

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 6日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22604007

研究課題名（和文） 量子ビームによる高温超伝導体の電荷とスピンの異常励起の研究

研究課題名（英文） Study of anomalous spin and charge excitations in high temperature superconductors by quantum beam

研究代表者

脇本 秀一（WAKIMOTO SHUICHI）

独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・主任研究員

研究者番号：40399415

研究成果の概要（和文）：

銅酸化物で起こる高温超伝導はスピンや電荷の協奏的な現象であり、それらの励起状態の理解が不可欠である。中性子散乱と共鳴X線非弾性散乱という量子ビーム研究手法を駆使し、銅酸化物高温超伝導体における電荷とスピンの励起を観測した。X線測定では金属的な組成領域に普遍的な電荷励起の存在を明らかにし、中性子散乱では金属的組成で見られる磁気相関に遍歴的な電子の寄与があることを明らかにした。

研究成果の概要（英文）：

High temperature superconductivity occurs as a result of cooperation of spin and charges. We performed neutron scattering and resonant inelastic x-ray scattering (RIXS) complementarily to understand excited states of spin and charges in high-Tc cuprates. We clarified a universal charge excitation in metallic regime by RIXS. In addition we clarified itinerant electrons plays an important role in magnetic correlation in metallic regime by neutron.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2011年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2012年度	500,000	150,000	750,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：時限

科研費の分科・細目：量子ビーム科学

キーワード：高温超伝導、中性子散乱、共鳴X線非弾性散乱

## 1. 研究開始当初の背景

銅酸化物高温超伝導体を含む遷移金属酸化物の強相関電子系では、多様な電荷密度波(CDW)およびスピン密度波(SDW)状態が基底状態として現れる。例として、銅酸化物高温超伝導体である  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  (LSCO) や同構造の関連物質で絶縁体の  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_4$  (LSNO) は電荷とスピンのストライプ構造を示し、LSCO

の場合、ストライプの動的揺らぎが超伝導に寄与するとの理論的予想がある。これまでの中性子散乱による磁気励起の研究から、LSCO は「砂時計型」と呼ばれる特殊な分散を示すが、LSNO は通常のスピン波的な分散を示す。なぜ同じストライプ構造でありながら、超伝導体と絶縁体で磁気励起の性質が異なるのかは、超伝導機構解明への重要な問題である

が、金属的な LSCO ではキャリアの mobility を伴うストライプの動的揺らぎが存在し、磁気励起に影響しているのではないかと考えられる。これを検証するにはスピンの励起のみならず、電荷の励起についても研究し、相互の関係を理解すべきである。

## 2. 研究の目的

本研究では、動的ストライプが超伝導に寄与すると考えられている銅酸化物高温超伝導体のうち、LSCO と Bi2212 を用い、放射光施設での共鳴 X 線散乱実験による電荷励起の観測と、定常・パルス中性子施設で中性子散乱による磁気励起の観測という、最先端量子ビーム研究技術を駆使し、「砂時計型」磁気励起と動的ストライプの関係解明を目指す。

## 3. 研究の方法

銅酸化物高温超伝導体で電荷担体であるホールの濃度を変化させた LSCO ( $x=0, 0.08, 0.12, 0.25, 0.30$ ) と、 $\text{Bi}_{1.76}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{0.89}\text{Cu}_{0.6+d}$  (Bi2201)、さらに磁性不純物として Cu の一部を Fe で置換した  $\text{La}_{1.74}\text{Sr}_{0.26}\text{Cu}_{0.99}\text{Fe}_{0.01}\text{O}_4$  (Fe-LSCO) と  $\text{Bi}_{1.75}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.90}\text{Cu}_{0.91}\text{Fe}_{0.09}\text{O}_{6+y}$  (Fe-Bi2201) の単結晶試料について、共鳴 X 線非弾性散乱による電荷励起の観測と、中性子散乱による磁気励起の観測を行った。

共鳴 X 線非弾性散乱は、Cu の 1s 軌道の電子を 4p 軌道へ遷移させる Cu-K 吸収端 (8.993 keV) に入射 X 線のエネルギーを合わせることで、本来非常に小さい電荷励起のシグナルを増幅 (共鳴) させて観測することが可能な手法である。一方、中性子散乱は物質の格子定数に近い波長を持ち、格子振動やスピンの揺らぎなどを観測することに威力を発揮する手法である。これらの手法を相補的に用いた研究を行った。

## 4. 研究成果

### (1) 電荷励起の研究

共鳴 X 線非弾性散乱による電荷励起の研究を LSCO  $x=0.08, 0.125, 0.15, 0.30$ , Bi2201 について行った。これまでの研究から、ストライプ秩序を持つ  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  ( $x=0.125$ ) と  $\text{La}_{1.67}\text{Sr}_{0.33}\text{NiO}_4$  で、ストライプ周期に対応した運動量変化を持つ電荷励起が 1eV 付近に観測され、動的ストライプに由来する可能性が示唆されていた。今回の多くの組成を用いた系統的研究から、この電荷励起はストライプ秩序の有無に関わらず、ホールドーパされた銅酸化物高温超伝導体に普遍的に存在するものであり、ストライプ秩序に直接由来するものではないことが明らかとなった。しかし、電荷秩序系における電荷励起の全貌は全く理解されておらず、この励起の起源についてはまだ解明されていない。X 線非弾性散乱に

よる電荷秩序系の研究を進め、電荷秩序系の電荷励起について理解を深める必要がある。

Cu-K 吸収端より少し高いエネルギー (9.003 keV) の入射 X 線を用いた非弾性散乱では、ホールを過剰に導入した金属的組成 (LSCO  $x=0.30$ , Bi2201) の試料を詳細に調べた。その結果、これらの試料で 4eV 付近までの分散を持つ電荷励起が観測された (図 1)。理論との比較から、この励起はフェルミ面近傍の伝導を担う電子のバンド内励起であり、電荷相関関数によって記述できる励起であると結論することができた。これまでに同様の励起は電子ドーパ系である  $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_4$  で観測されていたが、今回の観測はホールドーパ系で初めての観測例である。両者の励起の分散はほぼ一致しており、電子ドーパ系とホールドーパ系は伝導を担う電荷に依らず同様の電荷相関関数を持ち、電荷の運動が同じように記述できることを明らかにした。

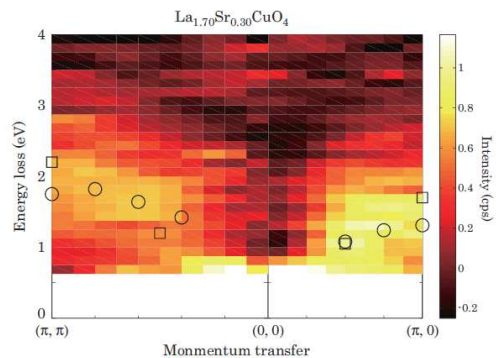


図 1 : LSCO  $x=0.30$  で観測されたバンド内励起。

(2) 過剰ドーパ領域磁性への遍歴電子の寄与  
銅酸化物高温超伝導体に特徴的にみられる砂時計型磁気励起への遍歴電子の寄与を明らかにするために、過剰ドーパ領域のホール濃度を持ち金属的となっている LSCO と Bi2201 の Cu サイトに磁性不純物である Fe を置換した Fe-Bi2201, Fe-LSCO について中性子散乱実験を行った。

LSCO では低ホール濃度領域ではストライプ秩序の結果、格子非整合なスピン密度波ができ、その格子非整合性は 1/8 で飽和することが知られている。一方で、金属的な過剰ホール濃度領域ではスピン密度波は観測されないが Fe を少量置換するだけで格子非整合なスピン密度波が現れ、さらにその格子非整合性は 1/8 を超え、ホール濃度に比例するように見える。Fe 置換により誘起されるスピン密度波の詳細を調べるため、磁場中中性子散乱と、磁場中抵抗測定を行った。

中性子散乱により観測される磁気散乱ピークは、磁場を印可することで緩やかに減少する傾向が見られた (図 2)。また磁場中抵抗

測定では負の磁気抵抗効果が観測された。このような振る舞いは、低ホール濃度側で観測される磁場に強固なストライプ秩序と異なるが、一方で CuMn などの希積磁性金属の振る舞いに近い。このことから、金属的な系に導入された Fe スピンが伝導電子スピンと相関することで格子非整合なスピン密度波を作る RKKY 相互作用を起こしていることが明らかとなった。またその格子非整合性はストライプ構造の場合と異なりフェルミ面のトポロジーにより決まる。この結果は遍歴電子の寄与による格子非整合な磁気相関が起こりうることを示しており、これまで起源が明らかとなっていない砂時計型磁気励起に遍歴電子が寄与していることを明らかにした。

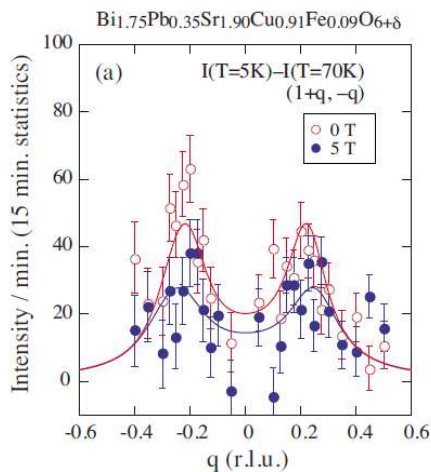


図 2: Fe-Bi2201 の磁気散乱ピークの磁場による減少。

### (3) 今後の展開

上記の結果は銅酸化物高温超伝導において、磁気揺らぎと遍歴電子が密接に関与することを明らかにした。今後の展開として、当初の目的である動的ストライプの直接観測とその磁気励起との関連の研究を進展させる必要がある。そのためには電荷秩序系における電荷励起を明らかにしていく必要がある。これまでは適切な研究手段がなく、未踏の研究領域であるが、X線非弾性散乱技術の発展とともにエネルギー分解能の向上に努め、電荷励起の観測を進めていく。

## 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 26 件)

- ① “Resonant inelastic X-ray scattering study of intra-band excitations in hole-doped high-Tc cuprates”, S. Wakimoto, K. Ishii, H. Kimura, K.

Ikeuchi, M. Yoshida, T. Adachi, D. Casa, M. Fujita, Y. Fukunaga, T. Gog, Y. Koike, J. Mizuki, and K. Yamada, Phys. Rev. B 87, 104511 (2013). 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.87.104511

- ② “Ni-Substitution Effects on the Spin Dynamics and Superconductivity in  $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$ ”, M. Matsuura, M. Fujita, H. Hiraka, M. Kofu, H. Kimura, S. Wakimoto, T. G. Perring, C. D. Frost, and K. Yamada, Phys. Rev. B 86, 134529 (2012). 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.86.134529

- ③ “Bulk Fermi surface and momentum density in heavily doped  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  using high resolution Compton scattering and positron annihilation spectroscopies”, W. Al-Sawai, B. Barbiellini, Y. Sakurai, M. Itou, P. E. Mijnaerends, R. S. Markiewicz, S. Kaprzyk, S. Wakimoto, M. Fujita, S. Basak, H. Lin, Yung Jui Wang, S. W. H. Eijt, H. Schut, K. Yamada, and A. Bansil, Phys. Rev. B 85, 115109 (2012). 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.85.115109

- ④ “Zn-induced spin dynamics in overdoped  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Zn}_y\text{O}_4$ ”, S. D. Wilson, Z. Yamani, C. Dhital, B. Freelon, P. G. Freeman, J. A. Fernandez-Baca, K. Yamada, S. Wakimoto, W. J. L. Buyers, and R. J. Birgeneau, Phys. Rev. B 85, 014507 (2012). 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.85.014507

- ⑤ “Progress in neutron scattering studies of spin excitations in high-Tc cuprates”, M. Fujita, H. Hiraka, M. Matsuda, M. Matsuura, J. M. Tranquada, S. Wakimoto, G. Xu, K. Yamada, J. Phys. Soc. Jpn. 81, 011007 (2012). 査読有.

DOI: 10.1143/JPSJ.81.011007

- ⑥ “ $S^{+-}$  like spin resonance in the iron-based nodal superconductor  $\text{BaFe}_2(\text{As}_{0.65}\text{P}_{0.35})_2$  observed using inelastic neutron scattering”, M. Ishikado, Y. Nagai, K. Kodama, R. Kajimoto, M. Nakamura, Y. Inamura, S. Wakimoto, H. Nakamura, M. Machida, K. Suzuki, H. Usui, K. Kuroki, A. Iyo, H. Eisaki, M. Arai, S. Shamoto, Phys. Rev. B 84, 144517 (2011). 査読有.

DOI: 10.1103/PhysRevB.84.144517

- ⑦ “Imaging of doped holes in a cuprate superconductor with high-resolution Compton scattering”, Y. Sakurai, M.

Itou, B. Barbiellini, P. E. Mijnaerends, R. S. Markiewicz, S. Kaprzyk, J. M. Gillet, S. Wakimoto, M. Fujita, S. Basak, Yung Jui Wang, W. Al-Sawai, H. Lin, A. Bansil, and K. Yamada, Science 332, 698 (2011). 査読有.  
DOI: 10.1126/science.1199391

⑧ “Inelastic neutron scattering study of the resonance mode in the optimally doped pnictide superconductor  $\text{LaFeAsO}_{0.92}\text{F}_{0.08}$ ”, S. Shamoto, M. Ishikado, A. D. Christianson, M. D. Lumsden, S. Wakimoto, K. Kodama, A. Iyo, and M. Arai, Phys. Rev. B 82, 172508 (2010). 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.82.172508

⑨ “Magnetic field effect on Fe-induced short-range magnetic correlation and electrical conductivity in  $\text{Bi}_{1.75}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.90}\text{Cu}_{0.91}\text{Fe}_{0.09}\text{O}_{6+y}$ ”, S. Wakimoto, H. Hiraka, K. Kudo, D. Okamoto, T. Nishizaki, K. Kakurai, Tao Hong, J. M. Tranquada, A. Zheludev, N. Kobayashi, and K. Yamada, Phys. Rev. B 82, 064507 (2010). 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.82.064507

⑩ “Degradation of superconductivity and spin fluctuations by electron over-doping in  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ ”, S. Wakimoto, K. Kodama, M. Ishikado, M. Matsuda, R. Kajimoto, M. Arai, K. Kakurai, F. Esaka, A. Iyo, H. Kito, H. Eisaki, and S. Shamoto, J. Phys. Soc. Jpn. 79 (2010) 074715. 査読有.  
DOI: 10.1143/JPSJ.79.074715

⑪ “Incommensurate spin correlations induced by magnetic Fe ions substituted into overdoped  $\text{Bi}_{1.75}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.90}\text{CuO}_{6+z}$ ”, H. Hiraka, Y. Hayashi, S. Wakimoto, M. Takeda, K. Kakurai, T. Adachi, Y. Koike, I. Yamada, M. Miyazaki, M. Hiraishi, S. Takeshita, A. Kohda, R. Kadono, J. M. Tranquada, and K. Yamada, Phys. Rev. B 81, 144501 (2010). 査読有.  
DOI: 10.1103/PhysRevB.81.144501

[学会発表] (計 18 件)

- ① 脇本秀一「Cu-K 吸収端共鳴 X 線非弾性散乱による  $\text{La}_{2-x}(\text{Sr}, \text{Ba})_x\text{CuO}_4$  の電荷励起の研究」日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 18 日～21 日, 横浜.
- ② S. Wakimoto “Neutron scattering study of spin fluctuation in overdoped superconductor  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ”, International Conference on Phase Separation and Superstripes

(Superstripes 2012), 2012 年 7 月 11 日～17 日, エーリチエ, イタリア. (招待講演)

- ③ S. Wakimoto “Fe-induced short range magnetic correlation in  $\text{Bi}_{1.75}\text{Pb}_{0.35}\text{Sr}_{1.90}\text{Cu}_{0.91}\text{Fe}_{0.09}\text{O}_{6+y}$ ”, 1<sup>st</sup> ASIA-OCEANIA Conference on Neutron Scattering, 2011 年 11 月 20 日～24 日, 筑波.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

脇本 秀一 (WAKIMOTO SHUICHI)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・主任研究員  
研究者番号：40399415

### (2) 研究分担者

該当なし

### (3) 連携研究者

石井 賢司 (ISHII KENJI)  
独立行政法人日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・副主任研究員  
研究者番号：40343933

平賀 晴弘 (HIRAKA HARUHIRO)  
東北大学・金属材料研究所・助教  
研究者番号：90323097