

機関番号：11301

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20540342

研究課題名 (和文) 新しい高温超伝導体単結晶の合成と中性子散乱による
スピン・格子ダイナミクスの研究研究課題名 (英文) Synthesis of high-Tc superconducting crystal and study of spin and
lattice dynamics by neutron scattering techniques

研究代表者

藤田 全基 (FUJITA MASAKI)

東北大学・金属材料研究所・准教授

研究者番号：20303894

研究成果の概要 (和文)：

高温超伝導は固体物性研究の中で最も魅力的な研究テーマの一つである。その機構の解明を目指し、中性子散乱実験によるスピンや格子の運動を調べた。数々の超伝導体に対する実験結果から、スピンの揺らぎには、少なくとも二種類の素性が異なると考えられる特徴があることが判明した。高温超伝導発現におけるスピン揺らぎの役割を理解するためには、多成分揺らぎの中から共通するスピンの特性を抜き出すことが重要である。

研究成果の概要 (英文)：

High transition temperature superconductivity is one of the most attractive issues in the solid-state physics. In the present study, spin and lattice dynamics were investigated by means of neutron-scattering techniques with the aim of elucidation of high-Tc mechanism. From the results obtained for various superconductors, it was revealed that two types of spin fluctuation exist in the superconducting system. Therefore, to understand the role of spin fluctuations for the high-Tc superconductivity, it is important to extract the universal feature from an entire spin fluctuation spectrum showing a multiple structure.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2009 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2010 年度	400,000	120,000	520,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：高温超伝導，中性子散乱

科研費の分科・細目：物理学，物性 II

キーワード：磁性，超伝導，中性子散乱，単結晶育成

1. 研究開始当初の背景

高温超伝導の機構解明は強相関電子系の中心的な研究テーマである。超伝導は二次元CuO₂面で起こるため、その発現には銅スピン間の反強磁性磁気相関が重要であると考えられるが、一方で、フォノンの役割の重要性を示唆する実験結果が最近相次いで報告されている。そのため、電子対形成の起源が何であるのかという議論が、現在も世界的に継続して行われている。超伝導発現に寄与する相互作用を明らかにするには、広いエネルギー・波数空間での励起状態を調べることが重要であり、これまでに申請者が属する研究グループでは、中性子散乱によってスピンや格子のダイナミクスを調べ、”砂時計型分散”として知られる磁気励起スペクトルや、磁気揺らぎに関する電子・ホール対称性、また、特定のフォノンの異常なソフトニングの発見など、超伝導機構を考える上で重要な実験結果をもたらしてきた。これら研究が成功した背景には、測定精度の向上のみならず、結晶化が困難だと言われていたLa_{2-x}Ba_xCuO₄やPr_{1-x}La_xCe_xCuO₄ (PLCCO)の良質で大きな結晶が、申請者らにより作成されたということがあった。しかし、中性子散乱による系統的研究の対象となる物質は、数々ある超伝導物質の中で、現在でもLa_{2-x}(Sr,Ba)_xCuO₄, YBa₂Cu₃O_{6+δ} (YBCO), 及びPLCCOに限られており、上述の磁気励起や格子振動の特異な状態が超伝導の発現と普遍的に関わることなのか否かなど、解明すべき問題は多く残っている。その要因は、大型結晶の作成が一般的には難しいにも関わらず、現状の中性子散乱実験では多量の試料を必要とするからである。この状況を打開して研究を推し進めるため、対象となる物質群を如何に増やすかということに、現在、世界中の中性子散乱グループが取り組んでいる。

2. 研究の目的

銅酸化物高温超伝導の研究において、スピンや原子の二体相関関数を時間的、空間的に観測できる中性子散乱は、超伝導機構に直結すると考えられるスピンや格子のダイナミクスを知る強力な実験手法である。しかし、測定には少なくとも0.1ccオーダーの単結晶が必要であり、大型結晶の育成の困難さによって中性子散乱による系統的研究が阻まれている。申請者はごく最近、組成傾斜試料を活用した高温超伝導物質の結晶育成を試み、1ccを越えるBi₂Sr_{2-x}La_xCuO_{6+δ}単結晶や、二層物質であるLa_{1-x}(Sr,Ca)_xCaCu₂O_{6+δ}の大型単結晶の作成に相次いで成功した。本研究では、これら新規超伝導物質のスピンやフォノンの

ダイナミクスの特徴を明らかにすることで、個々の物質の特殊性や銅酸化物における普遍的性質を引き出し、超伝導発現機構の解明に貢献することを目的とする。また、この結晶作成法を確立し、超伝導研究の対象となる物質群を増やすことに取り組む。

3. 研究の方法

本研究では、申請者が開発した組成傾斜試料を利用した新たな結晶育成の方法により、これまで中性子散乱実験が行われていない系の単結晶育成を行う。作成できた飼料について系統的（広いエネルギー・運動量範囲、広い組成範囲）な中性子散乱研究を行うことを研究の方法とした。対象とする

Bi₂Sr_{2-x}La_xCuO_{6+δ}は元素置換により広い組成範囲での物性測定が可能な系であるが、これまで系統的な中性子散乱実験は皆無である。従って、これまでに詳細がよく調べられているLa_{2-x}Sr_xCuO₄系の結果との比較により、磁気相関やフォノンの組成依存性、結晶構造に依存しない一般的性質に関する知見が得られる。

また、ARPESやSTM/STS、μSR、NMRなど他の測定手法による研究とも連携し、中性子散乱研究の過程で得られる結果を大局的な立場から総合的に考察する。試料評価や中性子散乱実験の結果は、より高品質の結晶や新しい系の結晶育成にフィードバックする。

4. 研究成果

Bi_{2+x}Sr_{2-x}CuO₆(Bi2201)ホール濃度の異なる試料に対して中性子散乱実験を行い、この系の低エネルギー磁気相関のホール濃度依存性の詳細を明らかにできた。不足ドーピング組成で観測される格子非整合磁気揺らぎの非整合度はドーピングに対してほぼ直線的に変化し、典型的な超伝導であるLa_{2-x}Sr_xCuO₄についてこれまでに報告されている結果と定性的に一致することが判明した。従ってホールドーピング超伝導体では、非整合磁気相関の存在が一般的特徴である可能性が高い。また、希薄ドーピング組成では磁気空間変調の方向が変化していることも見いだした。一方、Bi2201系は電子状態が活発に調べられているが、磁性の研究がこれまでほとんどないために両者の関係が不明であった。今回、高エネルギー中性子散乱実験を行った結果、La_{2-x}Sr_xCuO₄で見られる磁気励起の多重構造はBi2201系では確認できず、同じ単層構造の超伝導体でも磁気励起に違いがあることがわかった。両系で見られる特徴的な低エ

エネルギー励起の組成依存性も含めこれら違いは、磁気励起の多重構造のエネルギー特性が、ドーピングによって局在スピン系から遍歴電子系への特徴に移り変わると考える事でうまく理解できることを指摘した。

電子ドーブ銅酸化物の反強磁性磁気秩序相では、 $\sim 80\text{meV}$ までの磁気励起スペクトルの組成依存性が非常に小さいことも大型結晶を用いた中性子散乱実験でわかった。このことは超伝導相の低エネルギー領域で見られる顕著な組成依存性とは定性的に異なっており、電子ドーブによる磁気相関の変化に量子臨界点が存在する可能性がある。また、新奇超伝導体である $\text{Fe}(\text{Se}_{1-x}\text{Te}_x)$ 系の結晶育成を海外グループとの共同のもとで行い、良質の結晶を得ることに成功している。この系に対する磁気相関の研究も進めており、電子軌道との相関を示唆する異常な異方的磁気揺らぎを観測することもできた。

また、電子ドーブ型銅酸化物 $\text{Pr}_{1.4-x}\text{La}_{0.6}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ では、電子ドーブされた反強磁性磁気秩序相の励起スペクトルは、ドーピングが進んだ領域でもスピン波分散に似た特徴を持つことを示した。超伝導相では特異な形状の磁気励起スペクトルが観測されているので、この結果は磁気秩序相と超伝導相の相境界で高エネルギー励起に劇的な変化が生じることを示唆している。

さらに、J-PARC に設置されたチョッパー型分光器で、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の純良大型単結晶を用いた中性子非弾性散乱実験を行い、日本国内では初めて銅酸化物高温超伝導体における 100meV までの高エネルギー磁気励起を捉えることに成功した。傾斜組成育成法を活用した単結晶育成では、 T' 構造単層ホールドーブ系 $(\text{Pr},\text{Nd})_{2-x}\text{Ca}_x\text{CuO}_4$ 、三次元金属銅酸化物 $\text{La}_{8-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_8\text{O}_{20}$ など、大型結晶の作成が困難とされていた系について 1cc を越える結晶の作成にも成功し、低温での長距離磁気秩序の存在を中性子散乱実験で明らかにできた。

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 14 件)

① R-H He, X J Zhou, M Hashimoto, T Yoshida, K Tanaka, S-K Mo, T Sasagawa, N Mannella, W Meevasana, H Yao, M Fujita, T Adachi, S Komiya, S Uchida, Y Ando, F Zhou, Z X Zhao, A Fujimori, Y Koike, K Yamada, Z Hussain, Z-X Shen,

“Doping dependence of the (π, π) shadow band in La-based cuprates studied by angle-resolved photoemission spectroscopy”
New J. Phys. (査読有り) **13** 013031 (2011).

② N. Katayama, S. Ji, D. Louca, S.-H. Lee, M. Fujita, T. J. Sato, J. S. Wen, Z. J. Xu, G. D. Gu, G. Xu, Z. W. Lin, M. Enoki, S. Chang, K. Yamada and J. M. Tranquada,
“Investigation of the spin-glass regime between the antiferromagnetic and superconducting phases in $\text{Fe}_{1+y}\text{Se}_x\text{Te}_{1-x}$ ”,
J. Phys. Soc. Jpn. (査読有り) **79**, 113702/1-113702/4 (2011).

③ K. Segawa, M. Kofu, S.-H. Lee, I. Tsukada, H. Hiraka, M. Fujita, S. Chang, K. Yamada and Y. Ando
“Zero-doping state and electron-hole asymmetry in an ambipolar cuprate”
Nature Physics (査読有り) **6**, 579-583 (2010).

④ S.-H. Lee, Guangyong Xu, W. Ku, J. S. Wen, C. C. Lee, N. Katayama, Z. J. Xu, S. Ji, Z. W. Lin, G. D. Gu, H.-B. Yang, P. D. Johnson, Z.-H. Pan, T. Valla, M. Fujita, T. J. Sato, S. Chang, K. Yamada, and J. M. Tranquada,
“Coupling of spin and orbital excitations in the iron-based superconductor $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$ ”,
Phys. Rev. B (査読有り) **81**, 220502 (2010)

⑤ S. Iikubo, M. Fujita, S. Niitaka, and H. Takagi,
“Antiferromagnetic fluctuations in $\text{Fe}(\text{Se}_{1-x}\text{Te}_x)_{0.92}$ ($x=0.75, 1$) observed by inelastic neutron scattering”,
J. Phys. Soc. Jpn., (査読有り) **78** 103704/1-103704/4 (2009).

⑥ S. Wakimoto, H. Kimura, K. Ishii, K. Ikeuchi, T. Adachi, M. Fujita, K. Kakurai, Y. Koike, J. Mizuki, Y. Noda, K. Yamada, A.H. Said, Yu. Shvyd'ko
“Charge Excitations in the Stripe-Ordered $\text{La}_{5/3}\text{Sr}_{1/3}\text{NiO}_4$ and $\text{La}_{2-x}(\text{Ba},\text{Sr})_x\text{CuO}_4$ Superconducting Compounds”,
Phys. Rev. Lett. (査読有り) **102**, 157001/1-157001/4 (2009)

⑦ Tadashi Adachi, Hidetaka Sato, Masaki Fujita, Kazuyoshi Yamada, Yoji Koike
“Enhancement of Electronic Anomalies in Iron-Substituted $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_4$ ”,
J. Phys. Soc. Jpn. (査読有り) **78**, 025002/1-025002/2 (2009)

⑧ Rui-Hua He, Kiyohisa Tanaka, Sung-Kwan Mo, Takao Sasagawa, Masaki Fujita, Tadashi Adachi, Norman Mannella, Kazuyoshi Yamada, Yoji Koike, Zahid Hussain, Zhi-Xun Shen
“Energy gap in the failed high-Tc superconductor

La_{1.875}Ba_{0.125}CuO₄”,
Nature Phys. (査読有り) **5**, 119-123 (2009)

⑨M. Kofu, S.-H. Lee, M. Fujita, H.-J. Kang, H. Eisaki, K. Yamada
“Hidden Quantum Spin-Gap State in the Static Stripe Phase of High-Temperature La_{2-x}Sr_xCuO₄ Superconductors”,
Phys. Rev. Lett. (査読有り) **102**, 2009, 047001/1-047001/4

[学会発表] (計 42 件)

①M. Fujita, “Spin excitations in the electron-doped cuprate”, The International Workshop on Neutron Applications on Strongly Correlated Electron Systems 2011, 2011/2/24, Tokai, Ibaraki

②M. Fujita, “Neutron scattering study of novel spin excitations in high-Tc cuprate”, 9th Asia Pacific Workshop on Materials Physics, 2010/12/14, Hanoi, Vietnam

③藤田全基, 榎木勝徳, 飯久保智, 山田和芳, “Fe 置換効果を通して見た LSCO の不足・過剰ドーブ組成における磁気揺らぎの特徴”, 日本物理学会 2010/9/26, 大阪府立大学

④藤田全基, 中島 健次, 梶本 亮一, 新井正敏, 稲村泰弘, 河村聖子, 中村充孝, 今里 拓朗, 山田和芳, 脇本 秀一 “J-PARC チョップアップ型分光器による La_{1.5}Sr_{0.5}NiO₄ の磁気励起の観測”, 日本物理学会 2010/9/23, 大阪府立大学

⑤藤田全基, “高輝度中性子ビームの活用による高温超伝導体のスピンドイナミクス研究の新展開”, 日本物理学会 2010/3/22, 岡山大学

⑥藤田全基, 榎木勝徳, 飯久保智, 山田和芳, “LSCO の不足・過剰ドーブ組成の静的磁気相関に対する Fe 置換効果”, 日本物理学会, 2009/9/27, 熊本大学

⑦藤田全基, 榎木勝徳, 飯久保智, 山田和芳, C. D. Frost, “パルス中性子散乱による Bi2201 超伝導体の高エネルギー磁気励起の研究”, 日本物理学会, 2009/9/27, 熊本大学

⑧M. Fujita, “Incommensurate spin correlations in single-layered high-Tc cuprates La_{2-x}Sr_xCuO₄ and (Bi,Pb)_{2+x}(Sr,La)_{2-x}CuO_{6+δ}”, International workshop on physics of transition metal based superconductors, 2009.6.26, Sendai

⑨ M. Fujita, “Incommensurate spin correlations in

single-layered high-Tc cuprates La_{2-x}Sr_xCuO₄ and (Bi,Pb)_{2+x}(Sr,La)_{2-x}CuO_{6+δ}”, Workshop on physics of transition metal based superconductors, 2009/6/9, 東北大学

⑩M. Fujita, M. Enoki, S. Iikubo, K. Yamada, “Static Spin Correlation hidden behind the superconductivity in La_{2-x}Sr_xCuO₄”, Gordon conference, 2009/6/9, Kong Kong

⑪飯久保智, 藤田全基, 新高誠司, 高木英典, “新規鉄系超伝導体 Fe(Se_{1-x}Te_x)_y の中性子散乱”, 日本物理学会, 2009/3/30, 立教大学

⑫藤田全基, 飯久保智, 松田 雅昌, 長壁 豊隆, 山内 宏樹, 新高 誠司, 高木 英典, “圧力下中性子散乱による FeTe_{0.92} の構造相転移と磁気秩序の研究”, 日本物理学会, 2009/3/30, 立教大学

⑬M. Fujita, “Neutron-scattering studies on frustrated spin systems”, Institute of Materials Structure Science Symposium '08, 2008/10/17, Tsukuba

⑭榎木勝徳, 藤田全基, 山田和芳, “中性子散乱による Bi2201 の超伝導相における磁気相関の研究”, 日本物理学会, 2008/9/20, 岩手大学

⑮藤田全基, 榎木勝徳, 飯久保智, 山田和芳, “La_{2-x}Sr_xCuO₄ の広い組成領域における磁気相関に対する Fe 置換効果の研究”, 日本物理学会, 2008/9/20, 岩手大学

⑯M. Fujita, M. Enoki, M. Matsuda, K. Kudo, T. Nishizaki, N. Kobayashi, K. Yamada, “Neutron-scattering study of impurity effect on stripe correlation in La-based 214 high-Tc cuprate”, The International Conference on Quantum Phenomena in Complex Matter of the series on Stripes and High-Tc Superconductivity, 2008/7/29, Erice, Italy

[図書] (計 2 件)

①山田和芳, 富安啓輔, 藤田全基, 中性子散乱分光による磁性体研究の現状と将来, 固体物理 (アグネ出版センター), **525** 巻 11 号, 777-785, (2009).

②梶本亮一, 中村充孝, 稲村泰弘, 水野文夫, 横尾哲也, 中谷健, 新井正敏, 藤田全基, 動き出した J-PARC 中性子非弾性散乱装置「四季」-中性子非弾性散乱実験の新規手法の実証-, 固体物理(アグネ出版センター), **528** 巻 2 号, 79-89, (2010).

[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0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

<http://www.yamada-lab.imr.tohoku.ac.jp/jp/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤田 全基 (FUJITA MASAKI)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号：20303894

研究者番号：

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：