

# コヒーレント軟 X 線回折イメージングによる $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ の相分離状態の観測の試み

## Phase separated state on $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ investigated by coherent soft x-ray diffraction technique

中尾裕則<sup>1,\*</sup>, 尾崎文彦<sup>2,\*\*</sup>, 水牧仁一朗<sup>3</sup>, 山崎裕一<sup>4</sup>, 桑原英樹<sup>5</sup>, 齋藤智彦<sup>2</sup>

<sup>1</sup>KEK 物構研, 〒305-0801 茨城県つくば市大徳 1-1

<sup>2</sup>東京理科大学, 〒125-8585 東京都葛飾区新宿 6-3-1

<sup>3</sup>JASRI, 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

<sup>4</sup>物材機構, 〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

<sup>5</sup>上智大学, 〒102-8554 東京都千代田区紀尾井町 7-1

Hironori NAKAO<sup>1,\*</sup>, Fumihiko OZAKI<sup>2,\*\*</sup>, Masaichiro MIZUMAKI<sup>3</sup>, Yuichi YAMASAKI<sup>4</sup>,  
Hideki KUWAHARA<sup>5</sup>, and Tomohiko SAITOH<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Photon Factory, IMSS, KEK, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan

<sup>2</sup>Tokyo University of Science, Tokyo 125-8585, Japan

<sup>3</sup>JASRI, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan

<sup>4</sup>NIMS, Tsukuba, Ibaraki 305-0047, Japan

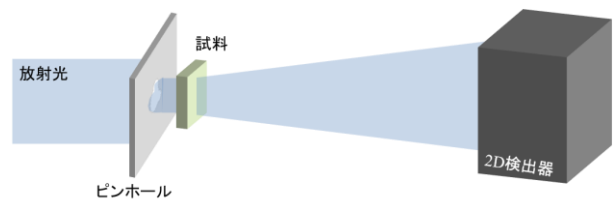
<sup>5</sup>Sophia University, Tokyo 102-8554, Japan

### 1 はじめに

強相関電子系では、電子の持つ自由度である電荷・軌道・スピンの織り成す多様な秩序状態から、多彩な物性が発現する。従って、これらの秩序状態を解明することが、物性の起源を理解する上で重要となっている。しかしながら、巨大磁気抵抗効果や巨大誘電応答といった顕著な物性では、電子の秩序状態だけでは理解出来ず、エネルギー的に拮抗した相の間での相分離・2相共存といったメゾスコピック構造であるドメインの応答の重要性が指摘されてきた。最近我々は、PFにおいて軟 X 線領域のコヒーレント X 線を利用したコヒーレント X 線回折イメージング研究を推進し、磁気スキルミオン等の磁気イメージングに成功した[1]。このような背景のもと本研究課題では、巨大磁気抵抗効果[2]を示すとともに明確な 2 相共存状態[3,4]が報告されている層状マンガン酸化物  $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$  を研究対象とし、PFの軟 X 線領域でのイメージング手法により、電子秩序相のドメインを観測することで、巨大応答の微視的機構の解明を目指した。

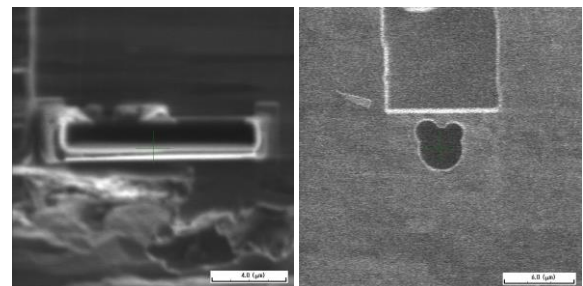
### 2 実験・結果

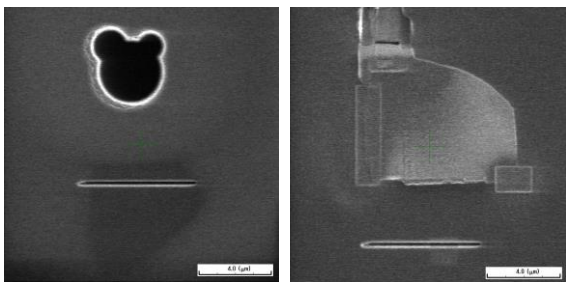
これまでに我々は、ピンホールを用いてコヒーレントな X 線を切り出し、そのピンホール直下に薄片化した試料を設置することで、透過配置でのコヒーレント X 線回折イメージングを成功させてきた (図)。そこで本手法により観測可能と期待できる  $\text{La}_{2-$



$_{2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$ ( $x=0.4$ )の強磁性ドメイン[3]と、 $x=0.5$ で報告されている電荷・軌道秩序(CE)相と A 型反強磁性(A-AF)相の 2 相共存状態[4]を観測対象に選定した。

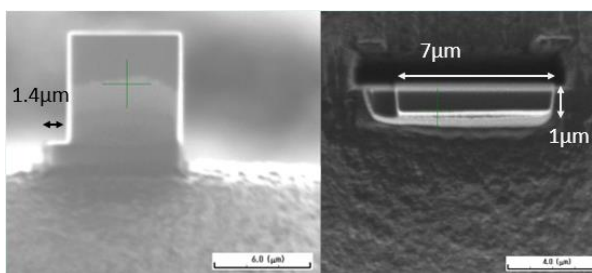
透過配置での回折測定のために、試料の厚さを集束イオンビーム加工装置(FIB)により数百 nm にまで加工し、ピンホール上に設置した。このとき、ピンホールサイズは、 $5\ \mu\text{m}\phi$  以下で、低対称性の形状(ここでは、クマ型)のものを利用した。これにより、X線のコヒーレンス性を確保するとともに、位相回復法によるイメージングの収束性の向上を図る。



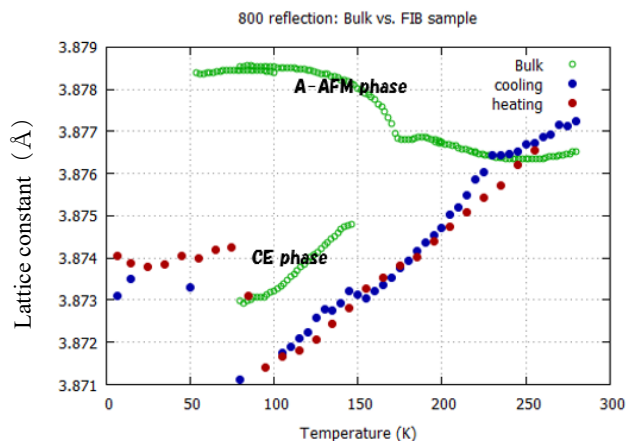


ピンホールとともにスリットの加工を施した試料も準備し、ホログラフィ手法にも挑戦した。しかしながら、これらの FIB 加工した試料で電子秩序相のドメインを反映したと期待される信号の観測は出来なかった。

この結果を受け、FIB 加工による試料ダメージを評価した上でイメージング実験を実施することとした。測定試料は透過配置でのイメージング用であり、体積が小さい。そこで X 線回折による基本反射の測定を行い、結晶構造が変化していないこと、また基本反射のピーク位置の温度依存性から、相転移温度等の評価をすることとした。そこで、試料ホルダー上に、薄片化した試料を立てて、X 線回折実験による評価を行うこととした。

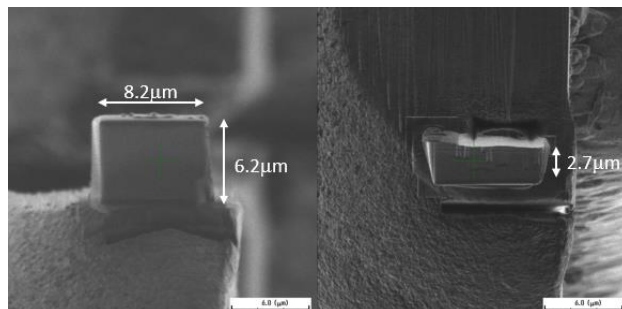


まず X 線回折測定により、加工した試料の結晶構造に異常がないことを確認した。続いて、ピーク位置の温度依存性を測定した。[注: 厚さを数百 nm にまで薄片化した試料では回折信号の測定には成功していない(BL-3A, 4C)。]

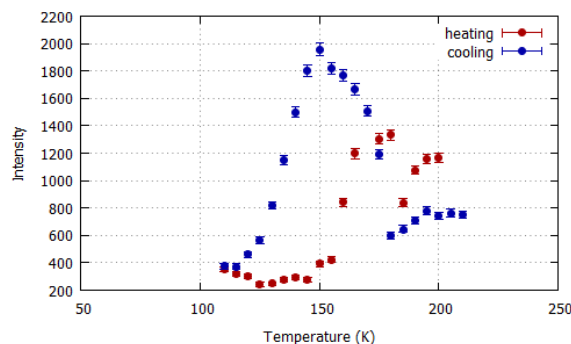
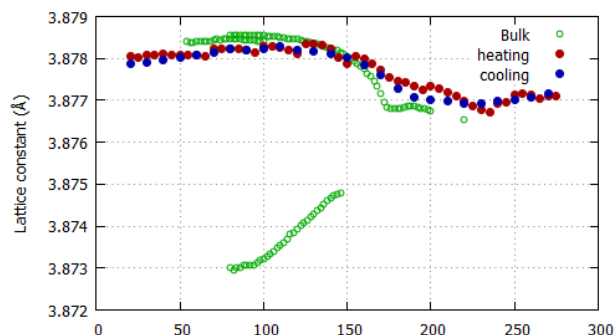


比較のため測定したバルク試料の格子定数の温度依存性(緑丸)では、A-AF 相と CE 相の 2 相共存に伴って、70 ~150K の範囲で 2 種類の格子定数が観測されていることが分かる。一方、FIB 加工した試料の格子定数の温度依存性は大きく異なり、降温度とともに縮み、100 K 以下でヒステリシスを伴う異常が観測された。この結果は、FIB 加工に伴う試料へのダメージが存在することを強く示唆しているものといえる。

そこで、加工によるダメージ軽減のため、約 3 倍の厚みの試料を作製した。



次に、格子定数の温度依存性を測定したところ、A-AF 相の温度依存性に対応した結果となった。また、中間温度領域で弱いながらもピークに肩構造が出現することを見出した。この信号強度の温度依存性は、報告されている CE 相の振舞と似ている[4]。従って、今回の FIB 加工した試料では、2 相共存状態が発現しているといえる。



以上のように、2 相共存状態を持つ試料の準備ができたので、軟 X 線領域でのコヒーレント X 線回折実験を試みることにした。ここでは、小さく加工した試料自身でコヒーレントな X 線を切り出し、軌道秩序を反映する 1/4 1/4 0 反射、A-AF 秩序を反映した

001 反射を各々観測することを目指した。実験は、BL-16Aにて Mn  $L_{2,3}$  端近傍で行った。しかしながら、これまでのところ、回折信号の検知には至っていない。

### 3 まとめ

本研究課題では、層状マンガン酸化物における 2 相共存状態のコヒーレント X 線回折による観測を目指した。しかしながら、FIB 加工による試料ダメージのため、当初予定していた透過配置での実験は出来ないことが判明した。一方、反射配置での実験に向けた試料準備までは実現させたものの、肝心のコヒーレント X 線回折の信号は、バックグラウンド強度に埋もれ、観測できていない。この結果は、BL-3A, 4C での硬 X 線領域での実験とも共通していることで、極小試料での測定のための観測手法を確立する必要があると考えられる。そこで現在、反射配置でのコヒーレント X 線回折実験に向けた装置開発を進めており、今後このような系での観測が可能となっていくことを期待している。

### 参考文献

- [1] V. Ukleev et al., Quantum Beam Sci. **2**, 3 (2018);  
V. Ukleev et al., Phys. Rev. B **99**, 144408 (2019);  
C. Tabata et al., JPS Conf. Proc. **30**, 011194 (2020).
- [2] Y. Moritomo et al., Nature **380**, 141 (1996).
- [3] L. Vasiliu-Doloc et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 4393 (1999); T. Chatterji et al., Phys. Rev. B **73**, 104449 (2006).
- [4] T. Kimura et al., Phys. Rev. B **58**, 11081 (1998);  
M. Kubota et al., J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 2202 (1999);  
S. B. Wilkins et al., Phys. Rev. Lett. **90**, 187201 (2003).

\* hironori.nakao@kek.jp

\*\*現所属: 東京大学物性研究所