

共鳴非弾性 X 線散乱による銅酸化物高温超伝導体の電荷励起

日本原子力研究開発機構 放射光科学研究ユニット
石井賢司

高輝度放射光光源の発展に伴い、共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) を用いた電子状態の研究が盛んに行われるようになってきている。我々は RIXS を電子の励起を観測する手法ととらえ、銅酸化物やマンガン酸化物などの強相関電子系物質に適用してきた。光である X 線は、強相関電子系で重要とされる電子の内部自由度 (電荷、スピン、軌道) のうち電荷と強く結合する。従って、硬 X 線の RIXS によって電荷励起のエネルギー・運動量依存性が観測することができる。その点では、スピン励起が観測できる中性子非弾性散乱とは相補的な測定手法と言える。

本研究会では、銅酸化物における Zhang-Rice バンドから上部 Hubbard バンドへの励起 (Mott ギャップ励起) に注目して、励起強度が入射エネルギーや偏光によってどのように変わるか (共鳴条件)、及び、励起の電荷ドーブ効果が電荷の符号や系の次元性によってどう違うか、の二つの観点から発表を行う。

I. 共鳴条件

我々が対象とする $3d$ 遷移金属の場合は、K 吸収端 ($1s \rightarrow 4p$) を用いて $3d$ 電子の寄与する励起を議論することになり、複雑な散乱過程を経ることになる。その散乱過程を理解する上で、入射エネルギー依存性は重要な情報を与えると考えられる。図 1、2 に高温超伝導体の母物質の一つである Nd_2CuO_4 の吸収スペクトルと入射エネルギー依存性を示す。過去の報告に従えば、吸収スペクトルのそれぞれのピークにおける終状態は、8984 eV が $4p_\pi(d^{10}\underline{L})$ 、8990 eV が $4p_\pi(d^9)$ 、8996 eV が $4p_\sigma(d^{10}\underline{L})$ 、9002 eV が $4p_\sigma(d^9)$ となる [1]。RIXS スペクトルを測定したときの入射 X 線の偏光 (ϵ_i) は、試料の a 、 c 軸方向の単位ベクトルをそれぞれ \hat{a} 、 \hat{c} とすると $\epsilon_i \parallel (\hat{a} + \hat{c})/2$ であり、 a 軸方向の成分と c 軸方向の成分の両方を含んでいる。このとき、2 eV 付近の Mott ギャップ励起は、吸収スペクトルのピークに対応する入射エネルギー (8984、8991、8996 eV) で、励起強度が増大していることがわかる。つまり、well-screened state ($d^{10}\underline{L}$) と poorly-screened state (d^9) の両方が RIXS での Mott ギャップ励起の中間状態となり得るということである。また、図 3 に示すように、8984 eV と 8991 eV の 2 つの入射エネルギーで比べる限り、運動量依存性も類似している。それに対し、 $\epsilon_i \parallel \hat{c}$ で測定した La_2CuO_4 では、well-screened state が中間状態となったときにのみ Mott ギャップ励起が増大しており [2]、我々の結果と対照的である。

II. 電荷ドーブ効果

銅酸化物における超伝導は Mott 絶縁体に電荷をドーブすることで出現することから、電荷ドーブの電子状態への影響を調べることは重要である。図 4 に電子ドーブ型の $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ のドーブ量 (x) 依存性を示す。最適ドーブの $x = 0.15$ に注目すると、 $q = (0, 0)$ で x にほとんど依存しない部分が Mott ギャップ励起であり、有限の q ではそれよりも低エネルギーにドーブされた電子のバンド内励起と考えられる励起が現れる。一方、ホールドーブ系の $\text{Ca}_{2-x}\text{Na}_x\text{CuO}_2\text{Br}_2$ では分散の小さい Mott ギャップ励起が見られる。これらのドーブされた電荷の符号による違いは理論的に予想されていたものである [3]。さらに、最近測定した梯子格子系 $(\text{Sr,Ca})_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ では、Mott ギャップ励起はホールをドーブしても変化は小さいことがわかった。この結果は、ホールドーブだけをとってみても物質の次元性 (構造) が Mott ギャップ励起に大きな違いを与えることを示している。

本研究は、以下の研究者との共同研究である。稲見俊哉、大和田謙二、葛下かおり、坪田雅己、Moritz Hoesch、水木純一郎 (原研放射光)、遠藤康夫 (国際高等研)、筒井健二、遠山貴己、前川禎通、山田和芳、(東北大金研)、村上洋一 (東北大理)、川嶋浩和、秋光純 (青学大理工)、工藤一貴、小池洋二 (東北大工)、熊谷健一 (北大理)。

参考文献

- [1] N. Kosugi *et al.*, Phys. Rev. B **41**, 131(1990). [2] Y.J. Kim *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89**, 177003 (2002). [3] K. Tsutsui *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 117001 (2003).

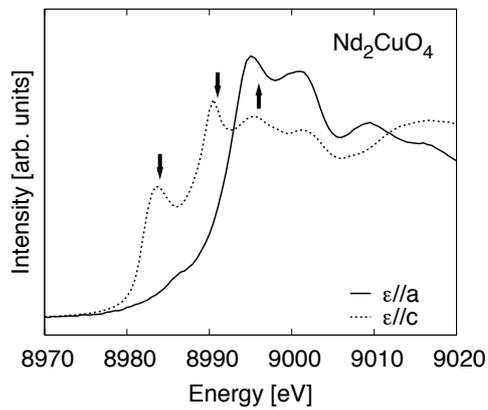


図 1: 吸収スペクトル。矢印はRIXSで Mott ギャップ励起が共鳴増大したエネルギーを示す。

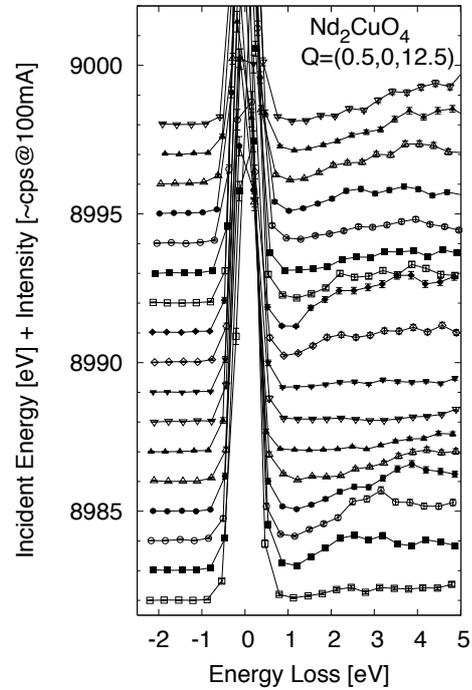


図 2: 入射エネルギー依存性。

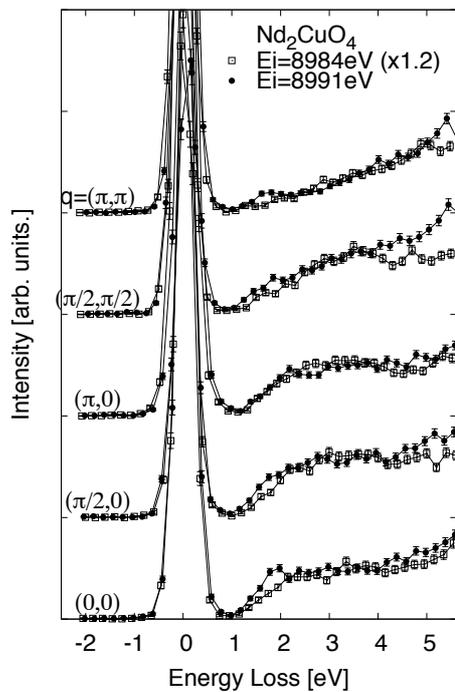


図 3: 2つの入射エネルギーの比較。

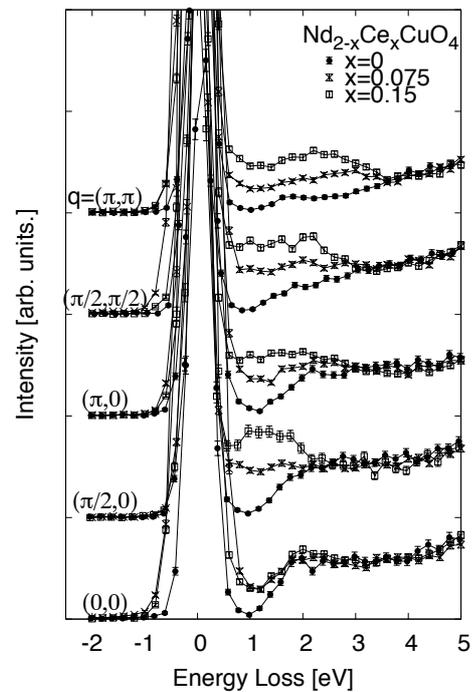


図 4: ドーピング依存性。