

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 5月31日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2009～2011

課題番号：21740275

研究課題名（和文） パイロクロア磁性体における量子スピナイス、近藤効果と異常ホール効果の理論

研究課題名（英文） Theory of quantum spin ice, Kondo effect, and anomalous Hall effect in pyrochlore magnets

研究代表者

小野田 繁樹 (ONODA SHIGEKI)

独立行政法人理化学研究所・古崎物性理論研究室・専任研究員

研究者番号：70455335

研究成果の概要（和文）：

パイロクロア酸化物磁性体 $\text{Pr}_2(\text{Ir},\text{Sn})_2\text{O}_7$ で観測された Pr 磁気モーメントのスピナイス相関と量子ゆらぎの起源を理解するため、Pr モーメント間の超交換相互作用を微視的に導出した。この有効量子模型においてスピナイスが量子揺らぎによって融解した状態が実現しうることを示し、カイラルスピ液体相における異常ホール伝導度を説明した。この理論的枠組をさらに一般化し、局在系 $\text{Pr}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ に対する中性子散乱実験を説明することに成功した。

研究成果の概要（英文）：

In order to understand the origin of spin ice correlations and quantum fluctuations of Pr magnetic moments in magnetic pyrochlore oxides $\text{Pr}_2(\text{Ir},\text{Sn})_2\text{O}_7$, the superexchange interaction between Pr moments has been derived microscopically. Then, I have shown that this theoretical model can host a state characterized by a quantum melting of spin ice and have explained the anomalous Hall conductivity in the chiral spin liquid phase. Generalizing this theoretical framework, neutron-scattering experiments on $\text{Pr}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$ and $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ have been explained successfully.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

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：強相関系、磁性、スピ液体、スピナイス、異常ホール効果、トポロジー

1. 研究開始当初の背景

通常、固体の性質を特徴づけるイオンや電子の状態は、時間反転対称性をもつ。金属・

半導体に磁場を印加すると、時間反転対称性の破れに伴い、ホール効果が出現する。一方、電子間のクーロン相互作用・スピン交換相互作用によって出現する強磁性体においては、巨視的な磁化のために広域的時間反転対称性が自発的に破れ、ゼロ磁場でホール効果を生じる。この現象は、異常ホール効果として知られ、磁化曲線の履歴依存性とともな強磁性の検証手段として重要である。また、量子ホール効果と同様に、固体中の電子波動関数の非自明なトポロジーが決定的役割を果たす現象としても基礎科学的に重要である。

研究代表者は、本研究開始以前に、異常ホール効果が生じる機構の理論的解明に大きく貢献したとともに、パイロクロア格子系磁性体において、スピンの立体的構造のもつカイラリティーやその揺らぎが、異常ホール効果に寄与することを理論的に示した。また、実験グループとの共同研究から、遍歴磁性体 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の極低温 (1.5 K 以下) で、巨視的磁化をもたないにもかかわらず、ゼロ磁場でホール効果が出現することがわかってきていた。磁気モーメントも少なくとも 100mK 程度まで凍結しないことから、これは時間反転対称性が自発的に破れたスピン液体として極めて重要である。また、20~40 K 程度に近藤効果と見られる電気抵抗極小を示すことが知られており、Pr イオンの磁気モーメントの量子揺らぎを示唆していた。一方、局在磁性体 $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 等では、Dy イオンの f 電子磁気モーメントがアイス状態に古典的に凍結することが知られている。これに類似した振る舞いが、さらに強い量子揺らぎを伴って、双極子相互作用が 1 桁小さい局在磁性体 $\text{Pr}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$ でも観測されており、量子的なスピンアイスという新しい物質状態の存在が期待されていた。

2. 研究の目的

$\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ において 1.5 K 以下で生じるゼロ磁場・ゼロ磁化での時間反転対称性の自発的破れと異常ホール効果、及び、その背景に潜む量子スピンアイスの形成機構を理論的に解明する。また、希土類元素と遷移金属元素を置換した、より一般的な量子スピンアイス系についての一般論を構築し、絶縁体系で期待される現象を理論的に予言する。特に、長距離磁気秩序をもたない量子スピン液体・アイス状態の起源をも明らかにする。また、Ir 系の電子構造における強いスピン軌道相互作用の効果を明らかにする。

(1) Pr^{3+} サイトに局在した f 電子の性質を明らかにする。強い LS 結合・3 回対称結晶場の下にある Pr^{3+} サイトの f 電子に対して、酸素 2p 軌道を介した超交換相互作用を微視的に導出する。

(2) 得られた有効量子模型を、パイロクロア格子の構成要素である正四面体クラスターや格子系に対して解析する。この解析から、磁気双極子相互作用によらない、局在磁性体における量子スピンアイスとしての有効性を吟味する。さらに、対称性の破れを伴わない量子スピン液体の可能性を吟味する。

(3) Pr 系に対する超交換相互作用の計算、及び、得られた有効模型の解析を、他の希土類系 Yb 系の場合に拡張し、 $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ における実験結果と比較検討する。

Pr^{3+} サイトの f 電子と遍歴電子の相互作用、および、これがもたらす現象を解析する。

(4) スピン軌道相互作用の強い遍歴 Ir 系の電子構造を明らかにし、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ において実験的に観測されている近藤効果の機構を、理論上の問題として多角的に検討する。また、時間反転対称性が破れたスピン液体相でのゼロ磁場・ゼロ磁化での異常ホール効果を理論的に計算し、実験結果と比較検討をする。

以上の一連の研究により、パイロクロア磁性体 $\text{R}_2\text{M}_2\text{O}_7$ において出現すると期待される新しい量子現象・量子相を理論的に提案し、特に、量子スピン液体状態の実現可能性とその性質を理論的に解明する。さらに、実験的研究結果との対応を吟味する。

3. 研究の方法

パイロクロア格子系の Pr^{3+} イオンの 2 個の f 電子の局所基底状態は、全角運動量 $\mathbf{J}=4$ で、主に $\mathbf{J}_z=\pm 4$ で記述される強い 1 イオン・イジング異方性をもった磁気的非クラマース二重項であることが実験的に知られている。

(1) Pr^{3+} イオンの局在モーメント間の超交換相互作用を計算するにあたって、強いクーロン相互作用の極限からの強結合展開法を採用する。また、重なり積分として、 O^{2-} イオンの 2p 軌道と Pr^{3+} イオンの f 軌道の軌道自由度に対する依存性を考慮する。

(2) 得られた有効量子模型を、正四面体クラスターと 16 サイトの周期系に対しては厳密対角化法によって、また、無限系については古典的な平均場近似法、および、双対ダイヤモンド格子上的 $\text{U}(1)$ ゲージ理論に対する平均場近似法によって、それぞれ解析する。

(3) Yb^{3+} イオンの 13 個の f 電子の局所基底状態から、Pr 系の場合と同様に、強結合展開法によって、Yb モーメント間の超交換相互作用を計算する。また、古典的平均場近似、及び、乱雑位相近似によって、基底状態や磁気相関を計算し、 $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ における実験結果と比較検討する。

(4) 遍歴系 $(\text{Pr}, \text{Nd}, \text{Eu})_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の電子構造を理解するために、希土類元素を La で置換し、結晶構造のパラメータに対する依存性を、OPENMX という擬原子軌道に基づいた第一原

理計算手法で理論的に調べる。また、Ir5d 軌道の軌道自由度、及び、スピン軌道相互作用を考慮した電子構造で、Pr モーメントがカイラルスピン状態を形成した際の異常ホール伝導度を久保公式から計算する。また、Pr モーメントの量子性による近藤効果の可能性を Ir 伝導電子の軌道自由度に着目して議論する。

4. 研究成果

パイロクロア酸化物磁性体 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ (M: Ir, Zr, Sn などの遷移金属) における Pr イオンの f 電子磁気モーメントに対する有効量子模型を微視的に導出した。さらに、これらの系が示す極めて新しい電子状態を理解・記述する基礎理論を構築した。特に、水の固体状態である氷は、幾何学的フラストレーションを有することが知られているが、これと同様な機構のためにスピンが凍結した状態 (スピンアイス) が、量子効果によって融解するというシナリオを提唱した。また、スピンアイスの基底状態群のうち、スピンのキラリティーを有し、巨視的スケールで時間反転対称性を自発的に破る状態群に関する平均から、Pr モーメントと結合した伝導電子による異常ホール効果が生じることを示した。一方、この状態での軌道磁化を計算し、その値が実験の計測にかからないほど小さいことを示した。これらの結果は、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ のカイラルスピン液体相における実験結果を定性的に説明する。これらの研究成果を英国科学誌 Nature で発表した。

Pr^{3+} モーメント間の超交換相互作用に対する有効量子理論に基づいて、 $\text{Pr}_2\text{Sn}_2\text{O}_7$ における粉末中性子散乱プロファイルの実験結果を理論的に再現した。また、 Pr^{3+} イオンの磁気モーメントの揺らぎが四重極子を与えること、量子的相互作用が強くなると長距離四重極秩序を示すことを示唆する計算結果を得た。

局在磁性体 $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ における Yb^{3+} モーメント間の超交換相互作用を求め、 Pr^{3+} モーメント間に対するものとともに、量子スピンアイスの一般的有効理論模型を完成させた。これを用いて、共同研究者の偏極中性子散乱実験結果を理論的に説明した。

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 7 件) 全件査読有

- ① L. Balicas, S. Nakatsuji, Y. Machida, S. Onoda, "Anisotropic hysteretic Hall effect and magnetic control of chiral domains in the chiral spin states of

$\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ ": Physical Review Letters **106**, 217204/1-4 (2011).

- ② S. Onoda, "Effective quantum pseudospin-1/2 model for Yb pyrochlore oxides": Journal of Physics: Conference Series **320**, 012065/1-6 (2011).
- ③ S. Nakatsuji, Y. Machida, S. Onoda, T. Tayama, T. Sakakibara, "Spontaneous Hall Effect in the Spin Liquid Phase of $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ ": Journal of Physics: Conference Series, **320**, 012056/1-9 (2011).
- ④ S. Onoda, Y. Tanaka, "Quantum fluctuations in the pseudospin-1/2 model for magnetic pyrochlore oxides": Physical Review B **83**, 094411/1-16 (2011).
- ⑤ S. Onoda, Y. Tanaka, "Quantum melting of spin ice: emergent cooperative quadrupole and chirality": Physical Review Letters **105**, 047201/1-4 (2010).
- ⑥ N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A. H. MacDonald, N. P. Ong, "Anomalous Hall Effect": Reviews of Modern Physics **82**, 1539-1592 (2010).
- ⑦ Y. Machida, S. Nakatsuji, S. Onoda, T. Tayama, T. Sakakibara, "Time-reversal symmetry breaking and spontaneous Hall effect without magnetic dipole order": Nature (London) **463**, 210-213 (14 January 2010).

[学会発表] (計 15 件) うち招待講演 9 件

- ① S. Onoda, "Topological phases with broken time-reversal symmetry in pyrochlore iridates": Deutsche Physikalische Gesellschaft Spring Meeting, Focus Session "Topological Transport in Systems with broken Time Inversion Symmetry" (Technische Universität Berlin, Berlin, March 25-30, 2012)
- ② S. Lee, S. Onoda, L. Balents, "Theory of spin liquids in integer spin pyrochlores" APS March Meeting 2012 (2012/02/29, Boston, USA)
- ③ S. Onoda, "Schwinger-boson approach to spin-liquid and Higgs phases in quantum spin ice: $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ and $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ ", APS March Meeting 2012

- (2012/02/27, Boston, USA)
- ④ L.-J. Chang, S. Onoda, Y. Su, et al., "Quantum dynamics and Anderson-Higgs transition of magnetic monopoles in quantum spin ice systems" (2012/02/27, Boston, USA)
- ⑤ S. Onoda, "Quantum dynamics and Anderson-Higgs transition of magnetic monopoles in quantum spin ice systems": 2nd ASRC International Workshop on Magnetic Materials and Nanostructures (Advanced Science Research Center, JAEA, Tokai, Japan, January 10-13, 2012)
- ⑥ S. Onoda, "Magnetic Coulomb liquids and Higgs transitions in rare-earth magnetic pyrochlore oxides": "Workshop on Geometrically Frustrated Magnets: From Spin Ice to Kagome Planes" (International Institute of Physics, Federal University of Rio Grande do Norte, Natal, Brasil, 11-16 December 2011)
- ⑦ S. Onoda, "Quantum dynamics of intrinsic topological magnetic defects" The 26th Nishinomiya-Yukawa Memorial International Workshop "Novel Quantum States in Condensed Matter 2011: Correlation, Frustration and Topology" (2011/12/06, 京都)
- ⑧ S. Onoda, "New pyrochlore spin liquids": CIFAR/MEXT Japanese Network Meeting (Coast Plaza Hotel and Suites, Vancouver, Canada, May 28-31, 2011)
- ⑨ S. Onoda, "Quantum dynamics of intrinsic magnetic topological defects: monopoles and skyrmions": FIRST Program "Quantum Science on Strong Correlation" Theory Forum Workshop (Univ. of Tokyo, Tokyo, Japan, April 28, 2011)
- ⑩ S. Onoda, "Quantum effects in spin ice and related compounds": "Advanced Working Group on Monopoles in Spin Ice" meeting (Royal Holloway College, University of London, UK, October 15-16, 2010)
- ⑪ S. Onoda, "Quantum melting of spin ice: chiral spin liquid and ferroquadrupole order": 2nd APCTP-IACS Joint Conference: International Conference on Physics of Novel Oxide Materials (APCTP, Pohang, Korea, July 15-17, 2010)
- ⑫ 小野田繁樹, 「磁性強誘電体の電気磁気

結合と電磁応答の微視的理論」日本物理学会第 65 回年次大会 (2010/03/23, 岡山)

- ⑬ S. Onoda, Y. Tanaka, "Quantum melting of spin ice" Annual March Meeting of American Physical Society 2010 (2010/03/18, Portland, USA)
- ⑭ 田中洋一、小野田繁樹, 「Pr 系パイロクロア型磁性体の有効理論」日本物理学会 2009 年秋季大会 (2009/09/21, 熊本)
- ⑮ S. Onoda, S. Furukawa, Y. Tanaka, and M. Sato, "Chirality in Quantum Spin Liquid and Ice": Joint European Japanese Conference: Frustration in Condensed Matter (Ecole Normale Supérieure de Lyon, May 8, 2009)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

http://www.riken.jp/lab-www/cond-mat-theory/onoda/Pr2TM207_j.htm

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小野田 繁樹 (ONODA SHIGEKI)

独立行政法人理化学研究所・古崎物性理論研究室・専任研究員

研究者番号：70455335