

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 4 月 24 日現在

機関番号：22604

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2010 ～ 2011

課題番号：22840036

研究課題名（和文） 導電性三角格子磁性体の異常伝導とカイラリティの役割

研究課題名（英文） Anomalous transport properties and role of spin chiralities in a triangular-lattice conductive magnet

研究代表者

高津 浩 (HIROSHI TAKATSU)

首都大学東京・理工学研究科・助教

研究者番号：60585602

研究成果の概要（和文）：

導電性三角格子磁性体で実現する新奇なホール効果の起源を明確にすることを目的に、PdCrO₂に着目して、純良で大型の単結晶を開発し、そのスピン構造や電子構造を研究した。中性子弾性散乱によりスピン構造の非平面性を見出し、有限のスピン・カイラリティの存在を明らかにした。これはこの系のホール効果にカイラリティが重要な役割を担っていることを示唆する。さらに、磁気抵抗に 60 度周期の明確な角度振動効果を観測し、フェルミ面形状と異常伝導性の相関を明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

We have studied the spin and electronic structures of the triangular-lattice (TL) antiferromagnet PdCrO₂, in order to clarify the role of spin chiralities for the Hall effect of TL magnetic systems. Using high quality single crystals, we revealed by neutron scattering experiments that PdCrO₂ has a non-coplanar spin structure which gives rise to finite spin chiralities in a local site. The angle-dependent magnetoresistance shows the periodic enhancement of the electrical resistivity with a metal-nonmetal crossover, interplayed with the two-dimensional electronic structure. The results suggest the possibility that the spin chirality plays a crucial role for anomalous transport properties of this material.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,250,000	375,000	1,625,000
2011 年度	1,150,000	345,000	1,495,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,400,000	720,000	3,120,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：三角格子、カイラリティ、幾何学的フラストレート磁性、単結晶育成、中性子散乱

1. 研究開始当初の背景

(1) 幾何学的フラストレーションを持つ磁性体の研究は、近年、マルチフェロイクス

やホール効果など、磁性以外のエキゾチックな物理現象が実現する舞台として新たな研究展開を迎えている。そして、そのような磁

性体の特徴づける秩序変数として従来の磁化に代わり「カイラリティ」と呼ばれる多体のスピン自由度の役割が解き明かされつつあり、その重要性に注目が集まっていた。

(2) 本研究で着目した、「フラストレート磁性と導電性」の研究背景には、カイラリティを通してホール効果に現れる量子ベリー位相の効果があり、理論・実験の両面から勢力に研究されていた。しかし意外な事に、最もシンプルなフラストレート格子系である「二次元三角格子」についての実験報告はほとんど例がなく、二次元三角格子磁性体の異常伝導とカイラリティの役割については未解決の問題であった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、フラストレート磁性金属の磁性と導電性の相互作用やスピン揺らぎを明らかにすることである。具体的には、導電性を持つ二次元三角格子磁性体 PdCrO_2 を取り上げ、中性子散乱を駆使してスピン構造を決定し、この物質で実現する新奇なホール効果の起源にせまっていく。

また、量子振動効果や磁気抵抗角度効果からフェルミ面を決定し、電子状態との相互理解を深める。

3. 研究の方法

(1) 単結晶育成

PdCrO_2 の大型単結晶は、 NaCl をフラックスとしたフラックス法により育成した。

(2) 中性子散乱実験

単結晶を用いて、ゼロ磁場中で磁気散乱の積分強度測定を行い、スピン構造を決定した。これまでに $T_N = 37.5 \text{ K}$ で 120 度スピン構造への秩序化が指摘されていたが、本研究では、特にホール効果に異常が現れる $T^* = 20 \text{ K}$ 前後のスピン構造の変化の有無や、スピン面方向の特定に着目して研究を進めた。実験は、日本の JRR-3 (4G, C1-1)、およびフランスの ILL (D10) にて行った。

(3) 磁気抵抗の角度効果、フェルミ面研究

電子構造の解明を目指して、磁性系 PdCrO_2 と参照の非磁性系 PdCoO_2 の層間抵抗 (ρ_c) の磁場角度依存性を測定した。一軸型ローテータを用いて $T = 2 \text{ K}$ 、 $\mu_0 H = 14 \text{ T}$ の温度・磁場まで測定を行った。量子振動効果、光電子分光はそれぞれ St. Andrews 大学の A. P. Mackenzie 教授、Stanford 大学の Z. X. Shen 教授らと共同で行った。

4. 研究成果

(1) 単結晶育成 : PdCrO_2 の単結晶育成に世界で初めて成功、大型結晶育成条件の最適化

研究を遂行する上で、純良な大型単結晶を

開発することは極めて重要な課題であった。本研究では、特に以下 2 つの条件、すなわち ①フラックス濃度の条件と、②石英管内真空度の条件に着目し、 PdCrO_2 の単結晶の育成条件を見出して、その最適化に成功した。具体的には、単結晶化には質量比で 4 倍以上のフラックス濃度が必要であることや、高真空環境ほど結晶が大型化する傾向にあることを見出した。この最適化により $1.0 \times 1.0 \times 0.2 \text{ mm}^3$ クラスの単結晶を安定に供給することが可能となり(最大 $2 \times 3.5 \times 0.5 \text{ mm}^3$ の単結晶を得ることに成功した)、本研究課題や共同研究の展開に大きな進展をもたらした。この成果は論文としてまとめ、その詳細を公表した。

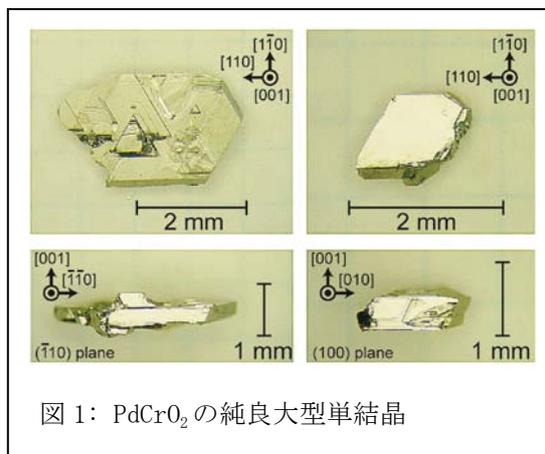


図 1: PdCrO_2 の純良大型単結晶

(2) 磁気構造の研究 : T^* 以下の磁気構造変化と非平面的スピン配置の可能性

同構造の CuCrO_2 や AgCrO_2 では格子周期と非整合なスピン構造が実現することが指摘されていたが、JRR-3 の 3 軸分光器による精密な測定から、 PdCrO_2 では T_N 以下で整合スピン構造が実現することを明らかにした。そして、磁気散乱ピークの温度依存性に T^* 以下で変化があることを明確にした。また、フランス ILL の 4 軸回折計を用いて測定した 2 K と 30 K の磁気散乱ピーク $Q = (1/3, 1/3, L)$ [$L =$ 整数、反整数] の積分強度にも同様に変化を見出した。特に、この変化は、大きな波動ベクトル Q を持つ磁気散乱に大きいこと、そして、磁気反射の位置には大きな変化がないことを見出した。これらの結果は、 T^* 以下でスピン構造に変化がある可能性、特に、スピンの幾何学的相互配置に変化がある可能性を示唆しており、それが異常なホール効果の発現と密接に関係していること示唆している。

基底状態の磁気構造解析の結果、2 つの可能性を得た。すなわち、①右巻き・左巻きの 120 度面が c 軸方向に交互に積層する平面型

120 度構造と、②120 度面が有限の角度で c 軸方向に交互に積層する非平面型 120 度構造の可能性である。これらの構造モデルは、共に実験で得た積分強度を良く再現するが、カイラリティメカニズムを起源とするホール効果との整合性を考えた場合、後者②の磁気構造が確からしい。今後、偏極中性子散乱実験などの手法を駆使して直接、スピン配置の非平面性を研究することが課題である。この結果を含めた中性子散乱の研究成果は、2010、2011 年の物理学会、そして関係する各研究会で発表した。また、論文にもまとめ、近日中に投稿予定である。

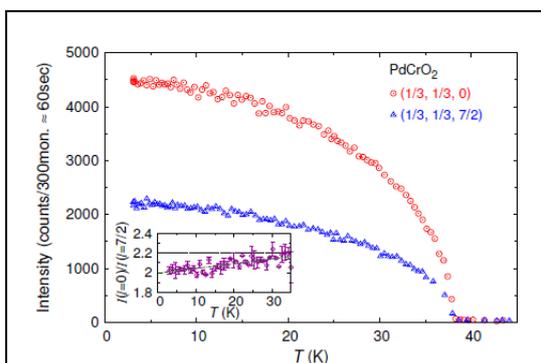


図 2: 磁気散乱ピーク $q = (1/3, 1/3, 0)$, $(1/3, 1/3, 7/2)$ の温度依存性。挿入図はそれらの温度変化を比較したもので、20 K 以下降温に伴って強度の増強具合に変化が生じることが見て取れる

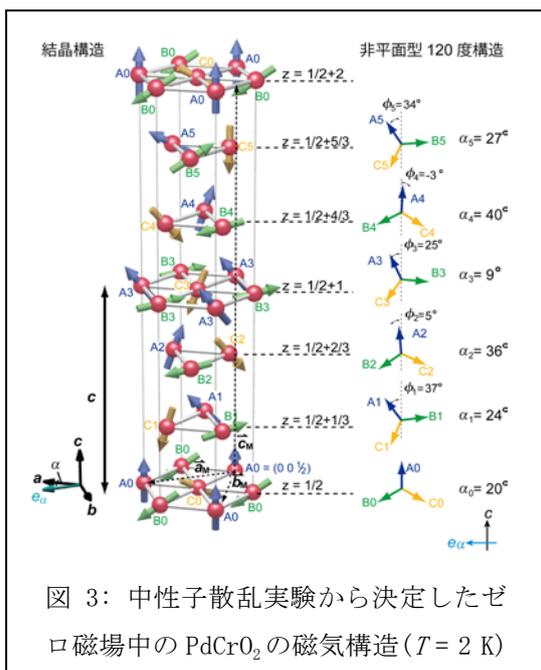


図 3: 中性子散乱実験から決定したゼロ磁場中の PdCrO_2 の磁気構造 ($T = 2 \text{ K}$)

(3) 格子歪みの研究：高分解能・低温粉末 X 線散乱実験

上記のようなスピン構造は、単純な三角格子 Cr スピン間の交換相互作用を考えただけでは実現が難しく、なぜそのような構造が誘発されているのかは自明ではない。興味ある一つの可能性としては低温で結晶構造が変化し、 $S_i \times S_j$ のような高次の項が有限となる可能性が挙げられる。格子ゆがみの発生が T_N での磁気秩序の誘発や T^* での変化を誘発する可能性が予想される。そこで、単結晶を粉末にして低温 X 線粉末散乱実験を行った。実験は Spring-8 の BL02B2 および首都大に備わっている高分解能 X 線散乱装置 SmartLab で行った。

研究の結果、以下 2 点が明らかになった。
① T_N に向けて c 軸方向の格子定数が発散的に変化する負の熱膨張を示すこと、② T 近傍で (110) , (009) ピークが大きく変化することである。これは酸素イオン位置等が変化することを示唆する興味深い結果である。一方、多結晶では、この結果ほど明確な変化は見られなかった。単結晶と多結晶でわずかに組成比が異なることや、単結晶粉砕の影響など実験条件の問題も考えられる。格子歪みは、単結晶にストレインゲージなどを張り付けて、その変化からも検出できるものと予想される。それらの検証を行った後に、この研究成果を論文にまとめる予定である。

(4) 電子構造の研究：角度依存性振動 (AMRO) の観測と巨大磁気抵抗

Cr , Co の両系で ρ_{xx} に明確な AMRO 効果を観測し、共同研究による角度分解光電子分光や理論計算で示唆される六角形の筒状フェルミ面と符合する結果を得ることに成功した。また、面内磁場方向依存性の測定から、磁場を $[1-10]$ 方向に印加した時に、 ρ_{xx} が最も大きく増強されることを明らかにした。これらの結果は、 Cr と Co で類似したフェルミ面を有することを示唆しており、 PdCrO_2 のホール効果がスピン系の変化に関係することを示唆している。

この研究では、さらに興味深い研究成果も得た。すなわち、非磁性系の PdCoO_2 に巨大磁気抵抗効果が実現することを見出した。特に、その値は、スピン揺らぎが強く作用する PdCrO_2 の磁気抵抗よりも大きく、電子系が本来持つ重要な性質であることを示唆している。この研究は、今後続けて展開する予定である。

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4件)

[1]K. Goto, H. Takatsu, T. Taniguchi, H. Kadowaki,
“Absence of Anomalous Negative Lattice-Expansion for Polycrystalline Sample of $Tb_2Ti_2O_7$ ”
J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 015001 (2012). 査読有.

[2]H. Takatsu, H. Kadowaki, T. J. Sato, J. W. Lynn, Y. Tabata, T. Yamazaki, and K. Matsuhira,
“Quantum spin fluctuations in the spin-liquid state of $Tb_2Ti_2O_7$ ”
J. Phys. Condens. Matter **24**, 052201 (2012). 査読有.

[3]H. Takatsu, and Y. Maeno,
“Single crystal growth of the metallic triangular-lattice antiferromagnet $PdCrO_2$ ”
J. Cryst. Growth **312**, 3461 (2010). 査読有.

[4]H. Takatsu, S. Yonezawa, S. Fujimoto, and Y. Maeno,
“Unconventional Anomalous Hall Effect in the Metallic Triangular-Lattice Magnet $PdCrO_2$ ”
Phys. Rev. Lett. **105**, 137201 (2010). 査読有.

[学会発表] (計4件)

[1]高津浩, 門脇広明, 吉沢英樹, Collin Broholm, Yang Zhao, Mark Green, 米澤進吾, 前野悦輝, 金廷恩, 辻成希, 高田昌樹
「三角格子反強磁性体 $PdCrO_2$ の導電性と磁気秩序」
日本物理学会、2011年秋季大会、
2011年9月21日
富山大学(五福キャンパス)

[2]高津浩, 太田真秀, 門脇広明, 吉沢英樹, 米澤進吾, 前野悦輝, 金廷恩, 辻成希, 高田昌樹
「三角格子反強磁性体 $PdCrO_2$ の低温磁気構造」
日本物理学会、第66回年次大会
2010年3月25日
新潟大学(五十嵐キャンパス)

[3]高津浩
「三角格子反強磁性体 $PdCrO_2$ の異常ホール効果」
第39回化合物新材料研究会(招待講演)
2010年12月15日

東京大学・物性研究所(柏キャンパス)

[4]高津浩, 石川洵, 米澤進吾, 前野悦輝, 門脇広明, Xiofeng Xu, Patrick Rourke, Nigel Hussey
「導電性二次元三角格子酸化物 $PdMO_2$ ($M=Co, Cr$) の巨大な磁気抵抗」
日本物理学会、2010年秋季大会
2010年9月25日
大阪府立大学(中百舌鳥キャンパス)

[図書] (計0件)

[産業財産権]
○出願状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

○取得状況(計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織
(1) 研究代表者
高津 浩 (HIROSHI TAKATSU)
首都大学東京・理工学研究科・助教
研究者番号: 60585602

(2) 研究分担者 ()

研究者番号:

(3) 連携研究者 ()

研究者番号: