

最近の研究から

コンプトン散乱と Fermiology

塩谷 亘弘、松本 勲、河田 洋

物質構造科学研究所 放射光研究施設

Compton Scattering and Fermiology

Nobuhiro SHIOTANI, Isao MATSUMOTO and Hiroshi KAWATA

Photon Factory, Institute of Materials Structure Science

1. はじめに

コンプトン散乱は光の粒子性を実証した実験として高等学校の物理の教科書にすらかなり詳しく記述されている。また固体内電子が Fermi-Dirac 統計に従う自由電子気体であることを実験的に初めて明らかにしたということでも固体の電子構造の研究手段としては大変由緒ある手段のひとつである。不幸にして、非弾性散乱の宿命である散乱断面積の小ささ故に、手に入れられる単色光のエネルギーと強度と散乱光のエネルギー分光に関して技術上の難しい問題があり、デビューの華々しさと比べると以降放射光が利用可能になる 1980 年代までは電子物性の研究手段としてはマイナーな地位に甘んじなければならなかった。1980 年 Loupiau and Petiau[1] が LURE-DCI で初めて放射光を利用して高分解能コンプトンプロファイルの測定に成功し、これを契機にコンプトン散乱が持つユニークな特性が見直されるようになった。しかし、コンプトン散乱の実験は高エネルギー且つハイフラックスのビームラインを必要とするため、どこの放射光施設でもコンプトン散乱の実験が出来るわけではなく、現在でも PF-AR, ESRF, SPring-8 以外ではほとんど行われていない。PF でのコンプトン散乱の利用は BL-14C での予備実験の後、Yamamoto-Kitamura の楕円偏光マルチポールウイグラー (EMPW) [2] が設置された AR-NE1 で本格的に開始された。以降、PF-AR はこの分野では世界のリーダー役を果たし続けている。

コンプトン散乱は、使われるスペクトロメーターとそこから得られる情報から、高分解コンプトン散乱、磁気コンプトン散乱、X-eX と呼ばれる 3 種類のスペクトロスコピーに分けられる。それぞれが他の実験手段では得られない情報を提供するが、ここでは、高分解コンプトン散乱に話を限り、最近の metallurgical な話題、すなわち不規則合金に出現する短距離秩序、Fermi 面の形状、 $\epsilon(\mathbf{q})$ (wave vector dependent dielectric function) という 3 つのキーワードをつなぐ話を書くことにしたい。

2. 基礎的關係式

コンプトン散乱では、単色の X 線を調べるべき電子系に入射し、電子によって散乱された X 線のエネルギーを散乱方向を固定して測定する。散乱断面積は以下のように書ける。

$$d^2\sigma/d\Omega d\omega_f = F(\omega_i, \omega_f, \mathbf{k}_i, \mathbf{k}_f, \theta, p_z) J(p_z), \quad (1)$$

ここで、 ω_i と ω_f は入射 X 線と散乱 X 線のエネルギー、 \mathbf{k}_i と \mathbf{k}_f は入射 X 線と散乱 X 線の波数ベクトル、 θ は散乱角、z 軸は散乱ベクトルの方向に取り、 p_z は散乱に関与する電子の運動量 \mathbf{p} の z 成分、関数 F の具体的な形は Ribberfors[3] によって与えられている。 $J(p_z)$ はコンプトンプロファイルと呼ばれ、電子系の基底状態の運動量密度分布 $n(\mathbf{p})$ を z 軸に投影したものである。即ち、

$$J(p_z) = \iint n(\mathbf{p}) dp_x dp_y, \quad (2)$$

電子系が Fermi 面を持つ場合には、 $n(\mathbf{p})$ には Fermi momentum で break が現れる。この事情は $n(\mathbf{p})$ をバンド理論の枠内で書くとよく理解できる。

$$n(\mathbf{p}) = (2\pi)^{-3} \sum_{b, \mathbf{k}} \left| \int \varphi_{b, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} \right|^2, \quad (3)$$

ここで、b は band index, \mathbf{k} は電子の還元波数ベクトル、 $\varphi_{b, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$ は電子の波動関数である。右辺の和は電子によって占められている全ての状態について行う。したがって、この和は Fermi エネルギーまでのバンドで、Fermi 波数 k_f で打ち切られるために $n(\mathbf{p})$ に break が現れる。単純な構造の Fermi 面の場合にはこの break をたどることによって Fermi 面を描くことが出来る。複雑な構造の Fermi 面の場合には、(3) で表現された $n(\mathbf{p})$ が持つ非常に有用で面白い性質を利用する。

$$\sum_{\mathbf{G}} n(\mathbf{p} + \mathbf{G}) = C \sum_{\mathbf{G}} \sum_{\mathbf{b}, \mathbf{k}}^{\text{occ}} \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{p} + \mathbf{G}}, \quad (4)$$

ここで、 \mathbf{G} は逆格子ベクトル、 C は定数である。 $\sum_{\mathbf{b}, \mathbf{k}}^{\text{occ}}$

は電子によって占められている状態に付いてのみ行う。上式は $n(\mathbf{p})$ を全ての逆格子ベクトルだけずらせたものをつくり、それらを加え合わせると \mathbf{k} -空間の occupation function になることを示している。LCW 畳み込み定理 [4] と呼ばれている。(4) はもし $n(\mathbf{p})$ を実験から知ることが出来れば、そこから \mathbf{k} -空間の occupation function を求めることが出来る、すなわち Fermi 面を描くことが出来ることを示している。しかし、実験から得られるのは (2) が示すように $n(\mathbf{p})$ を二つの運動量成分について積分したものであるから、この積分を解かなければならない。そのためには以下のような再構成法を用いる [5, 6]。

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}) = \int n(\mathbf{p}) \exp(-i\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}, \quad (5)$$

を定義すると、

$$\mathbf{B}(0,0,z) = \int J(p_z) \exp(-ip_z z) dp_z, \quad (6)$$

の関係を得るので、 $J(p_z)$ を多数の結晶方位に沿って測定し、内挿することによって \mathbf{B} -関数の値を \mathbf{r} -空間全域で求め、(5) にしたがって逆変換を行うと、 $n(\mathbf{p})$ を求めることが出来る。(4) にしたがって occupation function を求め、そこにある break の位置から \mathbf{k}_f を決める。 \mathbf{k} -空間全域にわたって \mathbf{k}_f を求めれば Fermi 面が描ける。コンプトン散乱は電子の平均自由行程の長短に依存しない実験手段であるから不規則系の Fermi 面を観測するのに非常に有用である。

電子系の wave vector dependent dielectric function は RPA 近似の枠内で以下のように与えられている。

$$\varepsilon(\mathbf{q}) = 1 + \frac{4\pi e^2}{q^2} \sum_{\mathbf{k}} \frac{f(\mathbf{k}) - f(\mathbf{k} + \mathbf{q})}{E(\mathbf{k} + \mathbf{q}) - E(\mathbf{k})}, \quad (7)$$

ここで f は Fermi-Dirac の分布関数、 $E(\mathbf{k})$ は状態 \mathbf{k} の電子のエネルギーである。 $\varepsilon(\mathbf{q})$ は、例えば、点電荷の screening 現象、phonon dispersion curve に現れる Kohn anomaly、右辺第二項は static electron polarizability と呼ばれ、特に \mathbf{k} についての和の部分は Cr の spin density wave、希土類金属・合金の磁気秩序に関係する RKKY spin-spin interaction など、いろいろの秩序化現象の説明に登場する重要なものである。もし Fermi 面が特別な幾何学的構造をしている場合、すなわち Fermi 面の一部が相対する平行(あるいは平行に非常に近い)平面を構成し、その平行平面が \mathbf{Q} だけ隔たっているとす。これを Fermi 面のネスティング (nesting) と呼び、 \mathbf{Q} をネスティングベクトルと呼ぶ。このような場合には (7) の右辺の \mathbf{k} の和が Fermi 面の平

行平面部分にくると singular になる。したがって、 $\varepsilon(\mathbf{q})$ は $\mathbf{q} = \mathbf{Q}$ で singular になり、電子系には \mathbf{Q} を波数ベクトルとするいろいろの現象が現れる。その現象のひとつがここで取り上げる不規則合金に出現する短距離秩序である。A-B 合金における短距離秩序パラメータ $\alpha(\mathbf{q})$ は、見通しをよくするために少々荒っぽい単純化をして話を進めると (詳しくは文献 7-10 を参照)、

$$\alpha(\mathbf{q}) = \frac{1}{1 - 2m_A m_B \beta W(\mathbf{q})}, \quad (8)$$

ここで、 m_A と m_B は A 原子と B 原子の原子濃度、 β は $(k_B T)^{-1}$ である。 $W(\mathbf{q}) = V(\mathbf{q}) / \varepsilon(\mathbf{q})$ 、 $V(\mathbf{q})$ は pair interaction potential $V(\mathbf{r}) = V^{AB}(\mathbf{r}) - \{V^{AA}(\mathbf{r}) + V^{BB}(\mathbf{r})\}/2$ をフーリエ変換したもの、ここで $V^{AA(B)}(\mathbf{r})$ は A 原子から \mathbf{r} の位置に A(B) 原子があるときの相互作用ポテンシャルを表す。短距離秩序の出現に伴う X 線や電子線回折にあらわれる散漫散乱ピーク強度は $\alpha(\mathbf{q})$ に比例する。 $\alpha(\mathbf{q})$ は $W(\mathbf{q})$ が最小のとき、すなわち $\varepsilon(\mathbf{q})$ が上で述べた条件で singular になるときである。Fermi 面の幾何学的構造が Γ 点を対称点とする平行平面を持つ場合には $\mathbf{Q} = 2\mathbf{k}_f$ の位置に散漫散乱ピークが出現することになる。

不規則合金系で短距離秩序が観測されることでよく知られているものに Cu 合金がある。我々は散漫散乱ピークが [110] 逆格子点の周りに出現することが確認されている Cu-27.5at%Pd 合金 [11] と Cu-15.8at%Al 合金 [12] についてコンプトンプロファイルを測定し、Fermi 面を描き、確かにこれらの合金の Fermi 面は Γ -K 軸 ([110] 方向) に垂直な平行平面 (Cu-Pd) あるいはほぼ平行な平面 (Cu-Al) があることをはじめて実験的に示すことが出来た。

3. 結果

Fig. 1 はコンプトンプロファイルを測定した方位を示す。二つの合金それぞれについて 28 方位に沿ったプロファイル測定した (スペクトロメーターについては文献 [13] を、データ処理と再構成については文献 [14] を参照)。なお、比較のために Cu についても同様の測定を行った。これらのプロファイルから (5) と (6) を使って $n(\mathbf{p})$ を求めた。Cu-27.5at%Pd 合金も Cu-15.8at%Al 合金も単純な構造の Fermi 面であることが予想されるから、ここでは $n(\mathbf{p})$ に現れた break から \mathbf{k}_f を求めることとした。Fig. 2 に Cu-27.5at%Pd の (100) 面上の運動量密度分布を等高線図で示す。Fig. 3 はその断面 $n(p_x, p_y=0, p_z=0)$ 、 p_x は [100] 軸上、及びその p_x に関する微分を示す。Break の位置は微係数が最小の位置 (negative peak position) とする。このようにして求めた Fermi 面の断面を Fig. 4 に示す。Cu と二つの合金では格子定数が異なるために第一 Brillouin zone の大きさも異なるが、ここではそれぞれの Fermi 面の寸法をそれぞれの第一 Brillouin zone の大きさで規格化して、一枚の図にしてある。ここに示したコンプトン散乱から得られた Cu の Fermi 面の断面の形状と寸法はすでに報告され

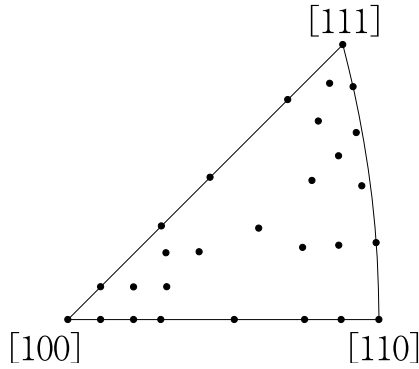


Figure 1 The directions along which the Compton profiles of pure Cu, Cu-27.5at%Pd and Cu-15.8at%Al alloys are measured are represented by the full circles in the irreducible orientation triangle of cubic symmetry.

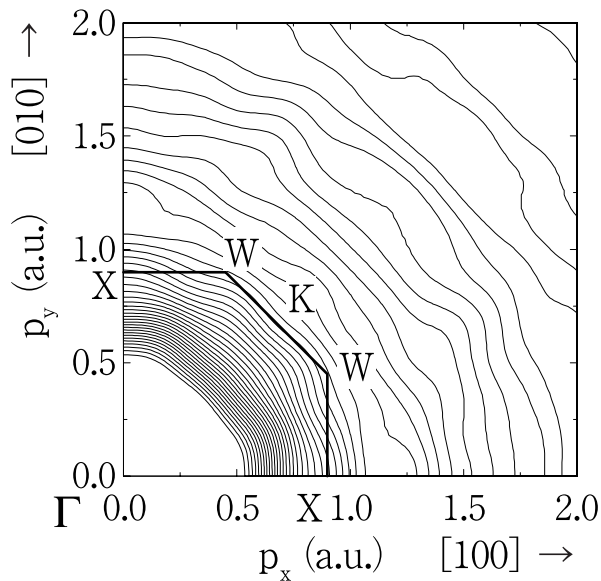


Figure 2 The contour map of the reconstructed momentum density of Cu-27.5at%Pd disordered phase on the (100) plane.

ている dHvA 効果などから決められた形状と寸法に非常によく一致している。このことからコンプトン散乱が Fermi 面の観測手段として十分に信頼できるものであると言える。Cu-27.5at%Pd では明らかに $\Gamma - K$ 軸 ([110] 方向) に垂直な平行平面が存在する。Cu-15.8at%Al では Cu-Pd のように明確ではないが、 $\Gamma - K$ 軸に垂直な面が僅かな領域ではあるが平面に近づいている。確認のためコンプトンプロファイルの測定終了後、Cu-Pd 試料は X 線回折で、Cu-Al 試料は電子線回折で [110] 逆格子点の周りに 4 つの散漫散乱ピークがあることを確認した。散漫散乱ピーク位置 Q はコンプトン散乱から決定した Fermi 面から求めた [110] 方向の $2k_f$ の大きさと定量的に一致した。定性的ではあるが、[110] 逆格子点の周りに現れる散漫散乱ピークの強度は Cu-Pd の方が Cu-Al よりもずっと大きいことが実測された。これは平行平面領域の面積の違いによる $\epsilon(\mathbf{q})$ の singularity の強さの違いとして説明することが出来る。したがって、不規則合金における短距離秩序の出現のひと

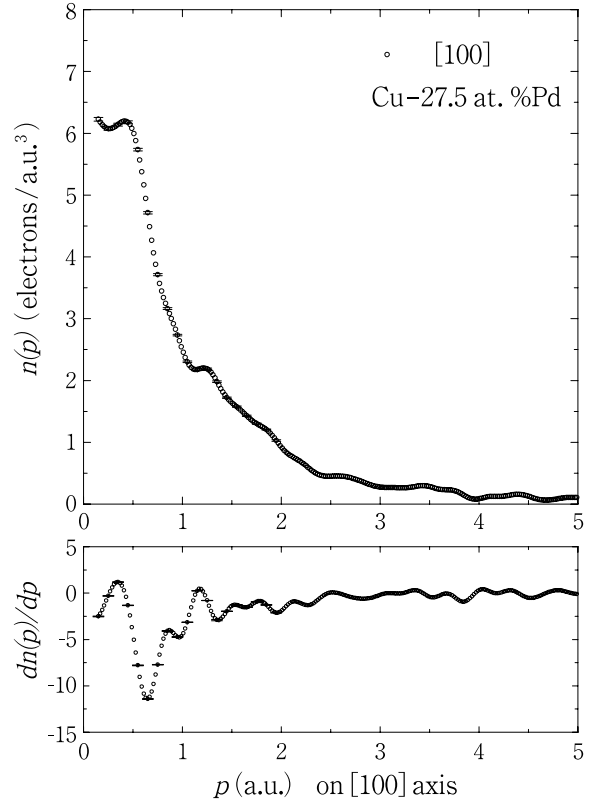


Figure 3 Momentum density of Cu-27.5at%Pd (upper frame) and its first derivatives (lower frame) on the [100] axis.

つのメカニズムとして $\epsilon(\mathbf{q})$ を介した Fermi 面の形状であることが明らかになった。

しかし、(7) の $\epsilon(\mathbf{q})$ は Random Phase Approximation (RPA) から導かれたものであり、不規則性による電子散乱から来る Fermi 面のぼけや電子相関効果による Fermi 面のぼけなどは考慮されていない。これらを取りこんだときにここで記したような単純な議論が成立するかどうかは今後の課題である。Fig. 5 に LCW 畳み込み定理を使って求めた Fermi 面全体を示す。一原子あたりの電子数の増減によってネックが消長する様子がよく出ている。

実は、引用文献 [11,12] では、これらの合金系については Fermi 面のネスティングがあると仮定して (当時は合金の Fermi 面を観測する手段は無かったから仮定することは当然のことであるが)、[110] 方向の k_f の大きさを散漫散乱ピーク位置から決めることを目的としていた。本研究は初めてこれらの不規則合金の Fermi 面を観測しその仮定が正しいことを示した点で意義がある。

4. あとがき

これらの研究は PF-AR が改修され、放射光専用リングになる前に行ったものであり、合計 84 本のプロファイルの測定と処理にはかなりの労力と時間を必要とした。最近中性子線回折で発見された Pd 合金系の短距離秩序 [15] も Fermi 面の幾何学的構造 (ネスティング) に起因していると考え、Pd 合金系の Fermi 面の観測の手始めとして、本年 5 月、PF-AR 改修・専用化後としては最初の実験として、

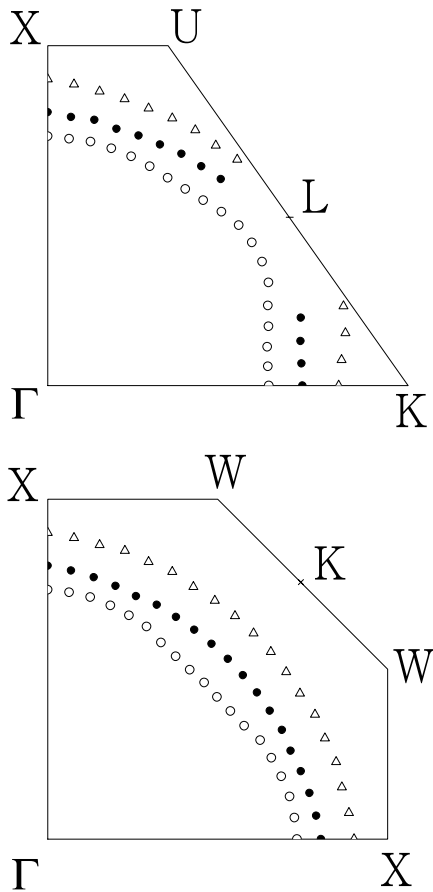


Figure 4 The Fermi radii of pure Cu (full circles), Cu-27.5at%Pd (open circles) and Cu-15.8at%Al (triangles) on the Γ XULK plane (upper) and the Γ XWK plane (lower). They are normalized by the Brillouin zone dimension.

Pdについてコンプトンプロファイルを測定した。改修によって桁違いにビーム寿命が延び且つ安定になり、また専用化によって、時間当たりの使える photon 数は以前と比べると一桁程度改善されていると体感した。Fermi 面のネスティングに起因するさまざまな秩序化現象の多くは合金において観測される。合金は高分解能コンプトン散乱が得意とする対象である。コンプトン散乱にとっては新生 AR がより多様な物質を選ぶことを可能にし、測定の時間短縮と一層の分解能向上を可能にするものと期待している。

最後に、この研究は J. Kwiatkowska, F. Maniawski, S. Kaprzyk, A. Bansil らとの共同研究の成果であり、Cu-Al の結果は未発表のもので、ここに発表前に引用させていただいたことをこれらの共同研究者に感謝する。

引用文献

[1] G. Louprias and J. Petiau, *J. Physique* **41**, 265(1980).
 [2] S. Yamamoto and H. Kitamura, *Jpn. J. Appl. Phys.* **26**, L1613(1987).
 [3] R. Ribberfors, *Phys. Rev.*, **B12**, 3136(1975).
 [4] D. G. Lock, V. H. C. Crisp, and R. N. West, *J. Phys. F: Met. Phys.*, **3**, 561(1973).
 [5] R. Suzuki, M. Osawa, S. Tanigawa, M. Matsumoto, and N. Shiotani, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **58**, 3251(1989).
 [6] Y. Tanaka, Y. Sakurai, A. T. Stewart, N. Shiotani, P. E. Mijnarends, S. Kaprzyk, and A. Bansil, *Phys. Rev.* **B63**, 045120 (2001).
 [7] P. C. Clapp and S. C. Moss, *Phys. Rev.*, **142**, 418 (1966), *ibid* 171,

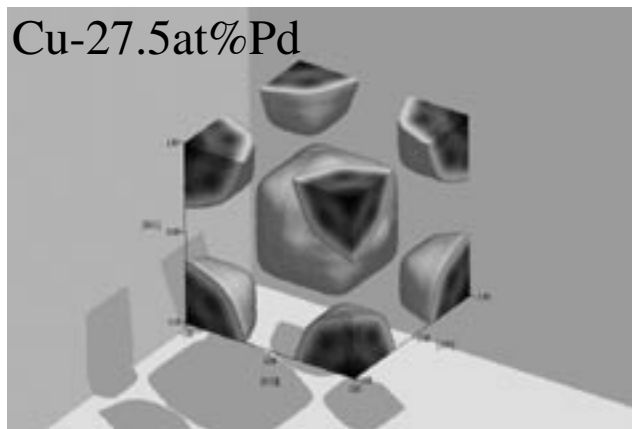
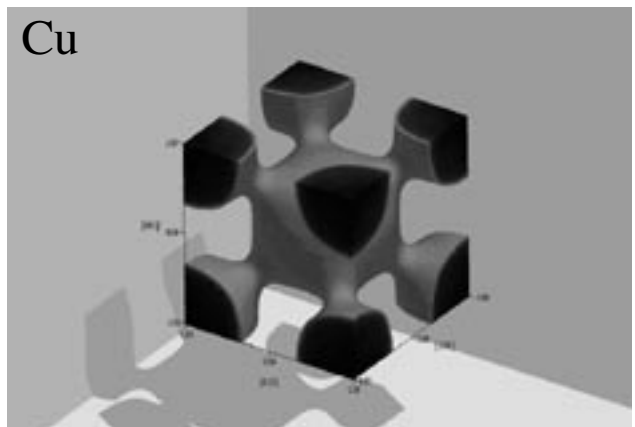
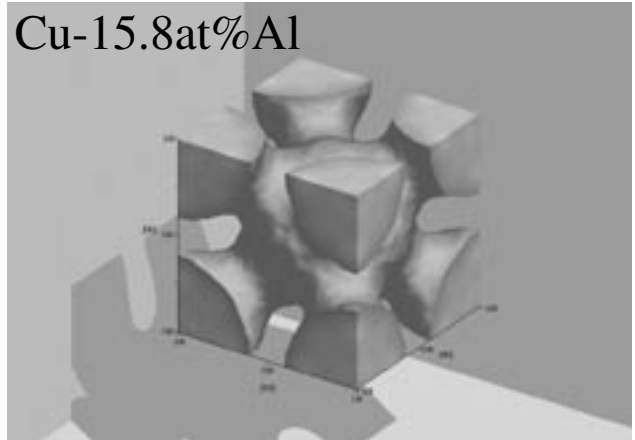


Figure 5 The Fermi surface of pure Cu, Cu-27.5at%Pd and Cu-15.8at%Al.

754 (1968).
 [8] S. C. Moss and P. C. Clapp, *Phys. Rev.*, **171**, 764 (1968).
 [9] S.C. Moss, *Phys. Rev. Letters*, **22**, 1108 (1969).
 [10] B. L. Gyorffy and G. M. Stocks, *Phys. Rev. Letters* **50**, 374 (1983).
 [11] K. Ohshima and D. Watanabe, *Acta Cryst. A***29**, 520 (1973).
 [12] R. O. Scattergood, S. C. Moss and M. B. Bever, *Acta Met.* **18**, 1087 (1970).
 [13] Y. Sakurai, M. Ito, T. Urai, Y. Tanaka, N. Sakai, T. Iwazumi, H. Kawata, M. Ando, and N. Shiotani, *Rev. Sci. Instrum.*, **63**, 1190 (1992).
 [14] I. Matsumoto, H. Kawata and N. Shiotani, *Phys. Rev.* **B64**, 195132 (2001).
 [15] 角田頼彦、*日本結晶学会誌*, **42**, 413 (2000).

著者紹介

塩谷 亘弘 Nobuhiro SHIOTANI

物質構造科学研究所 協力研究員

Phone 0298-64-5629

e-mail : shiotani@post.kek.jp

略歴：1962年東京大学工学部卒、理化学研究所入所、1989年東京水産大学教授、2002年物質構造科学研究所協力研究員。工学博士。

最近の研究：コンプトン散乱と Fermiology。

松本 勲 Isao MATSUMOTO

物質構造科学研究所 研究機関研究員

Phone 0298-64-5639

e-mail : imatsu@post.kek.jp

略歴：略歴：2000年総合研究大学院大学卒、物質構造科学研究所 研究機関研究員。理学博士。

最近の研究：金属合金のコンプトン散乱と Fermi 面形状。

河田 洋 Hiroshi KAWATA

物質構造科学研究所 教授

Phone 0298-64-6024

e-mail : hiroshi.kawata@kek.jp

略歴：1982年東京工業大学大学院 理学博士。

最近の研究：コンプトン散乱とその反跳電子との同時測定法の開発。