

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 9 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2017

課題番号：26287079

研究課題名(和文) 3d遷移金属化合物のスピン・電荷励起と非弾性X線散乱の理論

研究課題名(英文) Theory of Spin and Charge Dynamics and Inelastic X-Ray Scattering in 3d Transition-Metal Compounds

研究代表者

遠山 貴巳 (Tohyama, Takami)

東京理科大学・理学部第一部応用物理学科・教授

研究者番号：70237056

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：我々のグループが発展させてきた3d遷移金属化合物に対する共鳴非弾性X線散乱(RIXS)・非共鳴非弾性X線散乱(NIXS)の理論を銅酸化物高温超伝導体や鉄系超伝導物質に適用し、それらの物質のスピン・電荷・軌道に関する励起スペクトルの特徴を明らかにした。特に、RIXSでは銅酸化物高温超伝導体の電荷励起スペクトルの特徴と入射X線エネルギー依存性の解明、NIXSでは鉄系物質の特定の軌道励起が最大となる条件を解明して、実験に対する提案を行った。

研究成果の概要(英文)：We applied the theory of resonant inelastic x-ray scattering (RIXS) and nonresonant inelastic x-ray scattering (NIXS) developed by our group to cuprate superconductors and iron-based superconductors and examined the nature of spin, charge, and orbital excitations in these materials. In particular, we clarified the charge excitations and their incident x-ray energy dependence in RIXS of cuprate superconductors and the condition in NIXS giving maximum intensity for a particular orbital component of an iron-based compound. These results are useful in analyzing corresponding experimental data.

研究分野：物性理論

キーワード：非弾性X線散乱 強相関電子系 3d遷移金属化合物 計算物理学的手法

1. 研究開始当初の背景

高輝度放射光を用いた X 線散乱科学の発展に伴って、3d 遷移金属化合物の電子状態の研究が発展している。遷移金属 L 吸収端での共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) では、内核 2p 電子の 3d 軌道への励起を経て、3d 軌道間の電荷励起 (d-d 励起) が観測される。また、2 マグノン励起を伴った同一 3d 軌道内励起が低エネルギー領域に現れる。最近、これらの励起に加えて、スピン反転励起 (マグノン励起、パラマグノン励起) が観測され始めた。この励起はコアホールのスピン・軌道相互作用に起因することが知られている。銅酸化物高温超伝導体の母物質では、非弾性中性子散乱と一致する単一マグノン励起が明瞭に観測されている。また、ホールドーピングされた銅酸化物高温超伝導体では、不均一性に起因した複数のマグノン励起やドーピング依存性の小さな高エネルギー・パラマグノン励起が報告されている。これらのスピン励起は、磁気ブリルアンゾーンの中程までの広範囲に広がっており、非弾性中性子散乱実験では残念ながら観測されていなかった。そのため、L 吸収端 RIXS はスピン励起を探る有用な手法として鉄系高温超伝導体など様々な物質系に適用され始めている。また、d-d 励起は、L 吸収端 RIXS だけでなく、硬 X 線を用いた非共鳴非弾性 X 線散乱 (NIXS) においても、3d 遷移金属酸化物で観測され始めている。以上のような非弾性 X 線散乱実験の発展に伴って、測定物質のスピン・電荷励起の正確な理解と、それらの励起が実験にどのように現れるかを示す理論が要求されている。逆にいえば、実験と理論の足並みをそろえた展開がこの分野の発展に必要といえる。

2. 研究の目的

以上の背景のもと、本研究では代表者らがこれまで発展させてきた 3d 遷移金属化合物に対する RIXS の理論を発展させる。そして、実験の発展と歩調を合わせた形で、銅酸化物高温超伝導体に代表される強相関電子系から、遍歴磁性体に代表される弱相関電子系の広範囲にわたる物質系のスピン励起・電荷励起の特徴を明らかにすることを目的とする。特に、銅酸化物高温超伝導体の L 吸収端 RIXS で見られるスピン励起と電荷励起の解明や鉄系超伝導関連物質の NIXS による軌道成分の分離を中心に、関連する 3d 遷移金属化合物のスピン・電荷励起とスペクトロスコーピーに関わる理論研究を行う。

3. 研究の方法

3d 遷移金属化合物の非弾性 X 線散乱に対する理論を構築するため、強相関系では、ランチョス法に基づく厳密対角化法、動的に拡張された密度行列繰り込み群法、遍歴電子系では、第一原理計算に基づく電子状態パラメータを用いた平均場近似、乱雑位相近似、さらにそれらを超えた取り扱いによる計算を行

う。

4. 研究成果

(1) 銅酸化物高温超伝導体

銅 L 吸収端 RIXS で見られるスピン励起と電荷励起の解明のため、スピン反転のプロセスを現象論的に取り入れ、コアホールの存在をポテンシャルとして取り込んだ計算を厳密対角化法で実行し、高速衝突近似との比較を行った。また電荷励起を見るにはホールドーピング系よりも電子ドーピング系が有利であることを明らかにした。さらに、動的密度行列繰り込み群法によって電子ドーピング系の動的電荷相関関数を「京」コンピュータを用いて計算し、スピン相関に起因した低エネルギー電荷励起が L 吸収端 RIXS によって観測可能であることを指摘した [1]。

L 吸収端 RIXS で見られる電荷励起の解明のため、厳密対角化法を用いて RIXS スペクトルの計算を実行した。特に、中間状態におけるコアホールとキャリアのクーロン相互作用がスペクトルに与える効果を明らかにした [2]。また、入射 X 線のエネルギー変化による共鳴条件の変化が与えるスペクトルへの影響を、電子ドーピング系とホールドーピング系を対比しながら調べ、コアホールによるクーロン相互作用と 3d 電子間のクーロン相互作用の大小によって、スペクトル強度分布が発光的になるかラマン的になるかが決定されることを見出した [3]。

酸素 K 吸収端 RIXS によって電荷励起がどのように現れるか明らかにするため、「京」コンピュータを用いた大規模計算で酸素まで含めた模型 (d-p 模型) の酸素上での動的電荷構造因子を計算し、研究協力者の RIXS 実験との対比を行いよい一致を得た [4]。

4 本足梯子 $t-t'-J$ 模型の動的スピン・電荷構造因子を「京」コンピュータを用いて計算し、銅酸化物高温超伝導体に対する非弾性中性子散乱実験や最新の RIXS 実験との比較を行った。その結果、銅酸化物高温超伝導体に出現する電荷ストライプ状態がスピン励起に及ぼす影響が明らかとなった [5]。

研究協力者を含む SPring-8 の実験と協力しながら、La 系と多層型 Bi 系銅酸化物高温超伝導体の酸素 K 吸収端 RIXS の比較や、銅 L 吸収端の電荷励起の特徴の比較を d-p 模型や $t-t'-J$ 模型の理論結果を基礎に議論した (論文執筆中)。

(2) 鉄系超伝導関連物質

FeTe 系のスピン・電荷・軌道の励起を平均場近似によって調べた。そして NIXS のプロセスを詳細に考慮することで、特定の軌道励起を調べる条件を明らかにして NIXS 実験への提案を行った [6]。また、FeTe における電気抵抗の異方性の起源が何かを、平均場近似での電子状態研究から得られた情報を用いて明らかにした。計算結果は実験結果をよく再現している [7]。

(3) その他の系

強相関効果によって超伝導が基底状態となったとき、スピン・電荷励起とL吸収端RIXSへの超伝導ギャップの現れ方の特徴の解明を目指し、一次元拡張ハバード模型におけるスピン・電荷励起スペクトル、L吸収端RIXSスペクトルを厳密対角化法で計算した。電荷密度波状態と超伝導状態での比較を行い、超伝導状態に特徴的な振る舞いが RIXS スペクトルに現れることを見出した(論文執筆中)。

RIXS 研究の新しい展開を見据えて、フラストレートした量子スピン系やスピン・軌道相互作用が強い量子スピン系の基底状態、格子振動と結合した一次元モット絶縁体の励起ダイナミクスなどを厳密対角化や密度行列繰り込み群法によって調べた。さらに、時間依存 RIXS を見据えて、強相関電子系における非平衡ダイナミクスを計算する厳密対角化手法の開発とそのモット絶縁体への適用を行った(「主な発表論文等」〔雑誌論文〕参照)。

<引用文献>

- [1] T. Tohyama, K. Tsutsui, M. Mori, S. Sota, and S. Yunoki, Phys. Rev. B 92, 014515 (2015).
- [2] T. Tohyama and K. Tsutsui, Int. J. Mod. Phys. B, DOI:10.1142/S0217979218400179.
- [3] K. Tsutsui and T. Tohyama, Phys. Rev. B 94, 085144 (2016).
- [4] K. Ishii, T. Tohyama *et al.* Phys. Rev. B 96, 115148 (2017).
- [5] T. Tohyama, M. Mori, and S. Sota, arXiv:1803.11342.
- [6] K. Tsutsui, E. Kaneshita, T. Tohyama, Phys. Rev. B 92, 195103 (2015).
- [7] E. Kaneshita and T. Tohyama, Phys. Rev. B 94, 045132 (2016).

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 2 1 件)

T. Tohyama and K. Tsutsui, “Spectral weight of resonant inelastic X-ray scattering in doped cuprates: Effect of core-hole lifetime”, International Journal of Modern Physics B, DOI:10.1142/S0217979218400179.

K. Morita, T. Sugimoto, S. Sota, and T. Tohyama, “Magnetization plateaus in the spin-1/2 antiferromagnetic Heisenberg model on a kagome-strip chain”, Physical Review B 97, 014412 (1-6) (2017).

M. Fujihala, H. Koorikawa, S. Mitsuda, K. Morita, T. Tohyama, K. Tomiyasu, A. Koda, H. Okabe, S. Itoh, T. Yokoo, S. Ibuka, M. Tadokoro, M. Itoh, H. Sagayama, R. Kumai, and Y. Murakami,

“Possible Tomonaga-Luttinger spin liquid state in the spin-1/2 inequilateral diamond-chain compound $K_3Cu_3AlO_2(SO_4)_4$ ”, Scientific Reports, 7, 16785 (1-6) (2017).

K. Shinjo and T. Tohyama, “Photoinduced absorptions inside the Mott gap in the two-dimensional extended Hubbard model”, Physical Review B 96, 195141 (1-6) (2017).

T. Shirakawa, T. Tohyama, J. Kokalj, S. Sota, and S. Yunoki, “Ground-state phase diagram of the triangular lattice Hubbard model by the density-matrix renormalization group method”, Physical Review B 96, 205130 (1-11) (2017).

K. Ishii, T. Tohyama, S. Asano, K. Sato, M. Fujita, S. Wakimoto, K. Tustsui, S. Sota, J. Miyawaki, H. Niwa, Y. Harada, J. Pellicciari, Y. Huang, T. Schmitt, Y. Yamamoto, and J. Mizuki, “Observation of momentum-dependent charge excitations in hole-doped cuprates using resonant inelastic x-ray scattering at the oxygen K edge”, Physical Review B 96, 115148 (1-8) (2017).

T. Okubo, K. Shinjo, Y. Yamaji, N. Kawashima, S. Sota, T. Tohyama, and M. Imada, “Ground state properties of $Na2IrO3$ determined from an ab initio Hamiltonian and its extensions containing Kitaev and extended Heisenberg interactions”, Physical Review B 96, 035205 (1-13) (2017).

K. Morita, M. Fujihala, H. Koorikawa, T. Sugimoto, S. Sota, S. Mitsuda, and T. Tohyama, “Static and dynamic magnetic properties of the spin-1/2 inequilateral diamond-chain compounds $A_3Cu_3AlO_2(SO_4)_4$ (A=K, Rb, Cs)”, Physical Review B 95, 184412 (1-5) (2017).

K. Shinjo, S. Sota, S. Yunoki, K. Totsuka, and T. Tohyama, “Density-Matrix Renormalization Group Study of Kitaev-Heisenberg Model on a Triangular Lattice”, Journal of Physical Society of Japan 85, 114710 (1-8) (2016).

K. Tsutsui and T. Tohyama, “Incident-energy-dependent spectral weight of resonant inelastic x-ray scattering in doped cuprates”, Physical Review B 94, 085144 (1-7) (2016).

E. Kaneshita and T. Tohyama, “Origin of in-plane anisotropic resistivity in the antiferromagnetic phase of $Fe_{1+x}Te$ ”, Physical Review B 94, 045132 (1-5) (2016).

- C. Shao, T. Tohyama, H.-G. Luo, and H. Lu, "Numerical method to compute optical conductivity based on pump-probe simulations", *Physical Review B* 93, 195144 (1-8) (2016).
- T. Sugimoto, M. Mori, T. Tohyama, and S. Maekawa, "Quasi-Spin Correlations in a Frustrated Quantum Spin Ladder", *Physics Procedia* 75, 861-867 (2015).
- K. Tsutsui, E. Kaneshita, T. Tohyama, "Orbital-selective electronic excitations in iron arsenides revealed by simulated nonresonant inelastic x-ray scattering", *Physical Review B* 92, 195103 (1-5) (2015).
- T. Sugimoto, M. Mori, T. Tohyama, and S. Maekawa, "Magnetization plateaus by reconstructed quasispinons in a frustrated two-leg spin ladder under a magnetic field", *Physical Review B* 92, 125114 (1-6) (2015).
- T. Tohyama, "Resonant Inelastic X-Ray Scattering in Strongly Correlated Electron Systems", *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* 200, 209-215 (2015).
- T. Tohyama, K. Tsutsui, M. Mori, S. Sota and S. Yunoki, "Enhanced Charge Excitations in Electron-Doped Cuprates by Resonant Inelastic X-Ray Scattering", *Physical Review B* 92, 014515 (1-8) (2015).
- H. Lu, C. Shao, J. Bonca, D. Manske and T. Tohyama, "Photoinduced In-Gap States in the One-Dimensional Extended Hubbard Model", *Physical Review B* 91, 245117 (1-5) (2015).
- S. Sota, S. Yunoki, and T. Tohyama, "Density-matrix renormalization group study of third harmonic generation in one-dimensional Mott insulator coupled with phonon", *Journal of Physical Society of Japan* 84, 054403 (1-4) (2015).
- H. Matsuzaki, H. Nishioka, H. Uemura, A. Sawa, S. Sota, T. Tohyama and H. Okamoto, "Ultrafast charge and lattice dynamics in one-dimensional Mott insulator of CuO-chain compound Ca_2CuO_3 investigated by femtosecond absorption spectroscopy", *Physical Review B* 91, 081114(R) (1-5) (2015).
- 21 K. Shinjo, S. Sota and T. Tohyama, "Density-Matrix Renormalization Group Study of Extended Kitaev-Heisenberg Model", *Physical Review B* 91, 054401 (1-10) (2015).

[学会発表](計54件)

遠山貴己、曾田繁利, "t-t'-J 模型の磁

気励起と電荷ストライプ: 動的密度行列繰り込み群法による計算", 日本物理学会第73回年次大会, 2018年

筒井健二, 遠山貴己, "引力型ハバード模型に対する共鳴非弾性 X 線散乱のクラスター計算", 日本物理学会第73回年次大会, 2018年

保科安利, 遠山貴己, "2次元 t-t'-U ハバード模型の高エネルギー磁気励起", 日本物理学会第73回年次大会, 2018年

T. Tohyama, "Incident-energy dependent spectral weight of resonant inelastic X-ray scattering in doped cuprates", International Conference on Electron Correlation in Superconductors and Nanostructures (ECSN-2017) (招待講演)(国際学会), 2017年

T. Tohyama, "Incident-energy dependent spectral weight of resonant inelastic X-ray scattering in doped cuprates", The 10th International Conference on Inelastic X-ray Scattering (IXS2017) (招待講演)(国際学会), 2017年

遠山貴己, "酸素 K 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱でみたホールドープ型銅酸化物高温伝導体の電荷ダイナミクス", 基研研究会「超伝導研究の最先端: 多自由度、非平衡、電子相関、トポロジ、人工制御」, 2017年

遠山貴己, "共鳴非弾性 X 線散乱で見る銅酸化物のスピン・電荷励起", 高温超伝導フォーラム第5回会合, 2017年

筒井健二, 遠山貴己, "引力型ハバード模型に対する RIXS スペクトル", 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017年

K. Tsutsui, T. Tohyama, "Theoretical study of Cu L-edge resonant inelastic x-ray scattering in cuprates", International workshop on strong correlations and angle-resolved photoemission spectroscopy(CORPES17) (国際学会), 2017年

Y. Hoshina, T. Tohyama, "High-energy spin excitations of two-dimensional t-t'-U Hubbard model", International workshop on strong correlations and angle-resolved photoemission spectroscopy(CORPES17) (国際学会), 2017年

他 2014~2016 年度 4 4 件 (うち招待講演 2 2 件、国際学会 1 6 件)

[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： 特になし

6. 研究組織

(1)研究代表者

遠山 貴巳 (TOHYAMA, Takami)
東京理科大学・理学部第一部・教授
研究者番号：70237056

(2)研究分担者

曾田 繁利 (SOTA, Shigetoshi)
理化学研究所・計算科学研究機構・研究員
研究者番号：60466414

(3)研究分担者

兼下 英司 (KANESHITA, Eiji)
仙台高等専門学校・総合工学科・准教授
研究者番号：60548212

(4)研究分担者

筒井 健二 (TSUTSUI, Kenji)
量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究
所放射光科学研究センター・上席研究員
研究者番号：80291011

(5)連携研究者

石井 賢司 (ISHII, Kenji)
量子科学技術研究開発機構・関西光科学研
究所放射光科学研究センター・上席研究員
研究者番号：40343933

(6)連携研究者

脇本 秀一 (WAKIMOTO, Shuuichi)
日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用
研究部門・上席研究員
研究者番号：40399451

(7)連携研究者

BARON, Alfred
理化学研究所・バロン物質ダイナミクス研
究室・主任研究員
研究者番号：90442920