

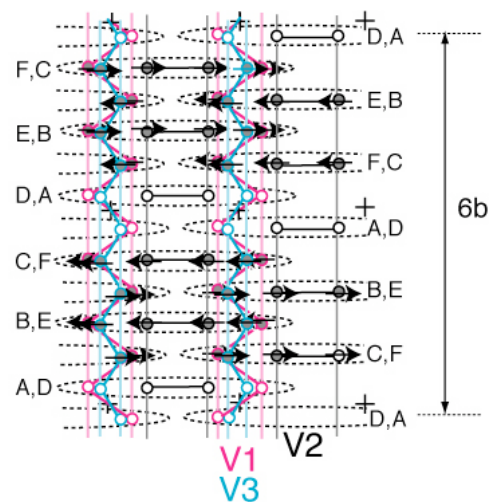
中性子散乱による強相関電子物性の研究 - 電荷・スピン・軌道の時間・空間構造 -

東京大学物性研究所 附属中性子科学研究施設 廣田 和馬
hirota@issp.u-tokyo.ac.jp

中性子散乱では、物質の性質を、原子核および電子スピンの空間構造と運動として、波数 (Q) + エネルギー (E) の4次元空間で詳細に研究することができる。とくに重要なのは、(1) 中性子は原子核によって散乱されるため散乱断面積が原子番号に単純には依存しない、(2) 中性子は核スピン $1/2$ をもつため磁気構造を反映した散乱が生じる、(3) 結晶格子や分子の繰り返し周期と同程度の波長をもつ中性子と物質内でやり取りされるエネルギーが同じオーダーであるため素励起を直接観測できる、という3つの性質であろう。中性子散乱は、結晶学や磁性という伝統的な固体物理の枠組みを超えて、分子磁性、ガラス・非晶質、高分子・ソフトマター、生体物質などの広い分野に研究の裾野が広がっており、東大物性研の中性子共同利用の申請状況にも反映されている。本講演では、固体物理の中心的な課題である強相関電子物性の研究に、どのように中性子散乱が貢献しているかを具体的な例を挙げて説明する。

スピンを通して観測する電荷と軌道自由度

$3d$ 軌道や $4f$ 軌道の不対電子のもつ磁気モーメントを利用すると、中性子散乱によって電荷や軌道の配列に関する情報をうまく得られる場合がある。 $\beta\text{-Na}_{0.33}\text{V}_2\text{O}_5$ は、 b 軸に平行な3種類のバナジウム鎖をもつ擬一次元伝導体であるが、高圧下で発現する(バナジウム酸化物としては初めての)超伝導相が圧力・温度相図上で絶縁体相と隣接するという興味深い物性をもつ¹。常圧下では 130 K で金属・絶縁体転移を示し、 $6b$ 周期の電荷秩序状態がその起源として提唱された。しかし、どのような電荷秩序相が実現しているかは、X線回折、ESR、NMRなどの実験手法によって大きく解釈が異なっていた。われわれは、 $S = 1/2$ と 0 が V^{4+} と V^{5+} にそれぞれ対応するため、スピン密度分布から電荷密度分布を求められるということに気がつき、 24 K 以下で



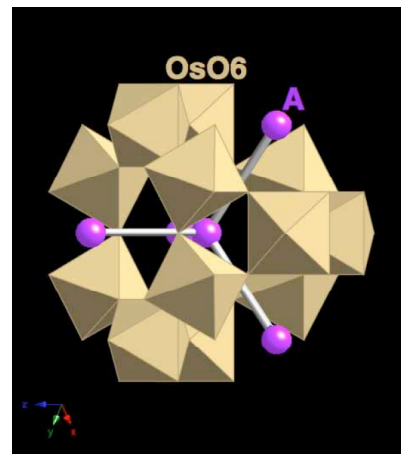
出現する反強磁性相での中性子磁気回折から電荷秩序構造を解くことに成功した²。その結果、130 K での金属・絶縁体転移が、3種類のバナジウム鎖全てで、 $V 3d$ 軌道が $3b$ 周期で電荷不均一化するためであることが明らかになった。講演では、軌道秩序の観測例についても紹介したい。

カイラリティと偏極中性子

近年、 $RMnO_3$ や RMn_2O_5 をはじめとする様々な物質で磁気強誘電性が発見され、マルチフェロイクスとして盛んに研究されるようになってきている。最近の理論的研究によりこの強誘電性はスピンのヘリカル（らせん）構造によって引き起こされていることが提唱され³、実際に $TbMnO_3$ では強誘電相でのらせん磁性相の存在が確認された⁴。われわれは、らせん構造と自発分極の対応を明らかにするために、 $TbMnO_3$ に電場を印加できる状態で偏極中性子解析実験を行った⁵。らせん構造には右巻きと左巻き（カイラリティ）が存在するが、中性子のスピン偏極を制御し、散乱過程でのスピン偏極の変化を調べることで、通常の磁気回折では区別できないカイラリティを観測することができる。実験の結果、低温強誘電相において、0.8 kV/cm という弱い外部電場によって分極の方向を変化させると、スピンカイラリティが反転することが確かめられた。電場による磁性制御への第一歩として極めて重要であると考えている。

ラトリングー 揺りかごの中の原子振動

パイロクロア格子は正四面体を基本とする3次元フラストレーションの典型例として盛んに研究が進められて来た。最近、 β パイロクロア型酸化物 AOs_2O_6 ($A = K, Rb, Cs$) が超伝導 ($T_c = 9.6$ K, 6.3 K, 3.3 K) を示すことが発見され、注目を集めている⁶。 AOs_2O_6 では、Os と O が形成する広い「かご」の中にアルカリ原子 A が内包されている。比熱などの実験から、A 原子が局在性の強い運動（ラトリング）を有していることが指摘され、ラトリングと超伝導性の



関連や、 KOs_2O_6 で発見されたラトリング状態の変化によると思われる T_c 以下での相転移など、様々な興味を持たれている。ラトリングは、中性子非弾性散乱ではその局在性を反映して波数空間でほとんど分散をもたない励起として観測されるはずであるが、 AOs_2O_6 は気相成長法をもちいて作成されるため中性子非弾性散乱に使用できるような大きな単結晶がまだ得られていない。われわれは、

1 g 程度の粉末試料と集光型アナライザーを搭載した 3 軸型分光器を用いて中性子非弾性散乱を試みた。その結果、 KOs_2O_6 , RbOs_2O_6 , CsOs_2O_6 においてそれぞれ 6.4 meV, 6.3 meV, 6.8 meV を中心とする分散のない励起が存在し、さらに散乱強度の波数依存性や温度依存性からこの励起が格子振動によるものであることが確認された⁷。この励起はラトリングに対応していると考えているが、内包されるアルカリ原子の種類に励起エネルギーがほとんど依存しないということは予想外であった。講演ではこの問題に関連して、ラトリングにどのような相互作用が関与しているかについて議論したい。

本講演でとりあげる物質は、どれも最近我が国で新たに合成されたり、その新奇な物性が発見されたものである。このような「新物質」の研究に対して、中性子散乱が効率よく効果的に関与していくにはどのようにすればよいか、シンポジウム全体を通じて議論していければ有り難い。

-
- ¹ T. Yamauchi, Y. Ueda and N. Mori, Phys. Rev. Lett. **89**, 057002 (2002).
 - ² S. Nagai, M. Nishi, K. Kakurai, Y. Oohara, H. Yoshizawa, H. Kimura, Y. Noda, B. Grenier, T. Yamauchi, J. Yamaura, M. Isobe, Y. Ueda, and K. Hirota, J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 1297 (2005).
 - ³ H. Katsura, N. Nagaosa and A. V. Balatsky, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
 - ⁴ T. Arima, A. Tokunaga, T. Goto, H. Kimura, Y. Noda, and Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. **96**, 097272 (2006).
 - ⁵ Y. Yamasaki, H. Sagayama, T. Goto, M. Matsuura, K. Hirota, T. Arima, and Y. Tokura, unpublished.
 - ⁶ S. Yonezawa, Y. Muraoka, Y. Matsushita and Z. Hiroi, J. Phys. Soc. Jpn **73** (2004) 819.
 - ⁷ K. Sasai, K. Hirota, Y. Nagao, S. Yonezawa, and Z. Hiroi, unpublished.