{\text{max}}$  を強磁性転移の途中の磁場まで上げて、そこから磁場を下げたときには、どちらのサンプルにおいても結晶成長方向に垂直に走る強磁性ドメインと思われる構造が観測された (図 2 (a))。強磁性転移がおりかつ磁化が飽和するのに十分な磁場を印加してから磁場を下げた場合は、この成長方向とは相関が失われた (失われかけた) 強磁性磁区構造が観測されている (図 2 (b)-(d))。このような変化は結晶成長時の何らかの striation に起因し、結晶成長方向に沿って強磁性転移磁場が異なる層が積層しているためと考えられる。すなわち、適当な磁場下では転移磁場が低い領域だけが強

磁性転移し、これが磁気光学像の縞として観測される。一方、サンプル全体が転移するに十分な大きな磁場を印加した後は系は完全に強磁性転移し、一様な強磁性の構造になっているものと考えられる。面内で電気伝導度の異方性を調べると、どちらの組成のサンプルについても低温、低磁場領域で電

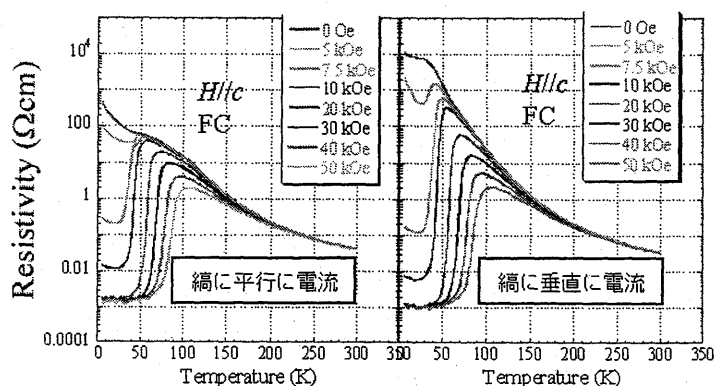


図3:  $(\text{La}_{1-z}\text{Nd}_z)_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $z=0.4$ )の抵抗率の温度依存性。

気抵抗率に成長方向 (MO により観測される縞と垂直な方向) とこれに垂直な方向で異方的な振る舞いが観測されている (図3は $(\text{La}_{1-z}\text{Nd}_z)_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $z=0.4$ )についての結果)。この振る舞いは観測される磁気構造と対応している。

### 3. 強磁性モット絶縁体 $\text{YTiO}_3$

$\text{YTiO}_3$  は共鳴 X 線散乱や偏極中性子回折などにより  $t_{2g}$  軌道の秩序が確認されているが、モット絶縁体としてはめずらしく  $T_c \sim 30$  K の強磁性体でもあることが知られている。この物質では、ゼロ磁場下で冷却 (ZFC) 後、低温において  $c$  軸 (容易軸) 方向の  $M-H$  曲線がゼロ磁場からプラトーを持った後、急激に立ち上がるようなメタ磁性転移的な振る舞いや、弱磁場下での  $M-T$  曲線が大きな温度ヒステリシスを示すなど (図4(a))、弱磁場下で磁化異常が報告されている。本研究で

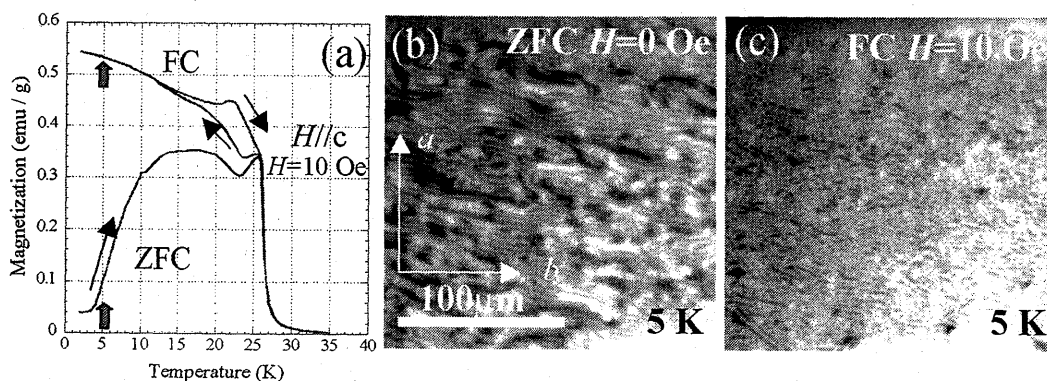


図4:  $\text{YTiO}_3$ における (a)低磁場における $M-T$ 曲線、(b)ZFC後(c) $H=10$  OeでFC後の磁区構造。

はこれらの磁化の異常な振る舞いの原因を調べる目的で強磁性磁区観測および微小ホール素子を用いた局所磁化測定を行った。ゼロ磁場冷却後の  $ab$  面については  $T_c$  以下で複雑に入り組んだ迷路状の磁区構造が観測された (図4(b))。強磁性磁区は  $M-H$  曲線にメタ磁性転移的な異常が観測される低温領域においても観測される。この磁区構造は 10 Oe 程度の磁場の印加に対してはほとんど変化しない。一方、10 Oe の磁場下で磁場中冷却した場合には得られる磁区は ZFC 時とは大きく異なり、泡状磁区などが多く含まれた状態になる (図4(c))。平均的には磁場方向を向いたドメインの比率が大きくなっており、これが図4(a)の  $M-T$  曲線における FC と ZFC の違いの元となっている。磁場差像を用いて解析を行った結果、 $M-H$  曲線におけるメタ磁性転移的な振る舞

いの現れる低温では、弱磁場の印加に対して磁区にほとんど変化が現れないことが分かった。磁場感知部分のサイズが  $30\ \mu\text{m}$  角のホール素子を用いて ZFC 後の  $5\ \text{K}$  における局所的な  $M$ - $H$  曲線の立ち上がりを繰り返し測定した結果(図 5(a))、局所的な初期磁化の値はサイクルごとに異なるものの、この初期磁化の値によらず  $M$ - $H$  曲線は同じ磁場で急峻な立ち上がりを示すことが分かった。これらの結果は低温領域において強磁性磁区は形成されているものの、弱い磁場の印加に対しては磁壁の移動が、ある大きさの磁場までは起こっていないことを示している。すなわち、バルクの磁化測定において観測されたメタ磁性転移的な振る舞いの起源は反強磁性-強磁性転移を示すものではなく、磁壁のピン止め力の低温領域での増大によるものであることが示唆される。FC と ZFC での  $M$ - $T$  曲線の違いも同じ起源で説明できると考えられる。通常の強磁性体において、初期磁化曲線におけるはじめの変曲は可逆磁壁移動から不可逆磁壁移動への変化によるものであると言われているが、 $\text{YTiO}_3$  の低温においてはこれがバルクの磁化曲線に顕著に現れていることから、低温で働くようになるピン止め中心がサンプル中に均一に分布していると考えられる。磁化の立ち上がる磁場は低温に向け指数関数的に上昇することも明らかとなった(図 5(b))。

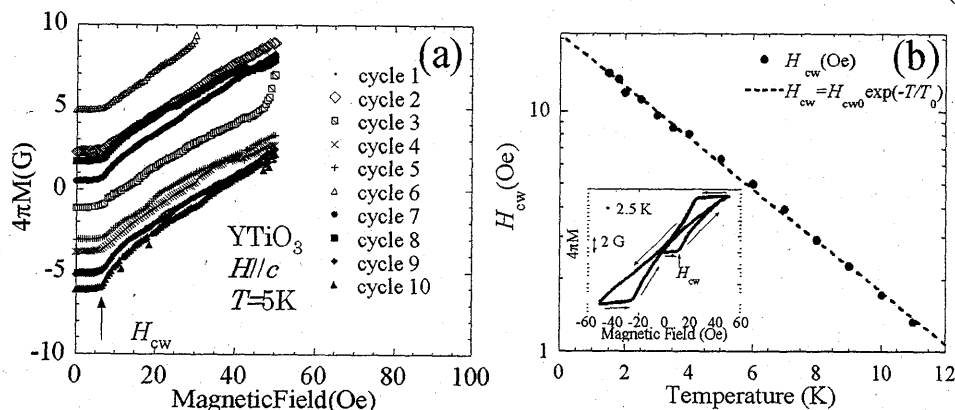


図5:微小ホール素子により測定した $\text{YTiO}_3$ の(a)局所的な $M$ - $H$ の立ち上がり、(b) $M$ - $H$ の立ち上がる磁場の温度依存性。

## 結論

1.  $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x=0.32$ )の磁区構造が面内磁場および面内から傾いた磁場の印加により磁場方向に整列したストライプおよびバブルになることを見出した。
2.  $(\text{La}_{1-z}\text{Nd}_z)_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $z=0.4$ )および $(\text{La}_{1-z}\text{Pr}_z)_{1.2}\text{Sr}_{1.8}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $z=0.6$ )のPI-FMM転移過程における磁気ドメイン構造の変化を観測した。転移の過程において結晶成長方向に垂直に走る縞状の磁気構造を観測した。またこれに平行な方向および垂直な方向で面内の電気伝導が異方的であることを見出した。
3.  $\text{YTiO}_3$ 単結晶の強磁性磁区構造を観察した。低温・低磁場領域における磁化の異常が磁壁のピン止め力の上昇によるものであることを示した。