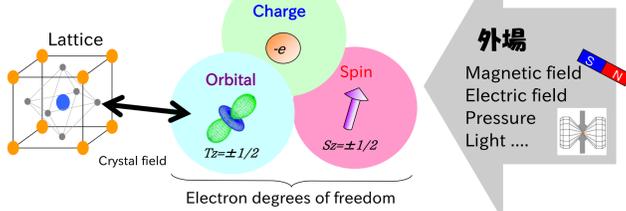


**研究代表者:** 物質構造科学研究所、放射光科学研究施設/構造物性研究センター 中尾裕則  
**実験グループ:** 構造物性研究センターG (KEK)、山田/澤G (産総研)、岩佐G (東北大)、宮坂G、花咲G (阪大)、有馬G、十倉G、上田G (東大)、寺崎G (名大) 勝藤G (早大)、野上G (岡山大)、田口G (理研)、網塚G (北大)  
**実験課題有効期間:** 2009年10月 ~ 2012年9月  
**実験ステーション:** BL-3A, 4C, 8A, 8B, 11B, 16A (各期 1-4週間ずつ程度利用)

## 研究目的

強相関電子系で注目されている高温超伝導、巨大磁気抵抗効果といった顕著な物性は、電子の局在状態と遷移状態の狭間で発現する。したがって、強相関電子系で重要となっている電子の持つ自由度である電荷・軌道・スピンの結晶格子上的多様な振る舞いだけでなく、局在性と遷移性の競合した電子状態の研究が、新奇物性発現メカニズムの解明の上で極めて重要といえる。そこで本S課題では、硬X線領域での共鳴X線散乱(RXS)を用いた電荷・軌道・格子の秩序状態の研究に加え、軟X線領域でのRXS実験により、軌道混成に寄与している遷移的電子と局在的な電子の状態を区別して観測すること、さらにその外場依存性を調べることで、『軌道混成』をパラメータとした物性発現機構の解明を目指している。

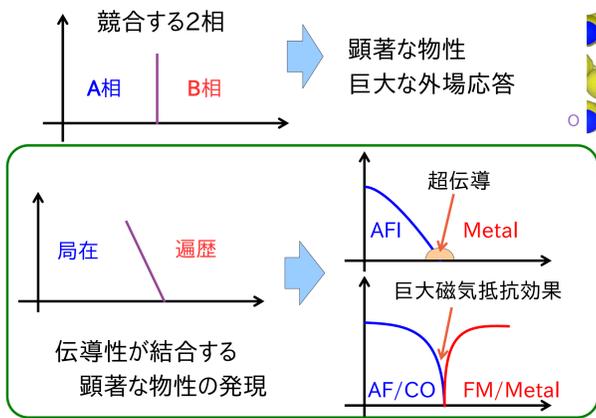
### 強相関電子系



### Various remarkable physical properties

- High  $T_c$  superconductivity.
- Colossal magnetoresistance effect.
- Gigantic magnetoelectric effect.

局在性の強い電子 (遷移金属3d,4d, 希土類金属4f,5f)と  
 遷移性の強い電子 (酸素2pなど)の軌道混成状態が物性を支配



軌道混成状態の観測から、物性発現の微視的な機構の解明へ

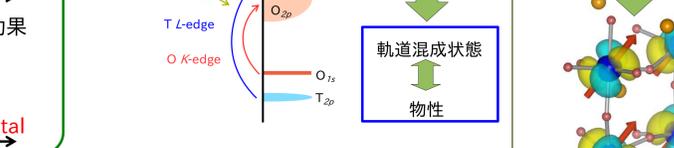
### 軌道混成秩序



Photoemission spectroscopy  
 x-ray absorption spectroscopy  
 遷移金属化合物:  $T3d-O2p$  軌道混成  
 希土類金属化合物:  $p-f$ 混成,  $c-f$ 混成  
 分子性導体:  $\pi-d$ 軌道混成



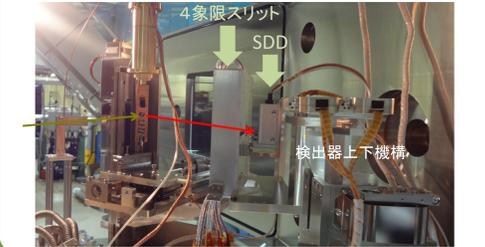
軌道混成状態の解明  
 元素 & 軌道 選択的な情報  
 T 3d & O 2p 直接的情報  
 軌道混成状態  
 物性



## 実験装置整備

### 汎用軟X線2軸回折計

硬X線領域での構造物性研究では、物性に対応した結晶構造の対称性の変化を捉えるために、広い逆格子空間を一挙に測定するBL-8A,8Bのような装置と、極めて微弱な信号をS/N良く測定するためのBL-4C, 3Aのような4軸回折計を相補的に利用するのが一般的。しかしながら、現在開発中の軟X線領域での回折装置は、後者に対応する装置であるものの、簡便に広い逆格子空間を取り逃しなく測定できるものがなく、実験の1つのネックとなってきた。そこで、2次元検出器CCDカメラが搭載できるだけでなく、簡便に回折実験が行える、汎用回折計を現在新たに建設した。



### 軟X線回折実験用X線検出器の開発

#### 軟X線検出器SDD検出器

共鳴散乱実験では、物性変化に伴う僅かな電子状態の変化を捉えることが必要であり、硬X線領域では基本反射の8ヶタ落ちまでの信号を捉えられるようになっている。しかしながら、軟X線領域では既存のX線検出器の検出効率が悪いことが判明。そこで、検出器本体を軟X線チャンパー内に入れられるタイプのSDD検出器を開発した。



### 軟X線回折実験用X線検出器の開発

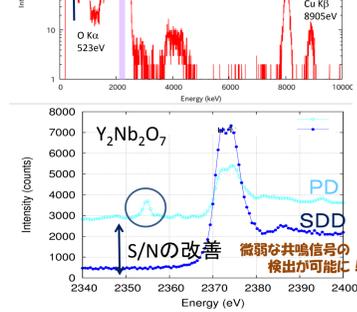
#### 軟X線検出器SDD検出器

共鳴散乱実験では、物性変化に伴う僅かな電子状態の変化を捉えることが必要であり、硬X線領域では基本反射の8ヶタ落ちまでの信号を捉えられるようになっている。しかしながら、軟X線領域では既存のX線検出器の検出効率が悪いことが判明。そこで、検出器本体を軟X線チャンパー内に入れられるタイプのSDD検出器を開発した。



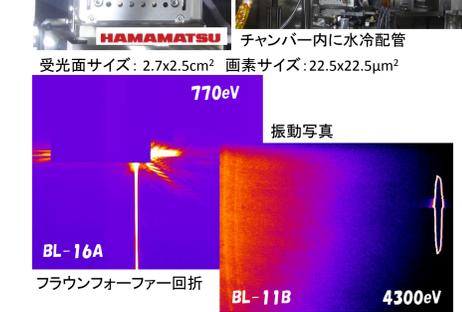
### 軟X線用CCDカメラ

広い逆格子空間を測定するための軟X線用のCCDカメラを開発した。



### 軟X線用CCDカメラ

広い逆格子空間を測定するための軟X線用のCCDカメラを開発した。



## 研究成果

### $La_{1.5}Ca_{0.5}CoO_4$ のCoの価数、スピン状態、L/S分離、磁気構造

岡本(KEK): BL-16A

#### 共鳴磁気散乱の可能性の探究

XMCDのsum ruleの応用  
 $L/S = \frac{4}{3} \frac{1 - R_{L2/L3}}{1 + 2R_{L2/L3}}$   
 $R_{L2/L3}$ :  $L_2, L_3$ -edgeでの磁気散乱のエネルギースペクトル上の積分強度比。  
 J. Okamoto et al., J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 184 (2011) 224.

#### 共鳴磁気散乱による磁気構造 + 電子状態の解明

### 室温フェリ磁性体 $Sr_3YCo_4O_{10.5}$ のスピン状態と磁気構造

岡本(KEK)、寺崎(名大): BL-16A, NSRRC

#### フェリ磁性( $T_c \sim 370K$ )の起源

スピン状態 + 軌道秩序秩序  
 $(2.0, 0)$  azimuthal & polarizatoion dep. 磁気構造  
 アジマス角の回転  
 $L_{2,3}$ -edge  
 $0 K$ -edge  
 $180^\circ$  周期の構造  $f_{mag}^{res} \propto (\epsilon^* \times \epsilon_0) \cdot S$   
 磁気散乱としてだけでは説明できず。偏光解析 + 中性子での磁気構造決定を目指す。

### 電子型強誘電体 TTF-CA の分極発現機構の解明

高橋(KEK)、堀内(産総研): BL-11B, 16A

#### XAS: 分子選択的な電子状態の観測

S K-edge TTF CA  
 O K-edge CA  
 LUMO  
 HOMO  
 TTF (neutral)  
 TTF (ionic)  
 $T_{NI} = 81 K$

#### RXS: 分極発現に関わる電子状態の観測

### Metal-nonmetal transition and antiferro-type multipole ordering in $PrRu_4P_{12}$

岩佐(東北大): BL-3A, 4C, 11B

#### Pr 4f multipole orderとp-f混成効果の解明を目指して

$T < T_M (63 K)$   
 P K-edgeでの共鳴X線散乱の発見  
 研究目的の達成度:  
 ・軟X線領域での共鳴X線散乱による電荷・軌道・スピン秩序解明手法を立ち上げ出来た。  
 ・特に、軟X線領域での構造物性研究用の回折計の開発、X線検出器の開発に力を入れた結果、今まで観測できなかったような共鳴信号の観測に成功した。  
 ・研究成果については示しているように、当初狙った3d遷移金属系、分子結晶系、f電子系で、それぞれ結果が出てきている。  
 最近の発表論文:  
 D. Bizen et al., J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) 024715.  
 H. Wadachi et al., Phys. Rev. Lett. 108 (2012) 0472023.  
 R. Takahashi et al., J. Appl. Phys. 112 (2012) 073714.  
 K. Hemmi et al., J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) SB030.  
 A. Takemori et al., J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) SB043.  
 K. Takubo et al., Phys. Rev. B 86 (2012) 89.  
 A. Nakao et al., J. Phys. Soc. Jpn. 81 (2012) 054710.  
 T. Matsumura et al., J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) 0211007.  
 Y. Yamaki et al., Phys. Rev. B 87 (2013) 081107.