

令和元年6月21日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05445

研究課題名(和文) 軌道秩序を伴うモット転移の光電子分光による解明

研究課題名(英文) Photoemission study of Mott transition with orbital order

研究代表者

吉田 鉄平 (Yoshida, Teppei)

京都大学・人間・環境学研究科・教授

研究者番号：10376600

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：強相関電子系である t_{2g} 電子を持つバナジウム系およびルテニウム系遷移金属酸化物において軌道秩序を伴うモット転移近傍の電子状態を明らかにするため光電子分光実験を行った。バナジウム酸化物 $\text{Na}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ においてモット転移近傍で擬ギャップを持つことを明らかにした。現象論的な自己エネルギーを用いて擬ギャップ状態のスペクトル形状を再現することに成功した。電場印加によって金属に転移するルテニウム酸化物 Ca_2RuO_4 において電場印加下の光電子分光を行った。その結果、電流の増加と共にモットギャップが減少した。観測されたギャップの値は電流電圧特性から予想されるギャップ値と定量的に一致することを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

モット転移近傍の相関の強い電子状態は多体現象のため理解が難しく、電子状態を記述する有効モデルの構築は物性物理の重要な課題である。本研究ではバナジウム酸化物のモット転移近傍で、高温超伝導体と同様に多体現象の表出である擬ギャップが存在することを初めて示した。またルテニウム酸化物においては、電流による金属化がモットギャップの減少であることを直接的に示すことに成功した。これらの結果は、多体電子系を記述する基礎となり、また強相関電子系で電流を流したときの非平衡系の物理に影響を与えられ、これらの強相関電子の挙動を理解する研究成果は、強相関の特性を考慮した素子の開発において有用であるといえる。

研究成果の概要(英文)：We have performed photoemission studies of transition metal vanadium and ruthenium oxides with strongly correlated t_{2g} electrons in order to clarify the electronic structure in the vicinity of Mott transition with orbital order. In vanadium oxides $\text{Na}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$, we have observed pseudogap near the Mott transition. Using phenomenological self-energy, we have successfully reproduced the shape of spectra with pseudogap. In Ca_2RuO_4 which shows insulator-to-metal transition with inducing electric field, we have performed photoemission spectroscopy measurement under electric field. We have observed the decrease of the Mott gap with increasing current. The observed gap value is quantitatively consistent with the value estimated from the current-voltage characteristic of the sample.

研究分野：物性物理学

キーワード：強相関電子系 光電子分光

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

高温超伝導体の発見以降、強相関電子系の研究は大きく発展したが、モット転移近傍の相関の強い電子状態は多体問題であるために理解が難しく、電子状態を記述する有効モデルの構築は物性物理の重要な課題である。モット絶縁相では多くの場合、反強磁性などの磁気秩序を伴い、さらにマンガン系遷移金属酸化物のように軌道秩序が発現することがある。モット転移近傍の電子状態をスピンおよび軌道の自由度の観点から理解することが強相関電子系の有効モデル構築に不可欠である。近年、鉄系超伝導体の多軌道バンドにおいて軌道秩序が示唆され超伝導機構との関連が指摘されている。超伝導研究の観点からも軌道自由度を含めた電子相関の物理モデル構築は大きな意義があると言える。マンガン系酸化物では、 t_{2g} と e_g 軌道に d 電子を持つが、バナジウム系、ルテニウム系遷移金属酸化物は、鉄系超伝導体と同様、 t_{2g} 軌道のみで軌道秩序を発現する。このためモデルを単純化しやすく、鉄系超伝導体と共通の物理が存在すると考えられる。またルテニウム系試料は電場印加によって金属-絶縁体転移を起こし、巨大な反磁性を示すなど興味深い性質を示す。そこで本研究では t_{2g} 電子のみを持ち軌道秩序を伴うバナジウム、ルテニウム系酸化物に着目し、光電子分光法による電子状態の解明を目指す。

2. 研究の目的

本研究課題では鉄系超伝導体と同様に t_{2g} 電子をもつバナジウム、ルテニウム酸化物に着目し、軌道秩序を伴うモット転移近傍の電子状態を光電子分光法により解明することを目的とする。光電子分光により、軌道秩序状態のバンド軌道対称性、準粒子構造の詳細を明らかにする。さらに軌道依存モット転移の検証、軌道と電子相関の関係について新しい知見を得る。また、ルテニウム酸化物の電場印加モット転移を、電場下の光電子分光により観測し、軌道と電場効果の関係の知見を得る。以上の研究により、軌道自由度を含めた電子相関の有効モデルの構築を目指す。

3. 研究の方法

軌道秩序を伴うモット転移が発現するバナジウム、ルテニウム系酸化物において、転移近傍の強相関電子状態を解明するため、放射光角度分解光電子分光および硬 X 線光電子分光 (HAXPES) を用いた電子状態の観測を行う。直線偏光を利用して軌道秩序状態のバンド軌道対称性を決定する。金属-絶縁体転移近傍の電子有効質量の増大や擬ギャップを観測する。得られたスペクトルから申請者が開発した解析法により自己エネルギーを決定し、転移近傍の強相関電子状態の有効モデルを構築する。とくにルテニウム系試料は電場印加によって金属-絶縁体転移を起こす興味深い性質を示す。そこで試料に電圧を印加した状態で光電子分光測定を行うため、電場印加できる試料ホルダーを作製する。SPring-8 においてルテニウム系およびバナジウム系試料のバルク敏感な硬 X 線光電子分光測定により角度積分型光電子スペクトルを観測する。ルテニウム系試料においては電場印加下の光電子分光を行い電場印加モット転移を観測する。

4. 研究成果

強相関電子系である t_{2g} 電子を持つバナジウム系およびルテニウム系遷移金属酸化物において軌道秩序を伴うモット転移近傍の電子状態を明らかにするため、光電子分光実験を行った結果、以下のような成果が得られた。

バナジウム酸化物 $\text{Na}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ (NSVO)は、フィリング制御によるモット転移を示し、絶縁体

相では軌道秩序をもつ。NSVO の HAXPES を行い、フェルミ準位近傍のバルク電子状態を観測した。その結果、モット転移近傍で擬ギャップを持つことが明らかになった。さらに、HAXPES のスペクトル形状を現象論的な自己エネルギーを用いた解析を行い、フェルミ液体のみならず、擬ギャップ状態のスペクトル形状を再現することに成功した。

1次元鎖をもつバナジウム酸化物 $\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{V}_2\text{O}_4$ は電子ドーピングにより金属絶縁体転移を起こす。この物質について硬 X 線光電子分光を行い電子状態の観測を行った。電子ドーピングと共にフェルミ準位付近の状態密度が増加する様子が観測され、電気抵抗率と定性的に一致する結果を得た。さらに角度分解光電子分光を行ったところ、下部ハバードバンドにおいてバンド分散が観測された。しかし、比較的、電気抵抗率が低い試料においても、フェルミ準位を横切る準粒子バンドは観測されなかった。

ルテニウム酸化物 Ca_2RuO_4 は室温でモット絶縁体であるが、電場印加によって金属に転移する興味深い性質を示す。さらに電場印加状態で低温に冷却すると、巨大な反磁性が発現することが明らかにされている。試料に電圧を印加した状態で光電子分光測定を行うため、電場印加できる試料ホルダーを作製し、液体ヘリウムで冷却可能な電場印加用マニピュレータを作製した。試料ホルダーには、試料に電場をかける 2 端子と、試料に接触させた温度計のために 2 端子を用意した。この試料ホルダーを用いて電場印加状態の HAXPES 測定を SPring-8 で行い、電場印加による金属絶縁体転移を観測することに成功した。絶縁相において、電場印加による効果はモットギャップの減少に現れ、スペクトル形状が変化し軌道秩序が融解していることを見出した。また、電場印加によるモットギャップの減少を詳細に調べたところ、電流電圧特性から予想されるギャップ値と定量的に一致することを見出した。さらに、電場印加下で X 線吸収分光を SPring-8 で行い、電流により結晶場が変化していることを見出した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

S. Yamamoto, D. Ootsuki, D. Shimonaka, D. Shibata, K. Kodera, M. Okawa, T. Saitoh, M. Horio, A. Fujimori, H. Kumigashira, K. Ono, E. Ikenaga, S. Miyasaka, S. Tajima, and T. Yoshida, Observation of a Pseudogap in the Vicinity of the Metal-Insulator Transition in the Perovskite-type Vanadium Oxides $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 024708 (2018). (査読有)

〔学会発表〕(計 14 件)

柴田大輔, 下中大也, 大槻太毅, 池永英司, Chanchal Sow, 前野悦輝, 吉田鉄平, 電場印加硬 X 線光電子分光による Ca_2RuO_4 の金属絶縁体転移の観測, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 09 月 14 日, 金沢大学

吉田鉄平, Bias-induced electronic states of Ca_2RuO_4 observed by hard x-ray photoemission spectroscopy, 基盤 (A)「非平衡状態の創り出す強相関電子系の新現象」第 2 回研究会, (招待講演) 2016 年 11 月 12 日, 久留米工業大学

柴田大輔, 下中大也, 川本雅人, 大槻太毅, 池永英司, 保井晃, 宍倉愛, Chanchal Sow, 米澤進吾, 前野悦輝, 中村文彦, 吉田鉄平, 硬 X 線光電子分光による Ca_2RuO_4 の電子状態の温度及び電場依存性, 日本物理学会第 72 回 (2017 年) 年次大会, 2017 年 3 月 17 日,

大阪大学

川本雅人, 下中大也, 小寺健二郎, 山脇一真, 柴田大輔, 大槻太毅, 池永英司, 小野寛太, 細野広志, 佐藤仁, 生天目博文, 谷口雅樹, 宮坂茂樹, 田島節子, 吉田鉄平, $\text{Ca}_{1-x}\text{Y}_x\text{V}_2\text{O}_4$ の金属絶縁体転移近傍の電子状態, 日本物理学会第 72 回 (2017 年) 年次大会, 2017 年 03 月 20 日, 大阪大学

大槻太毅, 山本紳太郎, 下中大也, 柴田大輔, 小寺健二郎, 大川万里生, 齋藤智彦, 堀尾眞史, 藤森淳, 組頭広志, 小野寛太, 池永英司, 宮坂茂樹, 田島節子, 吉田鉄平, 光電子分光による $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ の金属絶縁体転移近傍における擬ギャップ構造の観測, 日本物理学会第 72 回 (2017 年) 年次大会, 2017 年 3 月 20 日, 大阪大学

柴田大輔, 下中大也, 川本雅人, 大槻太毅, 吉田鉄平, 池永英司, 保井 晃, Chanchal Sow, 米澤進吾, 前野悦輝, 電場印加硬 X 線光電子分光による Ca_2RuO_4 の電子状態の研究, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 21 日, 岩手大学

吉田鉄平, 強相関電子系の電場印加光電子分光, 基盤 (S)「直流電場・電流: 強相関電子系の新しい制御パラメータ」キックオフ研究会 (招待講演), 2017 年 7 月 8 日, 久留米工業大学

吉田鉄平, Ca_2RuO_4 の電場印加光電子分光, PF 研究会「次世代光源で拓かれる光電子分光研究の将来展望」2017 年 10 月 5 日, 高エネルギー加速器研究機構

大槻太毅, 電場印加下光電子分光による物性研究, 日本物理学会第 73 回年次大会 (招待講演), 2018 年 3 月 23 日, 東京理科大学

高須賀幸恵, 柴田大輔, 大槻太毅, Chanchal Sow, 米澤進吾, 前野悦輝, 中村文彦, 永村直佳, 吉田鉄平, 軟 X 線顕微光電子分光による Ca_2RuO_4 の電場印加下電子状態観測, 日本物理学会 2018 年秋季大会, 2018 年 9 月 10 日, 同志社大学

吉田鉄平, Hard X-ray Photoemission Spectroscopy of Ca_2RuO_4 , 基盤 S 研究会「NESS 2018 (Kyoto) Non-Equilibrium Steady States in Correlated Materials」(招待講演), 2018 年 7 月 6 日, 京都大学

吉田鉄平, 強相関電子系の電場印加光電子分光, 新学術領域「トポロジが紡ぐ物質科学のフロンティア」第 10 回トポロジ連携研究会「非平衡系・非エルミート系の新奇量子現象」(招待講演) 2018 年 12 月 1 日, 京都大学

高須賀幸恵, 柴田大輔, 大槻太毅, Chanchal Sow, 米澤進吾, 前野悦輝, 中村文彦, 宮脇淳, 山添康介, 塚田智幸, 原田滋久, 吉田鉄平, Ca_2RuO_4 の電場印加下の軟 X 線吸収・発光分光, 日本物理学会第 74 回年次大会, 2019 年 3 月 14 日, 九州大学

高須賀幸恵, 柴田大輔, 大槻太毅, Chanchal Sow, 米澤進吾, 前野悦輝, 中村文彦, 宮脇淳, 山添康介, 塚田智幸, 原田滋久, 吉田鉄平, 軟 X 線吸収・発光分光による Ca_2RuO_4 の電場印加下電子状態観測, 第 32 回日本放射光学会年会 2019 年 1 月 10 日, 福岡国際会議場

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類：
番号：
出願年：
国内外の別：

取得状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1) 連携研究者

連携研究者氏名：宮坂 茂樹
ローマ字氏名：Miyasaka, Shigeki
所属研究機関名：大阪大学
部局名：理学研究科
職名：准教授
研究者番号（8桁）：70345106

連携研究者氏名：前野 悦輝
ローマ字氏名：Maeno, Yoshiteru
所属研究機関名：京都大学
部局名：理学研究科
職名：教授
研究者番号（8桁）：80181600

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：大槻 太毅
ローマ字氏名：Ootsuki, Daiki

研究協力者氏名：柴田 大輔
ローマ字氏名：Shibata, Daisuke

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等に

については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。