

BL14A における軌道波動関数計測技術の開発 Development of Techniques for Orbital Wave Function Observation at BL14A

坂倉輝俊^{1,*}, 木村宏之¹

¹ 東北大多元研, 〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1

Terutoshi Sakakura^{1,*} and Hiroyuki Kimura

¹IMRAM, Tohoku Univ., 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, 980-8577, Japan

1 はじめに

軌道整列を示す化合物の典型として知られる YTiO_3 は Ti^{3+} の $3d^1$ の電子が軌道秩序を示す事で知られる。しかしながら、軌道秩序を示す電子数は単位胞当たり 4 個であるのに対し、全電子数は 340 個である。これは軌道秩序を示す電子の X 線散乱振幅への寄与率が僅かに 1.18%(=4/340) に止まる事を意味する。このため、このような電子を X 線回折で捉える事はこれまでの技術では困難であった。BL14A ではこの課題の克服に取り組み、 YTiO_3 の軌道波動関数を捉える事に成功してきている[1]。その一方で、X 線回折で軌道波動関数を捉える事が出来るようになった根拠の明確化と、得られた高精度かつ高確度なデータから軌道波動関数の情報を抽出する量子論的モデルに基づいた解析手法の確立とが重要な課題として残されていた。我々は前者の課題には 2015R-2 および 2015R-34 で基礎データ収集と分析に取り組み、後者には本課題で計測したデータを用いて、解析ソフトウェアの開発を進めてきた。本稿では後者の手法開発の成果について報告する。

2 実験

0.75500(2)Å の X 線を取り出し YTiO_3 の全空間の回折強度データを $2\theta=130^\circ$ の高角まで室温にて計測した。計測には、多重散乱回避法を採用し、APD 検出器[2]を用いた。また、解析には XAO 法[3]と呼ばれる、軌道波動関数レベルでのモデリングを可能とした解析法を採用し、本理論に基づく解析ソフトウェアを新たに開発して解析を行った。

3 結果および考察

今回求めた軌道秩序を示す $\text{Ti-}3d^1$ の軌道波動関数の角度部分の二乗を図 1 に示す。図 1 には類似の他手法として知られる偏極中性子回折[4]、NMR、共鳴 X 線散乱等により報告されている軌道波動関数の角度部分の二乗も比較の為に示した。図 1(a) は今回我々の決めた波動関数の形状であり、 $\text{Ti-}3d^1$ の電子の置かれた場の対称性-1 を正しく満たす。これに対し、図 1(b) に示した既往の報告は 4 回対称性があり、実際の場の対称性よりも高対称である事が解る。

また、本稿では詳細には触れないものの、我々の解析からは LCAO の線形結合係数の決定のみならず、動径波動関数も決定するに至った。

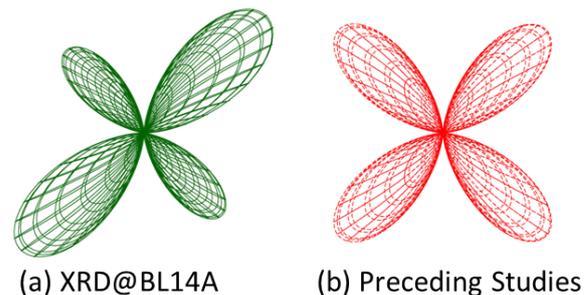


図1 角度部分2乗の形状比較

4 まとめ

BL14A において高精度かつ高正確度な計測法の開発に加え、軌道波動関数の解析を可能とする解析ソフトウェアを開発した結果、他手法を凌ぐ計測を実現するに至り、比較的重い元素を含むような強相関系においても X 線回折から軌道波動関数を定量的に決定できるようになった。

謝辞

本成果は課題番号 2011G022、2011G549、2012G692、における研究を推し進めて得られたものであり、これらの課題において野田幸男名誉教授（東北大、KEK）、石川喜久博士（KEK）、石澤伸夫名誉教授（名工大）、田中清明名誉教授（名工大、名産研）、竹中康之准教授（北教大函館校）、岸本俊二教授（KEK）らの支援を受けた。試料は十倉好紀教授（東大、理研 CEMS）から御提供いただいた。また、基盤研究(A) 21244051、挑戦的萌芽研究 23654098、基盤研究(B) 24340064、および基盤研究(A) 15H02038 の支援の下に本研究は行われました。

参考文献

- [1] T. Sakakura *et al.*, PF Act. Rep. 2012 **30B**, 215(2013).
- [2] S. Kishimoto *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **69**, 384-391, (1998).
- [3] K. Tanaka *et al.*, Acta Cryst. A **64**, 437-449 (2008).
- [4] H. Ichikawa *et al.*, Physica B **281-282**, 482-484(2000).

* sakakura@tagen.tohoku.ac.jp