

2015 年 3 月

## 角度分解光電子分光によるパイロクロア型イリジウム酸化物の電子状態の研究

物質系専攻 47-136025 中山 充大

指導教員:辛 埴(教授)

キーワード:イリジウム酸化物、トポロジカル量子相、金属絶縁体転移、フラストレーション

### 【背景】

強い電子相関と強いスピン軌道相互作用の両者を兼ね備えることで発現する新奇なトポロジカル量子相の候補として、*5d* 軌道を有するイリジウム酸化物が期待されている。図 1 に示すように、*d* 電子系物質は *3d, 4d, 5d* と原子番号が大きくなるにつれ、電子軌道の広がりと共に電子相関が弱くなる一方、原子量の増大と共にスピン軌道相互作用が強くなる。その結果として電子相関とスピン軌道相互作用の両者が同程度のエネルギースケールを持って競合するイリジウム酸化物の電子系は、今大変注目される新しい研究分野である[1]。

最近の理論研究から、パイロクロア型イリジウム酸化物を舞台として、新しいタイプの量子臨界点及び非フェルミ液体的な性質を示す物質[2]や、「強相関系トポロジカル絶縁体」、「ワイルセミメタル」と呼ばれる新奇なトポロジカル量子相の発現が提唱されている[3]。図 2 に示すように、これらのトポロジカル量子相は、特徴的な電子構造であるフェルミノード状態を出発点として発達することが期待される。フェルミノード状態とは、放物形状の伝導帯と価電子帯がフェルミ準位を境に向き合い、 $\Gamma$  点の一点でのみ接する 4 重縮退点を有するバンド構造である。実験的に初めて確認されたトポロジカル絶縁体の母物質である  $\text{HgTe}$  は、数学的にこれと同様なフェルミノードを有しており[4]、パイロクロア型イリジウム酸

化物  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  はその強相関版だと言える。この状態において、磁化(all-in all-out)による時間反転対称性が破れることで「ワイルセミメタル」が発現し、また、歪みで立方対称性が破れることで「強相関系トポロジカル絶縁体」が発現すると予想されている[5]。フェルミノード状態を母体とするトポロジカル量子相は、理論的研究において活発な議論が成されているものの、実験的研究は未開拓であると言える。それどころか、その出発点となるフェルミノードを持つバンド構造すら実験的に実証出来ない状況であり、その直接観察が強く求められている。

$\text{Ln}=\text{Pr}$  を除いた  $\text{Ln}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  は、金属絶縁体転移を示すことがわかっている。特に  $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  の金属絶縁体転移は、構造変化がない 2 次転移であり[6]、電子相関に起因する可能性がある。このような電子

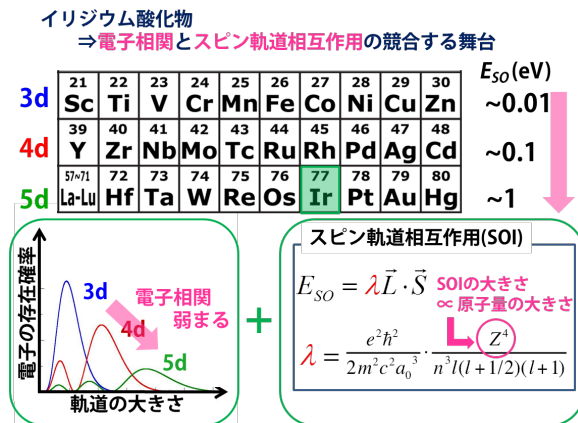


図 1 イリジウム酸化物の特色

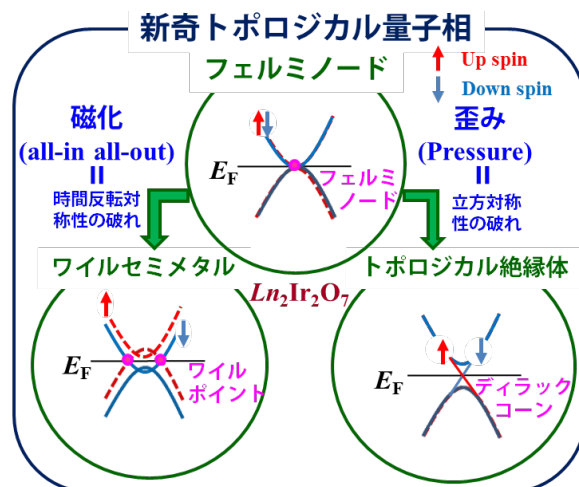


図 2 パイロクロア型イリジウム酸化物において理論的に予測されている新奇トポロジカル量子相。

相関を起源とした金属絶縁体転移とパイロクロア格子上のフラストレーションの関係は非常に興味深い。また、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ は絶縁相において、all-in all-outの磁気秩序を形成するため、ワイルセミメタルになる候補物質でもある。そこで本研究では、運動量空間での電子構造を直接観察できる「角度分解光電子分光(ARPES)」を駆使して、パイロクロア型イリジウム酸化物  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  及び  $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  で理論予想される、未だ報告例の無い電子状態の観測を試みた。

### 【実験方法】

パイロクロア構造は3次元構造を有するため、電子構造も3次元構造となる。しかし、ARPESでは1つの光子エネルギーを用いて測定することができる範囲は、ある $k_z$ での1つの $k_x$ - $k_y$ 平面のみである。そのため、3次元結晶構造を有する物質の電子構造を理解するには、光子エネルギーを細かく振って測定しなければならない。そこで本実験では、放射光施設のビームライン「PF BL28A」、「UVSOR-II BL7U」、「Bessy-II 13」を使用し、(111)面から様々な光子エネルギーを入射して測定を行うことでブリルアンゾーン全域の測定を行った。単結晶試料はARPES装置内で劈開して清浄表面を得た。

### 【結果と考察】

#### (1) $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$

図3にその結果をまとめる。励起光を変化させることで観測する $k_z$ 面が調節できることを利用して、放射光実験によりブリルアンゾーン全域を観測した。第一ブリルアンゾーンを網羅する $h\nu=7\text{eV}$ から $18\text{eV}$ までの光源を用いた実験から、放物形状のバンド分散が $\Gamma$ 点一点のみで $E_F$ に接するバンド構造を見いだした。その結果をBalentsグループによって得られた理論計算と比べた結果が(A)である。 $\Gamma$ 点においては理論計算とよく一致する結果が得られた。また、(B)に示した $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ のブリルアンゾーンにおける $\Gamma$ 点とL点を通る(111)平面のフェルミ面を測定した結果が(C)(E)であ

る。これらの結果を見てもわかるように、 $\Gamma$ 点にのみフェルミ準位と接したフェルミノードを確認することができる。さらに(D)に示したように、 $\Gamma$ 点を通る(111)平面の $k_x$ 方向のバンド分散を見ても、 $\Gamma$ 点一点でフェルミノードを確認できる。以上のことから、我々は $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ がフェルミノードを持つ物質であることを立証した。

#### (2) $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$

$\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ は、金属相では $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ と似通った電子輸送現象を示すが、 $T < \sim 20\text{K}$ の低温で、all-in all-out反強磁性秩序に伴った金属絶縁体転移を生じる。我々は、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ が持つ電子構造の温度変化を詳細に調べた。

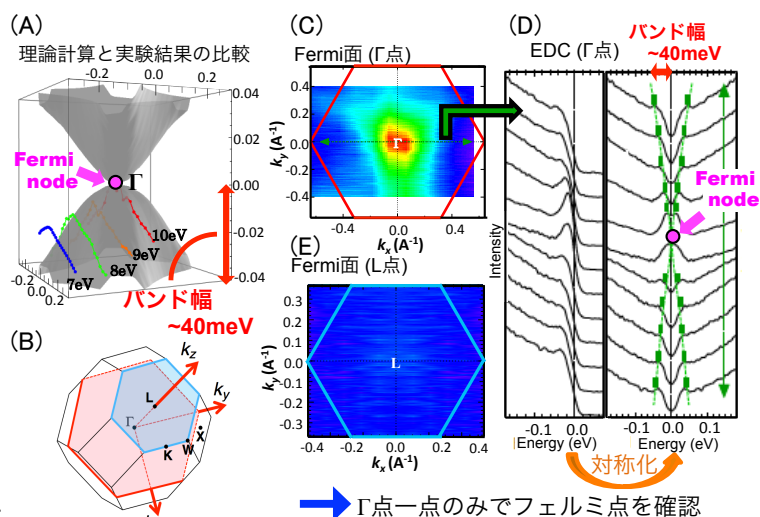


図2 (A)フェルミノードを形成している $\Gamma$ 点周りの理論計算と実験結果の比較。(B)  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ のブリルアンゾーン。(C)(111)面から見た $\Gamma$ 点のフェルミ面。(D)(C)のフェルミ面を $k_x$ 方向から見た分散(左図)及びその分散を対称化した図(右図)。(E)(111)面から見たL点のフェルミ面。

図 4 (A)は、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  のブリルアンゾーンであり、(B)(C) はそれぞれ金属相において、(111)方向から見た  $\Gamma$  点、L 点のフェルミ面を測定した結果である。これらの結果から、 $\Gamma$  点のみにフェルミノードをもつことがわかり、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  は金属相において  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  と同様のフェルミノード状態を形成していることが確認できた。図 4 (D)はフェルミノードを形成している  $\Gamma$  点の温度変化を測定した結果であり、温度が下がるにつれてフェルミノード状態にギャップが開いていく様子が観測できる。 $T=1\text{K}$  でおおよそ  $34\text{meV}$  程度のギャップが開いていることが確認できる。また、図 4 (E)は、フェルミノードを持つ  $\Gamma$  点近傍のエネルギー分散が、冷却とともに変化する様子をプロットする。金属相でフェルミノードを形成した状態から、温度が下がり反強磁性秩序を伴って金属絶縁体転移する振る舞いが観測できた。これは、トポロジカル量子相の象徴であるワイルポイント(図 2 参照)が、3 次元ブリルアンゾーンのどこかで出現していることを示唆する。

#### 【まとめ】

本研究では、ARPES を用いてパイロクロア型イリジウム酸化物の特異な電子状態を観測することを試みた。その結果、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  において理論研究で予測されていたフェルミノード状態を実験的に初めて直接観測することができた。低温で磁気構造が発達し、時間反転対称性が破れることから、ワイルセミ金属の発現が期待されている  $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  の研究から、予想通り、冷却と共にフェルミノードが消失する振る舞いを見出した。

#### 【参考文献】

- [1] B. J. Kim *et al.*, Science **323**, 1329 (2009).
- [2] L. Savary *et al.*, Phys. Rev. X **4**, 041027 (2014).
- [3] X. Wan *et al.*, Phys. Rev. B **83**, 205101 (2011).
- [4] S. Zaheer *et al.*, Phys. Rev. B. **87**, 045202 (2013).
- [5] D. Pesin and L. Balents, Nat. Phys. **6**, 376 (2010).
- [6] K. Matsuhira *et al.*, JPSJ **80**, 094701 (2011).

#### 【業績】

1. T. Kondo, M. Nakayama, *et al.*, “Quadratic Fermi Node in a 3D Strongly Correlated Semimetal” Nature Commun. (査読中)
2. 日本物理学会第 69 回年次大会 “パイロクロア型イリジウム酸化物  $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  のフェルミノード状態の観測” 他 3 件

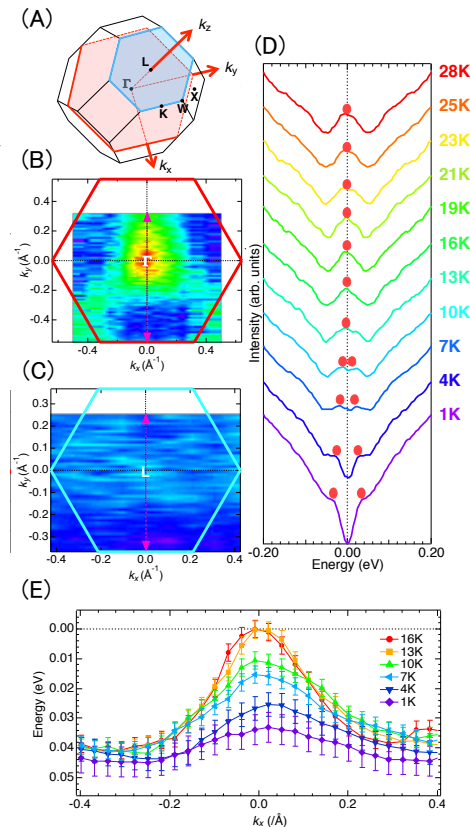


図 4 (A) $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$  のブリルアンゾーン。(B)(111)面から見た  $\Gamma$  点のフェルミ面 (金属相  $T=50\text{K}$ )。 (C) (111)面から見た L 点のフェルミ面 (金属相  $T=50\text{K}$ )。 (D)フェルミノードを形成する  $\Gamma$  点におけるバンド分散の温度変化を測定した結果。(E)各温度における (111)面から見た  $\Gamma$  点のバンド分散。