

新博士紹介

1. 氏名 辻 成希 (群馬大・ATEC)
2. 論文提出大学 群馬大学
3. 学位種類 博士 (工学)
4. 取得年月 2008年3月24日
5. 題目 磁気コンプトン散乱による YTiO_3 の軌道整列の研究
6. 使用施設 (ビームライン) KEK-PF-AR-NE1-A1
7. 要旨

電子には電荷・スピン・軌道の3つの性質がある。現在までに、電荷・スピンに関する研究は非常に多く行われてきている。軌道に関しては、軌道を測定する方法が限られていたこともあり、あまり研究されてこなかった。しかし近年、放射光を用いて電子軌道を観測するいくつかの実験手法が確立され、電子軌道と物性との関連が明らかになってきたこともあり、電子軌道が注目を集めている。物質としては、超巨大磁気抵抗効果や高温伝導などの現象を示す強相関電子系物質が注目されている。強相関電子系物質において代表的なものは、ペルブスカイト構造をもつ遷移金属酸化物である。この遷移金属酸化物において、軌道整列現象を示すものがある。軌道整列現象は、超巨大磁気抵抗効果と密接に関連があることがわかっている。そこで、“軌道整列”に着目して本研究を行った。本研究で用いた実験手法は強磁性体を測定対象とする磁気コンプトン散乱実験である。ここで磁気コンプトン散乱を用いて、軌道整列を研究する上で問題になるのが、軌道整列状態での磁気構造が反強磁性になっている物質が多いことである。そこで本研究では、軌道整列状態で強磁性体になる YTiO_3 を用いて研究を行った。

YTiO_3 の結晶構造は GdFeO_3 型ペロブスカイト構造、空間群は $Pbnm$ をとる。Fig. 1 に YTiO_3 の結晶構造を示す。またこの試料の磁性の源となる電子は、 Ti^{3+} イオンの t_{2g} 状態にある $3d$ 電子である。この t_{2g} 状態にある $3d$ 電子軌道が軌道整列を示している。また t_{2g} 状態にある $3d$ 電子軌道が“反強的”に整列するため強磁性体になる極めて稀な物質である。

磁気コンプトン散乱実験によって得られる物理量は磁気コンプトンプロファイルである。ここで磁気コンプトンプロファイル $J_{\text{mag}}(p_z)$ を(1)式に示す。

$$J_{\text{mag}}(p_z) = \iint [(n_{\text{mag}}(\mathbf{p}))] dp_x dp_y \quad (1)$$

$$n_{\text{mag}}(\mathbf{p}) = n_{\uparrow}(\mathbf{p}) - n_{\downarrow}(\mathbf{p}) \quad (2)$$

$\mathbf{p} = (p_x, p_y, p_z)$ は運動量、 $n(\mathbf{p})$ は運動量密度である。 \uparrow , \downarrow はそれぞれ電子のアップスピン、ダウンスピンを表している。また $n_{\text{mag}}(\mathbf{p})$ は(3)式のように表される。

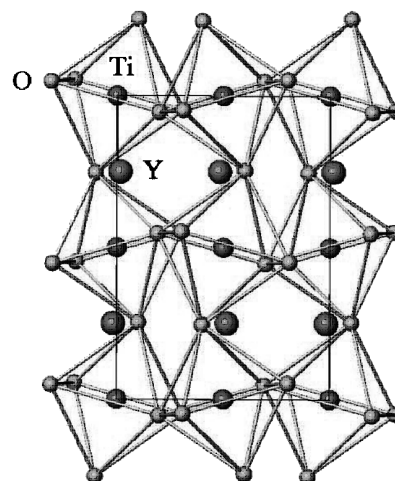


Fig. 1 Crystal structure of YTiO_3 . Yttrium (Y), titanium (Ti) and oxygen (O) atoms are represented as purple, red and light blue balls, respectively.

$$n_{\text{mag}}(\mathbf{p}) = |\Phi_{\text{mag}}(\mathbf{p})|^2 \quad (3)$$

$\Phi_{\text{mag}}(\mathbf{p})$ は運動量空間における磁性電子の波動関数である。さらに $\Phi_{\text{mag}}(\mathbf{p})$ は(4)式のように実空間での磁性電子の波動関数 $\psi_{\text{mag}}(\mathbf{r})$ をフーリエ変換したものとして表される。

$$\Phi_{\text{mag}}(\mathbf{p}) = \left(\frac{1}{\sqrt{2\pi}}\right)^3 \int_{-\infty}^{\infty} \psi_{\text{mag}}(\mathbf{r}) \exp(i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (4)$$

(1)-(4)式よりわかるように、磁気コンプトンプロファイルは、磁性電子に直結した物理量である。

実験は、KEK-PF-AR-NE1-A1で行った。AR-NE1-A1ではTRISTANの蓄積リング(ARリング)内に楕円多極ウィグラー(EMPW)が挿入されており、これより円偏光X線を得ている。これは螺旋状の磁場が発生するようにNd-Fe-B系の永久磁石が並べられている。永久磁石の距離をx方向またはy方向に変え、磁場の分布を変えることで円偏光度を変えることができる。EMPWから得られた円偏光X線はSi(111)モノクロメーターで単色化した。モノクロメーターは入射X線を試料上に集光させるために擬2次元に湾曲させてある。実験では60 keV (Tm K吸収端)のX線を用い、散乱角を約160度に固定し、超伝導磁石で0.85 Tの磁場を反転しながら実験を行った。また磁場は散乱ベクトルと平行に印加する。

測定は、a軸[100]、c軸[001]方向で行い、この2つの方向で磁気コンプトンプロファイルを得た。ここで言うa軸方向は[100]方向を散乱ベクトルと平行にした場合である。Fig. 2 (black circle) にa, c軸での磁気コンプトンプロファイルを示す。a, c軸での磁気コンプトンプロファイ

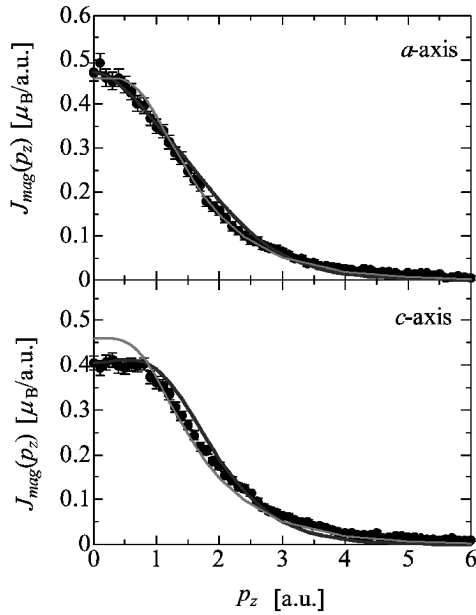


Fig. 2 Observed magnetic Compton profile (MCP) $J_{mag}(p_z)$ for the a -axis and the c -axis shown as black circles with error bars. The blue lines are calculated and best fitted MCPs ($u=0.84$) by using the atomic model wave function, and the red lines are the theoretical Hartree-Fock profile for 3d electrons of a Ti atom.

ルを比較すると、明らかに異方性があることを確認することができる。

Biggs らによって Hartree-Fock 計算を用いて得られた磁気コンプトンプロファイル¹⁾を示す。この計算は、Ti 原子を想定した場合での計算結果であるため、本研究での場合とは少し異なる。しかし、本研究で得られる磁気コンプトンプロファイルは、Ti-3d t_{2g} 電子 1 つに起因したプロファイルであるため、比較することが可能であると考えた。その結果を **Fig. 2** (red lines) に示す。Biggs らの計算は、平均化しているため方向依存はない。そこで、**Fig. 2** (red lines) の a, c 軸での計算結果は同じプロファイルになっている。実験結果との比較を行なうと、 c 軸では一致していないが、 a 軸ではよい一致を示している。これは、 a 軸方向のプロファイルが平均構造に近いことを表している。Biggs らの計算との一致は、本研究によって得られた磁気コンプトンプロファイルが、概ね正しいことを示唆している。

次に、原子モデル波動関数を用いた理論計算の結果を示す。理論計算に用いた 4 つのそれぞれの Ti サイトのモデル波動関数を (5) 式に示す。

$$\psi_i(r) = u d_{yz} \pm v d_{zx} \quad (5)$$

ここで、 i は 1~4 のいずれかであり、 $u^2 + v^2 = 1$ である。 $i = 3, 4$ の場合は符号がマイナスである。 d_{yz}, d_{zx} は (6) 式を用いた。

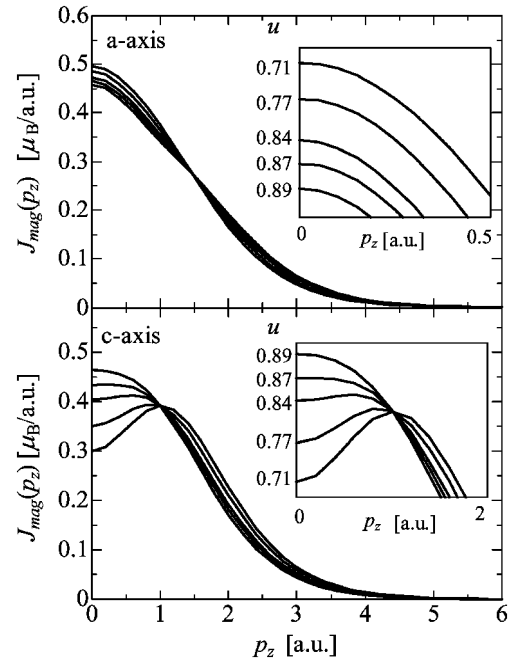


Fig. 3 Calculated MCPs by using the atomic model wave function for the a -axis and the c -axis shown as solid lines. Insets are expanded figures of the low p_z region for showing the values of parameter u (0.71–0.89) used in the calculation.

$$d_{yz} = \sqrt{15/8\pi} yz R_{3d}(r)/r^2, \quad d_{zx} = \sqrt{15/8\pi} zx R_{3d}(r)/r^2 \quad (6)$$

$$R_{3d}(r) = \left(\frac{Z_{eff}}{a_0}\right)^{3/2} \frac{4}{81\sqrt{30}} \left(\frac{Z_{eff}r}{a_0}\right)^2 \exp\left(\frac{-Z_{eff}r}{3a_0}\right) \quad (7)$$

Z_{eff} は有効核電荷で、本研究では文献値 $Z_{eff} = 8.14$ ²⁾ を用いた。 a_0 はボーア半径である。モデル波動関数を用いた a, c 軸の磁気コンプトンプロファイルの計算結果を **Fig. 3** に示す。この計算は $u = 0.71-0.89$ の間で行ったものである。最小自乗法を用いて実験結果と比較した結果、 $u = 0.84$ 、 $v = 0.54$ での計算プロファイルがもっとも実験と一致していることがわかった。 $u = 0.84$ での計算結果を **Fig. 2** (blue lines) に示す。

他の実験や理論による結果を **Table 1** に示す。**Table 1** より、本研究により得られた u の値 ($u = 0.84$) は、他の実験や理論に比べ少し大きな値になっていることがわかる。この理由として、磁気コンプトン散乱は、波動関数の広がり (3d 電子軌道の外側) を観測していることが挙げられる。**Fig. 3** の c 軸での計算結果は、 $p_z = 1$ a.u. 以下で大きく変化していることがわかる。これは、運動量空間での波動関数の中心部を主に観測していることになる。実空間での波動関数においては、その長周期構造、すなわち原点から離れたところがフィティングに関与していることになる。計算に用いた原子モデル波動関数をこのような領域でフィティングした結果、他の実験や計算に比べ少々大きめの u が得られた可能性がある。しかし、本実験結果ならびに **Table 1** に示される u の値の違いの理由は明らかでは

Table 1 Values of u determined by other experimental and theoretical studies

Experiments and Theoretical calculation	u
Theoretical calculation	$\sim 0.8^{3,4)}$
	$\sim 0.71^{5)}$
Nuclear magnetic resonance	$\sim 0.8^{6)}$
Neutron diffraction	$\sim 0.77^{7)}$
Resonant X-ray scattering	$\sim 0.71^{8)}$
Soft X-ray linear dichroism	$\sim 0.84^{9)}$
X-ray magnetic diffraction	$\sim 0.71^{10,11)}$

なく、今後の検討課題である。

磁気コンプトン散乱実験を YTiO_3 に始めて適用し、 a , c 軸方向の磁気コンプトンプロファイルの測定結果と、原子モデル波動関数を用いた理論計算を比較することにより、 YTiO_3 の $\text{Ti-}3d-t_{2g}$ 軌道状態 (u , v) を決定した¹²⁾。

参考文献

- 1) F. Biggs, L. B. Mendelsohn and J. B. Mann: Atomic Data and Nuclear Data Tables **16**, 201 (1975).
- 2) E. Clementi and D. L. Raimondi: J. Chem. Phys. **38**, 2686 (1963).
- 3) T. Mizokawa and A. Fujimori: Phys. Rev. B **54**, 5368 (1996).
- 4) T. Mizokawa, D. I. Khomskii and G. A. Sawatzky: Phys. Rev. B **60**, 7309 (1999).
- 5) H. Sawada, N. Hamada and K. Terakura: Physica B **46**, 237 (1997).
- 6) M. Itoh, M. Tsuchiya, H. Tanaka and K. Motoya: J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 2783 (1999).
- 7) H. Ichikawa, J. Akimitsu, M. Nishi and K. Kakurai: Physica B **281 & 282**, 482 (2000).
- 8) H. Nakao, Y. Wakabayashi, T. Kiyama, Y. Murakami, M. V. Zimmermann, J. P. Hill, D. Gibbs, S. Ishihara, Y. Taguchi and Y. Tokura: Phys. Rev. B **66**, 184419 (2002).
- 9) F. Iga, M. Tsubota, M. Sawada, H. B. Huang, S. Kura, M. Takemura, K. Yaji, M. Nagira, A. Kimura, T. Jo, T. Takabatake, H. Namatame and M. Taniguchi: Phys. Rev. Lett. **93**, 257207 (2004) [Errata; **97**, 139901 (E) (2006)].
- 10) M. Ito, N. Tsuji, F. Itoh, H. Adachi, E. Arakawa, K. Namikawa, H. Nakao, Y. Murakami, Yasujirou. Taguchi and Y. Tokura: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B **238**, 237 (2005).
- 11) M. Ito, N. Tsuji, H. Adachi, H. Nakao, Y. Murakami, Y. Taguchi and Y. Tokura: J. Phys. Chem. Solids **65**, 1993 (2004).
- 12) N. Tsuji, M. Ito, H. Sakurai, K. Suzuki, K. Tanaka, K. Kitani, H. Adachi, H. Kawata, A. Koizumi, H. Nakao, Y. Murakami, Y. Taguchi and Y. Tokura: J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 023705 (2008).

一口メモ

グラジオラス

アヤメ科グラジオラス属の多年草で、南アフリカ原産である。春植え球根の代表で、暑い夏の間、色は黄、白、紫、または斑紋のあるものなどの花が日本各地で咲く。手入れもきわめて簡単で、日当たりと水はけの良い場所に植え、開花後の秋には葉が黄ばんできたら掘り上げ、よく乾燥させて保存すればよい。

7月7-9日、北海道洞爺湖サミットでは2050年までに温室効果ガス排出量の半減を目標に、地球の生き残りをかけた議論がなされました。現在、世界各地の異常気象のために、自然災害が日常的に起こっていますが、その解決には、科学と技術の貢献がますます重要となるでしょう。また、自宅の庭の緑化率を増すことや、日よけのために、朝顔、ゴーヤ（苦瓜）等のつる性草花を植え、花と収穫を楽しむことは身近に出来る貢献でしょう。 (No. 82, K. Ohshima)

