

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：12101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2016

課題番号：25400338

研究課題名(和文) 共鳴非弾性X線散乱による強相関電子系の磁気励起の研究

研究課題名(英文) Magnetic excitations probed by the resonant inelastic x-ray scattering in strongly correlated electron systems

研究代表者

五十嵐 潤一 (Igarashi, Jun-ichi)

茨城大学・理学部・名誉教授

研究者番号：20127179

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：L吸収端を用いた共鳴非弾性X線散乱スペクトルの解析を行った。第一に、銅酸化物絶縁体におけるスペクトルの解析を行い、自発的対称性の破れの影響を考慮することにより、2マグノン励起も取り込んだ解析に成功した。引き続き、スピン-軌道相互作用の大きなイリジウム化合物、Sr₂IrO₄、Sr₃Ir₂O₇、Na₂IrO₃、CaIrO₃に対して、微視的電子モデルを基礎に、強結合および弱結合からの展開を行いスペクトルを計算した。実験のスペクトルをよく説明するとともに、その起源を明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We have analyzed the spectra at L edge in the resonant inelastic x-ray scattering (RIXS). First we have analyzed the spectra in undoped copper compounds. Having taken account of broken symmetry effects, we have successfully reproduced the spectra, which arises from not only the one-magnon excitation but also the two-magnon excitation. Subsequently we have analyzed the RIXS spectra in Sr₂IrO₄, Sr₃Ir₂O₇, Na₂IrO₃, CaIrO₃, where Ir ions suffer the strong spin-orbit interaction. Based on microscopic models of electronic structures, we have calculated the spectra within the strong coupling and the weak coupling expansions. Our results explain well the origin of the experimental spectra.

研究分野：物理学

キーワード：共鳴非弾性X線散乱 強相関電子系 L吸収端 スピン軌道相互作用 磁気励起 エクシトン励起

1. 研究開始当初の背景

(1) 遷移金属 K 吸収端を用いた共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) 実験が盛んに行われるようになり、波数に依存するスペクトルが観測されている。X 線を吸収することで 1s 内殻電子が 4p バンドに励起され中間状態が構成され、内殻正孔の電荷を遮蔽するために電荷励起が 3d バンドに生成される。その後、4p 電子と内殻正孔が消滅し X 線が放出される。我々は、非平衡系を取り扱うのに有効な K 吸収端 RIXS の定式化を行ったばかりであった。この定式化は、電子構造の詳細に立ち込んだ多重バンドタイトバインディング模型を用いた解析を可能にし、また、4p 電子状態のバンド構造を取り入れることができるなどの利点を有している。スペクトルと動的構造因子との関係を明らかにしたのもこの研究である。

(2) これに加えて、遷移金属 L 吸収端を用いた RIXS 実験において測定器の分解能が飛躍的にあがり、精度よく低エネルギー励起が観測されるようになってきていた。X 線の吸収により 2p 内殻電子が遷移金属 3d 軌道に励起され、ひき続き 3d 電子と内殻正孔が対消滅し X 線が放出される。この時、終状態の励起は、ブリルアンゾーンの 7 割程度までカバーする波数を持つことができる。高温超伝導体の母物質である銅酸化物絶縁体に対して L 吸収端 RIXS 実験が行われ、1 マグノンのみならず 2 マグノン励起を含んで、波数に依存するスペクトルがきれいに観測された。1 マグノン励起が観測可能であることは、非弾性中性子散乱 (INS) と同様であるが、INS で難しい比較的高い励起エネルギー領域での精度良い分散スペクトルを得ることができることから、INS と相補的な役割を担っていると考えられている。

(3) 当初は遷移金属化合物が中心的な対象であったが、スピン軌道相互作用の大きい 5d 系の Ir (イリジウム) 化合物に対しても、L 吸収端 RIXS 実験も行われはじめたところであった。Ir に対しては、INS 実験が難しいためである。分散を持つ磁気励起に加えて、低エネルギーのエキシトニックな励起に対応するとと思われるスペクトル強度が見出され、注目を集めた。

2. 研究の目的

以上の背景のもとで、強相関電子系の低エネルギー励起を調べる手段として、RIXS は有効であることがわかってきたが、RIXS プロセスは複雑なため、スペクトル形状と励起モードとの関係が明らかでないところが問題であった。本研究では、ミクロなモデルから出発して、RIXS スペクトルの定式化を行い、それに基づき具体的な計算を行い、強相関電子系での低エネルギー励起と RIXS スペクトルとの関係を明らかにすることを目的とした。特に、長距離秩序の存在する系の素励起について研究を行った。

3. 研究の方法

電子状態を記述するミクロな模型として、多重バンドタイトバインディング模型を用いる。この模型の取り扱いにおいては、局在電子描像が有効な場合と、遍歴電子描像が有効な場合とがあり、本研究では、場合によって使い分けた。

(1) 局在電子描像 モット絶縁体の低エネルギー励起は局在スピン模型でよく記述される。例えば、銅酸化物絶縁体における 2 次元ハイゼンベルグスピン模型の適用である。これは強結合からの展開で導かれる。これらスピン模型に対して、RIXS プロセスを忠実に反映させた定式化を行い、それまで使われていた方法 (fast-collision 近似とよばれる) を改良した。これは、1 スピン励起のみならず 2 スピン励起も同時に取り込むことのできる有力な手法で、我々が発展させた方法でもある。

(2) 遍歴電子描像 非平衡 (Keldysh) グリーン関数法を用いて、L 吸収端の共鳴過程を取り込んだ定式化を行う。終状態に生成されて残る電子-ホール対は、多重散乱を繰り返す。この無限回散乱を取り入れた計算を行う。これは、弱結合からの展開と見なせる。この結果、反強磁性相でのスピン波は、束縛状態として現れる。INS スペクトルは、動的感受率に対応しているのであるが、RIXS スペクトルは、それと違った量を測定していることになる。

4. 研究成果

(1) 高温超伝導体の母物質である La_2CuO_4 においては、反強磁性基底状態および低エネルギー励起は、ハイゼンベルグスピン模型でよく記述されることが知られている。この模型を基礎に、RIXS プロセスを反映させ、RIXS スペクトルの計算を行った。これまでの研究と違い、1 マグノン励起と 2 マグノン励起の両方に対応するスペクトルが自然に得られた。反強磁性状態は自発的対称性の破れた状態であるが、そのことを反映した新たな項が現れることを見出した。この項の存在は、これまでの研究では見過ごされていた項で、RIXS スペクトルの磁気励起部分においては遷移運動量がゼロ近傍の強度が増大することを導く。今後の詳しい RIXS 実験によりその存在が明らかになると期待される。

(2) 強相関電子系を記述する典型的模型の一つである 1 軌道ハバード模型を用いて、L 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルの計算を行った。これまで用いられていた近似を超えた一般的な定式化に基づいており、これまでの近似の適用条件を明らかにし、RIXS スペクトルの計算方法を改良した。今後のスペクトルの具体的な計算への道を開いた。

(3) Ir 化合物において、Ir 原子は、5d 軌道が部分的に電子で占有された状態にある。5d 軌道は、鉄族遷移金属における 3d 軌道と異なり、スピン軌道相互作用が大きいいため、Ir 化合物の物性は、遷移金属化合物と違うもの

が現れる。本研究では、はじめに、様々な Ir 化合物の中で Sr_2IrO_4 をとりあげた。この物質は、酸化物高温超伝導体と同じく、Ir イオンは、2 次元正方格子の層状構造をなし、反強磁性基底状態をもつことが知られている。

強いスピン軌道相互作用により形成されるクラマース二重項に対して、擬スピンを導入し、それに対して、強結合からの摂動論を展開した。擬スピンに対するハミルトニアンとして、ハイゼンベルグ型の項に加えて、クーロン相互作用のフント結合項との競合により、ハミルトニアンに異方的な項が現れることが導かれた。また、このハミルトニアンに基づいて、スピン波近似により磁気励起の計算を行った。分裂した 2 つのモードが導かれた。さらに、対応する共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) スペクトルの計算を行い、磁気励起モードの分裂に対応して、スペクトルに 2 ピーク構造が現れることを明らかにした。この予言は、実験精度の向上により明らかになりつつある。

磁気励起に加えてエキシトン励起を同時に記述する目的で、弱相関極限からの計算を行った。ミクロな模型を基礎に、基底状態はハートレーフォック近似を用いて記述した。励起状態は、電子と正孔の間の多重散乱を考慮し、乱雑位相近似を用いて記述した。反強磁性基底状態およびその励起状態は、ハートレーフォック近似および乱雑位相近似がうまく働くことは、他の系においてもよく知られていることである。磁気励起は電子-正孔対の束縛状態として、エキシトン励起は連続状態として、記述することができた。この枠組みで RIXS スペクトルを計算すると、束縛状態として現れる磁気励起は、2 モードに分裂し、強結合からの展開と一致した結果が得られた。また、連続スペクトル領域の低エネルギー側境界に、鋭い共鳴モードが存在することがわかり、RIXS において観測されているエキシトンモードに対応している、実験をよく再現する結果が得られた。

(4) Sr_2IrO_4 においては、Ir イオンは一重層をからなる二次元構造をとったが、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ においては、二重層をからなる二次元構造を形成している。この系に対して、RIXS スペクトルが観測され、 Sr_2IrO_4 と違ういくつかのピーク構造が見出されている。本研究では、ミクロな模型を基礎に、 Sr_2IrO_4 の場合と同様の弱結合からの計算を行った。実験で見出されたピーク構造をこの枠組みで自然に導くことができ、二重層内の結合から生じているものであることを明らかにした。

(4) Na_2IrO_3 においては、Ir イオンは二次元八面体格子を形成する。クラマース二重項に対する擬スピンを導入して、強結合からの展開をすると、有効スピンハミルトニアンが得られる。イジング型の異方性の強く、厳密解の存在するキタエフ模型に近い形をしている。本研究では、ミクロな模型を基礎に、ハートレーフォック近似と乱雑位相近似を

用いた弱結合からの展開を行った。合理的な模型パラメーターの範囲で、実験で見出されているジグザグ相が安定になることが導かれ、RIXS 実験によく対応する磁気励起とエキシトン励起が得られた。これにより、この系の RIXS スペクトルは、ほぼ解明できたと考えられる。

(5) 以上の物質群では、Ir イオンは立方対称の結晶場を感じていた。それに対して、 CaIrO_3 はポストペロブスカイト構造をもち、Ir イオンは、結晶の歪を反映した結晶場を感じている。基底状態は c 軸方向に反強磁性、a 軸方向に強磁性的に磁気モーメントが配列していると考えられている。強磁性的配列があることから、ミクロな模型を用いた弱相関からのアプローチはうまくいかない。本研究では、強結合からの展開を行い、有効スピンハミルトニアンを導いた。合理的なパラメーターの範囲で、実験の基底状態が得られ、RIXS スペクトルと矛盾しない励起状態が得られた。立方対称からのずれの役割が明らかになった。

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 9 件)

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao, Resonant Inelastic Scattering at the Ir L-edge in Na_2IrO_3 , Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 査読有、212 巻、2016、44-49

DOI:10.1016/j.elspec.2016.08.003

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao, Collective Excitations in Na_2IrO_3 , Journal of Physics: Condensed Matter, 査読有、28 巻、2016、026006(1-9)

DOI:10.1088/0953-8984/28/2/026006

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao, Effect of Broken Symmetry on Resonant Inelastic X-Ray Scattering from Undoped Cuprates, Journal of Physics: Condensed Matter, 査読有、27 巻、2015、186002(1-11)

DOI:10.1088/0953-8984/27/18/186002

Manabu Takahashi, Jun-ichi Igarashi, Resonant X-Ray Scattering from Chiral Materials: -Quartz, -Berlinite, and Tellurium, Journal of Physics: Conference Series, 査読有、519 巻、2014、0120009(1-7)

DOI:10.1088/1742-6596/519/1/012009

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao, Analysis of Resonant Inelastic X-Ray Scattering from Sr_2IrO_4 in an Itinerant Electron Approach, Physical Review B, 査読有、90 巻、2014、064402(1-9)

DOI:10.1103/PhysRevB.90.064402

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao, Interplay between Hund's Coupling and Spin-Orbit Interaction on

Elementary Excitations in Sr_2IrO_4 ,
Journal of the Physical Society of
Japan, 査読有、83 巻、2014、053709(1-5)
DOI:10.7566/JPSJ.83.053709

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao,
Magnetic Excitations in Resonant
Inelastic Scattering of Sr_2IrO_4 : A
Localized Spin Picture, Physical
Review B, 査読有、89 巻、2014、
064410(1-9)

DOI:10.1103/Phys.RevB.89.064410

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao,
Elementary Excitations Probed by
L-Edge Resonant Inelastic Scattering
in Systems with Weak and
Intermediate Electron Correlations,
Physical Review B, 査読有、88 巻、2013、
014407(1-10)

DOI:10.1103/PhysRevB.88.014407

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao,
Strong Coupling Theory of Spin and
Orbital Excitations in Sr_2IrO_4 , Physical
Review B, 査読有、88 巻、2013、
014406(1-5)

DOI:10.1103/Phys.RevB.88.104406

[学会発表](計 12 件)

五十嵐潤一、長尾辰哉、 CaIrO_3 における
磁気構造および励起状態の解析と共鳴 X
線散乱、日本物理学会第 72 回年次大会、
2017.3.17、大阪大学豊中キャンパス(大
阪府・豊中市)

長尾辰哉、五十嵐潤一、 CaIrO_3 の磁気励
起の理論、日本物理学会 2016 年秋季大会、
2016.9.15、金沢大学角間キャンパス(石
川県・金沢市)

長尾辰哉、五十嵐潤一、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の素励起
の理論、日本物理学会第 71 回年次大会、
2016.3.21、東北学院大学泉キャンパス
(宮城県・仙台市)

五十嵐潤一、Ir 酸化物、銅酸化物の硬 X
線 RIXS 理論、日本物理学会第 71 回年次
大会、2016.3.20、東北学院大学泉キャン
パス(宮城県・仙台市)

Jun-ichi Igarashi, Collective Excita-
tions in Na_2IrO_3 , The 9th International
Conference on X-Ray Scattering、
2015.11.23、National Synchrotron
Radiation Research Center (Hsinchu,
Taiwan)

五十嵐潤一、長尾辰哉、 Na_2IrO_3 における
軌道磁気励起の遍歴電子描像による解析、
日本物理学会 2015 年秋季大会、2015.9.16、
関西大学千里山キャンパス(大阪府吹田
市)

長尾辰哉、五十嵐潤一、遍歴電子描像に
よる $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の軌道磁気励起の解析、日
本物理学会第 70 回年次大会、2015.3.22、
早稲田大学早稲田キャンパス(東京都)

五十嵐潤一、長尾辰哉、遷移金属 L 吸収

端共鳴非弾性 X 線散乱における磁気励起
スペクトルの解析、日本物理学会 2014 年
秋季大会、2014.9.7、中部大学春日井キ
ャンパス(愛知県・春日井市)

五十嵐潤一、長尾辰哉、 Sr_2IrO_4 における
素励起の理論-フント結合とスピン軌道
相互作用の競合-、日本物理学会第 69 回
年次大会、2014.3.29、東海大学湘南キヤ
ンパス(神奈川県・平塚市)

五十嵐潤一、5d 化合物系における共鳴非
弾性 X 線散乱理論、日本物理学会第 69 回
年次大会、2014.3.29、東海大学湘南キヤ
ンパス(神奈川県・平塚市)

五十嵐潤一、長尾辰哉、 Sr_2IrO_4 における
軌道磁気励起の理論、日本物理学会 2013
年秋季大会、2013.9.26、徳島大学常三島
キャンパス(徳島県・徳島市)

Junichi Igarashi, Elementary Excita-
tions Probed by L-edge RIXS, The 8th
International Conference on Inelastic
X-Ray Scattering、2013.8.14、SLAC
National Acceleration Laboratory
(Menlo Park, California, USA)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

五十嵐 潤一 (IGARASHI JUNICHI)

茨城大学・理学部・名誉教授

研究者番号：20127179

(2) 研究分担者

無し

(3) 連携研究者

無し

(4) 研究協力者

無し