

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年6月4日現在

機関番号：12601
 研究種目：研究活動スタート支援
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23840010
 研究課題名（和文） 軌道秩序系における軌道秩序ドメイン壁励起の観測とそのダイナミクス解明
 研究課題名（英文） The dynamics of orbital-ordering domain wall in orbital ordered systems
 研究代表者
 藤岡 淳 (FUJIOKA JUN)
 東京大学・大学院工学系研究科・助教
 研究者番号：80609488

研究成果の概要（和文）：

軌道秩序が生じる強相関絶縁体において、軌道秩序分域(ドメイン)壁を電場で駆動し、そのダイナミクスを明らかにした。具体的には、 K_2NiF_4 型の構造を持つ層状 Mn 酸化物、ペロブスカイト型 V 酸化物を対象とし、0.1-100MHz に渡る広帯域の誘電スペクトルによって軌道秩序のドメイン壁に起源を持つ新規な励起構造を観測した。特に V 酸化物の場合にはこれが磁気秩序とも強く結合している可能性を示唆する結果を得た。

研究成果の概要（英文）：

We have studied the domain wall (DW) dynamics of orbital order for the correlated electron systems. Specifically, we investigated the broad-band dielectric spectra for the layered Mn-oxides with K_2NiF_4 structure and perovskite-type vanadates and identified the novel excitation associated with the motion of domain wall. For perovskite vanadates, the anisotropic dielectric dispersion is observed despite of the nearly isotropic crystal structure, indicating that the DW dynamics reflects the 1D-nature of the orbital exchange interaction coupled to the magnetic ordering.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	1,800,000	540,000	2340,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物性Ⅱ

キーワード：物性実験、強相関電子系、強相関エレクトロニクス、低温物性、軌道秩序

1. 研究開始当初の背景

遷移金属酸化物では強い電子相関によって電子の遍歴性と局在性が拮抗しており、電子の内部自由度である電荷・スピン・軌道自由度が顕在化する。これらの自由度の内、軌道自由度とその整列現象(軌道秩序)は超巨大磁気抵抗効果の発見を契機に、多くの研究者

の関心を集めていた。ここでいう軌道自由度とは縮退した軌道を電子が占有する際の選択性を指し、いわば波動関数(電子雲)の方向性あるいは形状の自由度である。軌道秩序状態においては等方的な結晶構造を持つ系であっても異方的な電子状態が生み出され、多様な磁性、電気伝導性、誘電性が発現する起

源となる。

軌道秩序状態では軌道の対称性が破れている事に由来する特徴的な現象が生じる。その一つとして軌道秩序のドメイン形成が挙げられる。これは軌道秩序相においてはマクロに結晶の対称性が低下する事に起因しており、いくつかの軌道秩序系では多様なドメイン構造が生じる事が知られている。ドメイン構造の自己組織化は凝縮系物理学における基礎科学的なテーマのひとつであるだけでなく、外場によってこれを制御できれば強相関エレクトロニクスの観点からも興味深い。

しかし研究開始当時には軌道秩序ドメイン壁の結晶格子およびスピン自由度との相互作用や外場に対する応答についての報告例はなく、その物性研究は未開拓の分野であった。

2. 研究の目的

軌道秩序のドメイン壁励起を観測し、格子・スピン自由度との結合および外場を印加した非平衡状態での振る舞いを明らかにすることで、その機能性を開拓する事を目指す

3. 研究の方法

軌道秩序のドメイン壁は分数電荷を持ったソリトン様の振る舞いをし、電荷ギャップよりも小さいエネルギースケールに励起構造を持つ事が理論計算で指摘されている。この分数電荷を外部電場で駆動できれば、その励起構造は有限周波数における誘電分散、電気伝導度の異常として観測できると予測される。そこで、0.1Hz-100MHz に渡る広帯域の誘電スペクトルを測定し、軌道秩序相におけるドメイン壁励起を観測することを試みた。

K_2NiF_4 型層状 Mn 酸化物 $R_{1-x}A_{1+x}MnO_4$ (R: 希土類イオン, A: アルカリ土類イオン) において 0.1Hz-100MHz に渡る広帯域の誘電スペクトルを測定し、軌道秩序相におけるドメイン壁励起の観測を行う。特に、ドメイン壁励起と格子歪みの相互作用に着目する。また、高電場印加によってドメイン壁をスライディング状態にし、そこでの電流-電圧測定及び雑音測定によって非平衡状態におけるダイナミクスを解明する。また、ペロブスカイト型 V 酸化物 RVO_3 において誘電スペクトルを測定し、ドメイン壁励起の観測を行う。この系ではドメイン壁励起とスピン秩序の結合状態を明らかにする。特に V3d スピンの状態だけでなく V3d-希土類 4f モーメントの相互作用にも着目する。また、高電場印加時の測定を行うことで、非平衡状態におけるドメインダイナミクスを解明する。

4. 研究成果

(1) 電荷・軌道結合系における軌道秩序ド

イン壁励起

$R_{1-x}A_{1+x}MnO_4$ (R: 希土類イオン, A: アルカリ土類イオン) において 0.1Hz-100MHz に渡る広帯域の誘電スペクトルを測定し、軌道秩序ドメインのドメイン壁励起の観測を試みた。具体的にはまず $Nd_{1-x}Sr_{1+x}MnO_4$ ($x=0.67$) の単結晶を合成し、0.1-100MHz の周波数領域における誘電スペクトルを測定した。単結晶作成に当たっては所属研究室で既に稼働している赤外線加熱単結晶作製装置を使用し、広帯域の誘電分散の測定には、所属研究室現有の誘電率測定装置群を使用した。0.1-100Hz, 100Hz-1MHz, 1MHz-100MHz の帯域でそれぞれ低周波インピーダンス測定システム、LCR メーター、高周波インピーダンスアナライザーを使用した。

実験の結果、ab 面内の誘電率スペクトルが 175K-100K の温度領域で緩和型の分散を示す事がわかった(図 1)。この分散の起源として電荷・軌道密度波のドメイン境界の励起が考えられる。分散構造の中心周波数は 200K 以上で 1GHz 以上となり、電荷・軌道密度波の転移温度(約 260K)での振る舞いを現有の高周波インピーダンスアナライザーで追跡することができなかった。転移温度付近での振る舞いを見るためには転移温度が低い系を合成して測定をする必要がある。

次に、秩序相における電流雑音測定を行った。測定には現有のインピーダンスアナライザーとクライオスタットを用いた。現状では、転移温度以下において大きく電流雑音が増大する振る舞いは見られず、密度波のスライディング現象の直接的な証拠を得ることは成功していない。

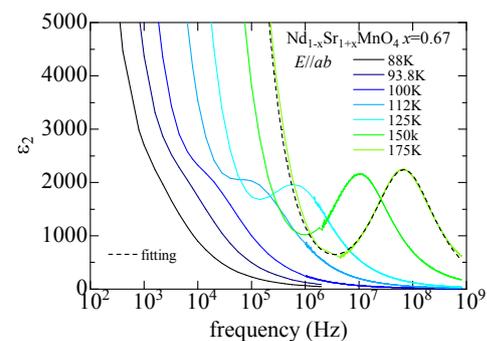


図 1: $Nd_{1-x}Sr_{1+x}MnO_4$ ($x=0.67$) における誘電率の虚部の周波数依存性。破線は緩和モデルによるフィッティング。

(2) スピン・軌道結合系におけるドメイン壁励起 [K. Ueda, et al, Phys. Rev. Lett., 109, 136402 (2012).]

まず、ペロブスカイト型バナジウム酸化物 RVO_3 を対象とし、軌道秩序ドメインのドメイン壁励起の観測を試みた。本系は軌道秩序が Kugel-Khomskii 型の交換相互作用によってスピン自由度と強く結合しているため、スピン秩序との結合に着目した。フローティングゾーン法によって EuVO_3 の単結晶を合成し、0.1-100MHz の周波数領域における誘電スペクトルを測定した。単結晶作成に当たっては所属研究室で既に稼働している赤外線加熱単結晶作製装置を使用し、広帯域の誘電分散の測定には、所属研究室有の誘電率測定装置群を使用した。0.1-100Hz, 100Hz-1MHz, 1MHz-100MHz の帯域でそれぞれ低周波インピーダンス測定システム、LCR メーター、高周

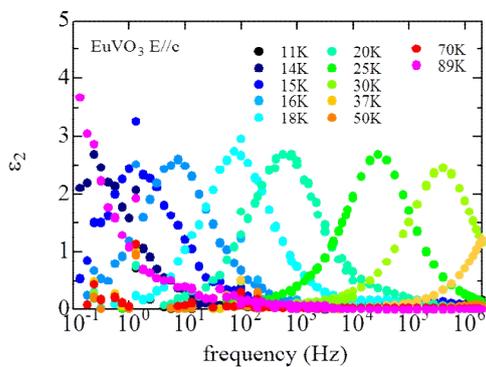


図 2: EuVO_3 における誘電率の虚部の周波数依存性。

波インピーダンスアナライザーを使用した。実験の結果、100K 以下の C 型磁気秩序・G 型軌道秩序相において印加電場が c 軸を向いている場合に誘電率が增大する様子が見られた。0.1Hz-1MHz の広帯域誘電率スペクトルを測定した所、緩和型の分散が見られた。デバイモデルで解析した所活性化エネルギーが 31meV 程度であることが分かった。他方、印加電場が c 軸と垂直の場合には顕著な誘電分散が見られなかった。C 型磁気秩序・G 型軌道秩序相においては異方性が小さい結晶構造であるにも関わらず、c 軸に擬 1 次元的な交換相互作用が生じる事が知られている。この点と分散の活性化エネルギーのスケールが軌道秩序の転移温度と同程度であることからここでみられた分散の起源は交換相互作用の異方性を強く反映した軌道秩序ドメイン壁の励起である可能性が高いと考えられる。

また、強いスピン・軌道相互作用によって電子スピンと軌道モーメントが強く結合しているパイロクロア型イリジウム酸化物 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ に着目した。具体的にはパイロクロア型酸化物 $\text{Nd}_2(\text{Ir}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{O}_7$ ($x = 0, 0.02, 0.05, 0.10$) において、電気抵抗率、磁化、比熱の温度変化を測定し、温度変化や Rh ド

ープによる金属絶縁体転移を観測した。遠赤外領域から真空紫外領域まで (0.01 - 40 eV) の十分に広い範囲で反射率測定を行い、クラマース・クローニッヒ変換することで光学伝導度スペクトルを算出した。

$x = 0$ の光学伝導度において、290 K から 10 K まで温度を下げるにつれて 0.3 eV (~3000 K) 以下に構造が現れる様子を観測した。転移温度 ($T_N = 32$ K) 以下においては電荷ギャップが連続的に開いていき、最低温でのギャップの大きさは約 50 meV であることを確かめた。以上から、 $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ の基底状態は有限のギャップを持つモット絶縁体であることを明らかにした。

Rh ドープに伴う光学伝導度スペクトルの変化を観測し、電荷ギャップが連続的に閉じて行くことを明らかにした。これは Rh ドーピングによって実効的にスピン軌道相互作用および電子相関が減少する過程で、モット絶縁体相からバルクの運動量空間内にゼロギャップの線形分散を持つワイル半金属相を経て常磁性金属相へ転移していることを示唆している。

また、磁気抵抗が顕著な温度・磁場履歴依存性を示し、磁気(軌道)ドメイン壁に起因した電気伝導のパスが試料内に生じていることを見出した。同様な振る舞いはテラヘルツ領域における光学伝導度(交流電気伝導度)にも表れており、そのスペクトル形状からその特徴的なエネルギーはテラヘルツ以下の低エネルギー領域にあることが伺える。

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 5 件)

1. K. Ueda, J. Fujioka, Y. Takahashi, T. Suzuki, S. Ishiwata, Y. Taguchi and Y. Tokura, "Variation of Charge Dynamics in the Course of Metal-Insulator Transition for Pyrochlore-Type $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ " PHYSICAL REVIEW LETTERS, 109, 136402-1 (2011).

2. J. Fujioka, S Ishiwata, Y. Kaneko, Y. Taguchi and Y. Tokura, "Variation of charge dynamics upon the helimagnetic and metal-insulator transitions for perovskite AFeO_3 (A = Sr and Ca)" PHYSICAL REVIEW B, 85, 155141-1 (2012).

3. H. Sakai, J. Fujioka, T. Fukuda, M. S. Bahramy, D. Okuyama, R. Arita, T. Arima, A. Q. R. Baron, Y. Taguchi, and Y. Tokura, "Soft phonon mode coupled with antiferromagnetic order in incipient-ferroelectric Mott insulators

Sr_{1-x}Ba_xMnO₃” PHYSICAL REVIEW B, 86, 104407- 1 (2012)

4. Reiji Kumai, Sachio Horiuchi, Jun Fujioka, and Yoshinori Tokura, “Ferroelectricity and Pressure-Induced Phenomena Driven by Neutral Ionic Valence Instability of Acid-Base Supramolecules”, Journal of The American chemical society, 134, 1036 (2012).

5. J. Fujioka, M. Nakamura, M. Kawasaki, and Y. Tokura, “Photocarrier collection from depletion layer of LaMnO₃” Journal of Applied Physics, 111, 016107 (2012).

[学会発表] (計 1 件)

J. Fujioka, K. Ueda, Y. Takahashi, T. Suzuki, S. Ishiwata, Y. Taguchi and Y. Tokura, “Variation of Charge Dynamics in the course of Metal-Insulator Transition for Pyrochlore-type Nd₂Ir₂O₇”, “Mott physics beyond the Heisenberg model”, Lousanne (2012)

[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

<http://www.cmr.t.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

藤岡 淳 (FUJIOKA JUN)

東京大学・大学院工学系研究科・助教

研究者番号：80609488

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：