

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 21日現在

機関番号：11301

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22740220

研究課題名（和文） フラストレーション格子を形成する遍歴磁性体における異常伝導現象の開拓

研究課題名（英文） Exploration into anomalous transport phenomena in itinerant magnets with frustration-lattice system

研究代表者

井口 敏（SATOSHI IGUCHI）

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：50431789

研究成果の概要（和文）：

パイロクロア型モリブデン酸化物において、スピン-電荷自由度の結合した異常な磁気輸送現象を調査した。高圧合成の最適条件の確立により、電子フィリングを制御した試料の作製に成功し、従来、超高压下のみで発現することが知られていた異常常磁性金属状態を、常圧下で実現出来た。それにより得られた知見を元に、電子系にカイラルな内部磁場を導入することで、異常ホール効果において、実空間描像におけるベリー位相の寄与があることを示した。

研究成果の概要（英文）：

We have investigated on anomalous magneto-transport properties as spin-charge coupled phenomena in pyrochlore molybdates. We have succeeded in the synthesis of electron-filling controlled crystals by fine tuning of the condition for high pressure synthetic method, in which the diffusive paramagnetic metal state quite similar to that of under high pressure can be realized at ambient pressure. We have shown that the Berry's phase based on the real-space picture contributes to the anomalous Hall effect even in the paramagnetic diffusive state in (Y, Tb, Cd)2Mo2O7 with diluted spin chirality.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,000,000	600,000	2,600,000
2011年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性 II

キーワード：強相関係

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系の問題として、金属-絶縁体転移や結晶格子に由来する幾何学的フラスト

レーションの効果は古くから精力的に研究されてきた。スピンや電荷の様々な秩序状態の解明が成されてきたが、電荷やスピンのどちらか一方についての自由度に関する研究

が主流であった。一方、近年ではマルチフェロイック研究に代表されるモット絶縁体での低エネルギー電荷ダイナミクスの集中的な研究によって、電荷-スピンの新しい結合の仕方が明らかになってきた。そこでは、フラストレーション等によって引き起こされるヘリカル、コニカル、カイラルといった非自明なスピン構造と、スピン自由度に強く結合した電荷によって、強磁性、強誘電性が同時に現れる。このように、電荷-スピン自由度が結合した系に相互作用もしくは幾何学的フラストレーションが存在することによって発現する新奇な現象は、未だ多くは未解明と言ってよい。

従来の研究はマルチフェロイック物質系に代表されるように、主に秩序状態もしくは絶縁体での研究が多く、電荷-スピン結合系が強くフラストレートした状態の電気、熱的（磁気）輸送現象の研究は比較的少ない。本研究に先立って申請者が行った研究では、モット転移系であるパイロクロア型モリブデン酸化物の高圧下での電子状態を調べた結果、反強磁性的相互作用の強い局在スピンの存在のため、非常に散逸的な常磁性金属状態（非フェルミ液体的）が基底状態に現れることが分かった[S. Iguchi et al., Phys. Rev. Lett. 102, 136407 (2009)]。この状態は高圧下に広く存在しておりフラストレーションの存在下でのこの異常な伝導現象は電荷-スピン自由度の結合の結果として本質的な状態であると考えられるものの、未解明の問題も多い。

2. 研究の目的

本研究では、フラストレーション格子を形成する遍歴磁性体における異常伝導現象の開拓を目指して、（金属-絶縁体近傍にある）電気伝導性を有する物質を対象とし、電子フィリング制御や物理的、化学的圧力効果によって電荷・スピンプラストレーションを引き起こし、結果として生じる電荷・スピン秩序（もしくは非秩序）、電子質量の増大などの物性異常を抵抗率、磁気抵抗率、ホール抵抗率、（磁気）比熱などを通じて観測し、その物理的起源を明らかにすることを目的とした。

具体的な対象としてはまず、パイロクロア型モリブデン酸化物 $R_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ を (R : 希土類元素) を取り上げる。パイロクロア型モリブデン酸化物はフラストレーション格子を有し、希土類元素のイオン半径の違いによる一電子バンド幅制御型の金属-絶縁体転移を示す重要な系である。代表者らは上述の

ように本研究の申請に先立つ研究として、この物質系の超高压力下での抵抗率、磁化率を調査し、超高压下では希土類イオン半径の違い、もしくは常圧下での基底状態によらず、ほとんどの物質において最低温度では常磁性かつ散逸的な(悪い)金属状態に転移することを明らかにしてきた。この常磁性相への転移は、物理的圧力による圧縮が、伝導電子の隣接サイトへの飛び移りを強めるよりも、スピン系の反強磁性相互作用を強めるために起こると考えられる。しかし幾何学的フラストレーションによりスピンの反強磁性秩序を妨げ、局在スピン ($S=1/2$) の揺らぎの影響を強く受けた常磁性金属状態が実現していると考えられる。

しかし、このような複雑な系における理論的研究は少なく、詳細な理解のための更なる発展が望まれる。一方、このように高圧力下での実験では電子比熱などの重要な知見を得ることが原理的に難しく、別のアプローチによるフラストレーション効果を探る必要がある。すなわち、上記は主にスピン系のフラストレーションの効果であったが、この系において、半整数電子 ($d1.5$ や $d2.5$) フィリングにすることが出来れば電荷自由度のフラストレーションを最大にすることが出来る。この系におけるホールドーピングは Ca (もしくは Cd) によって行うことができることが知られているが、常圧では 25% 程度のドーピングしか行えないため、上記のような 50% のホールドーピング ($d1.5$) は実現できていなかった。しかし、申請者は最近、数 GPa の高圧合成によってパイロクロア構造を保ったまま、25% 以上のホールドーピングに成功しつつあり、合成条件を詰めることによって単相の良質な試料の合成が可能であると考えられる。これを用い電荷-スピンプラストレーション系の新物質、新現象開拓を進めた。

3. 研究の方法

平成 22 年度は当時得られつつあった半整数電子フィリング系パイロクロア型モリブデン酸化物の高圧合成条件の最適化を行ない、良質試料において、超伝導、金属-絶縁体転移などの異常物性の探求を行った。また、常圧でも得られているスピネル型チタン酸化物超伝導体においては半整数近傍において電子フィリングを系統的に変化させた試料の合成と（磁気）輸送特性の測定を行い、高圧下での超伝導-絶縁体転移などの物性変化を詳細に探査した。また、次年度の測定のための低温高圧測定系の改良を行った。平成 23 年度は初年度で得られた

試料の（磁気）輸送特性の測定を行った。また、得られた知見を元に、パイロクロア、スピネル型酸化物を中心に電荷-スピン自由度結合系の新物質、新現象開拓を行った。

1. 試料合成（新物質開拓）

高圧合成を中心に1.60-2.0の電子フィリングを持つパイロクロア型モリブデン酸化物の合成条件を精密化し、良質な試料を得た。高圧合成装置に関しては理化学研究所CMRGグループ所属の石渡晋太郎博士の協力の下に行った。1よりも小さな電子フィリングを持つパイロクロア型モリブデン酸化物の高圧合成に関しては、6-8GPa、1200度程度の条件において焼成を行うことで、常圧では不可能だった $(Y_{1-x}Cd_x)2Mo2O7$ ($x > 0$)のパイロクロア単相が現れることを確認した。この条件を元に、その他の良質なパイロクロア型モリブデン酸化物を得ることが出来た。これによって、母物質の整数フィリング($4d^2$)からずらすことで、反強磁性スピン相互作用の強い異常常磁性金属状態を作り出すことが可能となり、フィリング依存性を広範囲にわたって探查することが出来た。

2. 輸送現象測定と測定系の改良等

磁気輸送特性の測定のための測定系の改良を行った。特に、「科学研究費補助金、若手研究(B)非共線スピン遍歴強磁性体の圧力誘起相転移と輸送特性：代表」において作製した機動的物性探索に有効な小型圧力セルを用いた測定系の改良等も行った。これはクランプ型の圧力セルを使用したもので、所属研究室現有設備の超伝導マグネットを併用し、2-3GPaの圧力下での抵抗率、磁気抵抗率、ホール効果等の測定が可能なものである。

4. 研究成果

平成22年度は、常圧下でも常磁性異常金属状態を得るために、スピングラス絶縁体である $Y2Mo2O7$ においてYをCdで置換しホールドーピングを施した試料を、高圧合成法により作製した。Cd酸化物は蒸発しやすいため通常の焼成方法では組成がずれてしまうため、高圧下で蒸発を防ぐことによって始めて合成に成功した。 $Y2Mo2O7$ はホールキャリアにより金属化し、さらにドーピングを進めるとスピングラスが消失し常磁性かつ散逸的な金属状態を示した[2]。この振る舞いは圧力下におけるそれと酷似しており、所望の

状態を常圧下で得ることに成功した。また、磁性の測定からは、予想通り反強磁性スピン相関の観測と磁気秩序がないことが確認された。さらに比熱測定により今回初めて異常常磁性金属状態における電子質量の増大が観測されるなど、電荷-スピン自由度結合系における異常伝導現象の理解に貢献したと考えられる。

平成23年度は、主としてパイロクロア型モリブデン酸化物の異常常磁性状態において、実空間上のベリー位相によるトポロジカルホール効果の観測に成功した[1]。

22年度に得られたCd置換系 $Y2Mo2O7$ の合成方法の確立や電子状態の詳細な調査により、異常常磁性状態における磁気輸送現象について詳細に調べることが可能となった。特に、この常磁性異常金属状態ではMoスピンの自由度は存在していることが分かったため、スピン-電荷自由度の結合による新しい磁気輸送現象の発現が期待できた。そこで、平成23年度では、イジングスピンを持つTbをYサイトに置換することで、スピン自由度の残存する常磁性金属状態のMo電子系に、さらにカイラルな内部磁場を導入することを試みた。その結果、Tb置換系の異常ホール効果はTb濃度に関して比例ではなく、2~3乗のべきに従って増加することがわかった。この観測結果は実空間上に分布するベリー位相を感じたMoスピンの引き起こすトポロジカルホール効果と考えられ、スピンカイラリティーを希釈した系におけるカイラリティー濃度依存性を明らかにするとともに、ベリー位相の実空間描像に基づく解釈の正しさを示すことが出来た。

本研究を通じて、これまで主流であった波数空間描像におけるベリー位相による異常ホール効果の理解が、実空間描像にまで拡張可能であることが分かってきた。このことは、非自明なスピン構造は秩序状態で無くても輸送現象に大きな影響を与えることを示しており、今後のスピン-電荷自由度の結合系における新しい物性現象の探求と理解に貢献するものと考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件)

[1]

K. Ueda, S. Iguchi, T. Suzuki, S. Ishiwata, Y. Taguchi, and Y. Tokura, Topological Hall effect in pyrochlore lattice with varying density of spin chirality,

Phys. Rev. Lett. **108**, 156601-1-5 (2012).
査読有

[2]

S. Iguchi, Y. Kumano, K. Ueda, S. Kumakura,
and Y. Tokura,
Diffusive charge transport with strongly
renormalized carrier mass in hole-doped
Mott insulators $(Y_{1-x}Cd_x)_2Mo_2O_7$ with
frustrated pyrochlore lattice,
Phys. Rev. B **84**, 174416-1-5 (2011).
査読有
DOI: 10.1103/PhysRevB.84.174416

[3]

Masato Kimura, Hidenori Fujiwara, Akira
Sekiyama, Junichi Yamaguchi, Kazumasa
Kishimoto, Hiroshi Sugiyama, Gen
Funabashi, Shin Imada, Satoshi Iguchi,
Yoshinori Tokura, Atsushi Higashiya,
Makina Yabashi, Kenji Tamasaku, Tetsuya
Ishikawa, Takahiro Ito, Shin-ichi Kimura,
and Shigemasa Suga,
Polaronic Behavior of Photoelectron
Spectra of Fe_3O_4 Revealed by Both Hard X-ray
and Extremely Low Energy Photons,
J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 064710-1-5 (2010).
査読有
DOI: 10.1143/JPSJ.79.064710

[学会発表] (計 13 件)

[1]

四角格子ダイマーモット絶縁体
 $b'-(BEDT-TTF)_2IC_{12}$ における誘電異常
井口敏、佐々木智、米山直樹、谷口弘三、佐々
木孝彦
「フラストレート系」特定領域最終成果報告
会、阪大吹田キャンパス銀杏会館、2012 年 1
月 7 日

[2]

四角格子ダイマーモット絶縁体
 $b'-(BEDT-TTF)_2IC_{12}$ における誘電異常
井口敏、佐々木智、米山直樹、谷口弘三、佐々
木孝彦
新学術領域研究「分子自由度が拓く新物質科
学」第 6 回領域研究会、仙台秋保岩沼屋、2012
年 1 月 6 日

[3]

四角格子ダイマーモット絶縁体
 $b'-(BEDT-TTF)_2IC_{12}$ における誘電異常
井口敏、佐々木智、米山直樹、谷口弘三、佐々
木孝彦
有機固体若手の会 冬の学校 2011、北海道、
定山溪ビューホテル、2011 年 12 月 16 日

[4]

四角格子ダイマーモット絶縁体
 $b'-(BEDT-TTF)_2IC_{12}$ における誘電応答
井口敏、佐々木智、米山直樹、谷口弘三、佐々
木孝彦
金研講演会 2011 年秋、東北大金研、2011 年
11 月 25 日

[5]

四角格子ダイマーモット絶縁体
 $b'-(BEDT-TTF)_2IC_{12}$ における誘電異常
井口敏、佐々木智、米山直樹、谷口弘三、佐々
木孝彦
物性科学領域横断研究会、東北大金研、2011
年 11 月 19 日

[6]

四角格子ダイマーモット絶縁体
 $b'-(BEDT-TTF)_2IC_{12}$ における誘電異常
井口敏、佐々木智、谷口弘三、米山直樹、佐々
木孝彦
金研ワークショップ「電子自由度による強誘
電体研究最前線」、東北大金研 2011 年 11 月
1 日

[7]

四角格子ダイマーモット型分子性導体
 $b'-(BEDT-TTF)_2IC_{12}$ における誘電応答
井口敏、谷口弘三、米山直樹、佐々木孝彦
日本物理学会 2011 年度秋季大会、富山大
2011 年 9 月 22 日

[8]

ベリー位相による異常ホール効果
 $-Nd_2Mo_2O_7$ を例に-招待
井口敏
第 56 回物性若手夏の学校 山梨県、ホテル
エバーグリーン富士 2011 年 8 月 3 日

[9]

パイロクロア型モリブデン酸化物における
常磁性金属状態と異常ホール効果 招待
井口敏
特定領域研究 第 7 回トピカルミーティング、
彦根、彦根ビューホテル、2011 年 7 月 2 日

[10]

四角格子ダイマーモット型分子導体
 $b'-(BEDT-TTF)_2IC_{12}$ における誘電応答
井口敏、谷口弘三、米山直樹、佐々木孝彦
新学術領域研究、分子自由度が拓く新物質科
学、第 5 回領域会議、東京大学 2011 年 6 月
8 日

[11]

Spin frustration effect near the Mott

transition in the pyrochlore-type molybdates

S. Iguchi, Y. Kumano, and Y. Tokura
APS March Meeting, Dallas Convention Center, Dallas, USA, Mar. 23, 2011

[12]

Spin frustration effect near the Mott transition in the pyrochlore-type molybdates

S. Iguchi, Y. Kumano, K. Ohishi, Y. Tokura
International Conference on Frustration in Condensed Matter, Sendai International Center, Sendai, Jan. 12, 2011

[13]

パイロクロア型モリブデン酸化物における電子フィリング制御型モット転移とフラストレーション

井口敏、熊野裕太、大石晃史、十倉好紀
日本物理学会 2010 年度秋期大会 大阪府立大学、2010 年 9 月 25 日

[その他]

ホームページ等

<http://cond-phys.imr.tohoku.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

井口 敏 (SATOSHI IGUCHI)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号：50431789

(2) 研究分担者

なし ()

研究者番号：

(3) 連携研究者

なし ()

研究者番号：