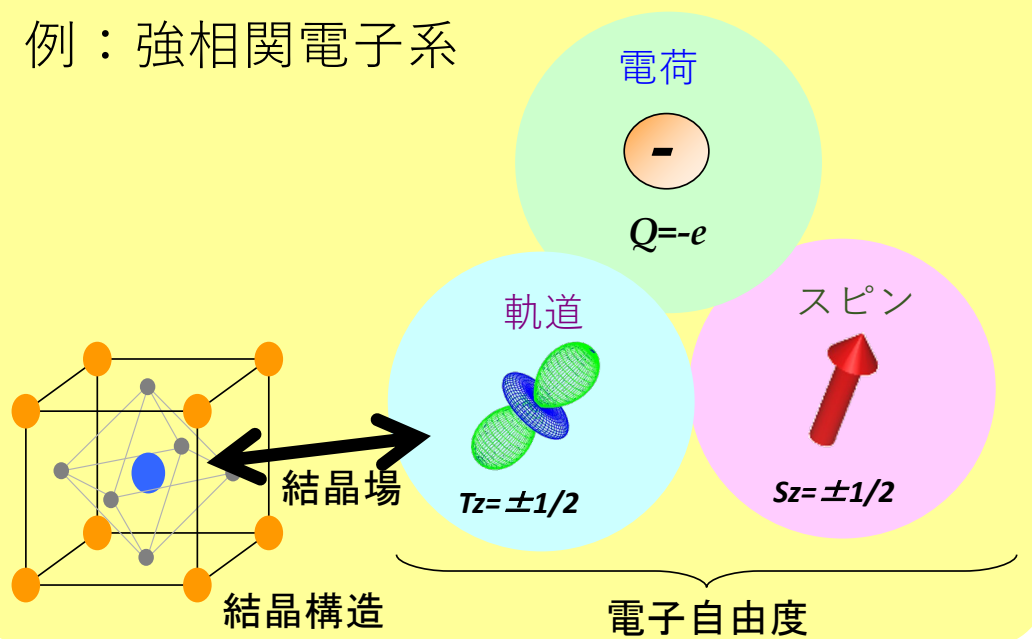


電子自由度の秩序研究への マルチパルス放射光の有用性(構造物性UG)

岩佐和晃(UG代表)¹, 中尾裕則², 奥山大輔², 若林裕助³, 松村武⁴
(茨城大フロンティアセンター¹, KEK物質構造科学研究所², 東北大院理³, 広島大先端⁴)

例：強相関電子系

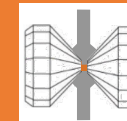
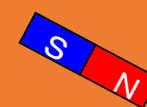


多彩な軌道・電荷・スピン秩序と物性

高温超伝導、巨大磁気抵抗効果、
巨大電気磁気効果、重い電子系.....

回折・吸収・共鳴X線散乱
(BL3A, 4C, 8A, 8B etc.)

外場応答

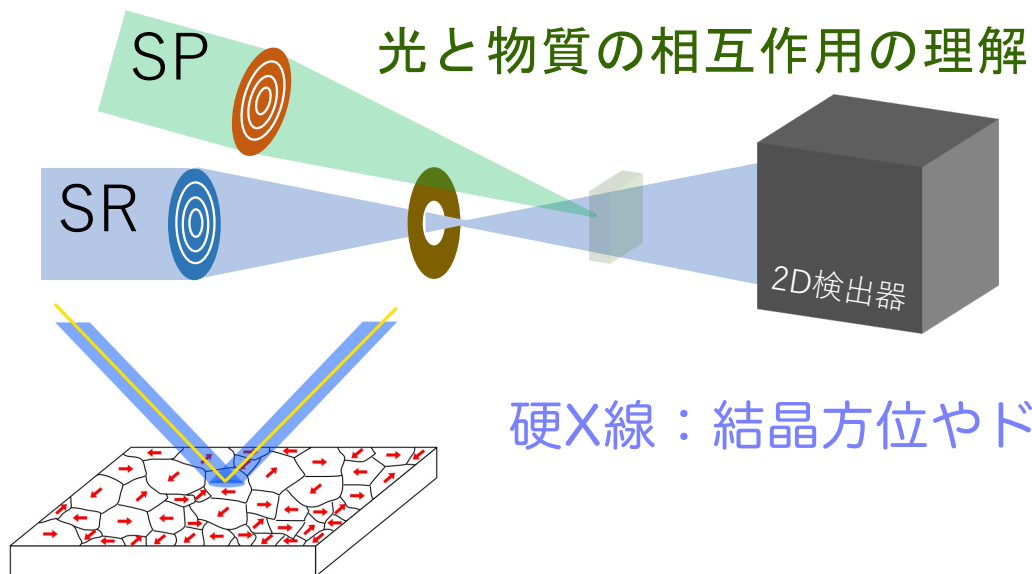


温度、圧力、磁場、電場、光...

パルスX線

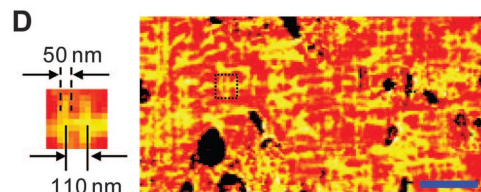
時間・空間発展の解明に有効

相分離・共存・ドメイン構造の回折(共鳴/非共鳴)・吸収・発光研究



強誘電物質のドメイン内の電子状態
(BaTiO_3 、マルチフェロ物質)

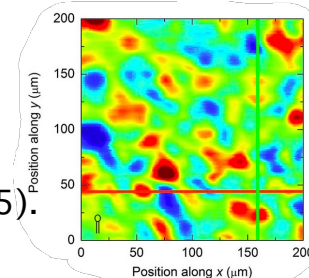
外場誘起相転移物質
($(\text{Nd}, \text{Sr})\text{MnO}_3$ 薄膜)
K. Lai, Science **329** 190 (2010).



ドメイン壁の内部構造の観測

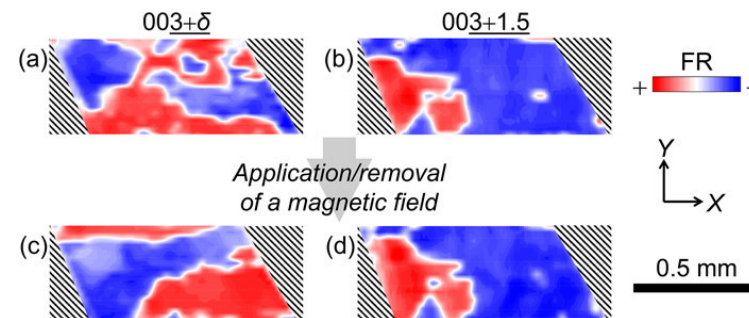
相分離・共存・ドメイン構造

Ferromagnetic region in $\text{LaMnO}_3/\text{SrTiO}_3$
X. R. Wang et al., Science **349**, 716 (2015).



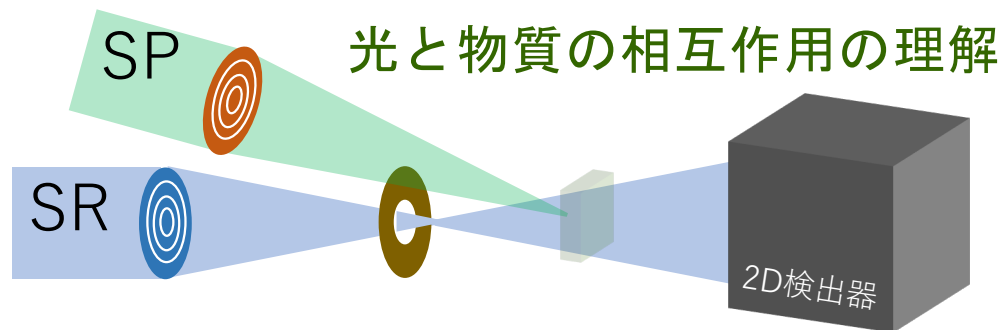
硬X線：結晶方位やドメイン 軟X線：吸収・発光測定

円偏光共鳴磁気散乱のフリッピング
比による磁気ドメインマッピング
(Hexaferrites)

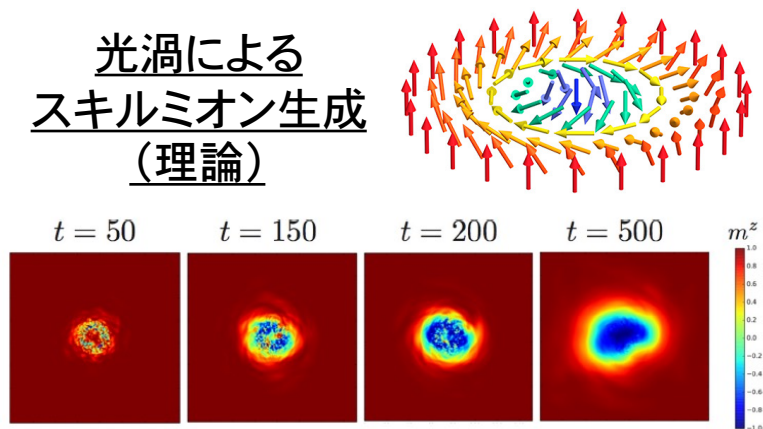


H. Ueda et al., J. Appl. Phys. **128**, 174101(2020).

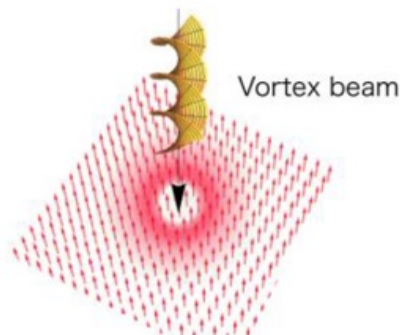
光誘起によるトポロジカル励起生成や光誘起相転移



光渦による スキルミオン生成 (理論)

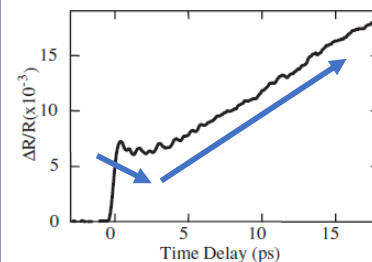


H. Fujita & M. Sato, PRB 95, 054421 (2017).



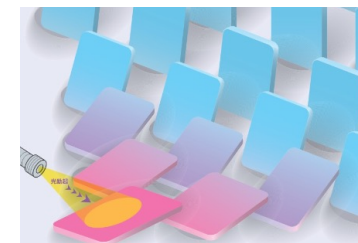
- SP光渦（単パルスの微小X線）で磁気スキルミオン励起
- SR光で格子形成過程及び駆動状態観測

光誘起相転移

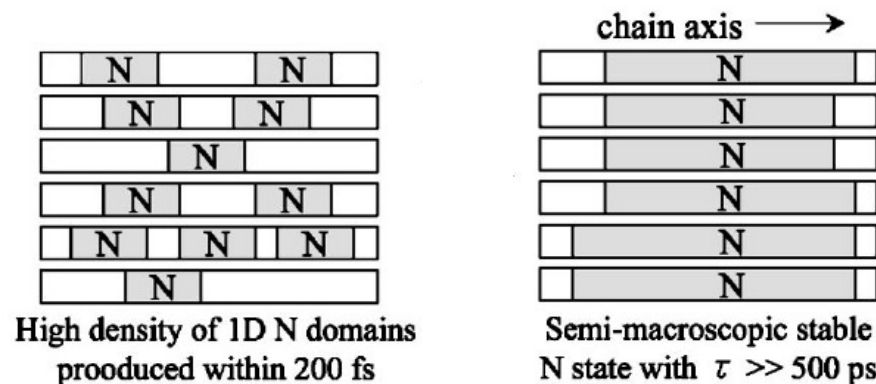


強誘電体
中性・イオン性転移

S. Iwai & H. Okamoto, JPSJ 75, 011007 (2006).



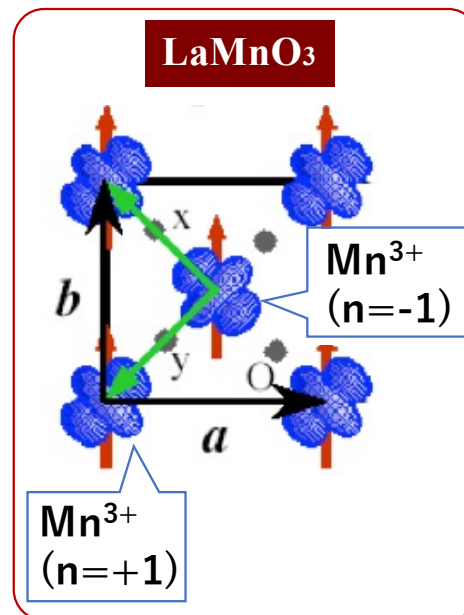
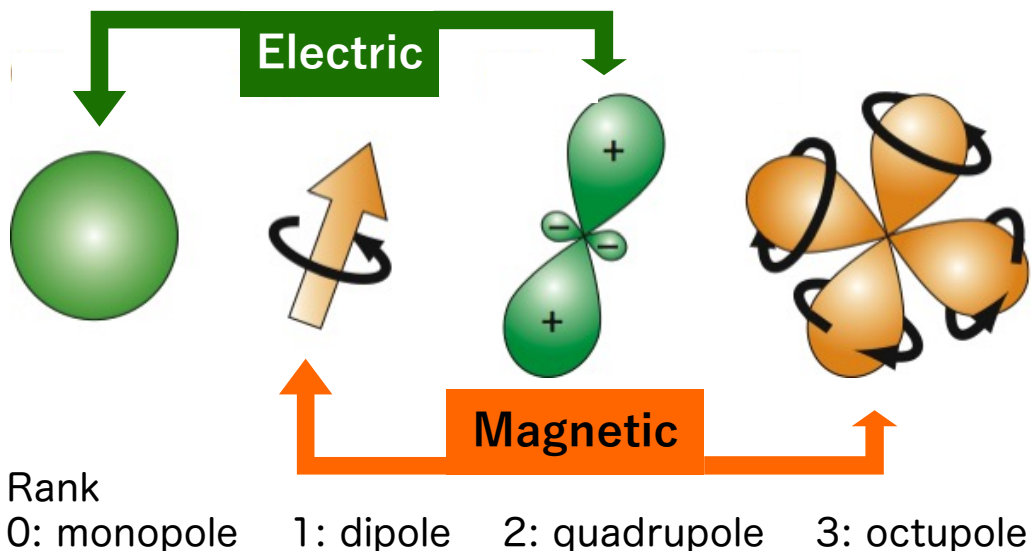
光ドミノ効果の
時空間観測



光ドミノ効果
の時空間観測

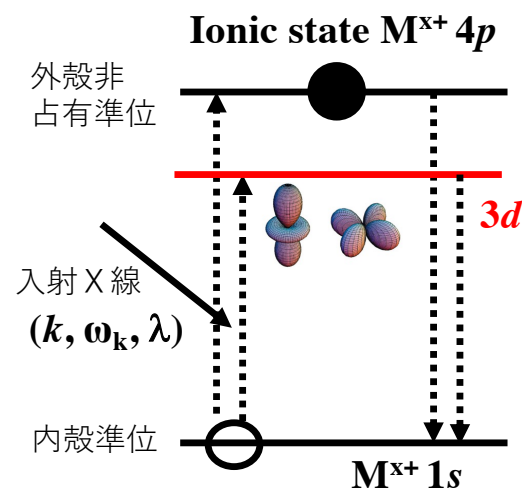
電子自由度の秩序構造を表現する多極子(軌道)と共鳴X線散乱

従来の電子多極子 (単サイト型)

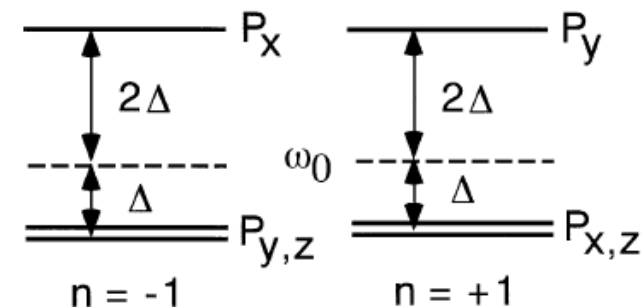


Y. Murakami et al., PRL 80, 1932 (1998), PRL 81, 582 (1998).

共鳴X線散乱



多極子	磁気双極子	電気四極子	磁気八極子	電気 16 極子
手段・場	磁場	1 軸性圧力	局所磁場	X 線散乱 (格子歪み)
	中性子散乱	弾性定数 (超音波)	μ SR	非弾性中性子散乱 (結晶場)
	NMR	NMR, NQR	NMR	共鳴X線散乱
	μ SR	偏極中性子散乱	共鳴 X 線散乱	$\Delta l = \pm 2$ (E2)
	$\Delta l = \pm 1$ (E1)	共鳴 X 線散乱	中性子散乱	



H. Kusunose, JPSJ Online—News and Comments 4, 06 (2007), 物性研究 97, 730 (2012).

電子自由度の秩序構造を表現する拡張多極子

単一サイト/空間反転対称からの拡張

- 複数サイトで構成される多極子
- 異種軌道混成多極子
- 局在電子状態と遍歴電子状態も包含

楠瀬博明, J-Physics NL vol. 2, 4 (2016).

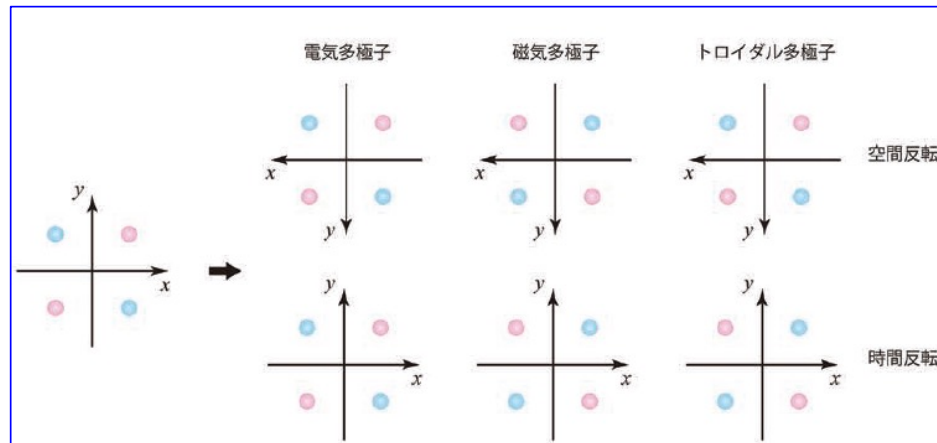
スカラーポテンシャルの
多極子展開

$$\phi(\mathbf{r}) = \sum_{lm} a_l Q_{lm} \frac{Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}})}{r^{l+1}},$$

ベクトルポテンシャルの
多極子展開

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}) = \sum_{lm} \left(b_l M_{lm} \frac{\mathbf{Y}_{lm}^l(\hat{\mathbf{r}})}{r^{l+1}} + c_l T_{lm} \frac{\mathbf{Y}_{lm}^{l+1}(\hat{\mathbf{r}})}{r^{l+2}} \right).$$

物質中の全ての電気磁気物理量はこれで表せるはず。



(a) 奇パリティ多極子
(電気八極子)

(b) 拡張多極子
(トロイダル双極子)

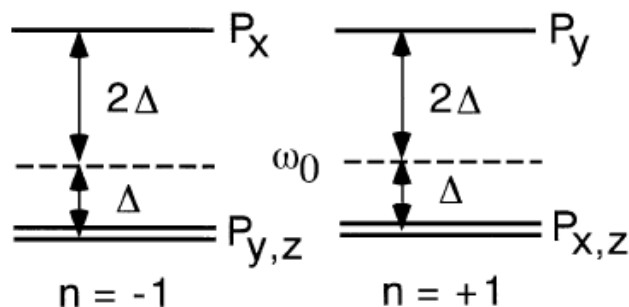
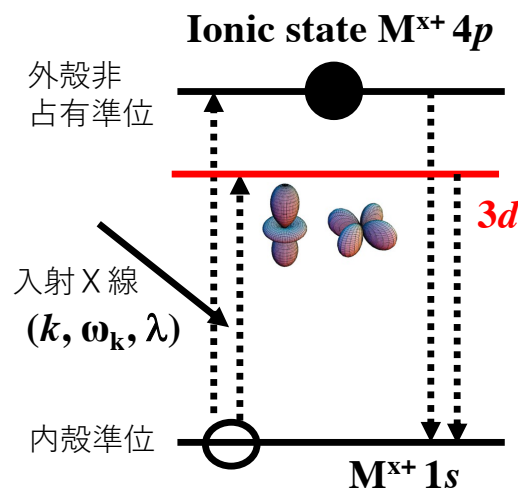
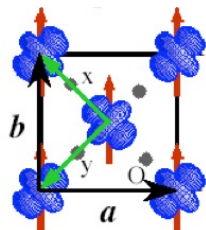
(c) 遍歴系のフラックス状態
(トロイダル四極子)

物理量	記号	空間反転	時間反転	備考
電荷	ρ_e	+	+	1
磁荷	ρ_m	-	-	$i \mathbf{e}_x \cdot (\mathbf{e}_y \times \mathbf{e}_z)$
トロイダル磁荷	ρ_t	+	-	i
座標成分	r_i	-	+	$= x, y, z$
電気多極子	Q_{lm}	$(-)^l$	+	極性 (真性)
磁気多極子	M_{lm}	$(-)^{l+1}$	-	軸性 (擬)
トロイダル多極子	T_{lm}	$(-)^l$	-	極性 (真性)
スカラーポテンシャル	$\phi(\mathbf{r})$	+	+	電気単極子 (電荷)
ベクトルポテンシャル	$\mathbf{A}(\mathbf{r})$	-	-	トロイダル双極子 (電流密度)
電場	$\mathbf{E}(\mathbf{r})$	-	+	電気双極子
磁場	$\mathbf{B}(\mathbf{r})$	+	-	磁気双極子
球面調和関数	$Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}})$	$(-)^l$	+	
ベクトル球面調和関数	$\mathbf{Y}_{lm}^l(\hat{\mathbf{r}})$	$(-)^l$	+	
	$\mathbf{Y}_{lm}^{l+1}(\hat{\mathbf{r}})$	$(-)^{l+1}$	+	

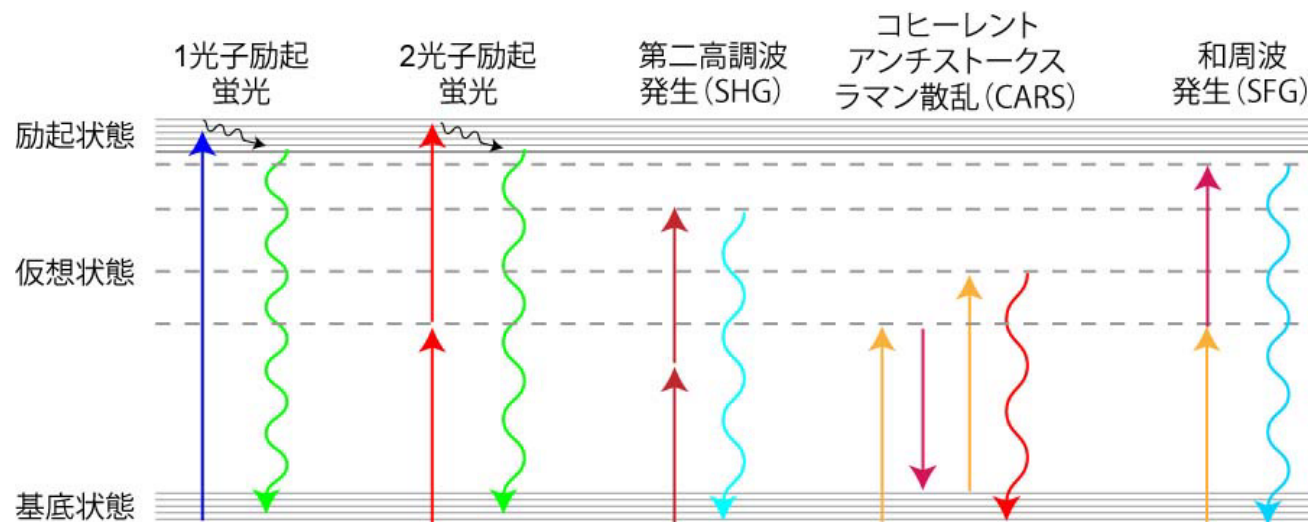
表1: 空間および時間反転に対する変換性。ランク l の多極子 (テンソル) は「電荷」 ρ_a ($a = e, m, t$) と l 個の座標成分 $r_i r_j r_k \dots$ との積から構成される。

2ビーム入射によって共鳴散乱実験は拡張するのか？

共鳴X線散乱による空間秩序観測



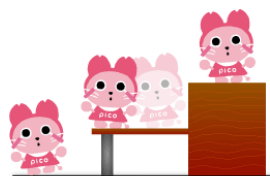
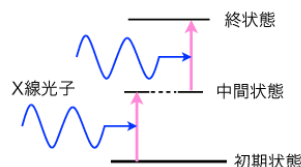
非線形光学現象 <http://user.keio.ac.jp/~aa606547/equipment.html>



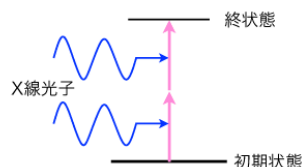
- 2ビームで2光子励起：弱い。誘導・共鳴でゲイン？
- 基底-励起状態における遷移選択則が拡張？
 $\Delta l = \pm 1$ (E1), ± 2 (E2) $\rightarrow \Delta l = \pm 1, \pm 2, \pm 3$
- 発光過程が可干渉な散乱であれば、回折強度ゲイン？
- これらが違うとしても新しいプローブにならないか？
 E1, E2 を分離・奇パリティ多極子
 (SPで共鳴散乱の時間依存を測定？)
 . . . X線発光 (手塚先生)

2ビーム入射によって共鳴散乱実験は拡張するのか？

逐次のな“2光子吸収”



2光子吸収



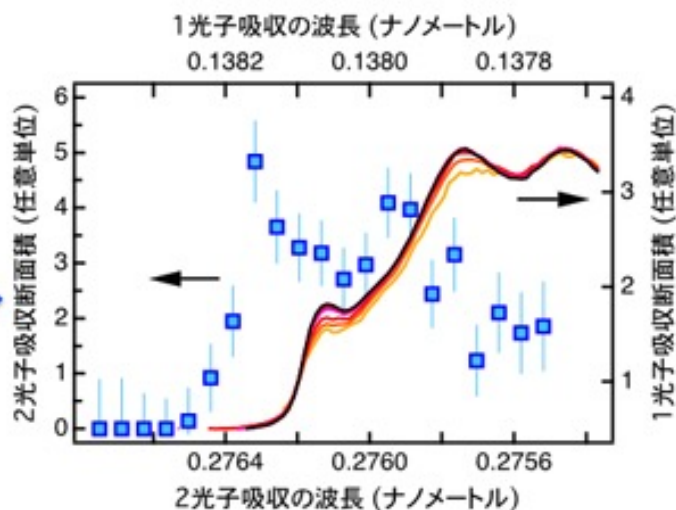
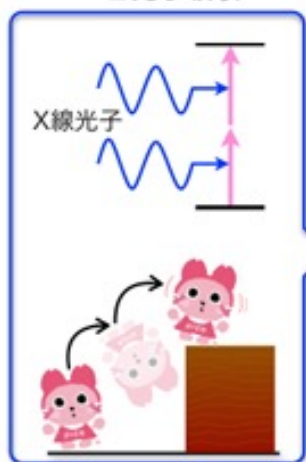
“Nonlinear Spectroscopy with X-Ray Two-Photon Absorption in Metallic Copper,” K. Tamasaku et al., Phys. Rev. Lett. 121, 083901 (2018).

X線の2光子吸収の観測に成功 – 数百zeptosecondの間にほぼ同時に原子を2度打ち –
[http://www.spring8.or.jp/ja/news_publications/press_release/2014/140217/]

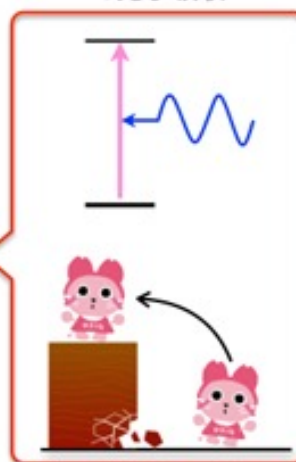
X線の2光子吸収分光法を実現

– 高温超伝導体をはじめとする遷移金属化合物のd軌道の理解に貢献 –
[http://www.spring8.or.jp/ja/news_publications/press_release/2018/180822/]

2光子吸収

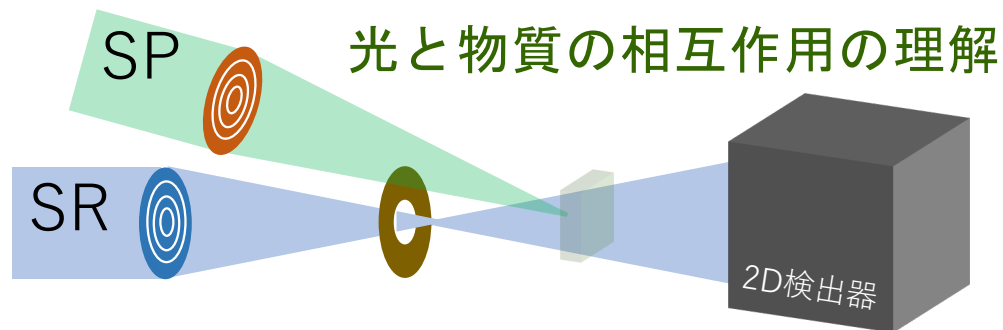


1光子吸収



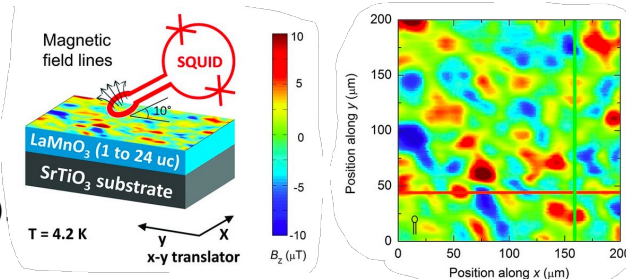
- 2光子X線吸収 (4.5 keV × 2 photons at XFEL)
- 金属銅の 1s-3d 遷移 (8~9 keV, 1光子遷移では禁制)
- 1s-3d 遷移は、3d 多極子秩序の直接観測となりうる。
- X線であれば空間相関長や物質深部の構造が見出せる。

電子自由度の秩序研究へのマルチパルス放射光の有用性(構造物性UG)

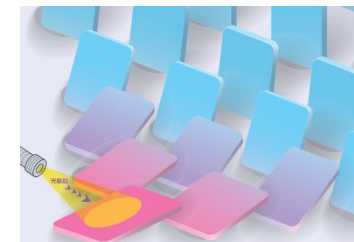
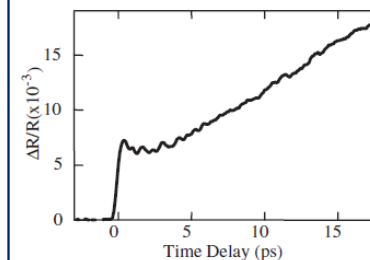


相分離・共存・ドメイン構造

Ferromagnetic region in $\text{LaMnO}_3/\text{SrTiO}_3$
X. R. Wang et al., Science 349, 716 (2015)



光誘起相転移



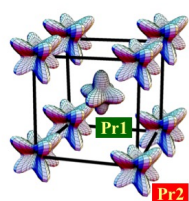
強誘電体
中性・イオン性転移

光ドミノ効果の
時空間観測

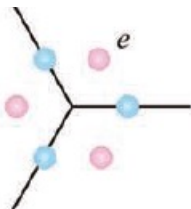
S. Iwai & H. Okamoto, JPSJ 75, 011007 (2006).

拡張多極子の秩序: 共鳴X線散乱観測

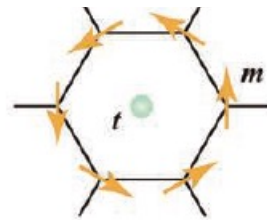
偶パリティ多極子



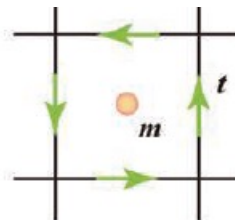
(a) 奇パリティ多極子
(電気八極子)



(b) 拡張多極子
(トロイダル双極子)

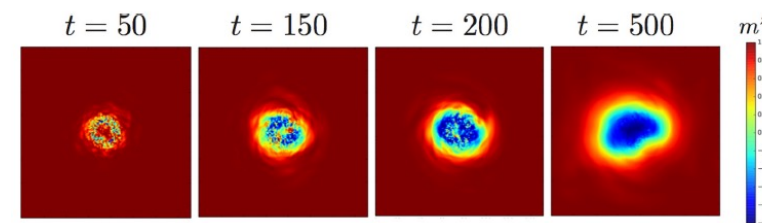
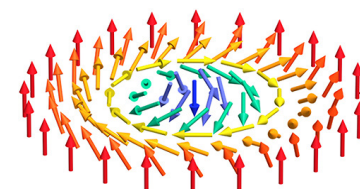


(c) 遍歴系のフラックス状態
(トロイダル四極子)



楠瀬博明, J-Physics NL vol. 2, 4 (2016).

光渦による スキルミオン生成



H. Fujita & M. Sato, PRB 95, 054421 (2017).