

平成 26 年 6 月 6 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2010～2013

課題番号：22340086

研究課題名(和文) 軟X線を用いた低次元強相関系における量子ドメインの直接生成

研究課題名(英文) Study of domain in strongly correlated system by resonant x-ray scattering

研究代表者

久保田 正人 (KUBOTA, Masato)

独立行政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・研究副主幹

研究者番号：10370074

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 15,400,000円、(間接経費) 4,620,000円

研究成果の概要(和文)：相転移近傍に位置する系では、ドメインの振る舞いが物性に大きな影響を及ぼすことが理論的に示唆されている。強相関電子系遷移金属酸化物材料においては、多くの相互作用が競合・共存する自己組織化したドメイン相の設計・制御が重要である。また、有機分子材料においては、ドメイン構造や配向が変化しやすく、多様で複雑な自己組織化構造が生じやすい。これらを踏まえ、本研究では、電子状態やドメイン構造に関する研究を実施した。

研究成果の概要(英文)：Near a phase boundary, it is theoretically expected that domain behaviors play an important role in physical properties. In strongly correlated electron systems, the design and control of competing or coexisting domains accompanied with multi-degree of freedom is significant. In organic samples, it is likely that the structure and orientation for domains changes, which causes various complicated self-organized structures. Considering these things, we studied electronic and domain structures to obtain local properties and domain information.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性工

キーワード：相構造

1. 研究開始当初の背景

相転移近傍に位置する系では、ドメインの振る舞いが物性に大きな影響を及ぼすことが理論的に示唆されている。このようなドメインの物性は、ヤンテラー歪みなどの格子ひずみの大きさとドメインの遍歴性の大きさを考慮する必要がある。特に、格子の影響が比較的小さい場合には、理論的には裸の電子よりも大きな分散（バンド幅）を持つという特異な物性が発現することが予想される。

強相関電子系において、競合するクラスター(秩序)相の形成に注目が集まっている。例えば、巨大磁気抵抗効果では、強磁性金属状態と電荷秩序状態が競合していることや、ランダムポテンシャルが系に存在していることが、本質的に重要であることが指摘され、競合に伴う大きな揺らぎが外場応答を大きくする要因であると考えられている。また、銅酸化物高温超伝導体においても、電荷が空間的に不均一に分布している舞台上で超伝導が出現することが知られている。

このような事象は、強相関電子系に限らず、リラクサー強誘電体などの他の物理現象においても数多く報告され、広く物性物理において局所的な電子状態と共に、クラスター・ドメイン相の理解が重要となってきたことを意味する。

2. 研究の目的

強相関電子系遷移金属酸化物材料においては、多くの相互作用が競合・共存する自己組織化したドメイン相の設計・制御が重要である。また、有機分子材料においては、ドメイン構造や配向が変化しやすく、多様で複雑な自己組織化構造が生じやすい。

この様に多くの機能性材料において、局所的な構造とドメイン構造の同時理解が重要である。すなわち、ミクロ的にある元素サイトの物性を解明することと同時に、マクロ的

にドメイン構造の解明も行うことが重要である。

3. 研究の方法

放射光のエネルギー可変性を用いることにより、材料内の主要元素サイトに関する電子状態を捉えることができる。また、回折・散乱法によりドメインの大きさや相関の様子を捉えられる。局所的な情報とドメイン情報を同時に得るために、放射光共鳴散乱法を活用した。

4. 研究成果

本研究では、強相関酸化物材料と有機高分子材料において、電子状態やドメイン構造に関する研究を実施した。

強相関電子系低次元鉄酸化物材料；

LuFe₂O₄ の強誘電性を理解する上で c 軸方向に働く 2 つの相互作用の競合を理解することが重要である。そのためには、積層の仕方に関して、詳細な知見を得ることが欠かせない。今回、多くの縮重した電荷状態にあると考えられる LuFe₂O₄ のドメインの物性を捉えるために、電流を印加して電荷秩序状態がどのような影響を受けるかについて調べた。電流駆動により、電子相関を持ったドメイン分布の様子が変化し、非線形的な振る舞いを示すことが明らかになった。これは、鉄イオンの平均価数が Fe^{2.5+}であり、Fe²⁺と Fe³⁺ サイトが同数存在するために、電荷のフラストレーションが内在していることに特徴的な振舞いであると考えられる。

有機高分子材料；

有機分子材料においては、分子間相互作用が比較的弱いためにドメイン構造や配向が変化しやすい。従って、有機太陽電池のバルクヘテロ層では、自己組織的なナノ構造を形成していて、その構造が太陽電池特性と深

い相関を持つ可能性がある。2成分有機分子凝集系の有機太陽電池薄膜で見られる自己組織化ドメインの大きさや配向の様子などを捉え、ドメイン構造が電池特性機能に果たす役割に関する研究を行った。

ドナー材料 (P3HT) とアクセプター材料と (PCBM) の溶媒の種類を変えて、スピニング法によりガラス基板上に作製した有機太陽電池薄膜試料を用いた。サンプル作製過程で異なる溶媒を用いることにより、乾燥スピードを調整した。クロロホルム溶媒と 1,2-ジクロロベンゼン溶媒による有機太陽電池薄膜の放射光実験を行った。

その結果、クロロホルム溶媒サンプルの回折プロファイルは、線幅が広く、しかも、低角側で観測された。このことは、ユニットセルは大きい、溶媒が速乾のためにドメイン成長が十分でないことを意味している。一方、クロロホルム溶媒サンプルの回折プロファイルは、線幅が狭く、有機分子の直線方向の秩序化が発達し、 π スタッキング構造が強まっていることが明らかになった。

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 12 件)

1)

Yuichi Yamasaki, Takaaki Sudayama, Jun Okamoto, Hironori Nakao, Masato Kubota, and Youichi Murakami,

" Diffraction for small angle resonant soft x-ray scattering under magnetic field " J. Phys.: Conf. Ser. 425 132012 (2013), 査読有

doi:10.1088/1742-6596/425/13/132012

2)

Seisuke Nigo, Masato Kubota, Yoshitomo Harada, Taisei Hirayama, Seiichi Kato,

Hideaki Kitazawa, and Giyuu Kido,

" Conduction band caused by oxygen vacancies in aluminum oxide for resistance random access memory "

J. Appl. Phys. 112, 033711 (2012), 査読有
10.1063/1.4745048

3)

I. Nishi, M. Ishikado, S. Ideta, W. Malaeb, T. Yoshida, A. Fujimori, Y. Kotani, M. Kubota, K. Ono, M. Yi, D. H. Lu, R. Moore, Z.-X. Shen, A. Iyo, K. Kihou, H. Kito, H. Eisaki, S. Shamoto, and R. Arita:

" Angle-resolved photoemission spectroscopy study of PrFeAs_{0.7} : Comparison with LaFePO " Phys. Rev. B 84. ;014504-1;014504-5 (2011), 査読有
10.1103/PhysRevB.84.014504

4)

T. Yoshida, I. Nishi, S. Ideta, A. Fujimori, M. Kubota, K. Ono, S. Kasahara, T. Shibauchi, T. Terashima, Y. Matsuda, H. Ikeda, and R. Arita:

" Two-dimensional and three-dimensional Fermi surfaces of superconducting BaFe₂As_{1-x}P_x and their nesting properties revealed by angle-resolved photoemission spectroscopy " Phys. Rev. Lett. 106. ;117001-1 117001-4; (2011), 査読有
10.1103/PhysRevLett.106.117001

5)

M. M. Islam, A. Yamada, T. Sakurai, M. Kubota, S. Ishizuka, K. Matsubara, S. Niki, and K. Akimoto:

" Cu-dependent phase transition in polycrystalline CuGaSe₂ thin films grown by three-stage process " JOURNAL OF APPLIED PHYSICS 110. 014903-1 014903-5 (2011), 査読有
10.1063/1.3603022

6)

J Okamoto, K Horigane, H Nakao, K Amemiya, M. Kubota, Y Murakami, and K Yamada:

" Resonant soft X-ray magnetic scattering study of magnetic structures in La_{1.5}Ca_{0.5}Co₄ " Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena 184. 224-226 (2011), 査読有
10.1016/j.elspec.2010.12.037

- 7)
T. Sakurai, T. Ohashi, H. Kitazume,
M. Kubota, T. Suemasu:
"Structural control of organic solar
cells based on nonplanar
metallophthalocyanine/C60
heterojunctions using organic buffer
layers"
Organic Electronics 12. 966-973 (2011),
査読有 10.1016/j.orgel.2011.03.016
- 8)
Iwano: "Incoherence induced by phonon
excitations in domain-growth dynamics :
Role of the domain center-of-gravity
motion" Phys.Rev.B 84. 235139-(1-5)
(2011), 査読有
10.1103/PhysRevB.84.235139
- 9)
S. Ideta, K. Takashima, M. Hashimoto, T.
Yoshida, A. Fujimori, H. Anzai, T. Fujita,
Y. Nakashima, A. Ino, M. Arita, H. Namatame,
M. Taniguchi, K. Ono, M. Kubota, D. H. Lu,
Z.-X. Shen, K. M. Kojima, and S. Uchida:

"Enhanced superconducting gaps in the
tri-layer high-Tc cuprate
Bi2Sr2Ca2Cu3O10" Phys.Rev.Lett. 104.
227001 (2010), 査読有
10.1103/PhysRevLett.104.227001
- 10)
Takeaki SAKURAI, Toshihiro YAMANARI,
Masato KUBOTA,
Susumu TOYOSHIMA, Tetsuya TAIMA, Yuji
YOSHIDA, Katsuhiko AKIMOTO:

"Comparative Study on Structural
Properties of Poly(3-hexylthiophene) and
Poly(3-hexylthiophene) : 6,6-Phenyl-C61
Butyric Acid Methyl Ester Thin Films Using
Synchrotron X-ray Diffraction" Japanese
Journal of Applied Physics 49. 01AC01
(2010), 査読有
10.1143/JJAP.49.01AC01
- 11)
K. Iwano, et al.: "Propagating Libtrations
in Ice XI : Model Analysis and Coherent
Inelastic Neutron Scattering"
J. Phys. Soc. Jpn. 79. 063601 (2010), 査読
有 dx.doi.org/10.1143/JPSJ.79.063601
- 12)
K. Iwano, Y. Shimoi: "Strong Electron
Correlation in the High-Temperature Phase
of (EDO-TTF)_2PF_6 as a
Quasi-One-Dimensional Molecular
Conductor"

- J. Phys. Soc. Jpn. 79. 103705 (2010), 査読有
dx.doi.org/10.1143/JPSJ.79.103705
- [学会発表] (計 17 件)
- 1)
久保田正人: "軟 X 線共鳴散乱による有機太
陽電池薄膜の研究" 応用物理学会
(20140317-20140320). 神奈川
- 2)
久保田正人: "J-PARC 偏極中性子反射率計に
よる磁性薄膜・多層膜の磁気構造解析の展開"
三機関連携量子複雑現象チーム研究会.
(20120123-20120124). 神奈川
- 3)
久保田正人: "J-PARC 偏極中性子反射率計(写
楽)の現状と多層膜研究の展開" 応用物理学
会. (20120315-20120318). 東京(招待講演)
- 4)
久保田正人: "軟 X 線共鳴散乱によるマンガ
ン酸化物超格子薄膜の磁性研究" 応用物理
学会. (20120315-20120318). 東京
- 5)
久保田正人: "軟 X 線共鳴散乱によるマンガ
ン酸化物超格子薄膜の磁性研究" 物理学会.
(20120324-20120327). 兵庫
- 6)
岩野 薫・下位 幸弘: "Development of
First-Principles Optical Properties of
Solids : Photoinduced Phase Transition in
(EDO-TTF) 2PF6" 4-th International
Conference on Photoinduced Phase
Transitions and Cooperative Phenomena
(PIPT4). (20110629). ポーランド、Wroclaw
University of Technology
- 7)
渡辺 秀治・下位 幸弘・岩野 薫:
"Electronic structure and charge ordering
in α -(BEDT-TTF)2I3 by DFT calculations"
物構研シンポジウム'11 量子ビーム科学の展
望-ERL サイエンスと強相関電子構造物性-.
(20111206). 茨城
- 8)
渡辺 秀治・下位 幸弘・岩野 薫:
"密度汎関数法による α (BEDT-TTF)2I3 の電
荷秩序状態に関する理論的研究" 日本物理
学会. (20120324-20120327). 兵庫
- 9)
岩野 薫: "Incoherence Given by Phonon
Scattering in the Domain Growth Dynamics
Expected for Quasi-One-Dimensional
Photoinduced Phase Transition Systems :

Role of the Center of Gravity Motion" 4-th International Conference on Photoinduced Phase Transitions and Cooperative Phenomena (PIPT4). (20110629). ポーランド、Wroclaw University of Technology

10)

久保田正人: "軟 X 線共鳴散乱を用いたマンガ氧化物超格子薄膜の磁性の研究" 放射光学会. (20110107-20110110). つくばエポカル

11)

久保田正人: "軟 X 線共鳴散乱を用いたマンガ氧化物超格子薄膜の研究" 日本物理学会. (20100923-20100926). 大阪府立大学

12)

Kubota Masato: "Study of charge/orbital state in layered perovskite manganite Nd_{2-x}SrxMnO₄ by resonant X-ray scattering" VUV-X2010. (20100711-20100716). バンクーバー(カナダ)

13)

岩野薫: "光誘起相転移: 第一原理計算とモデル計算" 固体光誘起状態の非平衡ダイナミクス理論とその今後の展望」研究会. (20110216). つくば

14)

村上洋一・岩野薫: "物質構造研究におけるスパコン利用-これまでの成果と展望" KEK 大型シミュレーション研究シンポジウム. (20110131). つくば

15)

K. Iwano: "Domain excitation as a novel type of electron excitation : Manifestations in ARPES and IXS" VUV-X2010. (20100711-20100716). バンクーバー(カナダ)

16)

岩野薫: "Exploration of Solid-State Optical Properties by First-Principles Calculations-Toward the Photoinduced Phase Transition of EDO-TTF-" ICSM2010. (20100704-20100709). 京都

17)

岩野薫: "1次元ドメイン成長過程におけるフォノン散乱の効果" 日本物理学会秋季大会. (20100923-20100926). 大阪

[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 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

6. 研究組織

(1) 研究代表者

久保田正人 (KUBOTA Masato)
独立行政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
研究副主幹
研究者番号: 10370074

(2) 研究分担者

岩野薫 (IWANO Kaoru)
大学共同利用機関法人
高エネルギー加速器研究機構
物質構造科学研究所
研究機関講師
研究者番号: 10211765