

新博士紹介

1. 氏名 井手剛 (IBM 東京基礎研究所)
2. 論文提出大学 東京大学
3. 学位種類 博士 (理学)
4. 取得年月日 2000 年 3 月
5. 題目 Theoretical Study on Nonlocal Effects in Resonant X-Ray Emission Spectra of Strongly-Correlated Systems

6. 要旨

【はじめに】 強相関電子系の面白さの多くは、局在性と遍歴性の競合をもたらす現象の多様性にあると言ってよい。共鳴X線発光分光法 (RXES) は高輝度光源の進歩によって物性研究におけるその将来が非常に有望視される実験手法である。RXESには種々の特徴があるが、理論的な観点からは、そのスペクトル関数が、電子系の並進対称性と局所点群の対称性の両方を同時に反映する点が興味深い。上記の通りこの特徴は強相関系の研究に大きな意義を持つものと思われる。本論文は、 d 電子における遍歴-局在の二面性を、RXESの理論解析を通して表現することを主題として構成されている。この観点は、従来いわゆる不純物問題の枠内で議論されてきた高エネルギー分光理論の伝統を乗り越える試みであり、具体的には非局所効果——不純物模型では記述し得ない効果——に新たな知見を付け加えることが主たる目的である。本稿では、論文の中から2点に絞って主要結果を解説する。

【遷移金属酸化物における「蛍光的」共鳴散乱機構】1996年、手塚らは、 TiO_2 の $\text{Ti } 3d-2p$ RXES において、2系統の異なった入射光エネルギー (Ω) 依存性を持つスペクトルの存在を報告した¹⁾。ひとつは、わずかに Ω にス

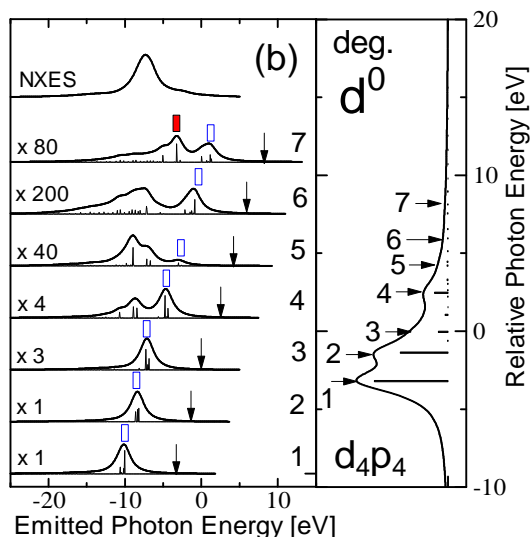
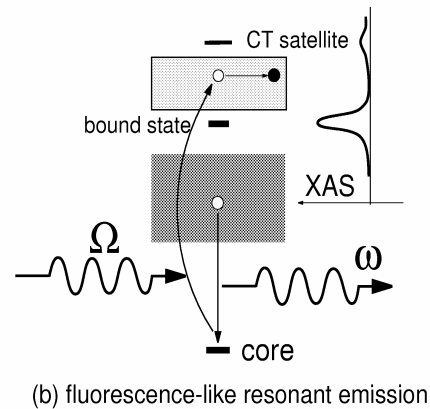


図1 2重縮退の周期アンダーソン模型により計算された TiO_2 の $\text{Ti } 3d-2p$ RXES (左; 右は XAS)。

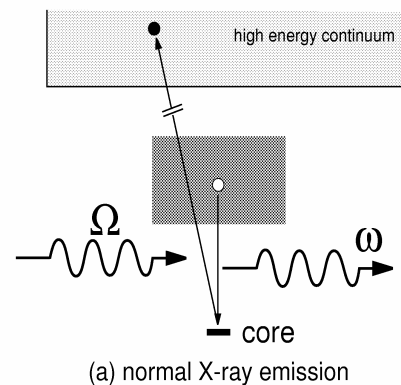
ペクトル形状が依存しつつ、 Ω が上がるにつれ、なめらかに非共鳴の X 線発光スペクトル (NXES) に移行する成分である。これを「蛍光成分」と名付ける。もうひとつは、 Ω に比例して射出 X 線のエネルギーが変化してゆく成分である。これを「ラマン成分」と名付ける。

このように Ω 依存性において2成分に分離したスペクトルが現れるという事実は、不純物模型による議論からは説明できないため、新しい理論模型による研究が必要とされていた。われわれは並進対称性と $d-d$ 相関を正しく取り入れた最小模型として1次元の周期アンダーソン模型を採用し、蛍光と散乱の分離の由来を議論した。

図1に計算結果を示す。白い棒で示したラマン成分 (非結合軌道に由来) に加え、蛍光成分が再現されていることがわかる。黒い棒は反結合性軌道の寄与で、これは最近観測された RXES の偏光依存性の実験結果と一貫している。なお、矢印は弾性散乱線の位置を示す。



(b) fluorescence-like resonant emission



(a) normal X-ray emission

図2 蛍光的成分出現に関する NXES-like 共鳴散乱機構。

ラマン成分の出現に関しわれわれが提案した機構²⁾を図2にまとめる。強い内殻正孔ポテンシャルが存在するにもかかわらず、RXESの中間状態には遍歴的な励起状態が存在している。このモードを通して、内殻から励起された電子は、隣接サイトへ散逸しうる。この過程は、NXESと類似しており、それゆえスペクトルにおける対応、とりわけ Ω 依存性の小ささも理解される。

【高温超伝導体の Cu 4p-1s RXES における非局所遮蔽効果の実証】上に述べた NXES 的共鳴散乱機構は、理論・実験ともわが国で確立された新種の非局所効果である。一方、X線光電子スペクトル (XPS) の研究においては、すでに 1993 年に NiO および銅酸化物系に強い非局所遮蔽効果が見出されている³⁾。とりわけ後者においては、ドーピングしていない母物質において Zhang-Rice 1 重項 (ZR) 形成に由来するピークがスペクトルに強く現れるという点で興味深い。すなわちある Cu サイトに作られた 2p 正孔による斥力ポテンシャルが 3d 正孔をそのサイトから追い出し、近隣区画で ZRs を形成する。価電子の光電子分光法での photo-doping と対比すれば、内殻光電子分光法のそれは “potential doping” と呼んでよい。

Cu 4p(π)-1s RXES の中間状態においても、2p-XPS の終状態と同様な、強い内殻正孔ポテンシャルの効果による ZRs 形成が期待され、コヒーレントな二次光学過程を通して、その動態が RXES スペクトルに現れることが予想される。

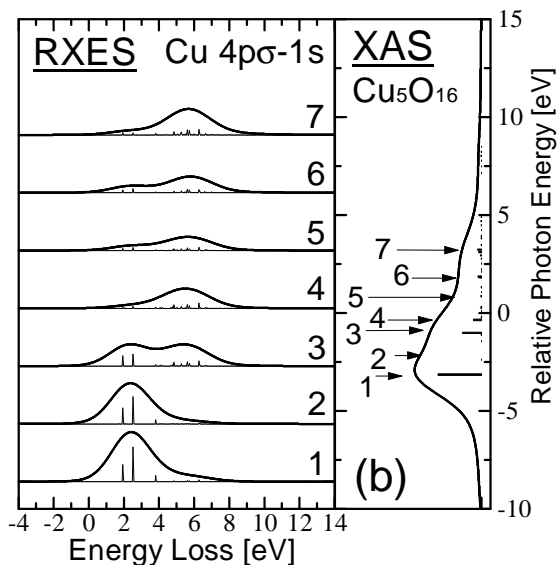


図 3 Nd₂CuO₄ の Cu 4p(σ)-1s RXES (左; 右は Cu 1s-XAS)。

図 3 に Cu₅O₁₆ クラスタでの計算例を示す。計算では約 2eV と 5.7eV に非弾性散乱のピークが見えている。これらは不純物アンダーソン模型でも再現されるが、 Ω 依存性には明瞭な違いがある。すなわち大きなクラスタ模型で計算すると、5.7eV ピークは XAS の主ピークに共鳴した時ほとんど共鳴増大を示さない (図 3 のスペクトル 1 と 2)。しかし不純物アンダーソン模型では、吸収の主ピークに共鳴すると 5.7eV ピークがかなりのスペクトル強度を持つ。Nd₂CuO₄ に対して行われた Cu 4p-1s RXES 実験⁴⁾は明らかに大きなクラスタの結果を支持している。

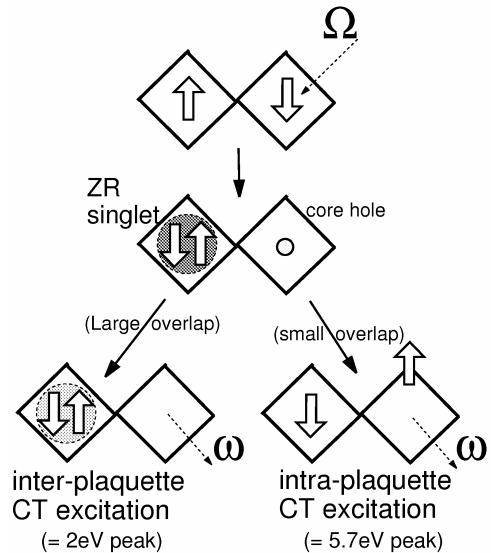


図 4 銅酸化物系の Cu 4p-1s RXES における非局所遮蔽効果の寄与。

この 5.7eV ピークの抑制効果の起源をまとめたものが図 4 である。図に示すように、RXES スペクトルの Ω 依存性は、電荷励起の空間的広がり的大小を直接表現しており、RXES の内包する物理の豊かさの一端を見せてくれる。もしこの結果を逆にたどれば、銅酸化物系の電荷ギャップ直上の状態が、ZR バンドと上部ハバードバンドの間の電子正孔対生成と解釈できることがわかる。以上の結果⁵⁾は、XPS の研究で見出された非局所遮蔽効果が、RXES においても顕著な効果を与えることを定量的に示した初めての研究である。さらに、強相関絶縁体の電荷ギャップの構造を調べる手段としての RXES の有用性を示したものとと言える。

参考文献

- 1) Y. Tezuka *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. 65, 312 (1996).
- 2) T. Idé and A. Kotani: J. Phys. Soc. Jpn. 67, 3621 (1998); to appear in *ibid.*: 69, No.6 (2000).
- 3) M. van Veenendaal and G. A. Sawatzky: Phys. Rev. Lett. 70, 2459 (1993).
- 4) J. Hill *et al.*: Phys. Rev. Lett. 80, 4967 (1998); K. Hämmäläinen *et al.*: Phys. Rev. B 61, 1836 (2000).
- 5) T. Idé and A. Kotani: J. Phys. Soc. Jpn. 68, 3100 (1999).