

X線共鳴磁気散乱と電子密度分布 Resonant X-Ray Magnetic Scattering and Electron-Density Distribution

佐々木 聡¹、奥部真樹¹、金子悠平¹
1 東京工業大学・応セラ研

強相関電子系遷移金属酸化物では、遷移金属元素が隣接する酸素原子や更に外側の陽イオンと電子軌道を共有し、超交換相互作用が存在する。X線共鳴磁気散乱 (Resonant X-Ray Magnetic Scattering) を用いると、電荷散乱と磁気散乱との干渉項 $f_0 f''_m$ が強調されるため、X線散乱でも電子軌道に関連づけた磁気情報を議論できる。このX線共鳴磁気散乱は、エネルギー選択性と空間選択性を併せ持つことに特徴がある。

現在、BL-6C には結晶構造解析用の4軸回折計 Rigaku AFC-5 が設置されている(図 1)。移相子で生成した円偏光X線を用いるため、水平振り検出系がそのまま利用できる。発表では、magnetite (Fe_3O_4) 単結晶のX線共鳴磁気散乱実験を紹介する。本研究では、前吸収端 XMCD ピーク位置 ($\lambda = 1.7442 \text{ \AA}$, $E = 7.1082 \text{ keV}$) のX線を用い、124 個のブラッグ反射の積分反射強度を左右円偏光で測定し、結晶構造解析から電子密度を求めている。

円偏光反転での電子密度差 $\rho_{\text{obs}}(\mathbf{r})^{\text{left}} - \rho_{\text{obs}}(\mathbf{r})^{\text{right}} = V^{-1} \sum [F_{\text{obs}}(\uparrow, s) - F_{\text{obs}}(\downarrow, s)] \exp(-2\pi i \mathbf{s} \cdot \mathbf{r}_{\text{calc}})$ を差フーリエ合成法を利用して求め、不對電子の密度分布を観測した(図 2)。B サイト中の Fe 不對電子の分布をアップスピン(正ピーク)とすれば、酸素側斜め 45° 方向にダウンスピン(負ピーク)の電子軌道があり、A-O-B 超交換相互作用の存在を示唆している[1]。この手法は、差フーリエ合成であり級数打ち切り誤差を小さくできる。吸収効果の小さい前吸収端の同波長の左右円偏光X線で強度差をとることで系統誤差が打ち消されるため、高精度の反射強度データから共鳴磁気散乱を議論できる特徴がある。

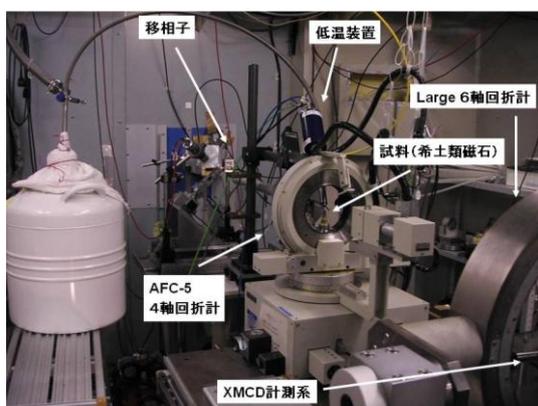


図 1. AFC-5 回折計 (BL-6C ハッチ前方)。

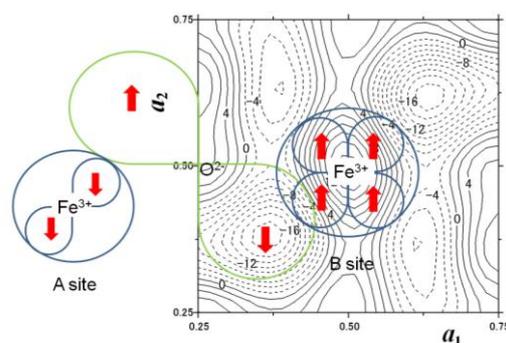


図 2. Fe_3O_4 の磁気電子密度分布図 ($\text{e}/\text{\AA}^3$)。 ($h k l/2$)。 (50 倍、等高線間隔: $0.04 \text{ e}/\text{\AA}^3$)。