

強いスピン軌道相互作用に起因するイリジウム酸化物の特異なスピン・電荷状態

Anomalous spin and charge states induced by strong spin orbit coupling in Ir oxides

物質系専攻 086009 大橋 啓

指導教員：高木 英典（教授）

キーワード：スピン軌道相互作用、Mott 絶縁体、共鳴 X 線磁気散乱、半金属

[背景]

4d や 5d の遷移金属酸化物は通常、空間的に広がった d 軌道のために金属的であると予想される。しかしながら近年、このような予測に反する例の 1 つである、層状ペロブスカイト構造の Sr_2IrO_4 が特異な Mott 絶縁体として注目されている^[1]。Kim らによって、この Mott 絶縁状態が Ir に働く強いスピン軌道相互作用に起因していること、及び基底状態の波動関数が虚数を含む $J_{\text{eff}} = 1/2$ 状態であることが提唱されている^[2]。強いスピンと軌道の結合に誘起されたこの特異な絶縁状態は、5d 遷移金属酸化物における新しい物理を開拓する端緒となり得るものである。

[目的]

本研究の目的は、強いスピン軌道相互作用に起因する新奇磁性・輸送特性を開拓することである。スピンと軌道が強く結合した系における磁性は、従来の局在スピン描像から導かれるものとは異なると考えられる。また、スピン軌道相互作用が強い極限における輸送特性も自明なものではない。

Sr_2IrO_4 を出発点として物性を系統的に議論するため、我々は Ruddlesden Popper シリーズ $\text{Sr}_{m+1}\text{Ir}_m\text{O}_{3m+1}$ に着目した。Figure 1 に $\text{Sr}_{m+1}\text{Ir}_m\text{O}_{3m+1}$ ($m = 1, 2, \infty$) の結晶構造を示す。 Sr_2IrO_4 と $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ は磁性絶縁体、 SrIrO_3 は金属であることが知られている。本研究では、 Sr_2IrO_4 と $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の磁性、及びスピン軌道相互作用の強い特異な金属状態の候補として SrIrO_3 の輸送特性を調べた。

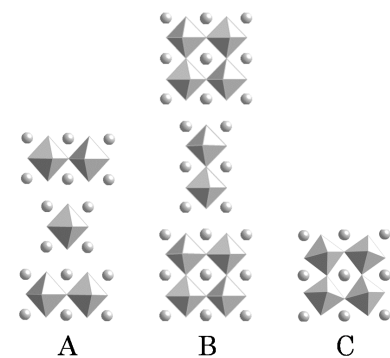
[実験]

フラックス法により Sr_2IrO_4 と $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ 単結晶試料を、また高圧合成法により SrIrO_3 多結晶試料を合成した。全ての試料は XRD により同定後、磁化率を Quantum Design 社の MPMS により、また電気抵抗率、比熱、Hall 係数を同社の PPMS により測定した。Seebeck 係数、Nernst 係数については自作の装置により測定した。 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ 単結晶試料については、SPring-8 BL02、BL17、BL19 にてそれぞれ結晶構造解析、X 線吸収実験、磁気構造解析を試みた。

[結果と考察]

 Sr_2IrO_4

Sr_2IrO_4 は従来弱強磁性と報告されていたが、共鳴 X 線散乱実験によって、Fig. 2 のように外部磁場の大きさに応じて異なる磁気構造を有することが明らかとなっている^[2]。Ir のモーメントがキャントすることで各 IrO_2 層がネットモーメントを有している。本研究では、この磁気構造を磁化測定により検証し、また異方性を調べることを目的とした。

Fig. 1 $\text{Sr}_{m+1}\text{Ir}_m\text{O}_{3m+1}$ の結晶構造。

A Sr_2IrO_4 ($m = 1$) B $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ ($m = 2$)
C SrIrO_3 ($m = \infty$)

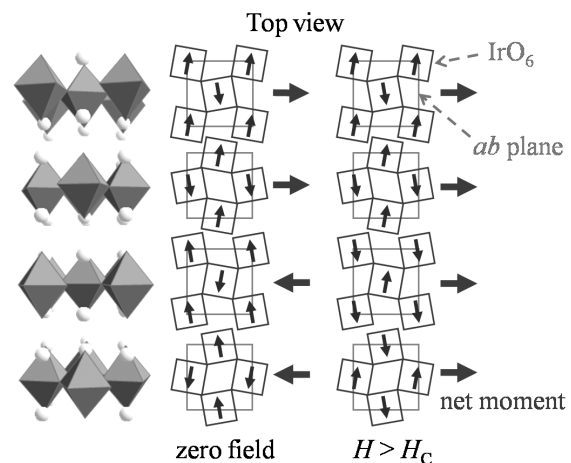


Fig. 2 共鳴 X 線磁気散乱実験により決定された Sr_2IrO_4 の磁気構造。

Figure 3 は Sr_2IrO_4 単結晶試料の磁化率と磁化曲線を表す。0.05 T において反強磁性秩序が見られ、磁化曲線は 0.2 T 以上でメタ磁性転移を示している。このメタ磁性は、共鳴 X 線磁気散乱実験で示されたように、 IrO_2 層のネットモーメントの一方向への整列を反映したものである。また、磁化曲線に異方性がほとんど見られないことから、各 IrO_2 層のネットモーメントは外場に応じて向きを変えており、各 IrO_2 層間でのスピン間相互作用が Sr_2IrO_4 では弱いことが明らかとなった。

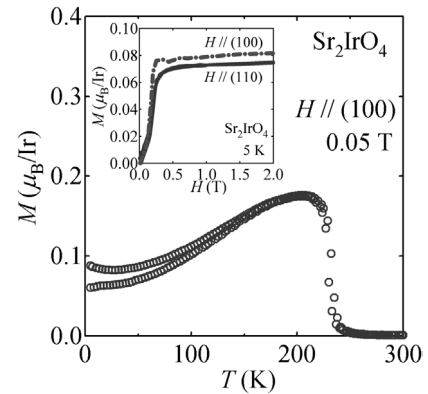


Fig. 3 Sr_2IrO_4 の磁化率及び磁化曲線。

$\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$

磁性絶縁体である $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ が Sr_2IrO_4 と同じく $J_{\text{eff}} = 1/2$ 状態にあるかどうか検証し、かつその磁気構造を決定するため、共鳴 X 線磁気散乱実験を行った。Figure 4 に示したのは、Ir L 吸収端近傍における磁気反射点(0.5 0.5 13)の磁気散乱強度のエネルギー依存性である。 L_3 吸収端と L_2 吸収端で選択則が生じるのは、系の基底状態が虚数を含んでいることを反映しており、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ においても $J_{\text{eff}} = 1/2$ モデルを支持する形となっている。

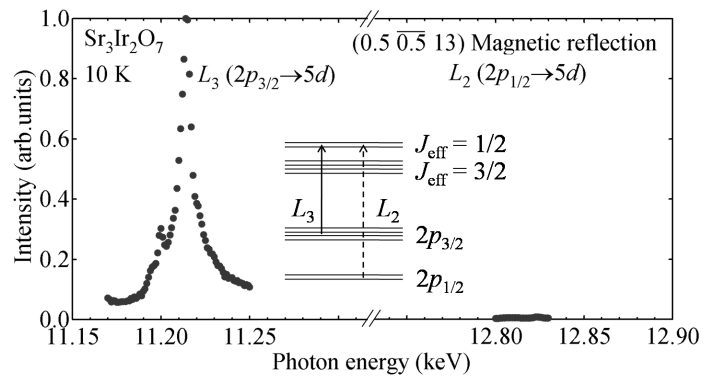


Fig. 4 共鳴 X 線磁気散乱強度の L 吸収端近傍におけるエネルギー依存性。磁気反射点は(0.5 0.5 13)

共鳴 X 線磁気散乱法を用いて、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の磁気構造も決定された。Figure 5 に磁気回折パターンと磁化のデータから決定された $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の磁気構造を示す。Bilayer 内でスピンは反強磁性的に、 IrO_2 層のネットモーメントは強磁性的に結合している。 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の磁化の値は Sr_2IrO_4 と比べ 10^2 程度小さく、またメタ磁性転移も示さない。従って bilayer 間のネットモーメントは反強磁性的であると決定できる。メタ磁性を示さないことから、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ では bilayer 内で c 軸方向のスピン間の超交換相互作用が支配的で、スピンキャンティングがほとんど 0 になっている可能性がある。

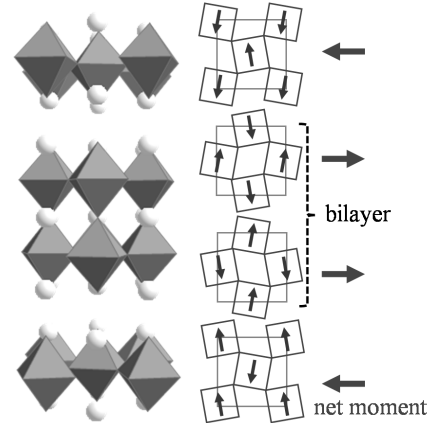


Fig. 5 決定された $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の磁気構造

SrIrO_3

高圧相である Perovskite SrIrO_3 は、スピンと軌道の強い結合による特異な金属状態の候補であり、その物性を明らかにすることを目的とした。Figure 6 に示したのは、磁化率と比熱の温度依存性である。磁化率は Pauli 常磁性的な振る舞いを最低温まで示す。 $\chi_0 = 3.3 \times 10^{-4} \text{ emu/mol}$ と $\gamma = 2.45 \text{ mJ/mol K}^2$ から計算された Wilson 比は 9.8 で、強相関の極限における値 $R_W = 2$ より大きい。強磁性的な揺らぎが存在する場合、Wilson 比は 2 より大きくなるが、 SrIrO_3 についてそれが成り立つかは現時点では明らかではない。

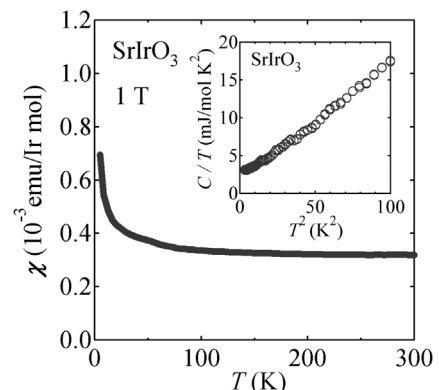


Fig. 6 SrIrO_3 の磁化率と比熱

輸送特性においても特異な振る舞いが観測された。金属であるにも関わらず、Hall 係数は Fig. 7 に示すように大きな温度依存性を示し、低温で $0.13 \text{ cm}^3/\text{C}$ 程に達している。導かれるキャリア数は $n \sim 5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ となり、金属としては極めて小さい。Hall 抵抗率の磁場依存性が直線から外れること、及び Nernst 係数が低温でおよそ $1 \mu\text{V K}^{-1}\text{T}^{-1}$ と巨大であることから、 SrIrO_3 は 2 キャリアの半金属状態にあると考えられる。

この半金属状態の起源を明らかにするべく、WIEN2k を用いた SrIrO_3 のバンド計算を行った。スピン軌道相互作用を考慮することで、Figure 8 に示したようにバンド交差点で縮退軌道が分裂し、複数のポケットを形成する様子が見て取れる。 SrIrO_3 は、強いスピン軌道相互作用に誘起された半金属であると理解できる。

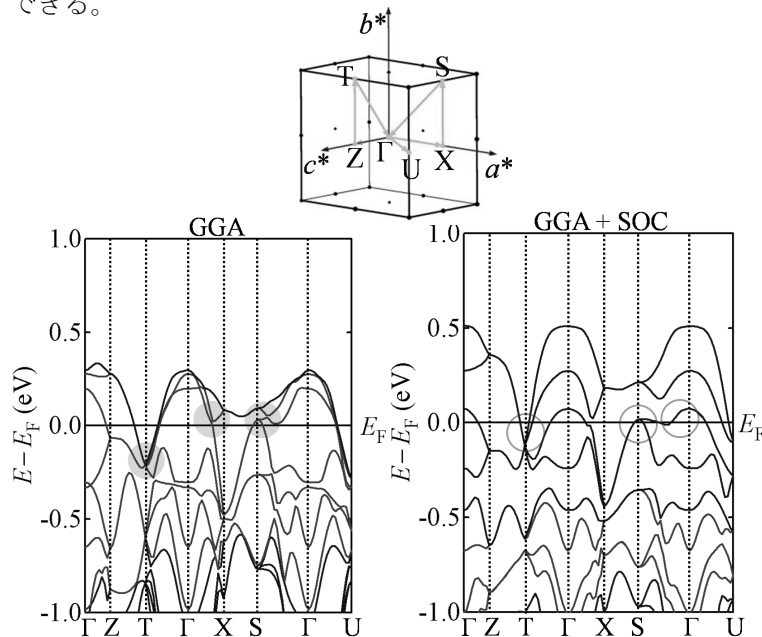


Fig. 8 WIEN2k を用いた SrIrO_3 のバンド計算結果

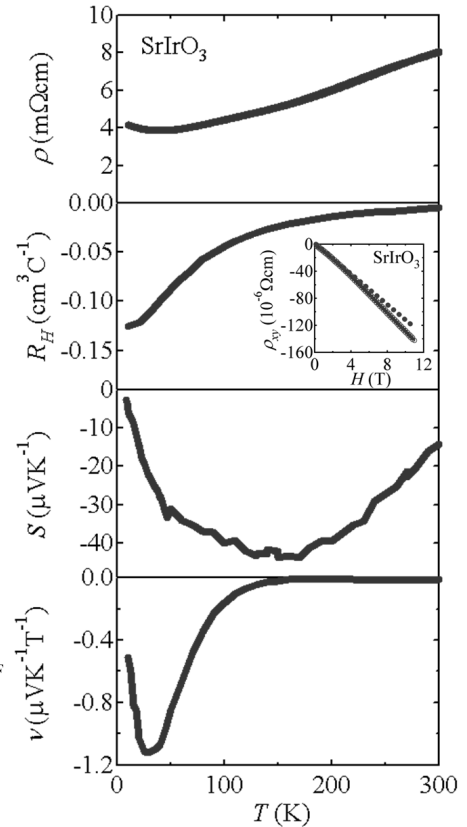


Fig. 7 SrIrO_3 の電気抵抗率、Hall 係数、Seebeck 係数、Nernst 係数の温度依存性

[総括]

スピンと軌道が強く結合したイリジウム酸化物における磁性、輸送特性を調べた。共鳴 X 線磁気散乱により、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ が Sr_2IrO_4 と同様 $J_{\text{eff}} = 1/2$ の Mott 絶縁体であることを突き止めた。磁気構造も同手法により決定し、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ においては bilayer 内の上下の交換相互作用が支配的であることが明らかとなった。また輸送特性から SrIrO_3 が半金属状態にあることを示し、その起源が強いスピン軌道相互作用にあることをバンド計算から明らかにした。本研究によって、スピン軌道相互作用が多様な電子物性を $5d$ 遷移金属酸化物に与えることを示せた。

[参考文献]

- [1] B. J. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. 101 (2008) 076402.
- [2] B. J. Kim *et al.*, Science 323 (2009) 1329.

[学会発表]

- 日本物理学会 2008 年秋季大会 21aQF-3 「Ruddlesden Popper シリーズ $\text{Sr}_{m+1}\text{Ir}_m\text{O}_{3m+1}$ の物性」
 日本物理学会 2009 年春季大会 27aTL-2 「Perovskite 構造 SrIrO_3 の輸送特性」
 日本物理学会 2009 年秋季大会 28aTJ-7 「 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の結晶構造と磁性」