

研究課題名

中性子散乱用 Cu モノクロメーターの開発

研究代表者名

大阪大学・大学院理学研究科・松浦直人

研究分担者名

東北大学・金属材料研究所・平賀晴弘、大山研司、
東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・山田和芳、
大阪大学・大学院理学研究科・廣田和馬

1. はじめに

高温超伝導のメカニズムにおける格子の役割の重要性は ARPES によるバンドの 50-80meV に観測される kink や同位体置換による T_c 変化などから再認識されている。また一方で、高温超伝導体に共通する砂時計型の 100-300meV 程度のエネルギースケールを持つ磁気励起が最近報告され始めている。このような格子ダイナミクスや磁気励起の研究において中性子散乱は最も強力な測定手段であるが、現在用いられている PG モノクロメーターでは 80meV 程度までしか選別できない。Cu は結晶面の間隔が 30-300meV 程度の高エネルギーを持つ中性子を選別するのに適しており、既に諸外国の中性子散乱施設で導入実績があるが、日本の 3 軸中性子分光器には設置されていない。構造物性の指針となる phonon や磁気励起を調べる上で、Cu モノクロメーターを作成することは急務である。Cu モノクロメーターには良質な大型単結晶が必要不可欠であり、本研究では優れた結晶育成技術を持つ東北大学金属材料研究所との共同研究、それにコールドプレスによる中性子反射率の向上の研究により、世界最高性能の Cu モノクロメーターの開発を目的とした。

2. 研究経過

Cu モノクロメーターに必要な良質大型銅単結晶作成は、金研山田研（山口、平賀、大山、山田）と金属ガラス総合研究センター（宍戸、戸澤）の協同作業により金属ガラス総合研究センターで行われた。これまでの Cu モノクロメーター開発研究において問題になっていた、「結晶育成方向のモザイクネス（結晶性）の悪化」について、結晶の加熱方法を誘導加熱方式から抵抗加熱方式に変更し、育成条件の最適化を行った。得られた大型単結晶は出来るだけダメージを少なく切断する必要があるが、金研機器コアグループと山田研により、放電加工機と特注固定治具を用いた丁寧な切断加工を行われた。中性子反射率を向上させるコールドプレスについては、これまでの研究での蓄積により、再現性よく反射率の向上が為された。さらに得られた Cu モノクロメーター結晶は、「結晶育成方向のモザイクネス（結晶性）」について問題の無い結晶を厳選し、垂直集光モノクロメーター機構への組みつけが行われた。

3. 研究成果

大型単結晶育成については、加熱方法の変更により、上記の問題：「結晶育成方向のモザイクネス悪化」を解決して、モノクロメーターに適した結晶性の優れた大型単結晶を 1 つ得ることに成功した。しかし再現性に乏しく、大型 Cu 単結晶育成には温度分布の最適化に加えて、坩堝形状の見直しが必要との認識に至った。

得られた良質単結晶については、コールドプレスを用いて Cu モノクロ用結晶からの反射率を 2~2.5 倍向上させることに成功した。昨年度までの研究で問題になっていた「結晶育成方向のモザイクネス悪化」については改善がみられ、垂直方向の集光機能を利用する事により、既存の Cu モノクロメーターより更に 5 倍程度の中性子フラックスの向上が期待されるモノクロメーターを 1 台完成する事に成功した。

4. まとめ

大型単結晶育成、切断技術、コールドプレス技術などの蓄積がなされ、世界最高クラスの Cu モノクロメーターの開発に成功した。今後の課題として、良質な単結晶を再現性良く得るための結晶育成方法の更なる改善が必要である。

研究課題名

銅酸化物超伝導体低ドーピング領域における磁気励起

研究代表者名
日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・松田雅昌

1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体の大きな特徴の一つとして、電気伝導と磁性が密接に関連していることが挙げられる。超伝導発現機構の解明にはこの関係を明らかにすることが不可欠であり、実験、理論両面からの広範囲な研究が行われている。最近の中性子散乱研究により、大局的な磁気励起スペクトルが系に依らずほぼ共通であり、砂時計(hourglass)の形をしていることが示されている。これらは銅酸化物高温超伝導体に普遍的な性質であると考えられる。一方、絶縁体-超伝導体転移を起こす近傍(斜め非整合磁気相)における磁気励起の研究はほとんど行われていなかった。

2. 研究経過

我々は、以前に $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 絶縁相($x=0.04$)の単結晶を用いて実験を行い、磁気分散が $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 超伝導相で見られる砂時計型と同様であることを明らかにした[1]。 $x=0.04$ の試料では磁気励起が非整合から整合になるエネルギーが20 meV程度であるが、15-25 meVの領域はフォノンの影響が大きいために、残念ながら磁気励起の詳細なエネルギー依存性を測定することが困難であった。そこで、次のステップとして、絶縁相においてさらに薄いホール濃度の試料を用いて測定を行った。 $x=0.02$ 付近の試料では、磁気励起が整合になるエネルギーが10 meV程度になると予想されるため、非整合磁気励起から整合磁気励起への変化を詳細に追えることが期待された。

3. 研究成果

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x=0.04$)における磁気励起スペクトルのエネルギー依存性を詳細に測定したところ、図1に示すように、10 meVを境界にスペクトルの形状が大きく変化することがわかった[2]。10meV以下では H 方向に伸びた形状をしているが、10 meV以上ではほぼ等方的になっている。この結果は、低エネルギー側はストライプ的スピン相の影響を受けているが、高エネルギー側はほぼ通常のスピン波的描像で記述出来ることを示している。このように詳細なエネルギー変化を観測出来たのは初めてであり、今後の理論的進展が期待される。

4. まとめ

銅酸化物超伝導体で観測されている砂時計型磁気励起は、超伝導領域特有の磁气的性質だと思われていたが、絶縁相でも共通の性質であることが明らかになった。この磁気励起は、 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 絶縁相と同様に斜め非整合磁気相を示す $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_4$ では見られない特異的なものである。銅酸化物の性質を理解するために、今後解明されるべき課題である。

参考文献

[1] M. Matsuda, M. Fujita, S. Wakimoto, J. A. Fernandez-Baca, J. M. Tranquada and K. Yamada, Phys. Rev. Lett. 101 (2008) 1970001.

[2] M. Matsuda, M. Fujita, J. A. Fernandez-Baca, J. M. Tranquada and K. Yamada, in preparation.

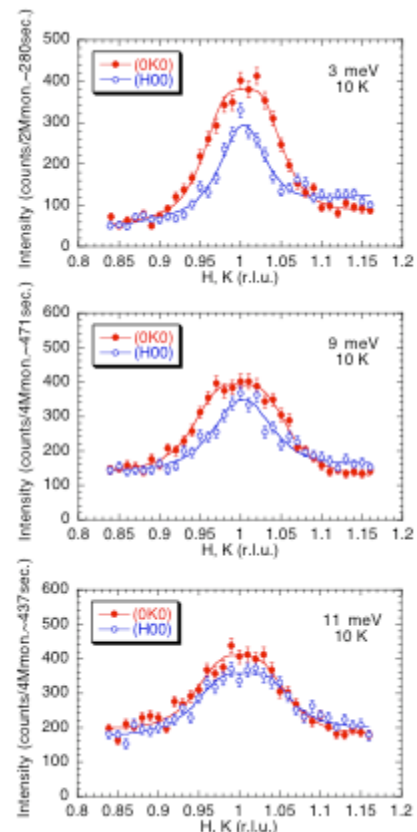


図1 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ($x=0.04$)における磁気励起スペクトルのエネルギー依存性

電荷秩序系の共鳴非弾性 X 線散乱

日本原子力研究開発機構・放射光科学研究ユニット・石井賢司

日本原子力研究開発機構・放射光科学研究ユニット・吉田雅洋

1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体などの強相関電子系物質は依然として多くの人の興味を引きつける研究対象となっている。強い電子相関によって生じる様々な電子相の発現メカニズムを明らかにすることは、その中でも重要なテーマである。我々は、これらの物質に対して共鳴非弾性 X 線散乱法 (RIXS) という放射光 X 線を用いたユニークな分光法を用いて、その電子励起状態についての研究を行っている。この手法の大きな特徴として、(1) 波長が原子間隔と同程度であるので運動量依存性が観測できること、(2) 内殻共鳴励起状態を散乱プロセスに含むことから元素選択性があること、が挙げられる。

強相関遷移金属酸化物などの電荷ドーブされたモット絶縁体では、例えば銅酸化物高温超伝導体のストライプ相などのように、しばしば電荷秩序相が現れる。これらの電荷秩序は通常のパイエルス不安定性による CDW とは異なり強い電子相関を起源とすると考えられ、高いエネルギースケールにまで渡って電子相関の影響を受けた励起状態が存在すると予想される。本研究課題は、これらの電荷秩序相に対して遷移金属の K 吸収端での RIXS 法を適用し、電荷励起状態からその発現メカニズムを明らかにすることを目指すものである。

本報告書で取り上げる銅酸化物 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ は二本足梯子格子と辺共有一次元鎖が積層した複合格子結晶である。Sr を Ca に置換することで梯子格子にホールがドーブされ、Ca 組成の大きい組成 ($x \geq 10$) では高圧下で超伝導を示すことが知られている[1]。一方、常圧では伝導物性を担う梯子格子において $x = 0$ で 5 倍周期、 $x \sim 11$ で 3 倍周期の電荷秩序相が存在しており[2]、電荷秩序相からの電荷励起状態を調べることを目的として、これらの組成での RIXS 実験を行った。

2. 研究経過

実験は SPring-8 の BL11XU に設置された非弾性散乱分光器を用いて行った。 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ ($x = 0, 11.5$) の単結晶を用い、入射 X 線のエネルギーは銅の K 吸収端近傍の 8993 eV とした。実験でのエネルギー分解能はおおよそ 400 meV である。

3. 研究成果

図 1(a)、(b)に $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ ($x = 0$) の 400K、および、8K での RIXS スペクトルを示す。運動量 \mathbf{q} は二本足梯子格子一本だけ考えたときのブリルアンゾーンに還元して書いており、 $\mathbf{q} = (\mathbf{q}_{\text{rung}}, \mathbf{q}_{\text{leg}})$ と表す。スペクトルの 2 eV 以上に存在する分散を持った励起は、Zhang-Rice バンドから銅の上部ハバードバンドへのバンド間励起である。一方、バンドギャップ内にある 1 eV 付近の励起は、梯子格子にドーブされたホールのバンド内励起に対応する[3]。ここでは後者の励起に注目する。8K でのバンド内励起強度は、400K と比べて大きく減少しており、電荷秩序 (転移温度約 250K) が発達するにつれて大きく電子状態が変化していることがわかる[4]。同様の温度変化は、光学伝導度でも観測されている[5]。さらに、400K のスペクトルでは、電荷秩序の波数 $\mathbf{q}_{\text{co}} = (0, 2\pi/5)$ でのバンド内励起強度が他の運動量と比べて顕著に増大していることがわかる。この \mathbf{q}_{co} でのバンド内励起強度の増大は、静的電荷秩序が生じる直前の揺らいだ状態を観測していると考えられることで解釈できる。

一方、 $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ ($x = 0$) とは異なる周期の電荷秩序が存在する $\text{Sr}_{2.5}\text{Ca}_{11.5}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ ($x = 11.5$) では、電荷のダイナミクスは明瞭に異なっている。図 1(c)、(d)に $x = 11.5$ の 400K、および、18K での RIXS スペクトルを示す。図中の破線で示した静的な電荷秩序が観測されている波数 $\mathbf{q}_{\text{co}} = (0, 2\pi/3)$ では、いずれの温度においても $x = 0$ で観測されたようなバンド内励起の強度増大は見られない。一方で、18K では、(0,0)から(0, π)に向けて分散をもつような励起が存在していることがわかる。

以上の結果から、 $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の電荷秩序は、 $x = 0$ と $x \sim 11$ では周期が異なるだけでなく、そこからの励起、すなわち、ダイナミクスの点でも異なっていることが明らかになった。一般に、電子励起スペクトルにはその背後で電子に働く相互作用の影響が現れることから、 $x = 0$ と $x \sim 11$ の電荷秩序は、単にホール濃度が変わったために周期が変わったというのではなく、電荷秩序を引き起こすメカニズムが異なっている可能性がある。さらには、この電荷秩序の質的な違いが、高圧下での超伝導発現の有無と関係しているかもしれない。これらを解決するための鍵の一つは、 $x \sim 11.5$ の RIXS スペクトルに現れた分散をもった励起の起源を明らかにすることであり、現在、そのための理論計算が進行中である。

4. まとめ

$\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の梯子格子で見られる電荷秩序の動的な性質を明らかにするために、銅の K 吸収端での共鳴非弾性 X 線散乱による研究を行った。その結果、5 倍周期の電荷秩序を示す $x = 0$ と 3 倍周期の電荷秩序を示す $x = 11.5$ では、全く異なる電荷励起スペクトルが観測された。この違いは、2 つの電荷秩序の起源が質的に異なっていることを示唆している。

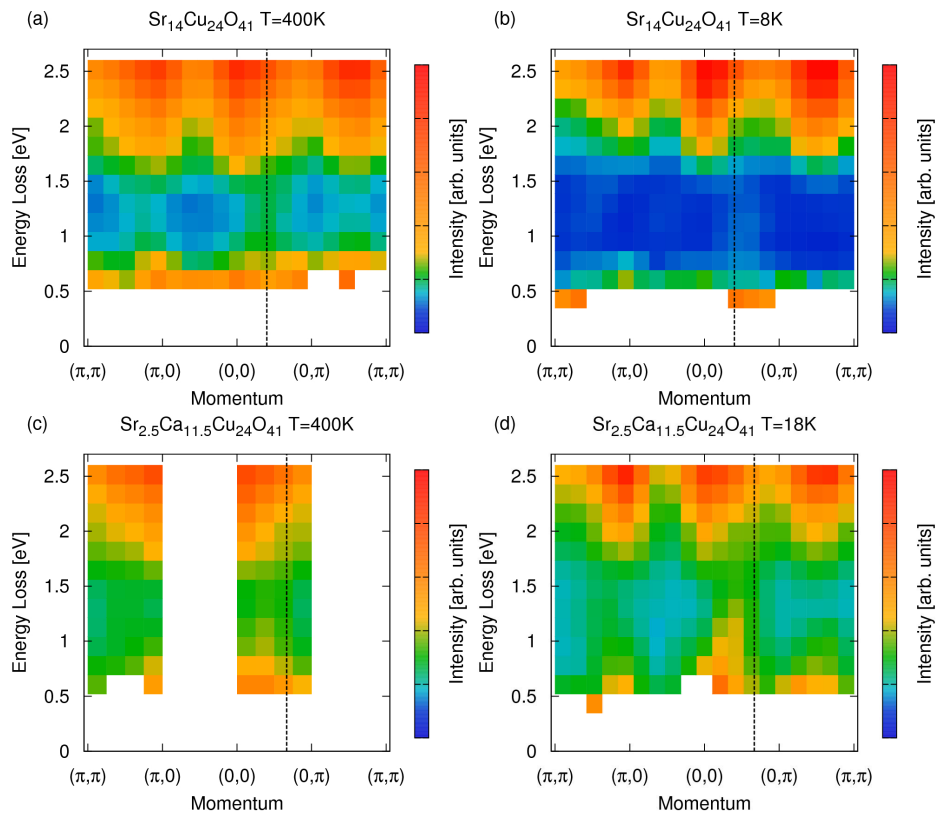


図 1 : $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ 、および、 $\text{Sr}_{2.5}\text{Ca}_{11.5}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ の共鳴非弾性 X 線散乱スペクトル。破線は共鳴 X 線回折[2]で観測された静的電荷秩序の周期に対応する運動量を示す。

参考文献

[1] M. Uehara et al., J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 2764 (1996). [2] A. Ruydy et al., Phys. Rev. Lett. **97**, 016403 (2006). [3] K. Ishii et al., Phys. Rev. B **76**, 045124 (2007). [4] M. Yoshida et al., to be published in Physica C. (<http://dx.doi.org/10.1016/j.physc.2009.11.082>) [5] H. Eisaki et al., Physica C **341-348**, 363 (2000).