

フラストレーション系 $R_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ の 金属絶縁体転移と磁気伝導

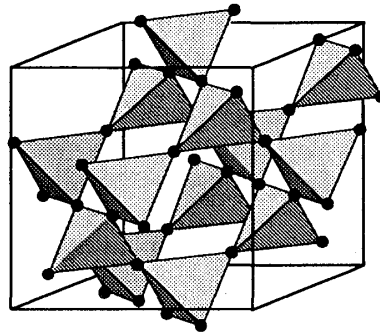
東京大学大学院工学系研究科 田口 康二郎¹, 十倉 好紀

幾何学的フラストレーションを有するパイロクロア型モリブデン酸化物における強磁性金属-スピングラス絶縁体転移と、強磁性金属相における異常ホール効果について調べた。金属絶縁体転移に際し、基底状態での電子構造は、強い電子間相互作用を反映して 1 eV という大きなエネルギースケールで再編成する。強磁性金属においては、絶対零度にむけて増大する異常ホール効果が観測された。このような振る舞いは、異常ホール効果に関する既存の理論や実験結果と全く異なるものであるが、スピнкаイラリティとそれから生じるベリー位相を用いた理論によって自然に説明されるものである。

1 はじめに

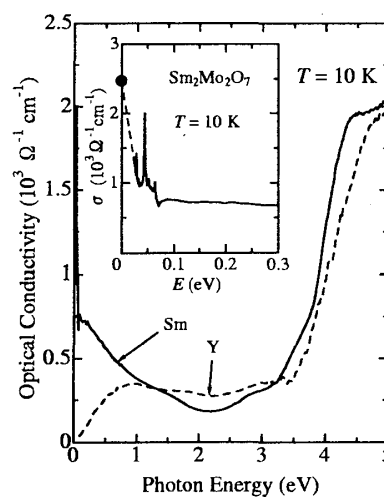
パイロクロア型構造 $A_2B_2O_7$ は A-サイトおよび B-サイトの 2 つの副格子から構成されるが、このそれぞれは、図 1 に示すように、頂点共有で連なった正四面体からなっており、いわばカゴメ格子の三次元版となっている。このため、スピン間に反強磁性的な相互作用が働く時、いわゆる幾何学的なフラストレーションが生じる [1]。また最近、相互作用が強磁性的な場合でも、強い一軸異方性のあるときフラストレーションが生じることが指摘されている [2, 3]。B-サイトがモリブデンであるとき、A-サイトの希土類イオンを変えることにより、スピングラス絶縁体から強磁性金属へと転移することが知られている [4]。モリブデンイオンの価数は常に 4 価、すなわち電子配置は $4d^2$ であり、希土類イオンを変えることは $4d$ 電子の一電子バンド幅を変えることに相当し、これによってモット転移が起っているものと考えられる。この金属絶縁体転移に伴う電子構造の変化を光学測定によって明らかにした。また、強磁性金属相の試料においては、強磁性金属に特有な異常ホール効果が観測されたが、この温度依存性は低温にむけて増大するというもので、通常の強磁性金属において見られる振る舞いや、既存の理論の予言とは逆の温度依存性である。

¹E-mail:taguchi@ap.t.u-tokyo.ac.jp

図 1: パイロクロア構造 $A_2B_2O_7$ における B サイト副格子

2 強磁性金属-スピングラス絶縁体転移

図 2 に 10 K における $\text{Sm}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ と $\text{Y}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ の光学伝導度を示す。 $\text{Sm}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ ($\text{Y}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$) は金属 (絶縁体) であり、70 K (22 K) 付近で強磁性 (スピングラス) に転移する。 3 eV 以上の構造は O 2p から Mo 4d への電荷移動型遷移であり、どちらの物質でも同じような構造をしている。3 eV 以下の吸収帯が Mo 4d 軌道間の遷移であり、このエネルギー領域では両者は著しく異なったスペクトルを呈している。 $\text{Y}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ の場合には、絶縁体であることを反映して、 $\hbar\omega \rightarrow 0$ eV で光学伝導度はゼロになっているが、ギャップの大きさは 0.05 eV 程度の小さな値である。一方、金属の $\text{Sm}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ の場合には、Y の場合の 1 eV から 3 eV くらいまでの振動子強度が 1 eV 以下に移っており、金属的なスペクトルの形状を示している。しかしながら、図のインセットに示したように、輸送現象に寄与する低エネルギー部のウェイトは極めて小さく、0.1 eV 以上の中赤外領域に強い吸収が続いている。このような吸収は、銅酸化物高温超伝導体をはじめとするモット転移近傍

図 2: $T=10$ K における $\text{Sm}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ (実線) と $\text{Y}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ (破線) の光学伝導度。インセットは $R = \text{Sm}$ の場合の低エネルギー部の拡大図で、黒丸は直流の電気伝導度。

の 3d 遷移金属酸化物においては共通して見られるもので [5]、4d 電子系の $\text{Sm}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ においても強い電子間相互作用が重要であることを示している。また、希土類を変えたことによる電子構造の変化が 3 eV もの高エネルギーにまでおよんでいることも、強相関電子系であることの証拠である。

3 強磁性金属相における異常ホール効果

強磁性体においては、ホール抵抗率 ρ_{xy} は一般に

$$\rho_{xy} = R_o B + 4\pi R_s M. \quad (1)$$

と書ける。ここに、 B 、 M 、 R_o 、 R_s はそれぞれ磁束密度、磁化、正常ホール係数、異常ホール係数である。上式において第二項が異常ホール効果を表わすが、低温にむけて R_s はゼロになる、または小さくなるのが多くの強磁性金属に対して観測されている [6, 7, 8, 9]。また、理論的にもそのような温度依存性が予言されている [10, 11]。 $\text{Sm}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ において低温に向けて増大する異常ホール効果が存在するを我々は既に報告した [12]。図 3 に、キュリー温度 89 K の $\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ 単結晶試料における ρ_{xy} を磁場に対してプロットした。どの温度においても、 ρ_{xy} は磁場に対して非線型であり、これは異常項が支配的であることを示している。また低磁場で正常項は無視できるので、例えば 0.5 T での ρ_{xy} の値は、異常項の大きさを表わすと考えてよい。これは、図から明らかなように、キュリー温度以下、最低温の 2 K まで増大し続ける。従って、この系における異常ホール効果は、多くの物質系における実験結果や既存の理論の予言とは全く異なるものである。このような振る舞いは、最近提唱されているベリー位相を用いた理論 [13, 14, 15] によって理解することができる。この理論によれば、伝導電子がスピンのバックグラウンドの中をフロント

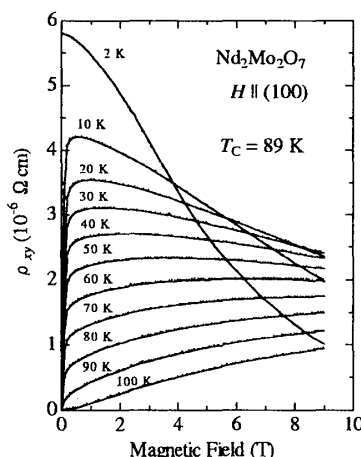


図 3: キュリー温度 89 K の $\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ 単結晶における ρ_{xy} の磁場依存性。磁場は結晶の (100) 方向にかけている。

結合で強く相互作用しながら動く時、スピнкаイラリティーに比例する仮想磁場を感じ、

これが異常ホール効果として観測される。実際、この物質においては低温でスピンの傾く事が中性子回折で確認されており [16]、これによって絶対零度にむけて増大しつづける異常ホール効果が生じているものと考えられる。

参考文献

- [1] For reviews, A. P. Ramirez, *Annu. Rev. Mater. Sci.* **24**, 453 (1994); P. Schiffer and A. P. Ramirez, *Comments Cond. Mat. Phys.* **18**, 21 (1996).
- [2] M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow, T. Zeiske and K. W. Godfrey, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2554 (1997).
- [3] A. P. Ramirez, A. Hayashi, R. J. Cava, R. Siddharthan, and B. S. Shastry, *Nature* **399**, 333 (1999).
- [4] N. Ali, M. P. Hill, S. Labroo, and J. E. Greedan, *J. Solid State Chem.* **83**, 178 (1989).
- [5] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
- [6] J. P. Jan and J. M. Gijsman, *Physica* **18** 339 (1952).
- [7] R. S. Lee and S. Legvold, *Phys. Rev.* **162** 431 (1967).
- [8] P. Matl *et al.*, *Phys. Rev. B* **57** 10248(1998).
- [9] C. H. Chun, M. B. Salamon, Y. Tomioka, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **61** R9225 (2000).
- [10] R. Karplus and J. M. Luttinger, *Phys. Rev.* **95** 1154 (1954).
- [11] J. Kondo, *Progr. Theoret. Phys.(Kyoto)* **27** 772 (1962).
- [12] Y. Taguchi and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **60**, 10280 (1999).
- [13] J. Ye *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **83** 3737 (1999).
- [14] K. Ohgushi, S. Murakami, and N. Nagaosa, to be published in *Phys. Rev. B (cond-mat/9912206)*.
- [15] 村上 修一、本号記事。
- [16] Y. Oohara, H. Yoshizawa, Y. Taguchi, and Y. Tokura, unpublished.