

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 5 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740245

研究課題名(和文) スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体の物性解明と超伝導化

研究課題名(英文) Search for superconductivity in spin-orbit coupling induced Mott insulators

研究代表者

岡部 博孝 (OKABE, Hirotaka)

独立行政法人物質・材料研究機構・超伝導物性ユニット・NIMSポスドク研究員

研究者番号：20406838

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円、(間接経費) 1,020,000円

研究成果の概要(和文)：スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体Ba2IrO4はLa2CuO4と同構造の層状イリジウム酸化物であり、銅酸化物高温超伝導体に類似した電子状態を持つことが予想されている。本研究では、Ba2IrO4の物性解明と超伝導化を目的とした高品質試料作成、精密な輸送特性および電子物性測定を行った。その結果、スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体の特異な電子状態に対する理解が深まり、超伝導化への道筋が見えてきた。

研究成果の概要(英文)：The spin-orbit coupling induced Mott insulator Ba2IrO4 is analogous to the high-Tc cuprate La2CuO4 both in crystal structure and in electronic state. In this study, we carried out the synthesis of high-quality samples, high-accurate measurements of transport and electronic properties of Ba2IrO4. We have revealed the peculiar electronic state of Ba2IrO4, and suggested the way to superconductivity.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性

キーワード：強相関系

1. 研究開始当初の背景

近年、 Sr_2IrO_4 に代表される層状イリジウム酸化物において、スピン軌道相互作用による合成全角運動量 $J_{\text{eff}} = 1/2$ の絶縁体(スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体)が注目を集めている。イリジウム酸化物には、遷移金属 d 電子間のクーロン相互作用に加えて、 $5d$ 軌道の強いスピン軌道相互作用が存在する。 Sr_2IrO_4 では、これら複数の相互作用の競合によって、シングルバンドのモット・ハバード状態が形成されている(図1)。この電子状態が、銅酸化物高温超伝導体の母物質に非常に似ていることから、イリジウム酸化物における高温超伝導の発見が期待されている。しかしながら、 Sr_2IrO_4 では結晶構造の歪み(IrO_6 八面体の回転歪み)がスピン軌道相互作用と結びつき、ジャロシンスキー・守谷相互作用(D-M相互作用)を介して、強磁性(傾角反強磁性)を発現する。一般的に強磁性と超伝導は相反する関係にあり、また、このような寄生的な強磁性の存在は、新しいモット絶縁体の基底状態の解明にも不都合である。以上の理由から、強磁性を示さない“純粋な”スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体の出現が望まれてきた。

最近発見された新しいスピン軌道相互作用誘起モット絶縁体 Ba_2IrO_4 は、 Sr_2IrO_4 と同じ結晶構造をとるが、 Sr^{2+} がより大きな同族元素の Ba^{2+} に置換されたことにより、 IrO_6 八面体の回転歪みは抑制され、きれいな IrO_2 正方格子(銅酸化物の CuO_2 面と同形)を組んでいる。この結果として、 Sr_2IrO_4 で問題となった D-M 相互作用による強磁性は全く出現しない(図2)。すなわち Ba_2IrO_4 は、スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体の磁気基底状態の解明と超伝導化を目指す上で最適な物質であるといえる。

基礎物性測定およびミュオンスピン回転(μSR)法より、 Ba_2IrO_4 では 400K 以上の高温領域から緩やかにスピン相関が発達し、240K 以下で反強磁性長距離秩序を示すこと、反強磁性転移の臨界指数 β が、異方的な二次元ハイゼンベルクモデルで表現できること、イリジウムの磁気モーメントが、単一スピンの $1/3$ 程度の大きさにまで減少していることが判明した。これらの事実は、 Ba_2IrO_4 が量子スピンゆらぎの強い、層状構造を反映した擬二次元反強磁性体、すなわち銅酸化物超伝導体の母物質 La_2CuO_4 によく似た物質であることを示している。以上の理由により、 Ba_2IrO_4 を対象としたスピン軌道相互作用誘起モット絶縁体における超伝導の可能性を追求した。

2. 研究の目的

本研究の目的は、スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体 Ba_2IrO_4 の物性解明と超伝導化

である。キャリアドーピング、圧力印加による物性制御手法(フィリング、バンド幅制御)を駆使し、 Ba_2IrO_4 の超伝導化とスピン軌道相互作用誘起モット絶縁体における普遍的性質の解明を目指した。

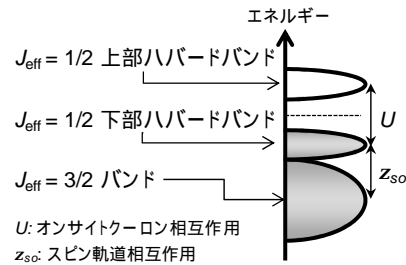


図1. Sr_2IrO_4 の電子状態

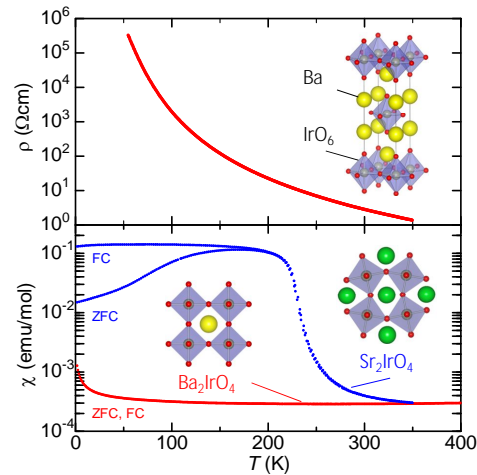


図2. Ba_2IrO_4 の電気抵抗率 ρ と磁化率 χ の温度依存性。比較のために、 Sr_2IrO_4 の磁化率も載せてある。

3. 研究の方法

(1) 試料合成・結晶育成

母物質およびキャリアドーピング試料は物質・材料研究機構の超高压高温合成装置を利用する。また、同装置を用いて仕込み組成やフラックス、高压処理条件を改善、最適化することにより、高品質単結晶の育成を行う。

(2) 磁化率・電気抵抗測定

キャリアドーピング試料の磁化率や電気抵抗の測定を行う。また、産業技術総合研究所、および大阪大学との共同研究により、高压下の輸送特性を解明する。

(3) 精密な電子物性測定

高品質単結晶およびキャリアドーピング試料を用いた精密な電子物性測定を行う。 μSR 実験は J-PARC (高エネルギー加速器研究機構) 弾性・非弾性共鳴 X 線散乱および角度分解光電子分光実験はローザンヌ工科大学および甲南大学と共同で行う。

4. 研究成果

(1) 単結晶育成

高压下における最適な育成条件(3万気圧, 1200 ~ 1500)を見出すことにより、最大500 ミクロン程度の大きさの結晶を得ることができた(図3)。この結晶を使用して、ラマン散乱、共鳴X線散乱、角度分解光電子分光、超高压下電気抵抗測定を行なった。

(2) キャリアドーピング

二価のバリウム(Ba^{2+})の一部を、一価のカリウム(K^+ 、ホールドーピングに対応)または、三価のランタン(La^{3+} 、電子ドーピングに対応)に置換することに成功した。ゼーベック係数測定より、K置換体がp型、La置換体がn型になることが判明した。これより、 Ba_2IrO_4 はホールと電子、両キャリアともドーピング可能な系であることが分かった。合成条件を最適化することにより、ホール側では最大 $x = 0.5$ ($Ba_{2-x}K_xIrO_4$)まで、電子側では最大 $y = 0.05$ ($Ba_{2-y}La_yIrO_4$)まで置換可能であることが判明した。

(3) 磁化率・電気抵抗率

キャリアドーピングによる明確な磁化率の変化(T_N のシフト)は見られなかった。本物質は層状構造を反映した二次元的なスピン揺らぎが強い系であるため、磁化率の測定によって T_N を決定することは困難である。

多結晶試料を用いた高压下電気抵抗測定により、母物質で約14万気圧、 $Ba_{2-x}K_xIrO_4$ で5万気圧、 $Ba_{2-y}La_yIrO_4$ で約15万気圧の圧力誘起金属絶縁体転移を示すことが分かった。転移圧力以上で抵抗は金属的な温度依存性を示すが、通常フェルミ液体的な温度の二乗に比例する依存性ではなく、反強磁性スピンゆらぎによるインコヒーレントな散乱が支配的な異常金属的振舞いである。

この金属絶縁体転移の臨界指数 δ の解析から、本物質が典型的なモット転移のような、自発的な対称性の破れに伴う一次相転移で

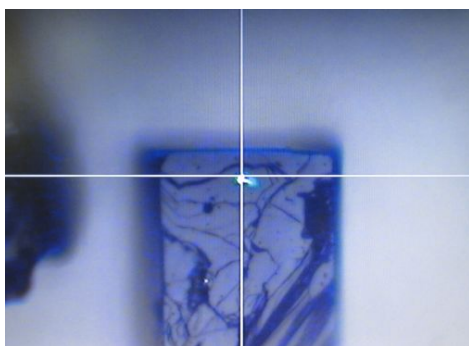


図3. Ba_2IrO_4 の単結晶

はなく、アンダーソン局在のような、トポロジカルな連続相転移に近い性質を示すことが分かった。

ダイヤモンドアンビルを用いた超高压下单結晶電気抵抗測定により、金属絶縁体転移圧力がキュービックアンビルによる多結晶の測定結果(14万気圧)よりも大幅に高压側(24万気圧)にシフトすることが分かった。これは Ba_2IrO_4 が圧力の異方性(静水圧性)による影響を強く受けることを意味している。

これらキャリアドーピング依存性を調べることにより、 Ba_2IrO_4 が特異な電子-ホール非対称性(銅酸化物超伝導体に対し、左右反転した電子-ホール非対称性)を示すことが分かった(図4)。残念ながら本研究において、 Ba_2IrO_4 の超伝導発見には至らなかった。今後さらなる高ドーピング量、高压、低温までの実験が望まれる。

(4) 精密な電子物性測定

高純度単結晶を用いた共鳴弾性X線散乱測定により、 Ba_2IrO_4 の反強磁性状態において、磁気モーメントが IrO_2 面内で反平行([110]方向)に整列していること、面内における交換相互作用の大きさは銅酸化物の半分程度(600~700 K)であることが判明した。

軟X線吸収分光法(XAS)および共鳴非弾性X線散乱法(RIXS)により、 Ba_2IrO_4 では各電子軌道(xy, yz, zx)の電子占有率がほぼ等しいことが分かった。これは IrO_6 八面体の正方晶歪みによる結晶場分裂エネルギー Δ が、スピン軌道相互作用によって緩和され(3 eV \rightarrow 0.05 eV)、 Ba_2IrO_4 の基底状態がほぼ理想的なモデル($\Delta = 0$)に近いことを示唆している。一方、硬X線光電子分光法(HAXPES)および極低エネルギー光電子分光法(ELEPES)により、 Ba_2IrO_4 はモット型よりもスレーター型絶縁体に近いが、反強磁性転移温度以上でも電子相関の寄与による異常金属状態を示すことが分かった。これ

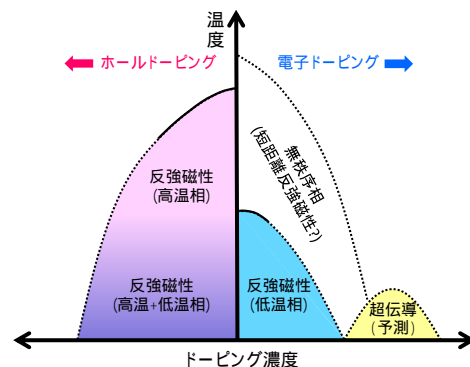


図4. Ba_2IrO_4 の電子-ホール非対称性

ら研究を通して、スピン軌道相互作用誘起モット絶縁体の物性解明に一步前進したと考えられる。

本研究を通してスピン軌道相互作用誘起モット絶縁体の物性解明はだいぶ進展したが、超伝導化に関する課題は依然として残っており、今後も研究を継続することが望ましい。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 9 件)
全論文査読有

S. Moser, L. Moreschini, A. Ebrahimi, B. Dalla Piazza, M. Isobe, H. Okabe, J. Akimitsu, V. V. Mazurenko, K. S. Kim, A. Bostwick, E. Rotenberg, J. Chang, H. M. Rønnow, M. Grioni, The electronic structure of the high-symmetry perovskite iridate Ba_2IrO_4 , *New J. Phys.* **16**, (2014) 013008-1.

DOI: 10.1088/1367-2630/16/1/013008

M. Moretti Sala, M. Rossi, S. Boseggia, J. Akimitsu, N. B. Brookes, M. Isobe, M. Minola, H. Okabe, H. M. Rønnow, L. Simonelli, D. F. McMorrow, and G. Monaco, Orbital occupancies and the putative $j_{\text{eff}} = 1/2$ ground state in Ba_2IrO_4 : A combined oxygen K-edge XAS and RIXS study, *Phys. Rev. B* **89**, 121101(R)/1-5 (2014).

DOI: 10.1103/PhysRevB.89.121101

A. Yamasaki, S. Tachibana, H. Fujiwara, A. Higashiya, A. Irizawa, O. Kirilmaz, F. Pfaff, P. Scheiderer, J. Gabel, M. Sing, T. Muro, M. Yabashi, K. Tamasaku, H. Sato, H. Namatame, M. Taniguchi, A. Hloskovskyy, H. Yoshida, H. Okabe, M. Isobe, J. Akimitsu, W. Drube, R. Claessen, T. Ishikawa, S. Imada, A. Sekiyama, S. Suga, Bulk nature of layered perovskite iridates beyond the Mott scenario: An approach from a bulk-sensitive photoemission study, *Phys. Rev. B* **89**, (2014) 121111(R)/1-5

DOI: 10.1103/PhysRevB.89.121111

H. Okabe, M. Isobe, E. Takayama-Muromachi, N. Takeshita, and J. Akimitsu, Carrier doping effect for transport properties of a spin-orbit Mott insulator Ba_2IrO_4 , *Phys. Rev. B* **88**, 075137/1-6 (2013).

DOI: 10.1103/PhysRevB.88.075137

S. Boseggia, R. Springell, H. C. Walker, Ch. Rüegg, H. Okabe, M. Isobe, R. S.

Perry, S. P. Collins, D. F. McMorrow, Robustness of basal-plane antiferromagnetic order and the $J_{\text{eff}} = 1/2$ state in single-layer iridate spin-orbit Mott insulators, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 117207/1-5 (2013).

DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.117207

D. Orii, M. Sakata, A. Miyake, K. Shimizu, H. Okabe, M. Isobe, E. Takayama-Muromachi, and J. Akimitsu, Pressure-induced Metal-insulator Transition of the Mott Insulator Ba_2IrO_4 , *Journal of the Korean Physical Society* **63**, 349-351, (2013).

DOI: 10.3938/jkps.63.349

M. Isobe, H. Okabe, J. Akimitsu, Magnetic States in Quasi-2-D Iridium Oxides with Large Spin-orbit Coupling, *Journal of the Korean Physical Society* **63**, 394-397 (2013).

DOI: 10.3938/jkps.63.394

H. Okabe, M. Isobe, E. Takayama-Muromachi, A. Koda, S. Takeshita, M. Hiraishi, M. Miyazaki, R. Kadono, Y. Miyake, and J. Akimitsu, Magnetic ordering in spin-orbit Mott insulator Ba_2IrO_4 probed by μSR , *J. Phys. Conf. Ser.*, **400**, 032071/1-4 (2012).

DOI: 10.1088/1742-6596/400/3/032071

M. Isobe, H. Okabe, E. Takayama-Muromachi, A. Koda, S. Takeshita, M. Hiraishi, M. Miyazaki, R. Kadono, Y. Miyake, and J. Akimitsu, Spin-Orbit Mott State in the Novel Quasi-2D Antiferromagnet Ba_2IrO_4 , *J. Phys. Conf. Ser.*, **400**, 032028/1-4 (2012).

DOI: 10.1088/1742-6596/400/3/032028

〔学会発表〕(計 11 件)

H. Okabe, M. Isobe, E. Muromachi, N. Takeshita, A. Koda, M. Hiraishi, Masatoshi, M. Miyazaki, R. Kadono, Y. Miyake, J. Akimitsu, Doping effect on the $J_{\text{eff}} = 1/2$ Mott insulator Ba_2IrO_4 , International Workshop on Novel Superconductors and Super Material, 品川グランドセントラルタワー, 2013/11/21-22.

貝出直大, 清水克哉, 岡部博孝, 磯部雅朗, 秋光純, Sr_2VO_4 の高圧下における金属化探索, 第 54 回高圧討論会, 新潟コンベンションセンター, 2013/11/14-16.

岡部博孝, 吉田紘行, 磯部雅朗, 松下能孝, 佐藤晃, 室町英治, 秋光純, YbB_2C_2 の単結晶育成と物性評価, 日本物理学会 2013 年秋期大会, 徳島大学,

2013/09/25-28

H. Okabe, M. Isobe, E. Muromachi, M. Miyazaki, R. Kadono, Y. Miyake, J. Akimitsu, μ SR study of the magnetic state in layered iridates Light and Particle Beams in Materials Science, つくば国際会議場, 2013/08/28-31.

磯部雅朗, 岡部博孝, 室町英治, 秋光純, スピン・軌道モット絶縁体 Ba_2IrO_4 の磁化率, The Internal Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 東京大学, 2013/08/05-09.

H. Okabe, M. Isobe, E. Muromachi, A. Koda, M. Hiraishi, Masatoshi, M. Miyazaki, R. Kadono, Y. Miyake, J. Akimitsu, "Magnetic Properties of carrier-doped Ba_2IrO_4 probed by μ SR, The Internal Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 東京大学, 2013/08/05-09.

岡部博孝, 磯部雅朗, 室町英治, 幸田章宏, 平石雅俊, 宮崎正範, 門野良典, 三宅康博, 秋光純, μ SR で見たスピン軌道モット絶縁体 Ba_2IrO_4 のキャリアドーピング効果, 日本物理学会, 広島大学, 2013/03/28.

磯部雅朗, 岡部博孝, 室町英治, 秋光純, スピン軌道モット絶縁体 Ba_2IrO_4 の磁化率, 日本物理学会, 広島大学, 2013/03/28.

津田俊輔, 岡部博孝, 磯部雅朗, 宇治進也, Ba_2IrO_4 のラマン分光研究, 日本物理学会, 広島大学, 2013/03/28.

岡部博孝, 磯部雅朗, 室町英治, 竹下直,

秋光純, スピン軌道モット絶縁体 Ba_2IrO_4 におけるキャリアドーピング効果, 日本物理学会, 横浜国立大学 2012/09/20.

折井大祐, 坂田雅文, 三宅厚志, 清水克哉, 岡部博孝, 磯部雅朗, 室町英治, 秋光純, 高圧力下における Ba_2IrO_4 の電気伝導特性, 日本物理学会, 横浜国立大学 2013/09/20.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岡部 博孝 (OKABE HIROTAKA)
独立行政法人物質・材料研究機構・超伝導物性ユニット・NIMS ポスドク研究員
研究者番号: 20406838

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし