

X線レーザーを用いた強相関系の2ホール分光

並河一道

東京学芸大学、日本原子力研究開発機構、CREST

X線発光分光は内殻に空孔を生成した後につづいて発生するX線スペクトルを観察して価電子の状態に関する知見を得る手法である。これは価電子帯の状態密度を求めることのできる固体物理の有力な手法のひとつである。この手法は遷移金属酸化物や銅酸化物高温超伝導体などの研究に利用されている。

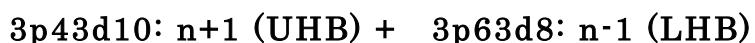
X線による励起では通常内殻に1ホールが生成されるが、高いエネルギーのX線や電子衝撃による励起では2ホールが生成される場合もある。これらの場合の2ホール生成は光電子によるクーロン相互作用やオージェー過程によるので、得られるスペクトルの解釈は複雑になる。それゆえ、X線発光分光は問題の原子の束縛エネルギーに近い低エネルギーのX線を用いてスペクタターホールの生成を抑制して行うのが通例である。

他方、ボース縮退度（コヒーレント体積に含まれる光子の数）が極めて高いX線ビームの場合には低エネルギーのX線でも電磁的相互作用で2ホールが高い確率で生成される。この場合、2つのホールがどの内殻軌道に生成されるかによって内殻2ホール状態のエネルギーは異なる値をとり、X線発光スペクトルはいくつから分離する。これらのスペクトルの分離の程度から原子内殻の電子相関のエネルギーを知ることができる。また、これらのスペクトルは1重項2ホールと3重項2ホールへの帰属が明確に決められるので、これらのスペクトルの強さから3d-3p電子間の交換相互作用に関する知見がえられる。さらに銅酸化物高温超電導体の場合、以下のようにX線発光の終状態では隣接する格子にZR1重項とd¹⁰状態（3pにスペクタターホールのある）の対が生成されるので、これらの状態に関する知見もえられる。これらの情報は1ホールによる発光スペクトルからは得られない知見である。

1. T-hole created in 3p state



2. Charge transfer take place from neighboring cell



3. Fluorescent X-ray emission takes place 3p53d9 + ZR s-hole in 3d-state

プラズマ基盤の X 線レーザーは波長が 13.9nm で 20 分に 1 ショットの単一エネルギー単パルス光源ではあるものの、パルス幅が数ピコ秒、発散角が 0.5mrad、エネルギー幅が 10^{-4} の 1 次コヒーレントな（縦モードは 10 度の）SASE モード光源でボース縮退度は 10^{10} 度を期待できる。この場合、2 ホール生成確立は 1 ホール生成確立の 10^{-3} 度を期待できる。現在、日本原子力研究開発機構関西光科学研究所に 2 ホール分光実験装置を立ち上げている。加速器技術とレーザー技術の利用による X 線光源の発展は著しく、プラズマ基盤の X 線光源にも第二世代の光源が出現しつつある。フランスの ENSTA では次のようなスペックで、TiS レーザーを用いてプラズマをガスターゲットに生成し X 線レーザーの繰り返しを 10 Hz にまで高めることに成功している。このような光源の利用が進めば、2 ホール分光の展開が期待できる。

Pump

Pulse width, spectrum: 20ps, $\Delta l/l \sim 5 \times 10^{-3}$ (Seed)

Pump energy: 1J

IR + HHG(Gas) + Troidal M + XRL amp

XRL

Wave length : 41.8nm(Xe^{+8}), 31.8nm (Kr^{+8})

Divergence: 1mrad

Spectrum: $\Delta l/l \sim 5 \times 10^{-6}$

Energy: Several μJ

Pulse width: 2ps

Next step

XRL wave length 10nm (Ar^{+8}), pump energy: 2~4J

FEL やプラズマ X 線などの新しい光源の開発が進んでいるが、いずれの光源開発プロジェクトの推進者にも共通の問題意識は（単分子構造解析とかホットマテリアルとか科学反応過程の時間分析などといったプレゼンテーション用のテーマあるものの）、新しい（光源の特性を生かした）具体的研究課題が見つかることにあるので、X 線非弾性散乱による物性の研究がこのような課題の一つとなることを期待したい。