

平成 21 年 5 月 22 日現在

研究種目：基盤研究（S）
 研究期間：2004～2008
 課題番号：16104005
 研究課題名（和文） コヒーレントX線と高輝度中性子の相補利用による
 電子自由度の秩序と揺らぎの研究
 研究課題名（英文） The Ordering and the Fluctuation of Electronic Degrees of Freedom
 Studied by Coherent X-rays and High Brilliance Neutrons
 研究代表者
 村上 洋一（MURAKAMI YOUICHI）
 東北大学・大学院理学研究科・教授
 研究者番号：60190899

研究成果の概要：

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。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2004年度	25,900,000	7,770,000	33,670,000
2005年度	22,400,000	6,720,000	29,120,000
2006年度	19,200,000	5,760,000	24,960,000
2007年度	6,400,000	1,920,000	8,320,000
2008年度	6,400,000	1,920,000	8,320,000
総計	80,300,000	24,090,000	104,390,000

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こと、そして、その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ことはよく知られていた。しかし、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・時間相関が存在するかどうかは、まだ十分には分かっていなかった。

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. 研究成果

(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。

(2) 遷移金属酸化物の電子自由度秩序

①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。

②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。

③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。

④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。

(3) 銅酸化物超伝導体の磁性と格子

①電子ドーピング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)過剰ドーピング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)ホールドーピング系の「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。

②ホールドーピング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ピング量に比例して増加し、最適ドーピング近傍で飽和することを示した。

③ホール不足ドーピング領域の超伝導に関連するスピングャップの存在と、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。②と③についてもホールドーピング系の磁気励起の二面性を示しており、不足ドーピング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。

④キャリアドーピングされた遷移金属酸化物全般の特徴として、遷移金属・酸素のバ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、ドーピング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) 希土類化合物における多極子秩序

①充填スクッテルダイト $PrRu_4P_{12}$ 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性をもつ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。

②近藤半導体とされる $CeOs_4Sb_{12}$ 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。

③ 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、 $Ce_{0.7}La_{0.3}B_6$ 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. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 218 件)

1. Dual Nature of a Ni Dopant in the Hole-Type $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ Cuprate Superconductor, H. Hiraka, D. Matsumura, Y. Nishihata, J. Mizuki, and K. Yamada, Phys. Rev. Lett. 102, 037002-1-4 (2009). 査読有り
2. Hidden Quantum Spin-Gap State in the Static Stripe Phase of High-Temperature $La_{2-x}Sr_xCuO_4$ Superconductors" M. Kofu, S.-H. Lee, M. Fujita, H.-J. Kang, H. Eisaki, and K. Yamada, Phys. Rev. Lett. 102, 047001-1-4 (2009). 査読有り
3. Dilution effect in correlated electron system with orbital degeneracy, T. Tanaka, and S. Ishihara, Phys. Rev. B 79, 035109-1-11 (2009). 査読有り

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. B78, 224104-1-6(2008). 査読有り
5. Low-Energy Spin Fluctuations in the Ground States of Electron-Doped $Pr_{1-x}LaCe_xCuO_{4+\delta}$ Cuprate Superconductors, M. Fujita, M. Matsuda, S.-H. Lee, M. Nakagawa, and K. Yamada, Phys. Rev. Lett. 101, 107003-1-4 (2008). 査読有り
6. Dilution Effects in Two-dimensional Quantum Orbital System, T. Tanaka and S. Ishihara, Phys. Rev. Lett. 98, 256402-1-4 (2007). 査読有り
7. 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). 査読有り
8. 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). 査読有り
9. Ferro-type orbital state in Mott transition system $Ca_{2-x}Sr_xRuO_4$ 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). 査読有り

[学会発表] (計 331 件)

1. Asia Science Seminar on Frontier Science at High-Intensity Proton Accelerators (China, 2008/10/19-25), 「Complementary Use of Synchrotron light, Neutron, and Muon」: (invited). Y. Murakami
2. The Fourth Biennial American Conference on Neutron Scattering, 「What Clarified by Neutron by Neutron Scattering in High-Tc Research」 K. Yamada, May 11-15, 2008, Santa Fe, S.A. (Invited).
3. Internal Conference on Magnetic Materials (Kolkata, India, 2007/12/11-16) 「Orbital ordering and the impurity effect in copper fluoride」: (invited). Y. Murakami
4. International Conference on New Quantum Phenomena in Skutterudite and Related Systems (kobe, 2007/9/26-30) 「Field induced magnetic moment distribution in the ordered phase of $PrFe_4P_{12}$ 」: (invited). K. Iwasa
5. "The 17th International Conference on Magnetism" (ICM) 「Role of Neutron Scattering for High-T_c Research: Present

- and Future,」 K. Yamada, August 20-25, 2006, Kyoto, Japan (Invited).
6. International Conference of Magnetism (kyoto, 2006/8/20-25) 「Mechanism of resonant X-ray scattering to observe the orbital ordering」 (invited) Y. Murakami.
7. 4th International Symposium on Electronic and Atomic Structures (ISEAS-IV) 2005. 11. 10-11 (Tamkang University, Taiwan) (invited), S. Ishihara "Doping Effects on Orbital Order in Correlated Electron Systems".
8. X-ray spectroscopy of Magnetic Solids (XRMS 2005) (Swiss, 2005/10/18-20) 「Orbital ordering in perovskites」 (invited). Y. Murakami.
9. Yukawa International Seminar 2004 (YKIS2004) --- Physics of Strongly Correlated Electron Systems--- (kyouto, 2004/11/5-10) 「Orbital Ordering and Excitation Studied by Resonant X-ray Scattering」: (invited). Y. Murakami

[図書] (計 2 件)

1. "放射光 X線磁気分光と散乱-X線磁気散乱による磁性研究-" 村上洋一, アイシーピー 77-87 (2007).
2. "電荷・軌道秩序系-ペロブスカイト型Mn酸化物-" 村上洋一, 放射光科学入門 (東北大学出版会) 225-230 (2004).

[産業財産権]

○取得状況 (計 1 件)

名称: 中性子回折装置

発明者: 大山研司, 山田和芳, 井澤和幸

権利者: 大山研司, 山田和芳, 井澤和幸

種類: 特願

番号: 2007-301728

取得年月日: 2007年11月21日

国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ

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

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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

村上 洋一 (MURAKAMI YOUICHI)

東北大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号: 60190899

(2) 研究分担者

岩佐 和晃 (IWASA KAZUAKI)

東北大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号: 00275009

石原 純夫 (ISHIHARA SUMIO)

東北大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：30292262

山田和芳 (YAMADA KAZUYOSHI)

東北大学・原子分子材料科学高等研究
機構・教授

研究者番号：70133293

大山研司 (OOYAMA KENJI)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：60241569

松村武 (MATSUMURA TAKESI)

広島大学・大学院先端物質科学研究科・
准教授

研究者番号：00312546