

研究種目： 基盤研究（B）
 研究期間： 2006 ～ 2009
 課題番号： 18340111
 研究課題名（和文） 強相関物質のフェルミ面直接観測法の開発と応用
 研究課題名（英文） Development and Application of Direct Fermi-Surface Mapping Method for Strongly Correlated Materials
 研究代表者
 櫻井 吉晴（SAKURAI YOSHIHARU）
 （財）高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・副主席研究員
 研究者番号：90205815

研究成果の概要（和文）：

次世代デバイス材料として注目されている強相関物質の新奇な超伝導特性や磁性を解明し応用に結びつける上で、フェルミ面の観測は重要である。本研究では、コンプトン散乱を用いた直接的フェルミ面観測法を開発し、新奇な超伝導を示す強相関物質に応用した。具体的には、コバルト酸化物、鉄ヒ素系化合物、銅酸化物に応用し、超伝導発現に係わるフェルミ面形状とホールあるいは電子が占める軌道状態の描画に成功するとともに、新しい物理的知見を得た。

研究成果の概要（英文）：

Fermi surface plays an important role on superconductivity and magnetism in strongly correlated materials which draws attention as next-generation materials for electronic devices. In this study, we have developed the Compton scattering technique as a direct observation method of Fermi surfaces and then applied to novel superconductors. We measured cobaltates, Fe-As materials and cuprates, and succeeded in mapping out the Fermi surfaces and orbitals of carriers (holes or electrons) which play an important role in the occurrence of superconductivity.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	9,600,000	2,880,000	12,480,000
2007年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2008年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2009年度	1,900,000	570,000	2,470,000
年度			
総計	14,800,000	4,440,000	19,240,000

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： 金属物性、構造・機能材料、超伝導材料・素子、物性実験、放射線・X線・粒子線

1. 研究開始当初の背景

低エネルギー励起状態はフェルミ面形状を反映し、基礎と応用の両面で興味深い現象と深く結びついていることが実験と理論の両面で指摘されていた。また、応用の観点から注目される強相関物質は不規則・複雑な系が多く、フェルミ面観測には限られた実験手法や限られた条件下での測定しか適用できず、バルクのフェルミ面形状が明らかにされていないケースが多いという状況であった。

研究代表者のグループは、「コンプトン散乱による強相関物質のフェルミ面マッピング法の開発」を最終目標として掲げて、軽元素系物質からウラン化合物まで含む重元素系物質のコンプトン・プロファイルの測定を可能にするCauchois型X線スペクトロメータをSPring-8のBL08Wビームラインに建設してきた。

本研究の開始当初、同スペクトロメータは115keVの入射X線を用いて、0.15 atomic units (a. u.)の分解能を達成していた。弱相関物質を中心に測定が行われ、不規則・複雑系物質の一つである金属水素化物のフェルミ面マッピングが行われていた。

2. 研究の目的

本研究課題はコンプトン散乱によるフェルミ面マッピング法を強相関物質に応用し、その可能性と限界を探ることを目的としている。具体的には、ネスティングしているホール・ポケットの有無について結論を出すために、コバルト酸化物、 Na_xCoO_2 、 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ のフェルミ面マッピングを主目標として掲げている。さらに、同手法の可能性と限界を見極めるために、他の強相関物質、FeAs系超伝導体、銅酸化物高温超伝導体などの測定も行う。

3. 研究の方法

本研究課題では、目的の達成のために以下のサブテーマを設定している。

- (1) コンプトン散乱スペクトロメータの高度化
- (2) フェルミ面マッピングするためのプログラム開発と最適化
- (3) 強相関、複雑系・不規則系物質への応用

強相関物質ではコンプトン散乱で観測されるフェルミ面のシグナルは小さくなることが予想されるため、(1)と(2)は不可欠である。また、実験データの信頼度を評価するために、誤差伝搬マップの作成も重要になる。

また、同手法の強相関物質への適用可否を判断するために、実験と第1原理バンド理論計算との比較も行う。

4. 研究成果

サブテーマ毎に研究成果を報告する。

- (1) コンプトン散乱スペクトロメータの高度化：

スペクトロメータの高度化は分解能の向上と測定効率の向上の2テーマからなる。

分解能を向上させるために、3連型Si結晶アナライザーを1連型Ge結晶アナライザーに置き換えた。これにより分解能は0.15 a. u. から0.10 a. u.に向上し、フェルミ面形状を与える電子運動量密度分布の1階微分強度のコントラストを約1.5倍にすることができた。

測定効率を向上させるために、X線分光系を新たに1セット立ち上げて、同時に、2つの異なる方位で同一試料からのコンプトン散乱X線の分光が可能になった。これにより、測定時間が半分に短縮された。これにより、銅酸化物高温超伝導体のように重元素を含む物質の2次元フェルミ面マッピングが4日間の測定期間で可能になった。

- (2) フェルミ面マッピングするためのプログラム開発と最適化：

フェルミ面マッピングをするためには、10~20本のコンプトン・プロファイル・データから2次元あるいは3次元の電子運動量密度分布を再構成するプログラムが必要である。再構成プログラムとして、直接フーリエ法を使用していたが、この期間中に、コマック法と最大エントロピー法について検討した。この3つの異なるプログラムは大凡同じ再構成結果を与えるが、フェルミ面形状の詳細な部分に関する比較検討は現在進行中である。

また、再構成した電子運動量密度の信頼範囲を明確にするために、誤差伝搬プログラムを新たに開発した。これは、理論計算で得られたコンプトン・プロファイルにランダム誤差を意図的に含ませ、これらのコンプトン・プロファイルから電子運動量密度分布を再構成することで、誤差マップを評価するものである。図1は、銅酸化物高温超伝導体の場合の誤差マップで、[100]と[110]の間で等間隔に得られた10本の誤差付き理論コンプトン・プロファイルから再構成した場合のものである。原点付近と[100]と[110]の軸上付近で誤差が大きくなっていて、Y. Tanakaらによる誤差マップ評価(方法が異なる)と同

じ傾向になっている。

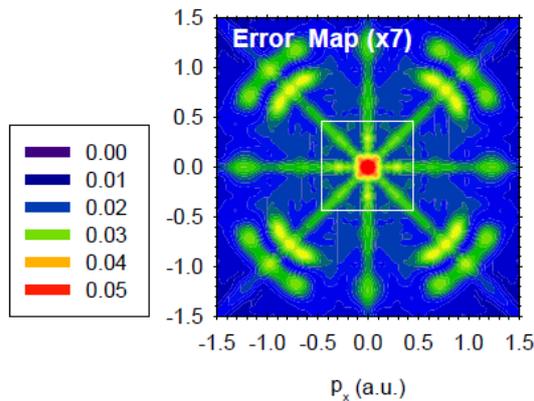


図 1 : 誤差マップ

(3) 強相関、複雑系・不規則系物質への応用 :

本研究期間中に、コバルト酸化物、銅酸化物、鉄ヒ素系の超伝導体に応用した。以下に各物質ごとに結果をまとめる。

コバルト酸化物 :

Na_xCoO_2 , $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ のフェルミ面マッピングが本研究課題の主目標である。

$\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ の超伝導機構に関連して、ネステイングしているホール・ポケットの存在がバンド理論計算から指摘されていたが、角度分解光電子分光実験ではその存在は確認されていなかった。

本実験では、 Na_xCoO_2 ($x=0.74, 0.51, 0.38$) と $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ ($x=0.35, y=1.3$) の試料について 5 本のコンプトン・プロファイルを測定し、コーマック法で再構成して、2次元電子運動量密度を求め、LCW折り畳みにより、 k 空間の電子占有数密度を得た(図 2)。

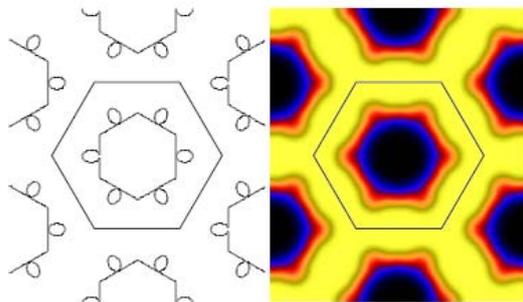


図 2 : Na_xCoO_2 ($x=0.38$) の電子占有数密度 (右) とフェルミ面の配置図 (左)

Na_xCoO_2 の x が小さくなりフェルミ準位が低下するにつれて、図 2 (左) に示した 6 個の小さなホール面の存在を示す構造が現れ、 $x=0.38$ で明確にその存在が確認された(図 2

(右))。また、超伝導になる $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ ($x=0.35, y=1.3$) でも同様の構造が見られ、小さなホールポケットの存在が示唆されている。本結果は、Phys. Rev. B, 76 (2007)052509 に発表した。

銅酸化物 :

ホール・ドープ系と電子ドープ系の銅酸化物高温超伝導体の実験を行った。ホール・ドープ系は $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x=0.0, 0.08, 0.15, 0.30$) (LSCO) の試料、電子ドープ系は $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ($x=0.025, 0.12, 0.20$) (NCCO) である。LSCO において、 $x=0.15$ 以下のアンダー・ドープ領域とそれ以上のオーバー・ドープ領域では、フェルミ面形状とホール占有軌道の両者において違いがあることが示唆され、現在、第一原理バンド計算と分子軌道シミュレーションによる理論的な考察を行っている。NCCO でも電子ドープ量に依存したフェルミ面と電子占有軌道の違いが見られ、現在、理論解析と考察を進めている。

鉄ヒ素系化合物 :

最適ドープの鉄ヒ素系超伝導体 $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$ の実験を行った。図 3 a に実験結果を示す。実験結果は第 1 原理バンド理論計算の結果(図 3 b) と良い一致を示し、 Γ 点にホール面、 X 点に電子面のフェルミ面がある事を示している。また、本実験結果はホール・フェルミ面はワープ形状をしていることを示唆している。本結果は、Phys. Rev. B, 81 (2010)064509 に発表した。

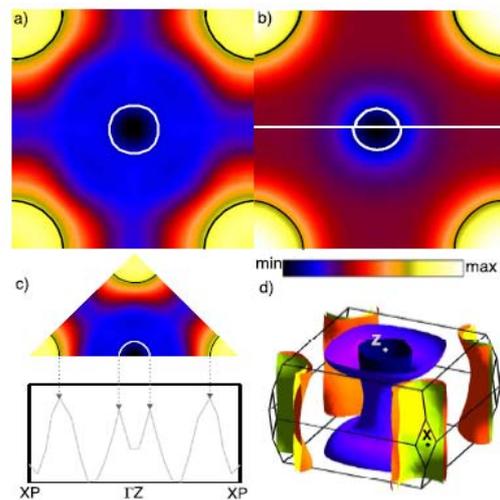


図 3 : $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.93}\text{Co}_{0.07})_2\text{As}_2$ の電子占有数密度、a) 実験、b) 理論。c) は電子占有数密度の 1 階微分でフェルミ面の位置を示す。d) はフェルミ面形状。

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 6 件)

① C. Utfeld, J. Laverock, T.D. Haynes, S.B. Dugdale, J.A. Duffy, M.W. Butchers, J.W. Taylor, S.R. Giblin, J.G. Analytis, J.-H. Chu, I.R. Fisher, M. Itou, and Y. Sakurai, Bulk electronic structure of optimally doped $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, Phys. Rev. B, 査読有, 81 (2010) 064509.

② B. Barbiellini, A. Koizumi, P.E. Mijndarends, W. Al-Sawai, H. Lin, T. Nagao, K. Hirota, M. Itou, Y. Sakurai, and A. Bansil, Role of Oxygen Electrons in the metal-insulator transition in the magnetoresistive oxide $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ probed by Compton scattering, Phys. Rev. Lett., 査読有, 102 (2009) 206402.

③ J. Laverock, S.B. Dugdale, J.A. Duffy, J. Wooldridge, G. Balakrishnan, M.R. Lees, G.-q. Zheng, D. Chen, C.T. Lin, A. Andrejczuk, M. Itou, and Y. Sakurai, Elliptic hole pockets in the Fermi surface of unhydrated and hydrated sodium cobalt oxides, Phys. Rev. B, 査読有, 76 (2007) 052509.

④ Y. Kubo, Y. Sakurai, M. Itou, A. Koizumi, K. Yamaya, and Y. Uwatoko, Electron Momentum Density in the Low-Dimensional Layered System ZrTe_3 , J. Phys. Soc. Jpn, 査読有, 76 (2007) 064711.

[学会発表] (計 11 件)

① Y. Sakurai, Spin and momentum density studies by synchrotron-based Compton scattering, NSRP-18, 2009年11月20日、M.L. Sukhadia Univ., Udaipur, India

② 櫻井吉晴、伊藤真義、山田和芳、P.E. Mijndarends, B. Barbiellini, A. Bansil, $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ におけるk空間電子占有数密度とフェルミ面、日本物理学会 2009年秋季大会、2009年9月26日、熊本大学

③ Y. Sakurai, An Overview of the Latest Spin and Momentum Density Studies on Hard Condensed Matter, SAGAMORE XVI, 2009年8月4日、Santa Fe, USA

④ 櫻井吉晴、伊藤真義、山田和芳、J.-M. Gillet, B. Barbiellini, P.E. Mijndarends, S. Kaprzyk, R.S. Markiewicz, A. Bansil, $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ におけるホール軌道とフェルミ面：コンプトン散乱 IV、日本物理学会第64回年次大会、2009年3月27日、立教大学

⑤ 櫻井吉晴、伊藤真義、山田和芳、J.-M. Gillet, B. Barbiellini, P.E. Mijndarends, S. Kaprzyk, R.S. Markiewicz, A. Bansil, K空間における電子占有数密度とフェルミ・アーキ：コンプトン散乱による $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の研究、第22回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2009年1月11日、東京大学

⑥ Y. Sakurai, Compton Scattering as a Probe of Fermiology and its Application to Ruthenates, Cobaltates and Cuprates, International Workshop on Inelastic Neutron and X-ray Scattering in Strongly Correlated Electron Systems, 2008年10月1日、東北大学

⑦ 櫻井吉晴、伊藤真義、山田和芳、J.-M. Gillet, B. Barbiellini, P.E. Mijndarends, S. Kaprzyk, R.S. Markiewicz, A. Bansil, $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ におけるホール軌道とフェルミ面：コンプトン散乱 III、日本物理学会2008年秋季大会、2008年9月20日、岩手大学

⑧ 櫻井吉晴、伊藤真義、山田和芳、J.-M. Gillet, B. Barbiellini, P.E. Mijndarends, S. Kaprzyk, R.S. Markiewicz, A. Bansil, $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ におけるホール軌道とフェルミ面：コンプトン散乱 II、日本物理学会第63回年次大会、2008年3月24日、近畿大学

⑨ 櫻井吉晴、伊藤真義、J.-M. Gillet, A. Bansil, 山田和芳、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ におけるホール軌道とフェルミ面：コンプトン散乱、日本物理学会第62回年次大会、2007年3月22日、北海道大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

櫻井 吉晴 (SAKURAI YOSHIHARU)
(財)高輝度光科学研究センター・利用研究
促進部門・副主席研究員
研究者番号：90205815

(2) 研究分担者

伊藤 真義 (ITOU MASAYOSHI)
(財)高輝度光科学研究センター・
利用研究促進部門・副主幹研究員
研究者番号：10344392

(3) 連携研究者

小泉 昭久 (KOIZUMI AKIHISA)
兵庫県立大学・物質理学研究科・准教授
研究者番号：00244682
(H18－H19年度：研究分担者)

山口 益弘 (YAMAGUCHI MASUHIRO)
横浜国立大学・工学研究科・教授
研究者番号：10018046
(H18年度のみ)

久保 康則 (KUBO YASUNORI)
日本大学・文理学部・教授
研究者番号：60117497
(H18－H19年度：研究分担者)