

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料  
〔研究進捗評価用〕

平成 24 年度採択分  
平成 27 年 3 月 20 日現在

重い 5d 遷移金属酸化物のスピンの軌道相互作用と新奇電子相

Strong spin-orbit interaction and novel electronic phases in heavy 5d transition metal oxides

課題番号：24224010

高木 英典 (TAKAGI HIDENORI)

東京大学・大学院理学系研究科・教授



研究の概要

5d 遷移金属酸化物の強いスピンの軌道相互作用と電子相関の協奏により生み出される新奇電子相の発見と学理構築を目標として研究を推進した。スピンの軌道複合  $J_{eff} = 1/2$  モーメントのダイナミクス、ディラック半金属-磁性絶縁体転移などを明らかにすると同時に、Kitaev 型量子スピン液体やトポロジカル相、スピンの流検出機能につながる新物質相を発見/創成した。

研究分野：物理学・物性 II

キーワード：電子相、スピンの軌道相互作用、電子相関、遷移金属酸化物

1. 研究開始当初の背景

重い元素で相対論効果が顕著な 5d 遷移金属の酸化物、例えばイリジウム複合酸化物は相関電子物理の新しいパラダイムである。これまでの相関電子物理の主な舞台は銅酸化物やマンガン酸化物をはじめとする 3d 遷移金属酸化物であった。これに対して、実効的クーロン相互作用  $U$  が 2 eV 程度と小さい 5d 遷移金属酸化物は、弱相関ゆえに物理的に自明な電子状態を有すると考えられていた。しかし近年、この認識が正しくないことが明らかとなった。重い 5d 遷移金属元素ではスピンの軌道相互作用が 0.5 eV 程度と 3d 元素より一桁以上大きく、 $d$  バンド幅や  $U$  に対して無視できない。もはや摂動的には扱うことのできない強いスピンの軌道相互作用が電子状態を劇的に変えるため、比較的弱い  $U$  のもとでも相関効果が顕著となりうる。その結果、新奇モット絶縁体相をはじめとする、スピンの軌道相互作用誘起の多彩でユニークな電子相と相関の競合が 5d 遷移金属酸化物を舞台に発現する。

2. 研究の目的

本研究は上記の視点のもと、物質を主な切り口として、3d とは質的に異なったエネルギー階層構造を有する 5d 遷移金属酸化物の相関物理を開拓し、物性の一分野として確立することを志している。

3. 研究の方法

物質探索、基礎物性測定、重い 5d 元素で

強みを発揮する共鳴 X 線散乱測定を通じて、  
1. スピンの軌道相互作用誘起の電子相競合現象を微視的に理解し、5d 遷移金属酸化物の相関電子物理の基盤を構築し、同時に、2. 5d 遷移金属酸化物のユニークな電子論的特徴を体現する電子相や機能を創成する。

4. これまでの成果

スピンの軌道相互作用誘起電子相の学理

**スピンの軌道モット絶縁体  $Sr_2IrO_4$  のスピンのダイナミクス** (文献 1, 4) : スピンの軌道モット絶縁体はその最外殻電子がスピンの軌道複合  $J_{eff} = 1/2$  状態で記述されるため、3d モット絶縁体と質的に異なる磁性が予測される。 $J_{eff} = 1/2$  モーメントが酸素との  $180^\circ$  結合で結ばれる  $Sr_2IrO_4$  では、異方性の起源であるスピンの軌道相互作用が、等方的ハイゼンベルグ結合をもたらすことを実証した。放射光共鳴 X 線磁気散乱実験の二次元磁気散漫散乱から  $J_{eff} = 1/2$  モーメントの動的相関長の温度依存性を測定し、磁気ダイナミクスが反強磁性相互作用  $J \sim 0.1$  eV の 2 次元ハイゼンベルグモデルでのみ記述できることを示した。スピンの軌道相互作用によって、銅酸化物超伝導体の母物質  $La_2CuO_4$  と等価な状態が実現したことになる。

**$SrTiO_3$ - $SrIrO_3$  (001) 超格子の半金属-磁性絶縁体転移** : スピンの軌道半金属-モット絶縁体転移の物理を構築するモデルシステムとして、スピンの軌道半金属  $SrIrO_3$  n 層とバンド絶縁体  $SrTiO_3$  1 層からなる (001) 超格子構造を作製し、物性の層数依存性を詳細に調

べた。SrIrO<sub>3</sub>層数  $n$  が小さくなり、2次元性が高まるに従い、 $n = 3$  で半金属-絶縁体転移が生じる。半金属-絶縁体転移は、磁気秩序の出現と同期して起きる。このことから、磁気秩序によって時間反転対称性が破れ、半金属状態の起源であるディラック点にギャップが生じ、半金属-磁性絶縁体転移が生じたと結論した。

#### 新物質開発とスピン軌道相互作用誘起物性・機能の開拓

**ハイパーハニカム格子 $\beta$ -Li<sub>2</sub>IrO<sub>3</sub>の発見とKitaev型量子スピン液体**(文献6) : Ir<sup>4+</sup>O<sub>6</sub>八面体が稜共有で隣接する場合、 $J_{eff} = 1/2$ 波動関数の複素位相項の存在により干渉効果が生じ、モーメント間にはIr-O<sub>2</sub>-Ir面に垂直な方向にのみ強磁性相互作用が働く。x、y、z方向にのみ働く3種類の強磁性結合が3つの120°結合からなるハニカム格子の上にそれぞれ置かれると、3種の強磁性結合は競合し、量子計算の分野でよく知られるKitaevモデルと等価になる。その基底状態は強磁性RVB状態と見なすことができる新奇な量子スピン液体状態となることが知られており、その現実物質での実現が望まれる。その舞台となる新物質 $\beta$ -Li<sub>2</sub>IrO<sub>3</sub>を発見した。この新物質はハニカム格子の三次元版であるハイパーハニカム格子を有しており、Kitaev型スピン液体に極めて近い状態が実現している。このため理論・実験両面から、大きな注目を集めている。

**人工的ハニカム格子の創成とトポロジカル相の開拓**(文献5) : 新奇トポロジカル相実現を目指し、(111)配向のペロブスカイト型(Ca,Sr)IrO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>超格子薄膜を作製に成功した。ペロブスカイト酸化物を[111]結晶軸方向へ2層ずつ積層させた超格子構造は「人工的ハニカム格子」とみなすことができる。グラフェンの強スピン軌道相互作用極限版とみなすことができ、トポロジカル絶縁体の実現も理論的に予言されている。磁気秩序に伴う金属絶縁体転移が観測され、電子相関によりモット絶縁体へのトポロジカル転移が起きていると提唱した。

**IrO<sub>2</sub>の巨大逆スピンホール効果とスピン流検出機能**(文献2) : 二元酸化物IrO<sub>2</sub>が極めて大きな逆スピンホール効果を示すことを見出した。IrO<sub>2</sub>では、貴金属元素のs電子などに比べ局在性の高いd電子が伝導を支配しているゆえ、電気抵抗率が高い。このため、スピン流の検出素子として用いた場合、より大きな電圧が得られる。実際、スピン流検出デバイスの性能を表すスピンホール抵抗は従来の貴金属ベースのデバイスに比べ桁程度大きい $\rho_{\text{H}} \sim 38 \mu\Omega\text{cm}$ に達する。

5. 今後の計画  
スピン軌道相互作用と電子相関の物理につ

いて、学理構築と新機能物質開拓を着実に進め、より完成度の高いものにするべく努力する。特に(111)超格子のトポロジカル相の実現は、膜技術での大きな進展を活かすべく、特に注力したい。同時にハイパーハニカムのような物理的に面白い新物質を一つでも発見できるよう物質開発の努力を継続する。本課題における半金属、ディラック電子との邂逅に触発され、**アンチペロブスカイト酸化物の3次元ディラック電子の実証やの励起子絶縁体の検証**など、当初想定していなかった成果も生まれている。これらが次のプロジェクトの核として、大きな研究の流れに成長するよう努力する。

6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

1. S. Fujiyama, H. Ohsumi, T. Komesu, J. Matsuno, B. J. Kim, M. Takata, T. Arima, and H. Takagi, “Two-Dimensional Heisenberg Behavior of  $J_{eff} = 1/2$  Isospins in the Paramagnetic State of the Spin-Orbital Mott Insulator Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub>”, Phys. Rev. Lett. **108**, 247212-1~5 (2012).

2. K. Fujiwara, Y. Fukuma, J. Matsuno, H. Idzuchi, Y. Niimi, Y. Otani, and H. Takagi, “5d iridium oxide as a material for spin-current detection”, Nature Communications **4**, 3893-1~6 (2013).

3. T. Takayama, A. Yaresko, A. Matsumoto, J. Nuss, K. Ishii, M. Yoshida, J. Mizuki, and H. Takagi, “Spin-Orbit coupling induced semi-metallic state in the 1/3 hole-doped hyper-kagome Na<sub>3</sub>Ir<sub>3</sub>O<sub>8</sub>”, Scientific Reports **4**, 6818-1~6 (2014).

4. S. Fujiyama, H. Ohsumi, K. Ohashi, D. Hirai, B. J. Kim, T. Arima, M. Takata, and H. Takagi, “Spin and Orbital Contributions to Magnetically Ordered Moments in 5d Layered Perovskite Sr<sub>2</sub>IrO<sub>4</sub>”, Phys. Rev. Lett. **112**, 016405-1~5 (2014).

5. D. Hirai, J. Matsuno, and H. Takagi, “Fabrication of (111)-oriented Ca<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>IrO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> superlattices - a designed playground for honeycomb physics”, APL Materials **3**, 041508-1~6 (2015).

6. T. Takayama, A. Kato, R. Dinnebier, J. Nuss, H. Kono, L.S.I. Veiga, G. Fabbri, D. Haskel, and H. Takagi, “Hyperhoneycomb iridate  $\beta$ -Li<sub>2</sub>IrO<sub>3</sub> as a Platform for Kitaev Magnetism” Phys. Rev. Lett. **114**, 077202-1~5 (2015).

7. (受賞) Hidenori Takagi, 2014 Alexander von Humboldt Professor, Humboldt foundation.

8. (受賞) Hidenori Takagi, Highly Cited Researchers 2014, Thomson Reuters. ホームページ等

[http://park.itc.u-tokyo.ac.jp/takagi\\_lab/](http://park.itc.u-tokyo.ac.jp/takagi_lab/)