

コンプトン散乱によるスピン・電子運動量密度研究の将来像

Prospects for the Research of Spin and Electron Momentum Densities Studied by Compton Scattering Experiments

スピン・電子運動量密度研究会

Spin and Electron Momentum Densities Research Group

小泉昭久, 兵庫県立大学

櫻井 浩, 群馬大学

Akihisa Koizumi, *University of Hyogo*

Hiroshi Sakurai, *Gunma University*

過去十年間において、コンプトン散乱によるスピン・電子運動量密度の測定および解析技術が飛躍的に進歩した。これにより、電子占有軌道とフェルミ面の直接的描画手法が確立し、さらに、他の手法では得難い分子凝集系の熱力学的物性量の導出が可能になった。このような状況を踏まえ、SPring-8 において期待されるコンプトン散乱を用いたスピン・電子運動量密度研究のこれからの十年を展望する。

1. はじめに

コンプトン散乱実験によって得られる情報と、その実験的特長について説明しておきたい。コンプトン散乱実験によって測定されるコンプトンプロファイル(CP)は、電子の運動量密度、即ち、運動量表示の波動関数を二乗したものを、散乱ベクトルに対して垂直な面で二重積分した量で表される。試料が強磁性体の場合には、入射 X 線として円偏光 X 線を用いることにより、磁性電子の運動量密度を反映した磁気コンプトンプロファイル(MCP)を測定することもできる。単結晶試料において複数の方向で測定を行えば、得られた CP や MCP に対して再構成解析を施すことにより、二次元あるいは三次元の運動量密度分布を求めることが可能である。

また、(磁気)コンプトン測定は、実験環境についての制約が少ないという特長を有する。具体的には、1) 低温から高温まで温度に関わらず測定可能、2) 高圧力下での測定が可能、3) 高磁場下での測定が可能、さらに試料についても、4) 物質の形態(固体、液体、気体)に関わらず測定可能、5) バルクの情報を得られる(バルク試料表面の影響を無視できる)などが挙げられる。したがって実験環境さえ整備すれば、あらゆる物質に対する複合極限環境下での測定が可能手法であると言える。

新しい物質や物理現象が見つかった場合、先ず、X線回折実験等により結晶構造や電子密度分布が調べられるが、運動量密度分布を得られるコンプトン散乱実験は、これらと相補的な役割を果たし、電子・軌道状態、即ち、バンド構造に由来するフェルミ面や、電子が局在している(分子)軌道の占有状態の研究に用いられてきた。これまでも、上記の特長を活かし、強相関係物質[1-3]、超伝導体[4]、磁性体および磁性薄膜[5,6]、液体・熔融金属[7]、水素吸蔵合金[8,9]等、様々な物質を対象にした研究が行われている。

2. 測定・解析技術発展の将来展望

(1) X線分光技術と試料環境： コンプトン散乱実験の特長をより有効に活用するためには、運動量分解能と測定効率の向上が不可欠である。現在の運動量分解能は、 $0.1\sim 0.15$ atomic units (a.u.: $e=m=\hbar=1, c\approx 137$ a.u.)であるが、これを一桁上げて ~ 0.01 a.u. にすることができれば、分子伝導体におけるフェルミ面と諸現象の相関の解明がなされると期待される。しかし、運動量分解能の向上に伴い、コーシャス型結晶分光系を利用している測定器の計測強度が低下するため、現状のウィグラー光源でなく、新たなアンジュレータ光源とスキニング型X線分光技術を組み合わせた新しいスペクトロメータの開発が必要であろう。さらに試料環境として、He 温度以下の冷却装置、高温装置、高磁場発生用の超伝導マグネット、高圧装置等を整備すれば、多様な物性の変化に対応した二次元あるいは三次元の運動量密度分布や電子占有数密度分布を得ることが可能となり、これを通してフェルミ面の構造を視覚的に捉えることができるものと考えられる[3]。

(2) 時間分解測定： コンプトン散乱はインパルスの非干渉性散乱のため、超高速で変化する動的過程下にある電子・軌道状態のスナップショット観測に最適である。現状は静的環境条件下の時間平均の電子・軌道状態が測定対象であるが、非平衡条件下での電子・軌道状態、高周波電磁場下でのスピン・電子軌道の応答、相拡散現象など、マクロな現象を原子軌道やスピンレベルの変化としてとらえる測定が展開され得る。測定対象の時間スケールによって、異なる測定システムを採用することになるが、ps \sim ns の現象ではポンプ・プローブ法、ns \sim ms ではリストモード法を検討している。

(3) コンプトン散乱反跳電子の利用 (X線光子と反跳電子のコインシデンス測定)： コンプトン散乱反跳電子の反跳方向とその運動量には電子の初期状態の情報が残されている。その情報を測定し利用することは今後十年間のひとつのテーマである。具体的な利用として、固体中での反跳電子の短い透過距離を利用した試料表面近傍のスピン・電子軌道状態研究への発展が期待される。

3. 将来的な利用研究

上記のような技術的進展がみられた場合に期待される新しい利用研究について考えてみたい。

(1) 強相関電子系と量子相転移： 量子臨界点近傍で出現する現象を理解するうえで、電子軌道の量子状態とフェルミ面の決定は重要である。強相関系試料、超伝導物質の電子・軌道状態の研究は現在でも行われているが、興味深い現象は He 温度以下で観測される場合が多く、超低温での測定や高磁場下での測定が可能になれば、量子臨界現象や超伝導転移温度の前後における電子・軌道状態とフェルミ面についての詳細な研究をおこなうことができるであろう。

(2) 有機磁性体・伝導体： 有機磁性体・伝導体を対象にした研究は、これまでのところ、あまり行われていない。これらにおいても磁気転移温度等が低く、現状の実験環境では測定可能な試料が限られているからである。コンプトン散乱実験では、入射X線のエネルギーが高く、光電効果の断面積が小さいため、試料に与えるダメージは小さいものと考えられる。従って、超低温の実験環境が実現すれば、研究分野の裾野を広げることができるであろう。

(3) 液体： 液体や熔融金属の研究は、これから進展が期待される分野である。これまでも、水、アルコール、熔融金属・半導体の高分解能コンプトン散乱測定が行なわれており、水素結合や共有結合状態の研究が始まったばかりである。最近、コンプトン散乱実験と比熱測定の結果から、他の手段では得難い、振動比熱と配置比熱の分離が可能になった[7]。応用上重要な、水および水溶液のナノ・オーダーでの構造と熱的特性の相関を明らかにする研究が今後展開されるものと期待される。

(4) 気体 (ガス相の化学)： 気体を研究対象にしたコンプトン散乱実験は、古くには行われていた時期があるが、現在では、あまり行われていないようである。しかし、高エネルギーX線を用いる利点を活かせば、新たな応用研究が期待できる。たとえば、駆動しているエンジン内部のガスを、コンプトン散乱の時分割測定(時間分解能： $\sim\mu\text{s}$)により観測し、燃焼過程の研究に利用することなどが考えられる。

また近年、大気圧あるいは高圧下でのプラズマ状態が、プロセス応用と基礎研究の点で注目を集めている。大気圧、高圧下でのプラズマ電子状態の研究への応用が期待できる。

[1] A. Koizumi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **86**, 5589(2001).

[2] A. Koizumi *et al.*, Phys. Rev. B **74**, 012408(2006).

[3] S. B. Dugdale *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 046406 (2006).

[4] J. Laverock *et al.*, Phys. Rev. B **76**, 052509(2007).

[5] H. Sakurai *et al.*, Appl. Phys. Lett. **88**, 062507(2006).

[6] H. Sakurai *et al.*, J. Appl. Phys. **102**, 013902(2007).

[7] K. Nygård *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 197401 (2007).

[8] S. Mizusaki *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **44**, 3939(2005).

[9] S. Mizusaki *et al.*, Phys. Rev. B **73**, 113101(2006).