

令和 5 年 6 月 16 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K13871

研究課題名（和文）フラストレーション格子磁性体における新奇トポロジカル電子物性の開拓

研究課題名（英文）Exploration of novel topological electric phenomena in frustrated magnets

研究代表者

上田 健太郎 (Ueda, Kentaro)

東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・助教

研究者番号：40835336

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：フラストレーション格子であるパイロクロア型酸化物においてトポロジカル物性の開拓をおこなった。

・パイロクロア型イリジウム酸化物Pr₂Ir₂O₇において、スピナイス的な磁気秩序と巨大な異常ホール効果を見出した。さらに、金属絶縁体近傍(Nd,Pr)₂Ir₂O₇において巨大な熱電応答を見出した。以上の観測した輸送特性とトポロジカル半金属状態の関連を議論した。

・Caドーピングしたパイロクロア型モリブデン酸化物Tb₂Mo₂O₇の単結晶育成に成功した。フィリング制御型金属絶縁体転移を観測し、常磁性金属状態での幾何学的ホール効果を調べた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本課題では、磁性とトポロジカル電子の結合をもたらす新しい物性の開拓を目指した。本課題によって下記が期待される；(i)量子技術への応用が期待されているスピナイス状態が遍歴系で実現することから、新しいメカニズムによる実現温度の向上や候補物質の拡大が見込まれる；(ii)外場によるトポロジカル電子状態・巨大熱電応答制御により、エナジーハーヴェスティングに有望な物質設計指針を示された；(iii)常磁性体での幾何学的ホール効果を見出したことから、ナノスケールのスピンによる創発電磁気学の学理構築への貢献が期待される。

研究成果の概要（英文）：I have investigated topological electronic properties in frustrated pyrochlore oxides.

In the pyrochlore iridium oxide Pr₂Ir₂O₇, I found spin-ice-like magnetic order and giant anomalous Hall effect. I also found a giant thermoelectric response in (Nd,Pr)₂Ir₂O₇ in the vicinity of the metal-insulator transition. We discuss the relationship between the observed transport properties and the possible emergence of topological semimetallic states.

We succeeded in growing single crystals of Ca-doped pyrochlore molybdenum oxide Tb₂Mo₂O₇. A filling-controlled metal-insulator transition was observed and the geometric Hall effect in the paramagnetic metallic state was investigated.

研究分野：固体物理

キーワード：強相関電子系 磁性 トポロジカル電子系

1. 研究開始当初の背景

電子バンドのトポロジー (位相幾何学) は、現代の物性物理学の一大分野として重点的に研究されている。ヒルベルト空間における幾何学的な性質によって電子波動関数が量子力学的位相 (ベリー位相) を獲得することにより、トポロジカルに自明な電子相では見られなかった物性を示す。例えば、磁性ワイル半金属は、時間反転対称性の破れによって、線形な価電子バンドと伝導バンドがギャップレスに接した電子構造を持つが、そのバンド交差点 (ワイル点) はベリー曲率の吸い込みや湧き出しに対応する磁気単極子のように振舞う。そのため、特徴的な表面金属状態や磁気応答など興味深い物性を数多く示しており、世界中で精力的に研究されている。しかし現状では、磁性トポロジカル電子状態の報告例が少なく、磁気対称性と電子状態のトポロジーの関係について理解を深めるためには、より多くの磁気構造パターンのトポロジカル電子相を系統的に探索しなければならない。さらに、これまでの対象物質は、組成ずれや格子欠陥に非常に敏感なために物性を制御する余地が限られており、新食物性の開拓には不向きであった。

2. 研究の目的

本研究課題では、三次元フラストレーション格子であるパイロクロア型酸化物 $A_2B_2O_7$ (A : 希土類イオン、 B : 遷移金属イオン) に着目し、局在スピンと遍歴電子の多彩な磁気相関がもたらす新奇トポロジカル電子物性の開拓・究明を目的とする。中でも、強いスピン軌道相互作用が働くイリジウム酸化物においては、磁気秩序化によるトポロジカル電子相の発現が理論的に提案されている。化学置換や磁場、圧力によって磁気特性を制御し、新奇トポロジカル電子相の探索と、外場による相制御など磁性トポロジカル電子状態の特徴を活かした物性機能の開拓を行う。さらに、4d電子系モリブデン・ルテニウム酸化物へ研究対象を拡張し、トポロジカル量子物質開拓の指針を確立する。

3. 研究の方法

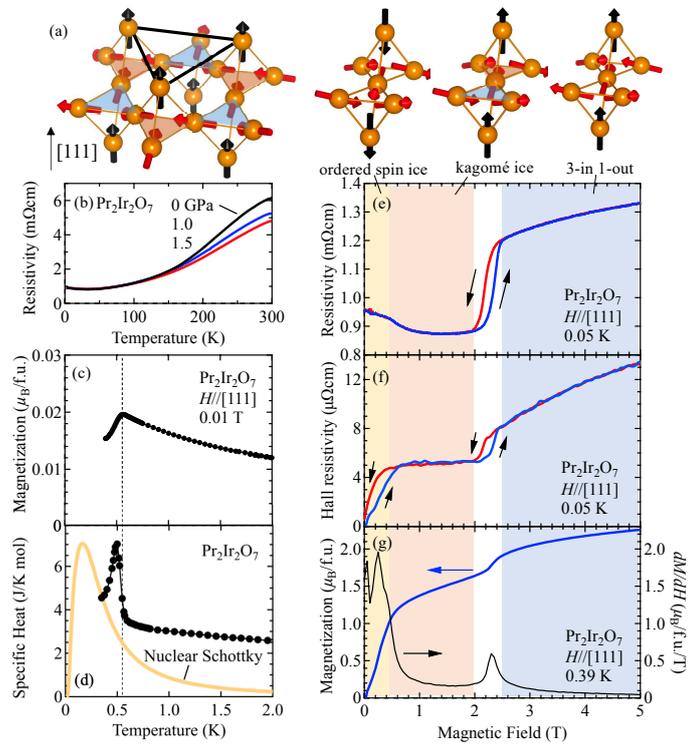
- ・ 高圧合成法、浮遊帯域熔融法、フラックス法を用いたバルク合成。
- ・ 極低温・高磁場における電荷・熱輸送測定、磁化測定、比熱測定。

4. 研究成果

高品質試料の作製に成功し、金属絶縁体転移や磁気転移、それに伴う熱電効果、巨大磁気抵抗効果、ホール効果など、数々のトポロジカル磁気応答を見出した。特に、(i) 遍歴電子系 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ で初めてスピニアイス的な磁気秩序を発見したのは、基礎科学的興味だけでなく量子技術への応用上重要である。そのほか、(ii) ルテニウムやモリブデン酸化物において、未踏の物質合成に成功し、これまで知られていなかった物性を見出したことで、相対論的スピン軌道相互作用と電子相関がもたらす物理への知見を深化させることができた。

(i) 遍歴電子系 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ におけるスピニアイス的な磁気秩序と異常ホール効果

パイロクロア型イリジウム酸化物は、相対論的スピン軌道相互作用と電子相関の競合により、磁性トポロジカル電子状態が実現する。特に、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ においては、角度分解光電子分光によってHgTeと類似の電子構造を持つことが報告されており、時間反転対称性などの破れによってバンドの縮退が解け、ワイル半金属などのトポロジカル電子状態が生じると理論的に提案されていた。しかし、結晶合成が困難なため、その物性は長らく議論が続いていた。そこで本課題では、高度な結晶合成技術と放射光を用いた超精密結晶構造解析により、結晶の質と物性の関連を調べた。その結果、図に示すように、0.6 K以下で長距離秩序が生じることを明らかにした。さらに、磁場を印加することで、古典的なスピンアイス状態と同じメタ磁性転移が生じ、それに伴って抵抗率やホール効果に大きな異常が生じていることを見出した。これは、磁気構造とトポロジカル電子状態が強く関連していることを示している。



K. Ueda *et al.*, “Experimental signatures of a versatile Weyl semimetal in a pyrochlore iridate with spin-ice-like magnetic orders” *Phys. Rev. B* **105**, L161102 (2022).

(ii)パイロクロア型ルテニウム・モリブデン酸化物における物質開拓

4d・5d 電子系においては、相対論的スピン軌道相互作用が、物性に重要な役割を果たす。パイロクロア型酸化物は、希土類サイトにイオン半径や価数の異なる元素を化学置換することで電子相関などを実効的に制御することができる。そのため、スピン軌道相互作用と電子相関の競合がもたらす物性を系統的に開拓したり、理解を深化させるのに適している。

本課題では、ルテニウム酸化物、モリブデン酸化物に着目し、物性開拓をおこなった。ルテニウム酸化物では、3 価の Pr イオンと 2 価の Ca イオンを混成した結晶を作製することで、細かく電子占有率を制御した。その結果、反強磁性絶縁体から金属、強磁性金属、スピングラス的な半導体まで様々な電子・磁気相が現れるのを見出した。モリブデン酸化物では、レーザーを用いた最先端の浮遊帯域溶融装置を用いることで、Ca を高ドーピングした $\text{Tb}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ を作製することに成功した。これにより、反強磁性的な絶縁体から常磁性金属になることを発見した。さらに、常磁性相でも Tb の非共面的な磁気構造を反映した幾何学的ホール効果が現れることを、磁場異方性から明らかにした。

H. Fukuda, K. Ueda *et al.*, ” Highly anisotropic geometrical Hall effect via f-d exchange fields in doped pyrochlore molybdates” *Phys. Rev. B* **106**, 144431 (2022).

R. Kaneko, K. Ueda *et al.*, " Fully filling-controlled pyrochlore ruthenates: emergent ferromagnetic metal state and geometrical Hall effect" Phys. Rev. B **103**, L201111 (2021).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 0件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Ueda Kentaro, Ishizuka Hiroaki, Kriener Markus, Kitou Shunsuke, Maryenko Denis, Kawamura Minoru, Arima Taka-hisa, Kawasaki Masashi, Tokura Yoshinori	4. 巻 105
2. 論文標題 Experimental signatures of a versatile Weyl semimetal in a pyrochlore iridate with spin-ice-like magnetic orders	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.105.L161102	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 上田健太郎, 石塚大晃, Markus Kriener, Denis Maryenko, 川村稔, 川崎雅司, 十倉好紀
2. 発表標題 パイロクロア型Pr ₂ Ir ₂ O ₇ における磁気転移と異常ホール効果の制御
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Kentaro Ueda, Hiroaki Ishizuka, Markus Kriener, Shunsuke Kitou, Denis Maryenko, Minoru Kawamura, Taka-hisa Arima, Masashi Kawasaki, Yoshinori Tokura
2. 発表標題 Experimental signatures of a versatile Weyl semimetal in a pyrochlore iridate with spin-ice-like magnetic orders
3. 学会等名 APS March meeting 2022（国際学会）
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 福田光、上田健太郎、金子良夫、軽部皓介、栗原綾佑、三宅厚志、徳永将史、田口康二郎、十倉好紀
2. 発表標題 フィリング制御パイロクロア (Tb _{1-x} Cax) ₂ Mo ₂ O ₇ における異方的幾何学的ホール効果
3. 学会等名 日本物理学会2022年春季大会
4. 発表年 2021年～2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------