

平成 21 年 5 月 21 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007 ~ 2008

課題番号：19540358

研究課題名 (和文) 高温超伝導体における電荷・スピン密度変調と電気伝導の相関

研究課題名 (英文) Interrelation between charge- and spin-density modulation in high-T_c superconductors

研究代表者

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

研究成果の概要：

銅酸化物高温超伝導体におけるスピン密度変調 (SDM) と電荷密度変調 (CDM) を、不純物効果の側面から、中性子散乱と X 線吸収微細構造分光の組み合わせにより調査した。La_{2-x}Sr_xCuO₄ (LSCO) と Bi₂Sr₂CuO₆ (Bi2201) を用い、ホールと SDM の強い関連、及び、銅酸化物における SDM の共通性を示す結果を得た。また、LSCO と Bi2201 で系による個性はあるものの、動的な CDM が銅酸化物に存在する可能性を示した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2008 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

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：高温超伝導、電荷・スピン密度変調、中性子散乱、XAFS、不純物効果

1. 研究開始当初の背景

銅酸化物超伝導体では、反強磁性モット絶縁体へキャリアドーピングすることにより超伝導が発現する。いわゆる 214 型結晶構造の超伝導体 La_{2-x}Sr_xCuO₄ (LSCO) では、ドーピングされた電荷ホールが低温で空間的に不均一に分布し、ホール濃度の高い電荷領域とホール濃度の低い反強磁性スピン領域を形成することが、中性子散乱研究によって明らかになりつつある。この電荷とスピンの不均一化が酸化物超伝導体において一般的なものか、超伝導にとって本質的なものかが、現在大きな問題の一つである。

2. 研究の目的

銅酸化物高温超伝導体でその存在が明らかになりつつあるスピン密度変調 (SDM) と電荷密度変調 (CDM) について、その一般性と超伝導発現に本質的であることの実験的な証拠の積み上げを目指してきた。具体的には、次の 3 つを目標とした。

(1) SDM が顕著に現れる LSCO を取り上げ、ホール (電荷) が誘起する格子非整合スピン相関の詳細を中性子磁気散乱により明らかにする。

(2) これまで SDM が観測されていない Bi2201

を取り上げ、磁性不純物を置換することで、内在するSDMを明らかにする。

(3)電気抵抗や格子変調を通し、CDMの証拠を見出す。

3. 研究の方法

(1) LSCO

Ni置換LSCO単結晶を合成・利用し、次の実験を行う。

①中性子散乱により格子非整合度とNi置換量の関係を調査する。実験は、日本原子力研究開発機構(JAEA)の研究用原子炉において、三軸型中性子分光器AKANEとTOPANを用いる。

②Ni-K吸収端近傍でのXAFS分光から、Ni周りの局所構造と電荷状態を調べる。実験は、高輝度放射光施設SPring-8のBL14B1ポートにて、直線偏光X線をCuO2面内に平行・垂直に入射し、方向依存性も調査する。

(2) Bi2201

Fe置換Bi2201単結晶を合成・利用し、次の実験を行う。

①SQUID磁束計による磁化率測定。

② μ SR測定から静的磁気秩序の有無を調査。実験は、TRIUMF(カナダ)のM15ビームポートにて、零磁場下でのミュオンスピン偏極度の時間変化を調査する。

③中性子散乱により磁気散乱を探索。実験は、JAEAの研究用原子炉において、三軸型中性子分光器AKANE・TOPAN・LTASを用いる。

④電気抵抗測定。

4. 研究成果

(1) LSCO

①中性子散乱実験から、Ni置換による格子非整合度の減少と散乱強度の増大を観測した(図1)。これはあたかもNiがホールを吸収し、実効的なホール量を減少させていると解釈できた。

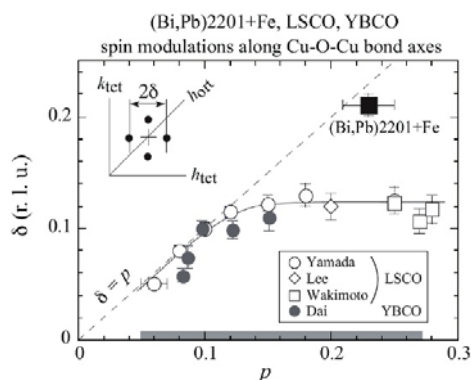


図1. 格子非整合度の実効ホール濃度依存性。

②X線吸収微細構造(XAFS)分光を行い、Ni周りの酸素軌道にホールが捕獲されている

ことを局所構造から明らかにした(図2)。これらの結果を、Niの実効スピンの1/2となり超伝導を強く破壊しないというシナリオに纏め、論文として発表した。これまで磁性不純物の典型物質として考えられてきたNi(Ni^{2+} , $S=1$)であるが、超伝導相においては異なっていた。高温超伝導における磁性不純物効果の再検討を迫る結果であり、超伝導発現機構を考える上で重要な意味をもつ。

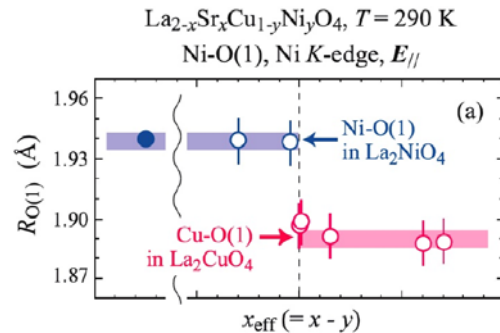


図2. 局所構造の実効ホール濃度変化。

(2) Bi2201

①磁化率測定と μ SR測定から、低温で発達する磁気相関を見出した(図3)。

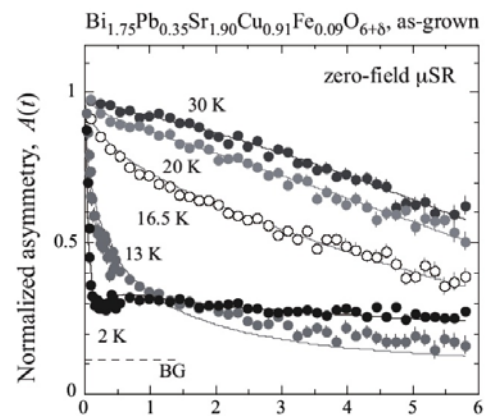


図3. 9%-Fe置換Bi2201における μ SR時間スペクトルの温度変化。

②中性子散乱により、不純物置換系ではあるが、Bi2201系においてはじめて格子非整合な(準)静的磁気散乱を見出すことに成功した(図4)。これにより、SDMの一般性を大きく進展させることができた。驚くべき事に、その格子非整合度は $\delta > 0.2$ と異常に大きく、ホール濃度 p と $p = \delta$ の直線関係にある。これは、動的なCDMがFe置換によりエネルギースケールを落とした結果と見なせる。実際、低温の電気抵抗にはキャリアの局在化が見えており、上の推測を支持する。

③一方、CDMに起因する静的電荷秩序ピーク

及び静的格子変調を X 線散乱と中性子散乱で探査したが、現時点ではいまだ見いだされていない。

④Bi2201 における SDM を評価するため磁場下での輸送・磁気特性を調査したところ、負の磁気抵抗や磁気散乱強度の抑制を見出し、La214 系との相違点も明らかにした。SDM と CDM に関し、一般性と系に依存する個別性との区分けについて、たいへん有意義な情報を得ることができた。

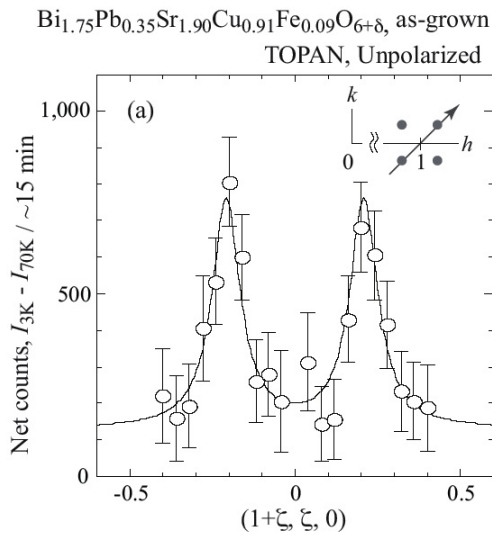


図 4. Fe 置換 Bi2201 で見出した格子非整合磁気ピーク。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 10 件)

- ① H. Hiraka, D. Matsumura, Y. Nishihata, J. Mizuki, K. Yamada, Dual Nature of a Ni Dopant in the Hole-Type $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ Cuprate Superconductor, *Phys. Rev. Lett.*, 査読有, **102** (2009) 037002.
- ② K. Horigane, T. Uchida, H. Hiraka, K. Yamada, J. Akimitsu, Charge and spin ordering in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_4$ ($0.4 < x < 0.6$), *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res. A*, 査読有, **600** (2009) 243.
- ③ K. Inoue, Y. Yamaguchi, H. Hiraka, T. Shishido, H. Maeda, Y. Tsunoda, Neutron Diffraction Study of Martensitic Transformation of Off-Stoichiometric Single-Crystal Ni_2MnGa , *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, **78** (2009) 034602.
- ④ C.-H. Lee, A. Iyo, K. Kihou, H. Kito, H. Hiraka, K. Ohoyama, K. Yamada, Search of Long-Range Magnetic Ordering in Superconducting Five-Layered Cuprate, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, **77** (2008) 073706.
- ⑤ K. Tomiyasu, H. Hiraka, K. Ohoyama, K.

Yamada, Resonance-Like Magnetic Excitations in Spinel Ferrimagnets FeCr_2O_4 and NiCr_2O_4 Observed by Neutron Scattering, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, **77** (2008) 124703.

- ⑥ H. Hiraka, S. Wakimoto, M. Matsuda, D. Matsumura, Y. Nishihata, J. Mizuki, K. Yamada, Ni-impurity effect in high- T_c cuprates studied by neutron scattering and XAFS spectroscopy, *J. Phys. Chem. Solids*, 査読有, **69** (2008) 3136.
- ⑦ M. Matsuda, H. Hiraka, M. Fujita, S. Ohta, S. Wakimoto, K. Yamada, Impurity effect on spin correlations in lightly doped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, *J. Phys. Chem. Solids*, 査読有, **69** (2008) 3181.
- ⑧ D. Okuyama, T. Matsumura, T. Mouri, N. Ishikawa, K. Ohoyama, H. Hiraka, H. Nakao, K. Iwasa, and Y. Murakami, Competition of Magnetic and Quadrupolar Order Parameters in HoB_4 , *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, **77** (2008) 074703.
- ⑨ H. Hiraka, S. Ohta, S. Wakimoto, M. Matsuda, K. Yamada, Ni-Impurity Effects on Incommensurate Spin Correlations in the Superconducting Phase of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ near the Spin-Glass Phase Boundary, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, **76** (2007) 074703.
- ⑩ K. Horigane, H. Hiraka, T. Uchida, K. Yamada, J. Akimitsu, Spin and Charge Orders and Their Hole-Doping Dependence in Single Layered Cobaltate $\text{La}_{2-x}\text{Ca}_x\text{CoO}_4$ ($0.3 \leq x \leq 0.8$), *J. Phys. Soc. Jpn.*, 査読有, **76** (2007) 114715.

〔学会発表〕 (計 9 件)

- ① 三宅悠子、平賀晴弘、山口泰男、大山研司、山田和芳、中性子散乱用 Ge 単結晶モノクロメータの高度化、日本物理学会 年会、2009年3月27日、立教大学。
- ② 堀金和正、平賀晴弘、大山研司、 $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ の超伝導と結晶構造依存性、日本物理学会 年会、2009年3月27日、立教大学。
- ③ H. Hiraka, Y. Miyake, Y. Yamaguchi, K. Ohoyama, K. Yamada, Recent Activities of IMR Neutron Group for Neutron-Monochromator Renovation in JRR-3, 2009 WPI-AIMR Annual Workshop, 2009年3月2-6日、蔵王ロイヤルホテル (宮城県)。
- ④ 平賀晴弘、山口泰男、三宅悠子、大山研司、山田和芳、宍戸統悦、戸澤慎一郎、松浦直人、佐藤卓、廣田和馬、目時直人、松田雅昌、JRR-3装置群でのモノクロメータ高度化への金研の取り組み、日本中性子科学会、2008年12月1-2日、名古屋大学。
- ⑤ H. Hiraka, S. Wakimoto, M. Takeda, K.

Kakurai, K. Yamada, Emergence of magnetic modulations in the overdoped phase of Bi2201 by Fe doping, The 7th International Workshop on Polarized Neutrons in Condensed Matter Investigations, 2008年9月1日, 茨城県東海村.

- ⑥ 平賀晴弘, 山田和芳, 足立匡, 福永泰, 小池洋二, 山田幾也, 宮崎正範, 平石雅俊, 佐藤宏樹, 竹下聡史, 幸田章宏, 門野良典, μ SRによるCuサイト置換Bi2201における磁気秩序の探査, 日本物理学会 年会, 2008年3月24日, 近畿大学 (大阪府)
- ⑦ 平賀晴弘, 松村大樹, 西畑保雄, 水木純一郎, 山田和芳, XAFSで観る高温超伝導体におけるホール局在, 第3回JAEA放射光科学研究シンポジウム, 2008年2月29日, SPRing-8 (兵庫県佐用郡)
- ⑧ 平賀晴弘, 林陽一郎, 山田和芳, Cuサイト置換によるBi2201における磁気相関の探査, 日本物理学会 秋の分科会, 2007年9月22日, 北海道大学
- ⑨ H. Hiraka, S. Wakimoto, M. Matsuda, D. Matsumura, Y. Nishihata, J. Mizuki, K. Yamada, Ni impurity effect in high- T_c cuprates studied by Neutron Scattering and XAFS spectroscopy, Spectroscopies in Novel Superconductors, 2007年8月21日, 仙台国際センター (仙台市).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

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

(2) 研究分担者

松村 大樹 (MATSUMURA DAIJU)
日本原子力研究開発機構・関西光科学研究
所・研究員
研究者番号: 30425566

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

脇本 秀一 (WAKIMOTO SYUICHI)
日本原子力研究開発機構・量子ビーム部
門・副研究主任、
研究者番号: 40399415
工藤 一貴 (KUDOH KAZUTAKA)
東北大学・金属材料研究所・助教
研究者番号: 40361175
佐藤 宇史 (SATO TAKAFUMI)
東北大学・大学院理学研究科・助教、
研究者番号: 10361065

門野 良典 (KADONO RYOSUKE)

高エネルギー加速器研究機構・物質構造
科学研究所・教授

研究者番号: 10194870

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