

論文の内容の要旨

論文題目 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と
層状ルテニウム酸化物で発現する金属絶縁体転移の研究

氏名 中山 充大

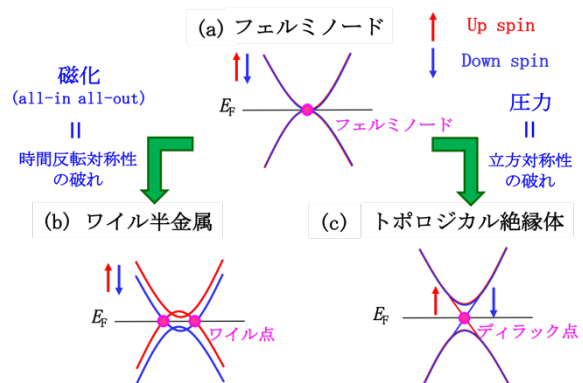
[緒言]

強相関電子系では、電荷、スピン、軌道の自由度が相互に絡み合うことによって、高温超伝導や巨大磁気抵抗をはじめとする多彩な電子状態を発現させる。これらは電子相関と密接に関係しているため、クーロン相互作用と電子間飛び移り積分が競合するモット転移近傍の電子状態は、固体物理の中心課題として精力的に研究されてきた。従来のモット転移に関する研究においては、クーロン相互作用の強い3d遷移金属酸化物などが中心的に調べられてきた。しかし近年、クーロン相互作用に加えて新たな相互作用が絡み合った際に発現する新奇な強相関電子状態が注目されている。本論文では、このような新奇な強相関電子状態を角度分解光電子分光で観測することを目指して、以下2つのテーマについて研究を行った。

[研究1. パイロクロア型イリジウム酸化物における金属絶縁体転移]

(研究目的)

5d遷移金属イリジウム酸化物は、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結果、隣接サイト間の飛び移り積分、電子相関、スピン軌道相互作用の三者が同程度のエネルギースケールで競合する系となる。すると、大きなスピン軌道相互作用によって、 t_{2g} 軌道同士が線形結合することにより軌道角運動量が復活し($L=1$)、有効全角運動量 $J_{eff}=1/2$ と $3/2$ の状態が良い量子数として実現する。このような系では、強相関系トポロジカル量子相の発現が期待されており[1]、理論・実験の両面から精力的に研究されている。



その中でも、我々は図1に示すようなパイロクロア型イリジウム酸化物 $Ln_2Ir_2O_7$ において予測される強相関系トポロジカル量子相に着目して研究を行ってきた。それらの電子状態は、フェルミノード(図1(a))を出発点とし、対称性が破れることで発現する。例えば、 $Ln_2Ir_2O_7$ は Ln サイトを置換していくことでall-in all-outの時間反転対称性を破る磁気秩序を伴った金属絶縁体転移を示すが、この時間反転対称性が破れた相の中にワイル半金属の発現が予測されている。しかし強相関電子系では、多体効果の寄与が大きいため、理論計算と実験結果が一致しないことが多い。 $Ln_2Ir_2O_7$ においても同様に、その電子状態の予測は難しく、金属絶縁体転移の起源までも自明ではない。よって、この系におけるトポロジカル量子相を議論するには、まず絶縁化する起源を探らなければならない。なぜなら、絶縁相において、バンド絶縁体(スレーター絶縁体)の描像が成り立てば、図1(b)に示したようなワイル半金属が発現するはずであるが、モット絶縁体の描像が成り立てば、くりこみ因子が0になることによってモット絶縁体が発現するからである。そこで本研究では、スペクトル関数を直接観測できるARPESを用いて、 $Ln_2Ir_2O_7$ の金属絶縁体転移とワイル半金属の観測を試みた。

(実験結果と考察)

(1) $Pr_2Ir_2O_7$ におけるフェルミノード観測

$Pr_2Ir_2O_7$ は、フェルミ準位において放物形状の伝導帯と価電子帯が Γ 点一点でのみ接する4重縮退点(フェルミノード)がバンド計算から予想されている。そこで我々は、ARPESを用いてフェルミノードの直接観測を試みた。図2(a)に励起光エネルギーを変えながらバンド分散のピーク位置をプロットした実験結果(点線)と理論計算によるバンド分散(灰色)を重ねた結果を示す。この結果から、理論計算で予測された通りのフェルミノードを実験的に観測することができた[2]。

(2) $Nd_2Ir_2O_7$ における金属絶縁体転移観測

$Nd_2Ir_2O_7$ において all-in all-out の磁気秩序を伴う金属絶縁体転移の様子及びワイルセミ金属の可能性を模索するために ARPESを行った。図2(b1)に Γ 点周りのバンド分散の温度依存性を示すが、高温の金属相で $Pr_2Ir_2O_7$ と同じフェルミノードを観測するとともに、そのフェルミノードが低温になるにつれてギャップを開く様子を確認できた。また、図2(b2)に Γ 点におけるエネルギー分布曲線(EDC)の温度依存性を示すが、低温に向かうにつれて、準粒子ピー

図1 $Ln_2Ir_2O_7$ に期待される強相関系トポロジカル量子相。これらは、フェルミノードを有する特徴的なバンド構造を起点として発現する。

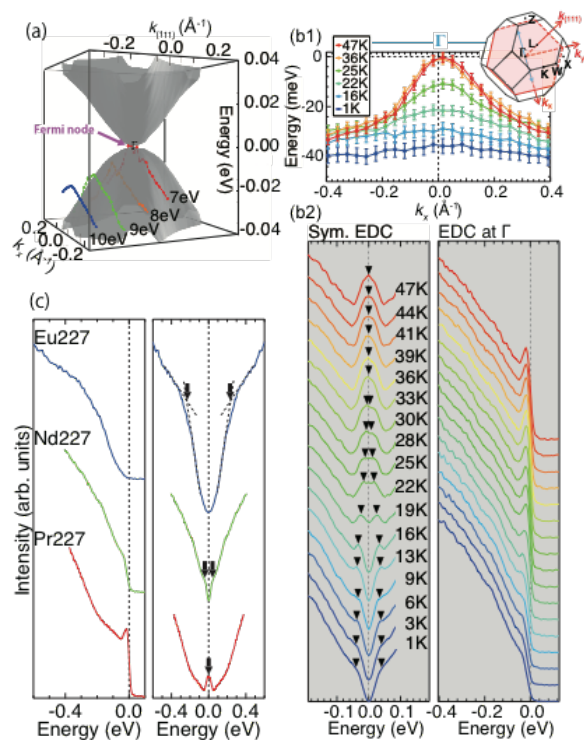


図2 (a) $Pr_2Ir_2O_7$ におけるフェルミノードの観測結果(点線)と理論計算(灰色)の比較。(b) $Nd_2Ir_2O_7$ における金属絶縁体転移($T_M=36K$)の観測結果。(b1)フェルミノードを形成したバンドがフラットな局在バンドに変化していくことがわかる。(b2)伝導に寄与する Γ 点のEDCを各温度ごとに並べた図。低温になるにつれて準粒子ピークが消失していくことがわかる。(c) Γ 点のEDCを各組成ごとに比較した図。 $Eu_2Ir_2O_7$ では準粒子ピークが消失し、インコヒーレントピークが支配的な状況が実現してい

クがギャップを開くとともに、ピークが消失していく様子を観測した。この結果は、スレーター絶縁体からモット絶縁体へとクロスオーバーすることを示唆する。この結果から、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ における金属絶縁体転移温度直下のスレーター領域にワイル半金属が存在し得ることを見出した[3]。

(3) $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ におけるモット絶縁体の観測

$\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ は、ワイル半金属となることが初めて理論提案された物質であり[4]、光学電導度の先行研究によってもワイル半金属の電子状態を有することが報告されている。我々は $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の電子状態をARPESで測定し、 $\text{Pr}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ や $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ と比較した(図2(c))。この結果、 $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ は電子相関を由来としてギャップを開かせるモット絶縁体であることを明らかにした。

(まとめ)

本研究では、ARPESを用いて $\text{Ln}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の電子状態を観測した。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[4]。ワイル半金属の発現が期待されている $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の研究では、all-in all-outの磁気秩序が発達する温度を境にフェルミノードが消失し、バンド絶縁体からモット絶縁体へクロスオーバーしていく様子を観測した[5]。また、 $\text{Eu}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ は、強い電子相関によってモット絶縁体となることを明らかにした。

[研究2. ルテニウム酸化物における軌道選択的金属絶縁体転移]

(研究目的)

多軌道電子系では、軌道内クーロン相互作用だけでなく、軌道間クーロン相互作用やフントカップリングという相互作用が複雑に絡み合う。その結果、強相関金属状態や軌道選択的モット転移が発現することが予測されている。例えば、多軌道電子系であるルテニウム酸化物は、電気抵抗率、帯磁率、比熱などの基礎物性が重い電子系と同じような振る舞いを示すことが知られている。これら強い電子相関を有する理由は、フントカップリングの影響であることが最近のDMFT計算から明らかとなっており、理論によって実験を再現するような結果が得られている[5]。一方、フントカップリングが大きくなるときに発現する軌道選択的モット転移については理論で盛んに研究されているものの、実験的にその電子状態を明瞭に観測した例はない[6,7]。そこで我々は、ルテニウム酸化物にMnを置換した $\text{Sr}_3\text{Ru}_{2-x}\text{Mn}_x\text{O}_7$ に着目した。 $\text{Sr}_3\text{Ru}_{2-x}\text{Mn}_x\text{O}_7$ は、Mnを置換していくにつれて電子相関が強まって金属絶縁体転移を示すようになることが知られている。我々は、Mnを徐々に置換していくにつれて変化する電子状態を系統的に調べ、軌道選択的モット転移の直接観測を狙った。

(結果と考察)

ARPESを用いて、 $\text{Sr}_3\text{Ru}_{2-x}\text{Mn}_x\text{O}_7$ についてMn0%から20%まで置換した系の電子状態を系統的に観測した。図1(a)に、 $T=10\text{K}$ で測定した母物質 $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$ のフェルミ面を示す。疑一次元軌道である $4d_{yz}, 4d_{zx}$ (赤線)と疑二次元軌道である $4d_{xy}$ 軌道(青線)によって形成されるフェルミ面が確認できる。実際に、図1(a)の Γ -X- Γ 方向(青線矢印)をよぎるバンド分散を図1(b)に示すと、 d_{xy} 軌道と d_{yz} 軌道のバンド分散が金属状態を示していることが確認できる。これら d_{xy} 軌道と d_{yz} 軌道のバンド分散がフェルミエネルギーをよぎる波数点のエネルギー分布曲線(EDC)を、Mnドーピング依存性として並べたものが図4(c)(d)である。 d_{xy} 軌道ではMn5%で準粒子が消失してギャップが開くのに対して、 d_{yz} 軌道ではMn5%まで準粒子が残って金属状態を保つことがわかる。この結果は、Mn5%ドーピングにおいて d_{xy} 軌道のみがモット転移する軌道選択的モット転移が実現していることを示唆する。さらに、Mn5%置換の系におけ

る高温相 ($T=60\text{K}$) と低温相 ($T=10\text{K}$) のフェルミ面を測定した結果を図5(a)(b)に示す。高温相では、疑一次元軌道 d_{yz} , d_{zx} と疑二次元軌道 d_{xy} が混成しあった3枚のフェルミ面が確認できるのに対し、低温相では、疑二次元軌道 d_{xy} が絶縁体へと転移する結果、疑一次元軌道 d_{yz} , d_{zx} のみで形成されるフェルミ面へと変化する様子が確認できる。先行研究で報告された抵抗率とも比較しても、Mn5%置換の系では、高温から低温へと温度を下げていくと金属絶縁体転移を引き起こすものの、低温では絶縁体に転移しきっていない。この振る舞いを本研究結果と照らし合わせて考えれば、低温相において d_{xy} 軌道のみが絶縁体となり、 d_{yz} , d_{zx} 軌道が金属的な電子状態を保つことと対応づけられる。これより、我々は Mn5%置換の系において、軌道選択的金属絶縁体転移を実証することができた。

(まとめ)

本研究では、 $\text{Sr}_3\text{Ru}_{2-x}\text{Mn}_x\text{O}_7$ を用いて軌道選択的金属絶縁体転移の有無を調べた。その結果、Mn5%置換の系において、疑二次元軌道である $4d_{xy}$ 軌道がモット転移する一方、疑一次元軌道である $4d_{yz}$, $4d_{zx}$ は金属となる軌道選択的モット転移を観測した。さらに、Mn5%置換の系におけるフェルミ面の温度変化を測定することで、軌道選択的金属絶縁体転移が起きた際にフェルミ面の再構成が起こることを観測した。

- [1] D. Pesin and L. Balents, Nat. Phys. **6**, 376 (2010).
- [2] Takeshi Kondo, M. Nakayama, et al., Nat. Comm. **6**, 10042 (2015).
- [3] M. Nakayama, et al., Phys. Rev. Lett. **117**, 056403 (2016).
- [4] X. Wan, et al., Phys. Rev. B **83**, 205101 (2011).
- [5] Jernej Mravlje et al., Phys. Rev. Lett. **106**, 096401 (2011).
- [6] M. Neupane, et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 097001 (2009).
- [7] A. Shimoyamada, et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 086401 (2009).

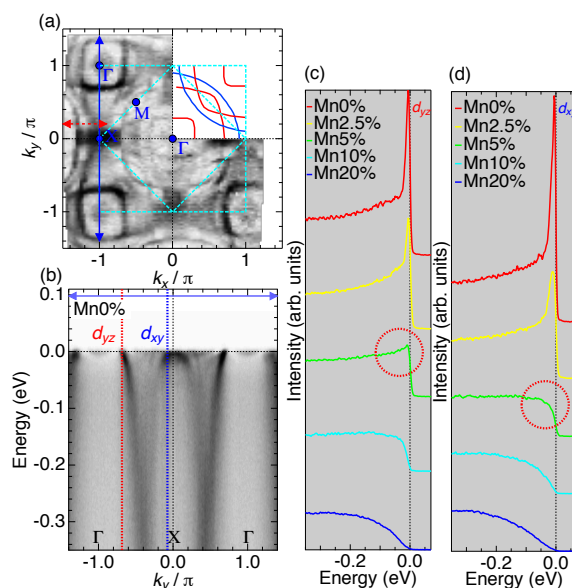


図7 (a) $\text{Sr}_3\text{Ru}_{2-x}\text{Mn}_x\text{O}_7$ のフェルミ面。(b) (a) の $\Gamma\text{X}\Gamma$ 方向におけるバンド分散。(c)(d) Mn0% から Mn20% まで並べた (b) の k_F をよぎる波数位置のエネルギー分布曲線 (EDC)。

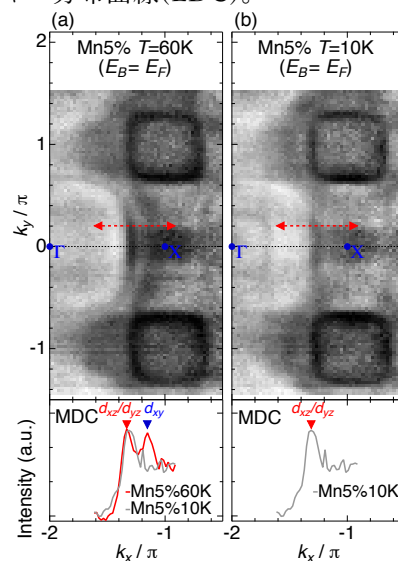


図8 (上部) Mn5% における低温相と高温相のフェルミ面。(下部) 上部フェルミ面の赤線に対応した波数位置での波数分布曲線 (MDC)。高温では d_{xy} 軌道、 d_{yz} 軌道のピークが確認できるが、低温では d_{xy} 軌道のピークが消失している。