

令和 3 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2020

課題番号：17K14335

研究課題名(和文)複合イリジウム酸化物超格子薄膜における新奇電子相の創成

研究課題名(英文)Creation of new electronic phase in thin film of complex iridium oxides using super lattice

研究代表者

平岡 奈緒香(太田奈緒香)(Hiraoka, Naoka)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・助教

研究者番号：40758827

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文):ペロブスカイト型SrIrO₃およびCaIrO₃は結晶および時間反転対称性で保護されたディラックノードを持つことが期待されている半金属である。SrTiO₃(001)上に作製した両物質の膜において、IrをSnで置換することによってバンド幅の抑制とポテンシャルの不均一性の導入を行った。SrIrO₃においては置換の影響は低温での磁性と絶縁性の同時発現という形で現れ、CaIrO₃においては磁気転移を伴わない絶縁化として現れた。Sn置換CaIrO₃では不均一性が絶縁化の直接の原因になったのに対し、Sn置換SrIrO₃ではそうではないと結論した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁性を担っている電子とディラック分散を担っている電子が共通であると知られている例は少ない。本研究では、その候補物質について、置換という摂動がどのような影響を与えるか一例を示した。電子の遍歴と局在、その制御の方法に関して、新たな知見を与えると考えられる。

研究成果の概要(英文): Ir of SrIrO₃ and CaIrO₃ film on SrTiO₃(001) substrate was substituted by Sn to suppress band width and introduce inhomogeneity of potential. In SrIrO₃, substitution yielded transition into magnetic insulator at low temperature. On the other hand, Sn substituted CaIrO₃ already showed insulating behavior above magnetic transition temperature. We concluded that inhomogeneity is the direct cause of insulating behavior of Sn substituted CaIrO₃ while it is not in Sn substituted SrIrO₃.

研究分野：物性物理

キーワード：強相関電子系

1. 研究開始当初の背景

3d、4d電子に比べて大きいスピン軌道相互作用を持つ5d電子系のIrを含む複合イリジウム酸化物において、 $J_{\text{eff}} = 1/2$ モーメントを持つスピン-軌道複合軌道が、種々の興味深い物性の発現をもたらす可能性が指摘されていた。層状ペロブスカイト型構造を持つ Sr_2IrO_4 については、 $S = 1/2$ の銅酸化物反強磁性モット絶縁体を母物質とする超伝導体に提案されているものと類似の機構で電子・正孔ドーピングにより超伝導状態が生ずる可能性が指摘されていた[H. Watanabe et al., Phys. Rev. Lett. 110, 27002 (2013).]。また、ペロブスカイト型構造を持つ SrIrO_3 については、結晶の対称性と時間反転対称性に守られた線状のディラックノードが存在することが理論計算から予測され[J.-M. Carter et al., Phys. Rev. B 85, 115105 (2012).]、対称性を制御することによってこのノードの形状を変調できる可能性が提案されていた。、 Sr_2IrO_4 の超伝導については、超伝導ギャップの発現を示唆する分光測定がKを表面吸着させた系について報告されていた[J.-M. Carter et al., Phys. Rev. B 85, 115105 (2012).]ものの、零抵抗やマイスナー効果など、超伝導状態の直接的な検出はされていなかった。 SrIrO_3 については、分光測定により大まかな電子構造が理論の予測と一致することは示されていたが、線状のディラックノードの存在を直接確かめられた例はなかった。

一方で、人工超格子作製技術を利用することにより、複合イリジウム酸化物の興味深い性質を発現させるためのプラットフォームを拡張できる可能性が示されていた。例えば、パルスレーザー堆積法(PLD法)を用いて $[(\text{SrIrO}_3)_n, (\text{SrTiO}_3)_1]_k$ の超構造を作製することにより、次元性を人工的に制御した薄膜を作製できること、それにより、2次元極限 $n=1$ のモット絶縁体状態から $n=\infty$ の半金属状態まで、電気抵抗性が段階的にコントロールできることが2015年に松野らによって実験的に示された[J. Matsuno et al., Phys. Rev. Lett. 114, 247209 (2015).]。理論的には、3次元ペロブスカイト SrIrO_3 を $[(\text{CaIrO}_3)_2, (\text{SrIrO}_3)_2]_k$ のように超格子化することで、ディラックノードが線状から点状に変調され表面状態を持つようになることも予測されていた[C. Fang et al., Nat Phys 12, 936 (2016).]。

また、2014年にはChengらによって SrIrO_3 のIrの一部をSnで置換することで温度誘起の常磁性半金属-弱強磁性絶縁体転移をおこすようになることがバルク多結晶について報告されていた。[J. Cheng et al., JPS Conf. Proc. 3, 13014 (2014).] 通常モット絶縁体では、磁気転移温度以上でも系は絶縁的である。Sn置換 SrIrO_3 では、磁性発現に伴う対称性の変化が低温での絶縁化と本質的に関係している可能性があることが予測された。

2. 研究の目的

複合イリジウム酸化物中に新奇電子相を実現することを目指す。特に、対称性の制御による SrIrO_3 中の線状ディラックノードの変調と、層状ペロブスカイト型イリジウム酸化物への電子ドーピングによる超伝導相の創成を目的とする。

3. 研究の方法

PLD法によって薄膜を作製する。X線回折法と電子顕微鏡法によって結晶構造を同定し、基本測定として電気抵抗測定・磁化測定を行う。ディラックノードとその変調の直接観察のため、角度分解光電子法(ARPES)を用いる。薄膜の作製X線回折測定と、および基本的な物性測定は博士学生の根岸真通氏の協力で行った。電子顕微鏡法による測定は東京大学物性研究所の浜根大輔氏の協力で行った。分光測定は、2018年2月と2020年12月の2回に渡って高エネルギー加速器研究機構の組頭研究室の湯川龍博士、北村未歩博士と堀場弘司博士にご協力いただきPhoton Factory BL-2Aにて行った。

4. 研究成果

-研究対象-

当初の予定では、超格子も作製する予定であったが、超格子化していない膜の性質に関して詳細に検証すべき項目が多々見つかったため、主な研究対象は $\text{SrTiO}_3(001)$ 上に作製したSn置換 SrIrO_3 ($\text{SrIr}_{1-x}\text{Sn}_x\text{O}_3$, SISO) およびSn置換 CaIrO_3 ($\text{CaIr}_{1-x}\text{Sn}_x\text{O}_3$, CISO)に限ることとした。

-電気的・磁氣的性質について-

置換率に対する依存性を詳しく調べた結果、SISOは置換に伴い低温で弱強磁性磁気転移と半金属絶縁体転移を同時に示すようになるのに対し、CISOでは置換そのものによって絶縁性の急激な上昇をもたらされることが分かった。Sn置換の効果として、ホッピングの阻害によるバンド幅の減少とポテンシャルの乱れの導入が期待される。Ir-O-Irの結合角の違いによりSISOよりもととのバンド幅が狭いCISOでは置換による乱れの導入の影響が大きく、モット-アンダーソンの機構による絶縁化につながったと提案した[M. Negishi et al. APL Materials 7, 121101 (2019).]。

-バンド分散の直接観測について-

SISO については、磁性発現に伴うディラックノードの変調が起きていることが期待される。 $x=0.2$ の薄膜について、軟 X 線を用いた U 点周りの角度積分電子分光で温度依存測定を行い、磁気転移をはさむ電子状態変化の兆候をつかんだものの、角度分解した際の分解能が十分でなく、バンド分散の詳細な変化の同定にはいたらなかった。入射光に紫外線を用いても波数分解能があまり向上しなかったため、置換による不均一性の導入という内在的な原因が波数分解能を低下させる要因になっている可能性がある。検証、追及するには無置換から徐々に置換率を増やすなどの工夫やさらなる測定が必要である。

-研究手法の拡張-

SQUID 磁気計用高圧セルの開発に協力した。乱れを導入せずにバンド幅をコントロールし、その影響を調べるのに適した手法である。薄膜ではなくバルク用になるが、イリジウム酸化物の物性研究に適用可能であるため、今後の展開が期待される。[N. Hiraoka et al., JPSJ Vol.90 No.7 掲載予定]

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 M. Negishi, N. Hiraoka, D. Nishio-Hamane, H. Takagi	4. 巻 7
2. 論文標題 Contrasted Sn substitution effects on Dirac line node semimetals SrIrO ₃ and CaIrO ₃	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 APL Materials	6. 最初と最後の頁 121101-1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5129235	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Naoka Hiraoka, Kelton Whiteaker, Marian Blankenhorn, Yoshiyuki Hayashi, Ryosuke Oka, Hidenori Takagi, Kentaro Kitagawa	4. 巻 90
2. 論文標題 Design of Opposed-Anvil-Type High-Pressure Cell for Precision Magnetometry and Its Application to Quantum Magnetism	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 1件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 根岸真通, 平岡奈緒香, 高木英典
2. 発表標題 ステップ基板を用いたペロブスカイト型Sr(Ir _{1-x} Snx)O ₃ 薄膜の配向制御と電気輸送特性
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会, 同志社大学京田辺キャンパス（京都）, 2018年9月9日
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 N. Hiraoka
2. 発表標題 Electronic phase control of perovskite SrIrO ₃ with Dirac line nodes
3. 学会等名 Gordon Godfrey Workshop 2017 on Spins and Strong Electron Correlations（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 M. Negishi, N. Hiraoka, D. Nishio-Hamane, H. Ohsumi, H. Takagi
2. 発表標題 Dirac Semimetal-Magnetic Insulator Transition in Perovskite $\text{Alr}_{1-x}\text{Sn}_x\text{O}_3$ Thin Films (A = Ca, Sr)
3. 学会等名 Yamada Science Foundation Junjiro Kanamori Memorial International Symposium - New Horizon of Magnetism - (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 M. Negishi, N. Hiraoka, D. Nishio-Hamane, H. Ohsumi, H. Takagi
2. 発表標題 Phase control of Dirac node electrons in perovskite-type (Sr,Ca)IrO ₃ thin films
3. 学会等名 Max Plank-UBC-UTokyo School - Elementary Excitations in Quantum Materials - (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Negishi, N. Hiraoka, D. Nishio-Hamane, H. Ohsumi, H. Takagi
2. 発表標題 Phase control of Dirac node electrons in perovskite-type (Sr,Ca)IrO ₃ thin films
3. 学会等名 The 18th Taiwan-Japan-Korea Symposium on Strongly Correlated Electron Systems (TJK18) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 根岸真通, 平岡奈緒香, 大隅寛幸, 高木英典
2. 発表標題 ペロブスカイト型 $\text{Alr}_{1-x}\text{Sn}_x\text{O}_3$ 薄膜 (A = Ca, Sr) の半金属 磁性絶縁体転移
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会, 岩手大学上田キャンパス (岩手), 2017年9月23日.
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 根岸真通, 平岡奈緒香, 高木英典
2. 発表標題 ペロブスカイト型SrIr _{1-x} Sn _x O ₃ 薄膜の電子状態と弱強磁性
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会, 東京理科大学野田キャンパス(千葉), 2018年3月23日.
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 山村凌平, 平岡奈緒香, 高木英典, 浜根大輔
2. 発表標題 ダブルペロブスカイト型La ₂ MgRuO ₆ 薄膜の成長条件と輸送特性
3. 学会等名 日本物理学会第73回年次大会, 東京理科大学野田キャンパス(千葉), 2018年3月23日.
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 平岡奈緒香, 北川健太郎, 林義之, Kelton Whiteaker, Marian Blankenhorn, 高木英典
2. 発表標題 SQUID 磁気計用対向アンビル型高压セルの設計
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	根岸 真通 (Negishi Masamichi)	東京大学・理学系研究科・博士課程学生 (12601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------