

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 14 日現在

機関番号：22604

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740240

研究課題名(和文) 三角格子フラストレート磁性金属と非磁性金属の異常伝導性

研究課題名(英文) Anomalous transport properties of the conductive triangular-lattice magnet and a non-magnetic simple metal

研究代表者

高津 浩 (Takatsu, Hiroshi)

首都大学東京・理工学研究科・助教

研究者番号：60585602

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：三角格子反強磁性体PdCrO₂で実現する新奇なホール効果や同構造で非磁性単純金属のPdCoO₂で実現する巨大な磁気抵抗効果について研究を行った。PdCrO₂では磁気構造解析から非平面的なスピン配列とT* = 20 K以下の異常なホール効果の関係を明らかにした。PdCoO₂では、単純金属で実現する巨大な磁気抵抗効果を見出し、それが低次元性を反映したフェルミ面形状と緩和時間の長い伝導電子によって引き起こされる異常な伝導現象であることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have studied the anomalous transport properties of the conductive triangular-lattice antiferromagnet PdCrO₂ and nonmagnetic PdCoO₂. We revealed that PdCrO₂ consists of the noncoplanar spin structure, leading to a finite scalar spin chirality at a local site. This structure is probably related to the emergence of the unconventional anomalous Hall effect of this compound. For PdCoO₂, we discovered the extremely large magnetoresistance that can reach up to 35000% of the zero field resistivity. Based on the semiclassical calculation, we revealed that the observed large magnetoresistance of PdCoO₂ is closely related to the Lorentz-force-driven orbital motion of the high-mobility charge carriers.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：磁性 強相関電子系

1. 研究開始当初の背景

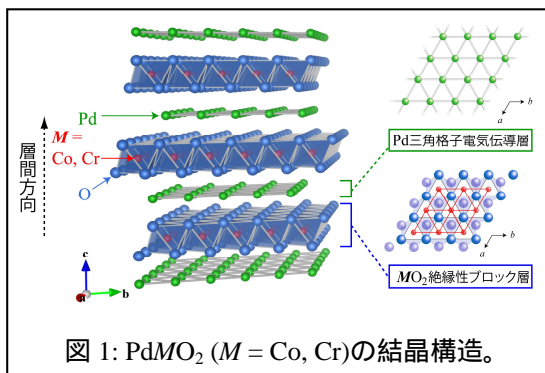
(1) 固体の中の伝導電子が、系の次元性やスピン自由度と結びつくと電気伝導現象の巨大な応答となって現れる。これまで、その理解は電子・スピン・軌道の性質に基づいていたが、フラストレーションが働く金属性の磁性体では、スピン配列のトポロジカルな性質(カイラリティ)が電子系のペリー位相と結びついて巨大な効果となって現れる。特に、その性質はホール効果に現れることが理論・実験の両面から研究され、近年大きな注目を集めていた。

(2) 本研究で取り上げたもうひとつの研究課題「単純な電子構造を持つ非磁性金属で実現する巨大な磁気抵抗効果」の研究背景には非磁性の単純金属 PdCoO₂ で見出した巨大な磁気抵抗効果があった。注目すべきことに PdCoO₂ の電気抵抗の増大は室温においてさえ 6% 程度あり ($\mu_0 H = 10$ T における値)、更に温度を下げると 200 K では 150% にも達することがわかっていた。これまでの常識から考えるとローレンツ力のみが磁気抵抗を支配する非磁性の単純金属の電気抵抗の増大は数% にも満たないため、PdCoO₂ の磁気抵抗効果の起源とその巨大な抵抗変化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における「スピン配列の幾何学性」や「次元性」が電気伝導性に与える巨大な応答を理解すること、そして「非磁性単純金属で実現する巨大な磁気抵抗効果」を理解し、その実態を明らかにすることである。

具体的には、三角格子反強磁性体の PdCrO₂ で実現する異常なホール効果と、同構造で非磁性系の PdCoO₂ で実現する巨大な磁気抵抗効果を取り上げ、伝導電子とフラストレート磁性スピンの相互作用の実態や、単純金属の枠組みで実現する巨大磁気抵抗の実態の解明を目指して研究を行った。



3. 研究の方法

本研究の遂行には以下の方法・アプローチで臨んだ。

(1) 単結晶育成

これまでに申請者が確立したフラックス法により PdCrO₂ と PdCoO₂ の単結晶を自ら育成して研究に臨んだ。

(2) フラストレート磁性導電体のホール効果と中性子散乱による磁気構造の研究

PdCrO₂ の単結晶を用いた中性子散乱実験の結果から磁気構造を決定した。そして $T^* = 20$ K 以下で起きる異常なホール効果と磁気構造の関係を吟味した。

(3) 非磁性単純金属の巨大磁気抵抗の研究

PdCoO₂ の純良な単結晶 (RRR=120) を使い、導電面 (ab 面) 内に磁場をかけた時の c 軸方向の電気抵抗を $T = 2 - 200$ K, $\mu_0 H = 0 - 14$ T の範囲で詳細に調べた。また、大阪市立大学の吉野治一准教授、村田恵三教授、広島大学の獅子堂達也助教、大阪大学の小口多美夫教授らと共同研究を行って磁気抵抗を半古典的なボルツマン方程式から数値的に解析し、PdCoO₂ で実現する巨大な磁気抵抗の起源を調べた。

4. 研究成果

本研究では、三角格子フラストレート磁性導電体 PdCrO₂ の反強磁性秩序化温度 $T_N = 37.5$ K 以下における磁気構造を決定し、異常なホール効果との関係を明らかにした。

また、非磁性単純金属 PdCoO₂ の磁気抵抗が最大で 350 倍 (35000%) にも達することを見出し、その巨大な抵抗増大がパラジウム層内に閉じ込められた 2 次元電子が受けるローレンツ力に起因することを実験と計算の両面から明らかにした。すなわち単純金属における 2 次元電子のダイナミクスが巨大な磁気抵抗効果となって現れることを見出した。

(1) 単結晶育成と共同研究の展開

本研究の遂行には PdCrO₂ と PdCoO₂ の純良な単結晶が必要不可欠であったが、純度の良い原料を用いることやフラックス量の調整を行うことにより純良な単結晶の安定供給に成功した。また、それらの単結晶を用いて国内外における共同研究を展開した。例えば、量子振動効果や角度分解光電子分光の共同研究では PdCrO₂ と PdCoO₂ のフェルミ面を決定することに成功し、これらの物質の電子状態と異常な電気伝導性の関係を実験的に明らかにすることができた(主要論文[2,5])。

(2) 三角格子フラストレート金属 PdCrO₂ のホール効果と磁気構造

PdCrO₂ は $T^* = 20$ K 以下で非従来の異常ホール効果を示す。本研究では、PdCrO₂ の結晶構造の対称性から規約表現による磁気構造解析を行った。特に、本解析により対称性を考慮したスピン配列を見出すことに成功し、この物質の異常なホール効果と磁気構造

の関係性を明らかにした。

磁気ブラッグ散乱の強度を再現する磁気構造モデルには 2 つの可能性が見出された。ひとつはカイラリティメカニズムを支持する非平面磁気構造で 120 度スピン面が有限の角度で c 軸方向に交互に積層するモデルである。もうひとつは平面磁気構造で 120 度面が平面的に積層するモデルである。 T^* において磁気ブラッグ散乱の強度比にわずかな変化があらわれること、そして比熱にも T^* でブロードな変化があらわれることをあわせて考えると PdCrO_2 の基底状態の磁気構造は異常ホール効果を生み出す非平面スピン配列が実現することが示唆される。すなわち、 T^* では平面的な磁気構造から非平面的な磁気構造にわずかに変化し、その影響がホール効果に現れる可能性が考えられる。この結果は論文としてまとめ、Physical Review B 誌にその詳細を公表した(主要論文[1])。

(3) 非磁性金属 PdCoO_2 の巨大磁気抵抗

PdCoO_2 は酸化物の中でも珍しく伝導電子を豊富に持ち、その電子状態は非常に単純で、磁気的にも非磁性である。一方、パラジウム原子の層とコバルト - 酸素の層が交互に並んだ積層構造を持つため、伝導電子がパラジウム原子の層に閉じ込められた二次元的な電子状態が実現している系として注目された。

本研究では、面内方向に磁場を印加した時の層間 (c 軸) 方向の電気抵抗を詳細に測定した。その結果、磁場による電気抵抗変化が磁性体多層膜の抵抗変化に匹敵するほど増大すること、すなわち、磁気抵抗率 ρ_{xx} / ρ_0 の増強が最大で 35000% にも達することを見出した(2 K, 14 T の値)。この変化は特に $H // [1-10]$ に対して大きくなることも明らかにした。一方、各温度における ρ_{xx} / ρ_0 の磁場依存性は Kohler 則に従って単一の振る舞いにスケールできることがわかった。つまり、フェルミ面上の電子の緩和時間が磁場・温度によらず単一の緩和時間で表されることがわかり、単純な伝導メカニズムで非常に大きな抵抗変化が生じる可能性が浮き彫りとなった。

磁気抵抗を半古典的なボルツマン方程式から数値的に解析したところ、この物質の巨大磁気抵抗にはパラジウム層内に閉じ込められた 2 次元電子が受けるローレンツ力に起因することがわかった。つまり、低次元性を反映したフェルミ面形状と非常に長い緩和時間を持った伝導電子が単純金属で巨大な磁気抵抗を生み出すことに重要な役割を担っていることが明らかとなった。

本成果の詳細は論文として Physical Review Letters 誌にその詳細を公表した(主要論文[3])。そして、その論文は Physical Review Letters 誌の Editors' suggestion に選えられ、Physics 誌にも Synopsis として解説記事 "The 35000% Solution" が掲載されるに至った。今

後同様な系での実験により同じメカニズムでの巨大な磁気抵抗効果を示す物質の開発など、物質科学的な側面での研究展開が期待される。

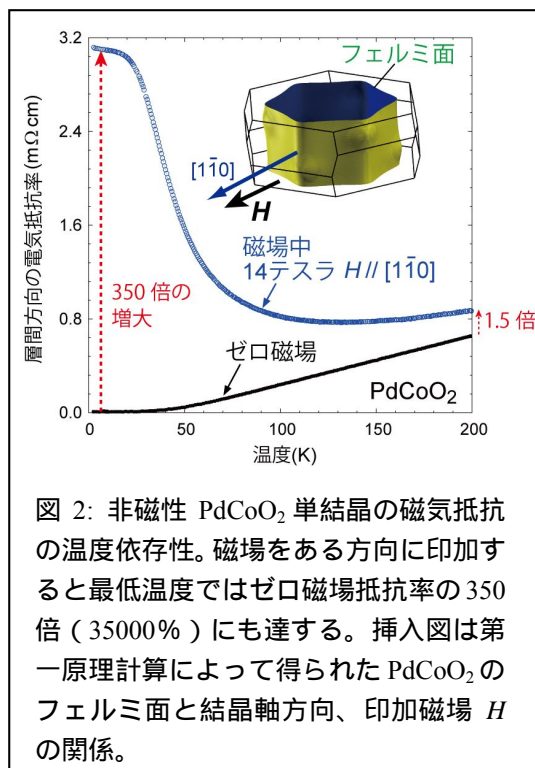


図 2: 非磁性 PdCoO_2 単結晶の磁気抵抗の温度依存性。磁場をある方向に印加すると最低温度ではゼロ磁場抵抗率の 350 倍 (35000%) にも達する。挿入図は第一原理計算によって得られた PdCoO_2 のフェルミ面と結晶軸方向、印加磁場 H の関係。

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 5 件)

[1] H. Takatsu, G. Nenert, H. Kadowaki, H. Yoshizawa, M. Enderle, S. Yonezawa, Y. Maeno, J. Kim, N. Tsuji, M. Takata, Y. Zhao, M. Green, and C. Broholm,

"Magnetic structure of the conductive triangular-lattice antiferromagnet PdCrO_2 "

Physical Review B **89**, 104408 (2014).

査読有

[2] J. A. Sobota, K. Kim, H. Takatsu, M. Hashimoto, S.-K. Mo, Z. Hussain, T. Oguchi, T. Shishidou, Y. Maeno, B. I. Min, and Z. X. Shen,

"Electronic Structure of the Metallic Antiferromagnet PdCrO_2 Measured by Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy"

Physical Review B **88**, 125109 (2013).

査読有

[3] H. Takatsu, J. J. Ishikawa, S. Yonezawa, H. Yoshino, T. Shishidou, T. Oguchi, K. Murata, and Y. Maeno,

"Extremely Large Magnetoresistance in the Nonmagnetic Metal PdCoO_2 "

Physical Review Letters **111**, 056601 (2013).

査読有

[4] 米澤進吾、高津浩

“巨大な磁気抵抗効果を示す単純金属”
工業材料 2014 年 1 月号【特集】次代を拓く
工業材料キーワード 32, 日刊工業材料
新聞
査読無

[5] C. W. Hicks, A. S. Gibbs, A. P. Mackenzie, H. Takatsu, Y. Maeno, and Edward A. Yelland,
“Quantum Oscillations and High Carrier
Mobility in the Delafossite PdCoO₂”
Physical Review Letters **109**, 116401 (2012).
査読有

〔学会発表〕(計 2 件)

[1]H. Takatsu, K. Matsuyama, S. Tomiyoshi and
H. Kadowaki
“Anomalous Hall effect of the itinerant
antiferromagnet”
The international conference on Highly
Frustrated Magnetism 2012
2012 年 6 月 4-8 日
McMaster University (Canada, Toronto)

[2]高津浩、渡邊邦彦、後藤和基、門脇広明
「パイロクロア磁性体 Nd₂Ir₂O₇ の異常な負の
熱膨張」
日本物理学会、2013 年秋大会、
2013 年 9 月 25-28 日
徳島大学(常三島キャンパス)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 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 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

雑誌論文の項で挙げた主要論文[3]は Physical
Review Letters 誌の Editors' suggestion に選え
られ、Physics 誌にも Synopsis として解説記
事"The 35000% Solution "が掲載された。
[http://physics.aps.org/synopsis-for/10.1103/Ph
ysRevLett.111.056601](http://physics.aps.org/synopsis-for/10.1103/PhysRevLett.111.056601)

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：