

「超精密結晶構造解析による価電子の可視化」

木村宏之

東北大学多元物質科学研究所

・背景

近年盛んにその基礎物性が研究され応用にも結びついている、巨大磁気抵抗効果や巨大電気磁気効果などの巨視的外場応答は、結晶固体内の電子の持つ電荷・軌道・スピンの自由度の共奏と競合がもたらす相転移現象である。これらの自由度は、微視的にはあるスピン・軌道角運動量を持つ価電子の、固有エネルギー及び運動量（時空間構造）で特徴づけられ、相転移に伴って価電子の空間分布にも変化が現れる。価電子分布の変化は、原子間（分子内）の結合長、結合角度の変化によって間接的に検出可能であり、量子ビームによる結晶構造解析は、この間接的な情報を与える重要な手法として発達し、様々な物質に適用されてきた。しかし近年の量子ビームの高輝度化（高束化）そして多極子展開法や最大エントロピー法（MEM）等の解析・可視化手法の発展により、単に原子座標を決定するという従来の構造解析のレベルを超え、固体中の全電子の空間密度分布が高精度で観測されるようになってきている。

最近我々は、放射光X線を用いた超精密結晶構造解析により、全電子密度分布の中から物性に寄与する価電子密度分布のみを引き出して可視化する事を試みている。良質な単結晶試料を用いて、多重散乱を回避して回折線の強度を正確に測定する事で、価電子1個が占める電子軌道を反映した、異方的な電荷密度分布の可視化に成功した。

・現在の問題点

我々が観測する量には位相情報が欠落している。構造解析における位相回復は現状では克服困難な問題であり、それ故に位相推定のための観測量（回折強度）を可能な限り高精度に測定することが重要である。一方で測定精度が向上するに従い、電子密度の異方性を表現する従来法の一つである多極子展開法では高精度な観測量を再現できなくなっている。このため我々は現在、波動関数の2乗から出発して電子密度を記述して構造解析に組み入れる事を試みている。

- ・将来光源で期待される成果

次世代の放射光源で実現する低エミッタンス光では、非常に高いビーム平行度が期待できる。これにより、多重散乱過程の計算がより高精度に行え、回折強度をより高精度に測定できると期待できる。そうなれば、むしろ多重散乱を積極的に利用して、散乱過程を解析に取り入れる事で、位相の最適化が可能になるかもしれない。更に、次世代源で高いコヒーレンスを実現すれば、参照光と物質からの回折光の干渉を利用して、位相情報を直接的に取り出すこともできるようになるかもしれない。

本講演で紹介する内容は、KEK/物構研の岸本氏と石川氏、阪大の宮坂氏、理研の十倉氏、そして東北大多元研の木村研究グループとの共同研究である。