

平成 30 年 6 月 2 日現在

機関番号：12301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05157

研究課題名(和文) スピン軌道結合が強い系の素励起と共鳴X線散乱の理論

研究課題名(英文) Theory of resonant inelastic x-ray scattering and elementary excitations in the systems with strong spin-orbit coupling

研究代表者

長尾 辰哉 (Nagao, Tatsuya)

群馬大学・大学院理工学府・准教授

研究者番号：00237497

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)：スピン軌道相互作用(SOI)の強いイリジウム酸化物の秩序状態における素励起の性質を調べるため、共鳴非弾性X線散乱(RIXS)スペクトルを理論解析した。電子の遍歴性が強い場合に適した取り扱いに基づいたRIXSスペクトル解析の定式化に成功し、フント結合と電子間クーロン相互作用に起因する、新奇な磁気分散のバンド分裂の存在を予言したり、SOIが比較的弱い系の散乱強度が異常を示す可能性を発見するなど、様々な成果が得られた。

研究成果の概要(英文)：In order to investigate the properties of elementary excitations from iridium oxides, known as the systems with strong spin-orbit interaction (SOI), I have studied the resonant inelastic x-ray scattering spectra (RIXS) of the systems. On the basis of the itinerant electron scheme, I have developed a theoretical framework for the spectral analysis. I have obtained several new findings. For instance, the presence of a new type of the band-splitting of the magnetic dispersion attributed to Hund's coupling and Coulomb interaction, anomaly appeared in the RIXS intensity in the systems with moderate SOI, and so on.

研究分野：物理学

キーワード：スピン軌道相互作用 共鳴非弾性X線散乱 イリジウム酸化物 銅酸化物 磁気励起分散 エキシトン励起

1. 研究開始当初の背景

(1) 第三世代シンクロトロン放射光施設の出現に伴い、物質中にある特定の標的要素の吸収端における共鳴過程を利用した X 線分光手法が急速に発展した。その内、非弾性過程に注目した共鳴時弾性 X 線散乱(RIXS)は、系の励起状態を調べるのに適しており、遷移金属酸化物の低エネルギー励起の観測に精力的に利用されている。RIXS スペクトルは、光と物質の相互作用の結果、数 eV の領域に図 1 に示した様々な種類の素励起が観測されるため、データを解釈するための理論の整備が急務として要請されてきた。

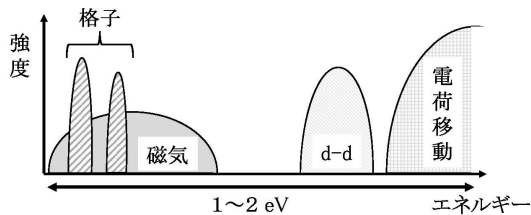


図1. 5d(3d)電子系におけるRIXSスペクトル模式図

(2) 特に、近年注目を集めている 5d 遷移金属酸化物では、図 1 に示した領域が全体で 1eV 程の狭い領域に密集しているため、様々な素励起を統一的に扱う理論的枠組みの必要性が謳われていた。これに適した扱いの 1 つは、遍歴電子描像に基づく理論であるが、5d 電子系では、本研究開始以前には、局在電描像により、励起の種類ごとに構成された有効モデルの解析研究が専らであった。

(3) さらに、5d 系はスピン軌道相互作用(SOI)が強い系であることから、通常の磁性体とは異なる、SOI の強い系に固有の新奇な物理が解明されつつある。それらが RIXS の観測結果にどう反映されるかといった興味が高まっていた。例えば、典型物質 Sr_2IrO_4 において、磁気励起のバンドが、従来知られていなかったタイプの分裂を示すことが発見されており、この種のバンド分裂がこの物質固有の事情によるのか、SOI の強い系に広範にみられるのかといった点である。

2. 研究の目的

端的に言えば、背景(3)で述べたような興味深い 5d 系の RIXS 結果を、背景(2)で述べた事情から遍歴電子描像に立脚した理論で説明、予言するために、必要な理論を構築し、背景(1)で述べた要請に応えたい、というのが目標である。以下で背景と関連させながらこの目標を具体化して述べる。

(1) 多体論の課題として、遍歴電子描像に立脚した RIXS 強度解析用の理論を確立することが方法論として大きな目的となる。

(2) 背景(2)では、遍歴電子描像に基づく理論導入の動機を、エネルギー領域の観点から説

明した。ここでは、遍歴電子描像から出発して、電子の飛び移り積分を最近接格子間に制限したモデルが、5d 系の RIXS スペクトルの解析にどの程度有効であることを詳らかにすることを目的に加える。これは、これまで局在電子描像により解析された物質において、励起分散の実験結果と定量的な一致を得るためには、少なくとも第二、第三近接格子間の飛び移り項まで加える必要がある、という事実への対処を意図している。この目的の達成により、描像の有用性の判断材料の提供と、解釈の格段の簡素化が期待できる。

(3) 背景(3)で述べた、典型物質における磁気分散バンドの分裂は、その起源が SOI とクーロン相互作用のうちのフント結合の項との協同によると思われる。従って原理的には SOI の強い系一般に同様の現象があつてしかるべきである。関連物質について調べることにより、このことを理論的に確かめ、実際に分裂が予測されるのであれば、RIXS 実験での観測可能性を予言する。

3. 研究の方法

(1) 遍歴電子モデルを構築する基本である、格子間の有効飛び移り積分を二次摂動の範囲で導出する。手法はスレーター・コスター流の理論を用いる。飛び移り項は最近接格子間に制限し、得られたハミルトニアンをハートリー・フォック近似により解析し、基底状態や一電子励起状態を準備する。

(2) 多体論の常道の 1 つであるダイヤグラム展開の手法を援用し、系が長距離秩序をもつ状態にある場合、また SOI が無視できない場合を考慮に入れた、RIXS 強度解析用の理論を整備定式化する。

(3) (2)の定式化により、RIXS 強度はある種の密度-密度相関関数を計算することに帰着する。これを乱雑位相近似の範囲で解き、RIXS における励起分散、散乱スペクトルなどを数値計算する。

4. 研究成果

(1) SOI の強い 5d 系を調べるに当たり、SOI が比較的小さな 3d 遷移金属酸化物系との相違を検討した。RIXS 理論に関連した両系の特徴の違いとして、例えばコア・ホールの寿命の長短があげられる。寿命の短い方の 5d 系を解析する場合には、ある種の近似が良い精度で成り立つことから、計算量を大いに軽減できることは知られていた。それに加え、SOI が比較的小さい系では、長距離秩序が実現した状態において、特定の波数近傍に、RIXS 強度の増大が生じることが、本研究により新たに発見された。この強度異常は、長距離秩序の消滅による等方性の回復や、SOI の減少により、速やかに消滅していくことも示された。これらの結果は、間を置かず他の手法によ

る理論研究によっても追認されており [T. Nomura, J. Phys. Soc. Jpn., **84** (2015)], 実験による検証が待たれている。また、この異常が弾性散乱に近い状況で顕著となることも発見しており、実験データから弾性散乱の寄与を上手に分離することができれば、RIXS 強度の中にこれまで知られていなかった情報が含まれていることを示唆する成果となっている。その原因は長距離秩序の存在という偏在する現象が起源であるため、同様な強度異常はその他の系でも観測されることが期待される。弾性散乱の寄与の分離というのは今後の重要な研究課題である。

(2) 対象物質に対し、該当する結晶構造の対称性を取り入れ、二次摂動の範囲内で隣接サイト間の有効飛び移り積分の行列要素を計算した。複雑な構造と SOI の存在下における基底多重項の対称性を反映して、様々な寄与が生じる。特に値の大きい主要項は、同一軌道間の飛び移りであることや、その飛び移りが著しい異方性を示すことが判明した。例えば、二層構造をもつ $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ では、最も大きな寄与をもつ x, y, z 方向への飛び移りは全て同一軌道間の飛び移りで、それぞれ xy 軌道間と zx 軌道間、yz 軌道間と xy 軌道間、zx 軌道間と yz 軌道間であった。これらに加え、異なる軌道間の飛び移りのうち、有意な寄与をもつものは z 方向への飛び移りで、これは yz-zx 軌道間のものであり、主要な同一軌道間の飛び移りの大きさの 4 割程度の値をもつことがわかった。より複雑な構造をもつ Na_2IrO_3 では、得られた飛び移り積分も複雑になっている。その様子を次の項目で述べる。

(3) 上記(2)で求めた飛び移り積分を基に、遍歴電子描像による解析を行う前に、異方性の高い飛び移り積分が磁気分散へ及ぼす影響の微視的な起源を調べるため、局在電子描像により、スピン自由度間の有効相互作用に換算してみた。 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ に対する解析結果から、等方的なハイゼンベルグ型交換相互作用に加え、異方的な相互作用が無視できないことが示された。後者の主要項が、クーロン相互作用のうち、フント結合を表す項に比例することを解析的に示すことができた。これらの項の存在により、バンド分散が原理的には二倍に分離することが判明した。すなわち、SOI とフント結合の協同を起源とする磁気分散のバンド分裂は、SOI の固有状態の多重項を基底としてもつ系において、かなり一般的に起こることが期待される。数値的な実現性が次の項目で報告される。

一方、 Na_2IrO_3 は蜂の巣格子をなす物質で、等方的な交換相互作用の他に、キタエフ型と呼ばれる異方的な相互作用の存在が確認された。両者からはみ出る項も存在し、それらの相対的な大小関係は、パラメータの選択により微妙に変わる。キタエフ型相互作用だけが作用する蜂の巣格子系では、スピン流体状

態の実現が証明されており、今回の結果は、この系でも、キタエフ項以外を抑制できれば、スピン流体の実現の余地があることを示唆している。

(4) 遍歴電子描像による扱いは、磁気励起、エキシトン励起は束縛状態として求まる。磁気励起バンドに関してみると、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ 及び Na_2IrO_3 では、実験ではそれぞれ、3本と2本のバンドが検出されているのに対し、本研究ではともに4本のバンドが確認できた。計算結果は、数値的にも研究成果(3)で発見した新たな発現機構が機能していることに相当する。計算結果によれば、最も分離幅が小さいものでは、ブリルアン・ゾーンの全域で、分離幅の最大値が数 meV となっており、現状のエネルギー解像度では総数4まで増えるか否かの検証がギリギリのところにある。本研究により、例えば波数遷移(, /3)に該当する辺りで分裂幅が大きくなることも予想できており、実験的な検証が待たれる。

エキシトン励起に関しては、両物質とも存在は示せ、実験結果とも矛盾しないものとなっているが、それらの発現機構に関しては未解明で今後の課題となる。

(5) これまで述べた励起分散が実験的に観測されるか否かは RIXS 強度で確認する必要がある。図2に計算結果の一例を掲載した。

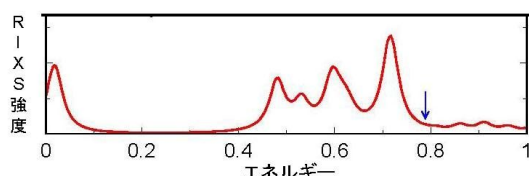


図2. Na_2IrO_3 におけるRIXSスペクトル($q=0$).

Na_2IrO_3 に対する波数遷移のない場合のスペクトルである。これはおよそ 50 meV 以下の磁気励起の寄与、350 meV 程度のギャップのあと、エキシトン励起と連続エネルギー領域の個別励起の寄与が混ざった部分とからなる。このプロファイルは実験結果の本質的な部分を再現しており、1eV 程度の領域に密集した複数の励起の寄与を統一的に記述するという、背景(2)に述べた課題に概ね答えた成果になっている。

他方、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ に対するエネルギープロファイルを調べた結果も実験結果と検証可能なものとなっている。波数を変えた場合のスペクトルの形状変化の傾向はおおよそ再現できているが、定量的な比較にはまだ課題が残っている。さらに、この物質では、二枚層構造であることを利用して、磁気励起分散バンドの分離が確認できる実験状況などを検討し、提案した。

(6) 以上の成果を踏まえて、最近接格子間の飛び移り項だけを取り入れた遍歴電子描像に基づく解析は、半定量的に実験と整合する結果を与えることが判明した。遍歴性により、

遠くの格子間の相関が、自動的に恣意性なく取り入れられているためだと思われる。局在電子描像からのアプローチで遠くの格子間の相互作用を取り入れた場合に、解析の難易度が増したり、クラスター・サイズの妥当性が深刻になったりといった難点が生じる。これと比較して、遍歴描像モデル解析自体に伴う難点はあるにせよ、出発点のモデルが簡素でよいことは、結果に対する物理的な解釈が行いやすくなるという利点がある。実際、ここまでの研究成果で述べられた、結果に対する微視的な理屈付けが可能になったのは、最近接格子間の飛び移り積分だけに制限したことが大きな要因となっている。こうした成果を踏まえ、5d系では、遍歴描像による解析が今後益々有効性を発揮するものと期待される。

(7)最後に、研究成果(2)-(6)の内容は、複数の関連国際会議[学会発表と]において口頭発表、国内研究会[学会発表]で招待講演の機会を得るなど、国内外にて一定の評価を得たように思われる。

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 3 件)

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao, Resonant inelastic x-ray scattering spectra at the Ir L-edge in Na_2IrO_3 , J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., 査読有, Vol. **212**, 2016, pp. 44-49
<https://doi.org/10.1016/j.elspec.2016.08.003>

Jun-ichi Igarashi, Tatsuya Nagao, Collective excitations in Na_2IrO_3 , J. Phys.: Condens. Matter., 査読有, Vol. **28**, 2016, No. 2, pp. 026006 (1)-(9)
<https://doi.org/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, J. Phys.: Condens. Matter., 査読有, Vol. **27**, 2015, No. 18, pp. 186002 (1)-(11)
<https://doi.org/10.1088/0953-8984/27>

/18/186002

[学会発表](計 11 件)

長尾辰哉、五十嵐潤一、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ における磁気・軌道励起の理論、日本物理学会 2018 年年会(2018)

Tatsuya Nagao, Weak coupling theory of resonant inelastic x-ray scattering in layered iridates, 10th International Conference on Inelastic X-ray Scattering (2017, Oral)

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 2017 年年会 (2017)

Tatsuya Nagao, Jun-ichi Igarashi, Theory of elementary excitations probed by RIXS in iridates, ESRF User Meeting 2017 (2017)

Tatsuya Nagao, Jun-ichi Igarashi, Itinerant electron theory of resonant inelastic x-ray scattering in iridates, Joint 13th Asia Pacific Physics Conference and 22nd Australian Institute of Physics Congress (2016, Oral)

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 年秋の分科会(2016)

長尾辰哉、イリジウム系における共鳴非弾性 X 線散乱の理論、Spring8 シンポジウム 2016 サテライト理論研究会、(2016、招待講演)

長尾辰哉、五十嵐潤一、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の素励起理論、日本物理学会 2016 年年会(2016)

Tatsuya Nagao, Jun-ichi Igarashi, Theory of magnetic excitations probed by RIXS in iridates, The 13th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure (2015)

長尾辰哉、五十嵐潤一、層状イリジウム酸化物における軌道磁気励起の理論、日本物理学会 2015 年秋の分科会(2015)

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 年秋の分科会 (2015)

[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〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長尾 辰哉 (NAGAO, Tatsuya)
群馬大学・大学院理工学研究科・准教授
研究者番号: 00237497

(2) 研究分担者

(0 名)

(3) 連携研究者

(0 名)

(4) 研究協力者

(0 名)