

自旋-轨道耦合型莫特绝缘体 Sr_2IrO_4 的高压拉曼光谱

尹霞, 张建波, 丁阳

HPSTAR
1043-2020

(北京高压科学研究中心, 北京 100096)

摘要: $5d$ 过渡金属化合物内部的电子相互作用 (U)、自旋-轨道耦合 (SOC)、晶体场效应呈现既耦合又竞争的复杂关系。这些耦合竞争关系可以在温度、磁场或压力调控下诱发许多新奇的电磁性质, 成为当前凝聚态物理的研究热点之一。通过对目前研究最多的化合物 Sr_2IrO_4 单晶进行常温高压下的拉曼光谱分析发现, 加压至 19.6~22.2 GPa 时, 拉曼光谱在波数为 199 cm^{-1} 处出现新峰, 清楚表明结构发生了相变, 而该相变在此前一直无法确认。进一步的研究表明: 这种结构相变的发生独立于低温下的磁性相变, 可以通过自旋-轨道耦合对高压下 Sr_2IrO_4 的磁有序消失起到决定性作用。实验结果揭示了利用莫特绝缘体晶格变化来调控其电磁特性的新途径, 也为未来设计新型功能材料提供了新思路。

关键词: 莫特绝缘体; 铱酸盐; 拉曼散射; 高压

中图分类号: O469; O521.2

文献标识码: A

$5d$ 过渡金属氧化物体系内的相互作用机制比较复杂, 电子相互作用 (U)、自旋-轨道耦合 (SOC)、晶体场效应等呈现耦合的竞争关系^[1]。这种复杂的关系会诱发诸如自旋液体^[2-3]、拓扑绝缘体^[4-5]、超导体^[6-7]等奇异量子态, 该领域成为近年来凝聚态物理学研究的热点之一。

铱酸盐 Sr_2IrO_4 是目前研究最多最深的 $5d$ 过渡金属氧化物之一。一方面, 由于其与铜氧超导母体 La_2CuO_4 有相似的晶体和电子结构, 具备实现超导的可能性, 引起了本领域研究人员的极大兴趣; 另一方面, Sr_2IrO_4 被视为 $5d$ 过渡金属氧化物的一个典型代表, 这主要归功于 Sr_2IrO_4 有一个由强自旋-轨道耦合、晶体场及电子-电子相互作用诱发的著名莫特型绝缘基态^[8]。因其具有强自旋-轨道相互作用, 导致 t_{2g} 轨道再次分裂为能量较低的轨道 $J_{\text{eff}} = 3/2$ 和能量较高的轨道 $J_{\text{eff}} = 1/2$, 而 $J_{\text{eff}} = 1/2$ 的电子特性使其表现为具有赝自旋 $S = 1/2$ 的绝缘基态^[8-11]。研究伊始, 大家普遍认为, 与 $3d$ 过渡金属氧化物类似, $5d$ 氧化物中的晶格和轨道动力学耦合对其物性的影响也许微不足道。但近年来常压下的一些研究表明, 赝自旋-晶格耦合对铱酸盐物理性质可能会产生较大影响^[1, 12]。2016年, Gretarsson 等^[13]在 Sr_2IrO_4 的拉曼散射实验中发现, 其具有二阶磁振子信号, 且低能声子模具有明显的 Fano 线形, 反映出 Sr_2IrO_4 中可能具有特殊的赝自旋-晶格相互作用。2018年, Cao 等^[14]对反铁磁相的 Sr_2IrO_4 进行电输运研究, 认为强自旋-轨道耦合使倾斜的 $S = 1/2$ 赝自旋被锁定在八面体 IrO_6 上, 赝自旋取向与八面体受到电流影响可能会一同旋转。2019年, Liu 等^[15]发现在 Sr_2IrO_4 中, 赝自旋-晶格耦合有可能通过伪姜-泰勒 (Jahn-Teller, JT) 效应, 在磁有序性相变发生的同时, 使晶体从四方对称转变为正交对称。由于自旋-晶格耦合

* 收稿日期: 2019-12-05; 修回日期: 2019-12-10

基金项目: 国家重点研发计划(2018YFA0305703); 国家自然科学基金委-中国工程物理研究院 NSAF 联合基金(U1930401); 国家自然科学基金(11874075); 科学挑战专题(TZ2016001)

作者简介: 尹霞(1993—), 女, 硕士研究生, 主要从事高压凝聚态物理研究. E-mail: xia.yin@hpstar.ac.cn

通信作者: 丁阳(1968—), 男, 博士, 研究员, 主要从事高压凝聚态物理研究.

E-mail: yang.ding@hpstar.ac.cn

现象在外场(尤其是压力)调控下会表现得更为显著,近来已有一些针对 Sr_2IrO_4 高压研究的报道。2012年, Haskel 等^[16] 发现在低温 11 K、高压 17 GPa 的条件下, Sr_2IrO_4 的反铁磁序磁性消失, 且电阻降低了 3 个数量级, 而其 X 射线衍射(XRD)结果却未显示发生结构相变。2018年, Samanta 等^[17] 对粉晶样品进行了高压拉曼和 XRD 研究, 发现在 17 GPa 左右, 波数约为 180 和 260 cm^{-1} 处的拉曼峰强度迅速减弱, 而波数 390 cm^{-1} 处拉曼峰出现非对称的 Fano 峰形, 这些现象都显示出电子与声子激发耦合的特征。他们推测: 在该压力下存在结构相变, 并和 Haskel 等发现的 17 GPa 前后的磁性相变有关联。2019年, Chen 等^[18] 利用拉曼和同步辐射技术研究发现, 在 20 GPa 附近, 四方对称 Sr_2IrO_4 的 c/a 值有明显变化, 同时, 波数 180 cm^{-1} 处的拉曼峰显著变宽, 暗示出现了微弱的相变。由上述研究可知^[16-18], 实验仍未证实在 17~20 GPa 附近有结构相变, 这是理解 17 GPa 发生的磁相变以及是否有强赝自旋-晶格耦合的关键, 也是本研究的重点问题。据此, 通过原位拉曼光谱详细研究了 Sr_2IrO_4 单晶在室温高压下的晶格振动模式。在 19.6~22.2 GPa 压力区间, 199 cm^{-1} 处发现一个新峰, 为此压力下 Sr_2IrO_4 的结构相变找到了直接和确凿的证据。通过进一步阐明此结构相变在 Sr_2IrO_4 磁相变中扮演的重要角色, 为探索高压下晶格自由度对 5d 化合物奇异物性的重要影响提供了新思路。

1 实验方法

1.1 单晶材料 Sr_2IrO_4 的合成

将高纯度原料 SrCO_3 、 IrO_2 和 $\text{SrCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ 粉末以摩尔比 4 : 1 : 2 混合置于铂坩埚中, 加热坩埚至 1478 K, 保持 9 h, 然后缓慢冷却至室温。静置 3 h 后, 将合成产物分离, 并用去离子水洗涤以获得高纯度单晶。单晶的典型尺寸为 0.8 mm × 0.8 mm × 0.3 mm。单晶衍射证实合成 Sr_2IrO_4 的空间群为 $I4_1/acd$ 。

1.2 原位拉曼实验方法

实验使用的加压装置为 Mao-Bell 型金刚石对顶压砧, 所使用的超低荧光金刚石台面直径为 300 μm , 高压密封垫片材料为 T301 钢, 预压厚度约为 30 μm , 样品腔孔径约为 160 μm 。样品尺寸为 60 μm × 60 μm × 15 μm , 传压介质为高纯度氖气(Ne), 以红宝石为压标物质^[19]。

通常 X 射线衍射(XRD)是获得晶体结构的重要技术之一, 但高压粉晶在开展衍射实验过程中受到诸多限制, 如衍射峰数目有限、衍射峰强度易受较复杂背景的影响, 所以对微小的结构变化(如八面体的旋转、倾斜或拉长、缩短)并不敏感。而这些变化可以引起声子振动模式改变, 从而被拉曼光谱测得, 所以研究这类细微的高压结构相变, 拉曼技术较高压粉晶衍射技术更加适合。本实验在北京高压科学研究中心的显微共聚焦拉曼光谱仪上完成。激光器波长为 488 nm; 谱仪采用 1800 gr/mm 光栅, 激光功率约为 2 mW; 聚焦在样品上的光斑直径约为 5 μm 。实验前以硅单晶标样对仪器进行校准。每个拉曼谱采集时间为 300 s, 最终数据为 5 个谱的平均结果。

2 结果与讨论

常温常压下 Sr_2IrO_4 具有空间群 $I4_1/acd$ 。根据理论分析, 该材料有 32 种不同的拉曼振动模式^[20], 其组成为 $\Gamma_{\text{Raman}} = 4A_{1g} + 7B_{1g} + 5B_{2g} + 16E_g$ 。由于样品的各向异性和对拉曼激光的响应不同, 当前只能探测到部分振动模式, 而本次实验所探测到的拉曼振动模式较以往的报道更为丰富^[17-18]。

图 1 为常温常压条件下以不同激光波长、功率、极化方向测得的 Sr_2IrO_4 拉曼光谱, 通过对比选取最佳测试条件。图 1(a) 为不同波长测得的拉曼谱, 其中拉曼峰位均一致。波长为 488 和 532 nm 的激光给出的信号最强, 可分辨出较多振动模式的拉曼峰; 而 488 nm 的激光测到的信噪比最高, 背底相对平滑。Cetin 等^[21] 在低温 3 K 下分别采用 457、476、488、532、561 和 632 nm 波长的激光进行了类似测量, 结果证明 488 和 532 nm 的激光信噪比较好。图 1(b) 为不同功率条件下测得的 Sr_2IrO_4 拉曼光谱。由图 1(b) 可知, 在功率调至仪器最高输出功率 7.3 mW 时, 拉曼峰位保持不变, 说明样品性质仍然稳定且不存在热激发效应。此外, 还对样品 Sr_2IrO_4 进行了极化测试, 结果见图 1(c) 和图 1(d), 在 0°、

90°及 180°时拉曼峰强度较高且峰位相同。本实验结果和文献 [21] 都表明, 非极化拉曼能得到更强的信号。通过对不同波长、功率、极化的一系列测试筛选, 确定了 Sr_2IrO_4 高压拉曼实验的最佳条件。

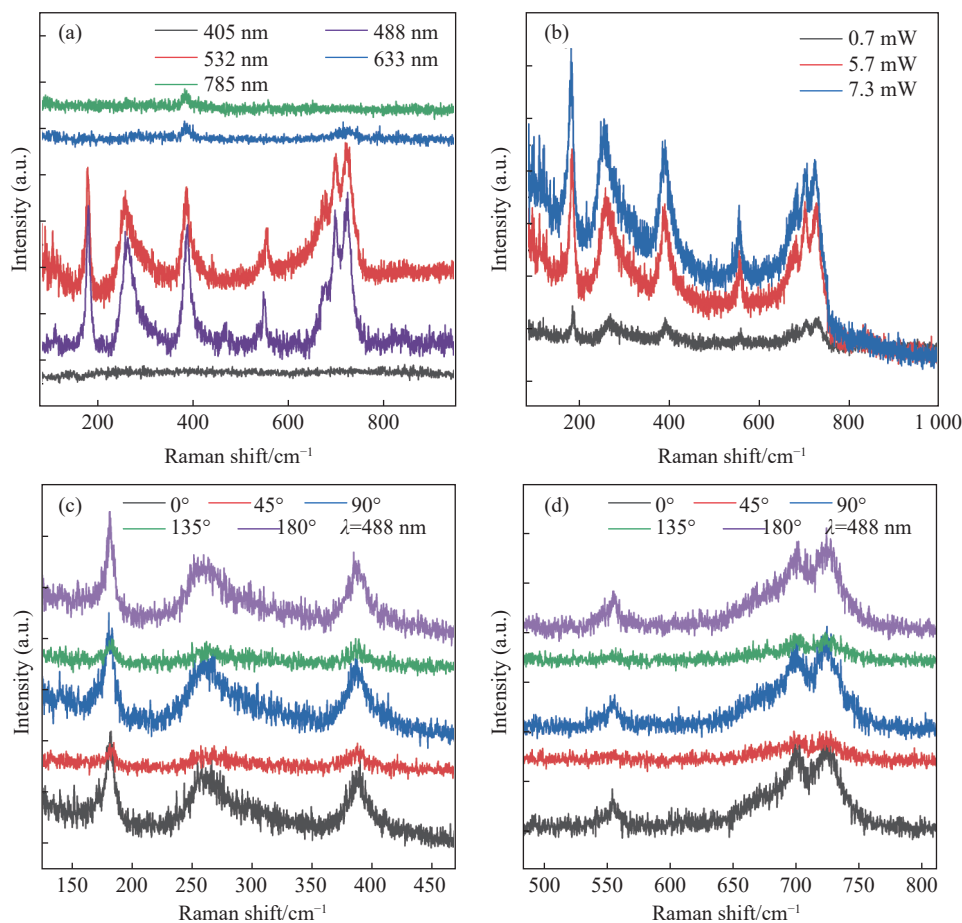


图 1 常温常压下不同波长、功率、极化角度的 Sr_2IrO_4 拉曼峰

Fig. 1 Raman peaks of Sr_2IrO_4 measured at different wavelengths, powers and polarization angles at ambient condition

图 2 为常温常压下拉曼振动模式的标定。在 488 nm 激光 3 mW 功率的测试中, 可观察到在 181、263、387、556、675、699、723、1 476 cm^{-1} 等处的主要振动模式: (1) 181 cm^{-1} (ν_1) 处的 A_{1g} 模式, 对应于

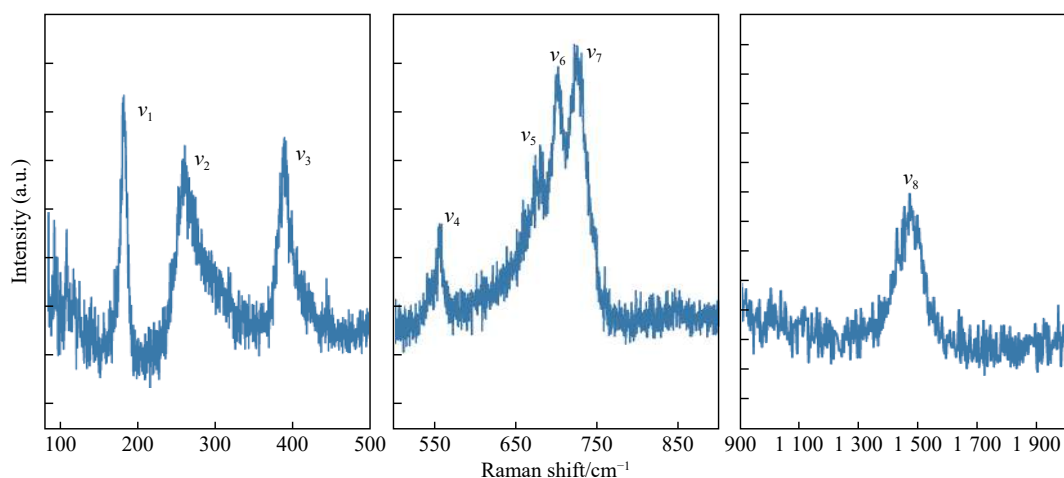


图 2 常温常压下测得的单晶 Sr_2IrO_4 的拉曼峰

Fig. 2 Raman peaks of single crystal Sr_2IrO_4 at ambient condition

Sr 离子对 IrO_6 八面体的伸缩振动; (2) $263\text{ cm}^{-1}(\nu_2)$ 处的 A_{1g} 模式, 对应于 Ir—O—Ir 键的弯曲振动; (3) $387\text{ cm}^{-1}(\nu_3)$ 和 $556\text{ cm}^{-1}(\nu_4)$ 处的 A_{1g} 模式, 对应于氧原子的振动; (4) $675\text{ cm}^{-1}(\nu_5)$ 和 $699\text{ cm}^{-1}(\nu_6)$ 处的 B_{1g} 模式, 对应于顶端氧原子振动; (5) $723\text{ cm}^{-1}(\nu_7)$ 处的 B_{1g} 模式, 对应于顶端氧原子的呼吸振动; (6) $1\,476\text{ cm}^{-1}(\nu_8)$ 处的二阶声子振动模式, 是 $723\text{ cm}^{-1}(\nu_7)$ 处声子散射过程引发的二阶拉曼峰。表 1 列出了实验测得的 Sr_2IrO_4 振动峰与已报道的结果对比^[20,22], 本次实验测得的拉曼振动模式更加丰富^[17-18]。

表 1 常温常压下单晶 Sr_2IrO_4 的拉曼峰振动模式指认与文献对比

Table 1 Frequencies and assignments about Raman modes of single crystal Sr_2IrO_4 at ambient condition

Mode	Assignment	Frequency/ cm^{-1}	
		This work	Ref.[20-21]
A_{1g} (Sr against IrO_6)	ν_1	181	187
A_{1g} (Ir—O—Ir bending)	ν_2	263	277
A_{1g} (Oxygen)	ν_3	387	392
A_{1g} (Oxygen)	ν_4	556	560
B_{1g} (Oxygen)	ν_5	675	666
B_{1g} (Oxygen)	ν_6	699	690
B_{1g} (Oxygen, breathing)	ν_7	723	728
Two-phonon of 728 cm^{-1}	ν_8	1 476	1 467

高压拉曼实验采用 488 nm^{-1} 波长激光在室温下进行, 压力范围为 $0.8\sim39.0\text{ GPa}$ 。图 3~图 5 分别给出了拉曼振动峰位、频移、强峰的半高宽随压力的变化。

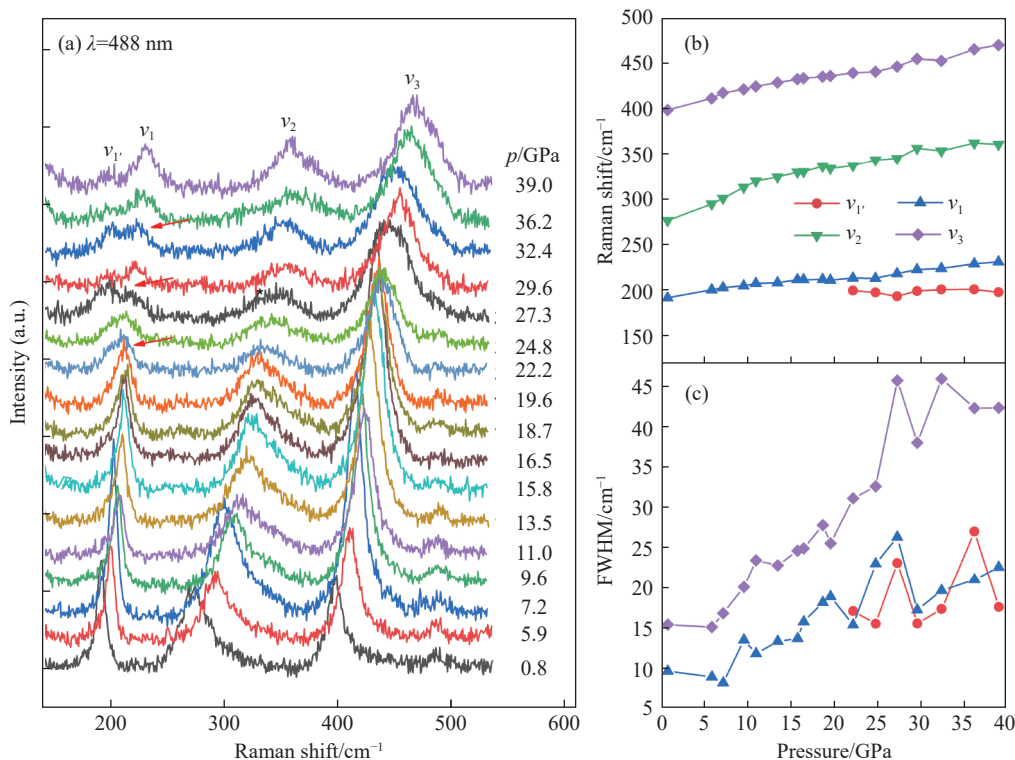


图 3 Sr_2IrO_4 在 $80\sim580\text{ cm}^{-1}$ 处的拉曼峰及其频移、最强峰半高宽(FWHM)随压力的变化

Fig. 3 Variation of Raman peak of Sr_2IrO_4 at $80\sim580\text{ cm}^{-1}$ with Raman shift and FWHM under high pressure

由图3可知,波数 $80\sim 580\text{ cm}^{-1}$ 之间的拉曼峰随压力上升而宽化,当压力升高至 19.6 GPa 时,拉曼峰 $\nu_1(181\text{ cm}^{-1})$ 突然展宽,且在 22.2 GPa 时出现一个新峰 ν_1 ,其峰位经过高斯拟合确定为 199 cm^{-1} 。高压下拉曼峰 $\nu_2(263\text{ cm}^{-1})$ 的强度减弱。对压力下拉曼峰 ν_1 、 ν_1 、 ν_2 、 ν_3 的分析表明,随着压力升高,峰位出现蓝移,且半高宽变宽,而 ν_3 的宽化情况最明显。据此,实验结果清晰地证明,在 $19\sim 22\text{ GPa}$ 压力区间 Sr_2IrO_4 确实发生了结构相变。

迄今为止,首次观察到该结构的相变。Samanta等^[17]的研究中,高压下 ν_1 、 ν_2 处的拉曼峰强度较弱,在 17 GPa 前已经消失,所以无法判断是否存在结构相变。最近Chen等^[18]所做的拉曼实验,在 $19.6\sim 21.9\text{ GPa}$ 之间同样观察到 ν_1 拉曼模的突然展宽,但未观察到新峰出现。而在本次实验中这些拉曼峰一直存在,并且出现了新峰,这些变化成为确凿的相变判据。

图4显示了波数在 $580\sim 980\text{ cm}^{-1}$ 区间的 ν_4 、 ν_6 、 ν_7 拉曼模式,拉曼峰 ν_5 太弱无法观察到。从图4可以看出,所有拉曼峰随压力出现蓝移,且在相变点 19.6 GPa 前后没有明显突变。但 ν_6 的半高宽在相变点前后出现突变。相变之后, ν_6 的半高宽急剧上升,且信号强度迅速减弱。此外, ν_7 的信号强度在相变后也急剧降低。

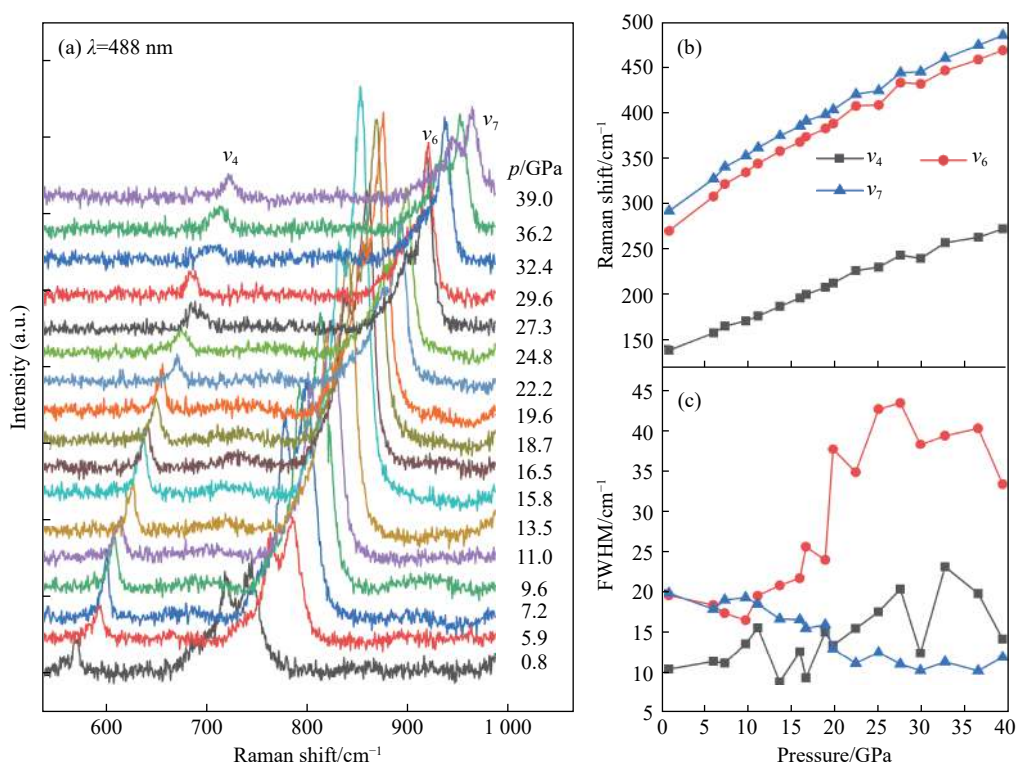
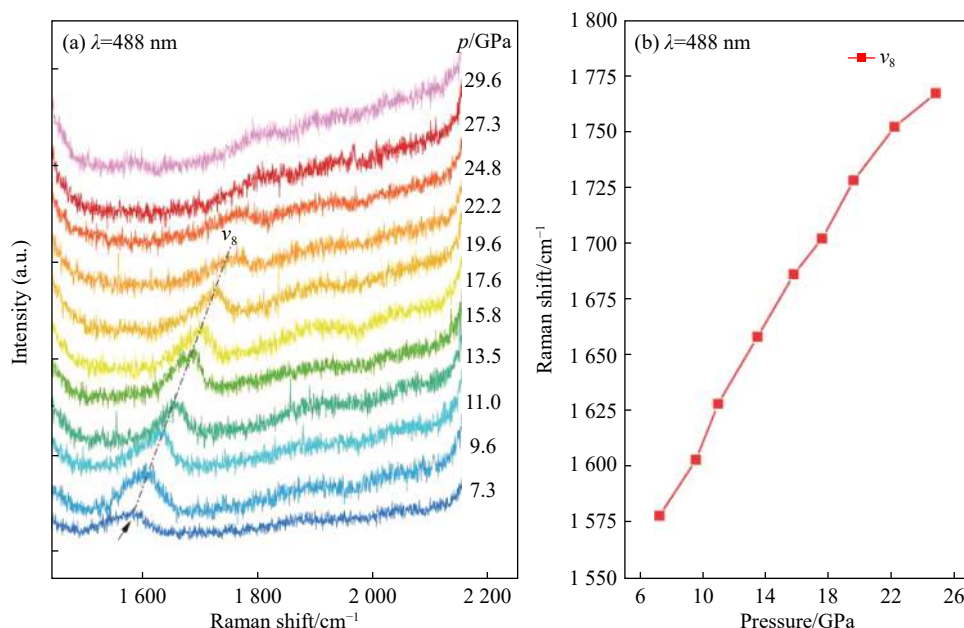


图4 Sr_2IrO_4 在 $580\sim 980\text{ cm}^{-1}$ 处的拉曼峰及其频移、最强峰半高宽随压力的变化

Fig. 4 Variation of Raman peak of Sr_2IrO_4 at $580\sim 980\text{ cm}^{-1}$ with Raman shift versus and FWHM under high pressure

图5显示了高波数 1476 cm^{-1} 处的二阶声子振动模 ν_8 随压力变化的趋势。声子振动模 ν_8 是 ν_7 的二阶声子散射峰,所以其强度变化与 ν_7 呈现一定相关性,同样在相变后急剧减弱。上述现象可以佐证晶体发生了结构相变^[17]。

综上所述,对高压拉曼测试结果进行分析发现,在 19.6 GPa 拉曼谱发生异常变化:拉曼峰 ν_1 附近出现了新峰 ν_1 ,拉曼峰 ν_6 急剧展宽,拉曼峰 ν_6 、 ν_7 、 ν_8 的信号强度迅速减弱。这些异常变化均表示晶体发生对称性破缺,产生了结构相变。虽然拉曼光谱不能直接提供新相的晶体结构信息,但是根据Samanta等^[17]的XRD结果, Sr_2IrO_4 晶体的 c/a 值随压力上升的速率在相变后突然变缓。据此,Samanta等^[17]认为 Sr_2IrO_4 可能产生了从 $I4_1/acd$ 空间群到 $I4/mmm$ 空间群的结构相变。

图 5 Sr_2IrO_4 在 1476 cm^{-1} 处的拉曼峰及其频移随压力的变化Fig. 5 Variation of Raman peak of Sr_2IrO_4 at 1476 cm^{-1} with Raman shift versus under high pressure

由于轨道-自旋耦合的强相互作用,在压力下 $5d$ 氧化物的晶格变化会借由轨道传递给自旋,从而改变磁结构^[23]。在 Sr_2IrO_4 中 IrO_6 呈略微拉长的八面体结构,并围绕 c 轴发生旋转角为 11° 的畸变^[24-25]。奈尔温度 T_N 在 240 K 以下时, Sr_2IrO_4 呈反铁磁序,磁矩排布于 ab 面内,但有微小的倾斜角,使其有 $0.06\mu_B/\text{Ir} \sim 0.14\mu_B/\text{Ir}$ 的弱铁磁矩。正是由于自旋-轨道耦合的缘故, Sr_2IrO_4 的磁性对磁矩倾斜角和自旋旋转角非常敏感。即使晶体结构在高压下的转变引起微小的角度变化,也会显著影响其磁结构^[8, 26]。实际上 Samanta 等^[17] 在密度泛函理论(DFT)计算中,也预测了 IrO_6 八面体旋转角与磁矩倾斜角存在高度耦合,体积压缩时磁有序会变得不稳定。最近, Zhang 等^[23] 在研究 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ 时通过磁振子和声子之间的耦合,证实了 IrO_6 八面体形状拉长和缩短对磁结构的变化有决定性影响。上述理论和实验结果表明:本研究在室温下发现 Sr_2IrO_4 结构相变的临界压力 19.6 GPa 与 Haskel 等^[16] 报道的低温下 (11 K) 磁性相变的压力 (17 GPa) 非常吻合,说明结构相变独立于磁性相变,但却极有可能是导致 Sr_2IrO_4 发生磁性变化和消失的主要原因。与 $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ 不同, Sr_2IrO_4 的磁性变化可能与 IrO_6 八面体的倾斜角关联性更强,进一步的证据还有待对 Sr_2IrO_4 磁振子和声子耦合效应做更深入的拉曼研究。另外,在压力下电阻降低了 3 个数量级,说明结构相变一直影响着电输运特性^[16]。

3 结 论

通过对室温下 Sr_2IrO_4 的高压拉曼光谱研究,于 19.6 GPa 在波数约 199 cm^{-1} 处发现了新的拉曼峰,并伴有其他拉曼峰的异常变化。相变压力与低温下磁结构变化压力吻合,揭示了该结构相变独立发生且会影响磁性相变,说明由于强自旋-轨道耦合, $5d$ 化合物的晶体结构变化可以通过耦合的轨道-自旋传递,影响其电磁特性。

感谢北京高压科学研究中心束海云老师在充气实验中给予的支持。

参考文献:

- [1] WITCZAK-KREMPA W, CHEN G, KIM Y B, et al. Correlated quantum phenomena in the strong spin-orbit regime [J]. [Annual Review of Condensed Matter Physics](#), 2014, 5(1): 57–82.
- [2] WANG F, SENTHIL T. Twisted hubbard model for Sr_2IrO_4 : magnetism and possible high temperature superconductivity [J]. [Physical Review Letters](#), 2011, 106(13): 136402.
- [3] KITAGAWA K, TAKAYAMA T, MATSUMOTO Y, et al. A spin-orbital-entangled quantum liquid on a honeycomb lattice [J]. [Nature](#), 2018, 554(7692): 341–345.
- [4] PRICE C C, PERKINS N B. Critical properties of the Kitaev-Heisenberg model [J]. [Physical Review Letters](#), 2012, 109(18): 187201.
- [5] CHALLOUPKA J, JACKELI G, KHALIULLIN G. Zigzag magnetic order in the iridium oxide Na_2IrO_3 [J]. [Physical Review Letters](#), 2013, 110(9): 097204.
- [6] WATANABE H, SHIRAKAWA T, YUNOKI S. Monte carlo study of an unconventional superconducting phase in iridium oxide $J_{\text{eff}} = 1/2$ mott insulators induced by carrier doping [J]. [Physical Review Letters](#), 2013, 110: 027002.
- [7] YONEZAWA S, MURAOKA Y, MATSUSHITA Y, et al. Superconductivity in a pyrochlore-related oxide KOs_2O_6 [J]. [Journal of Physics: Condensed Matter](#), 2004, 16(3): L9–L12.
- [8] KIM B J, JIN H, MOON S J, et al. Novel $J_{\text{eff}} = 1/2$ mott state induced by relativistic spin-orbit coupling in Sr_2IrO_4 [J]. [Physical Review Letters](#), 2008, 101(7): 076402.
- [9] RAU J G, LEE K H, KEE H Y. Spin-orbit physics giving rise to novel phases in correlated systems: iridates and related materials [J]. [Condensed Matter Physics](#), 2015, 7(7).
- [10] ARITA R, KUNEŠ J, KOZHEVNIKOV A V, et al. *Ab initio* studies on the interplay between spin-orbit interaction and coulomb correlation in Sr_2IrO_4 and Ba_2IrO_4 [J]. [Physical Review Letters](#), 2012, 108(8): 086403.
- [11] LI Q, CAO G, OKAMOTO S, et al. Atomically resolved spectroscopic study of Sr_2IrO_4 : experiment and theory [J]. [Scientific Reports](#), 2013: 3.
- [12] CAO G, SCHLOTTMANN P. The challenge of spin-orbit-tuned ground states in iridates: a key issues review [J]. [Reports on Progress in Physics Physical Society](#), 2018, 81(4): 042502.
- [13] GRETARSSON H, SUNG N H, HOEPPNER M, et al. Two-magnon Raman scattering and Pseudospin-Lattice interactions in Sr_2IrO_4 and $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ [J]. [Physical Review Letters](#), 2016, 116(13): 136401.
- [14] CAO G, TERZIC J, ZHAO H D, et al. Electrical control of structural and physical properties via strong spin-orbit interactions in Sr_2IrO_4 [J]. [Physical Review Letters](#), 2017, 120(1): 017201.
- [15] LIU H, KHALIULLIN G. Pseudo Jahn-Teller effect and magnetoelastic coupling in spin-orbit mott insulators [J]. [Physical Review Letters](#), 2019, 122(5): 057203.
- [16] HASKEL D, FABBRIS G, ZHERNENKOV M, et al. Pressure tuning of the spin-orbit coupled ground state in Sr_2IrO_4 [J]. [Physical Review Letters](#), 2012, 109(2): 027204.
- [17] SAMANTA K, ARDITO F M, SOUZA-NETO N M, et al. First-order structural transition and pressure-induced lattice/phonon anomalies in Sr_2IrO_4 [J]. [Physical Review B](#), 2018, 98: 094101.
- [18] CHEN C, ZHOU Y, CHEN X, et al. Persistent insulator: avoidance of metallization at megabar pressures in strongly spin-orbit-coupled Sr_2IrO_4 [EB/OL]. arXiv: 1910. 10291 [2019-12-05].
- [19] CHIJIJOKE A D, NELLIS W J, SOLDATOV A, et al. The ruby pressure standard to 150 GPa [J]. [Journal of Applied Physics](#), 2005, 98(11): 094112.
- [20] AROYO, MOIS ILIA, PEREZ-MATO, et al. Bilbao crystallographic server: I. databases and crystallographic computing programs [J]. [Zeitschrift Für Kristallographie](#), 2006, 221(1): 15.
- [21] CETIN M F, LEMMENS P, GNEZDILOV V, et al. Crossover from coherent to incoherent scattering in spin-orbit dominated Sr_2IrO_4 [J]. [Physical Review B](#), 2012, 85(19): 195148.
- [22] MOON S J, JIN H, CHOI W S, et al. Temperature dependence of the electronic structure of the $J_{\text{eff}} = 1/2$ mott insulator Sr_2IrO_4 studied by optical spectroscopy [J]. [Physical Review B](#), 2009, 80(19): 195110.
- [23] ZHANG J B, YAN D Y, SORB Y A, et al. Lattice frustration in spin-orbit mott insulator $\text{Sr}_3\text{Ir}_2\text{O}_7$ at high pressure [J]. [NPJ Quantum Mater](#), 2019, 4(23).

- [24] CRAWFORD M K, SUBRAMANIAN M A, HARLOW R L, et al. Structural and magnetic studies of Sr_2IrO_4 [J]. *Physical Review B*, 1994, 49(13): 9198–9201.
- [25] YE F, CHI S, CHAKOUMAKOS B C, et al. The magnetic and crystal structures of Sr_2IrO_4 : a neutron diffraction study [J]. *Physical Review B*, 2013, 87(14): 545–579.
- [26] KIM B J, OHSUMI H, KOMESU T, et al. Phase-sensitive observation of a spin-orbital mott state in Sr_2IrO_4 [J]. *Science*, 2009, 323(5919): 1329–1332.

Raman Scattering of Spin-Orbit Mott Insulator Sr_2IrO_4 at High-Pressure

YIN Xia, ZHANG Jianbo, DING Yang

(Center for High Pressure Science & Technology Advanced Research, Beijing 100096, China)

Abstract: The interplays of electron-electron interaction (U), spin-orbit coupling (SOC), and crystal field effects in the $5d$ transition metal oxides are complex, which can be turned by external fields to induce many novel electromagnetic phenomena and become one of hot topics in condensed matter physics. In this study, the Raman spectroscopy is carried out on single crystals of Sr_2IrO_4 at room temperature. We discover that when pressure reaches 19.6 GPa to 22.2 GPa, a new peak appears at a wavenumber of 199 cm^{-1} in the Raman spectra, accompanied with some anomalous changes of other Raman peaks. This result clearly evidences a structural phase transition occurs, although the existence of the such a transition has been long debated. The structural phase transition is independent of the magnetic phase transition at low temperature, but plays a dominant role in the magnetic ordering transition, owing to the strong spin-orbit coupling. This discovery promises a new way tune electromagnetic properties in the $5d$ Mott insulators and also provides a new idea to design novel functional materials in the future.

Keywords: Mott insulator; iridate; Raman scattering; high pressure