

平成 21 年 5 月 22 日現在

研究種目：特定領域研究
研究期間：2004～2008
課題番号：16076202
研究課題名（和文） 放射光 X 線散乱法による量子物質相の精密結晶構造と電子状態の研究
研究課題名（英文） Study of Precise Crystal Structure and Electronic State of Quantum Materials Phases by Synchrotron X-ray Diffraction
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：

本特定領域で創製された新物質を対象として、最新の放射光 X 線散乱実験技術を駆使してその精密構造を決定し、構造的観点から新物質相の電子状態と量子物性発現機構を明らかにした。特に、放射光強磁場下回折装置を設計・制作し、遷移金属酸化物における電荷・スピン・軌道秩序状態の新奇な磁場応答や、有機導体における幾何学的フラストレーション効果による電荷密度波と電荷秩序の共存状態を発見した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2004 年度	37,100,000	0	37,100,000
2005 年度	9,400,000	0	9,400,000
2006 年度	9,400,000	0	9,400,000
2007 年度	9,400,000	0	9,400,000
2008 年度	9,400,000	0	9,400,000
総計	74,700,000	0	74,700,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：

キーワード：電荷秩序，軌道秩序，共鳴 X 線散乱，遷移金属酸化物，有機導体，放射光

1. 研究開始当初の背景

放射光 X 線の高輝度・エネルギー選択性・偏光特性を用いることにより、他の手法では得ることのできない精密な結晶構造とその電子状態を調べることができる。特に、高圧や強磁場下における精密構造解析には威力を発揮する。これらの実験手法は強相関電子系の一分野においては先駆的な利用が行われたが、物性物理学分野全体において活用されていたわけではない。電荷・軌道秩序状態の解明に重要な役割を果たした放射光実験手法を広く活用しようという機運が高まっ

てきた。

2. 研究の目的

本特定領域で創製される新物質、特に本研究グループで生成される「光物質相」を対象に、最新の放射光 X 線散乱実験技術を駆使してその精密構造を決定し、構造的観点から新物質相の電子状態と量子物性発現機構を明らかにすることが本研究の目的である。

3. 研究の方法

本特定領域内では、新超伝導体・新炭素化

合物・異常磁気伝導物質の創製が行われる。我々は放射光散乱実験によりその精密構造を迅速に決定し、物質合成グループへその情報を伝え、結晶構造上の問題点を提起する。その結果、物質合成の改良が行われる。このフィードバックが領域内では極めて短時間で行われる。これにより新奇物性を持つ物質創製の可能性が格段に高くなると考えられる。一方、光物質相における光誘起相転移の研究では、領域内の物質創製グループと本測定グループが共同で放射光実験を行うことにより、物質系と測定系の有機的協力により、光誘起の新しい物理現象の発見が期待できる。

本研究の特徴は、放射光X線の高輝度・エネルギー選択性・偏光特性を用いることにより、他の手法では得ることのできない精密な結晶構造とその電子状態を調べることができる点である。実験手法は、次のような、精密構造解析を行う弾性X線散乱法と、電子状態を探る非弾性X線散乱法に分かれる。

4. 研究成果

(1) 超伝導磁石二軸回折装置の開発
高エネルギー加速器研究機構 Photon Factory にミニポールアンジュレータの新ビームライン BL-3A を立ち上げ、本特定領域で購入した超伝導磁石二軸回折装置(磁場を 8T まで印加可能)を設置した。このビームラインでは一般的なベンディングマグネットのビームラインの 10 倍の強度が得られ、さらに移相子を導入したことにより、入射X線の偏光特性を制御しながら散乱実験を行うことが可能となった。

(2) 銅フッ化物の軌道秩序における希釈効果: $KCu_xZn_{1-x}F_3$ 系における軌道秩序転移点の Cu 濃度依存性を、放射光粉末X線回折と共鳴X線散乱によりしらべ、温度-Cu 濃度相図を完成した。その結果 $T=0\text{ K}$ において約 $x=0.6$ 付近で軌道秩序が消失することが分かった。この値は 3次元系のパーコレーション濃度とは大きく異なっている。

(3) 共鳴X線散乱による有機電荷秩序系の構造解析: $(DBr-DCNQI)_2Cu$ における Cu イオンの電荷秩序と DCNQI 有機分子の電荷密度波の構造解析を、通常のX線構造解析に共鳴X線散乱を併用することにより行った。その結果、低温構造の空間群はこれまで考えられていたものとは異なること、Cu 電荷秩序と DCNQI 電荷密度波秩序は整合していることの 2 点が明らかになった。

(4) 銅酸化物における共鳴非弾性X線散乱 (RIXS) 実験の理論的解析: $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ の RIXS 実験結果において、Cu-0 面と Cu-0 チェーンからのモットギャップ励起を分離して観測し、その理論的解釈を行った。一方、電子ドープ系である $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_4$ において上部ハ

ードバンド内励起の観測に成功し、その理論的解釈を行った。

(5) 軌道・電荷秩序の制御が可能となった Mn 薄膜: ペロブスカイト酸化物 (011) 基板上に成長させた $(Nd, Pr)_{0.5}Sr_{0.5}MnO_3$ 薄膜の軌道状態を明らかにし、その軌道秩序形成機構について考察した。

(6) フラストレーションを内蔵した希土類硼炭化物: 幾何学的フラストレーションを内蔵した希土類硼化物 HoB_4 において、その多極子構造を決定した。また、この系に特徴的な非常に広い散漫散乱を観測し、これは磁気秩序と軌道秩序の競合により生じていることを明らかにした。

(7) 銅酸化物高温超伝導体の CuO_2 面間の結合は、ドープされたモット絶縁体間の電子のホッピングであり、銅酸化物の物性を決める重要な要素の一つである。その結合の強さが、面間の重なり積分と CuO_2 面内のキャリア濃度の積で決まることを、Gutzwiller 近似を用いて示した。そして、多層系銅酸化物中のキャリア濃度の異なる CuO_2 面間の結合が角度分解光電子分光でどのように観測されるのかを示し、面間のキャリア濃度の違いについて明らかにした。

(8) コバルト酸化物 $LaCoO_3$ や $Sr_3YCo_4O_{10.5}$ において、そのスピン・軌道状態を調べた。前者に関しては、中間スピン状態に伴う軌道秩序の探索を試みたが、実験誤差範囲で観測されなかった。一方、後者の最低温相においては、軌道秩序を伴う中間スピン状態と高スピン状態が交替していることを明らかにした。

(9) 透明磁石やスピンエレクトロニクス材料として近年注目を集めている、遷移金属イオンを含む酸化物等の磁性半導体に関する理論構築を行った。特に、磁性半導体の強磁性発現機構に関する理論構築と、その物性の数値シミュレーション法の開発を行った。

(10) 複数の軌道/スピン秩序の競合するバナジウム酸化物を対象として、圧力下X線回折実験を行った。その結果、加圧ともに系のバンド幅は増大するが、その効果では説明できない軌道/スピン秩序相の変化を観測した。この結果は、加圧により希土類金属イオンの軌道状態が遷移金属イオンの軌道状態に混成してくることにより、無理なく説明されることを提案した。

(11) 遷移金属酸化物は超伝導材料、透明磁石及びスピンエレクトロニクス材料として、重要である。量子モンテカルロ法、動的密度繰り込み群法等の数値計算手法を用いて、磁性と光励起の関係を調べた。これらの物質では電子相関が強いことから、光励起及びその緩和には電子-格子相互作用と電荷-スピン相互作用が複雑にからみ合っていることを明らか

にした。

(12) 擬2次元有機導体 α -(BEDT-TTF)₂I₃ において、水平ストライプ構造の電荷秩序状態が実現していることを示し、その金属絶縁体転移機構を明らかにした。

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 144 件)

1. Wigner Crystallization in (DI-DCNQI)2Ag Detected by Synchrotron Radiation X-Ray Diffraction, T. Kakiuchi, Y. Wakabayashi, H. Sawa, T. Itou, K. Kanoda, Phys. Rev. Lett. 98, 066402-1-4 (2007). 査読有り
2. Supercurrent Pumping in Josephson Junctions with a Half-Metallic Ferromagnet, S. Takahashi, S. Hikino, M. Mori, J. Martinek, S. Maekawa, Phys. Rev. Lett. 99, 057003-1 (2007). 査読有り
3. Nobel Orbital Ordering Induced by Anisotropic Stress in a Manganite Thin Film, Y. Wakabayashi, D. Bizen, H. Nakao, Y. Murakami, et al. Phys. Rev. Lett. 96, 017202-1-4 (2006). 査読有り
4. Distinct spinon and holon dispersions in photoemission spectral functions from one-dimensional SrCuO₂, B. J. Kim, H. Koh, S. Maekawa, Z.-X. Shen, and C. Kim et al. Nature Physics, 2, 397-401 (2006). 査読有り
5. Ferro-type orbital state in Mott transition system Ca_{2-x}Sr_xRuO₄ studied by resonant x-ray scattering interference technique, M. Kubota, H. Nakao, Y. Murakami, Y. Taguchi, M. Iwama, Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. 95, 026401-1-4 (2005). 査読有り
6. Charge-Order Pattern of the Low-Temperature Phase from a Monoclinic Single Domain of NaV₂O₅ Uniquely Determined by Resonant X-ray Scattering, K. Ohwada, Y. Fujii, Y. Katsuki, H. Nakao, Y. Murakami et al. Phys. Rev. Lett. 94, 106401-1-4 (2005). 査読有り
7. Mott gap excitations in twin-free YBa₂Cu₃O_{7-d} (T_c=93K) studied by RIXS, K. Ishii, Y. Murakami et al. Phys. Rev. Lett. 94, 187002-1-4 (2005). 査読有り
8. Superconducting pi Qubit with a Ferromagnetic Josephson Junction, T. Yamashita, S. Maekawa, Phys. Rev. Lett. 95, 0

97001-1-4 (2005). 査読有り

[学会発表] (計 188 件)

1. Geometrical Frustration and Charge Ordering of Molecular Conductor, H. Sawa, The 21st IUCr Satellite Meeting "Molecular Crystals Exhibiting Exotic Functions" 2008年8月22日, Osaka Japan.
2. Tunnel Magnetoresistance, Spin Accumulation, and Spin Hall Effect, S. Maekawa, American Physical Society March Meeting 2008 2008年3月14日アメリカ・ニューオリンズ.
3. Orbital ordering and the impurity effect in copper fluoride, Y. Murakami, Internal Conference on Magnetic Materials, 2007.12.11-16, Kolkata, India.

[図書] (計 5 件)

1. 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、アイピーシー、77-87 (2007) .
2. Andreev reflection at ferromagnet/superconductor interfaces. "Concepts in Spin Electronics", Series on Semiconductor Science and Technology, H. Imamura, S. Maekawa, et al. Oxford University Press 1-416 (2006).
3. Spin injection and spin transport in hybrid nanostructures. "Concepts in Spin Electronics", Series on Semiconductor Science and Technology, S. Takahashi, H. Imamura and S. Maekawa, Oxford University Press, 1-416 (2006).
4. Physics of Transition Metal Oxides, S. Maekawa, T. Tohyama, S. E. Barnes, S. Ishihara, Springer series in Solid State Science 144, 1-331 (2004).
5. 電荷・軌道秩序系-ペロブスカイト型Mn酸化物-放射光科学入門, 村上洋一、東北大学出版 225-230 (2004).

[その他]

ホームページ

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

<http://www.mcr.nuap.nagoya-u.ac.jp/>

<http://www.maekawa-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

澤 博 (SAWA HIROSHI)
名古屋大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号：50215901
前川 禎通 (MAEKAWA SADAMITI)
東北大学・金属材料研究所・教授
研究者番号：60005973