

令和 4 年 5 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K14650

研究課題名（和文）スレーター・モットクロスオーバーで揺らぐ電荷・スピン・軌道の協調現象

研究課題名（英文）Charge-spin-orbital coupled phenomena in Slater-Mott crossover

研究代表者

諏訪 秀磨（Suwa, Hidemaro）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・助教

研究者番号：60735926

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、電子間相互作用が強い極限と弱い極限の間の中間領域（スレーターモットクロスオーバー）に位置し、電荷・スピン・軌道自由度が複雑に絡み合う5d軌道電子系の物性現象を解明した。特に2層系イリジウム酸化物で、三重項励起子が凝縮し反強磁性秩序が生じる物理的機構を明らかにした。実験家との共同研究を行い、本研究で導かれた理論が実験結果を包括的に説明することを示した。このように励起子が凝縮することで絶縁体化した状態を励起子絶縁体と呼ぶ。本研究では、理論的に予言されてから半世紀以上見つかっていなかった反強磁性型の励起子絶縁体を初めて発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

長い間見つかっていなかった反強磁性型の励起子絶縁体の発見により、今後、三重項励起子の凝縮現象についてより詳細な実験的検証と操作が可能になる。本研究対象であるクロスオーバー領域は、物性物理学として興味深いだけでなく、非自明な現象が生じる温度が最大化されるため工学的応用の観点からも非常に重要である。本研究成果は、電子の電荷・スピン・軌道自由度が複雑に絡み合う物性現象の理学的解明と、将来的な量子マテリアルのデザインと工学的応用につながると期待される。

研究成果の概要（英文）：This project studied 5d-orbital electron systems characterized by charge-spin-orbital entanglement and intermediate electron-electron interaction in the Slater-Mott crossover. We revealed that triplet exciton condensation induces the antiferromagnetic order in the bilayer iridium oxide. In collaboration with experimental groups, we showed that the theory developed in this project provides a comprehensive account of experimental observations, including the significant softening of the longitudinal magnetic excitation mode near the magnetic transition temperature. Such an insulator induced by exciton condensation is called the excitonic insulator. The antiferromagnetic excitonic insulator was not identified since the theoretical prediction was made half a century ago. We found strong evidence that the bilayer iridium oxide is the first example of the antiferromagnetic excitonic insulator.

研究分野：物性物理 計算物理

キーワード：励起子絶縁体 励起子 反強磁性 イリジウム酸化物 スピン軌道結合 電子相関

1. 研究開始当初の背景

近年、電子相関の効果が弱い極限と強い極限の中間領域にある 5d 軌道電子系が注目されている。例えば 2 つの副格子を持つ系で各サイトにひとつ電子が入る電子密度 (ハーフフィリング) のとき、2 つの極限の違いがよく表れる。弱相関極限では、電子と正孔の結合状態が生じると同時に複合粒子が凝縮する。その結果、絶縁体転移と反強磁性転移が同じ温度で起こる。これをスレーター絶縁体と呼ぶ。一方、強相関極限では、高温で電子と正孔が結合し絶縁体化するが、反強磁性転移温度はそれよりずっと低温になる。低温で電荷自由度は凍結し、低エネルギーの物理はスピン自由度で記述される。これをモット絶縁体と呼ぶ。ここで電子と正孔が結合する波数を考えると、スレーター絶縁体では反強磁性秩序が生じる波数で結合が生じ、BCS 的描像が成り立つ。一方、モット絶縁体では電子と正孔の結合状態が実空間で局在し、波数空間の全領域で準粒子励起が現れる。このとき相互作用を変化させると、一種のボーズ・アインシュタイン凝縮として反強磁性転移を記述できるため、強相関極限は BEC 的描像となる。これらの極限の間の中間領域は、BCS-BEC クロスオーバーの問題として多くの物理系で議論されており、反強磁性秩序についてはスレーターモットクロスオーバーと呼ばれる。クロスオーバーにおいては極限での単純化された理解が成り立たず、より複雑となりうる。また強相関極限で凍結される電荷自由度がクロスオーバー領域では重要な寄与を与え、非自明な量子臨界点が発現しうる。

スレーターモットクロスオーバーに位置する物質群として、5d 軌道電子系が盛んに研究されている。5d 軌道系では、多くのモット絶縁体を構成する 3d 軌道系と比較して、電子軌道がより空間的に広がっているため電子間クーロン相互作用が弱くなる。また別の重要な要素として、5d 軌道系では 3d 軌道系より大きな原子番号に起因してスピン軌道結合が顕著となる。このため、5d の t_{2g} 軌道は $J_{\text{eff}}=1/2$ と $3/2$ 軌道に分裂し、 $5d^5$ 電子構造での低エネルギー物理は有効的に $J_{\text{eff}}=1/2$ 軌道でよく近似される。典型的な 5d 軌道電子系であるイリジウム酸化物は、 Ir^{4+} が $5d^5$ 電子構造をとり、有効模型は $J_{\text{eff}}=1/2$ 軌道のハーフフィリング系となる。例えば Sr_2IrO_4 は擬 2 次元の正方格子を構成し、高温超伝導体の母物質と同様の構造となる興味深い物質である。

このようにスレーターモットクロスオーバー領域でスピン軌道結合が顕著になると、電荷・スピン・軌道自由度が複雑に絡み合う新奇な物理現象が生じると期待される。この非自明な物理系の解明は物性物理学の重要な問題である。またクロスオーバー領域ではエネルギースケールが大きくなり転移温度も上昇するため、工学的応用の観点からも非常に重要となる。

2. 研究の目的

本課題の目的は、電荷・スピン・軌道自由度が複雑にエンタングルするイリジウム酸化物の低エネルギー物理を理論的に解明することである。イリジウム酸化物は、ルドルフステンポッパー相となり、連続するイリジウム層の数を n として、 $\text{Sr}_{n+1}\text{Ir}_n\text{O}_{3n+1}$ で表される層状構造を形成する。興味深いことに、 $n=1, 2$ のときは絶縁体となるが、3 次元系 SrIrO_3 ($n=$) は金属となる。つまり n の変化により金属絶縁体転移が生じる。特に $n=2$ の 2 層系では、電荷ギャップと磁気励起エネルギースケールが同程度となり、相転移点近傍に位置すると考えられる。実際、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ に圧力を加えると金属相へ相転移することが実験的に報告されている。そこで本研究対象を 2 層系イリジウム酸化物 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ に定め、その磁気秩序の起源と磁気励起構造を解明する。また実験家との共同研究を通じて理論予測を実験的に検証することも本課題の重要な目的とする。

3. 研究の方法

本研究で解析するイリジウム酸化物の低エネルギー有効模型を構築した。まず t_{2g} 軌道の 3 軌道強結合模型の電子ホッピング変数を、密度汎関数理論と整合するように決定した。次に $J_{\text{eff}}=1/2$ 軌道の有効模型を導き、オンサイトの電子間相互作用を加えたハバード模型を構築した。理論計算は、まずこのハバード模型の相図と磁気励起をハートリーフォック近似と乱雑位相近似を用いて計算した。計算に用いたコードは本研究で開発した。また実験的に観測されている磁気励起エネルギーから $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の有効クーロン相互作用パラメータ U を決定した。さらに実験家との共同研究を行い、共鳴非弾性 X 線散乱と理論計算を詳細に比較した。

4. 研究成果

導出した $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ の有効模型の基底状態と磁気励起を、電子間クーロン相互作用をパラメータとして明らかにした (図 1)。電子間相互作用を無視した場合を考えると、この系はバンド反転が生じている。スピン軌道結合がバンド混成を生じさせ、結果として電荷ギャップの小さな非磁性バンド絶縁体となる。ここで電子間クーロン相互作用を加えると、おもしろいことに励起子状態が安定化し、電子正孔連続スペクトルから励起子ブランチが現れる。このとき相互作用が短距離 (オンサイト) であることから、三重項の励起子が安定化する。スピン相互作用の容易軸異方性から、安定な励起子は $S^z=0$ 状態となり、 $S^z=\pm 1$ 状態はより大きなエネルギーを取る。さらにクーロン相互作用を強めると三重項励起子の結合エネルギーが電荷ギャップより大きくなり、励起子が凝縮し反強磁性秩序が生じる。磁気秩序相においては $S^z=\pm 1$ 状態が横モード (マグノ

ン)の励起となり、一方、量子臨界点でギャップレスとなる $S^z=0$ 状態は秩序相の縦モードの励起となる。この縦モードは電荷自由度と結合し、スピンの長さを振動させる特徴的なモードである。ここで系が十分に量子臨界点に近い場合、縦モードの励起は強いピークとしてスペクトルに現れる。量子臨界点から離れて縦モードの励起エネルギーが横モードの2倍以上になると、縦モードは2つの横モードに分裂を起してしまうため強いピークは失われる。我々は $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ が十分に量子臨界点に近く、この特徴的な縦モードが生じることを明らかにした。またそのスレーターモットクロスオーバー的性質から、縦モード励起状態の波動関数は実空間で広がっており、限られた波数でのみ縦モードの励起ピークが現れることを予測した。これらの結果を Physical Review Research で発表した。

さらに実験家との共同研究を行い、我々の予測を実験的に検証した。その結果、我々の理論的予測が多数の実験結果を包括的に説明することを明らかにした。まず横・縦モードの分散関係について理論計算と共鳴非弾性 X 線散乱を比較し、定性的のみならず定量的にも良い一致を得た。また限られた波数でのみ縦モードの励起ピークが現れるクロスオーバー領域の特徴を実験的に確認した。さらに励起スペクトルの温度変化も詳しく調べた。その結果、高温で三重項励起子が安定化し、磁気転移温度で励起子凝縮することで磁気秩序が生じることを明らかにした。また電荷スピン結合を反映して、磁気転移温度で電気抵抗が増加する。本研究では、スピン模型を用いた先行研究の理論では説明できなかったこれらの現象を統一的に理解することに成功した。

このように三重項励起子が凝縮して生じる反強磁性体は反強磁性励起子絶縁体と呼ばれる。本研究課題の大きな成果として、初の反強磁性励起子絶縁体を発見した。この非自明な絶縁体状態は 1960 年代に理論的に予言されたが、これまでその存在は確認されてこなかった。その理由は、特殊な結晶構造と絶妙な相互作用バランスが必要とされるからである。本課題では、 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ が有する 2 層構造と酸素イオン八面体の交替回転、さらには顕著なスピン軌道結合と、クロスオーバー領域の有効電子間相互作用といった特徴の組み合わせにより、反強磁性励起子絶縁体の発現にいたる物理的機構を解明した。この成果を Nature Communications で発表し、研究代表者の所属機関からプレスリリースを発表した。

長い間見つかっていなかった反強磁性励起子絶縁体の発見により、今後、三重項励起子の凝縮現象についてより詳細な実験的検証と操作が可能になる。本研究成果は、電子の電荷・スピン・軌道自由度が複雑に絡み合う物性現象の理学的解明と、将来的な量子マテリアルのデザインと工学的応用につながると期待される。

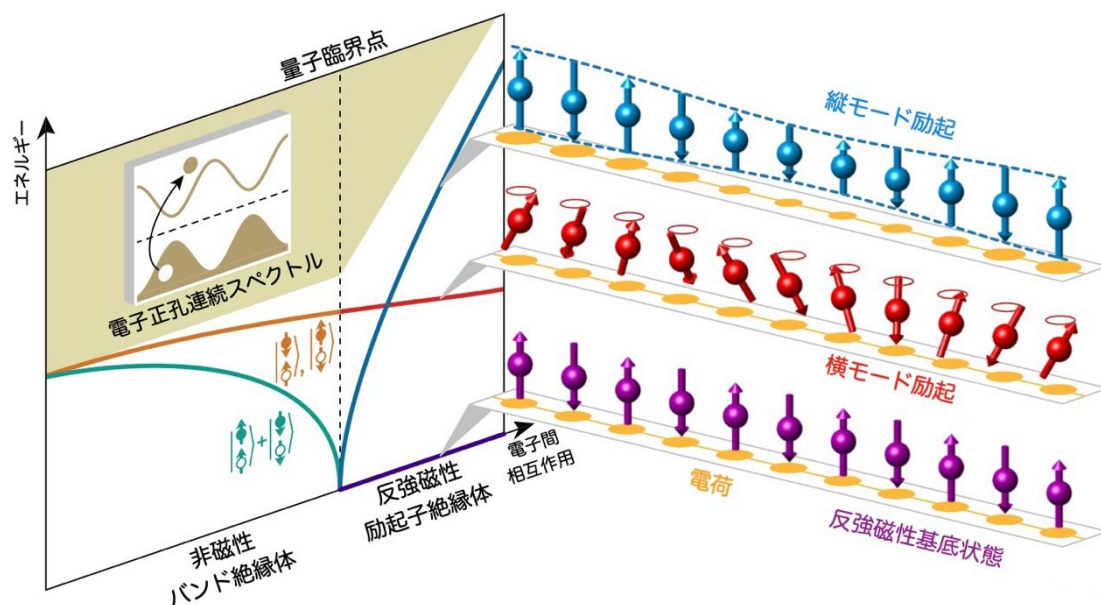


図 1. 励起エネルギーの電子間相互作用依存性と反強磁性励起子絶縁体の励起モード。非磁性バンド絶縁体で電子間相互作用を考慮すると、電子と正孔の結合状態である励起子が安定化して、高エネルギー領域に広がる電子正孔連続スペクトルから分離する。ここでスピン相互作用の容易軸異方性から励起子のエネルギーは2つに分かれる。電子間相互作用を強めていくと、2つのうち高いエネルギーの励起は反強磁性励起子絶縁体での横モード励起になる。一方、低いエネルギーの励起は量子臨界点で励起エネルギーがゼロとなったのち、反強磁性励起子絶縁体での縦モード励起になる。この縦モード励起は電荷自由度と結合し、スピンの長さを振動させる特徴的な励起となる。研究成果[D. G. Mazzone, et al., Nat. Commun. 13, 913 (2022)]より一部改変。

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 2件）

1. 著者名 Mazzone D. G., Shen Y., Suwa H., Fabbris G., Yang J., Zhang S.-S., Miao H., Sears J., Jia Ke, Shi Y. G., Upton M. H., Casa D. M., Liu X., Liu Jian, Batista C. D., Dean M. P. M.	4. 巻 13
2. 論文標題 Antiferromagnetic excitonic insulator state in Sr3Ir2O7	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 913
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-022-28207-w	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 Suwa Hidemaro, Zhang Shang-Shun, Batista Cristian D.	4. 巻 3
2. 論文標題 Exciton condensation in bilayer spin-orbit insulator	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 13224
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.3.013224	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

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 2件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 諏訪秀麿, Shang-Shun Zhang, Cristian D. Batista
2. 発表標題 2層系イリジウム酸化物Sr3Ir2O7における 励起子ポー ズ・アインシュタイン凝縮
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 諏訪秀麿, Lin Hao, Jian Liu
2. 発表標題 イリジウム酸化物薄膜における不純物誘起巨大磁気応答
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hidemaro Suwa
2. 発表標題 Exciton condensation in bilayer spin-orbit insulator
3. 学会等名 APS March Meeting 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 諏訪秀麿
2. 発表標題 相関電子系の有限温度スピンドYNAMICS
3. 学会等名 物性研究所短期研究会 「量子多体計算と第一原理計算の新展開」
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 諏訪秀麿, Shang-Shun Zhang, Gia-Wei Chern, Kipton Barros, Cristian D. Batista
2. 発表標題 有限温度自己無撞着スピンドYNAMICSによる動的スピン構造因子計算
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会 (物性)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 諏訪秀麿
2. 発表標題 弱いモット絶縁体のダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hidemaro Suwa
2. 発表標題 Finite-temperature self-consistent dynamical simulation
3. 学会等名 Computational Approaches to Quantum Many-body Problems (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hidemaro Suwa
2. 発表標題 Large-scale dynamical simulation of Hubbard model
3. 学会等名 International Conference on Frontiers of Correlated Electron Sciences (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hidemaro Suwa
2. 発表標題 Self-consistent dynamics of Hubbard model
3. 学会等名 Frontiers of Statistical Physics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 諏訪秀磨
2. 発表標題 有限温度における自己無撞着密度行列の実時間発展シミュレーション
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究代表者の所属機関から研究のプレスリリースを発表した。「反強磁性型の励起子絶縁体を初めて発見」(<https://www.s.u-tokyo.ac.jp/ja/info/7775/>)内容は、電子と正孔の結合状態である励起子が生み出す反強磁性型の励起子絶縁体を実験と理論の両面から新たに発見した研究について。
本研究で開発した計算コードを GitHub 上 (<https://github.com/suwamaro/rpa>) に公開した。

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
---------------------------	-----------------------	----

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			
米国	ブルックヘブン国立研究所	テネシー大学	アルゴンヌ国立研究所	他1機関
スイス	ポールシェラー研究所			
中国	中国科学院	上海科技大学		