BL-16A, BL-19B, BL-3A, BL-4C/2021PF-S003, 2024G041

走査型共鳴軟 X 線散乱による $La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ (x=0.51)の相分離状態の観測
Phase separation in the bilayer manganite studied by scanning-type resonant soft X-ray scattering

中尾裕則 [1,*], 澤田晏伯 [2]、水牧仁一朗 [3]、山崎裕一 [4]、桑原英樹 [5]、齋藤智彦 [2]

[1]KEK 物構研, 〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1
[2] 東京理科大学, 〒125-8585 東京都葛飾区新宿 6-3-1
[3] 熊本大学, 〒860-8555 熊本市中央区黒髪 2-39-1
[4] 物材機構, 〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1
[5] 上智大学, 〒102-8554 東京都千代田区紀尾井町 7-1

Hironori NAKAO[1,*], Yasutaka SAWATA[2], Masaichiro MIZUMAKI[3], Yuichi YAMASAKI[4], Hideki KUWAHARA[5], and Tomohiko SAITOH[2]

[1]Photon Factory, IMSS, KEK, Tsukuba, Ibaraki 305-0801, Japan
[2]Tokyo University of Science, Tokyo 125-8585, Japan
[3]Kumamoto University, Kumamoto 860-8555, Japan
[4]NIMS, Tsukuba, Ibaraki 305-0047, Japan
[5]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・スピンの織り成す様々な秩序状態から、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である。また、巨大磁気抵抗効果のような顕著な物性では、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状態の重要性が指摘されている。

これまでに我々は、軟 X 線領域での共鳴 X 線散乱(RSXS)による電子自由度の秩序状態の研究を進める中で、極めて強い共鳴信号が観測されることを明らかにした[1]。この強い共鳴信号を生かすことで、走査型の共鳴軟 X 線散乱の観測のための装置開発等を進め、電子秩序相のドメイン状態を観測するイメージング実験が、最近可能となってきたところである。そこで、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]が報告されている層状マンガン酸化物 $La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ を研究対象とし、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す研究を開始した [4]。

2 実験

測定試料は、$La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ (x ＝ 0.51)の単結晶試料をアニールすることで、電荷・軌道秩序(COO)相と A 型反強磁性(A-AF)相の相分離状態が観測しやすいものを用意した。

走査型共鳴軟 X 線散乱実験は、BL-16A, 19B にて実施した [5]。図 1 にあるように、入射 X 線を集光素子であるフレネルゾーンプレート(FZP: 320μm φ)で切り出し、試料位置に集光する。また、Order sorting aperture (OSA)で余計な X 線を除去することで、Mn L_3 端 (640 eV)で、約 300 nm (FWHM)の集光ビームが利用可能となっている。(ただし、試料と焦点位置、さらに回折計の回転センターの位置調整は、今後の課題となっている。) さらに、試料からの回折信号を試料位置を 2 次元走査しながら反射強度の空間分布を測定することで、電子秩序相のドメイン状態を観測するものである。

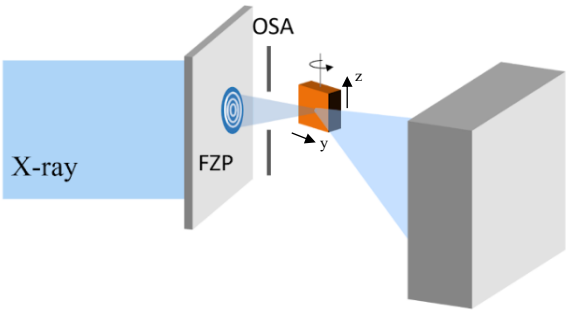

図 1: 走査型共鳴軟 X 線散乱実験の概念図。

3 結果および考察

$La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ (x ~ 0.5)の COO 相と A-AF 相の相分離状態では、2 つの相の秩序変数 Q が 1/4 1/4 0 反射と 001 反射でそれぞれ観測可能であることが知られている[3]。そこで RSXS により 1/4 1/4 0 反射と 001 反射の反射強度の空間分布を測定し、COO 相と A-AF 相の相分離状態の観測を試みた。(詳細な結果は、文献[5]を参照のこと)

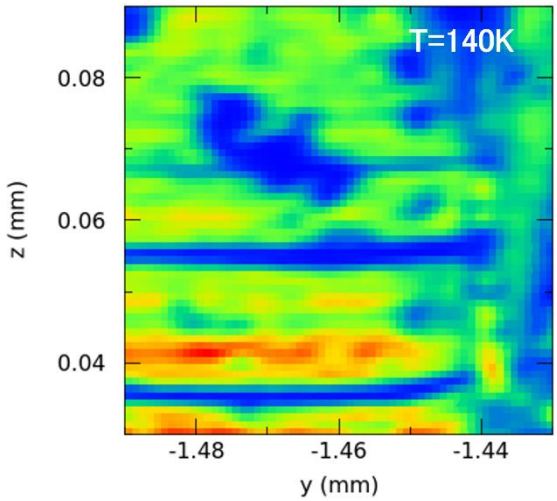

図 2： 001 反射強度(A-AF 相)の空間分布。

Mn L_3 端 640 eV で観測した A-AF 相の反強磁性の秩序変数である 001 反射強度の試料位置(y, z)依存性(140 K)を図 2 に示す。強度の空間変調から、1μm 程度の空間分解能で測定できていることがわかる。また、z ~ 0.055 などに存在する青色の y 軸方向に伸びた帯状の部分は、50 K では消失し、試料全体が A-AF 相になることがわかった。つまり、140 K で y 軸([110])方向に伸びた COO 相が存在するために、001 反射強度が弱くなっていると考えられる。このように、A-AF 相と COO 相の相の競合状態の観測が可能となった。

4 まとめ

開発してきた走査型共鳴軟 X 線散乱装置を用いることで、電子秩序相のドメイン状態の観測が 1μm 程度の空間分解能で実現された。また、観測された電子秩序相のドメイン状態は、これまで観測されていなかった状態であり、当初の予想以上に不均質な状態が試料中に存在することがわかってきた。今後、情報科学的な手法を適用し、巨大応答のカギを握るパラメータの抽出を目指す。

参考文献

[1] 中尾裕則、石井祐太、田端千紘、山崎裕一, 放射光 **34**, 55 (2021).
[2] Y. Moritomo et al., Nature **380**, 141 (1996).
[3] S. B. Wilkins et al., Phys. Rev. Lett. **90**, 187201 (2003). S. B. Wilkins et al., J. Phys.; Condens. Matter **18**, L323 (2006).
[4] 本研究開始時は、コヒーレント回折イメージングによるドメイン観測を目指していた。[H. Nakao et al., PFACR2021 **39**, No. 28 (2022)]
[5] H. Nakao et al., J. Phys.: Conf. Ser. **3010**, 012159 (2025).

* hironori.nakao@kek.jp