

題目：レーザー励起光電子分光による LiV_2O_4 の電子状態の研究

学籍番号：46125：辛研究室 下山田篤史

[研究背景]

3d遷移金属化合物 LiV_2O_4 の重いフェルミ液体的な振る舞いの観測は、d電子系で初めてHeavy Fermion (近藤f電子系で見られる)の形成を指摘する実験報告であった [1]。特徴的な温度 $T^*=20\text{K}$ 以下における電気抵抗、比熱、帯磁率の振る舞い [2]は、f電子系におけるHeavy Fermion状態のものと似ている。Anisimovらは LiV_2O_4 における A_{1g} バンドを”局在バンド”、 E_g バンドを”遍歴バンド”とみなすことで近藤効果によるHeavy Fermion状態の可能性を主張した。しかしながら、LDAバンド計算では A_{1g} のシングルバンド、2重縮退した E_g バンドは共にフェルミ準位(E_F)をよぎっており、それぞれのバンド幅は1eVと2eVである。従って、 LiV_2O_4 では、f電子系ほどの”局在”、”遍歴”バンドの明確な区別がないため、単純な近藤シナリオでは説明できないとの指摘がなされてきた。

LiV_2O_4 のもう一つの特徴は、そのスピネル構造からくる幾何学的磁気フラストレーションである。そのために、 LiV_2O_4 は $T=0.02\text{K}$ まで長距離磁気秩序やスピングラス秩序を起こさないことが報告されている [1]。更に、中性子散乱、 μSR の実験は $T \ll T^*$ においても短距離相関をもった局在磁気モーメントが残っていることを報告している。これらの結果に基づき、動的なスピン揺らぎの役割が、 LiV_2O_4 の異常な熱、磁気、輸送特性を説明するために議論されてきた。

本研究では、 E_F 近傍の電子構造を調べる事が出来る高分解能光電子分光を実験手法に用いて、 LiV_2O_4 の重いフェルミ液体的な振る舞いが電子構造にどう反映されるかを調べ、その起源についての知見を得ることを目的とする。

[実験]

・実験条件

試料は単結晶 LiV_2O_4 、及び多結晶 $\text{Li}_{1-x}\text{Zn}_x\text{V}_2\text{O}_4$ (Zn 0%、5%、30%) を用いた。光源にはエネルギー6.994eVのレーザー光源を用いた。清浄表面を得るために、試料は測定直前に超高真空下で破断した。測定時の真空度は 5.0×10^{-11} Torrである。試料のフェルミ準位は真空中で試料基盤上に蒸着した金のフェルミ端で決定し、その測定誤差は $\pm 0.25\text{meV}$ 程度である。

・結果と考察

図1は単結晶 LiV_2O_4 の光電子スペクトルの温度変化である。スペクトルは35-50meVのBinding Energy (E_B)における光電子強度で規格化されている。挿入図は同じ E_B 範囲に

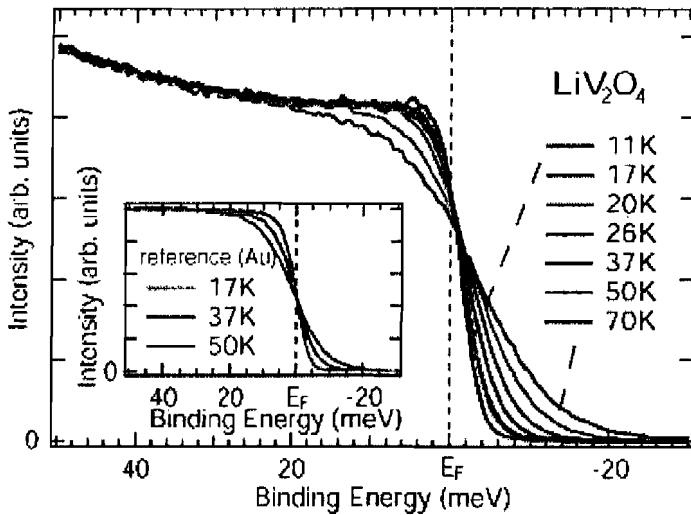


図 1. LiV_2O_4 の光電子スペクトルの温度変化。スペクトルは 35-50meV の Binding Energy における光電子強度で規格化されている。挿入図は参照物質である金の光電子スペクトルの温度変化。

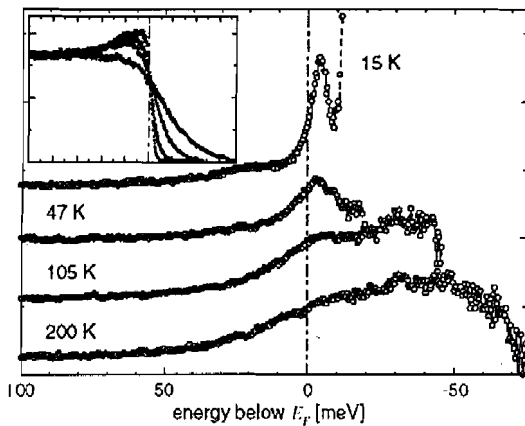


図 3. CeCu_2Si_2 の光電子スペクトルの温度変化 (ref. [3])

値全幅4meVのガウス関数で畳み込んだ) で割った結果である。スペクトルはSN比が十分な E_F 上 $3k_B T$ まで示してある。挿入図は金のスペクトルで、全 E_B 領域で一定である。

26K以上の高温領域では $E_B = -4\text{meV}$ 程度のエネルギー位置に幅10meV程度の鋭いピーク構造が見られ、20K以下の温度領域ではピークの裾が見られる。低温になるにつれて幅は狭くなり、高さは増大するといったピーク構造の温度変化は CeCu_2Si_2 において観測されている近藤レゾナンス(図3)に似ている。従って、重いフェルミ液体的振る舞いの起源として近藤シナリオの可能性が示唆される。

における金の光電子スペクトルの温度変化である。金のスペクトル端は E_F 上の中点で交わり、フェルミ・ディラック分布関数に従う。一方で、 LiV_2O_4 のスペクトル端は非占有 ($E_B < 0$) 状態側に交点をもち、裾を引く。これは非占有状態側に多くの状態が存在することを示唆する。これらのスペクトルにおける温度変化の特徴は近藤重い電子系化合物

CeCu_2Si_2 のスペクトルの温度変化に似ている(図3)。

図2は、図1の各温度における光電子スペクトルを、分解能を考慮したフェルミ・ディラック分布関数 (半

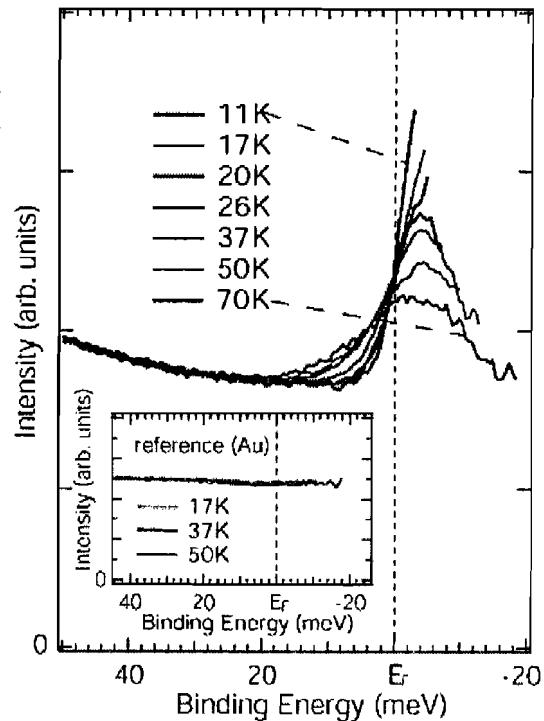


図 2. 畳み込まれたフェルミ・ディラック分布関数で割られた光電子スペクトルの温度変化。挿入図は金のスペクトルの温度変化。

最後に、多結晶 $\text{Li}_{1-x}\text{Zn}_x\text{V}_2\text{O}_4$ (Zn 0%、5%、30%)の物性と光電子分光実験結果について述べる。

図4は多結晶試料 $\text{Li}_{1-x}\text{Zn}_x\text{V}_2\text{O}_4$ において帯磁率の測定から得られた磁気相図である [2]。高Znドープ領域($x=0.9\sim 1$)では高温の常磁性状態から降温とともに構造転移(立方晶から正方晶へ)を経て、反強磁性状態へと転移する。低Znドープ領域($x=0.1\sim 0.9$)では高温における常磁性状態から低温でのスピングラス状態へと転移する。

伝導に関しては、 $\text{Li}_{1-x}\text{Zn}_x\text{V}_2\text{O}_4$ 多結晶を用いたマイクロ波光学伝導度の実験報告(図5)がある。 $x\sim 0.3$ より高ドープ域では、伝導度は半導体的な振る舞いを示し、 $x\sim 0.3$ より低ドープ域では、金属的な振る舞いをしていることから $x\sim 0.3$ 付近で金属・絶縁体転移が起こると報告されている [4]。

Zn0%の重いフェルミ液体的な振る舞いは電子構造において、鋭いピーク構造に反映されることが分かった。そこで、Znを5、30%ドープした際に、電子構造がどのように変化し、その物性をどう反映するかを調べるために、光電子分光実験を行ったので、その結果について触れる。

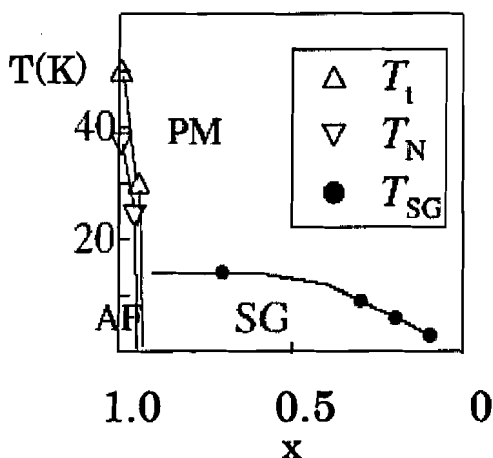


図 4. 多結晶試料 $\text{Li}_{1-x}\text{Zn}_x\text{V}_2\text{O}_4$ において帯磁率の測定から得られた磁気相図。 T_1 は立方晶から正方晶への構造相転移温度。 T_N 、 T_{SG} はそれぞれ、常磁性状態(PM)から反強磁性状態(AF)、スピングラス状態(SG)への転移温度 (ref. [2])。

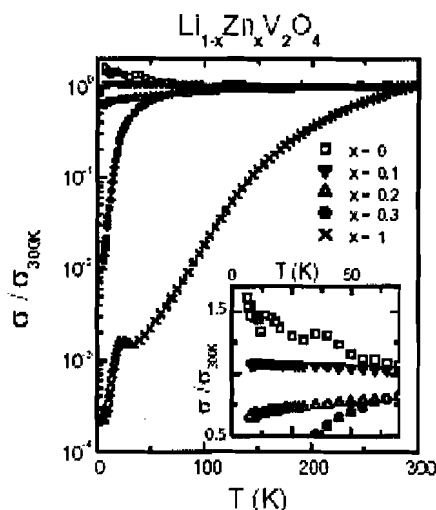


図 5. 多結晶試料 $\text{Li}_{1-x}\text{Zn}_x\text{V}_2\text{O}_4$ におけるマイクロ波光学伝導度の温度変化。挿入図は $x=0\sim 0.3$ 組成の低温領域の拡大図。

- [1] S. Kondo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **78**, 3729 (1997).
- [2] C. Urano *et al.*, Phys. Rev. Lett. **85**, 1052 (2000).
- [3] F. Reinert *et al.*, Phys. Rev. Lett. **87**, 106401 (2001).
- [4] M. Brando *et al.*, Eur. Phys. J. B **25**, 289 (2002).