

修士論文

銅酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{1.90}\text{Sr}_{0.10}\text{CuO}_4$ に
おけるスピン揺らぎの温度依存性

東北大学大学院 理学研究科
物理学専攻

佐藤研太郎

平成24年

目次

1 序論	2
1.1 銅酸化物高温超伝導体の特徴	3
1.1.1 結晶構造	3
1.1.2 電子相図	3
1.1.3 銅酸化物における超伝導ギャップ、擬ギャップ	5
1.2 磁気相関	6
1.3 銅酸化物における磁気励起	9
1.4 砂時計型磁気励起の起源	9
1.4.1 局在スピンの基づいたモデル	10
1.4.2 遍歴スピンの基づいたモデル	11
1.4.3 磁気励起のホール濃度依存性	12
1.5 研究目的	13
1.5.1 温度変化測定によるモデルの峻別	13
1.5.2 銅酸化物における $\chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の絶対値導出	14
2 中性子非弾性散乱実験原理	16
2.1 中性子散乱の特徴	16
2.2 中性子散乱断面積と $S(\mathbf{Q}, \omega)$	17
2.3 TOF 法、4SEASON 概要	17
2.3.1 擬二次元物質における磁気励起測定と光学配置	19
2.3.2 四季におけるエネルギー、空間分解能	20
2.4 磁気励起解析手法	23
2.4.1 磁気形状因子	23
2.4.2 シグナル形状考察、 \mathbf{Q} 積分	23
2.5 試料作成、評価	26
2.5.1 FZ 法原理	26
2.5.2 粉末結晶作成	26
2.5.3 単結晶育成	27
2.5.4 x 線粉末結晶回折	28
2.5.5 磁化率測定	28
2.5.6 x 線、高エネルギー γ 線を用いたアゼンブル	33
2.5.7 中性子核散乱 Bragg ピークによるモザイクネス	35

3	中性子非弾性散乱実験結果	37
3.1	実験条件詳細	37
3.2	シグナルの温度変化	38
3.3	分散関係の温度変化	41
3.4	局所動的磁化率の温度変化	44
4	考察	48
4.1	局在的立場からのアプローチ	48
4.1.1	最近接交換相互作用 J_{eff} の見積もり	48
4.1.2	ストライプモデル	49
4.2	総和則	55
4.3	遍歴的立場からのアプローチ	56
4.4	磁気励起から見える擬ギャップ現象	57
5	まとめ、今後の展望	61
5.1	課題1；磁気励起分散形状相図の検証	62
5.2	課題2；高エネルギー領域の $\chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の減少の原因	62
6	APPENDIX	65
6.1	シグナル規格化の方法	65
6.1.1	LSCO の incoherent scattering を用いた規格化	65
6.1.2	Vanadium incoherent scattering で規格化したとき との比較	67
6.1.3	規格化因子の差の原因考察	68
6.2	エネルギーに依存した中性子透過率	71
6.3	$S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の \mathbf{Q} 積分の検討、関数依存性	75

1 序論

1986年に J. G. Bednorz, K. A. Müller らによって超伝導転移温度 $T_c \sim 30\text{K}$ の銅酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ が発見されて以来 [1]、それまでの BCS 超伝導体の最高転移温度 ($T_c \sim 23\text{K}$) をはるかに上回る T_c を持った銅酸化物が次々と発見された。その超伝導発現機構は BCS 理論 [2] から説明しうるものではなく、様々な手法で実験、理論の両面から約 30 年の長きに渡って研究されてきたのである。

銅酸化物高温超伝導体の母物質は反強磁性を示す Mott 絶縁体である。ホールや電子といったキャリアをドーピングしていくことで 3 次元的な反強磁性秩序は失われ、その後あるキャリア濃度下で T_c の高い超伝導が発現する。しかし反強磁性相関は超伝導相においても依然として強く、反強磁性的なスピン揺らぎとして残っていることが多くの実験から示されており、超伝導発現に対してスピン揺らぎは重要な役割を持つと言われている [3]。

中性子非弾性散乱実験は大きなエネルギースケールのスピン揺らぎを直接的に観測する強力な手法であり、銅酸化物のような 1000K にも及ぶ大きな超交換相互作用 J を持つ物質の磁気励起を見るのに適切である。その実験技術は進歩し続けており、近年我が国においても茨城県東海村、J-PARC の核破砕型中性子源による世界トップレベルの高い中性子線量、Material and Life Science Facility に設置されているチョッパー型分光器「四季」の開発により効率的に低エネルギーから高エネルギーまでの磁気励起全体像の観測が可能となった。

銅酸化物の母物質では 2 次元的な反強磁性スピン波が観測され [4]、超伝導相に入ると「砂時計型」と呼ばれる特徴的な磁気励起を示すことが多くのホールドーピング型銅酸化物に共通している [5][6]。さらに砂時計型磁気励起を記述する様々なパラメーターと超伝導ギャップの大きさには相関が見られ [7]、磁気励起の原理を明らかにすることは銅酸化物における超伝導の理解を進めるものと思われる。砂時計型磁気励起の理解の仕方は大別して二つあり、一つは局在した電子による磁性から出発し超伝導相においても近似的に局在描像で考えるもの、もう一つは遍歴した電子が磁性を担うというものである。超伝導相においてどちらの電子モデルがより妥当であるかが問題であり、決着が着いていないのが現状である。銅酸化物の中で最も盛んに中性子非弾性散乱実験が行われてきた系が $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (L214 系) であり、広いホール濃度範囲でその磁気励起の詳細が明らかにされてきた。近年 Vignolle らは LSCO の磁気励起には起源

の異なる2成分から構成されていると主張した[10]。エネルギー階層構造があり、低エネルギー部分を遍歴的なもの、高エネルギー部分を局在的なものと考えたのである。ホール濃度の違いから出てくる磁気励起の変化は、2成分の存在を支持すると考えられる。我々は熱的な環境の違いでスピン揺らぎがどう変わるかを探ることで、砂時計型磁気励起に対して新しい知見を得られると考えた。「四季」を用いてLSCOの磁気励起像全体の温度変化を詳細に追った。

1.1 銅酸化物高温超伝導体の特徴

本章では $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO系)を中心に銅酸化物について知られている特徴について述べる。

1.1.1 結晶構造

銅酸化物の結晶構造は、電子伝導の起こる CuO_2 面とそこに電荷を供給する電荷供給層(ブロック層)によって構成されている。最も単純な結晶構造をもつ銅酸化物高温超伝導体であるLSCO系では、 K_2NiF_4 型のペロスブスカイト構造の CuO_2 面と電荷供給層であるLaO絶縁層がc軸方向に交互に積層している。LSCOの高温正方晶相の結晶構造を図1に示す。電荷供給層に挟まれた CuO_2 面が1枚であることからこの系は一枚層の銅酸化物高温超伝導体と分類される。このような結晶構造を持った系は214系と呼ばれている。214系は結晶構造が最も単純な系であり、結晶育成の容易さから最も良く研究されている銅酸化物の一つである。また CuO_2 面内のホール濃度をSrドーパ量でコントロールできるという利点がある。

1.1.2 電子相図

銅酸化物高温超伝導体では CuO_2 面の磁氣的、電氣的性質が物性に重要な役割を果たす。母物質中での CuO_2 面は、閉殻構造を持つ O^{2-} と不対電子を1つ持ち、最外殻の電子配置が $3d^9$ となっている Cu^{2+} によって構成されている。この時、結晶の対称性によってCuの3d軌道の縮退は解けた状態にあるため、最もエネルギーの高い $d_{x^2-y^2}$ 軌道のバンドには

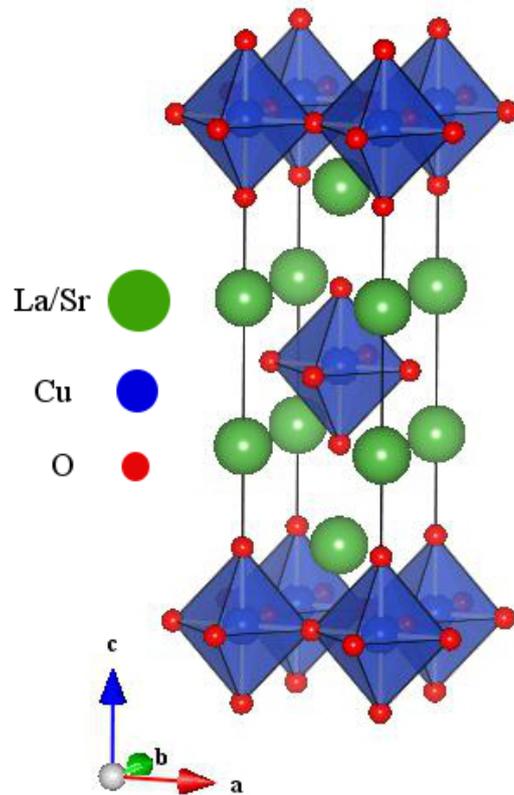


図 1: 銅酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) の結晶構造

電子が半分だけ入った状態になる。この場合、母物質は金属的な性質を示すはずだが実際には絶縁体となっている。これは、 $d_{x^2-y^2}$ 軌道のバンドが強い電子相関のために、空の上部 Hubbard バンドと電子が完全に詰まった下部 Hubbard バンドに分裂し、結果として Cu 原子上に電子が局在した電荷移動型の Mott 絶縁体となるからである。このとき Cu 原子はサイト上に局在した電子によって $S=1/2$ のスピンをもち、Cu サイト間に存在する酸素原子を介して超交換相互作用が働くことで Cu 間に反強磁性相関が生じる。この相互作用は二次元反強磁性的であるが、現実的に完全な二次元的相関などはないので、室温以下では CuO_2 面間でのスピン相関のため三次元反強磁性秩序が生じる。

超伝導は CuO_2 面にホールや電子といったキャリアをドーピングすることで発現する。キャリアのドーピングには化学的な方法が一般的に多く用いられている。LSCO では、 La^{3+} イオンを Sr^{2+} や Ba^{2+} といった +2 価のイオン

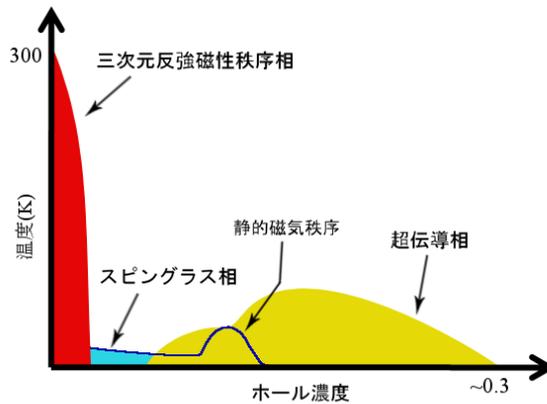


図 2: $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) の電子相図

となる元素との置換、あるいは過剰酸素を導入することによって、 CuO_2 面にホールをドーピングする。LSCOの電子相図を図2に示す。LSCOでは約2%のホールをドーピングすることにより反強磁性秩序相が消失し、スピニングラス相が現れる。さらにホールをドーピングしていくと約5.5%から超伝導相が発現する。超伝導相は、最初はホールドーピング量の増加に伴い T_c も上昇するが、約16%で最大値($\sim 37\text{K}$)をとり、次第に減少していき約30%で超伝導が消失する、といったドーム型の形状をとる。最大の T_c をとるホール濃度組成を最適ドーピング(OP)と呼び、それより低いホール濃度組成をアンダードーピング(UD)、高いホール濃度組成をオーバードーピング(OD)と呼ぶ。ほとんどの銅酸化物において、反強磁性相が消失することでドーム型の超伝導相が現れるといった同様のキャリア濃度依存性を示すことから、超伝導発現機構を解明する上でキャリアドーピングに伴う物性の変化を理解することは重要だと考えられている。

1.1.3 銅酸化物における超伝導ギャップ、擬ギャップ

銅酸化物高温超伝導体が有する現象のなかで大きな問題の一つとなっているのが「擬ギャップ」である。様々なプローブからこの擬ギャップが確認されているが、ここでは角度分解光電子分光(ARPES)から明らかにされた擬ギャップ現象について触れておく。

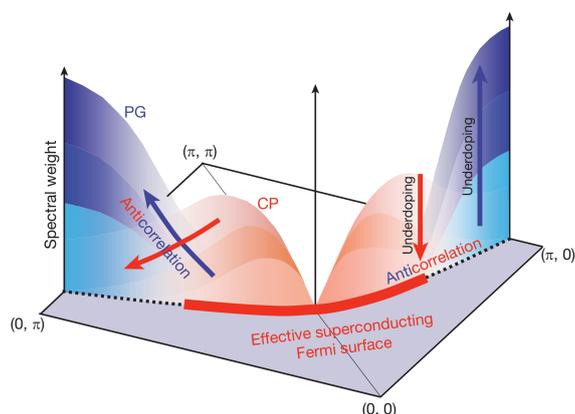


図 3: 銅酸化物における異方的な超伝導ギャップと擬ギャップを示す。[15]

図 3 に示すように、銅酸化物において超伝導相では d 波対称性の超伝導ギャップが形成される。 (π, π) 方向 (ノード方向) にはギャップがなく、 $(0, \pi)$ または $(\pi, 0)$ 方向 (アンチノード方向) でギャップは最大となる。アンダードーピング組成の銅酸化物では超伝導転移温度より遥かに高温からアンチノード方向にギャップが張り出す。これを擬ギャップという。擬ギャップの正体は何なのか、解釈の仕方として 2 つの立場がある。一つは coherent 性のない電子対が高温より形成され、ギャップができるという立場である。この立場では擬ギャップ現象を超伝導の前駆現象だと捉えている。もう一つの立場は超伝導と競合する何か別な相だと捉える立場である。未だに擬ギャップの起源は決着が着いていない。

1.2 磁気相関

ここでは、主に中性子散乱実験で観測されたホール濃度に対する磁気相関の変化について述べる。静的な磁気秩序、また極めて低エネルギーの磁気揺らぎに関して記述する。

代表的な一枚層の銅酸化物高温超伝導体である LSCO では、これまでに多くのホール濃度組成において磁気相関の系統的な研究が行われてきた。各ホール濃度組成での中性子散乱実験から得られたシグナルの特徴を図 4 に示す。母物質の La_2CuO_4 から $x < 0.02$ の領域では、反強磁性の

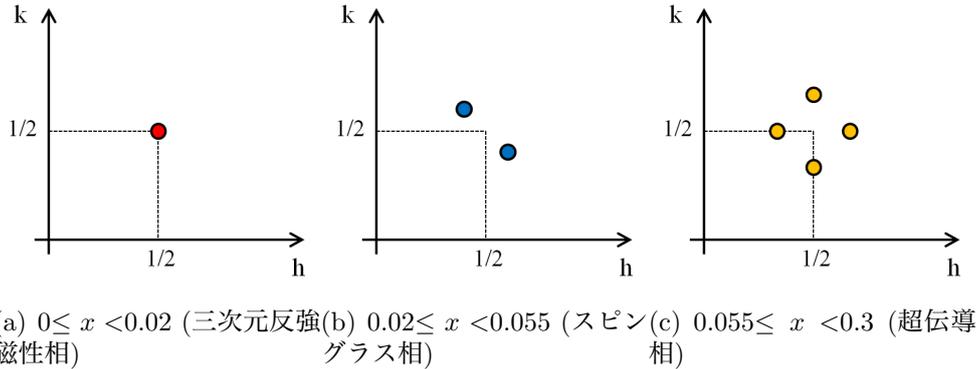


図 4: LSCO の各ホール濃度における磁気シグナルの特徴

磁気秩序に対応する $(1/2, 1/2, 0)$ の位置に格子整合な磁気秩序ピークが観測された [13]。さらにホールドーピングを進めていくと、 $0.02 \leq x < 0.055$ のスピングラス相と呼ばれる領域においては、母物質で反強磁性磁気秩序ピークの生じる位置 $(1/2, 1/2, 0)$ から逆格子空間でダイアゴナル $(\bar{1} \ 1 \ 0)$ 方向にスプリットした格子非整合な磁気秩序ピークが観測された [14]。ホール濃度が $0.055 \leq x < 0.3$ の超伝導相の領域では、平行 $([1 \ 0 \ 0], [0 \ 1 \ 0])$ 方向にスプリットした格子非整合な磁気ゆらぎシグナルの出現が観測されている [7]。注意しておきたいのは、 $0.055 \leq x < 0.15$ の領域では、逆格子空間で平行方向にスプリットした格子非整合な磁気秩序ピークが確認されており [14][8]、これは静的な秩序の存在を示す。しかしこのホール濃度領域における「秩序」とは3次元的なものではなく、 c 軸方向の相関長は2層程度と極めて短い、擬二次元的な磁気秩序と言える。YBCO などにおいては超伝導相でスピングャップが確認されており、このような磁気秩序は存在しない。

スピングラス相からアンダードーピング領域の超伝導相において、低温で観測された磁気秩序の転移温度は図 2 に示したように連続的に変化しており、超伝導組成での磁気秩序の転移温度はホール濃度 $p = 1/8$ で顕著になっている。さらに、 $p \sim 1/8$ では転移温度以外にも、ピーク強度の増大、相関の長距離化等が生じ、磁気秩序が安定化することがわかってる。また $p \sim 1/8$ では T_c が周りのホール濃度よりも低くなるという異常が見られている。これらは $1/8$ 異常と呼ばれている [16]。

格子非整合な磁気秩序ピークや $1/8$ 異常の存在の解釈として、図 5(a) に示すようなホールが Cu-O ボンドに対して平行な1次元方向に整列

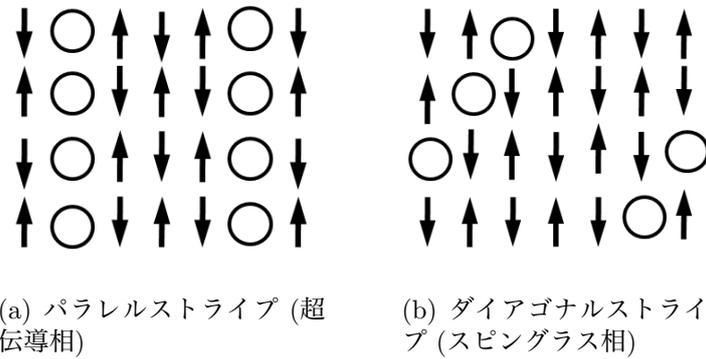


図 5: CuO_2 面におけるストライプ秩序の描像。 \uparrow と \circ はそれぞれスピ
ンとホール

したストライプ秩序の存在が提唱されている。 $x = 1/8$ 付近の組成や Cu サイトに不純物置換をした組成での実験により、ホールのストライプ化に伴う格子の歪みによる長周期ピークが観測され、ストライプ秩序の解釈を裏付ける結果が得られている [17],[18]。この場合、格子非整合な磁気秩序ピークはホールのストライプによって反強磁性スピンドメインが区切られて長周期化したことに対応して観測されると考えられる。

スピングラス相で観測されている格子非整合な磁気秩序ピークについても、図 5(b) に示すような Cu-O ボンドに対してダイアゴナル方向に整列したストライプの導入によって解釈できるが、存在は確認されていない。

1.3 銅酸化物における磁気励起

本章では中性子非弾性散乱実験 (INS) から明らかにされた高エネルギーまでの銅酸化物高温超伝導体の磁気励起に関して記述する。図 6 に $\text{La}_{0.875}\text{Ba}_{0.125}\text{CuO}_4$ (LBCO) の磁気励起概略図をしめす。Orthogonal (斜方晶) で空間群を定義し直すと反強磁性ピークは $(1\ 0\ 0)$ に現れる。 $(1+q, q, 0)$ にそってに cut したとき得られる分散関係を図 6(g) に示す。横軸は波数 q (r.l.u.) で縦軸はエネルギートランスファー $\hbar\omega$ (meV) である。カラー強度マップはいくつかエネルギーを固定して得られた $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の定エネルギースライスである。分散関係の特徴を述べると、低エネルギーで二次元反強磁性位置 $\mathbf{Q}_{\text{AFM}} = (1, 0)$ から Cu-O-Cu 方向にスプリットした4つのピーク $(1 \pm \delta, \delta)$, $(1 \pm \delta, -\delta)$ があり、どれくらい離れているかを示す量 δ を格子非整合度 (incommensurability) という。エネルギーを上げるにつれ4つのピークは \mathbf{Q}_{AFM} に近づく、 \mathbf{Q} 平面内の広がり最も狭まるエネルギーを E_{cross} とし、そこからさらにエネルギーを上げるとシグナルは \mathbf{Q}_{AFM} を中心に低エネルギー部分から 45° 回転した正方形 (または輪) を作り広がっていく [19]。分散関係を見るとくびれ (E_{cross}) があり、**砂時計型励起**と言われる所以である。

砂時計型励起は LBCO のみならず、LSCO、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ (YBCO)、 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) など多くの銅酸化物高温超伝導体に共通して見られる現象であり [5][6]、磁気励起と超伝導との密接な関係が示唆される。1990 年代に発見されたこの励起は中性子非弾性散乱を用いて盛んに研究され多くの事柄が明らかになった。アンダードープ領域 ($x < 0.16$) の LSCO では、incommensurability とホール濃度はスケールし、さらに T_c の大きさともスケールするのである [7]。また、LSCO、YBCO における E_{cross} と T_c にもスケール関係がある [8][9]。

1.4 砂時計型磁気励起の起源

銅酸化物における磁性の捉え方は大きく分けて二つある。一つは反強磁性 Mott 絶縁体である母物質の局在電子が磁性を担う描像から出発し、超伝導相においても局在スピンの基づいて考えるものである。もう一つは遍歴した電子が磁性を担うとするものである。母物質では2次元的なスピン波が観測されており [4]、これは局在的な立場から導かれるもので

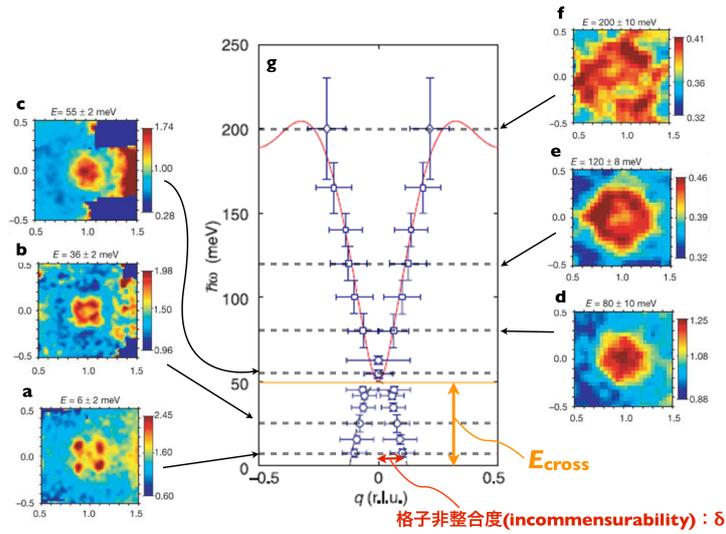


図 6: $\text{La}_{1.875}\text{Ba}_{0.125}\text{CuO}_4$ (LBCO) で観測されている分散関係 (g) といくつかの定エネルギースライスを示す (a)-(f)。 [19]

あるが、 CuO_2 面にホールがドーピングされていくとハーフフィリングからずれていくことで徐々に局在していた電子は遍歴性を得て低温では超伝導状態が基底状態となる。そしてオーバードープ領域、それ以上のドーピング量では金属相となりフェルミ液体的に考えられるのである。超伝導ドームは局在と遍歴の間にあり、この領域の磁性はどちらかのモデルで記述することは難しく、磁性に対する根本的な理解には至っていない。

1.4.1 局在スピンの基づいたモデル

砂時計型励起の起源としていくつかの仮説が立てられるが、本節ではストライプを基にして考えられた局在的な描像について述べる。 CuO_2 面にドーピングされたホールが Cu-O-Cu 方向に列を作り、列が一定間隔で並びストライプが形成されているとする [20]。例として Cu-Cu の距離 a の 4 倍、 $4a$ の周期で電荷が秩序していると考え (図 7(a))。ホールリバーで区切られたスピンドメインの中での交換相互作用定数を J とし、ホールリバーを挟んだ弱い相関を J_s とする。ストライプ方向には J による singlet - triplet 励起に対応する分散が高エネルギーに存在する。リバーと垂直な方向へも相関 J_s が有るために E_{cross} 以下がストライ

周期に対応して変調がある。LSCOは低温、高温においても正方晶と見て差し支えなく（実際には高温から、高温正方晶 → 低温斜方晶 → 低温正方晶と構造変化があるがa~bと見ても良い）、単結晶の中にa軸方向へのホールリバーを持った領域とb軸方向に持ったものがほぼ等比に存在していると見なせる。よって先ほどの分散関係を90°回転させたものを重ね合わせ、砂時計型磁気励起が再現される（図7）。

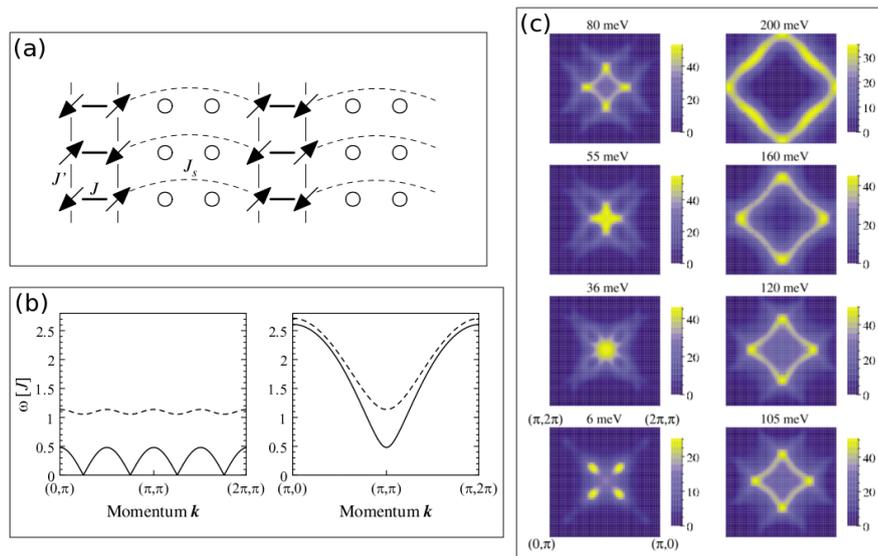


図7: ストライプモデルから導かれる分散関係 (a) ストライプの概念図 (b) 導出される分散関係 (c) 定エネルギースライス

1.4.2 遍歴スピンの基づいたモデル

電子相関によってフェルミ面下にホールをフェルミ面上に電子を作ることでスピンの動的な秩序が誘起される。乱雑位相近似 (RPA) 計算によって導かれた動的磁化率 $\chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ を図8に示す [25]。有効的な電子相関やホッピングの大きさ等計算に必要なとされるパラメータはARPESの実験から得られている [24]。異方的な超伝導ギャップ、擬ギャップの影響によって E_{cross} 以下の構造が形作られる。図8(a)の赤いところは共鳴ピークを示しており、ちょうど E_{cross} のあたりになっている。LSCOはネステイン

グ条件の良いために高エネルギーまで強い強度を持った励起が続いている。遍歴的に考える立場は主に YBCO 系で取られており、共鳴ピークの振る舞いなどが良く記述される [23]。このモデルでは特にストライプのような電荷の変調を仮定しておらず、フェルミ面の形状、バンド構造を反映している。

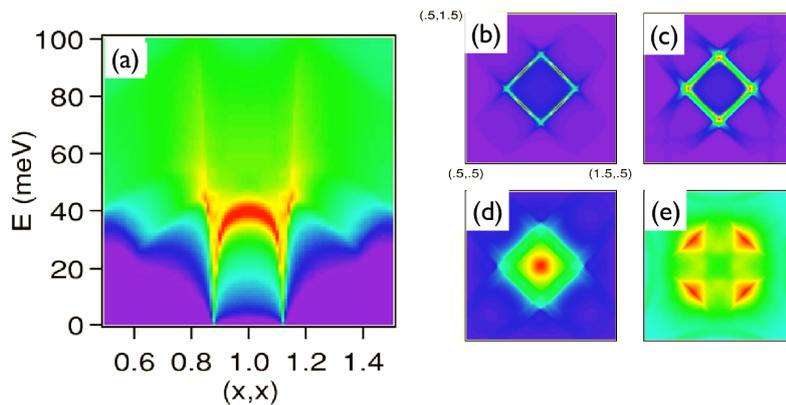


図 8: RPA 計算から導かれる $\chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ のスペクトルを示す。種々のパラメーターはアンダードーピングの LSCO のバンド構造に合うように調整されている。(a) は分散関係であり砂時計型を表している。赤いところが共鳴ピークである。(b), (c), (d), (e) はそれぞれ 10meV, 30meV, 50meV, 100meV の定エネルギースライスを示す。

1.4.3 磁気励起のホール濃度依存性

前述のように LSCO 系は最も盛んに INS 実験がなされてきた系であり磁気励起の組成依存性が系統的に調べられている。図 9 に $x=0$ [4]、0.05[8]、0.085[12]、0.16[10]、0.22[11] の磁気励起を示す。ノンドーピングでは二次元的なスピン波で記述される磁気励起であるが、ホール濃度が増えてくるに従って低エネルギー部分に「足」のように出てくることで砂時計型となる。さらに $x=0.22$ のオーバードープ領域ではくびれがなく途中から分散が見える。よってホール濃度によって顕著に変化してくるのは E_{cross} 以下の低エネルギー部分であると言える。また、スピン揺らぎの状態密度で

ある局所動的磁化率 $\chi''(\hbar\omega)$ に着目すると、 $x=0$ でスピン波的であったのがだんだんと E_{cross} を挟んだダブルピーク構造に変化していることが分かる。近年 B. Vignolle は E_{cross} を境にして磁気励起に起源の異なる 2 成分があると主張した [10]。彼らは低エネルギー部分が遍歴電子から来る磁性であり、高エネルギー領域はスピン波の変化したようなものと推測している。

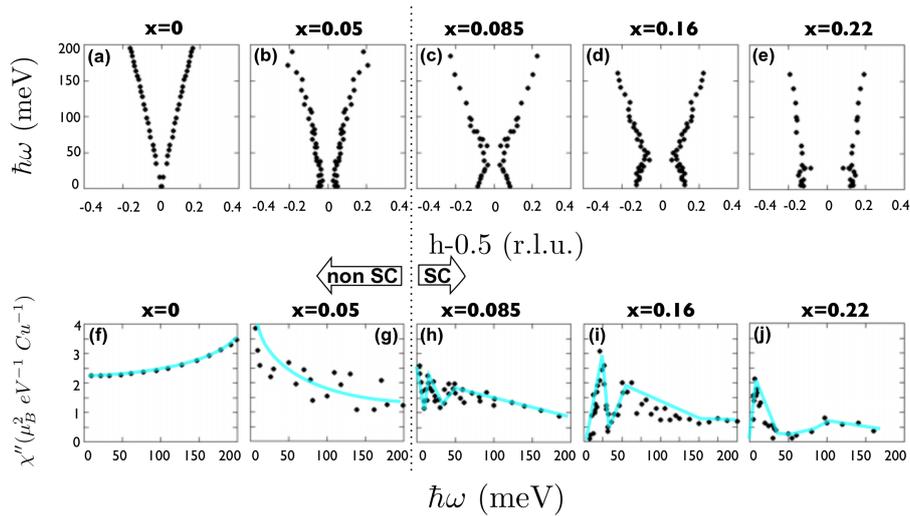


図 9: LSCO における分散関係及び局所動的磁化率 $\chi''(\hbar\omega)$ のホール濃度依存性 左から順に $x=0$ [4]、 0.05 [8]、 0.085 [12]、 0.16 [10]、 0.22 [11] のものである。 $x=0.05$ までは反強磁性絶縁体、及びスピングラス相であり、 $x=0.085$ から超伝導相である。

1.5 研究目的

1.5.1 温度変化測定によるモデルの峻別

ドーピング量に対して磁気励起がどのように変わることが研究されてきたのであるが、温度による磁気励起の変化を調べることはより深いレベルの理解を促進すると考えられる。

D. Reznik らは最適組成の YBCO の磁気励起の温度変化を測定した [26]。

超伝導転移温度以下の低温では RPA の計算から遍歴的な磁性を仮定することで磁気励起の全体像を再現出来た。転移温度以上の高温では、図 10 に示すように E_{cross} 以上の励起のみがしっかりと残っており、これは遍歴の立場からは導けない結果であった。よって彼らは高エネルギー部分は局在的な磁性の性格が色濃くでてしていると主張している。熱的状况を変化させることで、磁性の起源に関する情報が与えられる。本研究における目的は、低温ではっきりとした砂時計型が確認されているアンダードープ組成のものを高温まで上げ磁気励起全体の変化を詳細に探ることで砂時計型磁気励起の起源を明らかにすることである。

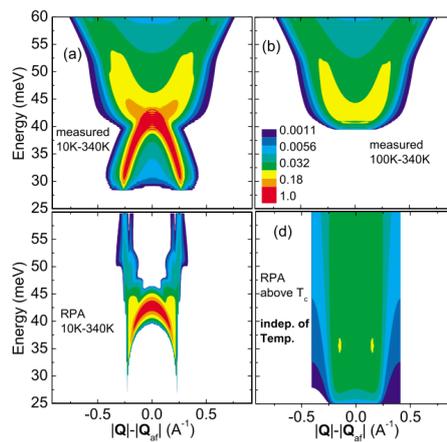


図 10: RPA から導かれる磁気励起の計算結果と実験との比較 (a)、(b) は実験結果である。分かりやすいように低温のスペクトルから高温のものを引いている。(a) は転移温度以下の低温で (b) は高温のものである。(c)、(d) が計算結果であり、(c) は低温で (d) が高温を示す。

1.5.2 銅酸化物における $\chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の絶対値導出

分散関係とともに重要な情報が動的磁化率 $\chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ である。中性子非弾性散乱実験ではこれを直接的に観測することが出来る。後述するように、近年の中性子分光技術の発展によって我が国でも絶対値 (4次元空間上での相対値ではなく $[\mu_B^2 \text{ sr}^{-1} \text{ eV}^{-1} \text{ Cu}^{-1}]$ の単位) を良い精度で導けるようになった。この情報からより踏み込んだ物理を議論出来る。例え

ば遍歴磁性の立場からは $\chi''(\hbar\omega)$ の E_{cross} 付近に強烈な共鳴ピークがみられる。局在的描像におけるスピン波では $\chi''(\hbar\omega)$ は一定となる。砂時計型の分散関係は様々なモデルから再現され得るが、絶対値の情報によってより妥当なモデルを推定できる可能性がある。

2 中性子非弾性散乱実験原理

ここでは、本研究でスピン・電荷関連の測定に用いた中性子散乱実験の原理について説明する。まず中性子散乱の特徴について述べ、中性子散乱実験から得られる情報について説明する。そして、中性子散乱実験における実験手法について原理を詳しく述べる。

2.1 中性子散乱の特徴

中性子散乱実験は以下に示すような利点を持っており、特に物質中のスピン構造を調べるのに適している。

- 中性子は電荷 0 で電氣的に中性なので電子雲によって散乱されず、原子核の核力によって散乱される。核散乱長は原子番号に比例している訳ではなく、原子番号の小さい原子も観測することが出来る。
- 中性子はスピン $S = 1/2$ を持っており、物質中の磁気モーメントと双極子-双極子相互作用して散乱する。したがって物質中のスピンの情報が得られ、物質の磁氣的な性質を調べることが出来る。
- 熱中性子の波長は数 Å 程度、エネルギーは～数百 meV であり、物質の格子の長さや、格子振動やスピン波の励起のエネルギーと同程度であるので、それらを精度良く測定することが出来る。

中性子散乱に限ったことではないが、散乱強度と微分散乱断面積との関係は次式のように与えられる。

$$I = A \times flux \times N \times p \times \frac{d^2\sigma}{dE d\Omega} \quad (1)$$

A は適当な規格化因子であり、 $flux$ は中性子線量、 N は標的数、 p は中性子透過率、 σ は全散乱断面積である。中性子の散乱確率は X 線などと比べて小さく、ほとんどは散乱を起こさずに素通りしてしまう。それゆえに bulk の性質は良く調べられる。さらに磁氣的相互作用による非弾性散乱ともなると、散乱を捉えるのは非常に難しい。式 1 の左辺を大きくして統計を上げる方法は 2 つある。一つは中性子線量 $flux$ を増やすことである。そしてもう一つは標的数 N を増やすことである。そのために巨大な単結晶試料を準備する必要がある。

2.2 中性子散乱断面積と $S(\mathbf{Q}, \omega)$

中性子散乱実験では、試料に入射した中性子に対して、あるエネルギー・運動量を持って散乱されてくる中性子の数をカウントすることによって微分散乱断面積を求める。散乱の前後において中性子が物質とやりとすエネルギーと運動量はそれぞれ保存則から

$$\mathbf{Q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f \quad (2)$$

$$\hbar\omega = \frac{\hbar^2}{2m_n}(k_i^2 - k_f^2) \quad (3)$$

が成り立つ。ここで m_n は中性子の質量で約 $940[\text{MeV}/c^2]$ である。

中性子はスピンを持つために、試料内部に磁気相関が発達しているとそれが原因で散乱される。微分散乱断面積 $\frac{d^2\sigma}{dE d\Omega}$ とスピン相関関数 $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ との関係は次式で与えられる。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{2(\gamma r_e)^2 k_f}{\pi g^2 \mu_B^2 k_i} S(\mathbf{Q}, \hbar\omega) |F(\mathbf{Q})|^2 \quad (4)$$

$$S(\mathbf{Q}, \hbar\omega) = \chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega) \frac{1}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}}} \quad (5)$$

$(\gamma r_e)^2 = 0.2905[\text{barn}]$ 、 $g = 2$ であり、 μ_B はボーア磁子である。 k_i, k_f はそれぞれ入射波数、散乱波数である。 $F(\mathbf{Q})$ は磁気形状因子と呼ばれるもので、モーメントを担う不対電子の空間密度分布をフーリエ変換したものに相当する。 $F(\mathbf{Q})$ は一般に遠い $|\mathbf{Q}|$ で小さくなっていく。式5はスピン相関関数と動的磁化率を結びつける。ある物質の磁気励起を理論から導く時には $\chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ を持ち出すことが多い。

2.3 TOF 法、4SEASON 概要

茨城県東海村 Japan Proton Accelerator Research Complex (J-PARC)、Material and Life Science Facility (MLF) に設置されているチョッパー型中性子分光器「四季」を用いて実験を行った。四季は運動量-エネルギー4次元空間上のスピン、格子励起現象を効率よく観測する4次元空間中性子探査装置である。図11に四季の概略図を示す。J-PARCにある3台

の大型加速器で陽子を 50GeV まで加速させ水銀ターゲットに衝突させることで核破碎によりパルス中性子線を発生させる。出てきたパルスは速度を一気に落とすためモデレーターを通り、図 11 手前ガイド管を通して試料に向かう。散乱を起こした中性子は後方の広範囲 detector で検出される。

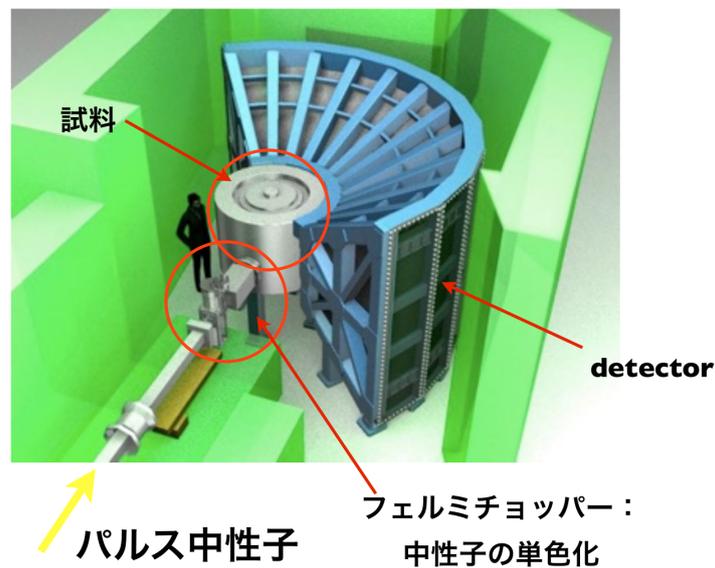


図 11: チョッパー型分光器「四季」の概略図 [27]

四季などのチョッパー型分光器と呼ばれる装置を用いた中性子飛行時間法 (TOF 法) について説明する。中性子の波長は、粒子の速度が早ければ短くなり、粒子の速度が遅ければ長くなる。チョッパー型分光器は機械的な方法で特定の速度の粒子を選び出すことで入射中性子のエネルギーを設定する方法である。チョッパー型分光器の概略図を 12 に示す。チョッパー型分光器では、フェルミチョッパーと呼ばれる中性子を通過させるスリットを開けたディスク型の中性子遮蔽体の回転速度を制御することで、狙ったエネルギーに入射中性子を単色化する。その後、試料に照射されて散乱した中性子をディテクターで検出する。ディテクターはメッシュ状にたくさん配置されており一度に大量のデータを取得できる。ここで、散乱せれてディテクターに到達する中性子には大きく分けて 2 種類存在す

る。一つは弾性散乱をしてディテクターに到達する中性子で、もう一つは非弾性衝突をしてディテクターに到達する中性子である。弾性散乱をしたものと非弾性散乱をしたものとでディテクターへの到達時刻は異なる。これを利用して中性子のエネルギー遷移を求めることが出来る。ここでは非相対論的な扱いで十分で、中性子源とフェルミチョッパーまでの距離を L_1 、フェルミチョッパーから試料までの距離を L_3 、試料からディテクターまでの距離を L_2 、中性子がディテクターでカウントされる時刻を t_d とすると、以下のような式で遷移エネルギーを求めることが出来る。

$$\hbar\omega = E_i - E_f = \frac{m_n}{2}(v_i^2 - v_f^2) = \frac{m_n L_2}{2} \left\{ \left(\frac{1}{t_e - t_s} \right)^2 - \left(\frac{1}{t_d - t_s} \right)^2 \right\} \quad (6)$$

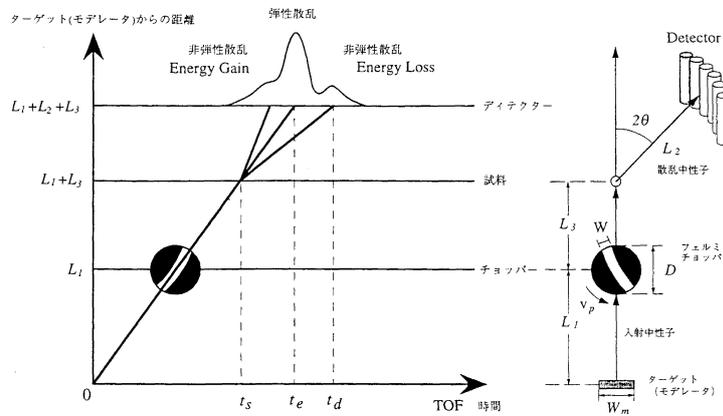


図 12: チョッパー型分光器の概略図 [29]

2.3.1 擬二次元物質における磁気励起測定と光学配置

四季は 4 次元探索装置と謳っている通り、試料を回転させながら測定することで逆格子空間点 h 、 k 、 l 、そしてエネルギートランスファー $\hbar\omega$ の 4 次元を測定することが出来る。しかし、本試料 LSCO のようにある方向の磁気相関が極端に弱いときにはより効率的に測定が可能である。c 軸方向の磁気相関が非常に弱いとき、逆格子空間では磁気シグナルは c 軸方向に一様に伸びている。これを磁気ロッドという。これを利用し、図

13のようにセッティングすることでc軸への射影成分をエネルギートランスファーに変換させる。こうすることで試料を回転させることなく測定が可能となる。ある砂時計型分散関係を仮定したとき、それと detect 面が交わったところで非弾性シグナルを detect する (図 14)。

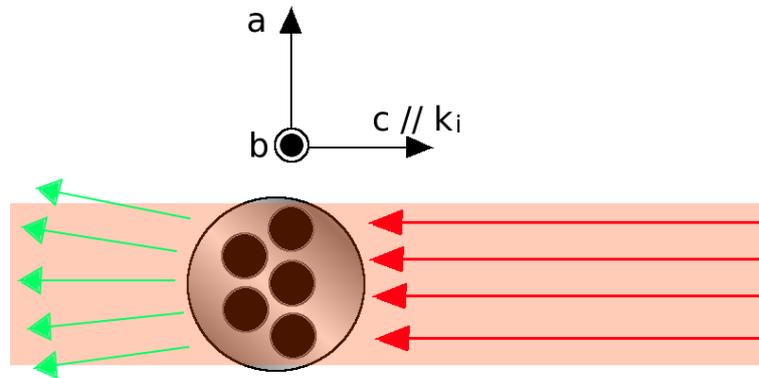


図 13: 試料の軸方向と中性子ビームの配置図

2.3.2 四季におけるエネルギー、空間分解能

TOF 測定においてエネルギー分解能は核破碎後に出てくる中性子パルスの分布、フェルミチョッパーの回転数から決まる。エネルギー分解能は

$$dE = \frac{1}{2} E_i \alpha \quad (7)$$

で与えられる。 E_i は入射エネルギーであり、 α は前述のパルス幅やチョッパーの回転数から求まるもので図 15 に示す。

これを用いて空間分解能を考える。

散乱ベクトル \mathbf{Q} の ab 面射影成分を \mathbf{Q}_{2D} とする。幾何学的な関係から

$$|\mathbf{Q}_{2D}| = k_f \sin 2\theta \quad (8)$$

が成り立つ。ここで k_f は散乱後の波数であり、 2θ は入射波数と散乱波数の間の角度である。入射エネルギーと散乱エネルギー、エネルギートランス

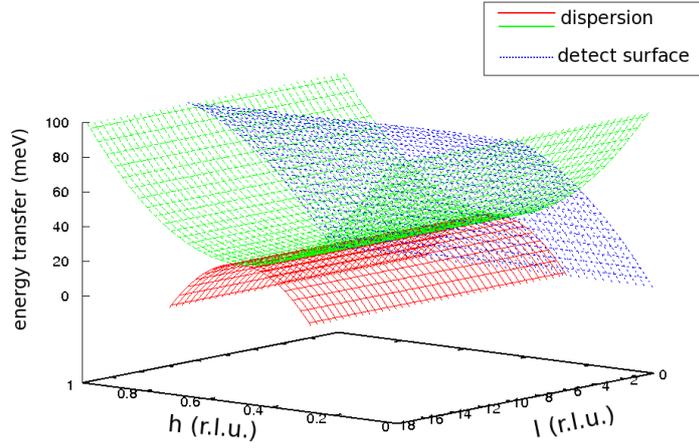


図 14: 分散関係と detect 面

ンスファー $\hbar\omega$ の関係式から

$$Q_{2D} = \sin 2\theta \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (E_i - \hbar\omega)} \quad (9)$$

となり、エネルギー分解能 dE を考慮すると

$$dQ = \frac{1}{2} \sin 2\theta \left[\sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (E_i - \hbar\omega + dE)} - \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (E_i - \hbar\omega - dE)} \right] \quad (10)$$

$$= \frac{1}{2} Q_{2D} \left[\sqrt{\frac{E_i - \hbar\omega + dE}{E_i - \hbar\omega}} - \sqrt{\frac{E_i - \hbar\omega - dE}{E_i - \hbar\omega}} \right] \quad (11)$$

dE と dQ の trajectory 上での関係を図 16 に示す。

このようにして計算したときの (0.5,0.5) での空間分解能をいくつかのエネルギーで示しておく (表 1)。

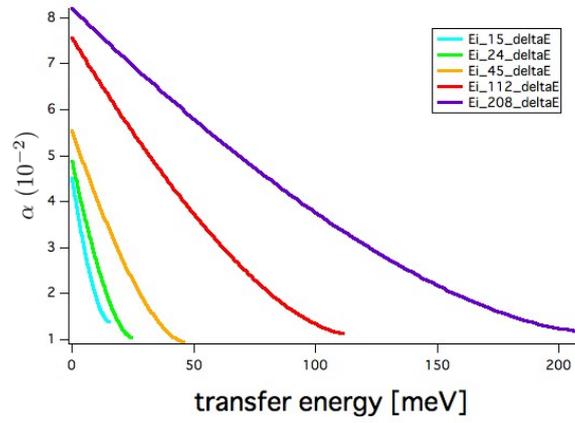


図 15: α 値

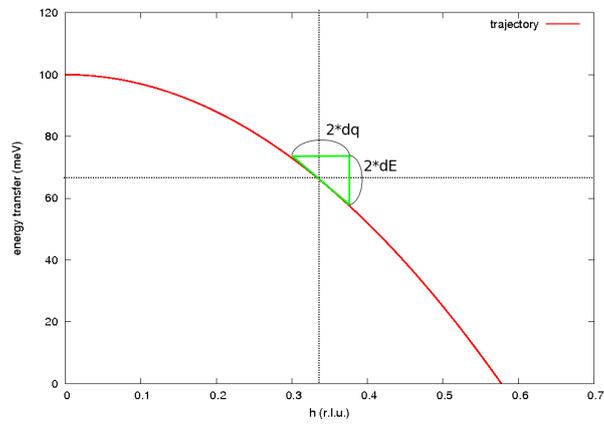


図 16: 一つの detector が検出する運動量-エネルギー平面上での trajectory

表 1: 空間分解能

E_i [meV]	$\hbar\omega$ [meV]	dQ [r.l.u.]
15	2	0.00775
45	10	0.00909
112	80	0.0123
208	150	0.0139

2.4 磁気励起解析手法

2.4.1 磁気形状因子

式4にあるように、微分散乱断面積から磁気相関を求めるにあたって、不対電子密度分布のフーリエ変換である磁気形状因子 $F(\mathbf{Q})$ が効いてくる。一般に $F(\mathbf{Q})$ は $|\mathbf{Q}|$ の増加にともなって小さくなる。本実験においては \mathbf{Q} の c 軸への射影である l 成分をエネルギートランスファーに変換しているため、高エネルギーでは遠い Q を使っていることになり、磁気形状因子が非常に強く効いてくる。Cu²⁺ にある $d_{(x^2-y^2)/r^2}$ 上の電子の空間分布を等方的だと仮定すると間違った結果を導いてしまう。

我々は S. Shamoto らが YBCO で用いた異方性のある磁気形状因子を考える [30]。

磁気形状因子は次のようなベッセル関数の線形結合で表現される。

$$F(\mathbf{Q}) = \langle j_0 \rangle - \frac{5}{7}(1 - 3 \cos^2 \beta) \langle j_2 \rangle + \frac{9}{56}(1 - 10 \cos^2 \beta + \frac{35}{3} \cos^4 \beta) \langle j_4 \rangle$$

$\cos \beta$ は測定している \mathbf{Q} ベクトルの大きさと、 l 成分である Q_z の比である。

$$\cos \beta = Q_z / |\mathbf{Q}|$$

各ベッセル関数の具体的標識は以下。

$$\begin{aligned} \langle j_0 \rangle &= 0.0232e^{-34.969s^2} + 0.4023e^{-11.564s^2} + 0.5882e^{-3.843s^2} - 0.0137 \\ \langle j_2 \rangle &= s^2(1.5189e^{-10.478s^2} + 1.1512e^{-3.813s^2} + 0.2918e^{-1.398s^2} + 0.0017) \\ \langle j_4 \rangle &= s^2(-0.3914e^{-14.74s^2} + 0.1275e^{-3.384s^2} + 0.2548e^{-1.255s^2} + 0.0103) \\ s &= \frac{|\mathbf{Q}|}{4\pi} \end{aligned}$$

この関数においては c 軸方向のみ特別になっており、a-b 軸面内においては等方的である。

2.4.2 シグナル形状考察、Q 積分

スピン 2 体相関 $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ においてエネルギーを固定することで \mathbf{Q} 分布が得られ、ピークをフィッティングすることでピークの幅、ピーク間距離

の情報を引き出す。

我々はピーク形状を精密に捉えるため、擬似的に2次元的な fitting を行った。詳しくは APPENDIX に示す。二次元的なフィッティングを行った理由は、統計が充分でないために等価であるはずの h、k 方向 cut のピークプロファイルが微妙に異なるため、それを平均化して見た方が良いからである。もし h、k がもともと等価でなければ適用できないのだが、本試料で a、b 軸の異方性は出てこないと考えている。

得られた磁気シグナルを適宜シグナルの形状に合う関数でフィットし、各パラメータを得た。関数の概形を図 17 に示す。

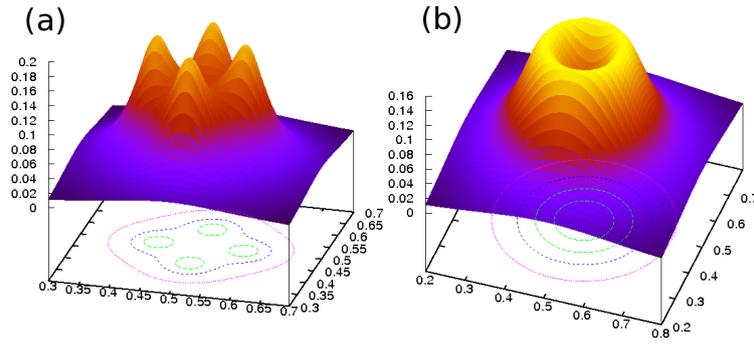


図 17: 関数の概形

- 4つの格子非整合ピーク

$$\begin{aligned}
 S(\mathbf{Q}, \omega) = \chi_{\delta}(\omega) \kappa^2 \left\{ \frac{1}{(h - 0.5 - \delta)^2 + (k - 0.5)^2 + \kappa^2} \right. \\
 + \frac{1}{(h - 0.5 + \delta)^2 + (k - 0.5)^2 + \kappa^2} \\
 + \frac{1}{(h - 0.5)^2 + (k - 0.5 - \delta)^2 + \kappa^2} \\
 \left. + \frac{1}{(h - 0.5)^2 + (k - 0.5 + \delta)^2 + \kappa^2} \right\} \quad (12)
 \end{aligned}$$

- (0.5,0.5) を中心としたシングルピーク

$$S(\mathbf{Q}, \omega) = \chi_\delta(\omega) \kappa^2 \frac{1}{(h - 0.5)^2 + (k - 0.5)^2 + \kappa^2} \quad (13)$$

- (0.5,0.5) を中心としたリング

$$S(\mathbf{Q}, \omega) = \chi_\delta(\omega) \kappa^2 \left[\frac{1}{(\sqrt{(h - 0.5)^2 + (k - 0.5)^2} - \delta)^2 + \kappa^2} + \frac{1}{(\sqrt{(h - 0.5)^2 + (k - 0.5)^2} + \delta)^2 + \kappa^2} \right] \quad (14)$$

$\chi_\delta(\omega)$ はシグナルのピークの高さであり、 κ はピークの半値半幅、 δ はピーク位置の (0.5,0.5) からのずれを表す。砂時計型磁気励起において、低エネルギーでは4つの格子非整合ピーク、高エネルギーではリング状の関数を適用している。Vignolleらは Sato-Maki function [31] という複雑な Lorentzian の関数を使ってシグナル形状を表現している。使う関数によってピーク形状の捉え方は変わってくるので比べる際には注意が必要である。実際に Sato-Maki function でフィッティングした所、積分値に大きな差ができてしまった。これについても詳しくは APPENDIX で検討する。

2.5 試料作成、評価

中性子散乱実験、とりわけ非弾性実験を行うためには巨大な単結晶が必要である。Traversing Solvent Floating Zone(FZ)法という手法で大量の単結晶育成を行った。

2.5.1 FZ 法原理

FZ法とは、原料となる多結晶体を赤外線熱で融かし、再結晶化することで単結晶試料を育成する方法の事である。図18に双楕円型FZ炉の概略図と育成過程の概念図を示す。結晶育成に当たり下部には種となる結晶を置き、上部には多結晶体の原料棒を配置する。ランプから発生する赤外線を楕円鏡で中心部分に集光することで、種結晶と原料棒を溶融させて接続する。溶けた融帯部分は原料棒と種結晶の間の表面張力により、ある程度の粘性があれば垂れ落ちずに保たれる。原料棒と種結晶をゆっくりとした速度で下方向に送ることで、種結晶の情報(結晶性、軸方向等)を引き継いだ原料棒組成の結晶が析出する。こうして結晶育成を進めていくことで大型の単結晶を得ることが出来る。融帯部分は種結晶と原料棒に支えられており、容器が必要ないので不純物の混入が少ない点、ゆっくりと一定速度で育成できるので品質が安定する点が利点として挙げられる。また育成環境を石英管で囲むことで、育成中に飛散してしまう元素などが楕円鏡を汚すことを防ぎ、管内に酸素やアルゴンといったガスを流すことで育成雰囲気を変えることが出来る。

2.5.2 粉末結晶作成

FZ法で結晶育成を行う際に使用する原料棒を作製するために、まずは粉末多結晶試料の合成を固相反応法で行った。表2に示した粉末状の酸化物を目的とした試料の化学組成に合わせて秤量した。原料粉の中で La_2O_3 は水との反応性が高く空気中の水分を吸収し易いため、 900°C で12時間の仮焼きをして水分を飛ばした直後に素早く秤量を行った。秤量後は播潰機を用いてよく攪拌した後で、坩堝に入れて12時間焼成して取り出し、再度攪拌するという作業を2回繰り返した。

次に原料棒作製の手順について説明する。まずは、ラテックススリーブ(ラテックス製のチューブ)を内径 $10\text{mm}\phi$ のプラスチック製の筒に通して片方の口を結び、チューブの中に原料粉を十分密に詰める。その後、30

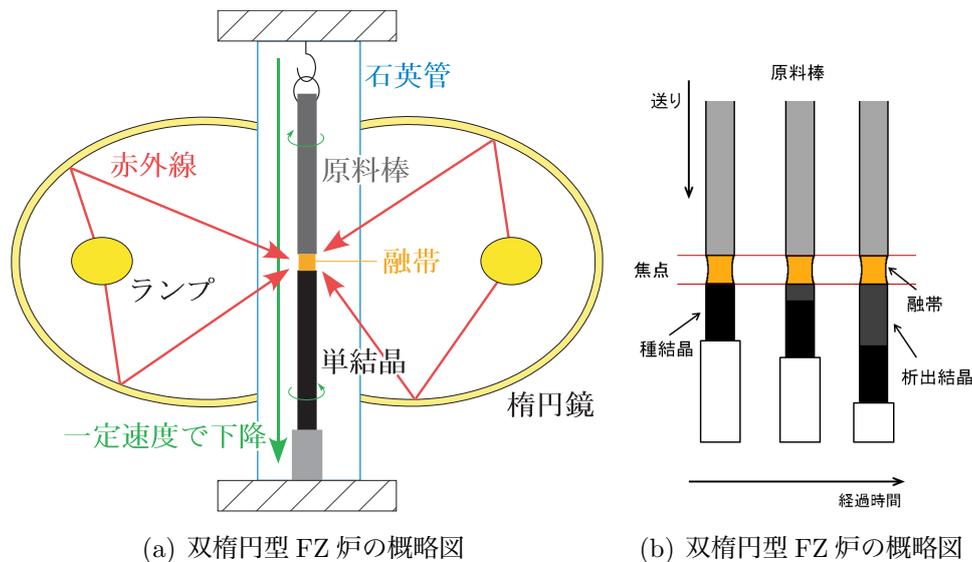


図 18: FZ 炉の概略図と育成過程の概念図

表 2: 試料合成に使用した原料粉の純度と製造元

原料	純度	製造元
La ₂ O ₃	99.9%	日本イットリウム (株)
SrCO ₃	99.99%	(株) レアメタリック
CuO	99.99%	(株) レアメタリック

分程真空引きをしてもう片方の口を結び、静水圧により 20-30MPa の圧をかけて押し固めてから取り出すことで、棒状に成形する。成形後 900°C で 12 時間仮焼きを行い、ドリルで原料棒の一端に穴を空けて Pt 線を通した後に 1250°C で 24 時間吊るし焼き (本焼き) を行った。ここで Pt 線を用いて吊るし焼きをすることにより、試料の坩堝への付着や不純物の混入を防ぐことが出来る。以上の過程を経て FZ 法による単結晶育成に用いる原料棒が完成する。

2.5.3 単結晶育成

作製した原料棒を用いて La_{1.90}Sr_{0.10}CuO₄ の単結晶育成を FZ 法で行う。その際粉末結晶の LSCO と CuO₂ を 8.5 : 1.5 の mol 比で混合したものを

Solvent として育成することで目的の組成を得た。原料棒、種結晶の送り速度は 1[mm/hour] である。育成した結晶の写真が図 19(b) である。合計 5 本で 71.89g(10.21cc) 育成した (図 19(a))。その後酸素欠陥を補うために酸素雰囲気下で 900°C で 24 時間アニールを行った。

2.5.4 x 線粉末結晶回折

育成した試料を評価するため x 線粉末結晶回折を行った。作製した単結晶試料について、一部を切り出して乳鉢で粉末状にすりつぶし、粉末 X 線回折実験によりピークの確認および格子定数の評価を行った。試料は X 線回折装置専用のガラス板の溝に押し固めて測定を行った。実験に用いた装置は Rigaku 製の RINNT2500/PG で、入射 X 線には CuK α 線を用い、X 線の出力は 40kV/200mA とした。La_{1.90}Sr_{0.10}CuO₄ の X 線回折スペクトルを図 20 に示す。結晶構造は測定を行った室温において正方晶の I4/mmm で、全てのピークを指数付けすることができ、単相であることを確認した。続いて格子定数を決定のため CeO 粉末を標準試料として混合させ RIETAN-FP[32] を用いて Rietveld 解析を行った。混合物の回折パターンと、計算結果、その差を図 21 に示す。

格子定数は正方晶で、 $a = b = 3.7868(3) \text{ [\AA]}$ 、 $c = 13.205(2) \text{ [\AA]}$ となった。

c 軸長と Sr 濃度との関係 (図 22) が過去の文献 [7] から分かっており、本試料の Sr 濃度が 0.10 となっていることが確かめられる。

2.5.5 磁化率測定

SQUID 磁束計による磁化率測定で磁化率の温度依存性を調べた。実験は、FZ 法で作製した (単) 結晶試料を切り出して、ストロー内に固定した状態で行った。測定はゼロ磁場で 5K まで冷却後、100Oe の外部磁場を印加して昇温しながら 1K 刻みで 60K まで計測 (ZFC) していき、その後降温しながら 1K 刻みで 5K まで計測 (FC) を行った。試料は、重さ約 300mg のものを使用した。測定には Quantum Design 社の SQUID 型磁化率計を用いた。磁化測定によりマイスナーシグナルが確認され T_c は onset で 28.2K、転移幅は 2.6K 程度であることが分かる (図 23(a))。T_c から本試料が x=0.10 の組成であることが確かめられる (図 23(b))[7]。



図 19: (a) 育成した単結晶 5 本をアSEMBルしたもの (b) 単結晶一本の図

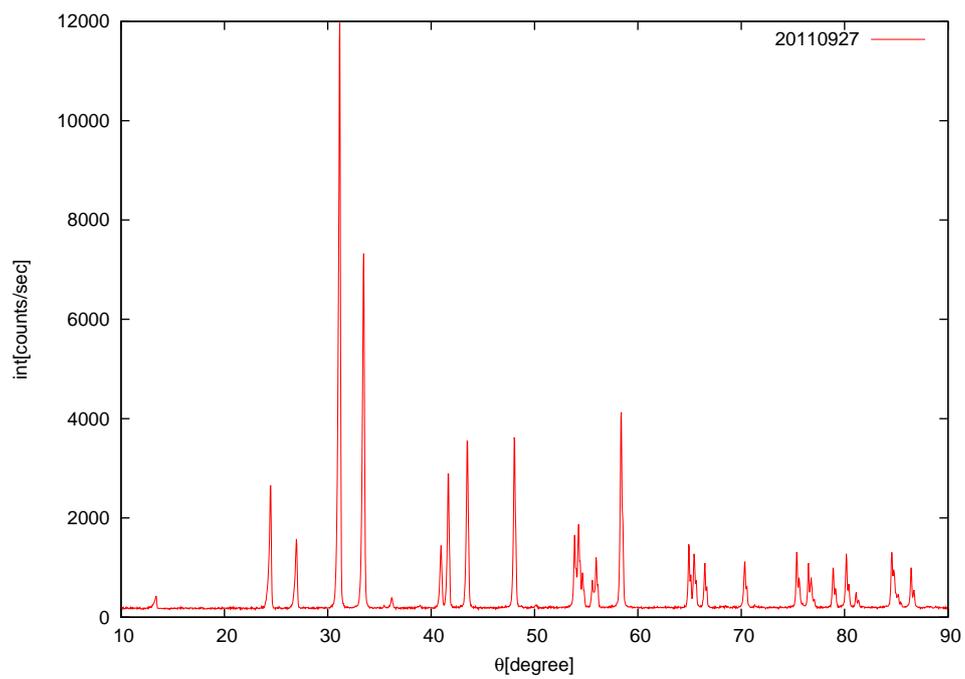


図 20: LSCO($x=0.10$) の x 線回折パターン、全てのピークで指数付けされる。

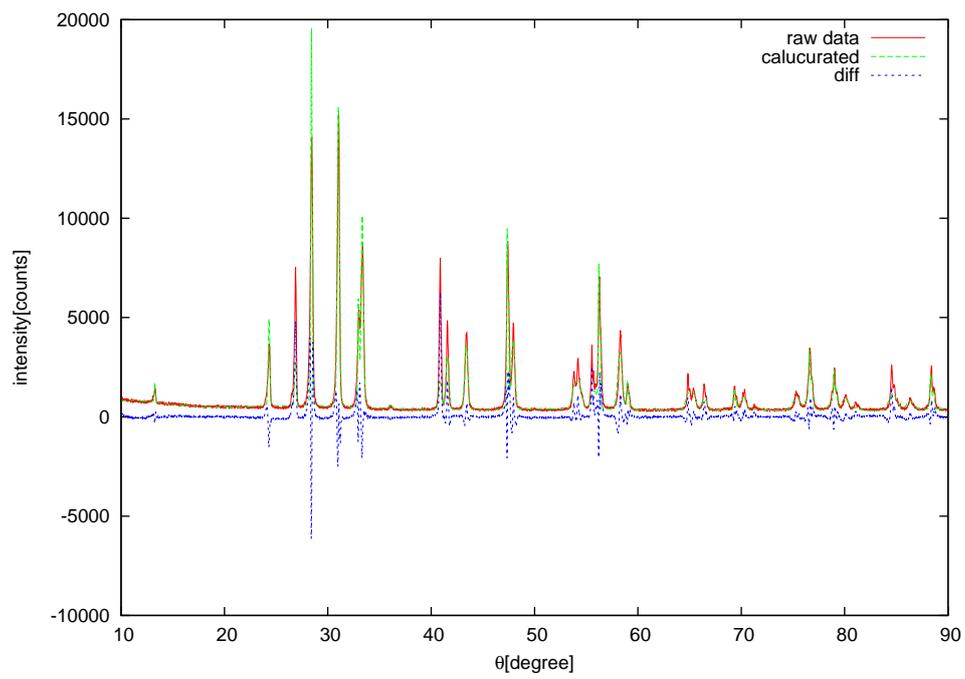


図 21: CeO を混合させパターンを取ったもの、RIETAN-FP による計算結果 (calc) 及び生データとの差 (diff) を示す。

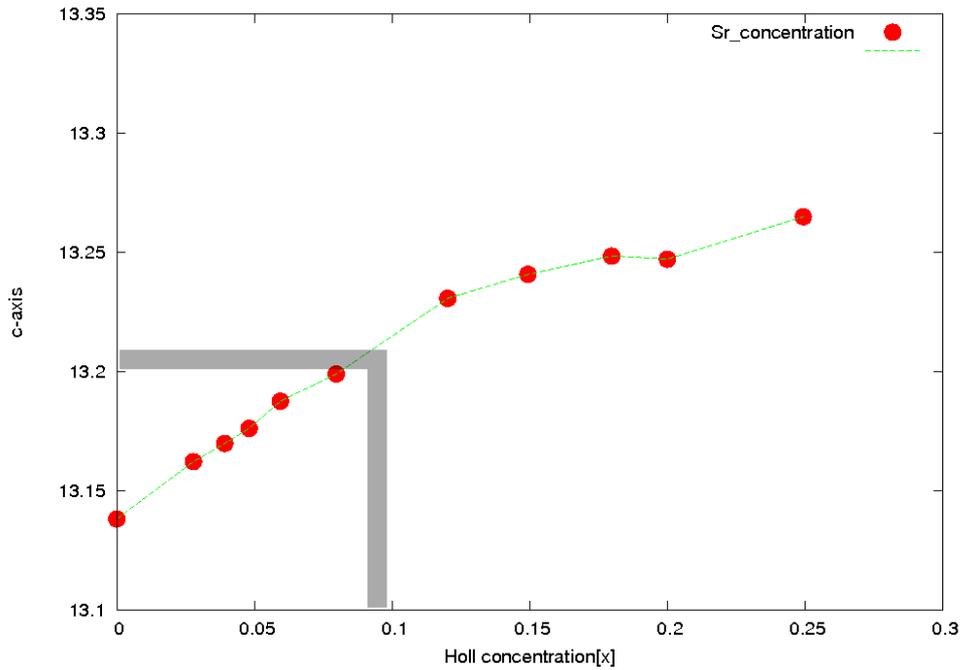
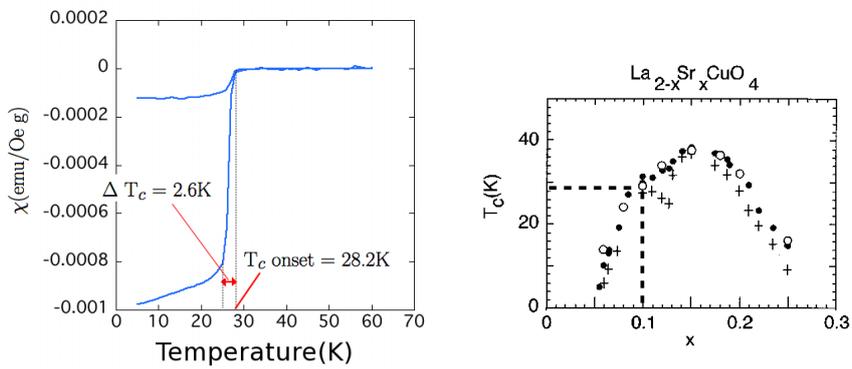


図 22: c 軸長と Sr 濃度との関係を示す。c=13.2 より x=0.10 の組成であると確認出来る。



(a) 磁化曲線

(b) $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ 超伝導相図

図 23: マイスナーシグナルと超伝導相図

2.5.6 x線、高エネルギー γ 線を用いたアゼンブル

中性子散乱実験をするため、5本全ての結晶軸を合わせる必要が有る。まず研究室のラウエ写真から軸方向を同定し、さらに東京大学物性研究所の γ 線ラウエ写真を利用して最終的なアゼンブルを行った。 γ 線を用いたのは、高エネルギーのために試料をよく透過しドメインの有無が確かめられるからである。図24、図25、はx線ラウエパターンであり、図26は γ 線で得られる写真である。試料が単一ドメインで軸方向とビーム方向が良く一致しているとパターンは中心に集中する。5本をすべてアゼンブルしたものが図19(a)である。

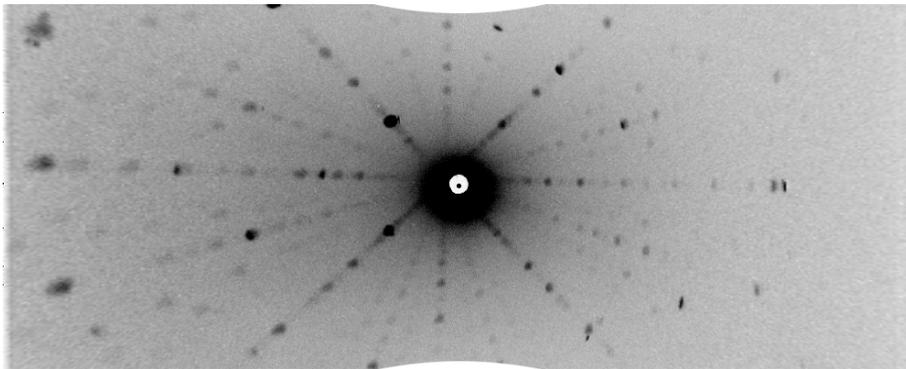


図 24: c軸にほぼ平行にx線を当てたときのラウエパターン

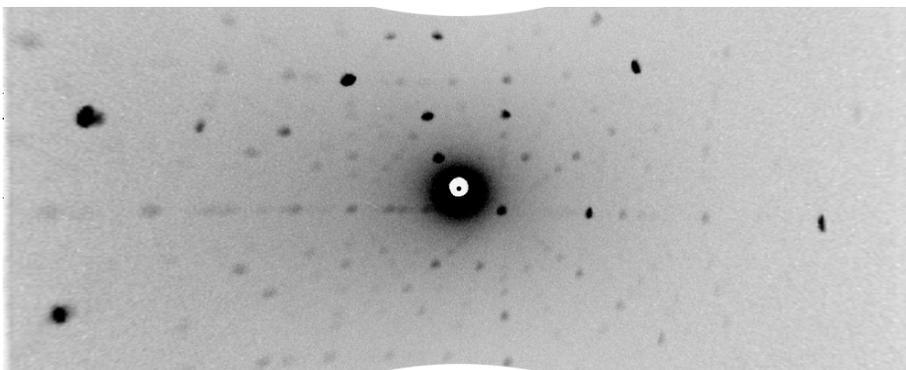


図 25: a軸にほぼ平行にx線を当てたときのラウエパターン

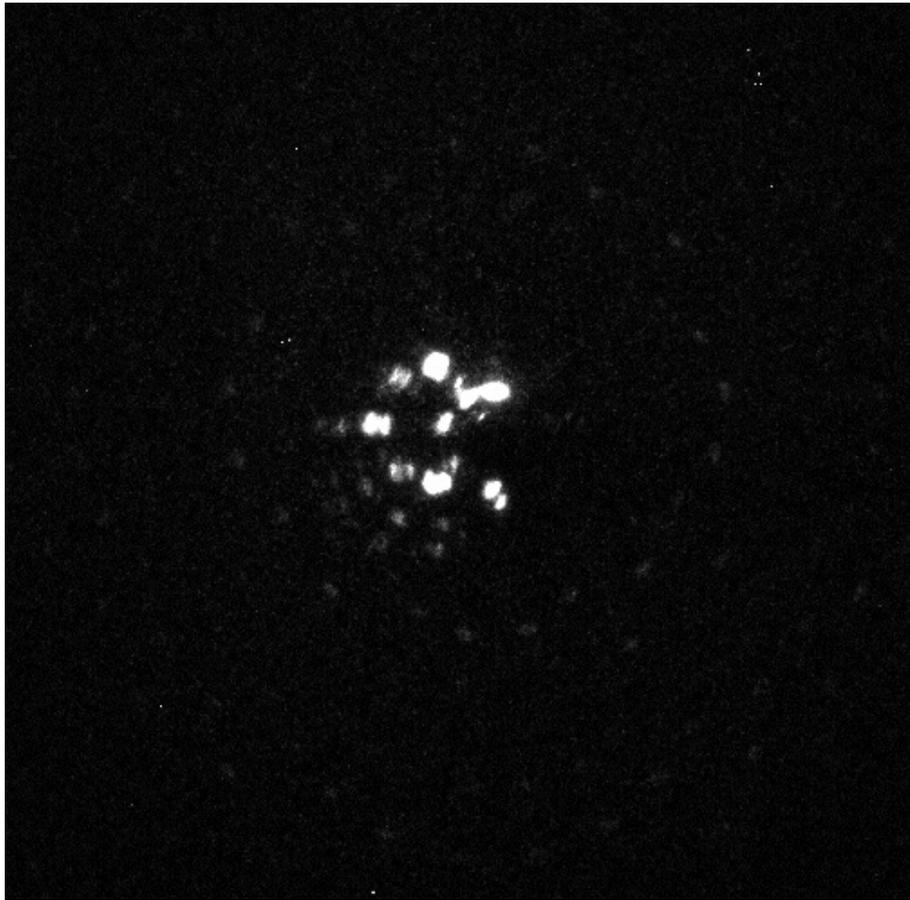


図 26: c 軸とビームを極めて平行にしたときの γ 線で取ったラウエパターン

2.5.7 中性子核散乱 Bragg ピークによるモザイクネス

核ブラッグ散乱ピークの幅から試料の collective mosaicness を見積もる。白色中性子を試料に当て、回折パターンをとり、ある一つの Bragg ピークの幅をもって collective mosaicness とする。図 27 にラウエパターン図を示す。これは c 軸に平行にビームを当てており、水平方向が tetragonal で $(1,1,0)$ であり、鉛直方向が $(1,-1,0)$ である。この図できれいな 4 回対称が現れていることが分かる。ある一つの Bragg ピークを水平方向、垂直

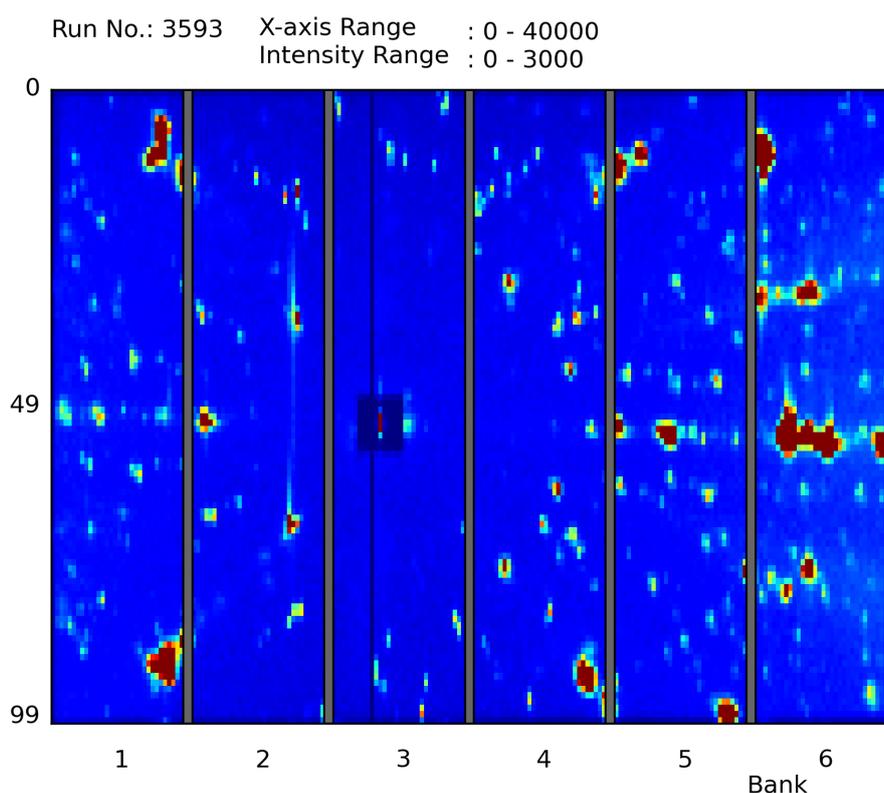
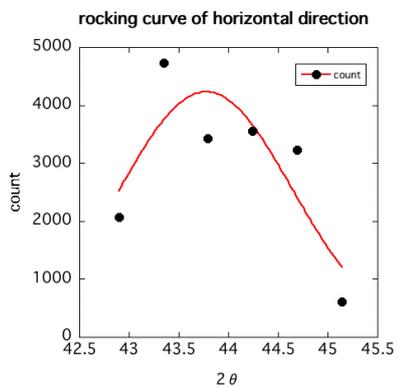
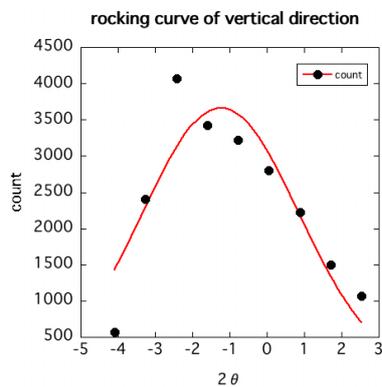


図 27: 白色中性子ビームを c 軸と平行に当てたときのラウエパターン図。水平方向が tetragonal で $(1,1,0)$ であり、垂直方向が $(-1,1,0)$ である。

方向に cut したものが図 28 である。これより、水平方向のモザイクネスは 1.042° 、垂直方向には 2.039° である。



(a) 水平方向の Bragg ピーク



(b) 垂直方向の Bragg ピーク

図 28: あるひとつの核 Bragg ピーク幅

3 中性子非弾性散乱実験結果

3.1 実験条件詳細

四季では *RRM* 法 [28] という特殊な中性子分光方法を採用している。2枚のディスクチョッパー、フェルミチョッパーの速度、及び位相を調整することで以下にまとめるような入射エネルギー (E_i) を一斉に得ることが出来る (表3)。通常は一回の測定で一つの入射エネルギーしか使えないのに対してこの方法は複数のエネルギースケールの励起を一気に捉えられる。

表 3: フェルミチョッパーの振動数と得られる E_i

	振動数 [Hz]	E_i [meV]
A	250	15.4, 24.6, 45.8, 112.6
B	300	24.2, 39.8, 76.9, 208.9
C	250	21.8, 39.0, 88.1, 356.6

アルミ治具の上にアゼンブルされた試料はビーム口径 ($4\times 4[\text{cm}^2]$) の中心に来るようにセットされた。アルミからの incoherent scattering を防ぐため試料台は厚さ約 $1[\text{mm}]$ の Cd 板で覆った。測定温度は 5K と 50K から 350K まで 50K 刻みで測定した。He 冷凍機によって温度調整され、温度を上げる際には試料台の底につけた熱電対を通してヒーターで暖めており、アルミを通して温度を制御していることになる。Lake share 社製の温度計を試料台の底につけており、その値が試料の温度と一致していると考えている。 $5\sim 300\text{K}$ のときには試料を裸にしているが、 350K のみ、放射熱を防ぎ温度を良く保つため試料全体をアルミホイルで覆っている。 5K 300K までの測定時、ビームパワーは 100kW で、 350K を測定したときは 200kW であった。追加実験で 350K の高エネルギーまで測定したときは 275kW であった。時間の都合により、 $50\sim 300\text{K}$ の間では 200meV までの高エネルギー測定はしていない。

3.2 シグナルの温度変化

2.2に示したように中性子で得られる微分散乱断面積とスピン2体相関関数は次のような関係がある。(なお、微分散乱断面積の強度はLSCO自身のincoherent scatteringを用いて規格化されている。規格化の方法はAPPENDIXに示す。)

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{2(\gamma r_e)^2 k_f}{\pi g^2 \mu_B^2 k_i} S(\mathbf{Q}, \hbar\omega) |F(\mathbf{Q})|^2 \quad (15)$$

$$S(\mathbf{Q}, \hbar\omega) = \chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega) \frac{1}{1 - e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}}} \quad (16)$$

図29は $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ のいくつかの温度での定エネルギースライスである。我々は正方晶表記を採用しており、 $a^*=b^*=1.660\text{\AA}^{-1}$ 、 $c^*=0.475\text{\AA}^{-1}$ である。今後この値を単位として波数をreciprocal lattice unit (r.l.u.)で表す。 h はCu-O-Cu方向であり、 k はCuO₂面内でそれに垂直な方向、 l は積層方向である。カラーは強度に対応しており、強度の単位は[mbarn sr⁻¹ meV⁻¹ Cu⁻¹]である。各エネルギーごとにカラースケールは同一にしており比較が可能である。またこの値は磁気形状因子及びボーズ因子の補正は行っていないので正確には $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ ではないことを断っておく。最低温度5Kにおいて、4meVで(0.5,0.5)の周りに4つのピーク(0.5± δ ,0.5), (0.5, 0.5± δ)があったものが、エネルギーを上げるにつれだんだんと $\mathbf{Q}_{AF}=(0.5,0.5)$ に集まって行き、40meVあたりで最もQ平面での広がりが狭まる、このエネルギーが E_{cross} であり、そしてさらなるエネルギー上昇により輪をつくりながら広がって行く。**典型的な砂時計型励起が低温で確認された** [19](1.3)。図の右の方へ、温度変化に着目すると、4meVでは温度を上げるにつれ4つに分かれていたピークは \mathbf{Q}_{AF} に近づいていき、かつ幅が広がる、350Kでは \mathbf{Q}_{AF} を中心とした1つのブロードなピークとなる。同じ E_{cross} 以下である10meV、18meV、40meVでも温度変化によりシグナルがぼかされていることが分かる。一方で、 E_{cross} 以上である80meVではピークの形状はあまり温度変化しないように見える。150meVでも80meVと同様な傾向である。

$S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の定エネルギースライスにおいて、 \mathbf{Q}_{AF} を通り h 方向にcutして得たピークプロファイルを図30に示す。先にカラープロットから述べたピークの温度変化の特徴がよく分かる。そして2.4.2に述べたような方

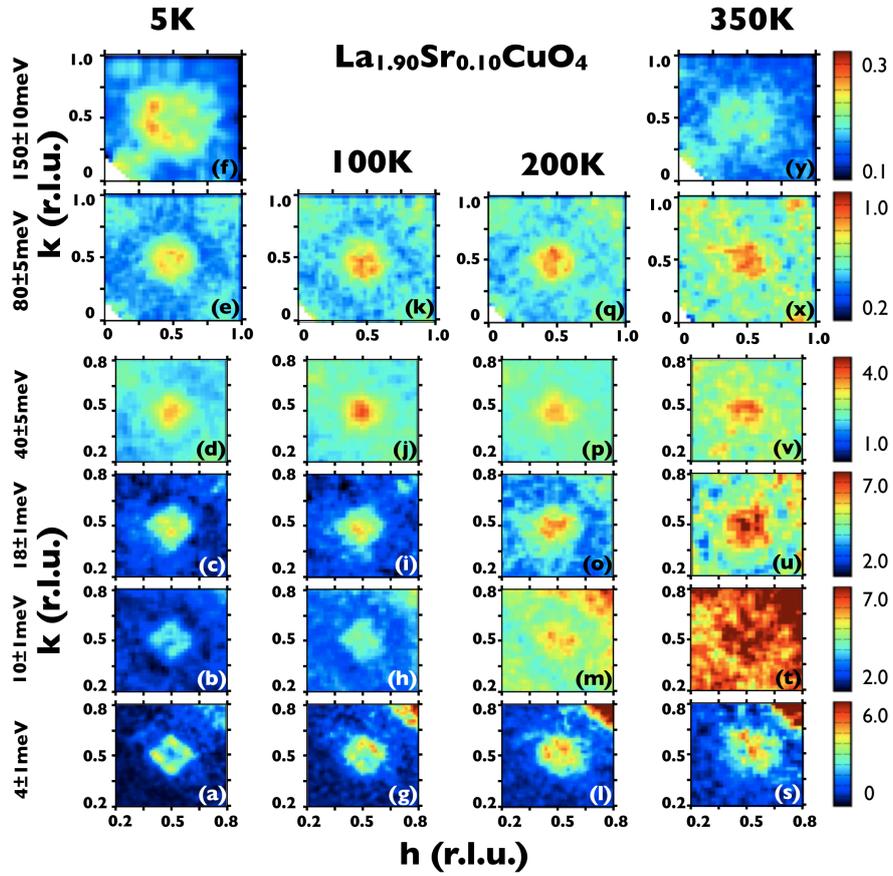


図 29: いろいろなエネルギー、温度での $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の定エネルギースライスを示す。強度の単位は $[\text{mbarn sr}^{-1} \text{ meV}^{-1} \text{ Cu}^{-1}]$ である。(a)-(f) は 5K のシグナルであり砂時計型励起が観測されたことが分かる。(g)-(k) は 100K、(l)-(q) は 200K、(s)-(y) は 350K である。

法でピークのフィッティングを行いピークの半値半幅 κ とピーク位置の反強磁性位置からのずれ (格子非整合度) δ を求め、その温度依存性を図 31 に示す。ここで、 $\delta > \kappa$ のときはスプリットしたピーク形状で、 $\delta < \kappa$ となるときは見かけ上ひとつのピークとなることに注意しておく。

ここでフィッティング関数について少し触れておく。我々はピークの形状に合うように最もふさわしいと考えられる関数をエネルギー、温度ごとに使い分けて適用させた。低温、低エネルギーでは \mathbf{Q}_{AF} の周りの 4 つの Lorentzian ピークの重ね合わせ $(0.5 \pm \delta, 0.5)$ 、 $(0.5, 0.5 \pm \delta)$ を仮定しているのだが、B. Vignolle や O. J. Lipscombe らが使っている Sato-Maki function[31] のように 4 つのピーク間をつなぐ尾根までは表現できていない。Sato-Maki function は 4 つのピーク、シングルピーク、リング状ピークまで一つの関数で表現出来る非常に強力な関数である。我々がシングルピーク、またリング状のピークを仮定したときには彼らの関数とほとんど同じような振る舞いであると考えて良い。また、彼らは高エネルギーで低エネルギーから $\pi/4$ だけ回転したようなシグナルを考えているが、我々は高エネルギー領域ではすべてリング状の関数を適用した。比較するためには我々も Sato-Maki function を使ってフィッティングを行うのが良いのであるが、ピークの高さ、幅、位置、形状を特徴付けるパラメータ、全てをフリーにしてフィッティングしたところ Sato-Maki function では収束しなかった。形状パラメーター、及びピーク位置 δ になんらかの仮定をして固定したとしても、フィット結果から出てくるピークの幅は直感的な半値半幅よりもはるかに大きくなってしまったので関数をケースバイケースで使い分ける他に方法がなかった。また background に関してであるが、 \mathbf{Q}^2 に比例するようなものを仮定し、さらに phonon のブランチに当たったときはそれをマスクしている。 \mathbf{Q}^2 に比例する background は磁気シグナルにあたらぬ Magnetic Brillouin Zone の境界ぎりぎりでもそれが一致することを確認しており、その妥当性を補償している。

4meV において、温度を上昇させることでそのピーク位置は近づいて、かつピーク幅が広がっている (図 31(b))。200K までは 2 つのピークが確認出来るが、300K ではもはやダブルピーク構造は見られない。低エネルギーにおける、このような温度変化の特徴は LBCO($x = 1/8$) においても確認されている [22]。後述するようなストライプモデルに立ったときには、温度上昇によりストライプが乱れることでこの結果がシミュレーションされる。

$k_B T$ のスケールで温度ゆらぎが $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の攪乱として著しく効いてくる

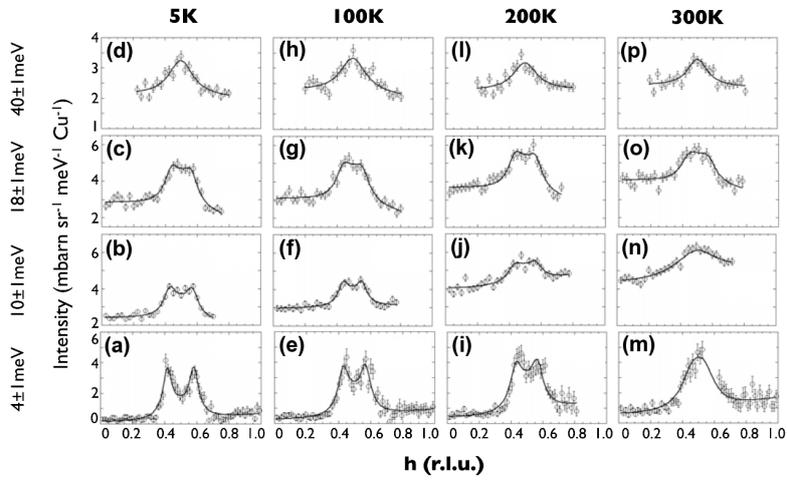
ものと予想出来るが、 $4[\text{meV}]/k_B \sim 46[\text{K}]$ であり、そこを境としてピーク形状が変化しているとは思えない(図30上段(a),(e),(i),(m)及び図31(b))。さらにエネルギーが異なるにも関わらず、2meV、10meVでも4meVとほぼ同様に、200~300K付近でピーク形状の変化が確認されるからも熱揺らぎの効果のみでピーク形状の変化を説明するのは難しいと考えられる。

対して80meVにおける温度変化を見ると、ピークの大きさ、ピーク位置、そして幅にいたるまでわずかな変化であることが分かる(図30下段(a),(c)及び31(e))。そして、 $k_B T$ のスケールの攪乱をほとんど受けないであろう150meVのシグナルであるが、ピークの形状はほとんど変化していないのだが、ピークの高さは5Kにくらべ350Kの方は半分程度に小さくなっている(図30)。高エネルギーのピークの温度変化は近傍組成である $x=0.085$ ではとても小さく[12]、350Kという高温において初めて見出された変化だと捉えられる。

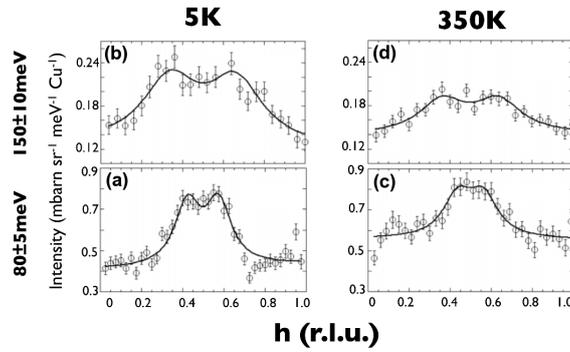
3.3 分散関係の温度変化

フィッティング結果より得られた分散関係が図32である。シンボルは格子非整合度を表し、水平方向のエラーバーは半値半幅である κ 、垂直方向のエラーバーは積分したエネルギーの幅である。5Kにおいてはっきりとした砂時計型を示していることが分かる。100Kでも同様であるが、300Kでは低エネルギー領域が変調を受け、 \mathbf{Q}_{AF} へと集まる低エネルギー部分の分散がなくなってしまう、もはや E_{cross} を定義出来ない。一方で E_{cross} 以上の分散はほとんど変化がなくなため、温度を上昇させるにつれ分散関係の形状が砂時計型から「Y」型へと変化したことがわかる。 **E_{cross} を境にして分散の変化が異なることから、磁気励起2成分の存在が伺える。**この温度変化が起こったのは図31より300K付近であることが分かる。

角度分解光電子分光(ARPES)などから、銅酸化物では転移温度よりはるか高温で波数空間で $(\pi,0)$ 、 $(0,\pi)$ 方向において状態密度が抑制される擬ギャップ現象が知られている。擬ギャップが成長しだす温度を擬ギャップ温度 T^* という。本組成($x = 0.10$)における擬ギャップ温度はARPESから調べられており、おおよそ270Kである[42]。分散関係の形状と擬ギャップとの関係を伺わせる結果となった。



(a) E_{cross} 以下の cut 図



(b) E_{cross} 以上の cut 図

図 30: 上段は E_{cross} 以下の低エネルギー部分の cut 図であり、下段は E_{cross} 以上の高エネルギー部分の cut 図である。 E_{cross} 以下では温度上昇とともにダブルピーク同士が近づいて行き、なおかつピーク幅がブロードになっていることが分かる。特に 4meV では分かりやすい。 E_{cross} 以上の 80meV ではピークの高さ、幅、格子非整合度のどれも温度変化が乏しい。 150meV では幅、格子非整合度に大きな変化はないものの、ピークの高さが著しく下がっている。

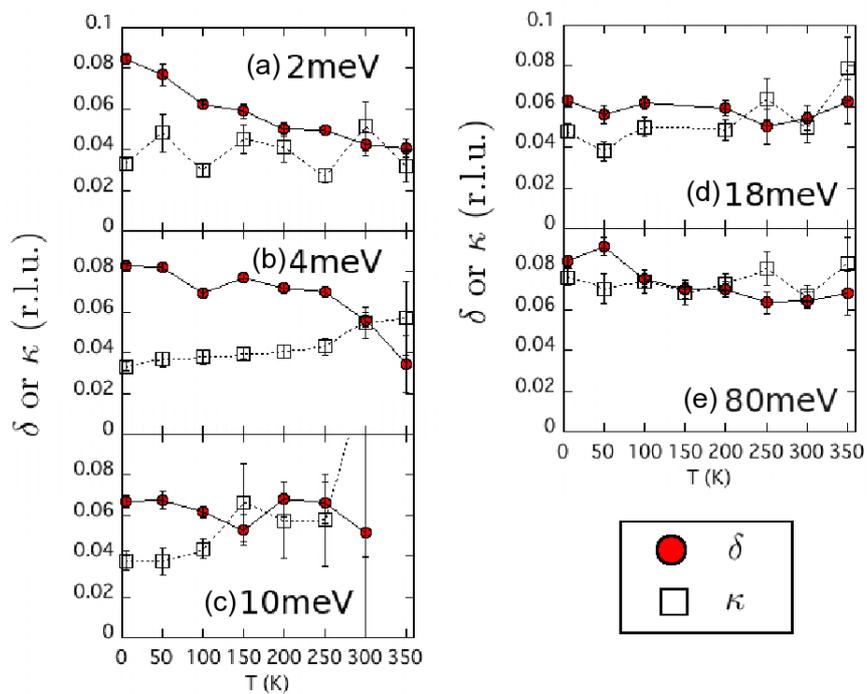


図 31: 低エネルギー領域で4つのピーク $(0.5 \pm \delta, 0.5)$, $(0.5, 0.5 \pm \delta)$ を仮定したおり (a)-(d)、高エネルギー領域では ring 状のものを仮定している (e)。ピークの半値半幅 κ と格子非整合度 δ の温度依存性を示す。 $\kappa > \delta$ となったときは見かけ上1つのピークとなる。低エネルギー領域では、温度上昇に伴い4つピークが近づきながらピーク幅が広がっていき、高温では1つのピークに見えることを示している。

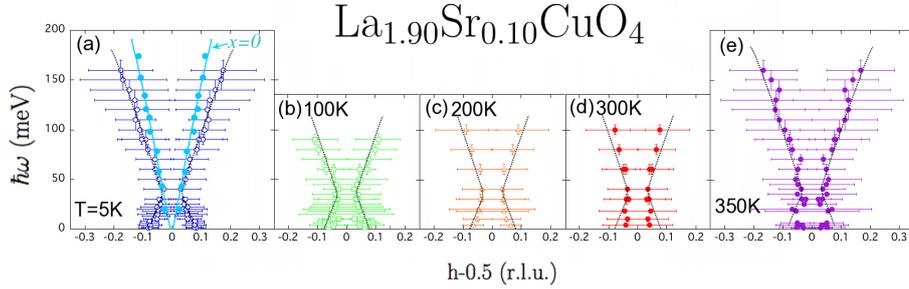


図 32: 分散関係の温度変化を示す。(a) は 5K の dispersion である。破線は格子非整合度を滑らかに結んだ線で分散関係を示す。実線は母物質である La_2CuO_4 の分散関係を示す。(b) は 100K、(c) は 200K、(d) は 300K、(e) は 350K での分散関係である。比較のため 5K の分散関係を他の温度の分散に重ねている。

3.4 局所動的磁化率の温度変化

次に局所動的磁化率 $\chi''(\hbar\omega)$ を図 33 に示す。それぞれ最低温度 5K と最高温度 350K のものである。局所動的磁化率は $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ を Magnetic Brillouin zone 全域にわたって積分し、さらに Bose 因子を考慮することで得られる。(次式)

$$\chi''(\hbar\omega) = \int_{MBZ} d\mathbf{Q} S(\mathbf{Q}, \hbar\omega) (1 - \exp(-\hbar\omega/(k_B T))) \quad (17)$$

5K では 0meV 近傍、20meV 付近に鋭いピーク、そして 50meV あたりになだらかなピークがある、70meV から 160meV までは強度がエネルギー依存していないように見える。0meV 近傍のピークからは、この組成で非常にゆっくりとしたほとんど静的な磁気秩序が存在することを示している [8]。

我々が得た $\chi''(\hbar\omega)$ に関する結果は近傍組成である $x = 0.085$ や $x = 0.16$ より 2 倍弱程度大きくなっている。この結果の違いはフィッティング関数の差から出ていると考えられる。詳しくは APPENDIX に記述するが、我々は低エネルギーで単純な 4 つの Lorentzian ピークの重ね合わせで表現しており、彼らはより複雑な関数でその形状を表現している。ピークの幅は $\chi''(\hbar\omega)$ に対して 2 乗で効くため、フィッティングの微妙な差が案

外大きく効いてくるのである。よって彼らのデータと $\chi''(\omega)$ が低エネルギーで大きくずれていることは本質的ではない。しかし絶対値としてどちらが正しいのかは問題であるが APPENDIX に書いてあるように、我々はフィッティングに依存しない方法でシグナル積分値を求めている。その方法で得た値と図 33 で与えられるような値は大まかに一致している。また我々のデータ内で温度変化を比べる分には問題はないと思われる。

温度を上昇させることで $\chi''(\hbar\omega)$ は低エネルギー領域で大きく減っていることがわかる。350K においては 0meV 付近の $\chi''(\omega)$ はほとんどなくなっており、20meV 付近、そして 50meV 付近にピークを持っていることが分かる。O. J. Lipscombe らのデータ ($x = 0.085$) と大きく異なるのは 20meV 付近のピーク構造が擬ギャップ温度 T^* より高い温度領域においても未だに残っていることである。彼らは低温で擬ギャップが成長することで $2\Delta^*$ (Δ^* は擬ギャップの大きさ) 以下のエネルギー領域におけるマグノン準粒子と電子系とのやり取りがなくなり、磁気励起の寿命が伸びることで低エネルギー領域の $\chi''(\hbar\omega)$ より構造的になると推測している。低エネルギー領域のピークのあるなしが重要だとしている。我々の結果はそうはならなかった。注意しておくべきなのは、この領域は高温で非常にフォノンが発達しており、background を推定するのが難しい。350K において我々が偽ピークを測定している可能性は完全に排除しきれない。で高温における 20meV 付近のピークが本物かどうかは磁気的情報のみを引き出す偏極中性子を用いて実験する必要があると思われる。

各温度の $\chi''(\hbar\omega)$ から 350K の $\chi''(\hbar\omega)$ を引いたものが図 34 である。この図によって低温において $E_{\text{cross}} \sim 40(\text{meV})$ 以下の $\chi''(\omega)$ が顕著に発達することが分かる、一方 E_{cross} 以上の温度変化のエネルギー依存は小さく一様に成長しているように見える。分散関係の温度変化と同様、 E_{cross} を境として $\chi''(\hbar\omega)$ の温度変化は異なっており、2成分の存在が示唆される。

slowing down としてこの現象は説明し得ない。slowing down であれば高温で高エネルギーにあった $\chi''(\hbar\omega)$ の重心が低温で低エネルギーにシフトしてくる。しかし、本実験で示されたのは全エネルギー領域での $\chi''(\hbar\omega)$ の変化である。

実は (a)5K と (b)50K の違いを見ると slowing down 現象が見て取れる。 $\sim 10\text{meV}$ 以下の低エネルギー領域において 50K までは $\chi''(\hbar\omega)$ はなかった

のであるが、5K で成長している。

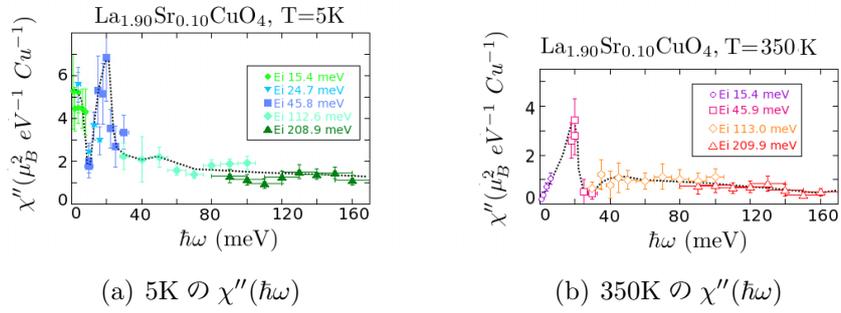


図 33: $\chi''(\hbar\omega)$ の温度変化を示す。5K においては 0, 20meV に鋭いピークがあり、50meV あたりにわずかにブロードなピークがある。350K では低エネルギー部分は大きく抑制される、20meV 付近のピークと 50meV 付近のブロードなピークは依然として残っている。

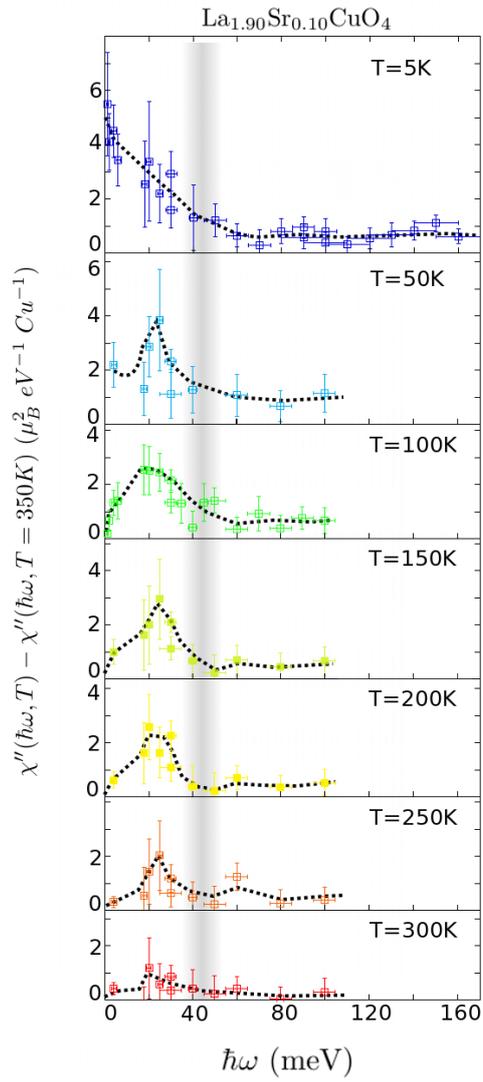


図 34: 各温度での $\chi''(\hbar\omega)$ から 350K における $\chi''(\hbar\omega)$ を引いたものである。

4 考察

得られた磁気励起、その温度変化に関して考察を行う。

4.1 局在的立場からのアプローチ

本章では局在モデルから出発した考察を行う。

4.1.1 最近接交換相互作用 J_{eff} の見積もり

高エネルギー領域の分散を半古典的なスピン波的に解釈することで有効最近接交換相互作用 J_{eff} を見積もる。スピン波の式は次式で与えられる [4]。

$$\hbar\omega = Z_c \times 2J_{\text{eff}} \times \sqrt{1 - \sin^4(\pi(h - 1/2))} \quad (18)$$

ここで Z_c は量子繰り込み因子であり、 $S = 1/2$ の 2次元 Heisenberg モデルでは 1.18 とする。このフィッティングから、本組成 ($x = 0.10$) における J_{eff} を見積もると、最低温 5K で 96(1)[meV]、350K では 108(3)[meV] である。両者とも $\hbar\omega > 40$ [meV] でフィッティングを行った。これから温度変化により高エネルギー領域の分散関係にはほとんど変化が生まれなことが分かった。

中性子非弾性散乱実験から母物質である L214 において 300K で J_{eff} が数%減少したことが確認されている [4]。また共鳴非弾性 X線散乱実験 (RIXS) の実験からも母物質で 500K で zone 境界エネルギーの下がりが見られている [33]。本実験では高温においてソフト化による J_{eff} の減少が見出されなかった。大きな反強磁性相関 J_{eff} のために高エネルギー領域の温度変化がほとんどない。**これは局在描像から磁気励起を考えることが妥当だということを意味する。**

他の近傍組成との比較を図 35 に示す。この図中のものに関しては全く同じピークフィッティング、及び 18 式を使っているので正確に比較が可能である。本組成 $x = 0.10$ において J_{eff} が急激に抑制されている。これが超伝導相に入るとともに起こっているのが大変興味深い。ラマン散乱からも zone 境界エネルギーの減少としてこの現象は確認されており [34]、中性子非弾性散乱実験においてもそれが確認されたことになる。超伝導相に入り基底状態が変化していることに付随して J_{eff} が変化したものと考えられる。

同図に E_{cross} の温度依存性も合わせて示す。反強磁性領域からアンダードープ領域までは E_{cross} はホール濃度とともに上昇して行くのが分かる。そして本組成付近で飽和するのである。

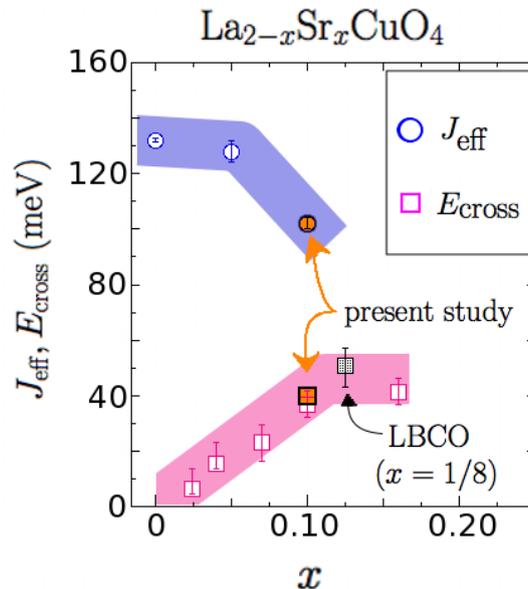


図 35: 有効最近接交換相互作用定数 J_s 及び E_{cross} の組成依存性

4.1.2 ストライプモデル

以下、Matthias Vojita らが主張しているようなストライプモデルにたつて議論を進めて行く [21]。

LBCO ($x = 1/8$) や $\text{La}_{1.48}\text{Nd}_{0.40}\text{Sr}_{0.12}\text{CuO}_4$ では低温において静的なストライプ状の電荷、スピン秩序が確認されている [22][38]。電荷秩序の決め手となるのは核の長周期ブラッグピークの存在であるが、LSCO 系では確認されていない。しかし LSCO の分散関係や $\chi''(\hbar\omega)$ の全体像が LBCO のそれと良く似ていること、また $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ や $\text{Ca}_{2-x}\text{Na}_x\text{CuO}_2\text{Cl}_2$ などの銅酸化物において局所的な電子のギャップ構造に Cu-O-Cu 間距離の 4 倍の長周期が STM によって観測されていることから [39] LSCO でもホールストライプを形成していることが予想される。

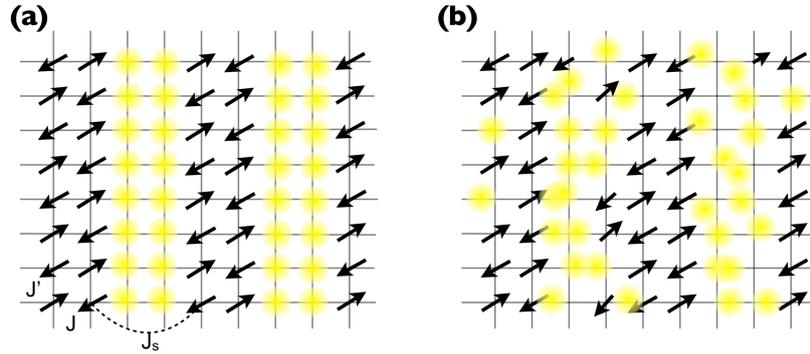


図 36: (a) 低温で電荷の変調が規則正しいときの CuO_2 面上のストライプ
(b) 高温でホールリバーが大きく乱れたときのストライプ

ホールストライプの概念図を図 36(a) に示す。ホールがある方向に並び、それが一定間隔で並ぶことで長周期構造を作っている。今ドーパされたホールが酸素の $2p$ 軌道に入り、電荷が格子の 4 倍周期で、スピンの 8 倍周期のものを考えている (bond centered stripe)。この秩序は $x = 1/8$ のときに強くなることは前に述べた (1.2)。

ホールリバーで区切られたスピンドメインの集まりと考えると、2 本鎖の ladder (梯子) モデルだと考えられる。ストライプと垂直方向 (rung 方向) の交換相互作用定数を J とし、ストライプと平行方向 (ladder 方向) を J' とする。そしてホールを挟んだ相関を J_s とする。 $J_s \sim J, J'$ のときは基底状態は反強磁性的 (AFM) であり、 $J_s \ll J, J'$ のときは純粋な ladder モデルであり、基底状態は rung 方向に singlet を組んだものだとされる。実際の基底状態は AFM と singlet の中間のようなものであると考えられる。singlet の生成演算子を s^\dagger 、triplet の生成演算子を t_z^\dagger とし、基底状態 $|\phi_0\rangle$ は以下のように表せられる。

$$|\phi_0\rangle = \prod_i (s_i^\dagger + \lambda e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{R}_i} t_{iz}^\dagger) |0\rangle \quad (19)$$

$$\lambda = \sqrt{\frac{2J' - J_s - J}{2J' - J_s + J}} \quad (20)$$

となる。ここで i は rung 毎につけられた番号である。 λ は磁気秩序の程度を表すもので $\lambda = 0$ は singlet に、 $\lambda = 1$ は AFM に対応する。ここか

ら磁気励起は次式で表せられる。

$$H = \sum_{\mathbf{q},\alpha} \omega_{\mathbf{q},\alpha} \tau_{\mathbf{q},\alpha}^\dagger \tau_{\mathbf{q},\alpha} \quad (21)$$

$$\omega_{\mathbf{q},\alpha} = \sqrt{\mathbf{A}_{\mathbf{q},\alpha}^2 - \mathbf{B}_{\mathbf{q},\alpha}^2} \quad (22)$$

$$\mathbf{A}_{\mathbf{q},x} = J \frac{1}{1+\lambda^2} + K \frac{\lambda^2}{(1+\lambda^2)^2} + J' \frac{1-\lambda^2}{1+\lambda^2} \cos(q_y) - \frac{J_s}{2} \cos(q_x) \quad (23)$$

$$\mathbf{B}_{\mathbf{q},x} = J' \cos(q_y) - \frac{J_s}{2} \frac{1-\lambda^2}{1+\lambda^2} \cos(q_x) \quad (24)$$

$$\mathbf{A}_{\mathbf{q},z} = J \frac{1-\lambda^2}{1+\lambda^2} + K \frac{2\lambda^2}{(1+\lambda^2)^2} + \mathbf{B}_{\mathbf{q},z} \quad (25)$$

$$\mathbf{B}_{\mathbf{q},z} = \left(J' \cos(q_y) - \frac{J_s}{2} \cos(q_x) \frac{(1-\lambda^2)^2}{(1+\lambda^2)^2} \right) \quad (26)$$

ここで $K = 4J - 2J_s$ である。 $\mathbf{A}_{\mathbf{q},y} = \mathbf{A}_{\mathbf{q},x}$ 、 $\mathbf{B}_{\mathbf{q},y} = \mathbf{B}_{\mathbf{q},x}$ である。 $\tau_{\mathbf{q},\alpha}^\dagger$ 、 $\tau_{\mathbf{q},\alpha}$ は対角化された磁気励起準粒子の生成、消滅演算子である。

$J = J' = 100\text{meV}$ 、 $J_s = -0.06J$ とする。そして準粒子同士の相互作用を J に繰り込み、 $J_{\text{ren}} = 1.77J$ として J の代わりに使う [40]。このとき $\lambda=0.27$ となる。もとめた分散関係を図 37 に示す。(a) は横軸を ladder 方向に取っており、この方向に高エネルギーまでの分散がある。(b) は rung 方向を横にとっており、低エネルギー部分が J_s のために変調していることが分かる。その変調周期はスピンの格子の 8 倍周期であることに対応している。実際にはストライプ方向が a 方向と b 方向に等価で存在しているので 90° 回転させて分散が重なることによって 1.4.1 の図 7(c) のような砂時計型励起が再現される。

このモデルで我々が 5K で得たデータをフィッティングする。分散関係とフィッティングした結果をあわせて図 38 に示す。 $J = 105.92(1) \text{ meV}$ 、 $J_s = -2.3298(4) \text{ meV}$ 、 $\lambda = 0.338$ となる。

それでは次にこのモデルのもとで分散関係形状の温度変化について考える。低温ではきれいに変調していたストライプであるが (図 36(a))、高温ではストライプが乱れることが予想される (図 36(b))。ストライプが乱れるということはホールを挟んだ相関 J_s が熱ゆらぎと comparable になったことを意味する。ストライプの乱れの程度と低エネルギー部分のピーク構造との関係は図 39 のようにシミュレーションされている [22]。左端の図は十分低温でストライプがきれいな時のピーク構造に対応し、右端

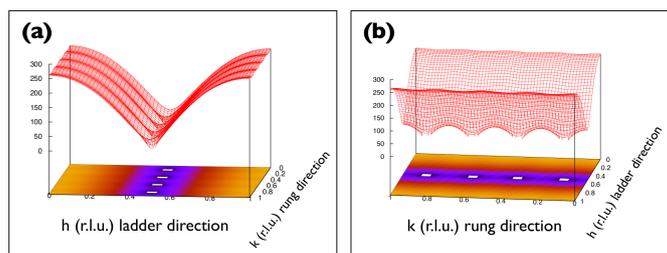


図 37: (a) 横軸を ladder 方向にとったときの分散関係 (b) 横軸を rung 方向にとったときの分散関係。 $J = 1.17 \times 100 \text{meV}$ 、 $J' = 100 \text{meV}$ 、 $J_s = 6 \text{meV}$ としている。 $\lambda = 0.27$ である。

はストライプが乱れていることに対応する。この結果は我々が得た E_{cross} 以下のピーク構造の温度変化に良く似ている。

さらに高温でホールリバーを挟んだ相関が断ち切られることから長周期の波が立ちにくくなり、低エネルギー領域の $\chi''(\hbar\omega)$ が強く抑制されることが予想される。

上述の通り、低温で決めた $J_s = -2.3 \text{meV}$ であり、温度に換算すると 27K 程度である。普通に考えるならばこの温度以上で E_{cross} 以下の変調構造がなくなるはずである。しかし実験結果はそうはなっておらず、200K 程度までは E_{cross} 以下の変調構造は確かに存在している (図 31)。ストライプモデルから分散関係の概形が再現され、さらにストライプの乱れという観点から E_{cross} 以下低エネルギー領域の分散関係、 $\chi''(\hbar\omega)$ の温度変化の定性的な解釈が可能だとしても、定量的な説明ができていないということである。

このモデルの妥当性を検証するため、いくつかの J_s を使って、低エネルギー領域がどのように変わるか考えてみる。図 40 は $J_s = -2.3, -6, -12 \text{meV}$ と変えていったときの E_{cross} 以下の分散の構造変化を示す。 J_s が大きくなると E_{cross} も大きくなっていることが分かる。図 35 に示すように、ホール濃度が大きくなる程 E_{cross} も大きくなることが確かめられているが、上述の J_s と E_{cross} の関係が正しいとすれば、ホール濃度が大きくなるほどに J_s も大きくなっている事になる。これは感覚的には理解しがたい。ホール濃度が大きくなるとホールリバーが濃くなっていき、リバーを挟んだ相関 J_s は小さくなると予想するのが普通だと思われる。このストライプ

モデルは $x = 1/8$ 近傍での分散関係を良く再現するが、異なるホール濃度での妥当性は保証されておらずモデルの拡張が必要だと思われる。

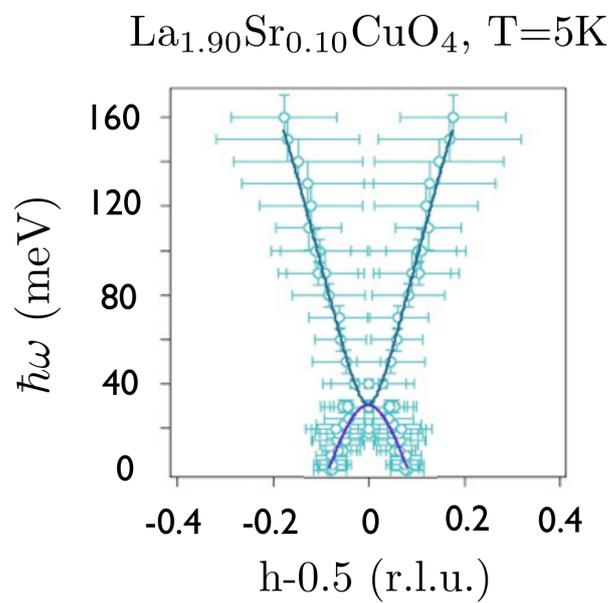


図 38: ストライプモデルにたった分散関係式を用いてフィッティングを行った。open circle は実験で得られた値で実線がフィッティング結果である。 $J = J' = 106\text{meV}$, $J_s = -2.33\text{meV}$ である。なお J は J_{ren} で置き換えており、 $\lambda = 0.338$ となった。

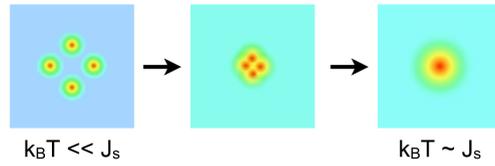


図 39: ストライプの乱れと低エネルギー部分の Q 構造との関係を示す。ストライプがきれいなときには左はしのようにあり、ストライプが乱れてくると右端のようなピーク構造となる。

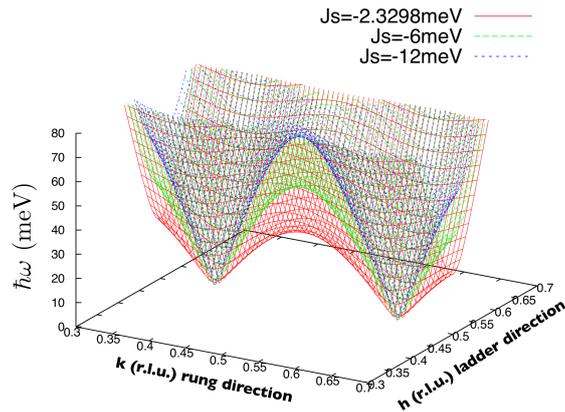


図 40: ホールリバーを挟んだ相関 J_s を変えたときの低エネルギー領域の分散構造の変化を示す。 J_s が大きくなる程 E_{cross} も大きくなることが分かる。

4.2 総和則

図 41 に、あるエネルギー範囲で $S(\hbar\omega)$ を積分した値の温度変化を示す。open circle は 0-40meV の積分、open square は 40-100meV、closed circle は 0-100meV、open diamond は 0-160meV までの積分値である。積分した値は次式で表現されるような量である。

$$\int_{\hbar\omega=0}^{\infty} S(\hbar\omega) = \frac{2}{3}g^2 S(S+1) \quad (27)$$

全エネルギー領域で積分した値によって Cu^{2+} 一つあたりのモーメントが分かる。この値は通常温度によらず保存すべきものである、スピンの総和則である。しかし 0-160meV までの積分値に着目すると 5K とくらべて 350K では 15%程度積分値が減少していることが分かる。0-40meV 範囲の積分値は保存しており、高エネルギー範囲における積分値が高温で減少していることが示される。なぜこのようなことが起こるのかというと、一つは高温で $S(\hbar\omega)$ の重みが 160meV 以上のさらに高エネルギーへとシフトして行ったことが考えられる。もう一つは高温でシグナルがエネルギー方向にブロードになり background にシグナルがまぎれてしまいピークとして detect できなくなってしまう可能性である。しかし background の変化分を確認した所、低温、高温でエラーバーの範囲内で違いはなかった。どこに $S(\hbar\omega)$ が逃げたのかは明らかにすることは今後の重要な課題である。

次に $S(\hbar\omega)$ 積分値の組成依存性を図 42 に示す。積分範囲は 0-150meV である。本組成の結果を赤の closed square で示す。ホール濃度上昇とともに積分値は減少する傾向が分かる。本実験の結果もその傾向に則っている。ホール濃度の上昇により積分値が下がる原因は 2つ考えられる。一つは CuO_2 面にホールをドーピングしたことにより、酸素 $2p$ 軌道にホールが入り、近傍の Cu^{2+} イオン状の $3d$ 軌道の電子と Zhang-Rice Singlet を形成する [35] 事によってスピンの減ったためである。もう一つは Cu サイトにおける 2 重占有が増えたこと [36] による。つまりこの結果はホール濃度依存性としては定性的に正しい。

総和則から実際に Cu あたりのモーメントを見積もってみると $0.108[\mu_B]$ となる。これは spin1/2 ならば $1[\mu_B]$ に対応することを考えると実に 10%程度になっているのである。理論計算によるとここまでの減少は予期されていない [36]。実は母物質においてすら総和則はみたされておらず、モーメントは 36%程度失われているのである [37]。銅酸化物においてはわれ

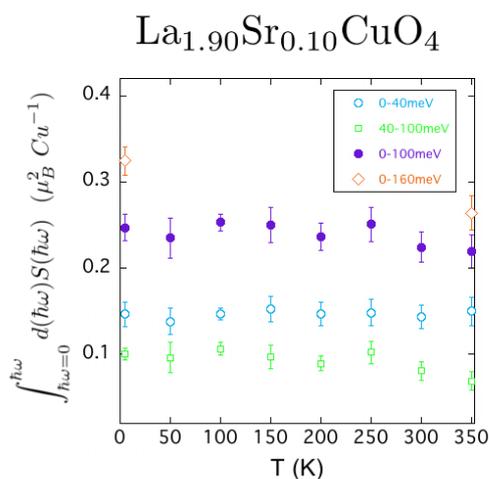


図 41: $S(\hbar\omega)$ の積分値の温度変化

われが想定しているようなスピン波よりはるかに高エネルギー領域の励起の存在が示唆される。

4.3 遍歴的立場からのアプローチ

遍歴的な立場から考えたとき、実験結果が再現できるか検討する。動的ネスティングから考えている場合、 E_{cross} 以下の磁気励起の変調構造は異方的な超伝導ギャップ、擬ギャップから決定される。RPA 計算からは超伝導相で共鳴ピークが E_{cross} 近傍に存在することが予想されており、YBCO では実際に観測されている [45]。本実験で得られた 5K, 100K, 350K における $\chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ を図 43(a), (b), (c) に示す。それぞれ超伝導相、擬ギャップ相、通常相に対応する。超伝導相と擬ギャップ相との差を分かりやすくするため 5K のスペクトルから 100K のスペクトルを引いたのが図 43(d) である。同様に擬ギャップ相と通常相の差を分かりやすくするために 100K から 350K のスペクトルを引いた (図 43(e))。図 43(f), (g), (h) にそれぞれ超伝導相、擬ギャップ相、通常相に対応する RPA から計算されたスペクトルを示す [25]。実験結果と比べると、興味深いことに分散形状の概形がそれぞれ対応出来ている。擬ギャップ相における E_{cross} 以下の構造も異方的な擬ギャップの存在から出てくる。計算値と大きく異なるところが二点ある。一つは計算から導かれる E_{cross} 直上の

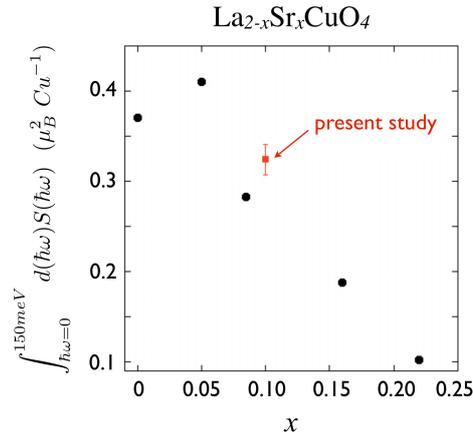


図 42: $S(\hbar\omega)$ を 0-150meV まで積分した値の組成依存性を示す。closed circle が他の組成で [4][8][12][10][11]、本研究の結果 ($x = 0.10$) が closed square で示される。

共鳴ピークが実験では見出されなかったことである。もう一つは通常相における E_{cross} 以上の高エネルギー領域の分散形状が計算ではブロードで形を保っていないのに対し、実験では低温とほとんど変わらずはっきりとした分散が残っている点である。

E_{cross} 以下の分散形状がどの温度で変化するか、という点に着目すると、前章のストライプモデルより遍歴的な立場で考える方がより妥当であると思われる。一方で、高エネルギー領域は遍歴モデルからの再現が悪く、特に通常相との不一致が顕著である。

4.4 磁気励起から見える擬ギャップ現象

分散関係の温度変化であるが、これを組成と温度の相図としてプロットすると興味深い。図 44 に示す。

組成を $x = 0.10$ に固定し、温度を上昇させると ARPES などから確認されている擬ギャップが成長し始める温度 T^* [42] 近傍で分散形状が変化する。低温において低エネルギーにおける変調構造を持つ砂時計型であるが、高温では低エネルギー領域の足が閉じ、 E_{cross} 以下の変調構造がない Y 型になるのである。今度は温度を 5K に固定し、ホール濃度を増やして

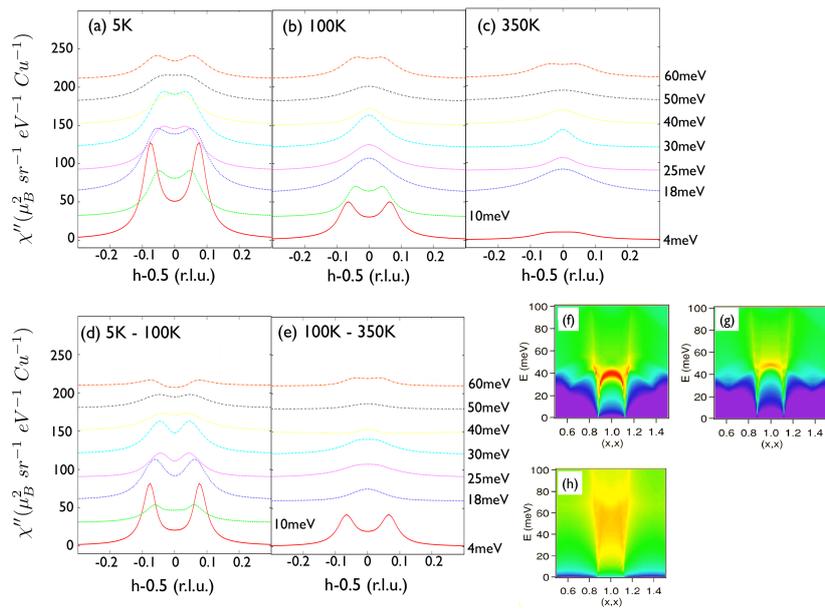


図 43: (a), (b), (c) はそれぞれ $5\text{K} (< T_c)$, $100\text{K} (< T_c)$, 350K における $\chi''(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ スペクトルである。(d) 5K のスペクトルから 100K を引いたもの (e) 100K のスペクトルから 350K のスペクトルを引いたもの (f) RPA から導かれる超伝導状態のスペクトル (g) 擬ギャップ相 (h) 通常相 [25]

いくと、アンダードープ領域から最適組成までは砂時計型励起が確認される。 $x = 0.22$ のオーバードープ領域では E_{cross} 以下の分散の傾きがなくなり、やはり砂時計型ではなくなるのである。図 44 に示してあるように赤色の領域と青色の領域に大別できる。これは分散形状が砂時計型であるか、そうでないかで分けたものである。

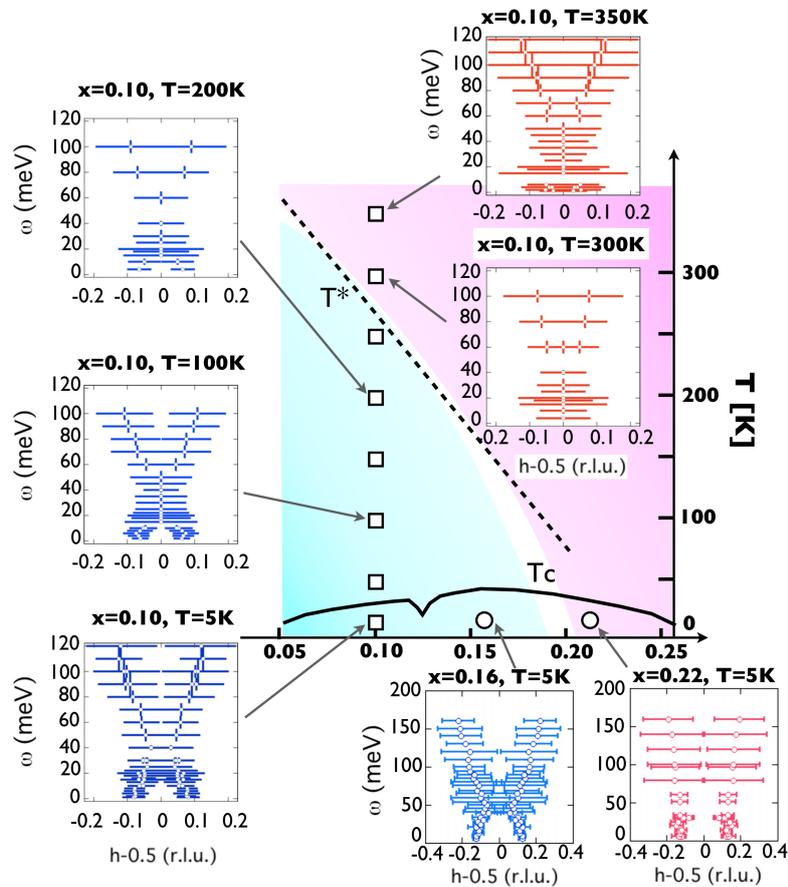


図 44: 分散関係の概形を温度-組成の相図状で表したもの。ARPES で調べられているような T^* のライン付近で分散関係形状が変化していることが分かる。

このような違いが T^* 近傍を境界として起こることをどのように考えれば良いだろうか。

O. J. Lipscombe らは T^* を挟んだ磁気励起の変化を以下のように解釈している [12]。彼らはアンダードープ組成の LSCO ($x = 0.085$) において、

T^* 以下で ARPES から見積もられる擬ギャップの2倍 $2\Delta^*$ 以下の局所動的磁化率 $\chi''(\hbar\omega)$ がより構造的になることを見出した。図 45 に示すように、 T^* 以上の 300K では $2\Delta^* \sim 70\text{meV}$ 以下にピークが見られないのに対して、 T^* 以下では 20meV と 60meV 付近のダブルピーク構造になっている。彼らは擬ギャップ相に入ることによって電子の散乱確率が抑制され、それに伴い磁気励起の dumping が抑制されることで $2\Delta^*$ 以下の $\chi''(\hbar\omega)$ が変化したのだと推測している。

我々の結果もその主張に沿うものだと考えられる。擬ギャップ相に入ることによって、異方的なギャップの影響で E_{cross} 以下の変調構造が出現するのである。 $x = 0.22$ の 5K では低エネルギーで4つにスプリットしたピーク構造がはっきりと確認されているが、これは異方的な超伝導ギャップの存在の為である。そして $\sim 60\text{meV}$ までの分散がエネルギー依存せず、突っ立っているのはこの組成で異方的な擬ギャップが定義されないからだとする、良く解釈出来る。つまり、低エネルギー領域の磁気励起は遍歴的に捉えた方が無理なく理解出来るということである。

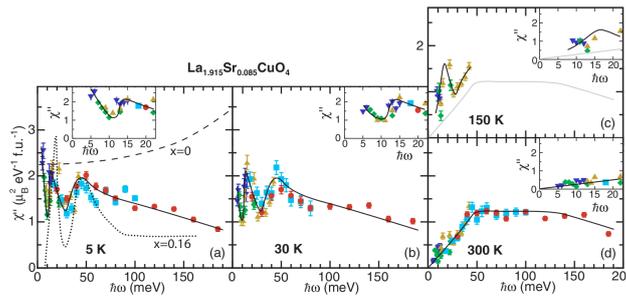


図 45: LSCO($x = 0.085$) における $\chi''(\hbar\omega)$ の温度変化を示す。この組成における擬ギャップ温度 T^* は 300K 程度であり、300K では $2\Delta^* \sim 70\text{meV}$ 以下にピーク構造が見られないのに対して、低温では $2\Delta^*$ 以下にダブルピーク構造が見られる。

以上の議論をまとめる。
ストライプモデルをはじめ、局所的な描像に立ったとき高エネルギー領域の磁気励起はその温度変化まで良く解釈出来る。しかし、 E_{cross} 以下の変調構造の温度変化を定量的に記述出来ない。

遍歴的な描像に立つならば、低エネルギー領域の温度変化、及び組成変化を総合的に良く理解することが出来る。対して実験から得られる高エネルギー領域のはっきりとした分散は遍歴スピンモデルからは得られず、特に通常相を良く再現出来ない。

これから私は次のように提案する。高エネルギー領域の磁気励起は局在的なもので、低エネルギー領域は遍歴的なものである。そしてその二つの成分は E_{cross} 付近でクロスオーバー的に推移する。超伝導相における磁気励起というのは、局在磁性、遍歴磁性、双方の性格を併せ持ち、それがエネルギー的な階層構造を有していると推測できる。

5 まとめ、今後の展望

我々はアンダードープ領域の $\text{La}_{1.90}\text{Sr}_{0.10}\text{CuO}_4$ の磁気励起全体の高温までの温度変化を明らかにした。低温においてははっきりとした砂時計型磁気励起分散を示していたが、高温では E_{cross} 以下が変調して”Y”型となった。また、 $\chi''(\hbar\omega)$ の温度変化も E_{cross} を境として変わっていた。

CuO_2 面上のホールストライプを仮定することから全体の磁気励起分散形状が再現され、高温でストライプが乱れることを考えれば、この温度変化を定性的には説明し得ることが分かった。**しかしストライプモデルからは分散形状が変わる温度を適切に説明出来ていない。**

分散関係形状の変化を組成、温度に対する相図として考えたとき、砂時計型励起と Y 型励起という分け方で、 T^* のラインを形作っている。これから推測されるのは**低エネルギー領域の磁気励起に遍歴電子の寄与が大きく出ているということである。**高エネルギー領域の分散関係の温度変化は遍歴磁性からは説明しがたいものである。

以上より、B. Vignolle や D. Reznik が他の系、組成において主張しているように、 $\text{LSCO}(x = 0.10)$ における磁気励起には、低エネルギー領域で遍歴スピン由来のもの、高エネルギー領域には局在スピン由来のものが強く出現していることが示唆され、起源の異なる 2 成分がエネルギー的な階層構造を持って存在していると考えられる。

5.1 課題 1；磁気励起分散形状相図の検証

磁気励起 2 成分の階層構造を主張する上で、分散形状の相図の正当性を確保することが大変に重要だと思われる。分解能の良い分光器を用いて、いくつかの組成で温度変化を系統的に調べることが必要だと考えられる (図 46)。

本論では低エネルギー領域の分散形状が擬ギャップや超伝導ギャップの影響を受けて変調していると論じているが、擬ギャップそのものの正体には言及していない (異方性ギャップが「原因」で、分散形状の変化は「結果」だと言っている)。異方的なギャップを超伝導転移温度よりはるかに高い温度から生じさせる原因とは何であるのか、他の手法の実験結果も含め包括的に考えなければならない。

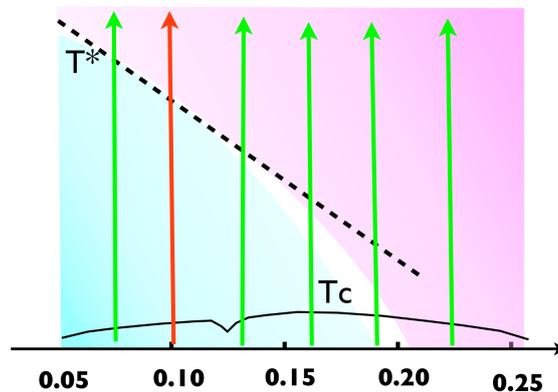


図 46: いろいろな組成で系統的に温度変化を測定すれば分散形状の相図の妥当性が確かめられる。

5.2 課題 2；高エネルギー領域の $\chi''(Q, \hbar\omega)$ の減少の原因

本論において、20meV 近傍を中心として E_{cross} 以下の低エネルギー領域の局所動的磁化率 $\chi''(\hbar\omega)$ が低温において顕著に成長していると述べている。20meV がピークとなる原因は LSCO に特殊な理由であると考えている (例として磁気励起とフォノンの結合)。低エネルギー領域の磁気励起が動的ネスティングによって支配されているとすると、高温で E_{cross} 以

下のネスティング条件が悪くなっていると考えられる。高温でバンド形状が変化したということである。

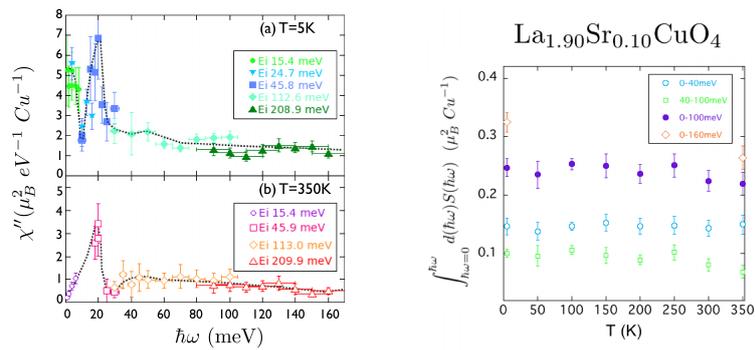
それでは高エネルギー領域の $\chi''(\hbar\omega)$ の変化をどう考えるべきであるか、いくつか可能性を挙げる。前提として、高エネルギー領域は局在磁性が支配的であるとしている。

まず、遍歴由来の磁気励起が非常に高エネルギーまで伸びていて、それが高温で抑制されたという考え方である。高温でバンド構造 (M. R. Norman は全エネルギー領域をネスティングから計算しており、node 方向の深い部分のネスティングが良く効いてくるためにアンダードープの LSCO では高エネルギーまではっきりした分散が期待できると主張している [25]) に広いエネルギー範囲で変化をうけるとするとあり得る。

次に、シグナルのブローディングである。高エネルギー領域におけるピークの半値半幅、バックグラウンドともに、わずかに変化していて、それがピーク高さ減少を補っていると考えられる。

最後に、磁気形状因子の温度変化である。

高エネルギー領域での強度減少に対しても納得のできる説明をする必要がある。



(a) 5K と 350K における局所動的磁化率

(b) 総和則の破れ

図 47: (a)5K, 350K における局所動的磁化率を示す。高エネルギー領域でも大きく差があることが分かる。(b) 有限エネルギー範囲で $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ を積分したものの温度依存性。オレンジは 0-160meV までの積分値である。5K と 350K で 15%程度異なっており、このエネルギー範囲で総和則が満たされていない。

6 APPENDIX

6.1 シグナル規格化の方法

6.1.1 LSCO の incoherent scattering を用いた規格化

それぞれの incident energy において核散乱及び磁気散乱のない純粋な back ground 部分を transfer energy ~ 0 を横切つて energy 方向に scan する (図 48 で何もシグナルがない所を探す)。得られた cut を図 49 に示す。なお強度は proton current であらかじめ規格化されているとする。energy 0 中心に現れるピークは含まれる全ての原子、La、Sr、Cu、O からの incoherent scattering が作るピークである。得られるシグナル強度と微分散乱断面積に関して次の関係がある。

$$I = A \times N \times p \times \frac{d^2\sigma_{LSCO}}{dE d\Omega} \quad (28)$$

ここで σ_{LSCO} は本試料からの incoherent scattering cross section である。La の incoherent scattering cross section $\sigma_{inc}=1.13$ [barn]、Sr では $\sigma_{inc}=0.06$ [barn]、Cu では $\sigma_{inc}=0.55$ [barn]、O では $\sigma_{inc}=0.0008$ [barn] である。よって 1 formula unit cell あたりの全 incoherent scattering cross section σ_{LSCO} は 2.7 [barn] である。La サイトに Sr が置換されていると、それが原因で incoherent scattering が発生するが、それは本組成では微々たるものなので無視した。A は規格化因子であり、magnetic scattering の絶対値を求めるのに必要となる。この A には中性子線量や機械的な因子を全て含めている。N は本試料に含まれる標的数であり、 $N=N_{LSCO}=N_{Cu}$ である。今 LSCO の質量は 71.2 g であり、原子量は 403.4 [g mol $^{-1}$] なので、

$$N = \frac{71.2}{403.4} \times 6.02 \times 10^{23} \quad (29)$$

$$= 1.063 \times 10^{23}[\text{個}] \quad (30)$$

また本サンプルの密度は

$$\begin{aligned} \rho &= 7.04[\text{g}/\text{cm}^3] \\ &= 1.7467 \times 10^{-2}[\text{mol}/\text{cm}^3] \\ &= 1.7467 \times 10^{-2} \times 6.022 \times 10^{23}[\text{個}/\text{cm}^3] \\ &= 1.05 \times 10^{22}[\text{個}/\text{cm}^3] \end{aligned}$$

である。 p_{abs} は本試料における中性子の透過率である。ビーム透過厚 d 、試料密度 ρ 、LSCO の吸収散乱断面積 σ_{abs} の関数として

$$p_{\text{abs}} = \exp(-\sigma_{\text{abs}}\rho x) \quad (31)$$

で与えられる。さらに σ_{abs} は中性子の速度 v の関数である。

$$\sigma_{\text{abs}}(v) = \frac{2.2\sigma_{\text{abs}}(v = 2.2)}{v} \quad (32)$$

今 v の単位は km/s で、 $\sigma_{\text{abs}}(v = 2.2) = 20.95[barn]$ である。また、入射中性子のエネルギー E_i と速度は次の関係で与えられる。

$$v = \sqrt{\frac{2E_i}{m}} \quad (33)$$

m は中性子の質量であり $m=940[Mev\ c^{-2}] = 10.44 [meV\ (km/s)^{-2}]$ である。例として $E_i=25[meV]$ とすると中性子速度は $2.2[km/s]$ である。ビーム透過厚は $1.2[cm]$ とした。

式 (28) の両辺を立体角、及びエネルギーで積分し、式変形することで A が得られる。

$$A = \frac{4\pi \int dE I}{N p \sigma_{LSCO}} \quad (34)$$

磁気散乱による微分散乱断面積を得るにはシグナル I_{obs} を A を使って規格化する。

$$I_{\text{obs}} = A \times N \times p \frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} \quad (35)$$

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{I_{\text{obs}}}{A N p} \quad (36)$$

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{I_{\text{obs}}}{4\pi \int dE I/\sigma_{LSCO}} \quad (37)$$

このようにして得られた微分散乱断面積は $[barn\ eV^{-1}\ Cu^{-1}]$ の単位である。式 (37) より、単純な透過率の仮定のもとでは p はキャンセルされて規格化に効いてこないことが分かる。また標的数 N もキャンセルされる。これはビームに還浴している実質的な試料体積を評価するのが難しいので都合がよい。

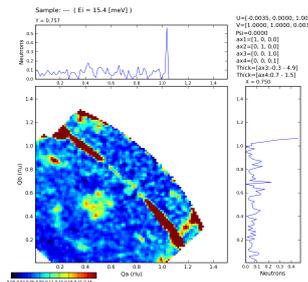


図 48: 5Kにおける0.7-1.4[meV]の定エネルギースライス図である。画面は4SEASONS解析環境「空蟬」のものである。(0.5,0.5)付近の4つのピークはAF相関由来である。この図の余計なシグナルのない所を探しエネルギー方向にカットする。

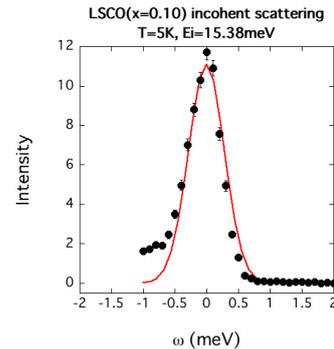


図 49: incoherent scattering からでくるピーク。入射エネルギーごとにその高さ、幅は異なる。一応温度が異なるもの全ての incoherent のデータを取ったが、温度変化はほとんどなかった。

6.1.2 Vanadium incoherent scattering で規格化したときとの比較

TOFの実験においてシグナルの規格化には通常 Vanadium を薄く板状にしたものを用いるのであるが、我々の実験時には諸事情により Vanadium の incoherent scattering の scan をすることが出来なかった。M. Fujita と T. Sasaki らが6月に同装置の実験で試料 ($\text{Pr}_{1.4}\text{La}_{0.6}\text{CuO}_4$) の測定後すぐに入射エネルギーを等しくして Vanadium の incoherent scattering を測定しているの、彼らのデータから試料自身のと Vanadium の双方を用いた規格化を定量的に比較した。incoherent のシグナルの採取の方法は6.1.1にある通りである。Vanadium の質量は7.5[g]、原子量は50.94[g/mol]、物質量は0.147[mol]であり、Vanadium 原子の数である N_V は $0.147 \times 6.02 \times 10^{23}$ となる。Vanadium は中性子吸収が起きないように極めて薄くされている。式(28)と同様に、

$$I = B \times N_{\text{Vanadium}} \times p' \times \frac{d^2 \sigma_{\text{Vanadium}}}{dE d\Omega} \quad (38)$$

上式で、 σ_{Vanadium} は Vanadium の incoherent scattering で5.08[barn]である。 p' は Vanadium の透過率である。よってこの方法で求まる規格化

因子は

$$B = \frac{4\pi \int dE I}{N_{Vanadium} p' \sigma_{Vanadium}} \quad (39)$$

今度はシグナルの規格化に B を使う。

$$I_{obs} = B \times N_{PLCO} \times p \times \frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} \quad (40)$$

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{I_{obs}}{B \times N_{PLCO} \times p} \quad (41)$$

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{I_{obs}}{\frac{4\pi \int I_V dE}{\sigma_{Vanadium}} \times \frac{p \times N_{PLCO}}{p' \times N_{Vanadium}}} \quad (42)$$

Vanadium の吸収率 $p' \sim 1$ と仮定する。 N_{PLCO} は測定試料の標的数であり、 p は試料の透過率である。式 (42) より、ビーム還浴している実質的な試料標的数を正確に知る必要がある。

各々の方法で規格化した PLCO の磁気散乱を図 50 に示す。 Vanadium で規格化した方が 20%強シグナルを大きく評価している。

6.1.3 規格化因子の差の原因考察

Vanadium を用いたときと試料自身の incoherent scattering を用いたときの規格化因子の 20%程度のずれの原因を考える。試料の incoherent scattering、図 49 のピークに試料由来でないシグナルが含まれているからだと考えられる。それはおそらく試料周りの Cd や Al が考えられる。試料周りからの影響をある仮定から考える。

中性子ビームの入射方向に対して垂直な面への試料の射影面積を $14.4[\text{cm}^2]$ とする、その 10%、 $1.44[\text{cm}^2]$ を試料以外の射影面積とし、仮にそれを厚さ 1mm の Cd 板だと仮定する。これから出る incoherent scattering がどれくらい効いてくるか考える。

まず LSCO 自身の純粋な incoherent scattering cross section による寄与として式 (28) から考える。

$$I = A \times N \times p \times \frac{d^2\sigma_{LSCO}}{dEd\Omega} \quad (43)$$

$$I_{Integral} = 4\pi \int dE I = A \times N \times p \times \sigma_{LSCO} \quad (44)$$

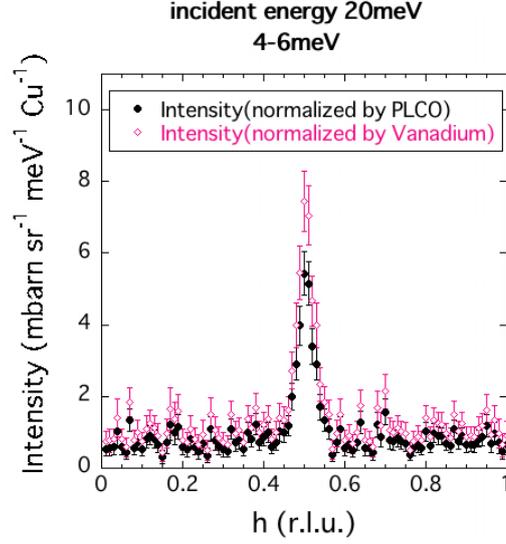


図 50: 黒い丸は PLCO 自身の incoherent を用いて規格化した磁気散乱のシグナル、赤い菱形は Vanadium を用いた規格化のものである。

A は真の規格化因子である。N は標的数であり、 $N = \frac{71.2}{403.4} \times 6.02 \times 10^{23} = 1.063 \times 10^{23}$ 個である。p は中性子透過率であり、いくつかの入射エネルギーに対してまとめておくと表 4 となる。

σ_{LSCO} は LSCO からの incoherent scattering cross section であり 2.7[barn] である。

$$I_{Integral} = A \times p \times 1.06 \times 10^{23} \times 2.7 \times 10^{-24} \quad (45)$$

$$= A \times p \times 0.286 \quad (46)$$

では次に試料周りの Cd からの寄与を考える。

$$I' = A \times N' \times p' \times \frac{d^2\sigma_{Cd}}{dE d\Omega} \quad (47)$$

今、面積 1.44[cm²]、厚さ 0.1[cm] の Cd 板を考えているのでその体積は 0.144[cm³] である。Cd の原子量は 112.411[g mol⁻¹] で、密度を考えると

$$\rho_{Vanadium} = 8.65[\text{g cm}^{-3}] \quad (48)$$

$$= \frac{8.65}{112.41} \times 6.02 \times 10^{23} [\text{個 cm}^{-3}] \quad (49)$$

$$= 4.63 \times 10^{22} [\text{個 cm}^{-3}] \quad (50)$$

表 4: LSCO(x=0.10) の透過率まとめ

入射エネルギー [meV]	中性子速度 [km/s]	透過率 p
15	1.7	0.71
25	2.2	0.76
45	2.9	0.82
112	4.6	0.88
208	6.3	0.91
350	8.2	0.93

質量は 1.2456[g] なので N' は

$$N = \frac{1.2456}{112.411} \times 6.02 \times 10^{23} \quad (51)$$

$$= 6.67 \times 10^{21} \quad (52)$$

σ_{Cd} は Cd の incoherent scattering cross section であり 3.46[barn] である。
 p' は Cd の中性子透過率であり表 5 にまとめる。よって Cd からの inco-

表 5: Cd 板の透過率まとめ

入射エネルギー [meV]	中性子速度 [km/s]	透過率 p'
15	1.7	2.8×10^{-7}
25	2.2	8.6×10^{-6}
45	2.9	1.4×10^{-4}
112	4.6	3.8×10^{-3}
208	6.3	1.7×10^{-2}
350	8.2	4.4×10^{-2}

herent scattering の寄与は

$$I'_{Integral} = A \times p' \times 6.67 \times 10^{21} \times 3.46 \times 10^{-24} \quad (53)$$

$$= A \times p' \times 2.3 \times 10^{-2} \quad (54)$$

式 (46)、(??) 式を比べ、表 4、5 を考慮すると Cd 板からの incoherent scattering に対する寄与は非常に小さいことが分かる。

他に考えられる汚染の原因は Al である。また中性子を吸収した Cd が γ 線を放出することで incoherent に影響を与える可能性は充分にある。図 51 は実際に試料をセットしたときと、試料だけを外したときの incoherent peak の観測である。試料を外しても依然として incoherent 成分があることが分かる。その強度は 14%程度であるが、本来ならばこの分を引いて試料だけの真の incoherent 分を求めて規格化するのが望ましい。

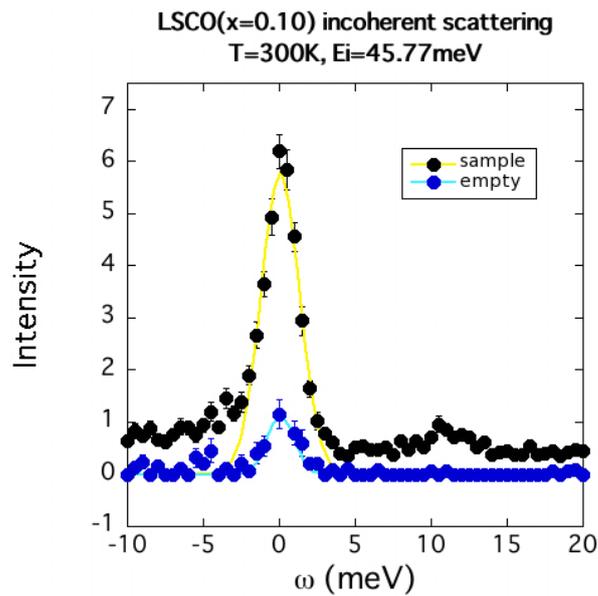


図 51: sample をセットしたときと空のときの incoherent scattering の違い

6.2 エネルギーに依存した中性子透過率

前回まで入射エネルギーにのみ依存した透過率を考えていたが、本項でエネルギートランスファーにも依存した透過率を考える。

ビーム透過厚さを $d=1.2[\text{cm}]$ とし、 $0 \rightarrow xd[\text{cm}]$ までを入射エネルギー E_i で中性子は進んだとし、そこで散乱が起こり、残りの $xd \rightarrow d$ までの $(1-x)d[\text{cm}]$ を最終エネルギー E_f で進んだとする。(散乱の方向は考えず、全て入射方向に進んだとする。)

このような状況では透過率 p は E_i と E_f 、そして x の関数として表せられ

る。

$$p = \exp(-\rho\{xd\sigma_{abs} + (1-x)d\sigma_{abs'}\}) \quad (55)$$

ここで σ_{abs} は速度の関数であり、すなわち中性子エネルギーの関数である。

$$\sigma_{abs} = \frac{2.2 \times \sigma_{abs}(v = 2.2)}{v} \quad (56)$$

$$= \frac{2.2 \times \sigma_{abs}(v = 2.2)}{\sqrt{\frac{2E_i}{m}}} \quad (57)$$

$$\sigma_{abs'} = \frac{2.2 \times \sigma_{abs}(v = 2.2)}{v'} \quad (58)$$

$$= \frac{2.2 \times \sigma_{abs}(v = 2.2)}{\sqrt{\frac{2E_f}{m}}} \quad (59)$$

ここで速度 v の単位は $[\text{km s}^{-1}]$ である。 m は中性子質量で $940[\text{MeV } c^{-2}]$ である。(4) 式を書き直して

$$p = \exp(-\rho d \times 2.2 \times \sigma_{abs}(v = 2.2) \sqrt{\frac{m}{2}} \left\{ \frac{x}{\sqrt{E_i}} + \frac{1-x}{\sqrt{E_f}} \right\}) \quad (60)$$

ここで $A = \rho d \times 2.2 \times \sigma_{abs}(v = 2.2) \sqrt{\frac{m}{2}}$ とまとめておいて

$$p = \exp\left[-A\left(\frac{x}{\sqrt{E_i}} + \frac{1-x}{\sqrt{E_f}}\right)\right] \quad (61)$$

$$\bar{p} = \int_{x=0}^1 dx \exp\left[-A\left(\frac{x}{\sqrt{E_i}} + \frac{1-x}{\sqrt{E_f}}\right)\right] \quad (62)$$

$$= \exp\left[-A\frac{1}{\sqrt{E_f}}\right] \int_{x=0}^1 dx \exp\left[-A\left(\frac{1}{\sqrt{E_i}} - \frac{1}{\sqrt{E_f}}\right)x\right] \quad (63)$$

$$= \exp\left[-A\frac{1}{\sqrt{E_f}}\right] \frac{(-1)}{A\left(\frac{1}{\sqrt{E_i}} - \frac{1}{\sqrt{E_f}}\right)} \left(\exp\left[-A\left(\frac{1}{\sqrt{E_i}} - \frac{1}{\sqrt{E_f}}\right)\right] - 1\right) \quad (64)$$

\bar{p} は x に関して同じ重みで平均したものである。さらに $E_f = E_i - \hbar\omega$ であるので、

$$\bar{p} = \exp \left[-A \frac{1}{\sqrt{E_i - \hbar\omega}} \right] \frac{(-1)}{A \left(\frac{1}{\sqrt{E_i}} - \frac{1}{\sqrt{E_i - \hbar\omega}} \right)} \times$$

$$\left(\exp \left[-A \left(\frac{1}{\sqrt{E_i}} - \frac{1}{\sqrt{E_i - \hbar\omega}} \right) \right] - 1 \right) \quad (65)$$

A を具体的に計算する。 $m=940[\text{MeV } c^{-2}]=10.44[\text{meV } (\text{km/s})^{-2}]$ であり、 $\sigma_{\text{abs}}(v = 2.2)=20.95 \times 10^{-24} [\text{cm}^2]$ である。

$$A = \rho d \times 2.2 \times \sigma_{\text{abs}}(v = 2.2) \sqrt{\frac{m}{2}} \quad (66)$$

$$= 1.327 [\text{meV}^{1/2}] \quad (67)$$

この A を (14) 式に代入し、 E_i を設定すれば透過率を $\hbar\omega$ の関数として得られる。様々な E_i での計算結果を図に示す。

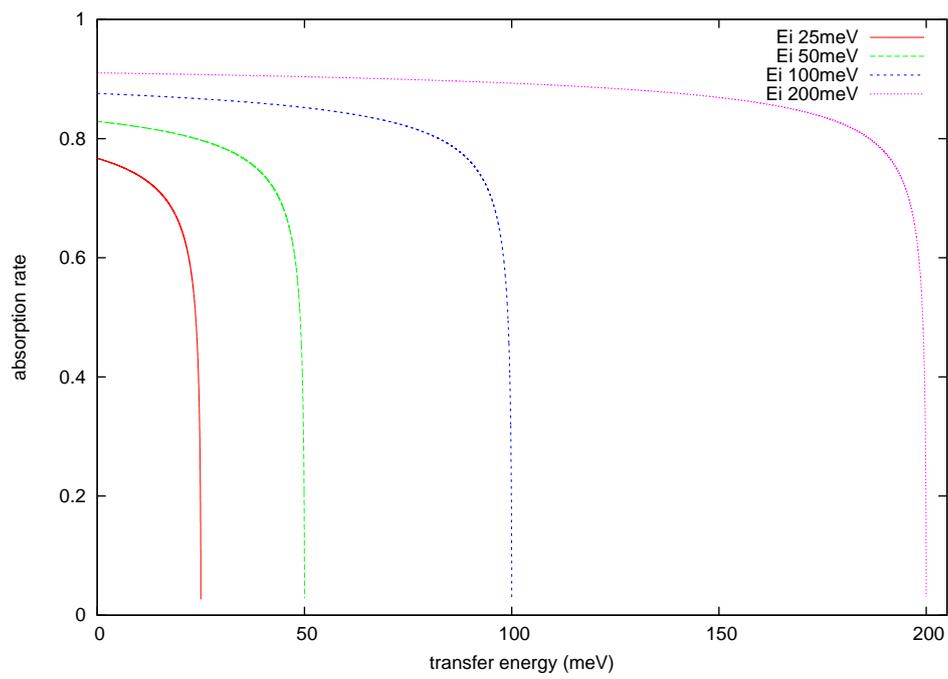


図 52: 様々な入射エネルギーでの透過率のエネルギートランスファー依存性を示す。

6.3 $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の \mathbf{Q} 積分の検討、関数依存性

本分中でも触れたように我々が得た $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の \mathbf{Q} 積分したものと Lipscombe *et al* らのもの ($x=0.085$) とでは値が2倍弱異なっている。この原因は fitting する関数の差からくるものであると述べているが、本項ではその誤差と fitting の妥当性に関して考察する。

我々は peak の形状をより精密に捉えるため、擬似的に2次元的な fitting を行った。Figure 53 (a) の内に示すように $(0.5, 0.5)$ 周りのシグナルを k 方向に幅を持った短冊のように切り、それを並べ h と k の2変数関数で k をそれぞれの短冊に対して固定しての fitting を行った。 $(0.5, 0.5)$ 周りの4つの Lorentzian peak の重ね合わせの関数と、Sato-Maki function で同一のデータで fitting を行い、比較を行う。

- 4つの incommensurate peak

$$\begin{aligned}
 S(\mathbf{Q}, \omega) = \chi_\delta(\omega) \kappa^2 \{ & \frac{1}{(h - 0.5 - \delta)^2 + (k - 0.5)^2 + \kappa^2} \\
 & + \frac{1}{(h - 0.5 + \delta)^2 + (k - 0.5)^2 + \kappa^2} \\
 & + \frac{1}{(h - 0.5)^2 + (k - 0.5 - \delta)^2 + \kappa^2} \\
 & + \frac{1}{(h - 0.5)^2 + (k - 0.5 + \delta)^2 + \kappa^2} \} \quad (68)
 \end{aligned}$$

- sato-maki function

$$\begin{aligned}
 S(\mathbf{Q}, \omega) &= \chi_\delta \frac{\kappa^4(\omega)}{\kappa^2(\omega) + R(\mathbf{Q})} \\
 R(\mathbf{Q}) &= \frac{[(h - 0.5)^2 + (k - 0.5)^2 - \delta^2]^2 + \lambda(h - 0.5)^2(k - 0.5)^2}{4\delta^2}
 \end{aligned}$$

Figure 53 (b), (c) はそれぞれの fitting から得られたパラメータから、それぞれの関数を再現したものである。これより、我々が用いた関数では Sato-Maki function に比べて peak がよりシャープであり、そして peak

の裾野が広がっている。それぞれを積分すると4つの Lorentzian が積分値 0.0089041 (arb. unit) に対して、Sato-Maki function は積分値 0.004741 (arb.unit.) である、実に2倍の差がついてしまった。fitting の信頼度を表す χ^2 は4 Lorentzian peak fitting で 886、Sato-Maki function で 784 であり、ほとんど変わらないのにも関わらずである。他のエネルギーでも χ^2 はほとんど変わらないが積分値は大きく差がついてしまった。低エネルギー部分 (<15meV) での2つの fitting で評価した積分値の違いを Figure 54 に示す。系統的に Sato-Maki function による積分値の見積もりは小さくなっていることが示される。本組成より若干 underdope で、Sato-Maki function で fitting を行っている Lipscombe *et al* らのデータも示すが、これは我々の Sato-Maki function fitting のデータとほぼ一致する。結局、Figure ?? に示すような低エネルギーの $\chi''(\hbar\omega)$ のデータが Lipscombe らのものと大きくずれているのは Fitting 関数に起因しているということが分かり、我々の低エネルギー部分の見積もりと彼らのものとを比較するには注意が必要である。本文中にも強調しているように、同じ方法で解析した異なる温度のデータを比べる分には問題はない。

どちらの関数の積分が妥当であるのかを確かめるため、関数 fitting によらない方法で積分値を求めた。まずシグナルから遠いところで Q^2 に比例する background を決めてその分を引き、Brillouin Zone 全体でシグナルの値を積算した。得られた結果と我々の関数 fit からの積分との比較を表 6 示す。

表 6: 積分値比較; 積分 1 は我々の関数で fit して積分した結果であり、積分 2 は Sato-Maki 関数での結果、そして積分 3 は関数によらずシグナルを積分したものである。

$\hbar\omega$ [meV]	積分 1 [$\mu_B^2 eV^{-1} Cu^{-1}$]	積分 2 [$\mu_B^2 eV^{-1} Cu^{-1}$]	積分 3 [$\mu_B^2 eV^{-1} Cu^{-1}$]
4	5.2	2.8	3.1
18	5.1	2.6	4.4
90	1.4	0.88	1.4
140	1.4	0.93	1.4

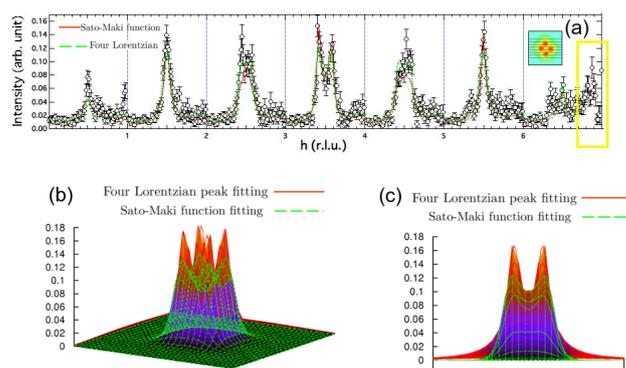


図 53: (Color online) 入射エネルギー 15.4meV で 5K のときの $S(\mathbf{Q}, \hbar\omega)$ の fitting 結果を示す。(a) $k=0.35$ から $k=0.65$ までを 7 分割し ($\Delta k=0.043$)、 k の小さいものから左から順に並べたものである。よって、横軸は h (r.l.u) としているが、 $h=0$ から $h=7$ まで cut している訳ではなくて、全て $h=0$ から $h=1$ までの window である。縦軸の強度は規格化はしておらず、生データのままだので Intensity (arb. unit.) である。solid line は four Lorentzian peak fitting であり、dash line は Sato-Maki function による fitting 結果である。(b) fitting 結果から得られたパラメータで four Lorentzian peak、Sato-Maki function を表したものである。(c) 上記 2 つの関数を横から見たものである。

La_{1.90}Sr_{0.10}CuO₄, T=5K

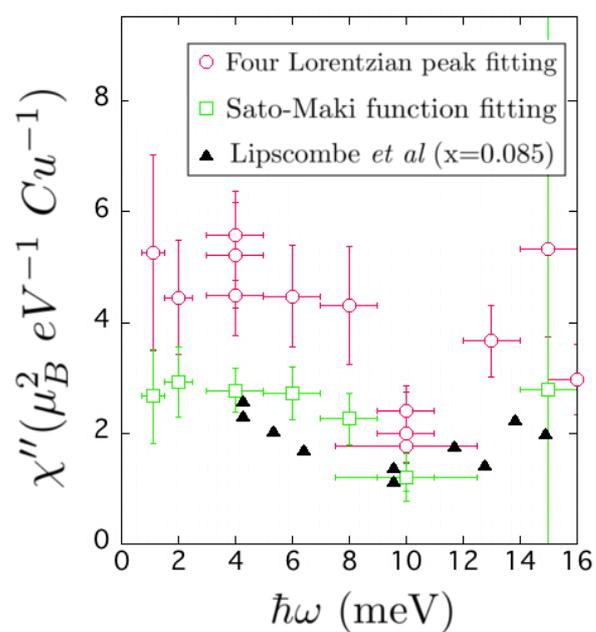


図 54: (Color online) La_{1.90}Sr_{0.10}CuO₄ から出てきた $\chi''(\hbar\omega)$ の低エネルギー部分である。open circle は four Lorentzian peak fitting による結果であり、open square は Sato-Maki function による fitting である。比較のために Lipscombe *et al* らの結果ものせている。

参考文献

- [1] J. G. Bednorz, K. A. Müller: Z. Phys. B **64** 189 (1986)
- [2] J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer: Phys. Rev. **108** (1957)
- [3] D. J. Scalapino *et al.*, Phys. Rev. B **34**, 8190 (1986).
- [4] R. Coldea *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 5377 (2001).
- [5] V. Hinkov *et al.*, Nature **3**, 780 (2007).
- [6] G. Xu *et al.*, Nature Phys **5**, 642 (2009).
- [7] K. Yamada *et al.*, Phys. Rev. B **57**, 6165 (1998).
- [8] M. Fujita *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 011007 (2011).
- [9] Pengcheng Dai *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 054525 (2001).
- [10] B. Vignolle *et al.*, Nat. Phys. **3**, 163 (2007).
- [11] O. J. Lipscombe *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 067002 (2007).
- [12] O. J. Lipscombe *et al.*, Phys. Rev. Lett. **102** 167002 (2009).
- [13] Y. Endoh, K. Yamada, R.J. Birgeneau, D. R. Gabbe, H. P. Jenssen, M. A. Kastner, C. J. Peters, P. J. Picone, T. R. Thurston, J. Tranquada, G. Shirane, Y. Hidaka, M. Oda, Y. Enomoto, M. Suzuki and T. Murakami: Phys. Rev. B **37**, 7443 (1988).
- [14] M. Matsuda *et al.*, Phys. Rev. Lett. **101**, 197001 (2008).
- [15] T. Kondo *et al.*, Nature **457**, 15 (2009).
- [16] K. Hirota: Physica C **357**, 61 (2001).
- [17] J. M. Tranquada, B. J. Sternlieb, J. D. Axe, Y. Nakamura, and S. Uchida: Nature **375**, 561 (1995).
- [18] M. Fujita, M. Enoki, S. Iikubo, K. Kudo, N. Kobayashi, and K. Yamada: cond-matt, arXiv: 0903.5391v1 (2009).

- [19] J. M. Tranquada *et al.*, Nature (London) **429**, 531 (2004).
- [20] V. J. Emery *et al.*, Phys. Rev. B **56**, 6120 (1997).
- [21] Matthias Vojita and Tobias Ulbricht, Phys. Rev. Lett. **93**, 12 (2004).
- [22] M. Fujita *et al.*, Phys. Rev. B **70**, 104517 (2004).
- [23] Masafumi Ito *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 1 (2002).
- [24] X. J. Zhou *et al.*, Phys. Rev. Lett. **92**, 187001 (2004).
- [25] M. R. Norman, Phys. Rev. B **75**, 184514 (2007).
- [26] D. Reznik *et al.*, Phys. Rev. B **78**, 132503 (2008).
- [27] J-PARC、MLF 内のサイトより
http://j-parc.jp/researcher/MatLife/ja/instrumentation/ns_spec.html
- [28] M. Nakamura *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 093002 (2009).
- [29] 藤田全基: 博士論文 (平成9年度)
- [30] S. Shamoto *et al.*, Phys. Rev. B **48**, 13817 (1993).
- [31] Sato, H. and Maki, K. Int. J. Magn. **6**, 183 (1974).
- [32] Fujio Izumi *et al.*, Solid State Phenomena **130**, 15 (2007).
- [33] D. S. Ellis *et al.*, Phys. Rev. B **81**, 085124 (2010).
- [34] S. Sugai *et al.*, Phys. Rev. B **68**, 184504 (2003).
- [35] 立木昌, 藤田敏三 編, 高温超伝導の科学, 裳華房 (1999).
- [36] J. Lorenzana, G. Seibold and R. Coldea, Phys. Rev. B **72**, 224511 (2005).
- [37] N. S. Headings *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105**, 247001 (2010).
- [38] Masafumi Ito *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **72**, 1627 (2003).
- [39] Y. Kohsaka *et al.*, Nat. Phys. (2012)

- [40] R. Eder, Phys. Rev. B **57**, 12832 (1998).
- [41] Pengcheng Dai *et al.*, Science **284**, 1344, (1999).
- [42] T. Yoshida *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 037004 (2009).
- [43] 斯波弘行, 固体の電子論, 和光システム研究所 (2010).
- [44] J. Chang *et al.*, Nat. Phys. **8** (2012).
- [45] Pengcheng Dai *et al.*, Phys. Rev. B **63**, 054525 (2001).

謝辞

学部4年から始まり修士2年に至るまで、計3年間の感謝の想いをこの場で申し上げます。

藤田全基准教授には日々の研究活動の中で多くのことをご指導賜りました。研究を進める上で分からないことに次々とぶつかったとき丁寧に時間をかけて導いてくださり、本当に感謝しております。実験の技術や物理の知識以外にも、研究者として大切なことは何か、ということがたくさん教えて頂きました。藤田先生のおっしゃる言葉の中で「肝心なことが分かるかどうか大事」というものが最も印象に残っております。頻繁に大切なものを見失い、その度に慌てておりましたが、これから博士後期課程でも先生に師事していくなかで力を付け、「肝心」が分かる人間になりたいと思います。宜しくお願い致します。松浦直人助教にはこの3年間で最も長い時間を共に過ごし、隅々までご指導していただきました。初めての結晶育成、実験、そして議論に至るまで膨大な作業にじっくりと付き合ってくださいました。研究の核心にかかる質問から、一般的な物理の質問まで丁寧に対応して頂きました。物理のお話をする中で、ときに私が妙な事を言うときにも真剣に付き合ってくださいました。ありがとうございました。山田和芳教授には私をこの研究室に迎えていただき、本当に感謝しております。学部3年当時、中性子散乱というものについて全く知識のない私でしたが、先生が名付けられた「スピン構造物性」という魅力的な講座名のおかげで中性子散乱に出会うことが出来ました。セミナー時に山田先生から投げかけられた質問は「本当にあなたは分かっているのか」というメッセージに溢れていて、その度に猛省し頭の中で練り直しを何度も何度も繰り返しました。山田先生のおっしゃるように、直感的に説明することを意識するようになってから物理がグンと面白くなりました。大山研司准教授にはコンピュータを使った作業で頻繁にお世話になりました。特にRIETANを使ったリートベルト解析をやっているとき独力ではエラーばかりで煮詰まっていたのですが、優しく助けて頂きました。研究室に入ったばかりのころ、中性子散乱のイメージを初めて与えてくださったのは大山先生でした。平賀晴弘助教には研究を進める上での質問にいつも快く答えてくださりました。2年間同室でしたが和やかな雰囲気を作ってください、楽しく作業を進められました。山口泰男先生も質問にとっても丁寧に付き合ってくださいました。物理の

基本的なことにも良く答えてくださりました。佐藤豊人助教には構造解析を具体的に教えて頂きました。セミナーの後などにしつこくお聞きしたことがありますが快く答えてくださり、ありがたく思っております。村上直樹実験助手には金属加工をはじめとした諸々の作業で特にお世話になりました。また我々の健康を気遣ってくださり心温まりました。大河原学技官には原子炉実験の際にお世話になりました。実験室に入る際にズボンを貸していただいたことは本当に感謝しております。本間基子秘書には様々な事務手続きでお世話になりました。自分で処理しきれない書類をやっていただくこともしばしばあり、滞りなく実験を進められたのは本当に本間さんのご助力のおかげだと思っております。おいしいお菓子をいただくこともありました。

私にとって修士2年間の研究の目玉である「四季」での実験をする上でも多くの方に助けていただきました。CROSSの梶本亮一さん、池内和彦さん、Sungdae Jiさん、J-PARCセンターの中村充孝さん、稲村泰弘さん、物質生命科学ディビジョン長の新井正敏教授、6名の方には特にお世話になりました。梶本さんにはTOF実験をする際の具体的な方法から、様々な解析方法まで教えて頂きました。幾度となくメールで質問させて頂きましたが、丁寧に何度も何度も対応してくださりました。中島健次さんには高温実験をする際に器具を提供していただきました。J-PARCの方にはこの2年間で様々な機会でお世話になりました。私は核破砕型の中性子散乱実験をするということで物々しい印象を抱いておりましたが、皆様のお気遣いで楽しく実験をすることができました。

研究室の生活の中で多くの先輩、同輩、後輩と楽しく過ごさせて頂きました。鳴谷幸祐さん、阿井雄貴さんとは私が4年のときの1年間だけでしたがいつも面白くお話をさせて頂きました。堤健之さんとはともに物理の勉強をさせて頂きました。あの日々が私の物理的感覚を大いに刺激したと思います。今里拓朗さん、三浦智弘さん、崔純彰さんは私の一つ上の先輩としていろいろな相談をさせて頂きました。崔さんには特に飲みのお世話になりました。後輩の川村奨くんはいつもにぎやかで周りは笑いが絶えませんでした。今は遠く九州にいらっしゃる榎木勝徳さんには3年間あらゆる面でお世話になりました。研究室に入ったばかりのとき何も分からない私にいろいろな事を教えてくださりました。寮までの帰り道などに榎木さんと何気なくお話したことで博士後期課程進学を決めました。同輩の佐々木隆了、奈良壮とは冗談を言い合いながら、楽しいとき、辛いとき、多くのすばらしい時間を共有でき

ました。どうもありがとう。金研点検評価室の石本賢一さんには様々な場面で応援していただきました。本当に感謝しております。

佐々木孝彦教授、佐藤卓教授には論文審査委員を、佐藤宇史准教授には最終試験委員をお引き受けいただきました。ありがとうございました。先生方のご質問に適切に答えられなかった場面が多々ありましたが、今後精進致します。結果として修士発表は満足の行くものではありませんでした。この想いをいつまでも忘れず励みにしたいと思います。

ここには挙げていませんが、そのほかにも多くの方に支えられて研究生生活を進めることができました。ありがとうございました。最後に、自分の好きなことを存分にやらせてくれた両親に感謝をしまして、謝辞を締めくくります。