

コヒーレントX線と高輝度中性子の相補的利用による 電子自由度の秩序と揺らぎの研究

The Ordering and the Fluctuation of Electronic Degrees of
Freedom Studied by Coherent X-rays and High Brilliance Neutrons

村上洋一 (Murakami Youichi)
東北大学・大学院理学研究科・教授



研究の概要

放射光と中性子を利用した装置・実験手法の開発・改良を行うことにより、遷移金属酸化物・希土類ホウ化物・スクッテルダイト化合物などの強相関電子系を対象として、その電荷・スピン・軌道自由度の秩序状態とその揺らぎを観測し、系が示す新奇物性発現機構の解明を行った。

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：コヒーレントX線、高輝度中性子、電荷秩序、軌道秩序、スピン秩序

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系において現れる多彩な物性の発現には、電子自由度（電荷・軌道・スピン）が織りなす秩序状態とその揺らぎが、重要な役割を担っている。電子自由度が秩序したモット絶縁体にキャリアをドーピングするときに、超伝導や巨大磁気抵抗効果などの顕著な物性が発現する。ドーピングされたキャリアは電子自由度の秩序状態に乱れを作り、その秩序は動的なものになるが、この十分に乱れた構造の中にも特徴的な電子自由度秩序の空間・時間相関が存在し、物性の本質と深く関連している。

2. 研究の目的

本研究では、遷移金属酸化物・希土類ホウ化物・スクッテルダイト化合物などの強相関電子系を対象として、この強く乱れ揺らいでいる系の中に電子自由度の普遍的な構造を見出すことを目的とした。それにより、強相関電子物性の発現機構解明に新しい局面を切り拓こうとするものである。

3. 研究の方法

この目的を達成するために、放射光と中性子を用いた測定装置・手法の開発を行った。特に、コヒーレントX線とビーム収束機構を最大限に駆使した高輝度中性子を用い、強く乱れた系で出現する電荷・軌道構造を発見し、その空間・時間相関を明らかにすることを試みた。

主な購入設備は、中性子散乱装置の高度化に必要な物品である。

4. 研究の主な成果

4-1. 放射光・中性子実験装置・手法の開発

日本原子力機構と共同研究を行い、コヒーレントX線を利用したスペックル散乱装置の開発に成功した。また、本研究グループが管理運営する3台の中性子散乱装置の高性能化（新制御システム・位置敏感検出器・スーパーミラーの導入）により、測定の高効率化を実現した。

4-2. 遷移金属酸化物の電子自由度秩序

(A) 軌道自由度を持つバナジウム酸化物 RVO_3 ($R=Y, Tb$) を対象として、低温高圧下でのX線・中性子回折実験によって軌道及び磁気秩序構造の圧力依存性を調べた。その結果、本系での軌道・磁気秩序状態の安定性を決定している要因は、バンド幅ではなく、軌道混成効果であることを示した。

(B) 軌道系における希釈効果を実験的・理論的研究により、これが希釈磁性体の性質と本質的に異なることを明らかにした。この現象は希釈により軌道が自発的に変形することに起因することが分かった。

(C) マンガン酸化物の人工超格子 $[(LaMnO_3)_m(SrMnO_3)_n]_n$ の界面における精密結晶構造とMnイオンの価数状態を、共鳴X線散乱を用いて明らかにした。一方、マンガン酸化物薄膜 $Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$ においては、バルクと異なる軌道秩序状態が実現していることを共鳴X線散乱により明らかにした。

(D) 共鳴非弾性X線散乱における散乱断面積を、群論的ならびに微視的立場から理論的に解析することで、軌道励起によるピークを同定する方法を構築した。

〔4. 研究の主な成果 (続き)〕

4-3. 銅酸化物超伝導体の磁性と格子

(A) 電子ドープ系銅酸化物超伝導相の磁気励起を中性子非弾性散乱により調べ、(1)過剰ドープ領域での超伝導転移温度とスピンスティフネス定数との線形関係、(2)ホールドープ系の「砂時計型」磁気励起分散とは異なる「ペンシル型」磁気分散を明らかにした。

(B) ホールドープ系銅酸化物超伝導相の磁気励起において、格子非整合型から格子整合型励起にクロスオーバーするエネルギーがドープ量に比例して増加し、最適ドープ近傍で飽和することを示した。

(C) ホール不足ドープ領域の超伝導に関連するスピンギャップの存在と、ギャップレスな低エネルギー磁気励起の共存を明らかにした。(B)と(C)についてもホールドープ系の磁気励起の二面性を示しており、不足ドープ領域での擬ギャップの起源、あるいは2ギャップ問題の解決に対し重要な情報を与えている。

(D) キャリヤードープされた遷移金属酸化物全般の特徴として、遷移金属・酸素のボンド伸縮フォノンモードのソフト化が従来知られていたが、本研究で高輝度中性子と放射光X線を相補的に利用し、ドープ量依存性を銅酸化物超伝導体について調べた結果、このソフト化の「内部構造」を初めて明らかにした。

4-4. 希土類化合物における多極子秩序

(A) 充填スクッテルダイト $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$ の金属-非金属転移、および La 希釈系あるいは Rh 置換系での相転移の抑制を調べた。結晶場分裂の顕著な温度依存をもつ Pr 4f 電子状態と結晶構造の超格子構造を明瞭に観測した結果と理論模型との対応から、金属-非金属転移は 4f 電子がもつ十六極子の長周期構造の形成に結合した新しいタイプの電荷密度波であることを明らかにした。

(B) 近藤半導体とされる $\text{CeOs}_4\text{Sb}_{12}$ は約 1 K で相転移を示し、さらに磁場中で電気伝導度が上昇する顕著な磁気抵抗現象が指摘され、金属-半導体の臨界領域にある物質として注目されている。中性子回折により 1 K 以下で弱い反強磁気秩序を示すこと、さらに磁場中金属化領域ではこの反強磁気秩序は抑制されることを見いだした。

(C) CeB_6 では、La 希釈によって現れる逐次転移での多極子の種類や対称性が注目されている。本研究で、 $\text{Ce}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{B}_6$ における 1.5 K 以下の IV 相で初めて中性子磁気反射を観測し、磁気八極子の秩序であることを結論した。この結果は、高次多極子の物性への影響が必ずしも小さくないことを実証した点で重要である。

5. 得られた成果の世界・日本における位置づけとインパクト

本研究において確立された放射光・中性子による電子自由度観測手法は、今後の強相関電子系における実験的研究に大きな影響を与えた。これらの手法を使って、様々な強相関物性発現の機構解明を行えることを示した点でインパクトのある研究である。

このような研究グループは国内外でもユニークなものである。本研究を契機に、放射光と中性子の相補的利用による構造物性研究の高度化が進むものと考えられる。

6. 主な発表論文

1. Dual Nature of a Ni Dopant in the Hole-Type $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ Cuprate Superconductor, H. Hiraka, D. Matsumura, Y. Nishihata, J. Mizuki, and K.Yamada, Phys. Rev. Lett. 102, 037002-1-4 (2009).
2. Hidden Quantum Spin-Gap State in the Static Stripe Phase of High-Temperature $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ Superconductors" M. Kofu, S.-H. Lee, M. Fujita, H.-J. Kang, H. Eisaki, and K.Yamada, Phys. Rev. Lett. 102, 047001-1-4 (2009).
3. Dilution effect in correlated electron system with orbital degeneracy, T. Tanaka, and S.Ishihara, Phys. Rev. B 79, 035109-1-11 (2009).
4. Orbital ordering in RVO_3 (R=Y, Tb) controlled by hydrostatic pressure, D. Bizen, K. Nakatsuka, T. Murata, H. Nakao, **Y.Murakami**, S. Miyasaka and Y. Tokura, Phys. Rev. B 78, 224104-1-6(2008).
5. Low-Energy Spin Fluctuations in the Ground States of Electron-Doped $\text{Pr}_{1-x}\text{La}_x\text{Ce}_x\text{CuO}_{4+\delta}$ Cuprate Superconductors, M. Fujita, M. Matsuda, S.-H. Lee, M. Nakagawa, and K.Yamada, Phys. Rev. Lett. 101, 107003-1-4 (2008).
6. Dilution Effects in Two-dimensional Quantum Orbital System, T. Tanaka and S.Ishihara, Phys. Rev. Lett. 98, 256402-1-4 (2007).
Electron-Phonon Coupling Reflecting Dynamic Charge Inhomogeneity in Copper Oxide Superconductors" D. Reznik, K.Yamada, G.D. Gu et al., Nature 440, 1170-1173 (2006).
4. Nobel orbital Ordering Induced by Anisotropic Stress in a Manganite Thin Film, Y. Wakabayashi, D. Bizen, H. Nakao, **Y.Murakami**, M. Nakamura, Y. Ogimoto, K. Miyano, and H. Sawa, Phys. Rev. Lett 96, 017202-1-4 (2006).
7. Ferro-type orbital state in Mott transition system $\text{Ca}_{2-x}\text{Sr}_x\text{RuO}_4$ studied by resonant x-ray scattering interference technique" M. Kubota, **Y.Murakami**, M. Mizumaki, H. Ohsumi, N. Ikeda, S. Nakatsuji, H. Fukazawa and Y. Maeno, Phys. Rev. Lett. 95, 026401-1-4, (2005).

<http://calaf.phys.tohoku.ac.jp/>

<http://www.yamada-lab.imr.tohoku.ac.jp/jp/>