

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 9 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390132

研究課題名(和文)量子ビームによる銅酸化物高温超伝導体のスピン格子相関の研究

研究課題名(英文) Study of spin-lattice interaction in cuprate superconductors using multiple quantum beam techniques

研究代表者

脇本 秀一 (WAKIMOTO, Shuichi)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・量子ビーム応用研究センター・リーダー

研究者番号：40399415

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：銅酸化物高温超伝導体における高エネルギー領域までの磁気励起の全貌を、中性子と放射光X線の複数の量子ビームを用いることで調べ、超伝導に直接は関係せず、スピンの局所的な相互作用を反映する高エネルギー領域と、系の遍歴性を反映する低エネルギー領域の2成分により、磁気励起が理解されることを見出した。また、中性子による低エネルギー領域成分と格子振動を調べた結果、遍歴的な磁気励起は格子振動と相互作用し、磁気励起が増大することを明らかにした。これらの結果は超伝導に如何に磁気励起が関与するかを明らかにする上で重要な情報となる。

研究成果の概要(英文)：We performed neutron and synchrotron X-ray scattering study of high-Tc cuprate superconductors to see entire magnetic excitations. The results shows that the magnetic excitation can be described by two components: one is high-energy dispersing excitation which reflects local interaction between spins, and the other is the low-energy component which reflects the itinerant character of the system. Detailed neutron scattering study of low energy magnetic component and the lattice dynamics, we found that the magnetic excitation strongly enhances at the energy where a certain phonon branch crosses, indicating a possible spin-lattice coupling. These results are important regarding the contribution of magnetic excitation to the superconductivity.

研究分野：固体物性

キーワード：高温超伝導 中性子線 放射光X線

## 1. 研究開始当初の背景

銅酸化物高温超伝導体は d 波超伝導体であり、スピン揺らぎがクーパー対を形成する引力の起源の有力な候補と考えられているが、完全な理解には至っていない。申請者はこれまで  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  を用いた系統的研究により、低濃度領域で超伝導発現と同時にスピン密度波の変調方向が 45 度変化すること [1] や、過剰ドープ領域において、スピン揺らぎが超伝導転移温度に比例して減少すること [2] を発見し、静的・動的なスピンの性質と超伝導は密接に関係することを明らかにしてきた。一方で、高分解能 ARPES 測定に見られる電子の分散関係の約 50meV 付近に現れる kink 構造 [3] がフォノンに由来するとする知見もあり、フォノンの超伝導への寄与も考慮する必要がある。申請者は経験的に中性子散乱においてフォノンとマグノンが交差するエネルギー領域ではマグノンが強められるなど、スピン格子相関が存在することを把握しており、これを通してフォノンが超伝導に影響を及ぼすと考えている。

$\text{La}_2\text{CuO}_4$  は  $\text{K}_2\text{NiF}_4$  型の結晶構造を持ち、ペロブスカイト型に類似の構造を持つ。ペロブスカイト型構造は多くの誘電体に代表されるように八面体にまつわる構造不安定性を持つが、 $\text{La}_2\text{CuO}_4$  も同様に八面体のソフトモードが存在し、Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用を通してスピン系とカップルする [4]。また低濃度のホールドープ領域では、空間反転対称を破るスパイラル磁気構造を持つことが示唆され [5]、逆 DM 相互作用により格子系とカップル可能である [6]。さらに  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の磁気揺らぎスペクトルには 20meV と 50meV に極大を持つ 2 ピーク構造がみられる。これらの近くにはゾーン境界フォノンが存在しており、フォノンとマグノンのカップリングにより、マグノン強度が強められ、超伝導に寄与する可能性がある。

## 2. 研究の目的

本研究では中性子、X 線を相補的に使用して、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の広い組成領域にわたって、静的・動的な格子とスピンの挙動を中性子精密測定により調べ、ホールドープ系における磁気励起の全貌を明らかにするとともに、銅酸化物におけるスピンと格子の協奏的相関を明らかにすることで、格子がスピンを媒体として超伝導に及ぼす影響を調べる。

## 3. 研究の方法

磁気励起の階層性を調べる研究については、LSCO の  $x=0.10$  の単結晶試料約 80g を用い、J-PARC 物質・生命科学実験施設に設置されたチョッパー分光器「四季」において、エネルギー分解能を高めた測定を実施した。この測定においては磁気励起の 2 次元性を反映して c 軸方向に磁気励起が等価であることを利用し、中性子を結晶軸の c 軸に平行に入射することで a-b 面上に磁気励起を投影して測定する手

法を行った。

フォノンとマグノンの協奏的相関を明らかにするための中性子測定として、LSCO の  $x=0, 0.08, 0.30$  および関連物質である  $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{NiO}_4$  (LSNO) の単結晶試料、各々約 50g を用いてフォノンとマグノンの磁気励起を観測し、両者が交わる部分での異常を調べた。測定は同じく「四季」分光器を用いて行った。フォノンと中性子の双方の観測を実施するために、単結晶試料を回転させて運動量-エネルギーの 4 次元空間で中性子散乱強度をマッピングする測定を行った。

## 4. 研究成果

## (1) 磁気励起の全貌解明

LSCO  $x=0.10$  の試料について、精密測定を行った。測定は 5 K と 250 K とで行った。これまで LSCO の磁気励起は「砂時計型」と呼ばれ、低エネルギー部分は内側へ向かって、高エネルギー部分は外側へ向かって分散する励起と考えられてきたが、実験結果から低エネルギー側の incommensurate な励起の q の位置はエネルギーに依存しないことが明らかとなった。

加えて 5 K でのデータについて、低エネルギーの incommensurate 成分、中間エネルギー領域の commensurate 成分、高エネルギー領域のスピン波的分散を持つ成分とで fitting を行い、ピーク位置を評価したところ、磁気励起の全体像は、低エネルギーの incommensurate 成分と、反強磁性ゾーン中心から分散する高エネルギー成分の 2 成分から形成されることが示された。

## (2) フォノンとマグノンの相関

単結晶を回転させて測定する 4 次元中性子強度マッピング手法により、フォノンとマグノンの双方を測定し、両者の結合について調べた。図 1 (a)-(f) は LSCO  $x=0.08$  の 5K のデータについて、L の異なるゾーンごとに示した中性子強度マップである。全ての L において、反強磁性ゾーン中心 ( $\mathbf{K}=0$  の位置) からエネルギー方向へ縦に伸びる磁気散乱強度が観測されており、L が大きくなるほどフォノン強度が強くなっている。フォノンが横切る 15 meV 近傍は磁気散乱強度が増大している。同様の測定を反強磁性体である母物質 LSCO  $x=0$  と過剰ドープ領域で磁気散乱がほぼ消滅している LSCO  $x=0.30$  についても行い、 $x=0$  と  $x=0.08$  のデータを  $x=0$  と  $x=0.08$  のデータから差し引くことで磁気散乱強度を評価し、スピンの動的帯磁率を算出した。結果を図 2 右図に示す。LSCO  $x=0.08$  の 5K のデータではフォノンとの交差が起こる 15meV 付近で帯磁率の増大があるのに対し、反強磁性母物質である  $x=0$  においては増大は見られなかった。また関連物質であり反強磁性体である LSNO においても同様の測定をした結果、フォノンとの交差による帯磁率の増大は見られなかった。以上の結果から、LSCO で観測されるマグノンとフ

フォノンの結合は遍歴性と関係して起こることが示唆された。

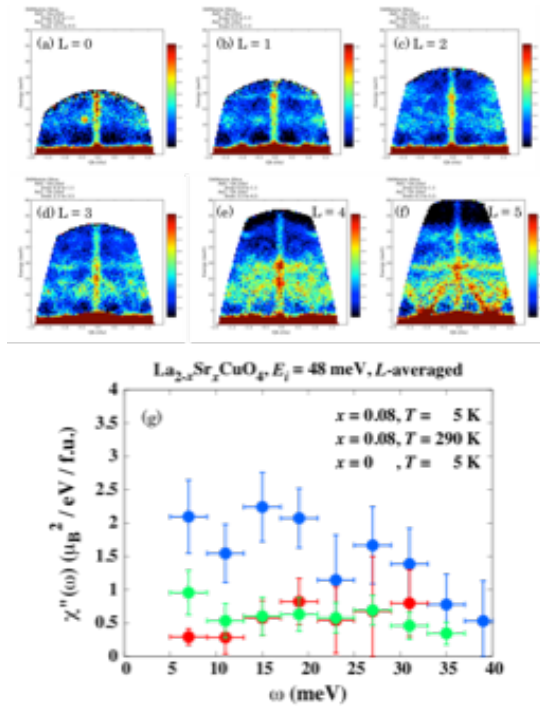


図1 : (a)~(f) LSCO  $x=0.08$  を用いて 4 次元マッピングにより観測した中性子散乱強度の  $L$  依存性。横軸  $K=0$  が反強磁性ゾーン中心に位置し、 $K=0$  で縦に伸びる強度が磁気励起、それと横方向に交わる強度がフォノンである。(g)磁気励起強度のエネルギー依存性。LSCO  $x=0.08$  の 5K のデータでフォノンと交わる 15 meV 付近の強度の増強が見られる。が示唆された。

### (3) まとめ

本研究において、これまで「砂時計型」として理解されてきたホールドーブ型銅酸化物高温超伝導体である LSCO の磁気励起は、反強磁性スピン波的な分散を持ち、局在スピン相関に起源を持つと考えられる高エネルギー成分と、低エネルギー領域のエネルギー依存性のない incommensurate 成分の 2 成分型としてよく理解できることが明らかとなった。低エネルギー成分は系が遍歴的になることによって現れる成分であり、遍歴スピンによる励起であると理解できる。この励起はフォノンとの結合を持つ可能性が示唆された。この結合の起源を明らかにするためには引き続き詳細な解析が必要である。

### 参考文献

- [1] M. Fujita et al., Phys. Rev. B **65**, 064505 (2002).
- [2] S. Wakimoto et al. Phys. Rev. Lett. **98**, 247003 (2007).
- [3] X. J. Zhou et al., Nature **423**, 398 (2003).
- [4] T. Thio et al., Phys. Rev. B **38**, 905 (1988).
- [5] O. P. Sushkov and V. N. Kotov, Phys. Rev. Lett. **94**, 097005 (2005).

- [6] H. Katsura, N. Nagaosa, and A. V. Balatsky, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).

### 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 2 件)

- ① S. Wakimoto, K. Ikeuchi, M. Arai, M. Fujita, R. Kajimoto, S. Kawamura, M. Matsuura, K. Nakajima, and K. Yamada, “Neutron scattering study of spin fluctuations in  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  by four-dimensional mapping of neutron cross-sections using the 4SEASONS chopper spectrometer”, JPS Conference Proceedings 8, 034013-1~6, 2015 年, 査読有. DOI: 10.7566/JSPSC.8.034013
- ② S. Wakimoto, K. Ishii, H. Kimura, M. Fujita, G. Dellea, K. Kummer, L. Braicovich, G. Ghiringhelli, L. M. Debeer-Schmitt, and G. E. Granroth, “High energy magnetic excitations in overdoped  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  studied by neutron and resonant inelastic X-ray scattering”, Physical Review B 91, 184513-1~7, 2015 年, 査読有. DOI: 10.1103/PhysRevB.91.184513

〔学会発表〕 (計 6 件)

- ① S. Wakimoto, “Magnetic excitation of hole-overdoped cuprate studied by RIXS and neutron”, SUPERSTRIPES 2015, 2015 年 6 月 13 日~18 日, Ischia, Italy (招待講演)
- ② 脇本秀二、池内和彦、新井正敏、藤田全基、梶本亮一、河村奨、松浦直人、中島健二、山田和芳、「中性子チョッパー分光器を用いた 4 次元マッピングによる LSCO のマグノン-フォノン結合の探索」、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 21 日~24 日、早稲田大学 (東京都新宿区)
- ③ S. Wakimoto, “Overall magnetic excitation in overdoped  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  studied by complementary use of neutron and X-ray”, The 14<sup>th</sup> Korea-Japan Meeting on Neutron Science, 2015 年 1 月 7 日~9 日、いばらき量子ビーム研究センター (茨城県東海村)
- ④ 脇本秀二、石井賢司、木村宏之、藤田全基、梶本亮一、池内和彦、G. E. Granroth, G. Ghiringhelli, L. Braicovich、「放射光と中性子を用いた過剰ドーブ LSCO の磁気励起の研究」日本物理学会第 69 回年次大会、2014 年 3 月 27 日~30 日、東海大学 (神奈川県平塚市)
- ⑤ S. Wakimoto, “Magnetic excitation in overdoped superconductor  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  studied by inelastic neutron and resonant inelastic x-ray scattering”, Super-PIRE REIMEI Workshop on Frontiers of Condensed Matter Physics,

2014年3月17日～21日，中国科学院物理研究所（中国，北京）（招待講演）

- ⑥ 脇本秀一、石井賢司、木村宏之、藤田全基、梶本亮一、池内和彦、G. E. Granroth, G. Ghiringhelli, L. Braicovich、「中性子と放射光による過剰ドーブ  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  の高エネルギー磁気励起」日本中性子科学会年会、2013年12月12日～13日、ちば県民プラザ（千葉県柏市）

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況（計 件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

脇本 秀一 (WAKIMOTO, Shuichi)  
日本原子力研究開発機構・原子力科学研究  
部門・量子ビーム応用研究センター・リー  
ダー  
研究者番号：40341995

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：