

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 17 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2010～2013

課題番号：22540404

研究課題名(和文)空間反転対称性が局所的に破れた物質群が示すガラス的物性の起源と機構

研究課題名(英文)Origin and mechanisms emerging glass-like properties in local-symmetry broken materials

研究代表者

中山 恒義(Nakayama, Tsuneyoshi)

北海道大学・・・名誉教授

研究者番号：80002236

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円、(間接経費) 990,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、空間反転対称性が局所的に破れた物質群が示すガラス的物性の起源と機構を理論的に解明に向けて、4年計画のもとで研究を遂行したものである。最初の2年間において、空間反転対称性が局所的に破れた物質群が何故構造ガラスと同じような諸性質を示すのかについて、その背後にある物理的起源を研究した。局所的な非線形ポテンシャルならびにイオン間の長距離相互作用の重要性を、実験結果との比較において検討した。さらに後半の2年間において、空間反転対称性の破れに伴いテラヘルツ(THz)振動数領域で発現する新規なモードの分散曲線を計算したことにより、コヒーレント非弾性散乱中性子散乱の実験との比較が可能になった。

研究成果の概要(英文)：This 4 years research project aims to theoretically elucidate the origin and mechanisms of glass-like behaviors observed for local-symmetry broken materials. In the first 2 years, we investigated the microscopic origin emerging glass-like properties in these materials. We introduced long-range interactions between symmetry-broken ions in addition to local anharmonic potential. The importance of these interactions to explain glass-like behaviors became clear. In the latter 2 years, we calculated phonon dispersion relations in the THz frequency range for local symmetry broken materials. It became possible to compare it with the experimental results in terms of coherent inelastic neutron scattering for local-symmetry broken materials.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・数理物理学・物性基礎論

キーワード：不規則系 対称性の破れ 構造ガラス

1. 研究開始当初の背景

結晶であるにもかかわらず、構造ガラスと同じ熱的・動的な物理的性質を示す物質群が注目を集めていた。これらは空間反転対称性が局所的に破れた物質群などである。この特異な性質の発現には「イオン配置の対称性が局所的に破れている」ことが重要という認識はあったものの、そのメカニズムについては確立されたものがなかった。このような状況背景のもとで、上記の物質群に関する研究は世界各国で活発になされていた。しかしながら、実験研究の著しい展開とは裏腹に、これらの特異な物性発現の物理的機構解明に関する研究は、現象論の段階でさえほとんど進展が見られず、多くの基本的問題が解決されずに残されていた。結晶の構造をとるこれらの物質群が、何故構造ガラスと同じような物性を示すか？についての物理的起源に関する研究は手つかずの状況であった。

2. 研究の目的

本研究は、これらの物質群に対して、ガラス的物性発現の起源と機構の解明に向けて、関連する物理現象の理論的予言、そしてその実験検証を構成メンバーとともにに行い、それらの成果をもとに背後に秘められている物理的メカニズムに対する一般理論の構築を行うことが目的である。これらの物質群に関する研究遂行により、非平衡状態の構造ガラスのTHz領域のダイナミクスに対する研究にも、異なった切り口から貢献できるものである。前半の2年間において、空間反転対称性が局所的に破れたこれらの物質群が何故構造ガラスと同じような諸性質を示すのかについて、その背後にある物理的起源の解明に向け、空間反転対称性の破れの元となるイオンに注目し、イオン間の長距離相互作用を考慮することにより熱的・動的物理量を計算し、その妥当性を実験結果との比較において検討する。さらに、後半の2年間において、空間反転対称性が破れたイオンに対する非

線形ポテンシャルの重要性の直接的な検証に資する新規な実験を提案する。空間反転対称性の破れに伴いTHz振動数領域で発現する新規なモードが、これまで構造ガラスで観測されてきたボソン・ピークに対応することを一般的立場から実証する。

3. 研究の方法

本研究では、空間反転対称性が局所的に破れた物質群が示すガラス的物性の起源と機構を明らかにするために、研究代表者と分担者計2名により、理論・実験両面から、4年計画のもとで研究を遂行する。従来、空間反転対称性が局所的に破れた物質群が特異な物性に関する研究において、イオン間の相互作用の効果は考慮されることはなかった。しかし、イオンがもしそれぞれ独立に運動するなら、イオン達は擬似的な気体(ガス)を構成し対称性が高い状態をとることになり、ガラス的な物性を示すことはありえないと予測される。しかし実験事実は全く違う結果を示す。それは何に起因するかについて、イオンの空間反転対称性が破れることによりダイポール・モーメントが誘起され、互いに強く相互作用する、との見方から研究する。また、対称性の破れにより誘起されるイオン近傍の弾性歪を通した相互作用も重要である。これらのアイデアを発展させて、諸物理量の計算を遂行し実験結果と理論計算を照らし合わせ、その理論の妥当性を検討する。

局所的に空間反転対称性が破れた状態にある物質群は、構造ガラスと全く同じ熱伝導の温度依存性を示す。結晶なのにこのようなガラスのような振る舞いをするという奇妙な実験結果は、イオンに由来する。これを、上記に述べた対称性の破れに伴い発現する新規モードが重要な役割を担っているという立場から研究する。

4. 研究成果

最初の2年間において、空間反転対称性が局所的に破れたこれらの物質群が、何故構造ガラスと同じような諸性質を示すのかについて、その背後にある物理的起源の解明に向け、空間反転対称性の破れの元となるイオンに注目し、イオン間の長距離相互作用を考慮することにより比熱・熱伝導度などの熱的物理量を計算した。さらに、後半の2年間において、イオンに対する非線形ポテンシャルの重要性を検証した。空間反転対称性の破れに伴いTHz振動数領域で発現する新規なモードが、これまで構造ガラスで観測されてきたボソン・ピークに対応する、ことを一般的立場から提唱した。本研究プロジェクトは、構造ガラスにおいてTHz振動数領域で普遍的に観測されるボソン・ピークの起源に関する研究にも、別の切り口から寄与する。

空間反転対称性が局所的に破れた物質群に対する研究においては、構造ガラスの場合と同様に、今後放射光(SOR)や中性子散乱を利用した実験は大変有効である。特に、東海村の大強度陽子加速器施設(J-PARC)付属のSpallation型の中性子実験施設の2009年度の完成により、世界最高の分解能を有するコヒーレント中性子散乱実験が可能になり、これまで得られなかったmeV以下の低エネルギー領域での分光実験が大きく飛躍することになった。これによりmeV程度およびそれ以下のエネルギー領域で、対称性の破れに伴い発現する新規モードの波数空間に関する動的構造因子 $S(q, \omega)$ の観測を通じ当該プロジェクトの成果の検証が可能になり、今後の展開が期待される。

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. K. Sugimoto, Z. Li, E. Kaneshita, et al., Spin dynamics and resonant inelastic x-ray scattering in chromium with

spin-density wave order, Physical Review B, Vol. 87, No. 13, (2013) 134418-pp.1-6. (査読有)

2. K. Sugimoto, T. Tohyama, E. Kaneshita, K. Tsutsui, Optical conductivity of antiferromagnetic metallic chromium: Mean-field calculation for the multi-orbital Hubbard model, J. Korean Phys. Soc. 63, pp.632-635 (2013) [4pp.] (査読有)

3. T. Nakayama and E. Kaneshita, Emergence of glass-like THz frequency libration modes in type-I clathrates: Theory, Journal of Physics and Chemistry of Solids, Vol. 73, (2012) pp.1518-1520. (査読有)

4. S. Itoh, T. Nakayama and M. A. Adams, Two-dimensional antiferromagnetic fractons in Rb_2MnO_5 , Journal of Physics: Conference Series Vol. 400, (2012)032030-pp.1-3. (査読有)

5. T. Nomura; E. Kaneshita, Analysis of resonant inelastic X-ray scattering in stripe-ordered nickelate, Journal of the Physical Society of Japan, Vol. 81, (2012) 024707-pp.1-6. (査読有)

6. 兼下英司, 遠山貴己, 鉄系超伝導体の磁気秩序状態における電子励起の軌道特性, 固体物理 Vol.47, (2012) pp.401-409. (査読有)

7. T. Nakayama and E. Kaneshita, Significance of off-center rattling for emerging low-lying THz modes in Type-I clathrates, Journal of the Physical Society of Japan, Vol. 80, (2011) 104604-pp.1-7. (査読有)

8. S. Itoh, T. Nakayama, and M. A. Mark, Antiferromagnetic fractons in dilute Heisenberg system $\text{RbMn}_{0.4}\text{Mg}_{0.6}\text{F}_3$ and $\text{RbMn}_{0.4}\text{Mg}_{0.6}\text{F}_3\text{S}$, Journal of the Physical Society of Japan, Vol. 80 (2011) 104704-pp.1-7. (査読有)

9. E. Kaneshita, K. Tsutsui, and T. Tohyama, Spin and orbital characters of excitations in iron arsenide superconductors revealed by simulated resonant inelastic x-ray scattering, Physical Review B 84 (2011), 020511(R)-pp.1-5. (査読有)

10. K. Sugimoto, E. Kaneshita, and T. Tohyama, Origin of in-plane anisotropy in optical conductivity for antiferromagnetic metallic phase of iron pnictides, Journal of the Physical Society of Japan. Vol. 80 (2011) 033706-pp.1-4. (査読有)

11. 伊藤晋一, 中山恒義, パーコレーション磁性体における反強磁性フラクトン, Neutron Science, vol.21 (2011)

- pp.234-238. (in Japanese). (査読有)
12. T. Nakayama, E. Kaneshita, Glass-like behaviors of clathrate compounds as thermoelectric materials, 豊田理化学研究所研究報告書 Vol.63, (2010) pp.63-69. (査読無)
 13. E. Kaneshita, T. Tohyama, Spin and charge dynamics ruled by antiferromagnetic order in iron-pnictide superconductors, Physical Review B Vol. 82 (2010) 033706-pp.1-6. (査読有)
 14. T. Morinari, E. Kaneshita, and T. Tohyama, Topological and transport properties of Dirac fermions antiferromagnetic metallic phase of iron-based superconductor, Physical Review Letters Vol.105(2010), 03720-pp.1-4. (査読有)

[学会発表](計 16件)

1. T. Nakayama
Type-I clathrate compounds as phonon-glass thermoelectric materials, 7th International Discussion meeting on relaxations in complex systems, Universitat Politècnica de Catalunya, Barcelona, Spain, July 22, 2013.
2. T. Nakayama,
Complex disordered systems; from quantum glasses till thermoelectric clathrates, Martin Gutzwiller Fellowship Award Lecture, Max-Planck Institute for the Physics of Complex Systems, Germany, Dresden, May 29, 2013. <招待講演>
3. T. Nakayama,
Disorder guest ions in order cages and efficient thermoelectric materials, Disorder in Order (A meeting honoring the scientific achievements of S R Elliott), Cambridge, England, September 20, 2012. <招待講演>
4. T. Nakayama, E. Kaneshita,
Plateau thermal conductivities in thermoelectric clathrates: Interplay with low-lying optical modes, New Science created by Materials with Nano Spaces: From Fundamentals to Applications, Sendai, November 23, 2011.
5. E. Kaneshita, K. Tsutsui, T. Tohyama,
Spin and Orbital Characters of Excitations in Iron Arsenides Revealed by Simulated Fe L-Edge RIXS, International Conference of New Science Created by Materials with Nano-Spaces, November 26, 2011, Sendai, Japan
6. S. Itoh, T. Nakayama, and M. A. Adams,
Two-dimensional Antiferromagnetic Fractons in $\text{Rb}_2\text{Mn}_{0.598}\text{Mg}_{0.402}\text{F}_4$, 26th International LT26Conference on Low Temperature Physics, Beijing, PR China, August 30, 2011
7. T. Nakayama and E. Kaneshita,
Emergence of glass-like THz frequency libration modes in type-I clathrates: Theory, 16th International Conference on Intercalation Compounds, Sec-Ustupky, Czech Republic, May 15, 2011
8. E. Kaneshita and T. Tohyama
Spin excitations in antiferromagnetic metallic phase of iron pnictides analyzed with a five-band itinerant model, American Physical Society, March Meeting. March 23, 2011, Dallas Convention Center, Dallas, USA
9. 中山恒義 兼下英司
熱電変換物質クラスレートが示すガラス的性質の起源, ガラス物理研究会, 2010年11月29日, 東京大学物性研究所, 柏
10. T. Nakayama
Symmetry-broken clathrates as thermoelectric materials: Why glass-like though crystalline?, Rensselaer Polytechnic Institute, NY, USA, October 10, 2010,
11. 兼下英司, 筒井健二, 遠山貴己
鉄砒素系超伝導体の磁気秩序状態における電荷・磁気励起, 日本物理学会 2010年 秋季大会、2010年9月26日 大阪府立大学
12. Eiji Kaneshita, et al.
Charge and spin excitations in iron pnictides, ICC-IMR workshop: Recent Progress on Spectroscopies and High-Tc Superconductors, 2010年8月9日 東北大学
13. 中山恒義 兼下英司
オフセンター内包イオン間の長距離相互作用が誘起するカゴ状クラスレートの特異な物性, 特定領域研究「配列ナノ空間を利用した新物質科学 ユビキタス元素戦略」第6回領域会議、2010年5月28日 名古屋大学
14. 中山恒義
内包化合物クラスレートの理論的諸問題, J-PARC 中性子非弾性散乱プロジェクト検討会、日本原子力研究開発機構 2010年5月20日、東海村、茨城県
15. 中山恒義
内包化合物クラスレートにおけるテラヘルツ・モードの発現とヒッグス機構, 豊田理化学研究所研究発表会、豊田理化学研究所、名古屋、2010年5月11日
16. 中山恒義 兼下英司
内包クラスレートが示す特異なTHzダイナミックスの起源, 特定領域研究「配列ナノ空間を利用した新物質科学 ユビキタス元素戦略」, 第7回領域会議、2011年1月6-8日 大阪大学、豊中

〔図書〕(計 3 件)

1. 中山恒義, 電磁気学 I, 丸善出版株式会社(2012), pp.1-170.
2. 中山恒義, 電磁気学 II, 丸善出版株式会社(2012), pp.1-175.
3. H. Shima, T. Nakayama, Higher Mathematics for Physics and Engineering, Springer-Verlag, ISBN978-3-540-87863-6, (2010), pp.1-723.

〔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

中山 恒義 (NAKAYAMA TSUNEYOSHI)
北海道大学・ - ・名誉教授
研究者番号：80002236

(2)研究分担者

兼下 英司 (EIJI KANESHITA)
仙台高等専門学校・総合科学系・准教授
研究者番号：60548212

(3)連携研究者

新井 正敏 (ARAI MASATOSHI)
日本原子力開発機構・J-PARC センター物質
生命科学デビジョン・研究主席
研究者番号：30175955