



量体化系化合物の回折実験

片山尚幸

名古屋大学大学院工学研究科 応用物理学専攻

キーワード：量体化 短距離秩序

1. 背景と研究目的

電荷自由度を持つバナジウムカルコゲナイドの基底状態の探索は、物性物理学における主要な研究テーマの一つである。例えば、 LiV_2O_4 の重い電子状態、 $\beta\text{-Na}_0.33\text{V}_2\text{O}_5$ 、 NaV_2O_5 に圧力下で現れる「悪魔の花」と呼ばれる様々な電荷秩序状態、 Li_xVX_2 系 ($0 \leq x \leq 1$, $\text{X} = \text{O}, \text{S}, \text{Se}$) における様々な分子形成パターン、そして最近発見された CsV_3Sb_5 における電荷秩序状態から現れる非従来型超伝導などである。電荷の自由度に起因する複数の電子相間の競合が、これらの系で実現する多様な基底状態の根底にある。電荷の自由度を持つバナジウムカルコゲナイドに準安定相として普遍的に存在する競合する基底状態を自由に取り出すことができれば、既存の物質系をさらなる物性探求の舞台へと変貌させることができるだろう。

こうした研究の対象として、申請者らは V に電荷の自由度を持つ $\delta\text{-Ag}_2/3\text{V}_2\text{O}_5$ に着目して研究を行い、これが面白い研究の舞台を提供することを明らかにしつつある。 $\delta\text{-Ag}_2/3\text{V}_2\text{O}_5$ では、低温で現れる V の電荷秩序状態や物性は Ag の秩序状態に強く依存することが知られている。試料を室温から徐冷し、Ag サイトに秩序が生じると、V の $\text{V}^{4+}/\text{V}^{5+}$ 電荷秩序とそれに続く $\text{V}_4^{+}/\text{V}_4^{+}$ 構造二量体が生成する。一方で、試料を室温から急冷すると Ag の秩序化は抑制されるが、160K 付近でアニールすると Ag の部分的な秩序化が促進され、準安定相が実現する。この準安定相は、再び温度を下げても維持され、低温特性に顕著な変化をもたらす。これらの結果は、電荷秩序状態や物性を制御する鍵となる Ag の秩序状態を低温アニールによって制御できることを示しており、様々な電荷秩序状態の競合が物性の根底にあるバナジウムカルコゲナイドの幅広い物質群において、準安定状態を実現するための方法論を提供する可能性がある。

以上の結果の一部はあいち SR BL5S2 における回折実験から得られた成果である。本研究では、論文投稿に向けて不足している実験データの一部を補完することを目的として研究を行った。

2. 実験内容

実験は BL5S2 ビームラインにおいて、20 keV の波長を用いて実験を行った。低温吹き付けを用い、110-160 K の範囲における温度変化を調べた。 $\phi 0.3$ のリンデマンキャピラリを用いて実験を行った。110 K にセットした低温吹付中にキャピラリ試料を差し入れることで急冷を達成した。一定温度条件下での長時間アニールなどが重要であり、本実験には2シフトを要している。

3. 結果および考察

160 K だけではなく、155 K, 165 K など複数の温度域で長時間アニールを行い、回折パターンの変化を調べた結果、アニール温度が高温になるにしたがって秩序化の度合いが発達する様子が観測された。また、アニール後に低温に下げても秩序化は維持されていることが明らかになった。以上の成果は先行研究で得られている成果の方向性と一致しており、本実験により論文化に向けた十分なデータを収集することができた。現在は、本研究成果を含む内容について論文を *Physical Review B* 誌に投稿しており (2024/1/25 提出)、査読結果を待つ状況である。