

# 非周期的な構造の 高空間分解イメージング

有馬孝尚

東大新領域/理研放射光

---

## Outline

- 周期的でないことが本質的な問題
- 物性物理で欲しい高空間分解能イメージ
- コヒーレントなX線の役割

---

## Outline

- 周期的でないことが本質的な問題
- 物性物理で欲しい高空間分解能イメージ
- コヒーレントなX線の役割

固体物性の人以外には「当たり前」でしょうが...

# 固体物理学、特にバンド理論

## 固体物理学の王道

バンド理論

X線回折

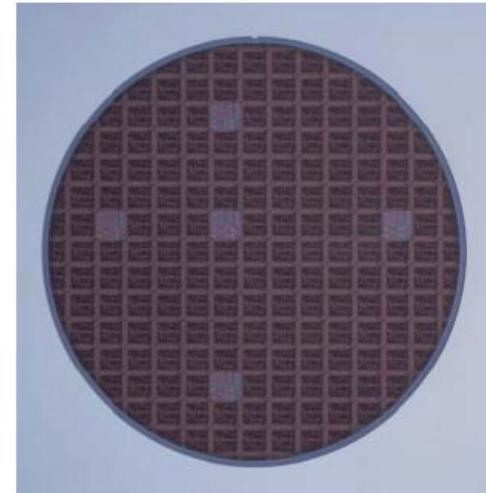
結晶の持つ周期性に基づいて、  
固体の振る舞いを解き明かす

+ “若干” の修正

XAFS, CTR、分光

格子欠陥、不純物、界面状態、表面状態

= 半導体工学



(NECエレクトロニクス株式会社提供)

# 強相関電子系

cf 半導体: 少数の軽い電子/正孔

## 強く相互作用する多数の電子

- 多自由度(電荷、軌道、**スピン**)および格子の絡み合い
- 波動の持つ非局所性・剛性・敏感性

高温超伝導、超巨大磁気抵抗、マルチフェロイク、量子スピンホール効果など

- エネルギーの高効率変換
- エネルギー消費を伴わない量子状態の制御  
などの未踏かつ革新的な機能

一部実用化: 高温超伝導、巨大磁気抵抗、トンネル磁気抵抗...

研究開発段階: (逆)スピンホール効果、電流誘起磁壁移動...

学理探究段階: マルチフェロイク、磁気冷却、重い電子系...

---

# 非周期性が本質的な問題

## 複数の秩序相の競合

超伝導相 vs. 電荷ストライプ相 (銅酸化物超伝導体)  
電荷軌道秩序相 vs. 強磁性金属相 (マンガン酸化物系)  
らせん磁性相 vs. コリニア磁性相 (磁性強誘電体)

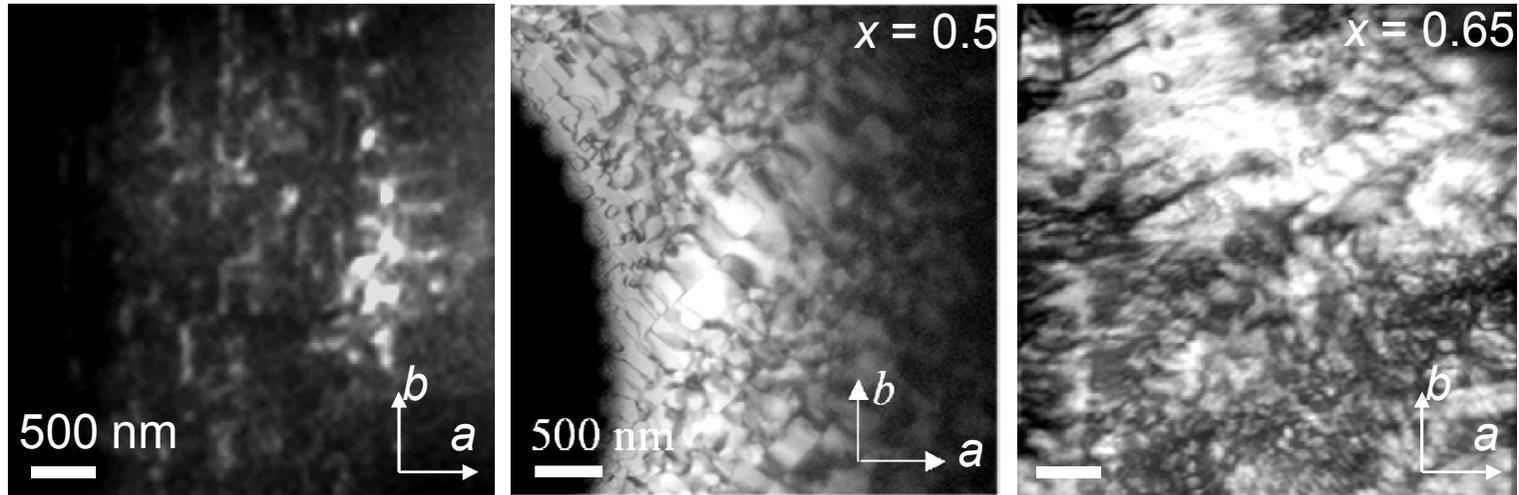
## Ferroidsに伴う分域構造

強磁性体  
強誘電体  
強弾性体  
軌道秩序系  
無機キラル系

## トポロジカルな超構造

超伝導体の混合状態 (渦糸の配列、内部構造)  
低次元系のソリトン  
らせん磁性体のSkyrmion格子

## 相の共存、競合



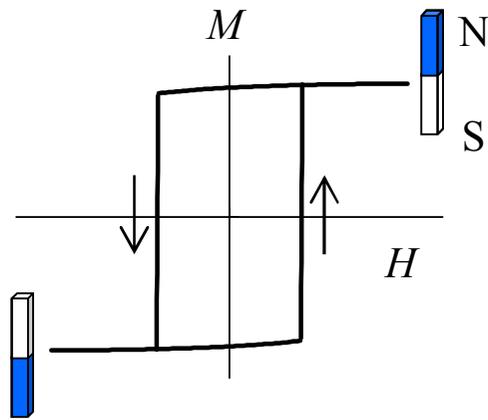
$\text{Pr}_{1-x}\text{Ca}_{1+x}\text{MnO}_4$  (単層層状Mn酸化物) の電荷・軌道整列を電子回折暗視野像で見た例

X.Z. Yu, et al.. Phys. Rev. B **75**, (2007) 174441

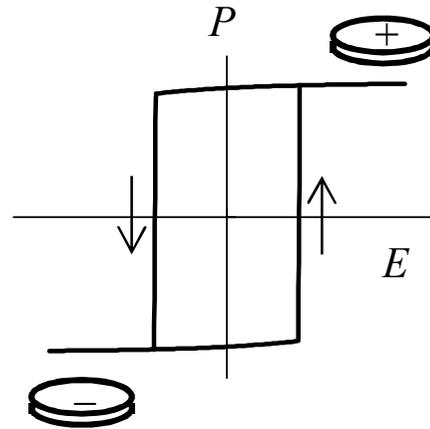
白いところ(絶縁体)と黒いところ(導電体)の配置次第で導電性が変化する

巨大な電気応答

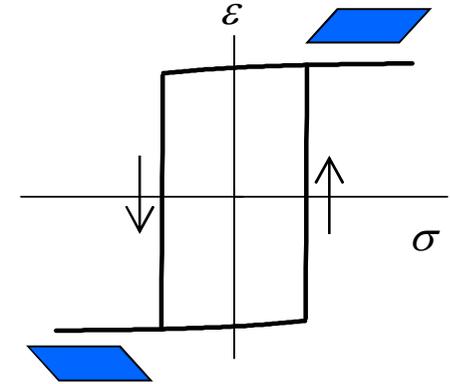
# フェロイク



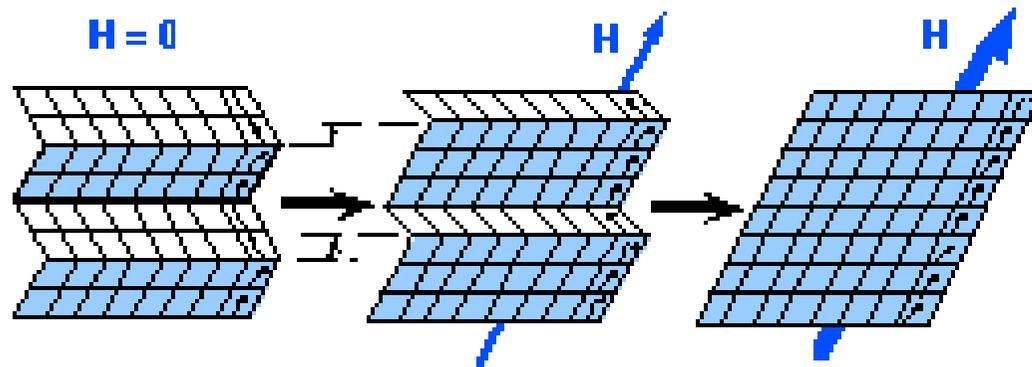
(a) 強磁性



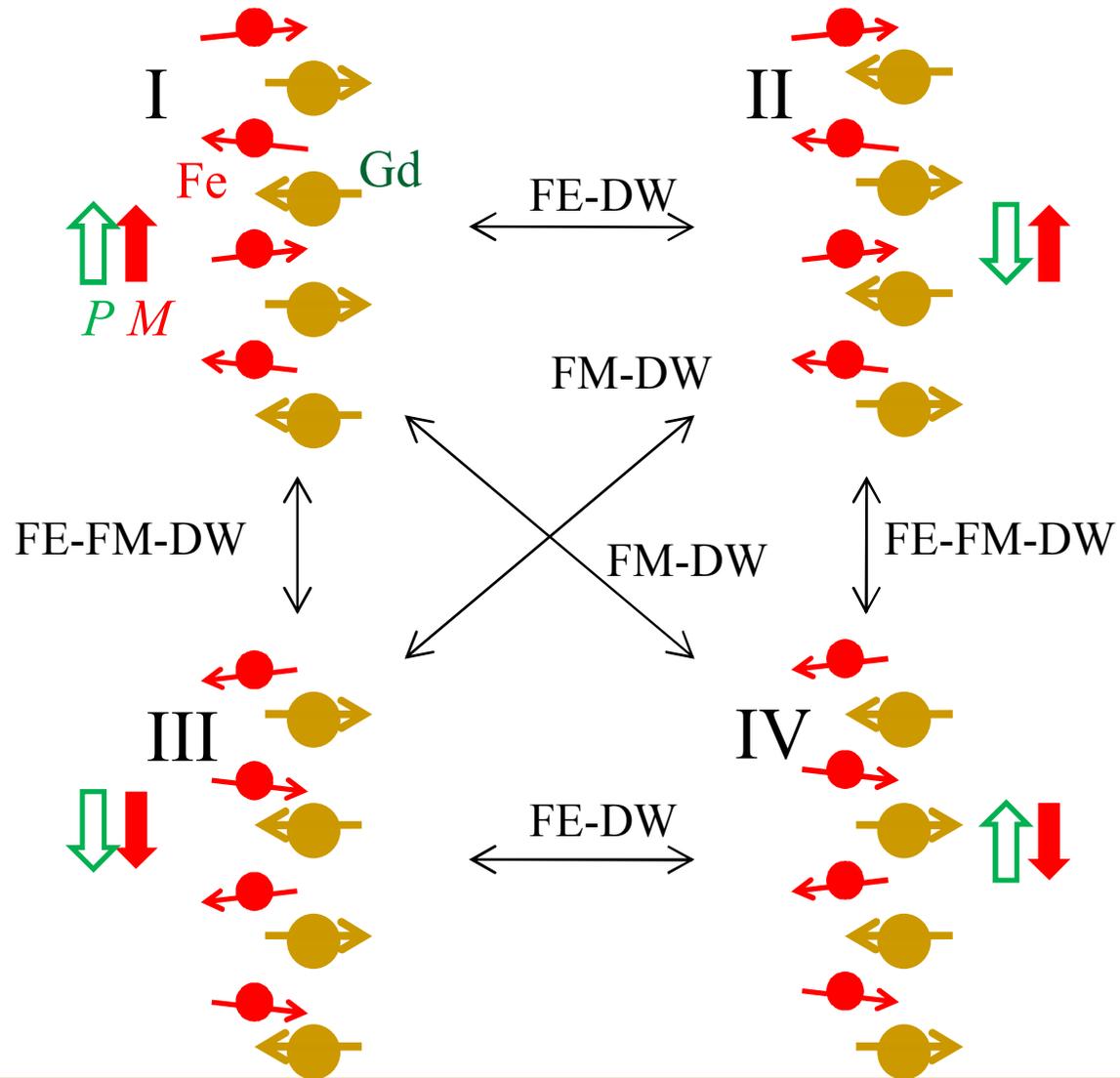
(b) 強誘電性



(c) 強弾性



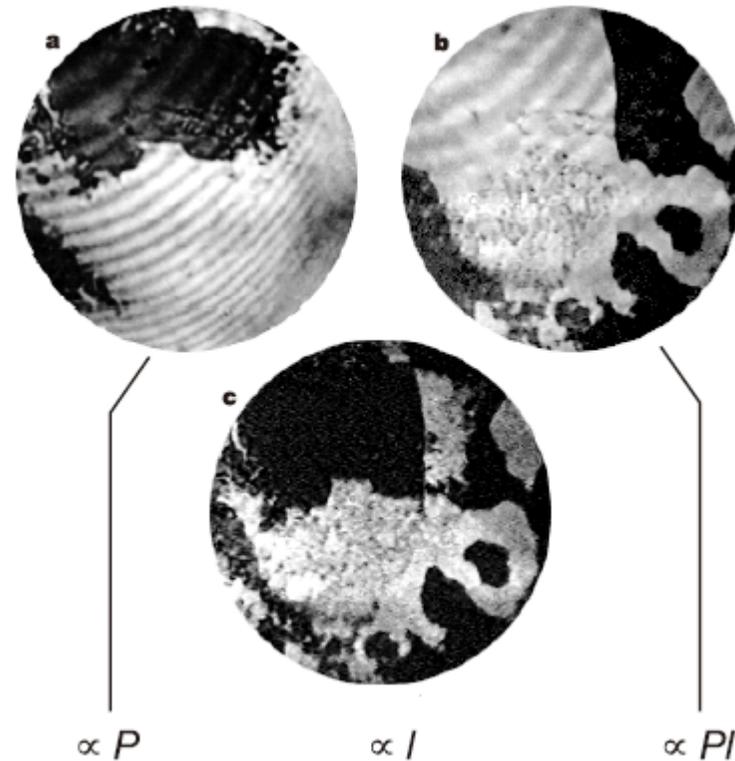
# マルチフェロイク



## 例: Ferroic のドメイン

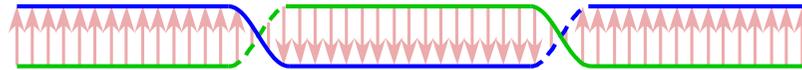
強誘電ドメインと反強磁性ドメイン  
の結合:  $\text{YMnO}_3$  の光高調波発生  
イメージング

M. Fiebig et al., Nature **419**, 818 (2002)

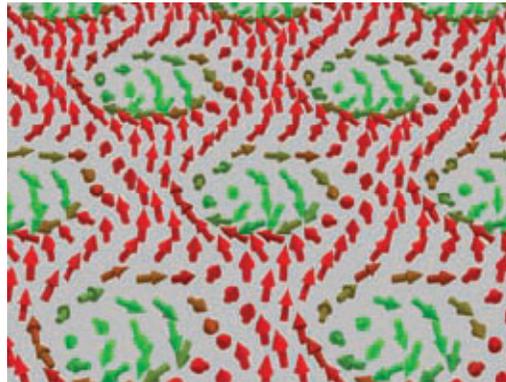


# トポロジカル欠陥としての超構造

Solitons

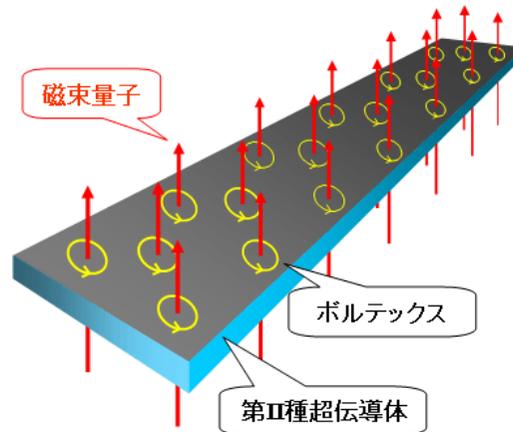


Skyrmions



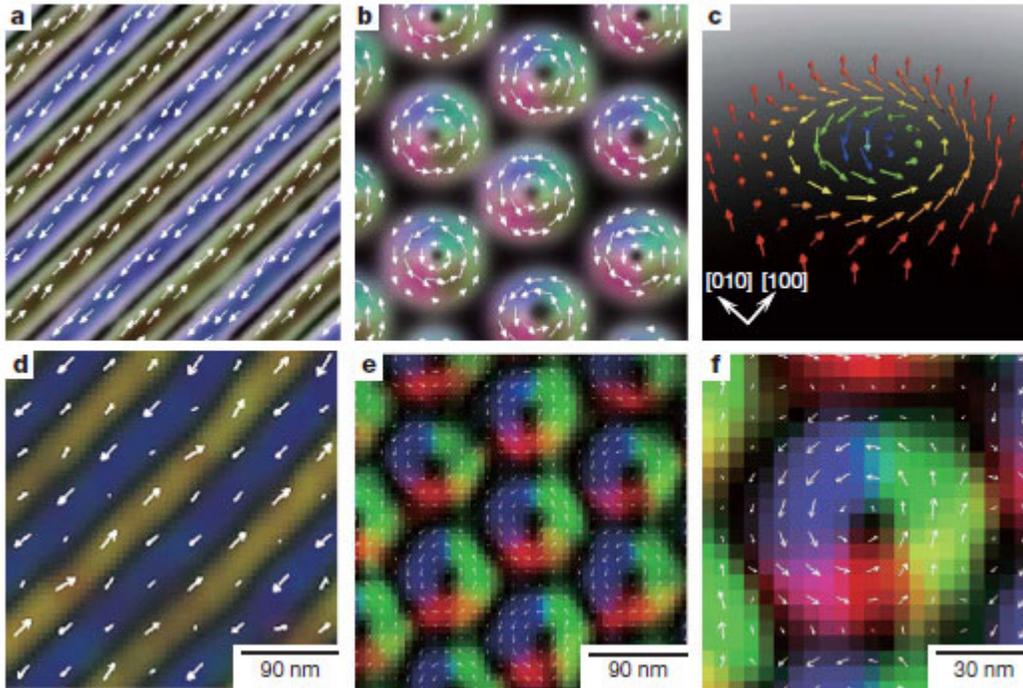
S. Mühlbauer et al., Science **323**, 915 (2009).

Vortices

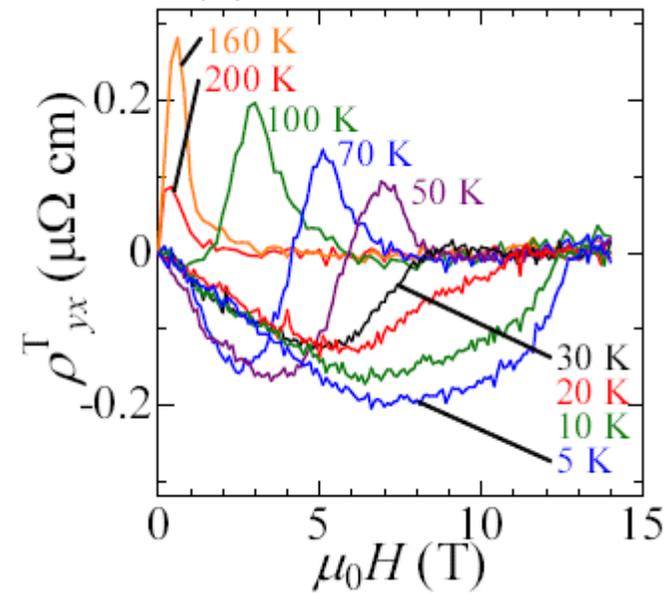


位相欠陥構造→物質機能

# 位相欠陥がもたらす物性機能の例



X. Z. Yu et al. Nature (2010)



N. Kanazawa et al. Phys. Rev Lett (2011)

# Outline

- 周期的でないことが本質的な問題
- 物性物理で欲しい高空間分解能イメージ
- コヒーレントなX線の役割

# 放射光を用いた構造研究の目標

## ➤ 周期系の電子密度分布の高精度解析

- 価電子密度分布
- 電子スピン密度分布
- 電子軌道運動量分布

## ➤ 非周期系

- 電荷/軌道/スピンの超構造の解析
- 表面、界面の構造解析

## ➤ 時間分解

# Structural Transition in $\text{CsCuCl}_3$

$T > T_s \sim 420 \text{ K}$

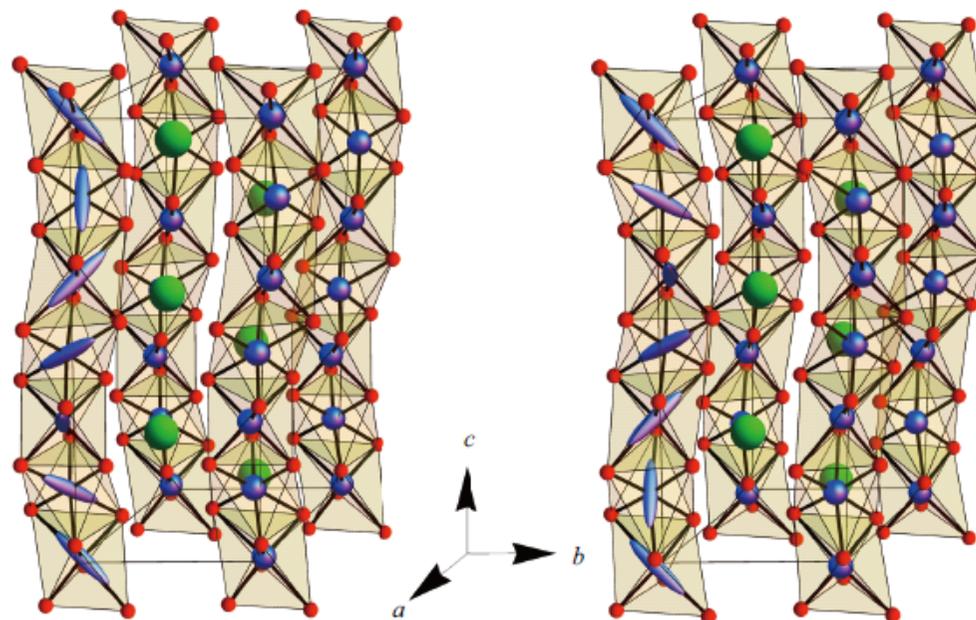
Conventional  
triangular lattice

$T < T_s$

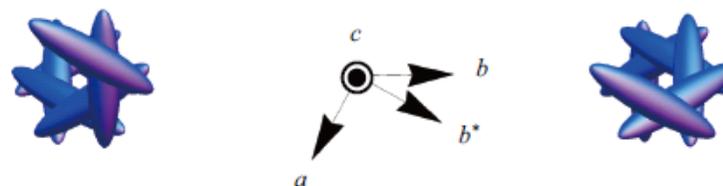
Distorted triangular lattice with chiral stacking

(a) Right-handed ( $P6_122$ )

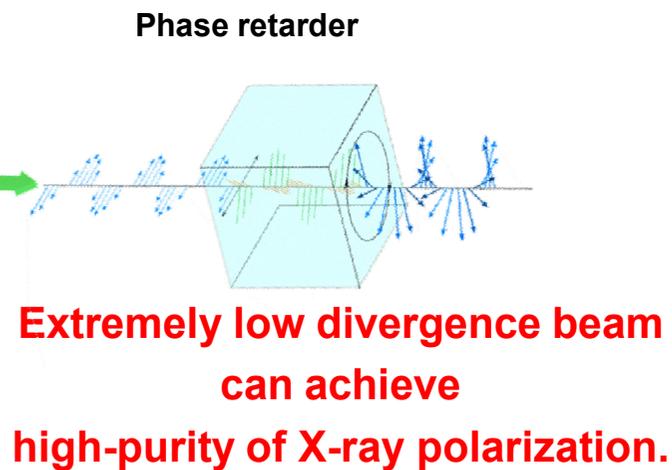
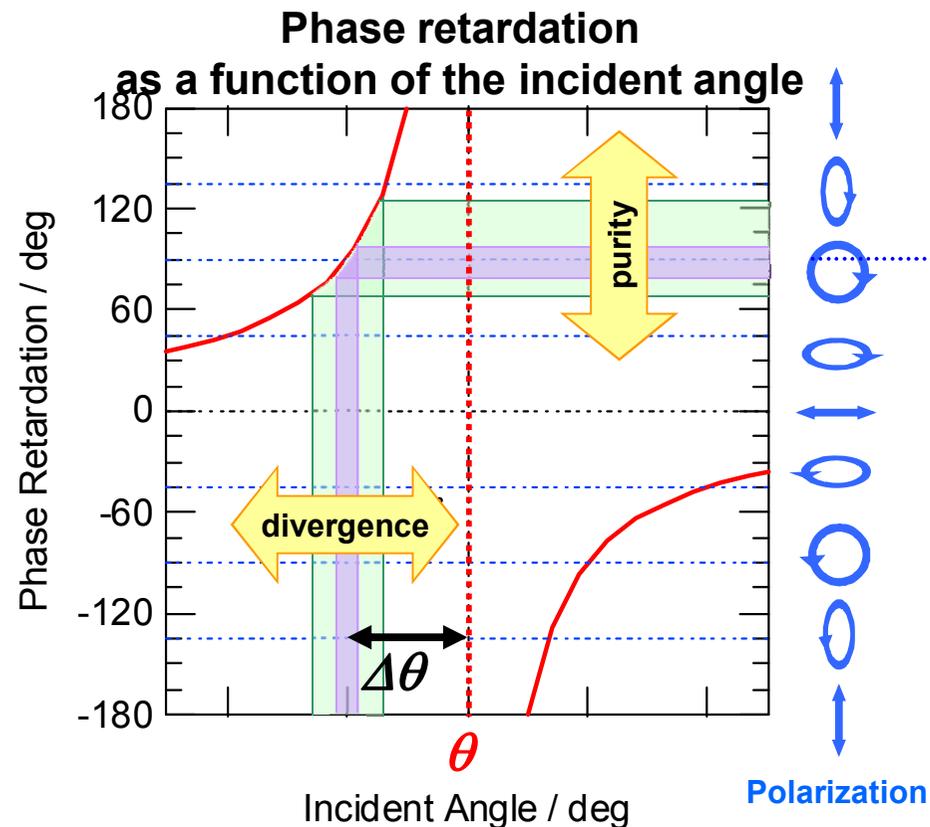
(b) Left-handed ( $P6_522$ )



Chiral-domain imaging  
itself is of great significance.

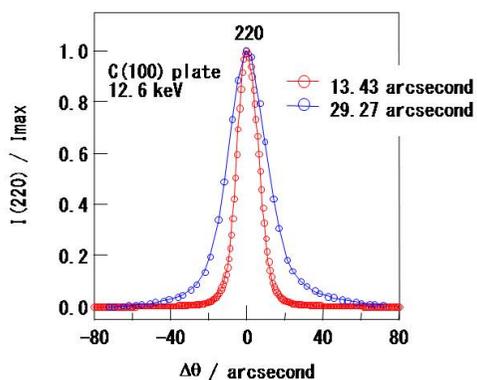


# ダイヤモンド移相子による偏光制御



High S/N ratio Magnetic Scattering

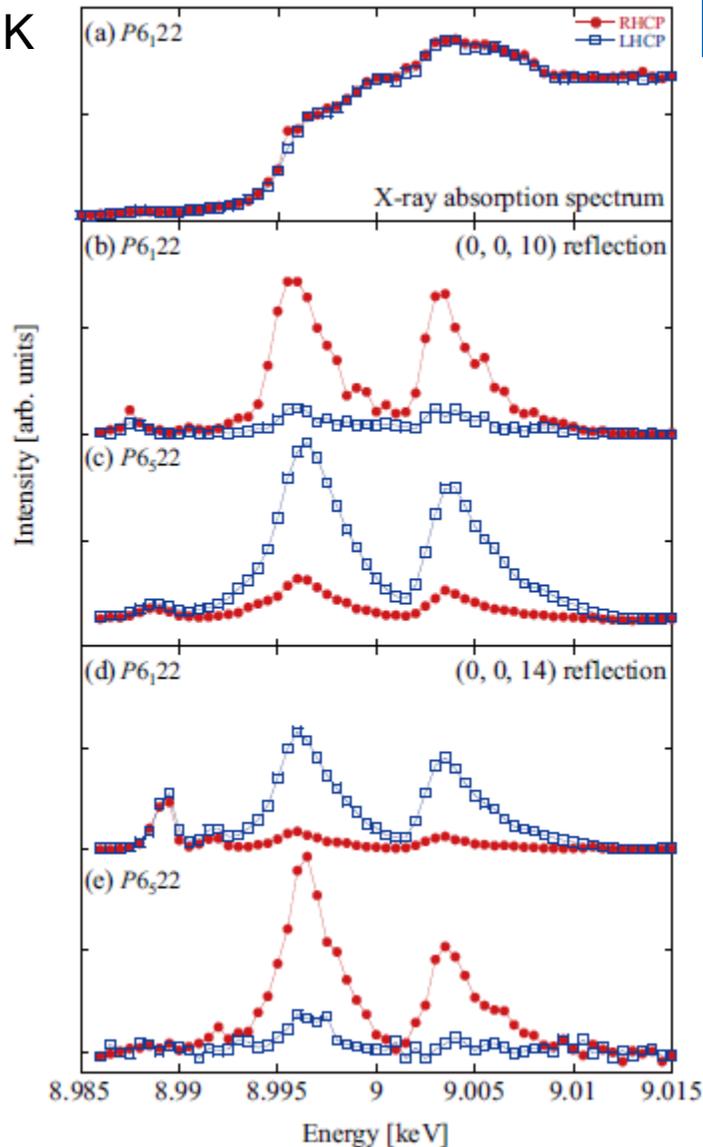
Rocking curve of  
Diamond 220



# Circularly Polarized X-ray Diffraction

Cu K

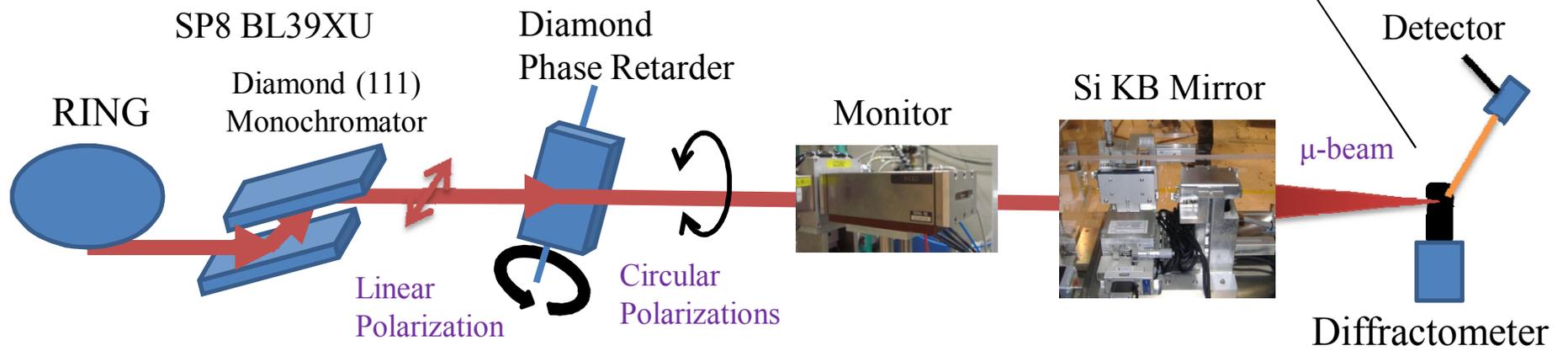
BL19LXU



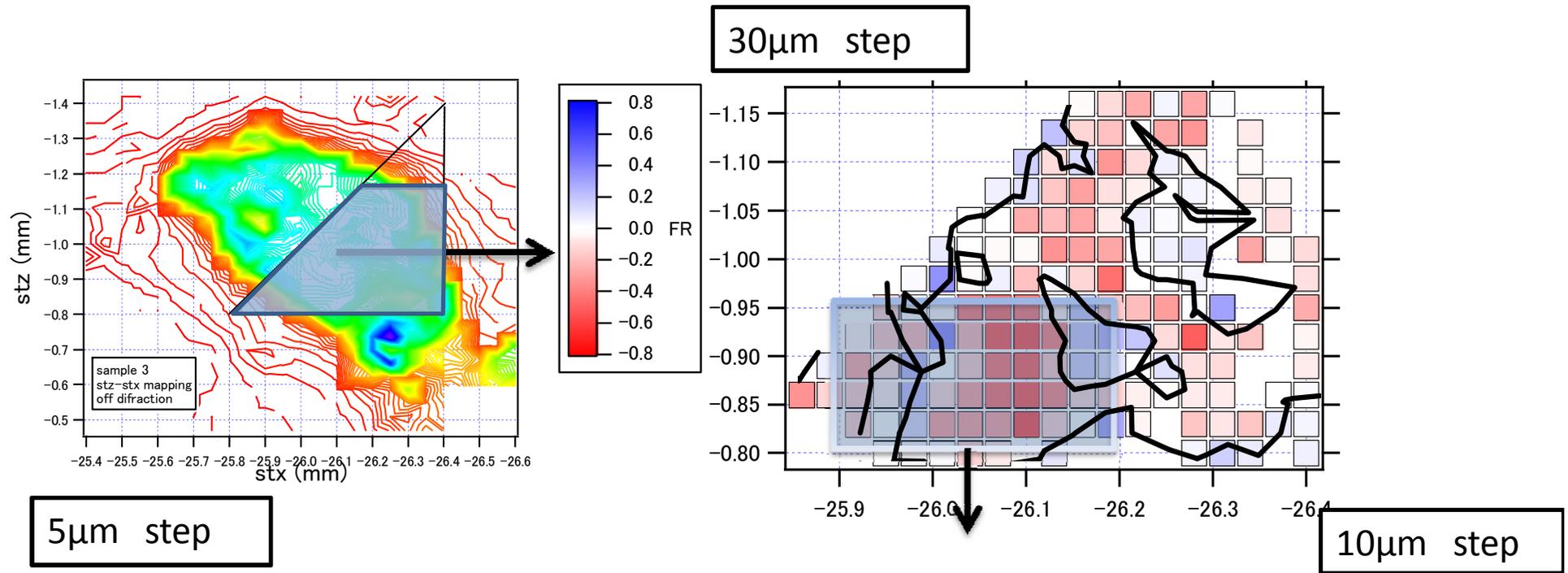
Forbidden reflections  $(0\ 0\ 6n-2)$  and  $(0\ 0\ 6n+2)$  at Cu K edge show strong circular-polarization dependence, as predicted by Dmitrienko. The flipping ratio in a  $P6_522$  crystal is opposite to that in a  $P6_122$  crystal.



Single crystal



# 例：キラリティイメージング

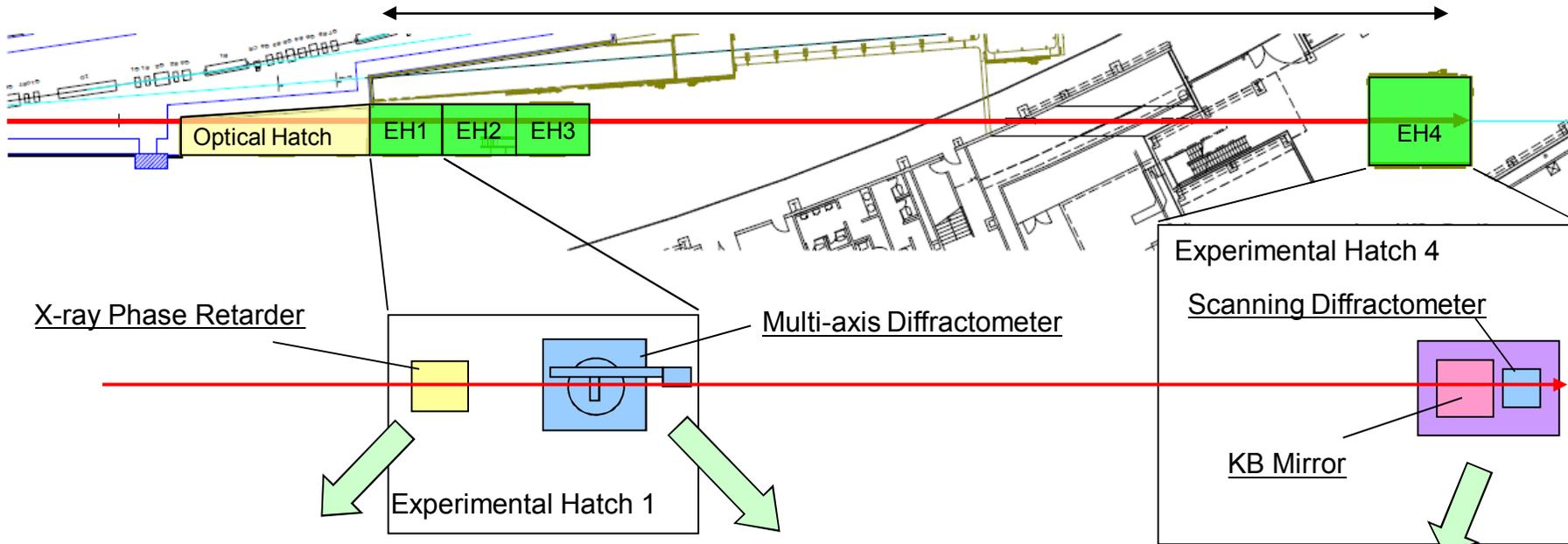


Domain size: 40 $\mu$ m  $\times$  80 $\mu$ m

BL19LXU

# Layout

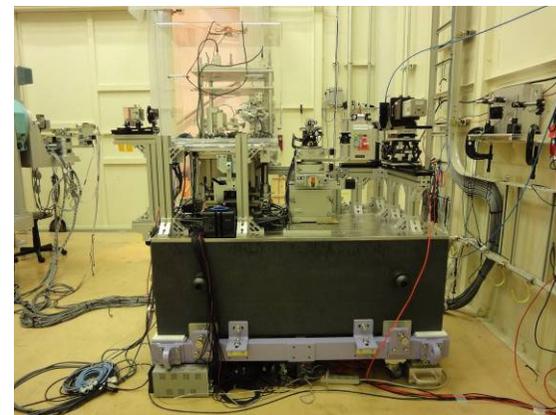
74m



X-ray Phase Retarder System

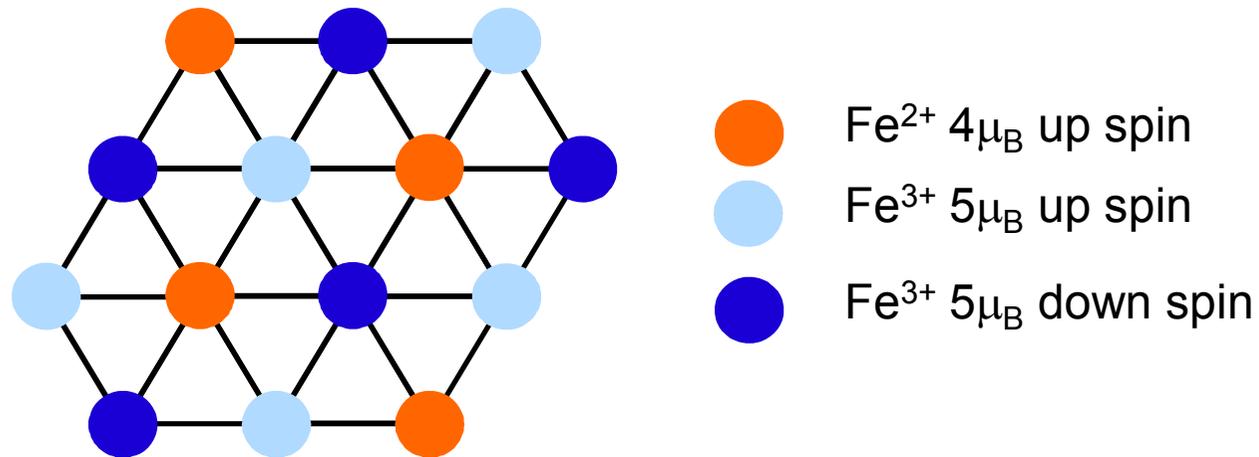
Multi-axis Diffractometer

Microdiffraction System





## Magnetic Switching of Charge-order (polar) domain

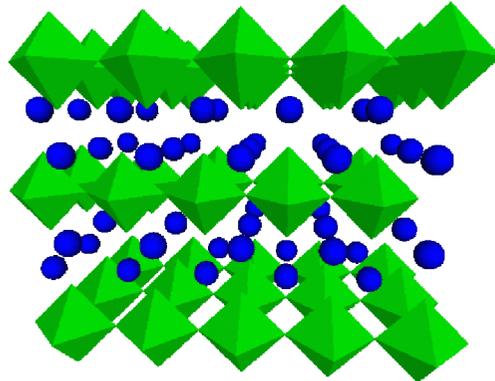


Near-future Plan

Clamping of Charge and Spin Domains

Field Effect

# 5d Mott System $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$



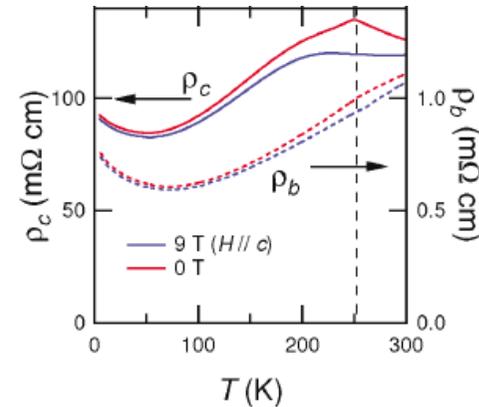
Isostructure with  $(\text{La,Ba})_2\text{CuO}_4$

Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu
Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag
(Ln)	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au

We believe

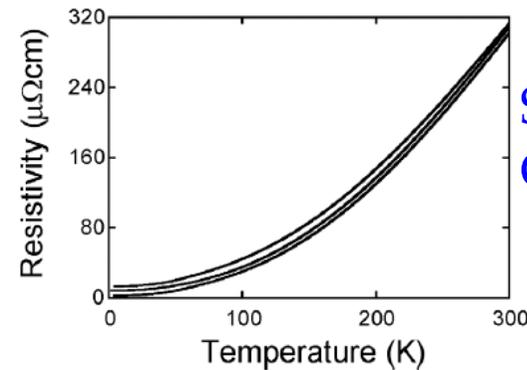
Band Width:  $3d < 4d < 5d$

Coulomb:  $3d \gg 4d > 5d$



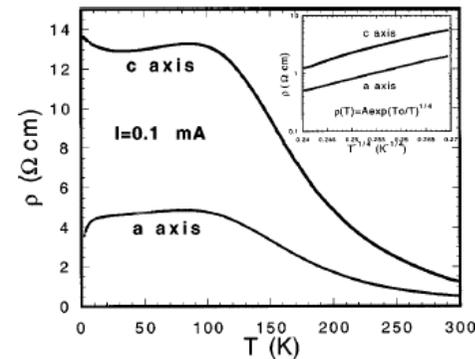
$\text{Sr}_2\text{CoO}_4$  ( $3d^5$ )  
Bad Metal

J. Matsuno *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 167202 (2004).



$\text{Sr}_2\text{RhO}_4$  ( $4d^5$ )  
Good Metal

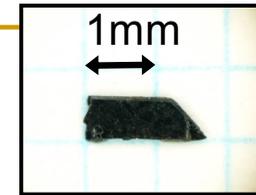
R. S. Perry *et al.*, *New J. Phys.* **8**, 175 (2006).



$\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  ( $5d^5$ )  
Semiconductor

G. Cao *et al.*, *Phys. Rev. B* **57**, R11039 (1998).

# Magnetic Structure Analysis

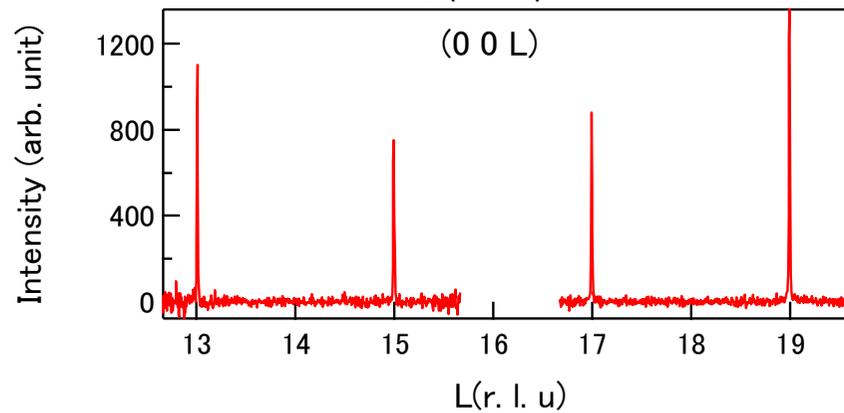
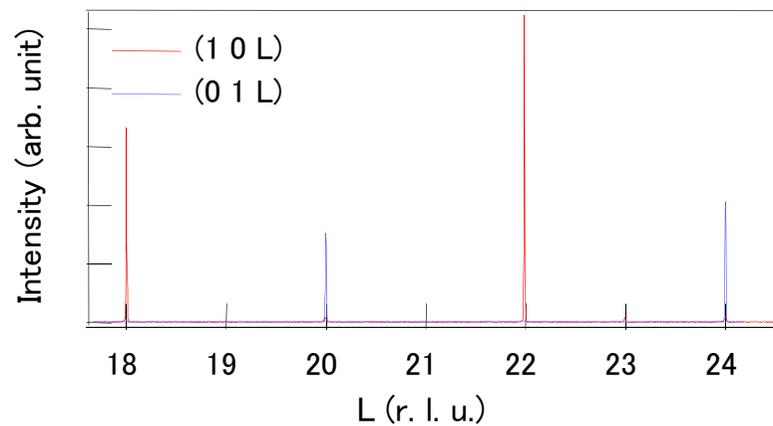


B. J. Kim, H. Ohsumi *et al.*, Science (2009)

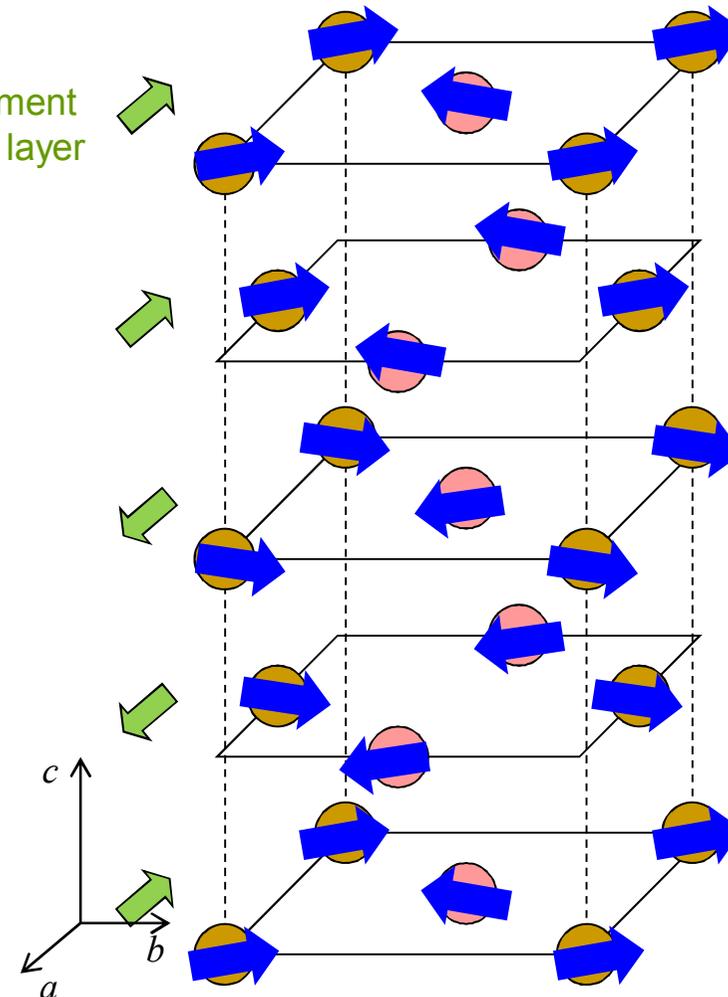
BL29XUL & BL19LXU

## L-scan profiles of Resonant X-ray Scattering

Ir L3 Edge



Net moment of each layer

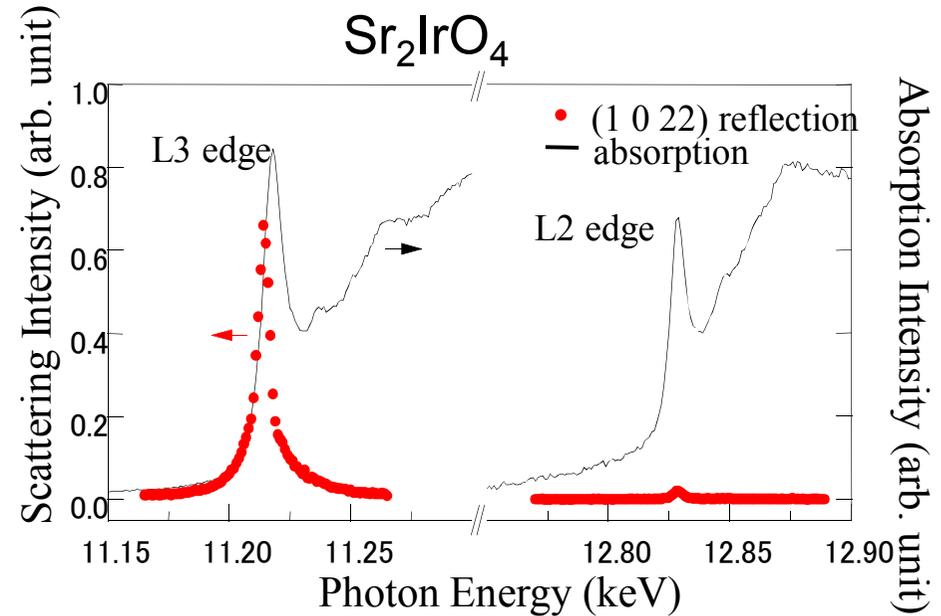
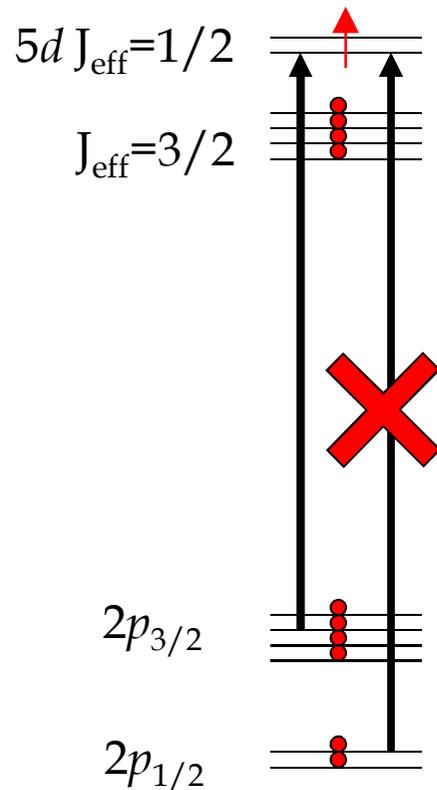


# Resonant X-ray Scattering indicates $J_{\text{eff}}=1/2$ states.

BL19LXU

• Resonance at L3 and L2

$$\mathbf{J}_{\text{eff}} \equiv -\mathbf{L} + \mathbf{S}$$



B. J. Kim, H. Ohsumi *et al.*, Science (2009)

$$\Psi_1 = -\frac{i}{\sqrt{3}}|xy \uparrow\rangle - \frac{i}{\sqrt{3}}|yz \downarrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}}|zx \downarrow\rangle$$

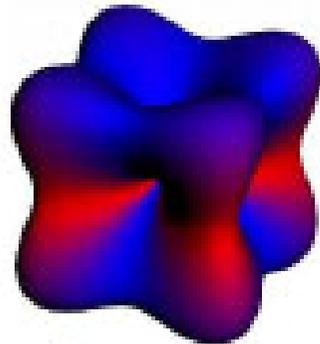
$$\Psi_2 = \frac{i}{\sqrt{3}}|xy \downarrow\rangle - \frac{i}{\sqrt{3}}|yz \uparrow\rangle - \frac{1}{\sqrt{3}}|zx \uparrow\rangle$$

$$\langle L_z \rangle = \pm 2/3, \langle S_z \rangle = \pm 1/6$$

# Exotic Spin-orbit Coupled State in Ir<sup>4+</sup>

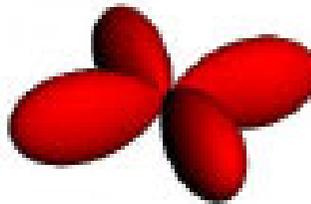
$$\langle S_z \rangle = 1/6, \langle L_z \rangle = 2/3; L/S = 4$$

d-electron



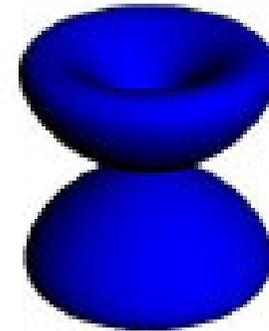
isospin up

probability ~ 1/3



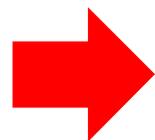
$$S_z = -1/2, L_z = 0$$

probability ~ 2/3



$$S_z = +1/2, L_z = +1$$

Jackeli, Khaliullin 2009



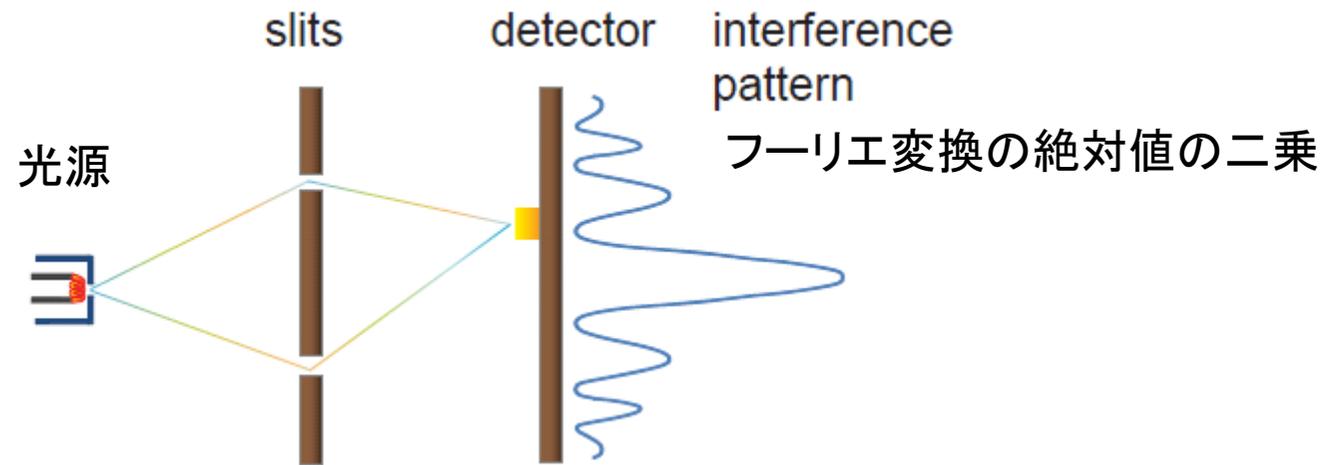
Fractional Charge, Helical Edge Mode, Quantum Spin Hall Effect

---

## Outline

- 周期的でないことが本質的な問題
- 物性物理で欲しい高空間分解能イメージ
- コヒーレントなX線の役割

# 方法論について



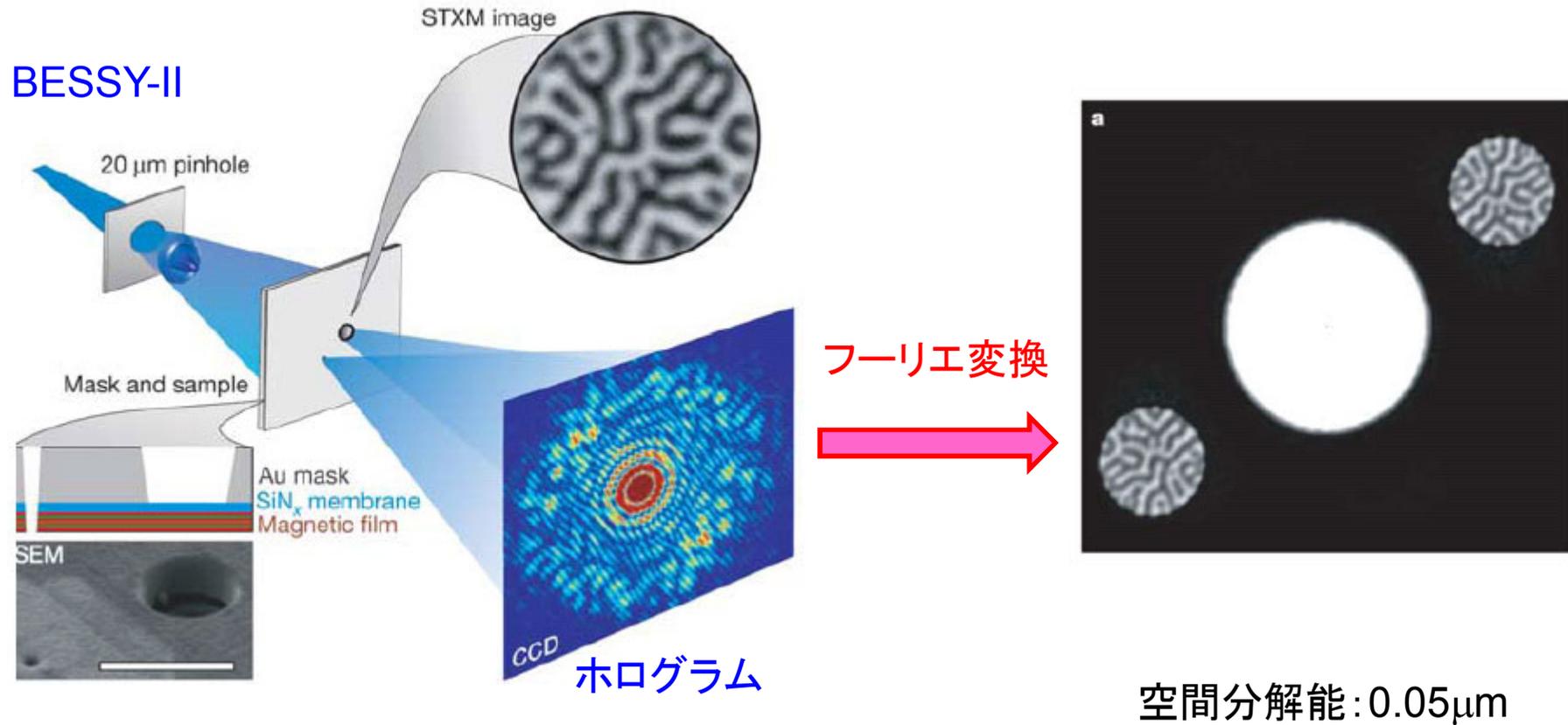
干渉性がよいほど遠くのスリットと干渉する

干渉パターン→実空間像

位相問題の解決

# 円偏光X線ホログラフィによる磁化イメージング

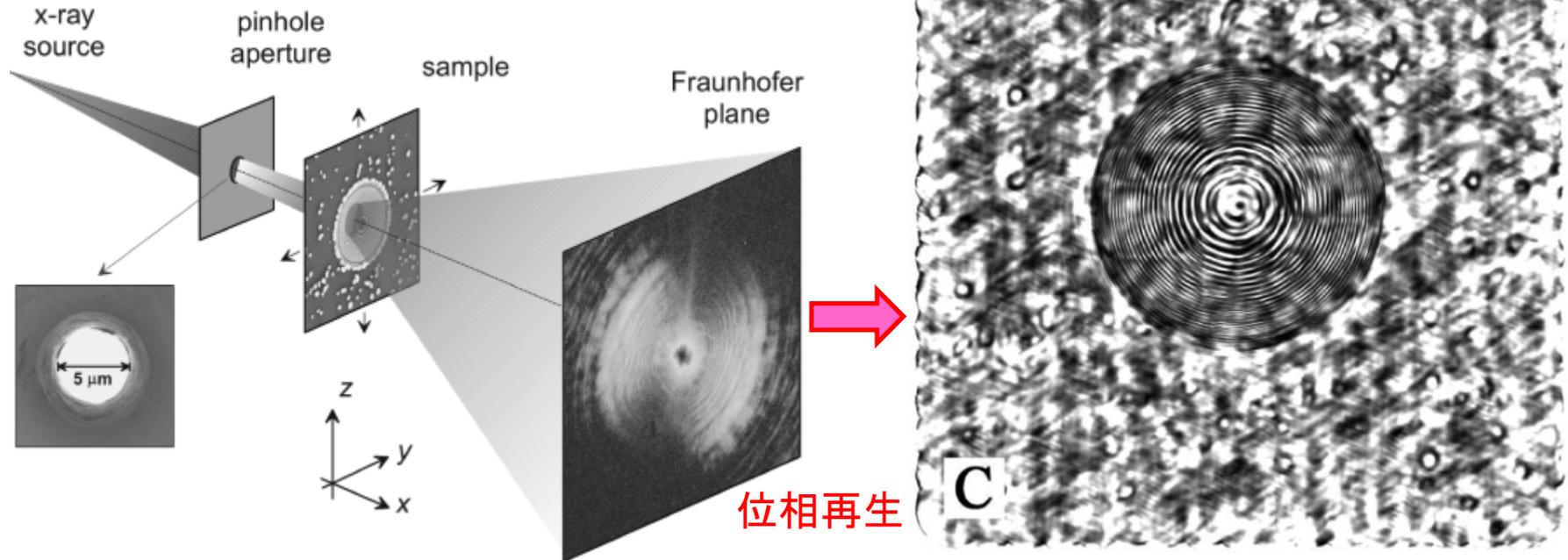
S. Eisebitt et al., Nature **432**, 885 (2004).



撮像領域:  $1.5\mu\text{m}$   
参照用孔:  $0.1\mu\text{m}$

# X線タイコグラフィによるイメージング

SLS



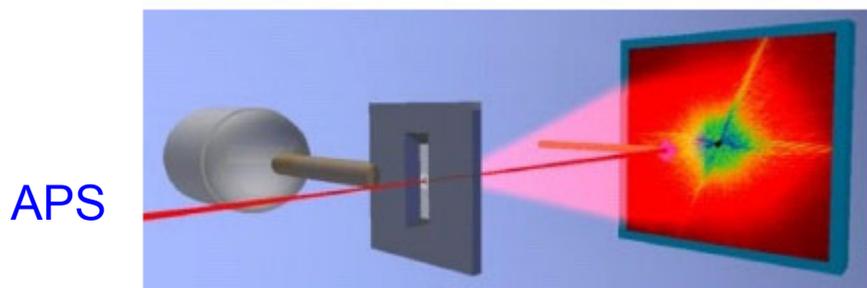
参照ビームは使わない。  
試料とビームの位置関係をずらしながら、  
回折パターンを複数記録して数値的に位相を求める

空間分解能: 0.05 μm

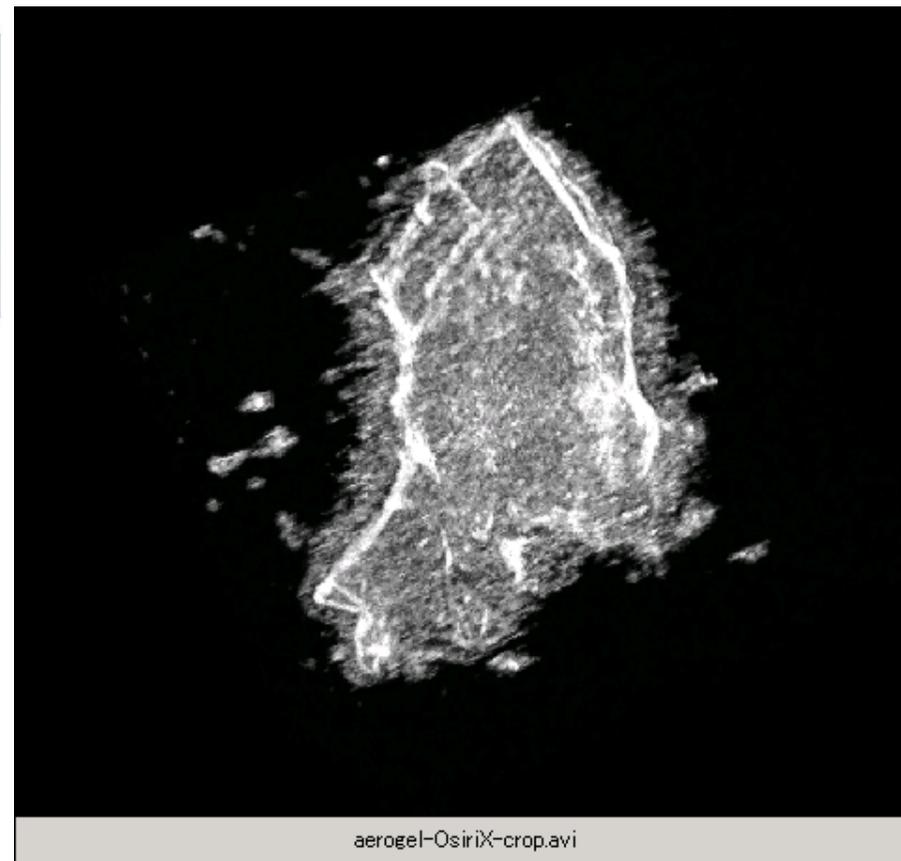
J. M. Rodenburg et al., PRL **98**, 034801 (2007)

# 回折イメージング

空間的に孤立しているものならば、位相問題が発生せず回折イメージングができる



角度を変えながら複数枚の回折像を測定すれば、三次元イメージングも可能

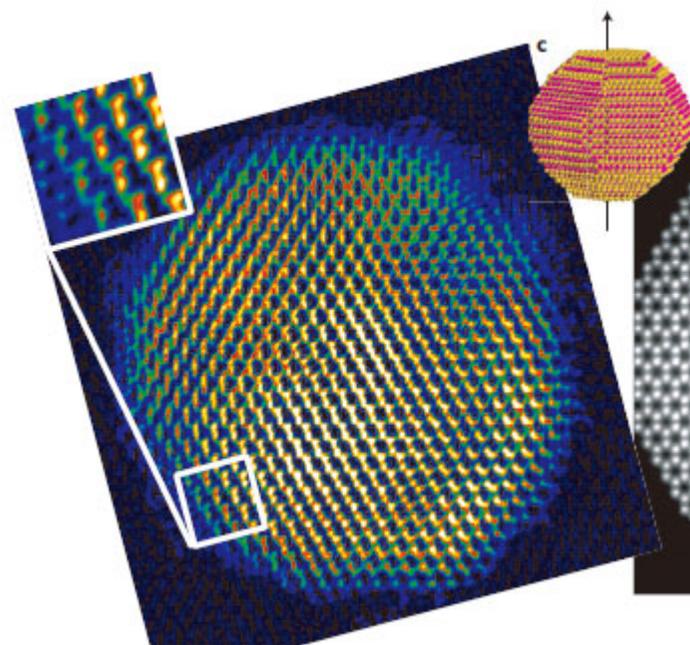


空間分解能: 15nm

A. Barty et al., PRL 101 055501 (2008).

# 電子線回折イメージング

より高い空間分解能の  
様々なイメージング



CdSナノ粒子の原子像

W. J. Huang et al., Nature Phys. **5**, 129 (2009)

---

## 結論、および、新光源に期待すること

- 物質科学の大きな潮流の一つに、非周期性への取り組みがある
- 空間コヒーレンスを利用した種々のイメージングが可能に。
- X線の磁気散乱＋イメージングで新たな磁性研究も可能に。
- 光励起初期過程の空間的な非一様性まで観測できれば、いいなあ...