

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月 24日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540331

研究課題名（和文）共鳴非弾性X線散乱による遷移金属酸化物の電子励起の理論的研究

研究課題名（英文）Theoretical Study of Electronic Excitations via the Resonant Inelastic X-ray Scattering in Transition Metal Oxides

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・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹

研究者番号：80291011

研究成果の概要（和文）：銅酸化物高温超伝導物質等の強相関電子系の電子状態の特徴がどのように共鳴非弾性X線散乱スペクトルに現れるかを理論的に明らかにした。特に銅酸化物高温超伝導物質中のニッケル不純物付近で生じるホールの局在を、共鳴非弾性X線散乱により直接確認できることを理論的に示した。また、ニッケル酸化物や鉄系超伝導物質の散乱スペクトルの特徴を理論的に明らかにした。

研究成果の概要（英文）：We have demonstrated theoretically the property of the Resonant Inelastic X-ray Scattering Spectra on strongly correlated electron systems such as high-Tc cuprates. We have proposed a resonant inelastic x-ray scattering experiment for Ni K-edge to confirm hole binding around the Ni impurity. We have also clarified theoretically characteristic features of the scattering spectra on nickelates and iron pnictides.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：共鳴非弾性X線散乱，銅酸化物高温超伝導物質，数値的厳密対角化法

1. 研究開始当初の背景

遷移金属酸化物に対するK及びL吸収端共鳴非弾性散乱の実験が国内外で精力的に行われはじめている。この内殻励起を利用した散乱実験は、例えば国内では放射光施設Spring-8において銅酸化物やマンガン酸化物等に対して実験が行われはじめ、その実験手段及びそこから得られる実験データにめざましい進展がある。遷移金属イオンのK及

びL吸収端付近のX線の波長は格子定数程度であるため、散乱スペクトルにおけるX線の波数変化依存性が測定可能である。これは、これまでの高エネルギー分光でなされてきたような軌道のエネルギー準位を決定するといったことだけに限らず、系の集団励起や電子の遍歴性等の情報も共鳴非弾性散乱から引き出せることを意味する。そのため、散乱プロセスの複雑さや多体電子状態に対する取り扱いの困難があることから、これら

の系に対する散乱理論の構築が不可欠となっている。これまでに申請者は銅酸化物高温超伝導体に対する散乱スペクトルの特徴を理論的に明らかにし、銅酸化物の電子状態の情報が引き出せることを示した。また、実験グループとの共同研究により実験データの解析も行い、理論の妥当性も確かめてきており、実験指針の観点からもさらなる理論の発展が期待されている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、銅酸化物等の強相関電子系の電子状態の特徴がどのように共鳴非弾性X線散乱スペクトルに現れるかを、これまで行ってきた数値計算手法による理論をさらに発展させて解明することである。特に以下の課題に関して理論的に明らかにしていく。

- (1) 不純物を含む銅酸化物高温超伝導物質の電子状態と共鳴非弾性X線散乱の理論構築。
- (2) ニッケル酸化物の共鳴非弾性X線散乱スペクトルにおける励起状態の解明。
- (3) 鉄系超伝導体母物質のL吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルの予見。

3. 研究の方法

K吸収端共鳴非弾性X線散乱の散乱過程は、例えば銅酸化物の場合、入射X線の吸収により、銅1s軌道の内殻電子が銅4p軌道に励起され、再び1s軌道に戻ることで散乱X線が放出されるものである。その散乱過程の中間状態において、内殻1s軌道のホールと銅3d電子とのクーロン相互作用によって電子励起が生じる。電子励起は、入射及び散乱X線のエネルギー及び運動量変化として測定される。本研究では、このような散乱プロセスを扱うために数値的厳密対角化法と呼ばれる数値的手法を採用する。この厳密対角化法は、有限クラスターで定義された多体ハミルトニアンを数値的に厳密に扱う方法であり、強相関効果だけでなく散乱プロセスも正確に取り扱うことが可能となっている。

4. 研究成果

- (1) 不純物を含む銅酸化物高温超伝導物質の電子状態と共鳴非弾性X線散乱の理論：
銅酸化物高温超伝導体は、それらが共通に存在するCuO₂面で超伝導が発現する。このCuO₂面の銅イオンをニッケルイオンなど他の遷移金属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高温超伝導発見当初から知られていた。本課題では、銅の3d

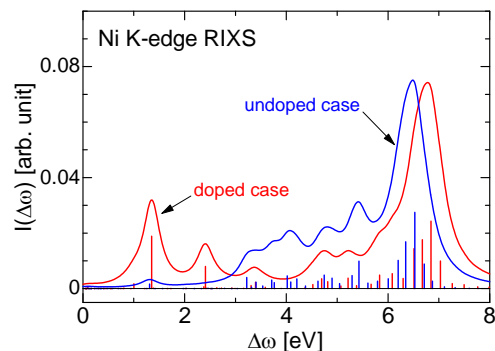


図 1. 銅酸化物高温超伝導物質中のニッケル不純物に対する共鳴非弾性X線散乱スペクトル。青線：銅酸化物高温超伝導物質にキャリアが注入されていない場合。赤線：キャリアが注入されている場合。

軌道と酸素の2p軌道を取り入れるd-p模型に基づいて、ニッケル不純物置換の電子状態に対する効果を数値的厳密対角化法により議論した。その結果、ニッケル不純物近傍にキャリアが強く局在することを理論的に初めて示した。そしてその束縛状態に対するニッケルK吸収端共鳴非弾性X線散乱スペクトルを理論的に予見し(図1)、この実験手法によってキャリアのニッケルサイト近傍での束縛状態が直接観測できることを提案した。また、実験グループとの共同研究を行い、不純物イオンの共鳴非弾性X線散乱スペクトルの観測に初めて成功し、不純物置換効果に対する新しい実験手段の可能性を示した。

- (2) ニッケル酸化物の共鳴非弾性X線散乱スペクトルにおける励起状態の理論：

La_{2-x}Sr_xNiO₄はホール・ドープしたスピン1の二次元反強磁性絶縁体であり、銅酸化物高温超伝導体の参照物質として注目され非常に多くの研究がなされてきている。光学伝導度ではx=0の時電荷移動型ギャップが観測され、ホール・ドープによってギャップ内にエネルギー的に広がったピークを持った吸収スペクトルが現れる。一方で、光学伝導度のような電子の励起を調べる新しい実験手段として共鳴非弾性X線散乱の実験が発展してきており、その物質に適応した実験も行われ始めている。特に電荷移動型ギャップを超える励起において銅酸化物のそれと比べて運動量依存性が非常に小さいことや、また、ドープした系では、ストライプ状態に関係していると考えられる特徴的なスペクトルがギャップ内に現れることが報告されている。これまで申請者は光学伝導度で現れるスペクトルが、低スピン状態と高スピン状態への励起があることを理論的に明らかにし、この実験の新たな指針を与えてきた。本研究では

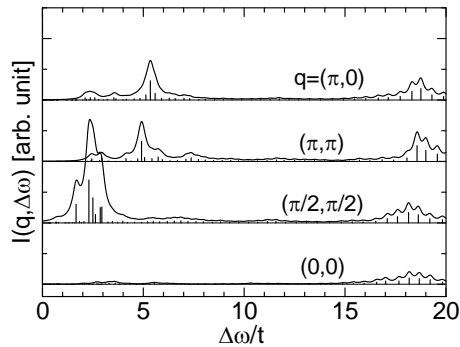


図 2. 2 バンド・ハバード模型の共鳴非弾性 X 線散乱スペクトル.

この物質の共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルを光学伝導度の結果と比較しながら理論的に明らかにした. e_g 軌道の 2 バンド・ハバード模型に対する数値的厳密対角化法により, 共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルの計算 (図 2), 及び, 電荷の動的相関関数や一粒子励起スペクトルの計算, そして, 射影演算子を用いた局所的なスピン状態の限定を行った. その結果, 共鳴非弾性 X 線散乱においては, ギャップ内に現れるスペクトルにおいて, 高スピン状態に関する励起のみ現れることが分かり, この振る舞いは光学伝導度と異なっていることが明らかになった.

(3) 鉄系超伝導体母物質における L 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱の理論:

鉄砒素系超伝導体の母物質は反強磁性金属相であり, スピンと電荷の自由度が軌道自由度と絡まってどのように振る舞うかが, この系の高温超伝導の起源にも関連して注目されている. 本研究では 5 軌道ハバード模型の基底状態を平均場近似で計算し, 動的スピン感受率, 動的電荷感受率, そして, L 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルを乱雑位相近似で計算することで, この系の持つ励起スペクトルの特徴を議論した. 特に, L 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱スペクトルにおいて, この系におけるスピンの集団励起であるマグノン励起の他に強い強度で小さな分散を持つスピン・軌道複合励起の存在を実験に先立ち予測した.

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 7 件)

① K. Ishii, K. Tsutsui, K. Ikeuchi, I. Jarrige, J. Mizuki, H. Hiraka, K. Yamada, T. Tohyama, S. Maekawa, Y. Endo, H. Ishii, and Y. Q. Cai, “Electronic excitations

around the substituted atom in $\text{La}_2\text{Cu}_{1-y}\text{Ni}_y\text{O}_4$ as seen via resonant inelastic x-ray scattering”, *Physical Review B*, 査読有, **85**, 104509-1-5 (2012), DOI: 10.1103/PhysRevB.85.104509

② E. Kaneshita, K. Tsutsui, and T. Tohyama, “Spin and orbital characters of excitations in iron arsenide superconductors revealed by simulated resonant inelastic x-ray scattering”, *Physical Review B*, 査読有, **84**, 020511(R)-1-5 (2011), DOI: 10.1103/PhysRevB.84.020511

③ K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, “Theory of resonant inelastic X-ray scattering spectrum for Ni impurities in cuprates”, *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 査読有, **72**, 354-357 (2011), DOI: 10.1016/j.jpcs.2010.10.051

④ K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, “Theoretical Study of Resonant Inelastic X-ray Scattering Spectrum in the Hubbard Ladder”, *Physica C*, 査読有, **470**, S232-S233 (2010), DOI: 10.1016/j.physc.2009.10.042

⑤ K. Ishii, K. Ikeuchi, I. Jarrige, J. Mizuki, H. Hiraka, Y. Yamada, K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, Y. Endoh, H. Ishii, Y. Q. Cai, “Resonant inelastic x-ray scattering of $\text{La}_2\text{Cu}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{O}_4$ ”, *Physica C*, 査読有, **470**, S155-S157 (2010), DOI: 10.1016/j.physc.2009.11.171

⑥ M. Yoshida, K. Ishii, K. Ikeuchi, I. Jarrige, Y. Murakami, J. Mizuki, K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, K. Kudo, Y. Koike, Y. Endoh, “Temperature-dependence of electronic structures in $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ studied by resonant inelastic x-ray scattering”, *Physica C*, 査読有, **470**, S145-S146 (2010), DOI: 10.1016/j.physc.2009.11.082

⑦ K. Tsutsui, A. Toyama, T. Tohyama, S. Maekawa, “Exact Diagonalization Calculations of Hole Binding around Ni Impurities in Ni-substituted Cuprate Superconductors”, *Physical Review B*, 査読有, **80**, 224519-1-5 (2009), DOI: 10.1103/PhysRevB.80.224519

[学会発表] (計 15 件)

① 杉本高大, 兼下英司, 筒井健二, 遠山貴己, 「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」, 日本物理学会年次大会, 2012/3/26, 関西学院大学.

② 兼下英司, 杉本高大, 筒井健二, 遠山貴己, 「11 系の磁気秩序状態におけるスピン・電荷励起」, 日本物理学会年次大会, 2012/3/25, 関西学院大学.

③ 遠山貴己, 筒井健二, 「銅酸化物高温超伝導体の L 吸収端共鳴非弾性 X 線散乱」, 日本物理学会年次大会, 2012/3/25, 関西学院大学.

④ 筒井健二, 遠山貴己, 前川禎通, 「ニッケル不純物を含む銅酸化物高温超伝導体の電子状態と共鳴非弾性 X 線散乱のクラスター計算」, 日本物理学会年次大会, 2012/3/24, 関西学院大学.

⑤ 筒井健二, 遠山貴己, 前川禎通, 「銅酸化物高温超伝導物質のニッケル不純物置換効果に対するクラスター計算」, 日本物理学会秋季大会, 2011/9/22, 富山大学.

⑥ K. Tsutsui, T. Tohyama, W. Koshibae, and S. Maekawa, "Theoretical Study of Resonant Inelastic X-ray Scattering Spectrum in Nickelates", The 26th International Conference on Low Temperature Physics (LT26), 2011/8/10, Beijing, China.

⑦ 筒井健二, 遠山貴己, 前川禎通, 「銅酸化物高温超伝導物質のニッケル不純物に対する共鳴非弾性 X 線散乱の理論的研究」, 日本物理学会年次大会, 2011/3/25, 新潟大学.

⑧ 筒井健二, 石井賢司, 遠山貴己, 前川禎通, 池内和彦, ジャリッジイニヤス, 水木純一郎, 平賀晴弘, 山田和芳, 石井啓文, 蔡永強, 遠藤康夫, 「 $\text{La}_2\text{Cu}_{1-y}\text{Ni}_y\text{O}_4$ の共鳴非弾性 X 線散乱」, 日本物理学会秋季大会, 2010/9/23, 大阪府立大学.

⑨ K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, "Theory of resonant inelastic X-ray scattering spectrum for Ni impurities in cuprates", the 9th International Conference on Spectroscopies in Novel Superconductors (SNS2010), 2010/5/23, Shanghai, China.

⑩ 筒井健二, 遠山貴己, 小椎八重航, 前川禎通, 「二次元ニッケル酸化物に関する共鳴非弾性 X 線散乱と一粒子励起スペクトル」,

日本物理学会年次大会, 2010/3/21, 岡山大学.

⑪ 筒井健二, 遠山貴己, 小椎八重航, 前川禎通, 「ニッケル酸化物の励起スペクトルに関する理論的研究」, 日本物理学会秋季大会, 2009/9/26, 熊本大学.

⑫ K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, "Theoretical study of Resonant Inelastic X-ray Scattering Spectrum in the Hubbard Ladder", the 9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity (M2S), 2009/9/8, Tokyo.

⑬ K. Ishii, K. Ikeuchi, I. Jarrige, J. Mizuki, H. Hiraka, Y. Yamada, K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, Y. Endoh, H. Ishii, Y. Q. Cai, "Resonant inelastic x-ray scattering of $\text{La}_2\text{Cu}_{0.95}\text{Ni}_{0.05}\text{O}_4$ ", the 9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity (M2S), 2009/9/8, Tokyo.

⑭ M. Yoshida, K. Ishii, K. Ikeuchi, I. Jarrige, Y. Murakami, J. Mizuki, K. Tsutsui, T. Tohyama, S. Maekawa, K. Kudo, Y. Koike, Y. Endoh, "Temperature-dependence of electronic structures in $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ studied by resonant inelastic x-ray scattering", the 9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity (M2S), 2009/9/8, Tokyo.

⑮ K. Tsutsui, A. Toyama, T. Tohyama, S. Maekawa, "Exact Diagonalization study for Ni substitution effect in d-p Model", ICC-IMR workshop "Physics on Transition Metal Based Superconductors" 2009/6/26, Sendai.

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・量子ビーム応用研究部門・研究副主幹
研究者番号: 80291011

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし