

# 磁気コンプトン散乱測定を用いた電子・軌道状態の研究

小泉昭久 (兵庫県立大大学院 物質理学研究科)

コンプトン散乱は、光子(X線, 線)と電子との粒子的衝突による非弾性散乱として理解され、エネルギーと運動量の保存則のもとに導かれることは、良くご存知のことと思われる。電子が静止している場合、ある角度に散乱されるX線は、上記の保存則に従い反跳電子にエネルギーを与え、その分だけエネルギーを失う。物質内の電子の場合には、原子に束縛されているように、遍歴的であろうが、何がしかの運動量を持っているため、散乱X線は、その運動量によるエネルギーシフト、いわゆるドップラシフトを受けることになる。従って、散乱角一定のもとに散乱X線を測定すると、電子の運動量を反映したエネルギー幅をもったプロファイルとして観測される。入射X線のエネルギーが原子内の束縛エネルギーよりも十分に高いとしてインパルス近似を適用し、また、反跳電子の終状態を自由電子とみなして平面波で近似することにより散乱断面積を導くと、始状態の運動量密度分布(コンプトンプロファイル)が得られる<sup>1)</sup>。試料として強磁性体を考え、入射X線に円偏光を用いる場合には、電子スピンと円偏光X線との相互作用も考慮した相対論的な補正項から、磁気効果も含めた散乱断面積を求めることにより、磁気コンプトンプロファイル(MCP)が導かれる。それを

$$J_{\text{mag}}(p_z) \text{ とすると, } J_{\text{mag}}(p_z) = \sum_{i=1}^n \iint |\chi_{i\uparrow}(\mathbf{p})|^2 dp_x dp_y - \sum_{i=1}^m \iint |\chi_{i\downarrow}(\mathbf{p})|^2 dp_x dp_y, \quad (1)$$

と表される。ここで、 $p_z$  は、X線の散乱ベクトル方向に沿った電子の運動量成分で、 $\chi_i(\mathbf{p})$  は、運動量表示の波動関数である。電子に占有されている状態について、上向きスピンと下向きスピンを区別して、全電子の和をとると、結果として磁性電子のみの運動量密度分布が得られることになる。MCPは、スピン磁気モーメントのみを観測しており、面積がその大きさに比例する。また、プロファイルの幅は、磁性電子の局在性・遍歴性を反映している。これらの特徴に加え、単結晶試料を用いれば、軌道状態の観測にも役立つと期待される。<sup>2)</sup> (1)式から分かるように、MCPは、波動関数 $\chi_i(\mathbf{p})$ の二乗(運動量密度)を二重積分した形で表されており、このことから、MCPの形状は、磁性電子が占有している軌道によって、更には観測する方向によって異なるのである。以下では、層状ペロフスカイトMn酸化物におけるMn 3d軌道状態の研究を例に、具体的に見てみよう。

Mn酸化物は、強磁性から常磁性(反強磁性)への磁気転移温度 $T_c$ で金属絶縁体転移を起こし、 $T_c$ 以上では、巨大磁気抵抗効果(CMR)を示すことから、近年、精力的な研究が行われてきた物質である。また、ホ-ル濃度や温度によって複雑に変化する磁気構造や、電荷秩序、軌道秩序等の興味深い物性も観測されている。従来、低温における強磁性金属状態は、二重交換相互作用によって説明されてきたが、CMRを含め、上記の物性を理解するためには、電荷やスピンの自由度に加え、軌道自由度も重要であることが指摘されている。Mn 3d軌道は、 $\text{MnO}_6$ 八面体の結晶場中で $t_{2g}$

軌道と  $e_g$  軌道に分裂しており、特に  $e_g$  軌道が如何なる状態にあるかを知ることが、有益な情報を与えてくれるものと期待される。図 1 に  $e_g$  軌道 ( $x^2-y^2, 3z^2-r^2$ ) の模式図と異なる方向から観測した場合のプロファイルを示す。実際に得られる MCP は、 $t_{2g}$  軌道も含めて、各軌道のスピン磁気モーメントの大きさを重みとしたプロファイルの重ね合わせとして観測される。従って、各軌道のプロファイルを用いたフィッティング解析を行うことにより、軌道毎のスピン磁気モーメントを求めることが可能となる。Mn 酸化物の場合、その磁化が Mn  $3d$  電子のスピン磁気モーメントによるものであることを考えれば、解析によって得られる値は軌道占有数に比例しているものと見なしで良いであろう。

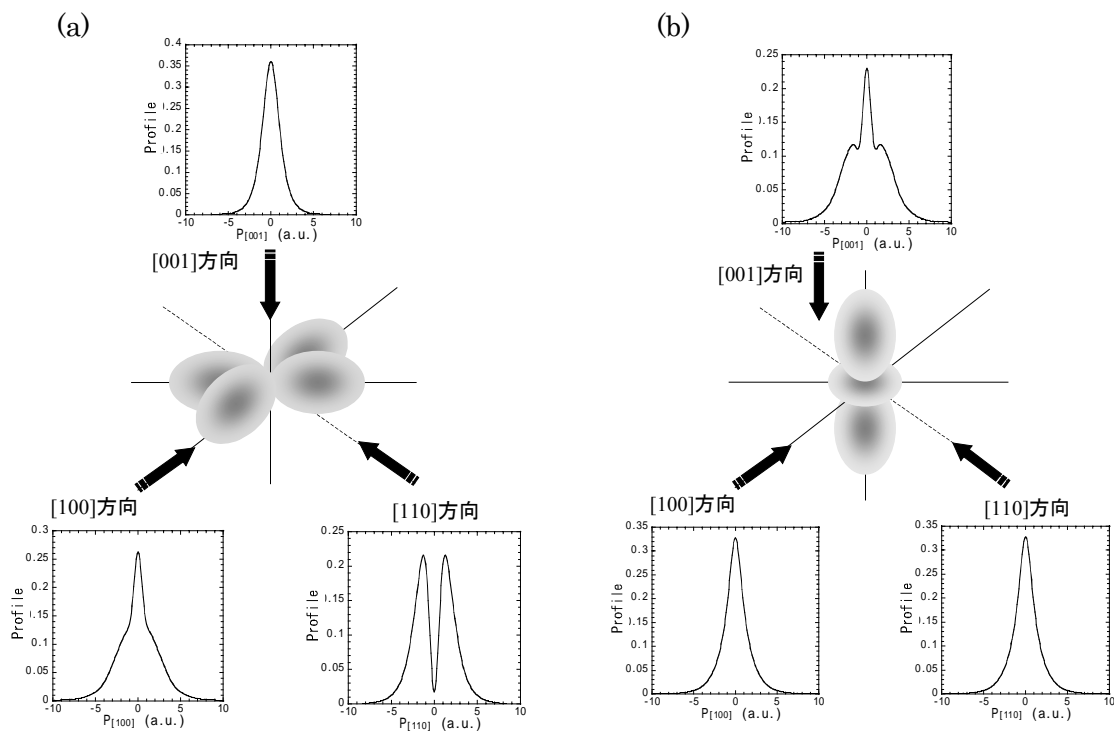


図 1 軌道状態および観測方向によるプロファイルの違い。MnO<sub>6</sub> 八面体中の Mn  $3d$  軌道のうち (a)  $x^2-y^2$  軌道の場合 と (b)  $3z^2-r^2$  軌道の場合

しかしながら、図 1 に示したような原子軌道のプロファイルを用いた解析では実験的 MCP を十分には再現できなかった。実際の物質中では、当然ながら Mn  $3d$  軌道と O  $2p$  軌道は混成していると考えられるので、これを考慮し、MnO<sub>6</sub> クラスタに対する分子軌道計算を行い、より現実的なプロファイルを求め解析に用いた。例として、La<sub>2-2x</sub>Sr<sub>1+2x</sub>Mn<sub>2</sub>O<sub>7</sub> (x=0.35) 単結晶試料において測定した低温での MCP と解析結果を図 2 に示す。フィッティングは、[001]軸方向の MCP に対して行った。MCP の面積をホル濃度から見積もられる  $3d$  電子数で規格化し、フィッティングされた各軌道プロファイルの面積からその軌道占有数を求めると、 $t_{2g}=2.86$ 、 $x^2-y^2=0.47$ 、 $3z^2-r^2=0.22$  となった。[100]軸及び[110]軸方向の MCP については、この解析結果

を用いて求めたプロファイルを実線で示しており，測定結果を良く再現している．これまでに，MCP のホル濃度依存性 ( $x=0.30, 0.35, 0.42$ ) と異方性 温度変化 ( $x=0.35, 0.42$ ) について測定を行っており， $e_g$  軌道状態は， $x^2-y^2$  軌道が優位でありホル濃度の増加に伴って  $3z^2-r^2$  軌道の占有数が減少すること， $T_c$  以上での格子歪の変化に伴って各軌道の占有比率が変わること等が観測されている．<sup>2-4)</sup> また，講演では MCP 及び高分解能コンプトンプロファイルの 2 次元再構成実験についても紹介したい．

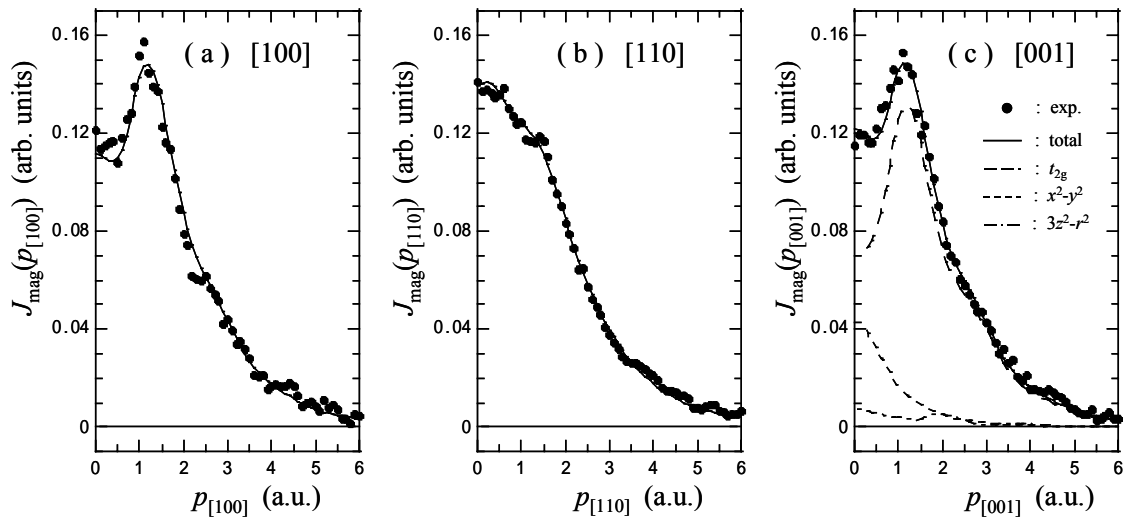


図2  $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$  ( $x=0.35$ ) の  $T=10\text{K}$  において測定された MCP の異方性と，クラスタ計算から求めたプロファイルによるフィッティング解析の結果．

なお，以上の研究は，永尾俊博，角谷幸信，大谷幸子，坂井信彦，宮木智，馬越健次（兵庫県立大），小泉裕康（筑波大），廣田和馬（東大），村上洋一，有馬尚孝（東北大），伊藤真義，桜井吉晴（JASRI）各氏との共同研究として行われたものである．

- 1) P. Eisenberger and P. M. Platzman: Phys. Rev. A **2**(1970)415.
- 2) 小泉昭久，坂井信彦：「固体物理」**37**, No.9 (2002)105.
- 3) A. Koizumi, S. Miyaki, Y. Kakutani, H. Koizumi, N. Hiraoka, K. Makoshi, N. Sakai, K. Hirota, and Y. Murakami : Phys. Rev. Lett. **86**(2001)5589.
- 4) A. Koizumi, T. Nagao, Y. Kakutani, N. Sakai, K. Hirota, and Y. Murakami : Phys. Rev. B **69**(2004)060401(R).