パイロクロア型イリジウム酸化物において磁場印加 方向に敏感な金属・絶縁体転移を発見

国際超強磁場科学研究施設 小濱 芳允、金道 浩一 量子物質研究グループ Tian Zhaoming、中辻 知

研究の背景

バンド理論によると、伝導バンドが電子によって半占有 されていると物質は必ず金属となる。しかしながら電子の 運動エネルギーに対してクーロン斥力項が大きくなった場 合、各原子サイトに電子が局在化し、伝導バンドが半占有 された状態にあっても絶縁相が出現する。このような物質 はモット絶縁体と呼ばれており、このモット絶縁体に対し て圧力印加や化学的置換などを行うことで、金属状態への 相転移(金属・絶縁体転移)を引き起こすことができる。 この金属・絶縁体転移)を引き起こすことができる。 この金属・絶縁体転移近傍では、高温超伝導や非フェルミ 液体現象など、興味深い物性が発現することが知られてい る。

この金属・絶縁体転移を、扱いやすい外場である"磁場" をモット絶縁体に印加することで誘起できればとても興味 深い。しかし、電荷ギャップはクーロン斥力によるため、 1 eV のオーダーとなり、磁場では到底実現できないのが 通常である。我々は金属・絶縁体転移温度(T_{M1})が系統的 に変化するパイロクロア型イリジウム化合物 $R_2Ir_2O_7$ に着 目し(R = Ho, By, Tb, Gd, Eu, Sm, Nd の場合 T_{M1} = 141, 134, 132, 127, 120, 117, 33 K)、最も T_{M1} と電荷ギャップ (~45 meV)が小さな Nd₂Ir₂O₇ において磁場誘起金属・絶 縁体転移の観測を試みた。その結果、Nd₂Ir₂O₇ において、 10 T という極めて小さな磁場で金属・絶縁体転移を誘起 できること、さらにその臨界磁場は磁場印加方向に大きく 依存することを見出し、特に[001]方向に磁場を印加した 時に 10 T 程度の弱磁場でも金属・絶縁体転移が起こるこ とを発見した。

図 1(a)に Nd₂Ir₂O₇の結晶構造を示す。パイロクロア格 子(A₂B₂O₇)の A サイトを占める Nd³⁺イオンおよび B サイ トを占める Ir⁴⁺イオンはどちらも磁性を担っており、それ ぞれの磁気モーメントは 2.4 および 0.1-0.2µB である。こ れらの磁気モーメントは $T_N = 33$ K の反強磁性相転移と共 に、ゼロ磁場では全てのモーメントが四面体の内側もしく は外側に向いた all-in all-out (AIAO)構造へと転移する (図 1(b))。磁場を[111] 方向に印加すると、3つのスピンが 内側に向き 1 つのスピンが外側に向いた 3in-1out 構造 (3I1O)の出現が予想される(図 1(c))。そして磁場を[001] 方向に印加した時は、2 つのスピンが外側そして内側に向 いた 2in-2out 構造(2I2O)の出現が期待できる(図 1(d))。 一方 Nd₂Ir₂O₇ の電気伝導性は、Nd³⁺イオンの寄与は無く、 専ら Ir⁴⁺の 5d 電子由来の伝導バンドを起源とする。ゼロ 磁場下ではこの伝導バンドにより金属的な性質を示すが、 $T_N = 33 \text{ K}$ の磁気転移(AIAO 構造の出現)と共に絶縁体 となる。この 5d 電子由来の電子状態は磁気構造と相関が あり、磁場そして磁場印加方向により磁気構造をコント ロールすることで Nd₂Ir₂O₇ の電気伝導性を制御可能とな る。



図 1 (a) パイロクロア化合物の結晶構造(青丸:Nd イオン、赤丸:Irイオン、紫Oイオン)。(b) ゼロ磁場下で期待される all-in all-out 構造(AIAO)。(c) *H*//[111]で期待される 3in-1out 構造(3I1O)。(d) *H*//[001]で期待される 2in-2out 構造(2I2O)。

実験結果

本研究に用いた Nd₂Ir₂O₇ 単結晶は、フラックス法によ り育成した。フラックス法により単結晶試料を育成した場 合、粉末サンプルと比べて Ir と Nd の比率を調節するのが 難しく、測定に用いた試料は Nd/Ir 比に~2%程度のずれを 持つ(現在得られる最も良い単結晶試料でも Nd/Ir 比は ~1% ずれる)。この Nd/Ir 比が~2% ずれている単結晶試料 の電気抵抗の温度依存性を図 2(a)挿入図に示す。組成ずれ が無い Nd₂Ir₂O₇ 粉末サンプルの相転移温度(T_N = 33 K)と 比べると、金属・絶縁体転移はおよそ 20 K に減少してい るが、それでも T_N で抵抗率はおよそ 3 桁上昇する。この ため、Nd/Ir 比が~2%程度ずれているサンプルにおいても Nd₂Ir₂O₇ における金属・絶縁体転移の本質をとらえてい ると考え、磁気抵抗と磁化の測定を行った。

図 2(a)およびその挿入図に、定常磁場およびパルス磁場 下で得られた抵抗の磁場変化および温度変化を示す。この 図に見られるように、~10 T の磁場を[001]方向に印加す ることで金属・絶縁体転移を誘起できる。これは、電荷 ギャップが 500 K程度4であることを考えると、2桁程度 小さなエネルギースケールの磁場で、ギャップを消失させ たことになる。図2(b)は様々な温度や磁場下での抵抗測定 から得られた、H//[001]の磁場・温度相図である。一般的 な反強磁性相で見られるように、T_Nは磁場の印加により 単調減少していることが確認できる。この金属・絶縁体転 移の振る舞いは、磁場印加方向を[001]から[110]方向に傾 けることで大きく変化する(図 2(b))。[001]方向からおよ そ15°磁場印加方向を変化させると、3桁程度の大きな負 の磁気抵抗は消失し、H//[110]方向ではヒステリシス現象 も見られなくなる。これらのデータは、立方晶のパイロク ロア化合物で異方的な磁気抵抗が存在し、H//[001]方向の み金属・絶縁体転移を抑制できることを示している。この ような磁気抵抗の角度変化から得られた磁場・温度相図を 図 2(d)に示す。H//[001]方向では磁場印加により金属相が 誘起されるが、印加磁場が[001]方向からずれると金属・ 絶縁体転移は起こらない。

この異方的な磁気抵抗は、磁場印加方向によって、異な る磁気構造が出現しているためと理解できる(図 1(b)-(d))。 実際、我々の磁化測定から *H*//[001], *H*//[111], *H*//[110]の とき飽和磁化の大きさがそれぞれ 1.4, 1.2, 1.1 µg/Nd と なっていることが判っており、これは Nd モーメント (2.37µB)が四面体の中でイジング的にふるまったときに 期待できる磁化の飽和値と一致する(*H*//[001], *H*//[111], *H*//[110]のとき 1.4, 1.2, 0.9 µg/Nd が予想される)。これか ら、図 1(b-d)にあるように、*H*//[001]では Nd モーメント が 2I2O構造、*H*//[111]および *H*[110]では 3I1O構造を取っ ていることを実験的に確認した。このような複数の磁気構 造をもつ Nd の磁気モーメントと、遍歴性を持つ Ir5d 伝 導電子にとの間に相互作用があれば、Nd モーメントの磁 気構造の変化により Ir5d 電子物性も変化が期待できる。 議論の詳細は原論文に委ねるが[1]、局在したNdのモーメ ントとIrの5d電子間の相互作用(近藤相互作用)を取り 入れることにより、H//[001]方向ではギャップが閉じた金 属状態になること、H//[111]方向ではギャップが開いたま まで絶縁体となることを理論的に示した。従って、 Nd₂Ir₂O₇で観測された磁場印加方向に敏感な磁気抵抗は 磁気秩序の磁場変化が原因であると考えられる。



図 2 (a) Nd₂Ir₂O₇の磁気抵抗(*H*//[001])。挿入図:抵抗の温度依存 性。(b) *H*//[001]における Nd₂Ir₂O₇の磁場・温度相図。(c) 2 K に おける磁気抵抗の角度変化。(d) Nd₂Ir₂O₇の角度・磁場相図。

まとめ

本稿で紹介した Nd₂Ir₂O₇ における異方的な金属・絶縁 体転移は、特にスピン・軌道相互作用が大きな 5d 電子を 持つモット絶縁体の金属・絶縁体転移を理解する上で重要 と考えられる。未解決の課題は幾つかあり、例えばパイロ クロア型イリジウム化合物で示唆されているワイル金属状 態[4]が Nd₂Ir₂O₇ において実現しているかに興味が持たれ る。これについては様々な研究が展開されているが、例え ば極限コヒーレント光科学研究センターでは、Nd₂Ir₂O₇ と類似の電子状態を持つ Pr₂Ir₂O₇ において接している四準 縮退点(フェルミノード)を観測している[6]。さらに最近 では、このフェルミノードが Nd₂Ir₂O₇ の常磁性金属状態 においても確認された[7]。このフェルミノード状態で AIAO 秩序を示すと、理論的にはワイル半金属状態となる ことが予想されており[5]、Nd₂Ir₂O₇ の低磁場相はワイル 半金属状態と考えるのが妥当と考えられている。今後は ホール効果や量子振動の観測などにより、Nd₂Ir₂O₇のワ イル半金属状態を実証できる研究が待たれている。

謝辞

本研究は東京大学物性研究所中辻研究室の冨田崇弘博士、 石川洵様、カリフォルニア大学の石塚大晃博士、T.H. Hsieh 博士、L. Balents 博士らを含めた共同研究の成果で す。特に理論計算は、石塚大晃博士、T.H. Hsieh 博士、 L. Balents 博士らにより行われており、また多くの有用な アドバイスを頂きました。中辻研究室の冨田崇弘博士、石 川洵様らには試料合成や実験結果への議論など、様々な面 で協力を頂きました。そして極限環境物性研究部門の長田 俊人先生にはプラスチック製回転プローブの製作時に、有 益な助言を頂きました。皆様に、この場を借りてお礼申し 上げます。

- Z. Tian, Y. Kohama, T. Tomita, H. Ishizuka, T. H. Hsieh, J. Ishikawa, K. Kindo, L. Balents, and S. Nakatsuji, *Nature Physics* 12 134 (2016).
- [2] Z. Tian, Y. Kohama, T. Tomita, H. Ishizuka, T. H. Hsieh, J. Ishikawa, H. Mario, K. Kindo, and S. Nakatsuji, *Journal of Physics: Conference Series* 683, 012024 (2016).
- [3] 小濱芳允, Zhaoming Tian, 冨田崇弘, 石川洵, 金道浩一, 中辻知, 石塚大晃, *固体物理* 51 339 (2016).
- [4] K. Ueda, J. Fujioka, Y. Takahashi, T. Suzuki, S. Ishiwata, Y. Taguchi, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 136402 (2012).
- [5] X. Wan, A. M. Turner, A. Vishwanath, and S. Y. Savasov, *Phys. Rev. B* 83 205101 (2011).
- [6] T. Kondo, M. Nakayama, R. Chen, J. Ishikawa, E. –G. Moon, T. Yamamoto, Y. Ota, W. Malaeb, H. Kanai, Y. Nakashima, Y. Ishida, R. Yoshida, H. Yamamoto, M. Matsunami, S. Kiura, N. Inami, K. Ono, H. Kumigashira, S. Nakatsuji, L. Balents, and S. Shin, *Nature Communications* 6, 10042 (2015).
- [7] M. Nakayama, Takeshi Kondo, Z. Tian, J. J. Ishikawa, M. Halim, C. Bareille, W. Malaeb, K. Kuroda, T. Tomita, S. Ideta, K. Tanaka, M. Matsunami, S. Kimura, N. Inami, K. Ono, H. Kumigashira, L. Balents, S. Nakatsuji, and S. Shin, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 056403 (2016).