

## 共鳴軟・硬X線散乱を相補的に用いた構造物性研究

Condensed matter studied by resonant soft/hard x-ray scattering

山崎裕一<sup>1)</sup> 打田正輝<sup>2)</sup> 石井賢司<sup>3)</sup> 中尾裕則<sup>1)</sup> 村上洋一<sup>1)</sup> 十倉好紀<sup>2)</sup>

Yuichi YAMASAKI Masaki UCHIDA Kenji ISHII Hironori NAKAO Youichi Murakami Yoshinori TOKURA

<sup>1)</sup> 高工ネ機構物構研

<sup>2)</sup> 東京大学

<sup>3)</sup> 原子力機構

### (概要)

本研究は、CB型電荷秩序を示す層状ペロブスカイト型ニッケル酸化物  $Nd_{2-x}Sr_xNiO_4$ において、Spring-8 のBL22XUに設置されている4軸回折装置を用いて共鳴X線散乱測定を行うことにより、電荷秩序相におけるNiの電子状態を解明し、高いホール濃度まで絶縁体・金属転移を示さない起源を明らかにすることを目的とした。その結果、電荷秩序相では  $x_2y_2$ 型の軌道秩序が実現していることを実証した。

**キーワード：**ニッケル酸化物、電荷秩序、軌道秩序、金属絶縁体転移、共鳴X線散乱

### 1. 目的

CB型電荷秩序を示す層状ペロブスカイト型ニッケル酸化物  $Nd_{2-x}Sr_xNiO_4$  は高温超伝導を示す銅酸化物と同じ結晶構造を有するが、 $x=1$ 近傍の候ドープ領域まで絶縁体・金属転移を示さない[1]。本研究では、共鳴X線散乱測定を行うことにより、広いドープ領域で発現している電荷秩序相におけるNiの電子状態を解明し、高いホール濃度まで絶縁体・金属転移を示さない起源を明らかにすることを目的とする。

### 2. 方法

Spring-8 のBL22XUに設置されている4軸回折装置を用いて共鳴X線散乱の測定を行った。入射X線のエネルギーはNiのK端に対応した8.333keVとした。クライオをchi=90に設置し、中軸を回転させることでアジマス角依存性を測定した。試料はCB型の電荷秩序がもっと安定化する組成より少しホールをドープした  $Nd_{1.475}Sr_{0.525}NiO_4$  を用いた。測定ははじめに200反射、400反射、402反射で軸立てを行い、電荷秩序に対応した300反射、および斜方晶への構造転移に伴って発現する301反射を測定した。300反射ではNiの共鳴X線散乱を測定し、そのアジマス角依存性を測定した。

### 3. 研究成果

図1には300反射の温度依存性を示しており、240K程度で散乱強度が消失していることがわかる。また図2には300反射における共鳴X線散乱のアジマス角依存性を示しているが、E||aの時に最大となり、E||cの時には消失している様子が見てとれる。このアジマス角依存性はNiの4pレベルを考えたときに、4p<sub>z</sub>のレベルにはCB型の電荷秩序に対応したサイト間でエネルギー差が無いが、4p<sub>x</sub>のレベルではサイト間にエネルギー差が生じていることを示唆している。一般的な電荷秩序状態ではサイト間で異なる電荷を有することから、サイト間で化学ポテンシャルに差が生じ、4pレベルにおいて等方的なエネルギー差が発現する。これ

に対して、今回得られたアジマス依存性は、異方的であることから単純な電荷秩序とは違い、軌道秩序のような異方性を有するような電子状態の秩序状態が実現していることになる。アジマス角依存性を素直に考えると、 $x^2-y^2$  軌道がCB型に秩序していると推察される。しかし、 $E \parallel c$  の共鳴X線散乱強度が本実験のノイズレベルで観測されず、電荷の変位（charge disproportionation）は小さいと考えられる。散乱強度から見積もる電荷変位量は大きくとも0.1以下であり、電荷変調は小さいが軌道の形は変調しているような、新しい軌道秩序状態が実現している可能性がある。

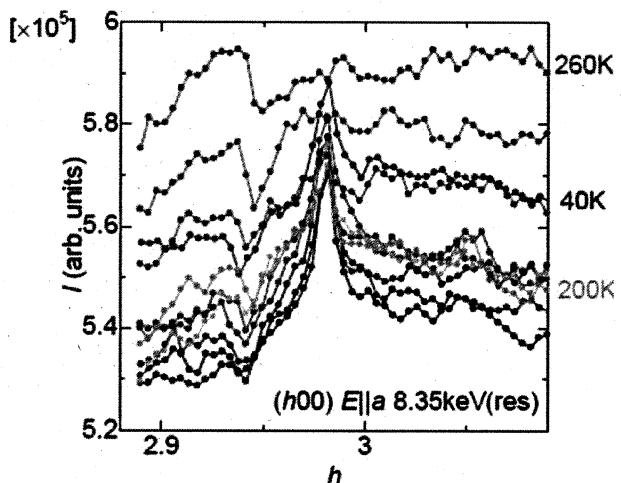


図 1. 300 反射の温度依存性

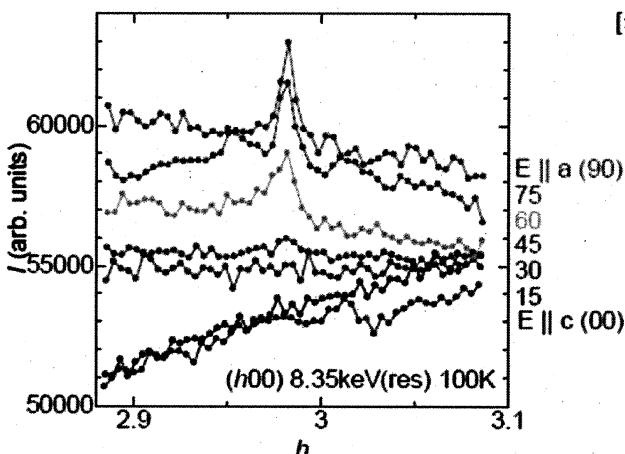


図 2. 300 反射の共鳴 X 線散乱強度のアジマス角依存性

#### 4. 結論・考察

本研究によって  $x=0.525$  の電荷秩序相において  $x^2-y^2$  軌道がCB型に秩序していることが明らかになった。今後は異なるホール濃度においても同様に電荷軌道秩序状態を解明し、本系での絶縁体-金属転移との対応を明らかにしていく。

#### 5. 引用(参照)文献等

- [1] "Multi-orbital Fermi surface in metallic  $\text{Eu}_{2-x}\text{Sr}_x\text{NiO}_4$ : a non-superconducting analog of layered cuprates", M. Uchida, K. Ishizaka, P. Hansmann, X. Yang, M. Sakano, J. Miyawaki, R. Arita, Y. Kaneko, Y. Takata, M. Oura, A. Toschi, K. Held, A. Chainani, O. K. Andersen, S. Shin, and Y. Tokura