

機関番号：82110

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2009～2010

課題番号：21840059

研究課題名（和文）極低温共鳴X線散乱による多重極子自由度とその秩序相出現メカニズムの解明

研究課題名（英文）Ultralow temperature resonant X-ray diffraction study of the mechanism of multipole ordering in f-electron systems.

研究代表者

道村 真司 (MICHIMURA SHINJI)

独立行政法人 日本原子力研究開発機構・量子ビーム応用研究部門・博士研究員

研究者番号：40552310

研究成果の概要（和文）：従来の理論では理解できない現象の謎を解く鍵として、四極子や八極子などの多重極子の自由度が脚光を浴びている。本研究手法である共鳴X線回折法は、多重極子秩序そのものを直接観測できる唯一の実験手法である。しかし、多重極子の秩序温度はほとんどが3K以下である為に、国内での共鳴X線散乱の実験が不可能であり、これらの低温で起こる多重極子の秩序現象に対応できなかった。本研究課題は、この問題を克服し、さらに入射X線の偏光制御により 外部磁場下での共鳴X線散乱実験を可能にすることで、多重極子秩序を示す典型物質の徹底的な研究を国内で初めて実現した。

研究成果の概要（英文）：The degree of freedom of a multipole (quadrupole and octupole etc...) in rare-earth and actinide compounds have attracted attention as a key that solves the mystery of the phenomenon that cannot be understood from a past theory. The resonance X-ray diffraction (RXD) method that is this studying method is the only experimental technique that can do the direct detection of the multipole ordering. However the RXD experiments domestically was impossible because the multipole in almost compounds order bellow 3 K. This research project overcomes this problem using ^3He cryostat and the control of the polarization of incident X-ray, and, in addition, enables the RXD experiment applied the external magnetic field. This experiment environment was achieved for the first time domestically. Now we conduct in-depth research of multipole ordering on typical compounds.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,090,000	327,000	1,417,000
2010年度	990,000	297,000	1,287,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,080,000	624,000	2,704,000

研究分野：数物系化学

科研費の分科・細目：物性Ⅱ

キーワード：(1)放射光 (2) 強相関電子系 (3) 低温物性

1. 研究開始当初の背景

従来の理論では理解できない”特異な磁気構造、磁気散漫散乱の出現する秩序状態”や”帯磁率、比熱における異常な相転移現象”などの謎を解く鍵として、近年、四極子や八極子などの多重極子の自由度が脚光を浴びている。本研究の目的は、共鳴 X 線散乱法を用いて秩序相や相転移点での多重極子秩序の生成消滅過程を直接観測し、その多重極子の秩序メカニズムを解明することである。

共鳴 X 線散乱法は、多重極子を唯一直接観測できる手法であるが、多重極子秩序物質の秩序温度のほとんどが 3 K から 1 K 以下であり、これに対応できる冷凍機がないため、日本国内では秩序相での実験が不可能となっていた。

2. 研究の目的

多重極子の秩序現象のほとんどが約 1 K から 3 K という低温で起こる為、多重極子そのものを直接観測できる強力な実験手段の共鳴 X 線散乱が、これまで多重極子の研究に対応できなかった。本研究課題の達成は、その問題を国内で初めて克服し、多重極子秩序を示す典型物質の研究を可能とする。

3. 研究の方法

実験環境の整備(1), (2) を行い、国内で初めて極低温下での共鳴 X 線散乱実験を可能にした。

- (1) ^3He 冷凍機を作製し、最低温度 1K 以下の共鳴 X 線散乱実験環境を整える。
- (2) 共鳴 X 線散乱実験で必須の偏光依存性のデータを極低温環境下で得るために、入射 X 線の偏光ベクトルを制御する移相子システムを立ち上げる。

ダイヤモンド移相子を使った偏光制御システムの導入

従来、共鳴 X 線回折により軌道自由度などの秩序変数を同定する場合、一つの回折ピークを捕らえた状態のまま散乱ベクトルの周りで結晶を回転させ、その強度変化、いわゆるアジマス角依存性を測定し、その結果を再現するモデルを立てる。この従来の測定方法では、4軸回折計の軸を使って試料が入った冷凍機(試料)を回転させる。小型冷凍機を使った無磁場での実験ならこれが可能であるが、本研究のように大型の極低温冷凍機、超伝導マグネット、高圧セルといった環境下に試料がある場合、「試料と磁場を一緒に回転させる」という操作はまず不

可能である。

そこで本研究では、試料ではなく、入射 X 線の偏光方向を回転させる手法をとる。放射光リングからのビームは水平方向の直線偏光である。移相子(1/2波長板)を光軸周りに回転させると、この偏光ベクトルの方向を水平方向から垂直方向へ任意に回転させることができる。さらに回折 X 線の偏光状態を偏光解析装置により調べることで、アジマス角依存性以上の情報を引き出せる。回折 X 線に円偏光が混じってくる場合などは、その度合いまで調べることができ、これまで以上に微細な議論が可能になる。さらに、移相子による方法が圧倒的に優れている点は、試料を全く動かさずに測定できるというところにあり、極低温、強磁場、高圧下での秩序変数の同定が可能になることはもちろん、試料を回転したためにビーム照射位置が微妙に変わって強度が変動するといった非本質的な効果がなくなり、非常にきれいな、厳しい議論に耐え得るデータが得られる。

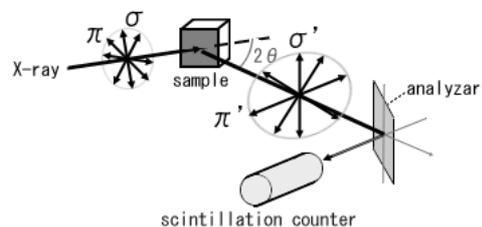


図1: 入射 X 線偏光制御による共鳴線散乱(RXS)実験の入射 X 線偏光と試料、散乱 X 線偏光の関係。従来の RXS 実験では入射 X 線偏光ではなく、試料を回転させていた。

以上の実験環境の整備後、

- (3) 多重極子秩序を示す典型物質 ($\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$, DyPd_3S_4 , PrPd_3S_4 , $\text{Ce}_3\text{Pd}_{20}\text{Ge}_6$, PrPb_3 など)の徹底的な研究を行い、多重極子の本質と秩序メカニズムを明らかにする。

4. 研究成果

(1)初年度(H21)は極低温実験環境整備の整備と共に従来の共鳴 X 線散乱(RXS)法を用いて多重極子秩序変数を決定した。

- ①対称物質: CePd_3S_4 であり、四極子秩序の示唆されていた物質である。秩序温度は 6K と ^4He 冷凍機でも実験可能な高さであった。

②結果:四極子秩序変数を決定することにより,粉末中性子散乱実験の磁気構造との違いを指摘し,同時に八極子の秩序を示唆した。

(2) 極低温実験環境整備

①申請者は主に,入射 X 線の偏光ベクトルを制御する移相子システムに力を注いだ。偏光度 96%を維持した状態での入射偏光の制御が可能となった。(図2, H21年度)

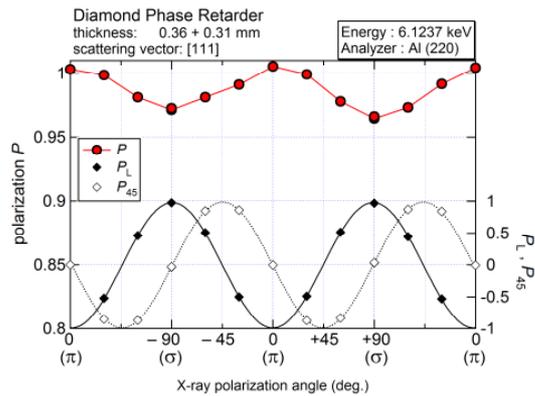


図2: 移相子透過後の直線偏光の角度[横軸](入射 X 線は π 偏光)に対する偏光度 P と 90 度直線偏光度 P_L 及び45度直線偏光度 P_{45} . 移相子透過後の偏光度は偏光角度に依らず, 96%以上である。

② 研究協力者(広島大学 松村准教授)の協力により ^3He 冷凍機及び 8T 超電導マグネットを導入した。(H22 年度)

(3) 極低温強磁場 RXS 実験

① $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{B}_6$ を対象とした極低温での RXS 実験を行った。 $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{B}_6$ は唯一, RXS 実験により八極子秩序が議論されている物質である。H22 年度の実験により,八極子による共鳴ピークを観測し, H23 年度の実験では移相子システムによる入射偏光の制御を用いた新しい RXS 実験を行い,従来の RXS 実験と同じ結果が導かれ,新しい RXS 実験の有用性を確認した。(但し, 現在,解析の途中であり,現状での結果である。)

② PrPd_3S_4 の RXS 実験を行った。 PrPd_3S_4 は 1.8K で磁気秩序を示すが,比熱や磁化測定より,八極子の秩序が同時に生じている可能性が示唆されている。散乱強度が弱く,マシンタイムの都合上,アジマス角依存性や入射偏光角依存性の測定は出来なかったが,四極子または八

極子の秩序を示す散乱を発見した(図3)。また, π 及び σ 偏光入射に対する散乱強度の偏光解析結果を得ることができ,今後の継続した実験から,秩序変数の決定や CePd_3S_4 との比較により,多極子への理解及び知見を深めていく。

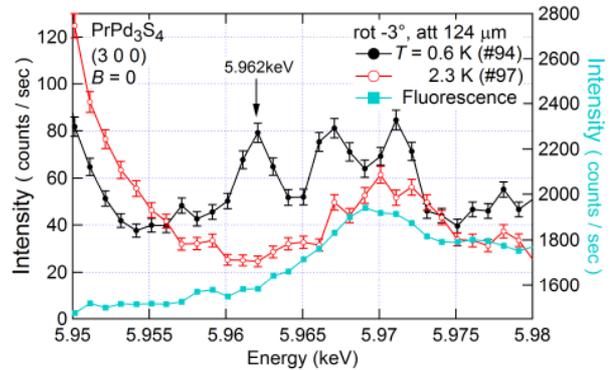


図3: PrPd_3S_4 における L_3 吸収端近傍のエネルギー依存性。入射 X 線は π 偏光。5.962 keV, 5.967 keV, 5.971 keV に共鳴散乱によるピークが観測された。特に, 5.962 keV の散乱は $2p \rightarrow 4f$ 遷移に起因し, 多重極子を直接的に表している可能性が高い。

(4) 今後の展望

H23 年度になり, 極低温強磁場 RXS 実験を行う環境が整った。移相子システムを用いた新しい RXS 実験法の有用性や実験手順も確認出来つつある。H23 年度以降,定常的に研究成果を挙げることが出来る。一方, 唯一,極低温の(従来の)RXS 実験結果を報告した ESRF(フランス)も 5 年以上新たな報告は無い。また,従来の RXS 法による磁場中での秩序変数の決定は容易ではなかった。新しい RXS 法を用いて, 磁場に対して磁気秩序とは異なる応答を示す多極子秩序を調べることも容易となり, 研究成果を挙げていく。

5. 主な発表論文等

(研究代表者, 研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

(1) T. Inami, S. Michimura, A. Mitsuda, H. Wada

Observation of two charge ordering transitions in the valence-fluctuating EuPtP by resonant x-ray diffraction Phys. Rev. B, **82**, 195133. (2010), 査読有

〔学会発表〕(計 6 件)

- (1) 日本物理学会 第66回年次大会(2011 新潟大学)
Ce_{0.7}La_{0.3}B₆のIV相における磁場中共鳴X線回折
道村真司, 稲見俊哉, 大坪亨, 松村武, 世良正文, 伊賀文俊
- (2) 日本物理学会 第66回年次大会(2011 新潟大学)
極低温磁場中共鳴X線回折によるf電子多極子秩序の研究
松村武, 大坪亨, 道村真司, 稲見俊哉, 谷田博司, 世良正文, 伊賀文俊
- (3) 日本物理学会 2010年秋季大会(大阪府立大学)
部分成分磁気秩序物質TbCoGa₅の共鳴X線散乱法による磁気構造解析 (2010/9/23)
道村真司, 稲見俊哉, 眞田直幸, 綿貫竜太, 鈴木和也
- (4) International Conference on Heavy Electron
2010 (Tokyo Metropolitan University, Japan)
Resonant X-ray diffraction study of multipole ordering in CePd₃S₄
(2010/9/18)
S. Michimura¹, T. Inami¹, E. Matsuoka, M. Watahiki, K. Tanigaki and H. Onodera
- (5) 日本物理学会 第65回年次大会(2010 岡山大学)
多極子秩序物質CePd₃S₄の共鳴X線散乱
(2010/3/21)
道村真司, 稲見俊哉, 松岡英一, 綿引正倫, 谷垣勝己, 小野寺秀也
- (6) 日本物理学会 第65回年次大会(2010 岡山大学)
EuPtPにおける価数転移と価数秩序
(2010/3/20)
稲見俊哉, 道村真司, 光田暁弘, 和田裕文

6. 研究組織

(1) 研究代表者

道村 真司 (MICHIMURA SHINJI)
独立行政法人 日本原子力研究開発機構・
量子ビーム応用研究部門・博士研究員
研究者番号: 40552310

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし