

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 11 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540335

研究課題名(和文)遷移金属化合物の電荷・スピン励起と共鳴非弾性X線散乱の理論

研究課題名(英文)Theoretical Study of Charge and Spin Excitations and Resonant Inelastic X-ray Scattering on Transition Metal Compounds

研究代表者

筒井 健二 (Tsutsui, Kenji)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究主幹

研究者番号：80291011

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：銅酸化物超伝導物質等の遷移金属化合物に対する共鳴非弾性X線散乱の理論を発展させ、散乱スペクトルの特徴を理論的に明らかにした。特に銅酸化物におけるL吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルのキャリアによる違いを理論的に明らかにした。そして銅酸化物の不純物置換効果に関連して特徴的なキャリア濃度依存性を不純物に対する共鳴非弾性X線散乱スペクトルが示すことを予見した。また、鉄砒素系超伝導体母物質の非弾性X線散乱スペクトルや反強磁性クロム金属のL吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルを予見し、今後の実験に対する指針を示した。

研究成果の概要(英文)：We have developed the theory of the Resonant Inelastic X-ray Scattering (RIXS) on transition metal compounds such as high-Tc cuprates. We have demonstrated theoretically the difference of the Cu L-edge RIXS between hole- and electron-doped cuprates. We have shown a characteristic dependence on hole concentration in the Ni K-edge RIXS on Ni impurity in cuprates. We have also discussed theoretically the inelastic x-ray scattering on iron pnictides and the Cr L-edge RIXS on Chromium.

研究分野：数物系科学

キーワード：共鳴非弾性X線散乱 遷移金属化合物 数値的厳密対角化法

### 1. 研究開始当初の背景

銅酸化物高温超伝導体等や鉄砒素系超伝導物質の遷移金属化合物に対する共鳴非弾性X線散乱の実験が世界中で精力的に行われている。波長が格子定数程度である遷移金属イオンのLやK吸収端のX線を用いることにより、散乱スペクトルの波数依存性から電子系の運動量変化を伴う励起の情報が得られることが可能になってきた。例えば銅酸化物高温超伝導物質に対する銅L吸収端共鳴非弾性X線散乱において、集団励起であるマグノン励起の観測が報告され、スピン励起を見る実験手段としての可能性が注目されている。また、共鳴散乱による散乱の元素選択性を用いて、K吸収端共鳴非弾性X線散乱を銅酸化物高温超伝導物質の不純物へ適応が行われ始めてきている。さらに鉄砒素系超伝導体など様々な系へこれら散乱実験を適用することで、それぞれ電子状態に対する新たな知見が得られることが期待される。一方で散乱過程の複雑さもあるため、こういった共鳴散乱スペクトルから電子状態の情報を引き出すための理論の構築がこれまで以上に必要不可欠となっている。

### 2. 研究の目的

本研究の目的は、様々な遷移金属化合物の電子状態の情報が共鳴非弾性X線散乱スペクトルにどのように現れるかを、これまで申請者が行ってきた大規模数値計算を発展させることで解明することである。特に以下の課題に関して散乱スペクトルの特徴を理論的に明らかにしていく。

- (1) 銅酸化物高温超伝導物質の電子及びホールドープ系に対する銅L吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトル
- (2) ニッケル不純物を含む銅酸化物におけるニッケルK吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルのホール濃度依存性
- (3) 鉄系超伝導体母物質の非弾性X線散乱スペクトル
- (4) 反強磁性クロム金属のクロムL吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトル

### 3. 研究の方法

注目するL吸収端共鳴散乱ではX線の吸収により内殻2p電子が3d軌道へ双極子遷移し、X線の放出時に3d電子が2p軌道へ遷移する。2p電子に強いスピン軌道相互作用が働いているためこの散乱過程で電子系のスピン励起も生じる。またK吸収端共鳴散乱では1s軌道と4p軌道間の遷移を伴ってX線の吸収・放出が生じ、その中間状態で1sコア・ホールのクーロン相互作用により3d電子系の励起が生じる。本研究ではこのような散乱過程及び電子状態を扱うために、有限クラスターの多体ハミルトニアン行列を数値的に取

り扱う数値的厳密対角化法と呼ばれる数値計算手法を用いる。この手法により電子状態に対する電子相関効果だけでなく散乱過程も正確に取り扱うことが可能になっている。

### 4. 研究成果

(1) 銅酸化物高温超伝導物質の電子及びホールドープ系に対する銅L吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトル

本課題では銅酸化物高温超伝導物質の銅L吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルに対し、キャリアの違いによるスペクトルの違いを理論的に明らかにした。図1はハバード模型のクラスター計算によるL吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルであるが、電荷励起に起因したスペクトル強度(赤)が電子ドープ系の場合に強くなることが明らかになった。より現実的な模型である銅3d軌道と酸素2p軌道からなるd-p模型に対する散乱スペクトルの計算でも同様の結果となった。コア・ホールによるクーロンポテンシャルの強度依存性にもキャリアによる特異な違いがあること等を示し、スペクトルの特徴の起源に対して散乱過程の中間状態が重要な役割を果たしていることを見いだした。これらの結果により、関連する実験結果を理解する上で新たな進展が期待される。

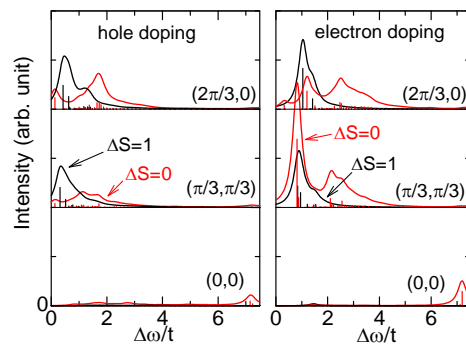


図1. 銅酸化物高温超伝導物質に対する銅L吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルの計算結果。右: ホールドープ系。左: 電子ドープ系。

(2) ニッケル不純物を含む銅酸化物の電子状態とニッケルK吸収端共鳴非弾性X線散乱のホール濃度依存性

本課題では銅酸化物高温超伝導物質におけるニッケル不純物置換効果を理論的に考察し、ニッケルK吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルの特徴のキャリア濃度依存性を予見した。銅酸化物高温超伝導体に共通に存在するCuO<sub>2</sub>面で超伝導が出現するが、銅イオンをニッケルイオン等に置換すると電子状態の特異な変化が生じることが知られてい

る。報告者らはこれまでに、注入されたホールがニッケルサイトに束縛されること、そしてその電子状態に起因した特徴的な励起が共鳴非弾性X線散乱スペクトルに現れることを理論的に明らかにしてきた。本課題では、さらにホールを注入した場合の電子状態に対する数値計算を行い、不純物効果のキャリア濃度依存性を考察した。その結果、ホールが束縛されたニッケルサイトと他のホールとは引力的な相互作用が働くことを理論的に示した。そして、これら電子状態に関係した特徴的なホール濃度依存性が散乱スペクトルに表れることを明らかにした(図2)。すなわちニッケル不純物濃度に対するホール濃度の大小でスペクトルの様子が変わることを見出し、この散乱実験によりニッケル不純物に対するホールの状態を観測できることを示した。

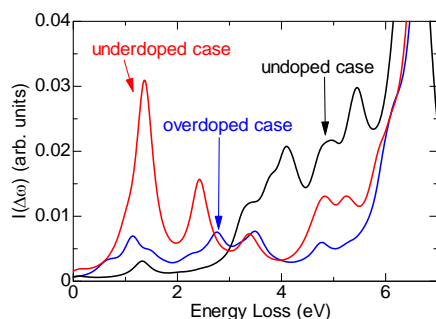


図2. ニッケル不純物を含む銅酸化物高温超伝導物質に対するニッケルK吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルの計算結果。黒：ホールが注入されていない場合。赤：ホールが注入され、それがニッケルサイトに局在した場合。青：さらにホールが注入された場合。

### (3) 鉄系超伝導母物質の非弾性X線散乱スペクトル

鉄系超伝導母物質は多軌道系反強磁性金属であり、スピン励起や電荷励起を知る上でそれらを担っている軌道の情報を知ることが重要となる。これまでに報告者らにより鉄系超伝導母物質における鉄L吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルを理論的に議論し、マグノン励起や軌道励起そしてそれらの複合励起の観測可能性を示してきた。一方で、非共鳴非弾性X線散乱においても、多極子遷移によるものと考えられる軌道励起がNiO等に対して観測された。そこで本課題では非共鳴X線散乱を鉄系超伝導母物質へ適応した場合のスペクトルの特徴を理論的に考察し、共鳴散乱による軌道励起との関係性を明らかにした。母物質の反強磁性金属の基底状態として、多軌道ハバード模型の反強磁性秩序を持つ平均場近似で得られる状態を用い、その状態に対する電荷や軌道の相関関数を含

んだ一般的な動的相関関数を乱雑位相近似で求めた。その結果、多極子遷移の効果が大きくなるブリルアン・ゾーンを選ぶことにより共鳴非弾性X線散乱スペクトルと同様な特定の軌道が関与するスペクトルが得られることが明らかとなった。この結果は、共鳴及び非共鳴非弾性X線散乱が、軌道の情報を得る為の相補的な実験手段となることを示しており、今後の進展が期待される。

### (4) 反強磁性クロム金属のクロムL端共鳴非弾性X線散乱スペクトルの理論計算

反強磁性金属である鉄系超伝導母物質と同様な電子状態を持つ系に反強磁性クロム金属がある。これらの系も本質的に多軌道系であり、中性子非弾性散乱により特異なマグノン励起が観測されている。L吸収端共鳴非弾性X線散乱によりそのようなスピン励起に関する新たな知見が得られると考えられる。そこで本課題では反強磁性クロム金属に対するクロムL吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルの特徴を予見した。鉄系超伝導母物質に対する共鳴非弾性X線散乱の計算と同様に、多軌道ハバード模型に対する乱雑位相近似及びX線散乱プロセスに関する高速衝突近似に基づいた計算を行った。その結果、散乱スペクトルは、中性子散乱の場合とは異なりマグノン励起だけでなく軌道間励起も同じエネルギー領域に現れ、後者のスペクトル強度が強くなることが明らかになった。この結果は今後の実験に対する指針となると考えられる。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 4件)

Kenji Tsutsui, Takami Tohyama, and Sadamichi Maekawa, "Theoretical Study of Electronic States and Excitation Spectra in Ni-Substituted Cuprates", JPS Conference Proceedings, 査読有, Vol. 3, 2014, 017008-1-6, DOI: 10.7566/JSPSC.3.017008

Koudai Sugimoto, Zhi Li, Eiji Kaneshita, Kenji Tsutsui, Takami Tohyama, "Spin Dynamics and Resonant Inelastic X-ray Scattering in Chromium with Commensurate Spin-Density Wave Order", Physical Review B, 査読有, Vol. 87, 2013, 134418-1-8, DOI: 10.1103/PhysRevB.87.134418

Koudai Sugimoto, Takami Tohyama, Eiji Kaneshita, Kenji Tsutsui, "Optical Conductivity of Antiferromagnetic

Metallic Chromium: Mean-field Calculation for the Multi-orbital Hubbard Model”, Journal of the Korean Physical Society, 査読有, Vol. 63, 2013, 632-635, DOI: 10.3938/jkps.63.632

Kenji Tsutsui, Takami Tohyama, Wataru Koshibae, and Sadamichi Maekawa, “Theoretical Study of Resonant Inelastic X-ray Scattering Spectrum in Nickelates”, Journal of Physics: Conference Series, 査読有, Vol. 400, 2012, 032105-1-4, DOI: 10.1088/1742-6596/400/3/032105

〔学会発表〕(計 15件)

筒井健二, 「Theoretical Study of L-edge Resonant Inelastic X-ray Scattering on High-Tc Cuprate Superconductors」, JAEA 放射光科学シンポジウム, 2015/3/16, 大型放射光施設 SPring-8 (兵庫県佐用郡).

筒井健二, 「銅酸化物高温超伝導物質に対するL端共鳴非弾性X線散乱のクラスター計算」, SPring-8理論研究会, 2014/9/12, 東京大学(東京都目黒区).

筒井健二, 森道康, 遠山貴巳, 「銅酸化物高温超伝導体のL端共鳴非弾性X線散乱に対する理論的研究」, 日本物理学会2014年秋季大会, 2014/9/10, 中部大学(愛知県春日井市).

筒井健二, 遠山貴巳, 森道康, G. Khaliullin, 「銅酸化物高温超伝導物質に対するL吸収端共鳴非弾性X線散乱の理論的研究」, 日本物理学会第69回年次大会, 2014/3/29, 東海大学(神奈川県平塚市).

筒井健二, 「鉄系超伝導体母物質における非弾性X線散乱の理論的研究」, SPRUC 拡大研究会・SPring-8 利用ワークショップ, 2014/2/1, 放射光施設 SPring-8 (兵庫県佐用郡).

筒井健二, 遠山貴巳, 森道康, G. Khaliullin, 「ハバード模型に対するL吸収端共鳴非弾性X線散乱のクラスター計算」, 日本物理学会2013年秋季大会, 2013/9/26, 徳島大学(徳島県徳島市).

Kenji Tsutsui, Takami Tohyama, and Sadamichi Maekawa, “Theoretical Study of Electronic States and Excitation Spectra in Ni-substituted Cuprates”, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems SCES’13, 2013/8/7, 東京大学(東京都目黒区).

兼下英司, 筒井健二, 遠山貴巳, 「鉄系超伝導体母物質のストライプ反強磁性状態における電子励起スペクトル」, 日本物理学会第68回年次大会, 2013/3/29, 広島大学(広島県東広島市).

遠山貴巳, 筒井健二, 「銅酸化物高温超伝導体に対するL吸収端共鳴非弾性X線散乱の理論」, 日本物理学会第68回年次大会, 2013/3/27, 広島大学(広島県東広島市).

筒井健二, 兼下英司, 遠山貴巳, 「鉄系超伝導体母物質における非弾性X線散乱による電子励起の理論的研究」, 日本物理学会第68回年次大会, 2013/3/26, 広島大学(広島県東広島市).

Kenji Tsutsui, “Theoretical Study of Electronic Structures and Resonant Inelastic X-ray Scattering Spectra in Ni-substituted Cuprates”, JAEA Synchrotron Radiation Research Symposium “Magnetism in Quantum Beam Science”, 2013/2/12, 放射光施設 SPring-8 (兵庫県佐用郡).

Kenji Tsutsui, Takami Tohyama, and Sadamichi Maekawa, “Theoretical Study of Electronic States and Resonant Inelastic X-ray Scattering in Ni-substituted Cuprates”, The 13th Japan-Korea-Taiwan Symposium on Strongly Correlated Electronic Systems, 2013/1/15, 大阪大学(大阪府豊中市).

Koudai Sugimoto, Takami Tohyama, Eiji Kaneshita, Kenji Tsutsui, “Modeling the Antiferromagnetic Metallic Cr in Multi-Orbital Hubbard Model”, The 19th International Conference on Magnetism (ICM2012) with Strongly Correlated Electron Systems (SCES), 2012/7/13, Busan(Korea).

杉本高大, 兼下英司, 筒井健二, 遠山貴巳, 「反強磁性Crのスピン・電荷励起とL端共鳴非弾性X線散乱」, 日本物理学会2012年秋季学会, 2012/9/18, 横浜国立大学(神奈川県横浜市).

筒井健二, 遠山貴巳, 前川禎通, 「Ni不純物を含む銅酸化物の電子状態と励起スペクトル」, 日本物理学会2012年秋季学会, 2012/9/20, 横浜国立大学(神奈川県横浜市).

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

筒井 健二 (TSUTSUI, Kenji)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・研究主幹  
研究者番号：80291011

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし