

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 2 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2015

課題番号：24740253

研究課題名(和文)パイロクロア物質群における磁気単極子がもたらす新しい量子状態・現象の理論的研究

研究課題名(英文)Theoretical research on novel quantum states and phenomena induced by magnetic monopoles in pyrochlore materials

研究代表者

小野田 繁樹 (Onoda, Shigeki)

国立研究開発法人理化学研究所・古崎物性理論研究室・専任研究員

研究者番号：70455335

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：パイロクロア酸化物において、仮想モノポールがもたらす新しい量子相・現象を解明した。希土類磁気モーメントが量子磁性を担う量子スピナイス系に対して、磁化のモノポールが局在した古典スピナイスから、量子ダイナミクスを示す量子スピン液体への、連続的クロスオーバーを理論的に検証した。広範な実験結果を量子スピナイス模型に基づいて解析し、Yb<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>とTb<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub>が、モノポールがボーズ凝縮したHiggs閉じ込め秩序相に位置することを示した。第一原理計算から、常磁性半金属Pr<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>と反強磁性絶縁体Y<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>の電子構造、および、逆格子空間でのモノポールであるワイル点の出現条件を解明した。

研究成果の概要(英文)：Novel phases and phenomena induced by emergent fictitious monopoles in pyrochlore oxides have been revealed.

For quantum spin ice systems where the quantum magnetism originates from rare-earth magnetic moments, we have provided theoretical evidence of a continuous crossover from a classical spin ice characterized by localized monopoles to a quantum spin liquid showing quantum dynamics of monopoles. Through analyses of extensive experimental results on a basis of a quantum spin ice model, we have uncovered that Yb<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> and Tb<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> are located in Higgs-confining ordered phases with Bose-condensed monopoles.

Our first-principles calculations have clarified the electronic structures of the paramagnetic semimetal Pr<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub> and the antiferromagnetic insulator Y<sub>2</sub>Ir<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, and shown the conditions of the emergence of Weyl points acting as monopoles in the reciprocal lattice space.

研究分野：物性理論

キーワード：磁性 物性理論 スピン液体 スピナイス トポロジカル絶縁体

## 1. 研究開始当初の背景

電磁気学における磁気単極子に類似した構造が出現する物質として、スピンアイス系および、逆格子空間において非自明な曲率(ベリー位相)を有する電子構造をもつ系(強磁性体やトポロジカル絶縁体など)が知られている。

(1)古典スピンアイス系( $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ ,  $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  など)では、希土類電子磁気モーメントが極低温で六方晶の氷と類似した幾何学的フラストレーションを示し、磁気モーメントの単極子(モノポール)を熱的に励起できるとされ、これを支持する実験結果が報告されていた。一方、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  や  $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ 、また、 $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  などでは、代表者らによって、モノポールが量子力学的交換相互作用のために準粒子としての量子ダイナミクスを示すことが理論的に提唱された。同様なシナリオが  $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  においても提案されていた。この一連の系は量子スピンアイスと呼ばれ、磁気モーメントが秩序を示さない物質の新しい量子スピン液体状態を実現する可能性が指摘されていた。

(2)一方、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  では、量子スピンアイスとしての非自明な性質に加えて、通常は強磁性体に生じる異常ホール効果が、磁気双極子秩序を示さない極低温で観測されたことが代表者を含む研究グループから報告されたばかりであった。また、Pr をさらに重い希土類元素で置換していくと、金属から絶縁体への転移が観測されていた。これらパイロクロア Ir 酸化物においては、強い相対論的スピン軌道相互作用を有する Ir 伝導電子がトポロジカル絶縁体やトポロジカルモット絶縁体、ワイル半金属など新しい電子状態を実現する可能性が指摘され、系統的な第一原理電子構造計算が求められていた。

## 2. 研究の目的

(1)量子スピンアイス系  $\text{Pr}_2\text{B}_2\text{O}_7$  ( $B = \text{Zr}, \text{Sn}, \text{Hf}, \text{Ir}$ )、 $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  では、相互作用結合定数、温度、希土類イオンの希釈濃度により、磁気単極子励起がエネルギーギャップをもった  $U(1)$  量子スピン液体、Anderson-Higgs 転移を介したモノポール励起子のボーズ凝縮相(磁気秩序相)、モノポール励起子が2倍の磁荷を持って対凝縮した  $\mathbb{Z}_2$  スピン液体相など、新しい物質状態の実現が期待される。これらの状態が実現する条件を理論的に解明し、これらの量子相の性質を明らかにする。

(2)パイロクロア Ir 酸化物  $\text{A}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  に対して、 $\mathbb{Z}_2$  トポロジカル(モット)絶縁体、表面にカイラル Dirac フェルミオンをもたらすトポロジカル半金属ないし絶縁体が、それぞれどのような条件で実現されるかを理論的に解明する。希土類磁性による量子スピンアイスと類似した振る舞いが Ir 磁気モーメン

トによっても生じる可能性を理論的に明らかにする。現実の実験系( $R = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Eu}, \text{Y}$  など)との対応、特に、実験的に観測されている金属絶縁体転移を理論的に理解する。

## 3. 研究の方法

### (1)量子スピンアイス系

個々の物質の特殊性によらない一般的な性質を理論的に解明するため、負符号問題が発生しないように最も単純化した理論模型に対して、量子モンテカルロシミュレーションを行った。特に、連続虚時間でのループアルゴリズムを採用した。

$\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Pr}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  などの物質に依存した特性を理解するためには、上記の単純化を行えない。数値的手法には限界があるため、ゲージ理論に基づいた近似計算、主として、ゲージ場を一定の値に凍結するというゲージ平均場近似理論を採用した。本研究課題の後半においては、ゲージ平均場近似理論を越えてゲージ場の揺らぎを取り込む理論的枠組みを構築した。

### (2)パイロクロア Ir 酸化物

擬原子軌道・擬ポテンシャルの採用により軽量化された第一原理密度汎関数法に基づく OpenMX (<http://www.openmx-square.org/>)を用いて電子構造計算を行った。特に、全電子計算による計算結果を再現するよう擬ポテンシャル、および、擬原子軌道を構築し、希土類イオン  $\text{Pr}^{3+}$  に対しては、閉殻構造を示す  $\text{La}^{3+}$  で置換をして計算を行った。

## 4. 研究成果

(1)一般的な量子スピンアイス模型に対して、モノポール数を一つずつ変化させる準粒子スピノンと、これに付随して擬スピン  $1/2$  の二重項を反転させるゲージ場の二つの自由度による記述を導入し、ゲージ場を古典的に安定な状態に凍結させるというゲージ平均場近似を考案した。これによって、一般化した量子スピンアイス系の基底状態相図を解明した。量子力学的交換相互作用が働く、無限に縮退した古典スピンアイス則状態の縮退が解け、仮想的光子励起を伴った  $U(1)$  量子スピン液体状態が安定化されることを示した。また、量子力学的相互作用が幾何学的フラストレーションを持たない場合には、その結合定数を増強すると、モノポール(ないし、スピノン)がボーズ凝縮した秩序相が出現することが分かった。この秩序状態は古典スピンアイス模型においては決して許されない量子系特有のもので、ゲージ場との結合を通じた Higgs 機構のために、スピノンがマクスナー効果を示す。特に、スピノンの凝縮は、偶数個の開殻  $f$  電子をもつ Pr、Tb 系では電気四重極秩序を、奇数個の開殻  $f$  電子をもつ Yb では磁気双極子秩序を与える。

$\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  においては当初、強磁性秩序が実験的に観測されていたが、世界的には磁気秩

序を否定する報告も多数なされていた。そこで、スピン偏極中性子散乱実験を行った実験グループと共同研究を行った。特に、 $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$  に対する量子スピンアイス模型の解析から、その実験結果が、極低温でモノポールがボーズ凝縮した強磁性秩序相として理論的に解釈されることを示した。その後さらに $\mu\text{SR}$ を用いた実験結果の解析を行い、単結晶試料においても多結晶試料においてもそれらが良質であれば、極低温では強磁性磁気秩序を示すことを確認した。

良質の  $\text{Tb}_{2-x}\text{Ti}_{2+x}\text{O}_{7+y}$  の多結晶では、ある  $x$  を境に、片側では極低温まで秩序形成が見られない一方、もう片側では長距離秩序形成と思われる比熱の鋭いピークが観測されていたが、その秩序の正体は不明で、隠れた秩序として問題となっていた。そこでこの系の熱力学測定・中性子非弾性散乱実験を行っていた実験グループと共同研究を行い、代表者らが提唱していた量子スピンアイス模型に基づいて、実験結果を解析した。実験結果をよく説明する模型のパラメータは、電気四重極秩序が生じる領域、かつ、 $U(1)$ 量子スピン液体相との相境界近傍に位置することが判明した。

量子スピンアイス系に対する理論的解析は、従来の半古典近似か、ゲージ場を凍結したゲージ平均場近似かによるものしかなく、これらの近似の適用限界を明確に認識する必要がある上、さらに、 $U(1)$ 量子スピン液体相の実現の是非や、 $U(1)$ 量子スピン液体がどのようにして実現されるかをより精確に知る必要がある。そこで、最も単純化した量子スピンアイス模型に対して、量子モンテカルロ計算を行った。その結果、降温とともに、まず古典スピンアイス領域へ、さらに量子スピン液体領域へと二段階で連続的にクロスオーバーが生じることが分かった。ゲージ平均場近似を有限温度に適用すると、古典スピンアイスから量子スピン液体に1次相転移をするが、それは近似が悪いためであるということになる。また、特に量子スピン液体領域となる最低温では、氷のエントロピーが解放されゼロに向かう様子、および、中性子散乱断面積において仮想光子励起に起因した空間構造パターンを数値的に検証することに成功した。

## (2)パイロクロア Ir 酸化物

OpenMX を用いて  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  と  $\text{Y}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  の電子構造計算を行った。現実の物質における結晶パラメータの試料・温度依存性に応じて、格子定数と酸素位置変数の二つに対する電子構造の依存性、および、 $4d$ 電子に働く局所クーロン相互作用に対する依存性を詳細に調べた。その結果、 $\text{IrO}_6$  の八面体が正八面体となる  $\text{Ir-O-Ir}$  結合角の近傍では、 $\Gamma$  点に4重縮重したフェルミ点をもつ半金属が現れること、結合角がそれよりも小さい現実の系に近い場合には、 $\Gamma$  点の4重縮重がフェルミ準位

の下に沈んだ低キャリア濃度半金属が、逆に結合角を大きくした場合には $\Gamma$ 点のエネルギー準位の順序が入れ替わり、 $Z_2$ トポロジカル絶縁体を実現することが分かった。この結果は弱結合領域側に位置する  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  に対して成立する。局所クーロン相互作用を大きくしていくと、 $\text{Ir}_4\text{O}$  正四面体上の  $\text{Ir}$  磁気モーメントがすべて中心か外側を向く反強磁性秩序が安定化される。このときモット絶縁体となる強結合領域に至るまでの狭い領域でフェルミ準位近傍にワイル点が出現することが分かった。また、適当な局所クーロン相互作用の値を選ぶことで、実験で観測されている  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  におけるホール係数や、 $\text{Y}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  における局所磁気モーメントと電荷ギャップなどの値を説明することに成功した。

## 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10件)

H. Takatsu, S. Onoda, S. Kittaka, A. Kasahara, Y. Kono, T. Sakakibara, Y. Kato, B. Fåk, J. Ollivier, J. W. Lynn, T. Taniguchi, M. Wakita, H. Kadowaki, Quadrupole Order in the Frustrated Pyrochlore  $\text{Tb}_{2+x}\text{Ti}_{2-x}\text{O}_{7+y}$ . *Physical Review Letters* **116**, 217201/1-6 (2016). 査読有

<http://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.116.217201>

Yasuyuki Kato, Shigeki Onoda, Numerical evidence of quantum melting of spin ice: quantum-to-classical crossover. *Physical Review Letters* **115**, 077202/1-5 (2015). 査読有

<http://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.115.077202>

Fumiyuki Ishii, Yo Pierre Mizuta, Takehiro Kato, Taisuke Ozaki, Hongming Weng, Shigeki Onoda, First-principles study on cubic pyrochlore iridates  $\text{Y}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  and  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ . *Journal of the Physical Society of Japan* **84**, 073703/1-5 (2015). 査読有

<http://journals.jps.jp/doi/10.7566/JPSJ.84.073703>

小野田繁樹、物質中のモノポールとそのダイナミクス. *数理科学* **613**, 32 (2014). 査読無

Lieh-Jeng Chang, Martin R. Lees, Isao Watanabe, Adrian D. Hillier, Yukio Yasui, Shigeki Onoda, Static magnetic moments revealed by muon spin relaxation and thermodynamic measurements in the quantum spin ice  $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ . *Physical Review B* **89**, 184416/1-5 (2014). 査読有

<http://link.aps.org/doi/10.1103/Phys>

[RevB. 89.184416](#)

SungBin Lee, [Shigeki Onoda](#), Leon Balents, Generic quantum spin ice. Physical Review B **86**, 104412/1-11 (2012). 査読有.

<http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.86.104412>

Lieh-Jeng Chang, [Shigeki Onoda](#), Yixi Su, Ying-Jer Kao, Ku-Ding Tsuei, Yukio Yasui, Kazuhisa Kakurai, Martin Richard Lees, Higgs transition from a magnetic Coulomb liquid to a ferromagnet in  $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ . Nature Communications **3**, 992/1-7 (2012). 査読有.

<http://www.nature.com/ncomms/journal/v3/n8/full/ncomms1989.html>

[学会発表](計33件)

[Shigeki Onoda](#), Theory for electronic properties of oxide pyrochlores: quantum spin ice and iridates. TMU International Symposium on “New Quantum Phases Emerging from Novel Crystal Structure” 招待講演、(首都大学東京、八王子、東京、2015年9月25日)

[Shigeki Onoda](#), Thermal, transport, and spectral properties of generic quantum spin ice beyond the mean-field theory. The 20th International Conference on Magnetism. (Barcelona, Spain, 2015年7月6日)

Yasuyuki Kato, [Shigeki Onoda](#), Numerical evidence of quantum melting of spin ice: quantum-classical crossover. American Physical Society March Meeting 2015. (San Antonio, USA, 2015年3月4日)

[Shigeki Onoda](#), Two crossovers, deconfined spinons, and Higgs transition in quantum spin ice. The long-term workshop “Novel Quantum States in Condensed Matter 2014” 招待講演、(京都大学基礎物理学研究所、京都、京都、2014年11月4日)

[Shigeki Onoda](#), Yasuyuki Kato, Phase transitions, crossovers, and excitations in quantum spin ice. International Conference on Highly Frustrated Magnetism 2014. (Cambridge, UK, 2014年7月11日)

[Shigeki Onoda](#), Crossover, deconfined spinons, and Higgs-confining transition in quantum spin ice. 2014 Aspen Summer Program “Modern Trends in Quantum Magnetism” 招待講演、(Aspen, USA, 2014年5月29日)

[小野田繁樹](#)、量子スピンアイスにおける磁気単極子と量子電磁気学・ヒッグス機

構。日本物理学会 2013 年秋季大会領域 3 シンポジウム招待講演、(徳島大学、徳島、徳島、2013 年 9 月 26 日)

[Shigeki Onoda](#), Hydrodynamic theory for Coulomb and Higgs-confining phases in quantum spin ice. 7th ISSP International Workshop and Symposium “Emergent Phases in Condensed Matter from topological to first principles approaches” 招待講演、(東京大学物性研究所、柏、千葉、2013 年 6 月 14 日)

[小野田繁樹](#)、磁性体からカイラルスピン液体にわたる常ホール果の研究磁性体からカイラルスピン液体にわたる異常ホール果の研究。日本物理学会第 68 回年次大会領域 8 若手奨励賞受賞講演、(広島大学、広島、2013 年 3 月 26 日)

[Shigeki Onoda](#), Quantum spin ice. KITP Program: “Frustrated Magnetism and Quantum Spin Liquids: From Theory and Models to Experiments” 招待講演、(Santa Barbara, USA, 2012 年 8 月 22 日)

[Shigeki Onoda](#), Topological phases with broken time-reversal symmetry in pyrochlore iridates. Aspen Center for Physics, Summer Workshop “Spin-Orbit Physics in Correlated Electron Systems” 招待講演、(Aspen, USA, 2012 年 7 月 10 日)

[Shigeki Onoda](#), Higgs transition from magnetic Coulomb liquid to ferromagnet in  $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ . 9th International workshop on Polarised Neutrons in Condensed Matter Investigations 招待講演、(Paris, France, 2012 年 7 月 2 日)

[Shigeki Onoda](#), Topological phases with broken time-reversal symmetry in pyrochlore iridates. International Workshop “Itinerant Spin-Orbital Systems: From Magnetic Frustration to Novel Superconductivity” 招待講演、(Dresden, Germany, 2012 年 5 月 22 日)

[その他]

ホームページ

[http://www.riken.jp/lab-www/cond-mat-theory/onoda/index\\_j.html](http://www.riken.jp/lab-www/cond-mat-theory/onoda/index_j.html)

報道発表

「スピン液体の近くの「隠れた秩序」

[http://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research/research\\_results/2016/160520\\_2.html](http://www.kyoto-u.ac.jp/ja/research/research_results/2016/160520_2.html)

「凍ったスピンをさらに冷やして量子効果で液体に融かす」

[http://www.riken.jp/pr/press/2015/20150821\\_2/](http://www.riken.jp/pr/press/2015/20150821_2/)

「電子スピンから分化した N 極と S 極のヒッグス転移を磁性体で観測」

<http://www.riken.go.jp/r-world/info/release/press/2012/120808/index.html>

## 6 . 研究組織

### (1)研究代表者

小野田 繁樹 (ONODA, Shigeki)

国立研究開発法人理化学研究所・古崎物性

理論研究室・専任研究員

研究者番号：70455335