

コンプトン散乱を用いた電子状態研究の新展開

小泉昭久

兵庫県立大学大学院物質理学研究科 〒678-1297 兵庫県赤穂郡上郡町光都 3-2-1

伊藤真義

軌高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

櫻井吉晴

軌高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

要旨

物質中の電子は常に運動している。コンプトン散乱は X 線光子と電子の弾性衝突なので、コンプトン散乱 X 線の解析より電子の運動状態に関する情報が得られる。従って、コンプトン散乱は、物質の電子状態を調べる手法として利用できる。本稿では、放射光を用いた実験および解析から、電子の運動量密度分布やフェルミ面を求める筋道について説明を行い、重い電子系化合物 CeRu_2Si_2 と銅酸化物高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ に関する最近の研究例を紹介する。

1. はじめに

フェルミ面と電子軌道は物質の性質を決める重要な量子状態である。フェルミ面は結晶中を“自由に動ける” 10^{23} 個程度の電子塊の表面である。フェルミ面近傍の電子は電磁場などの外場に応答して状態を変えることができることから、フェルミ面の形状は超伝導などの輸送現象を支配していると考えられている。フェルミ面の理解を多少難しくしているのは、電子塊を運動量空間に置いて考えなければならぬ点である。一方、結晶中を自由に動けない電子は、物質を構成するイオンに固有の電子軌道に収まる。原子核近くに強く束縛された軌道から自由に動ける一歩手前の弱く束縛された軌道までであるが、物性で重要なのは、弱く束縛された電子軌道である。この電子軌道は、自由に動ける電子と結びついて電気伝導に寄与したり、あるいは磁性を担ったりすることにより、物性に様々な影響を及ぼすと考えられている。そこで、本稿では、高分解能コンプトン散乱によるフェルミ面形状と電子軌道のイメージングをテーマに解説を行いたい。

ここでのイメージングとは、対象（電子状態）を電子運動量分布として捉え、運動量空間の像として描くことである。古典力学では、運動量は質量と速度の積なので、速度分布と考えて差支えない。イメージングの対象は、運動量の3成分を座標とする空間に描かれ、原点近傍ではゆっくり、原点から離れたところでは高速で運動している状態に対応する。フェルミ面は運動量空間で定義されるので、運動量空間でのイメージングが不可欠である。一方、電子軌道は、位置空間表示のシュレディンガー方程式を解いて

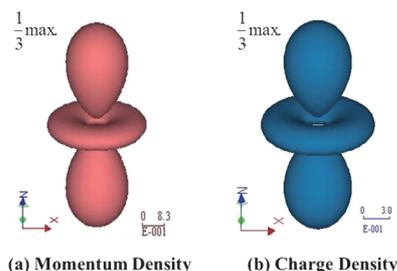


Fig. 1 (Color online) (a) Momentum density and (b) charge density of an electron in Cu $3d_{z^2}$ atomic orbital.

位置空間の波動関数として与えられるのが一般的であるため、直感的には位置空間のイメージの方が理解し易いと思われる。しかし、量子力学では、波動関数の位置空間表示と運動量空間表示は等価であり、両者はフーリエ変換で結ばれている^{1,2)}。Fig. 1にそれぞれの波動関数を2乗して得られる電荷密度分布と運動量密度分布の例を示すが、両分布は同じ対称性をしていることが分かる。すなわち、運動量空間においても波動関数の対称性は同じであり、電子軌道に関する直感的な“イメージ”を得ることは可能である。

電子運動量分布はコンプトン散乱 X 線の測定により得られる。コンプトン散乱は、入射 X 線に対して散乱 X 線のエネルギーが低くなる散乱現象として、1923年に A. H. Compton により発見され、X 線の粒子性を示す実験証拠として広く知られている^{3,4)}。しかし、Compton が測定したグラフィットの測定データには、実験分解能以上のエネルギー広がり観測されていた事実はあまり知られていない⁵⁾。続く研究により実験上の問題でないことが確認さ

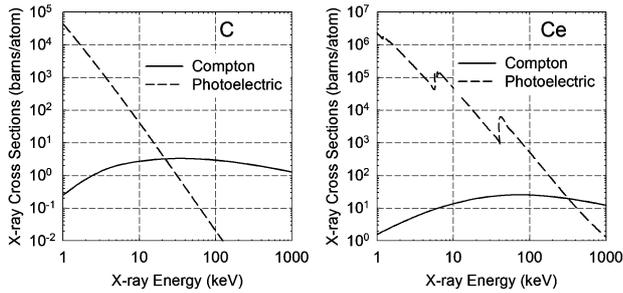


Fig. 2 X-ray cross sections for carbon and cerium.

れ、運動する電子のドップラー効果により、エネルギー広がりが見ることが指摘された。この事実に着目した Du Mond は1929年に金属 Be の測定を行い、物質電子の運動量分布はフェルミ・ディラック統計に従うことを示した⁶⁾。

コンプトン散乱の電子状態研究への応用は早かったにもかかわらず、物性研究手段として広がりを見せなかった理由はコンプトン散乱 X 線のシグナルが弱いことによる。X 線と物質電子との相互作用において、コンプトン散乱は光電吸収と競合関係にある (Fig. 2)。グラファイトなどの軽い物質は Mo-K α の 18 keV で十分な強度が得られるが、Ce などの重元素を含む物質では光電吸収を低く抑えるために 100 keV 以上の X 線が必要になる。放射光を利用した高分解能コンプトン散乱は、1980年に LURE-DCI の 10 keV X 線を用いたパイオニア的研究⁷⁾に始まり、KEK-PF⁸⁾, HASYLAB⁹⁾, KEK-AR¹⁰⁾を経て、2000年代に入って ESRF^{11,12)} と SPring-8^{13,14)}において 100 keV 以上の X 線を利用した高分解能コンプトン散乱実験が可能になった。

物性研究手法として出遅れたコンプトン散乱であるが、他の手法と比べて、幾つかの利点がある。測定条件として、超高真空、超低温と高磁場、完全結晶を必要とせず、例えば、ガス雰囲気、電磁場下で不規則系の温度変化の測定が可能である。また、後に述べるインパルス近似が成り立つ条件下で、コンプトン散乱 X 線のエネルギー分布から始状態の電子運動量分布が得られる。電子運動量密度は波動関数から直接計算できる量であり、複雑な散乱過程を考慮することなく、電子状態の考察を行うことができる。

本稿は以下のように構成する。まず、2 節でコンプトン散乱と電子運動量分布の関係を説明した後、3 節では結晶中を自由に動ける遍歴状態とイオンに局在した局在状態の電子運動量分布について解説する。4 節では、コンプトン散乱スペクトロメータを示し、5 節で、Ce 化合物と銅酸化物高温超伝導体に関する最近の研究例を紹介する。また、コンプトン散乱による物性研究に興味のある方は、さらに専門書¹⁵⁻¹⁷⁾や文献¹⁸⁻²⁰⁾を一読されることをお勧めしたい。

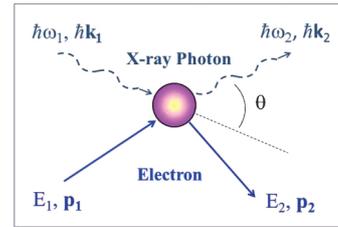


Fig. 3 (Color online) Schematic diagram of Compton scattering.

2. コンプトン散乱と電子運動量密度の再構成

この節ではコンプトン散乱と同実験から電子運動量密度を得る筋道を説明しよう。最初に、X 線光子と物質電子の弾性衝突としてコンプトン散乱を考え、散乱 X 線のエネルギーが散乱前 (始状態) の電子の運動量に依存することを説明する。続いて、微分散乱断面積からコンプトン・プロフィールに至るまでの概略を示し、最後に、コンプトン・プロフィールから電子運動量密度を再構成する方法について説明する。

2.1 コンプトン散乱：X 線光子と物質電子の弾性衝突

粒子同士の弾性衝突ではエネルギーと運動量が保存されるので、X 線光子と物質電子のエネルギーと運動量の定義から始めよう。波長 λ の X 線の場合、光子のエネルギーは $\hbar\omega = \hbar(2\pi c/\lambda)$ 、運動量は $\hbar\mathbf{k} = \hbar(2\pi/\lambda)\mathbf{e}$ で与えられる。ここで、 c は光速、 \mathbf{e} は X 線の進行方向の単位ベクトルである。散乱前と後について、光子のエネルギーを $\hbar\omega_1$ と $\hbar\omega_2$ 、光子の運動量を $\hbar\mathbf{k}_1$ と $\hbar\mathbf{k}_2$ 、電子のエネルギーを E_1 と E_2 、電子の運動量を \mathbf{p}_1 と \mathbf{p}_2 とする (Fig. 3)。

エネルギー保存則と運動量保存則より

$$\hbar\omega_1 + E_1 = \hbar\omega_2 + E_2, \quad (2-1)$$

$$\hbar\mathbf{k}_1 + \mathbf{p}_1 = \hbar\mathbf{k}_2 + \mathbf{p}_2, \quad (2-2)$$

となる。また、電子のエネルギーを運動エネルギーとポテンシャル・エネルギーに分け、

$$E_i = \frac{\mathbf{p}_i^2}{2m} + U_i \quad i = 1, 2 \quad (2-3)$$

とおく。ポテンシャル・エネルギー U_i は散乱電子以外の全電子と原子核によってつくられる。散乱で電子が弾き飛ばされた後に、その電子 1 個分の孔を埋め合わせるように周囲の電子群が緩和し、この緩和に伴いポテンシャル U_2 は時間変化する。しかし、光子と電子の散乱は瞬時に起り、電子群が緩和する前に散乱は終了すると仮定すると、

$$U_1 = U_2 \quad (2-4)$$

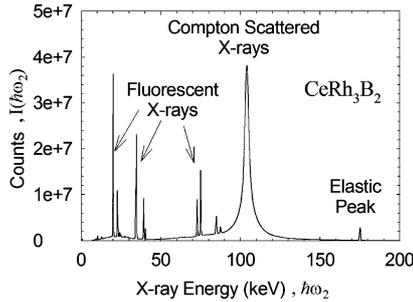


Fig. 4 An example of Compton scattered x-rays.

となる。これをインパルス近似という。以上の(2-1)–(2-4)から、散乱後の光子のエネルギー $\hbar\omega_2$ を導くと、

$$\hbar\omega_2 = \hbar\omega_1 - \frac{\hbar^2 |\mathbf{K}|^2}{2m} + \frac{\hbar \mathbf{K} \cdot \mathbf{p}_1}{m} \quad (2-5)$$

となる。ここで、 $\mathbf{K} (= \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1)$ は X 線の散乱ベクトルである。入射 X 線エネルギー $\hbar\omega_1$ と散乱角 θ (すなわち、散乱ベクトル \mathbf{K}) は一定値に設定されているので、第 1 項と第 2 項は定数になるが、第 3 項には散乱前の電子の運動量と散乱ベクトルの内積 $\mathbf{K} \cdot \mathbf{p}_1$ が含まれているため、散乱 X 線のエネルギーは散乱前 (始状態) の電子の運動量に依存する。

物質中にはアボガドロ数程度 ($\sim 10^{23}$ 個) の電子が、それぞれの速度 (すなわち運動量) で運動しているので、コンプトン散乱イベントを繰り返し測定して得られた X 線のエネルギー・スペクトル $I(\hbar\omega_2)$ は、電子の運動量分布を反映して、幅を持つようになる (Fig. 4)。測定する物質の電子運動量密度 (運動量表示の波動関数の 2 乗) を $\rho(\mathbf{p}) = \rho(p_x, p_y, p_z)$ として、 p_z 座標軸を散乱ベクトル \mathbf{K} に平行におくと、

$$I(\hbar\omega_2) \propto J(p_z) = \iint \rho(\mathbf{p}) dp_x dp_y \quad (2-6)$$

となる。ある運動量 p_z で、 p_z 軸に垂直な $p_x - p_y$ 平面の $\rho(\mathbf{p})$ を 2 次元積分した量がコンプトン・プロファイル $J(p_z)$ である。実験において $I(\hbar\omega_2)$ から $J(p_z)$ を導くには、次節で説明する微分散乱断面積を用いる。

2.2 微分散乱断面積

X 線と電子の散乱には、電磁場と荷電粒子の相互作用を扱う電磁場の量子論を用いる²¹⁾。入射 X 線のエネルギーが電子の静止エネルギー (511 keV) より小さく、かつ物質の電子系と X 線の電磁場との相互作用が入射 X 線のエネルギーより小さい場合には、第 1 ボルン近似が成り立ち、コンプトン散乱の微分散乱断面積は以下のような²²⁾。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega_2} = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{Th} \frac{\hbar\omega_2}{\hbar\omega_1} \sum_i \sum_j \left| \langle f | \sum_j \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_j) | i \rangle \right|^2 \times \delta(E_2 - E_1 + \hbar\omega_2 - \hbar\omega_1) \quad (2-7)$$

ここで、 $(d\sigma/d\Omega)_{Th}$ はトムソン散乱の断面積、 \mathbf{r}_j は j 番目の電子の位置座標、 $|i\rangle$ は散乱前の電子状態、 $|f\rangle$ は散乱後の電子状態である。その他のシンボルは前小節と同じである。

コンプトン・プロファイルを得るために、実際のコンプトン散乱実験は、以下の 2 つの条件を満たすように行われる。

- 1) コンプトン散乱によって電子が得たエネルギー ($E_2 - E_1$) は電子の結合エネルギーより十分に大きい。すなわち、散乱された電子の状態は平面波で表せる。
- 2) 散乱ベクトル \mathbf{K} は電子間距離の逆数より十分に大きい。すなわち、非干渉近似 $\langle i | \exp(i\mathbf{K} \cdot (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_k)) | f \rangle = 0$ for $j \neq k$ が成り立つ。

上の 2 つの条件を一緒にしたものが、インパルス近似である²³⁾。コンプトン散乱は、他の電子を乱さずに、散乱に関わった 1 個の電子を瞬時に平面波状態に持っていく過程と考えてよい。

このインパルス近似を用いて、微分散乱断面積は単純で扱いやすい形になる^{24,25)}、

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega_2} = F(\omega_1, \omega_2, \mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \theta, p_z) J(p_z) \quad (2-8)$$

ここで、 p_z は電子の運動量の z 成分で、 z 軸は散乱ベクトル \mathbf{K} と平行にとる。関数 F は Ribberfors²⁴⁾ や Holm²⁵⁾ によって与えられているので、コンプトン散乱強度のエネルギー分布から $J(p_z)$ を直接導くことができる。微分散乱断面積が F と $J(p_z)$ に因数分解できることがコンプトン散乱のユニークな特徴であり、測定データの解釈を簡単にしている点においてその重要性を強調し過ぎることはない。

2.3 電子運動量密度の再構成

電子運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ は、異なる結晶方位で測定したコンプトン・プロファイル $J(p_z)$ のデータ・セットから数学的手法により再構成する。現在、その手法として、Fourier-Hankel 法²⁶⁾、Fourier-Bessel 法^{27,28)}、Cormack 法^{29,30)}、直接フーリエ法^{31,32)}、最大エントロピー法^{33,34)} が知られている。ここでは、直接フーリエ法についてその概略を説明しよう。

最初に、電子運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ のフーリエ変換で与えられる B 関数を定義する³⁵⁾。

$$B(\mathbf{r}) = \int \rho(\mathbf{p}) \exp(-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}) d\mathbf{p} \quad (2-9)$$

この逆フーリエ変換は

$$\rho(\mathbf{p}) = \frac{1}{(2\pi)^3} \int B(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (2-10)$$

となる。 B 関数は位置空間波動関数の自己相関³⁶⁾であるが、再構成解析においては途中経過にすぎないので、その物理的意味には深入りしない。散乱ベクトル \mathbf{K} の向きを2つの角度 (α, β) で表し、その結晶方位で測定したコンプトン・プロファイルを $J_{\alpha, \beta}(p)$ とおくと、

$$B_{\alpha, \beta}(r) = \int J_{\alpha, \beta}(p) \exp(-ipr) dp \quad (2-11)$$

の関係があり、 $B_{\alpha, \beta}(r)$ は位置空間における同じ方向の軸上の B 関数の値を与える。方位 (α, β) を変えて複数の $J_{\alpha, \beta}(p)$ を測定し、(2-11)から得られる $B_{\alpha, \beta}(r)$ のデータ・セットを補間することにより $B(\mathbf{r})$ を得て、(2-10)の逆フーリエ変換により電子運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ を求める。通常、3次元 $\rho(\mathbf{p})$ の再構成には約20方位の $J_{\alpha, \beta}(p)$ を必要とする。2次元再構成の場合は、観測を行う面に垂直方向の積分が残るが、5~10方位の $J_{\alpha, \beta}(p)$ で、観測面に射影された電子運動量密度を求めることが可能である。

3. 電子運動量密度に関する考察

3.1 遍歴状態の電子運動量密度

結晶中を動ける遍歴電子を考えよう。独立粒子近似のもと、電子運動量密度は

$$\rho(\mathbf{p}) = \sum_{b, \mathbf{k}} n_b(\mathbf{k}) \left| \int \psi_{b, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) \exp(-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right|^2 \quad (3.1)$$

で与えられる¹⁵⁻¹⁷⁾。 $\psi_{b, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$ はバンド指標 b 、波数ベクトル \mathbf{k} の状態にある電子の波動関数、 $n_b(\mathbf{k})$ は同状態の電子占有数密度である。フェルミ準位 (E_F) 以下の状態は電子に占有されているので $n_b(\mathbf{k})=1$ 、 E_F 以上の状態は非占有なので $n_b(\mathbf{k})=0$ である。最上位のバンドが E_F を横切る金属の場合、フェルミ運動量 \mathbf{k}_F で $n_b(\mathbf{k})$ が1→0に不連続に変化する(Fig. 5)。これを3次元的に考えると、ブリルアンゾーン内で不連続に変化する点を繋いでゆくことにより面が形成され、この面がフェルミ面に相当する。

$\psi_{b, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$ は \mathbf{k} を量子数とするブロッホ関数で表せる。

$$\psi_{b, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} u_{b, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (3-2)$$

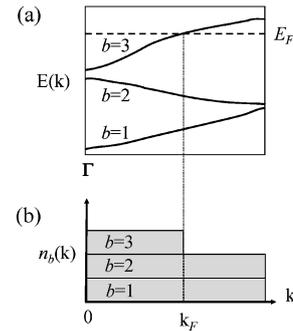


Fig. 5 (a) Band dispersion $E(k)$ and (b) corresponding occupation density $n_b(k)$. The partially filled band ($b=3$) at the top shows a break at the Fermi momentum k_F , while filled bands ($b=1$ and $b=2$) make a flat distribution of $n_b(k)$ throughout the Brillouin zone.

$u_{b, \mathbf{k}}(\mathbf{r})$ は結晶と同じ周期性をもつ関数である。この関数を厳密に与えることは難しいが、考察を一歩進めるために、逆格子ベクトル \mathbf{G} で展開しよう。

$$\psi_{b, \mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{G}} C_b(\mathbf{k}, \mathbf{G}) e^{i(\mathbf{k}+\mathbf{G})\cdot\mathbf{r}} \quad (3-3)$$

$C_b(\mathbf{k}, \mathbf{G})$ は展開係数である。(3-3)を(3-1)に代入し、バンド間の混成は小さいとすると、電子運動量密度は

$$\rho(\mathbf{p}) = \sum_{b, \mathbf{k}} n_b(\mathbf{k}) \sum_{\mathbf{G}} |C_b(\mathbf{k}, \mathbf{G})|^2 \delta(\mathbf{p} - \mathbf{k} - \mathbf{G}) \quad (3-4)$$

となり、 \mathbf{k} を量子数とするブロッホ状態は $\mathbf{p} = \mathbf{k} + \mathbf{G}$ で与えられる無限個の運動量を持つ。すなわち、電子占有数密度のトビは第1ブリルアンゾーン内の $\mathbf{p} = \mathbf{k}_F$ だけでなく、第1ブリルアンゾーンを逆格子ベクトル \mathbf{G} だけ平行移動した高次ゾーン内の $\mathbf{p} = \mathbf{k}_F + \mathbf{G}$ においても、大きさは異なるものの密度のトビが現れ、その結果、フェルミ面は運動量空間全体にわたって現れる。フェルミ面での値のトビの大きさは展開係数 $C_b(\mathbf{k}, \mathbf{G})$ による。この展開係数はフェルミ準位にある電子軌道状態に依存し、その振幅は運動量空間で複雑な分布をしている。この複雑さは電子運動量密度とフェルミ面形状を直接的に結びつけることを困難にするとともに、フェルミ面形状を決定する上で曖昧さを残すことになる。この困難を避けるために、LCW (Lock-Crisp-West) 法³⁷⁾により電子運動量密度 $\rho(\mathbf{p})$ の畳み込みを行い、これにより得られた電子占有数密度 $n_b(\mathbf{k})$ からフェルミ面形状を決定する。ただし、結晶周期ポテンシャルの影響を無視した自由電子では、 $\mathbf{G} = 0$ でのみ $C_b(\mathbf{k}, \mathbf{G}) \neq 0$ となるので、フェルミ面は第1ブリルアンゾーン内にのみ現れ、運動量密度分布からフェルミ面形状のイメージングが可能になる。自由電子的な金属の場合、第1ブリルアンゾーン内の電子運動量密度からフェルミ面のイ

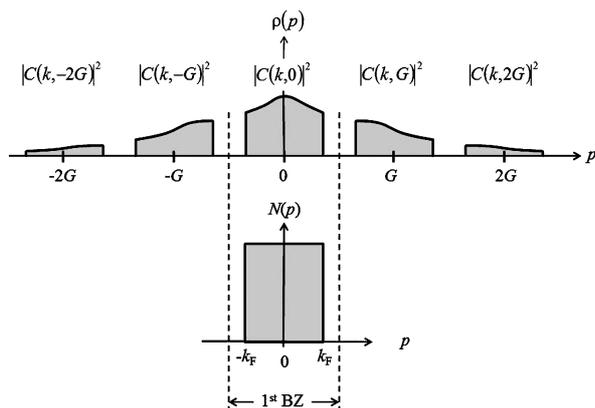


Fig. 6 Schematic explanation of LCW-folding for partially filled band. The LCW-folding procedure brings all the signatures in $\rho(p)$ into the first Brillouin zone to yield the occupation density $n_b(k)$.

メーキングが行われているが、*d*や*f*電子がフェルミ準位に存在する電子系では高次ゾーンにフェルミ面が現れるので、LCW 畳み込みを行わなければならない。

以下で、LCW 法³⁷⁾について説明しよう。最初に、畳み込んだ電子運動量密度 $N(\mathbf{p})$ を定義する。

$$N(\mathbf{p}) = \sum_{\mathbf{G}'} \rho(\mathbf{p} + \mathbf{G}') \\ = \sum_{b, \mathbf{k}} n_b(\mathbf{k}) \sum_{\mathbf{G}} |C_b(\mathbf{k}, \mathbf{G})|^2 \sum_{\mathbf{G}'} \delta(\mathbf{p} + \mathbf{G}' - \mathbf{k} - \mathbf{G}) \quad (3-6)$$

ここで、 \mathbf{G}' は畳み込み操作の逆格子ベクトルで、電子のプロック状態に用いる \mathbf{G} とは区別する。さらに、 $\mathbf{G}'' = \mathbf{G} - \mathbf{G}'$ と置き、波動関数の規格化条件 $\sum_{\mathbf{G}} |C(\mathbf{k}, \mathbf{G})|^2 = 1$ を用いると、

$$N(p) = \sum_{\mathbf{G}', b, \mathbf{k}} n_b(\mathbf{k}) \delta(\mathbf{p} - \mathbf{k} - \mathbf{G}'') \quad (3-7)$$

となり、 $N(p)$ は $\sum_b n_b(\mathbf{k})$ の繰り返しゾーン表示になる。LCW 法による畳み込みは、高次ゾーンの電子運動量密度を第1ブリルアンゾーンに畳み込むことと同じである (Fig. 6)。完全に詰まっているバンドの場合、畳み込んだ密度分布にトビは現れず、構造の無い平坦なものになる。従って、フェルミ準位以下に多数の詰まったバンドがあっても、それらに関係なく、畳み込んだ電子運動量密度 $N(\mathbf{p})$ にフェルミ面のシグナルを観測することができる。

3.2 局在状態の電子運動量密度

局在状態として原子軌道を考えよう。原子軌道の波動関数は量子数 n, l, m として与えられる。

$$\psi_{n, l, m}(\mathbf{r}) = R_{n, l}(r) Y_{l, m}(\theta, \varphi) \quad (3-9)$$

ここで $R_{n, l}(r)$ は動径関数、 $Y_{l, m}(\theta, \varphi)$ は球面調和関数である。フーリエ変換では動径関数のみを変換され、運動量表示の波動関数は

$$\chi_{n, l, m}(\mathbf{p}) = P_{n, l}(p) Y_{l, m}(\theta, \varphi) \quad (3-10)$$

となる。 $P_{n, l}(p)$ は運動量空間の動径関数である。両表示の波動関数は同じ形をしていることから想像できるように、それぞれの波動関数の2乗で与えられる電荷密度分布と運動量密度分布は同じ対称性を示す (Fig. 1)。すなわち、電荷密度分布と同様に、運動量密度分布から直感的に軌道状態のイメージングが可能である。

次に分子軌道を考えよう³⁶⁾。距離 \mathbf{R} だけ離れた2つの原子上の軌道 ϕ_A と ϕ_B からなる分子軌道の波動関数は、

$$\psi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{2 \pm (S^* + S)}} [\phi_A(\mathbf{r}) \pm \phi_B(\mathbf{r} - \mathbf{R})] \quad (3-10)$$

となる。ここで S は重なり積分である。運動量空間の波動関数は

$$\chi(\mathbf{p}) = \frac{1}{\sqrt{2 \pm (S^* + S)}} [\omega_A(\mathbf{p}) \pm \omega_B(\mathbf{p}) \exp(-i\mathbf{p} \cdot \mathbf{R})] \quad (3-11)$$

となり、 $\omega_A(\mathbf{p})$ と $\omega_B(\mathbf{p})$ は各原子軌道の運動量空間波動関数である。この分子軌道の電子運動量密度は

$$\rho(\mathbf{p}) = |\chi(\mathbf{p})|^2 \\ = \frac{1}{2(1 \pm S)} [\rho_A(\mathbf{p}) + \rho_B(\mathbf{p}) \pm 2\omega_A(\mathbf{p})\omega_B(\mathbf{p}) \cos(\mathbf{p} \cdot \mathbf{R})] \quad (3-12)$$

となる。各原子軌道の寄与 ($\rho_A(\mathbf{p})$ と $\rho_B(\mathbf{p})$) の他に、第3項が加わり、電子運動量密度は分子を形成する原子軌道の割合や原子間距離によって変調をうける^{38,39)}。

4. コンプトン散乱スペクトロメーター

コンプトン散乱実験では、散乱 X 線のエネルギー分布を測定することにより、電子運動量密度分布の情報を取得する。エネルギー・スペクトルの測定法には、半導体検出器を使用するエネルギー分散型と、分光結晶による波長分散型がある。エネルギー分散型での検出効率は1に近いが、運動量分解能は約0.5 atomic unit (a.u.) 程度に限定される。一方、波長分散型での検出効率は 10^{-3} 程度となり、非効率的であるが、運動量分解能は約0.1 a.u. となり、より高分解能な測定が可能である。通常、物質の逆格子定数は1 a.u. 程度であるため、特に高い統計精度が必要

な実験以外は結晶分光法が用いられる。ここで、atomic units (原子単位) は、 e (電子の電荷) = m (電子の静止質量) = \hbar (プランク定数) = 1, c (光速) = $1/\alpha$, (α : 微細構造定数), とした単位系で、長さの 1 a.u. はボーア半径: 0.529 Å, 運動量の 1 a.u. は 1.99×10^{-24} kgm/s となる。

入射 X 線は、数 10 keV 以上の高エネルギー X 線を使用する。インパルス近似が成り立つエネルギーを用いることが実験の必要条件であり、また十分なコンプトン散乱強度を得るため、試料に含まれる元素の K 吸収端より十分高いエネルギーの入射 X 線が必要となる。Be などの軽元素では、20 keV 程度の入射 X 線エネルギーでも上記の近似が成り立つので、アンジュレーター光を使用した結晶分光測定で 0.02 a.u. の分解能が可能であるが⁴⁰⁾、遷移金属元素を含む試料の場合 60 keV 以上、希土類元素を含む場合では 100 keV 以上でなければ測定は困難である。このエネルギー領域では大強度のフォトンフラックスを得ることが難しいため、エネルギー分解能よりも検出効率を重視した分光器が採用されている。現在、コンプトン散乱スペクトロメーターは、SPring-8 の BL08W と ESRF の ID15 に設置されており、SPring-8 では Cauchois 型の分光器^{14,41)}が、ESRF では走査型の Johann 型分光器^{11,12)}が採用されている。以下では、SPring-8 に導入されているコンプトン散乱分光器について述べる。

BL08W は高エネルギー高フラックス X 線を得るため、wiggler を光源とし、Johann 型の Si (400) モノクロメーターを使用している。試料位置でのビームサイズは約 3.0 mm (h) × 0.3 mm (w) であり、光子フラックスは 115.6 keV において 5×10^{12} photons/sec, エネルギー幅 ($\Delta\hbar\omega_1$) は 128 eV である。

Cauchois 型分光器は、ラウエ配置の湾曲分光結晶と位置敏感型検出器から構成される (Fig. 7)。分光器全体として可動部分がなく、完全に静的に広いエネルギー領域を同時に計測できる。分光結晶は、厚さ 1 mm のゲルマニウム単結晶回折面 (620) を使用しており、湾曲半径は 3.2 m である。Rowland circle の反対側約 7 cm の範囲に 70~90 keV の X 線が分光される。X 線位置検出器は、X 線イメージインテンシファイア (X-II: 浜松ホトニクス V7339P-MOD) を使用している。X-II の出力は CCD カメラ (浜松ホトニクス C4742-95-12ER) で画像として取得する。このエネルギー領域では、単一光子によって画像上に生成されたピークを CCD のバックグラウンドから選別できるので、露光時間の短い画像を取得し、単一の光子によるピークを画像処理により計数するフォトンカウンティングが可能である。これにより、CCD カメラの暗電流、読取ノイズを完全になくすことができる。また、ピークの高さは光子エネルギーに比例するため低エネルギー X 線によるバックグラウンドをも除去することができる。積算されたイメージは画像歪除去などの処理後、回折面垂直方向に積分することによりエネルギープロファイル

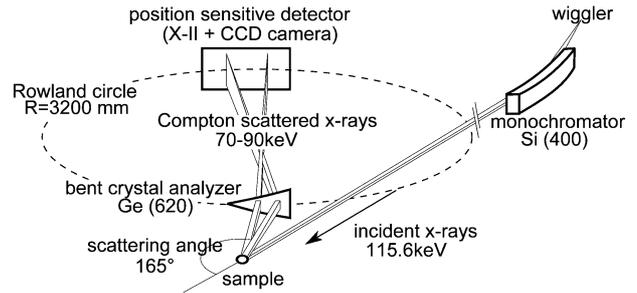


Fig. 7 Schematic drawing of Compton scattering spectrometer installed in BL08W.

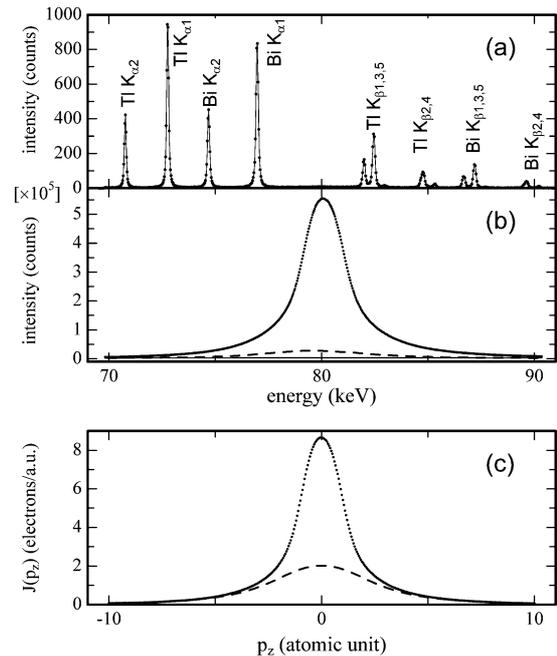


Fig. 8 (a) X-ray fluorescence lines of Tl and Bi. (b) Energy profile of Compton scattered X-rays from quartz (closed circles), multiple scattering (dashed line) and backgrounds (solid line). (c) Corrected Compton profile $J(p_z)$ of quartz (closed circles) and core-electron Compton profile from the Hartree-Fock calculation⁴¹⁾ (dashed line). Error-bars are smaller than the size of closed circles.

に変換される。Fig. 8 (a) は Bi および Tl からの蛍光 X 線を本分光器で測定したものである。分光器のエネルギー分解能 ($\Delta\hbar\omega_2$) は、Bi $K_{\alpha 1}$ (77.1 keV) から求められ 65 eV であった。また、(b) は水晶 (厚さ 5 mm) のコンプトン散乱測定例である。コンプトン散乱のカウントレートは 70~90 keV で 6800 cps, コンプトンピークにおいて 33 cps/10 eV であった。

電子運動量の測定分解能は、入射 X 線のエネルギー幅 ($\Delta\hbar\omega_1$), 分光器のエネルギー分解能 ($\Delta\hbar\omega_2$), 散乱角幅 ($\Delta\theta$) に依存する。それぞれの分解能は、 $\Delta\hbar\omega_1 = 128$ eV, $\Delta\hbar\omega_2 = 65$ eV, $\Delta\theta = 0.24$ mrad であり、これらは運動量空間において 0.063 a.u., 0.067 a.u., 0.001 a.u. に相当する。

全体の分解能はこれらの2乗和の平方根である。本セッションにおける電子運動量測定の分解能は0.092 a.u.となる。

得られたエネルギープロファイルは、バックグラウンド除去、試料内での多重散乱除去及び自己吸収の補正、散乱断面積^{24,25)}の補正をした後、運動量へ変換する。Fig. 8(b)に示した水晶の測定例を電子運動量密度に変換したものがFig. 8(c)である。以上により得られた電子運動量分布 $J(pz)$ は、電子運動量密度の散乱ベクトル方向に対する二重積分である。2節で述べたように、2次元、3次元での電子運動量密度分布は、散乱ベクトルに対し結晶方位を変えたコンプトン・プロファイルを多数本測定し再構成を行うことにより得ることができる。

5. 最近の研究例

5.1 重い電子系化合物 CeRu₂Si₂の2次元再構成実験

具体的な研究例として、まず、重い電子系化合物 CeRu₂Si₂における2次元再構成実験の結果について紹介しよう⁴²⁾。希土類元素やウランなどを含む化合物の中には、高温で局在的に振る舞っていた f 電子が低温で伝導電子との混成を通じて遍歴性を獲得し、電気伝導に寄与するようになるものがある。このような物質では、 f 電子の電子相関が強いために、伝導電子の有効質量が自由電子に比べ数百倍～千倍も重くなって観測されるので、重い電子系と呼ばれている。重い電子系物質はCeを含む化合物で初めて発見され、その後、U化合物やYb化合物、Pr化合物などの系においても発見された。これまでの研究において、伝導電子の有効質量が大きいくということだけにとどまらず、磁気秩序や超伝導など当初には予想されていなかった現象も見つかっており、強相関電子系の物理を研究するうえで恰好の舞台を提供している。

本研究の対象物質であるCeRu₂Si₂は典型的な重い電子系化合物の一つであり、低温まで磁気秩序を示さない。Ce- $4f$ 電子は高温で局在的であるが、近藤温度(T_K)と呼ばれる温度より低温では重い電子として遍歴的になると考えられている。これまでに、 f 電子の遍歴・局在状態やその変化を、微視的な観点から視覚的に捉えようとする研究が行われている。例えば、ドハース・ファンアルフェン効果の測定は、金属のフェルミ面の形状や有効質量を調べる方法として良く知られているが、CeRu₂Si₂についても実験が行われ⁴³⁾、バンド計算から求められたフェルミ面との比較が行われている⁴⁴⁾。しかし、この測定では、試料を十分な低温まで冷却する必要があり、 T_K より高温側の局在状態を観測するのは現状では難しい。そのため、Ceを、 $4f$ 電子を持たないLaに置換したLaRu₂Si₂において、その電子状態を f 電子の局在状態とみなして比較が行われている。また、角度分解光電子分光測定も、フェルミ面やバンド構造を調べる有効な方法として利用されている

が、CeRu₂Si₂と関連物質であるLaRu₂Si₂や $4f$ 電子局在系であるCeRu₂Ge₂の実験結果を比較することにより、 f 電子の遍歴・局在性が議論されている^{45,46)}。

本研究では、上記と相補的な測定手法として高分解能コンプトンプロファイル(HRCP)の2次元再構成実験を行い、CeRu₂Si₂における f 電子の遍歴・局在性の変化を観測した。この実験・解析によって得られる2次元電子占有数密度において、測定を行なう観測面に垂直方向の電子密度については積分されているので、フェルミ面そのものを決定することは困難であるが、観測面に射影されたブリルアンゾーン内の各 k 点における密度を観測しているので、電子状態やその変化について全体像を捉えることができる。また、バンド計算の結果から、バンド毎の電子占有数密度を求めて実験結果と比較すれば、 f 電子状態の変化が、 k 空間のどこの位置で、どのバンドによって引き起こされているのかを検証することも可能である。

試料は、トリアーク炉を用いた引き上げ法で作成した単結晶試料で、磁化率測定により $T_K \approx 20$ Kを確認した。実験は、SPring-8のビームラインBL08Wにおいて行い、単結晶の[100]軸と[110]軸の間で等間隔に5方位のHRCPを、 T_K より低温の5 Kと十分高温である室温で測定した。得られたHRCPに対して2次元再構成解析を行なって観測面に射影された2次元運動量密度分布を求め、更にLCW解析を行なうことによって2次元電子占有数密度を導出した。これらの解析により求めたいのは、フェルミ面近傍の伝導電子についての情報であるが、物質中の全ての電子で同等にコンプトン散乱が起こるため、このままの電子占有数密度には、内殻電子や完全に占有されたバンドの寄与も含まれていることになる。内殻電子や占有バンドの電子は、あらゆる波数成分を持っているので、LCW解析を行なえば、原理的には、電子占有数密度の構造には寄与せず一様な分布となるはずである。しかし、実際の解析は、有限の運動量密度分布を用いて行なわれるため、得られる電子占有数密度には、伝導電子による構造の他に、内殻電子や占有バンドの影響と考えられる形状が重なって現れ、解析に用いる運動量密度分布の範囲を変えると、その形状まで変化してしまう。このような寄与を取り除き、伝導電子のみの電子占有数密度を求めるため、次のような解析を行なった。まず、5方位のHRCPを平均し、更に、平滑化した。この平均プロファイルを用いて同様の2次元再構成とLCW解析を行い、平均化された電子占有数密度を求めた。これを、本来の電子占有数密度から差し引くことにより、伝導電子のみの寄与を導出した。解析に用いる運動量密度分布の範囲を変えて求めた電子占有数密度を比較して、内殻電子や占有バンドによる形状が、上手く差し引かれていることを確認した。

Fig. 9に、解析の結果として得られた温度：(a) 5 Kと(b) 室温の2次元電子占有数密度を示す。顕著な変化が2次元に射影されたブリルアンゾーンの角に見られる。低温

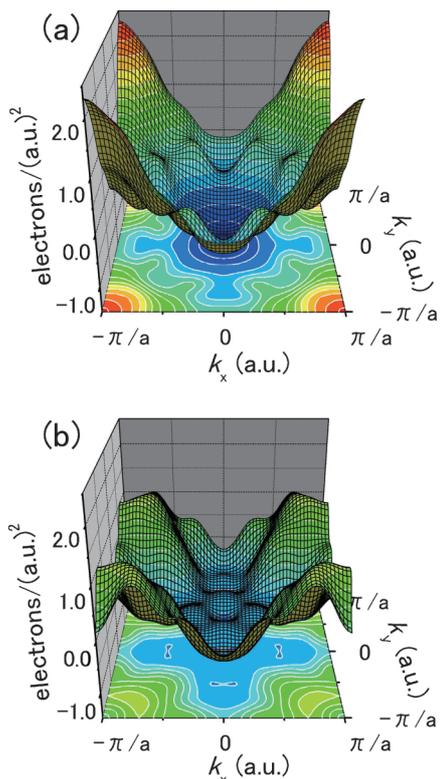


Fig. 9 (Color online) Two-dimensional electron occupation number densities of CeRu₂Si₂ obtained at (a) 5 K and (b) room temperature.

でピーク構造を示していた密度が、室温では大きく減少しているのが分かる。この変化は、低温で遍歴的であった f 電子が高温で局在したことを意味していると考えられるが、それを確かめるため、 f 電子を遍歴電子として扱ったモデルのバンド計算を行い、理論的な電子占有数密度との比較を行ってみた。計算で得られたバンド構造を見ると、フェルミ準位を横切る第14バンドと第15バンドは、フェルミ面の形成に寄与している。Fig. 10 に (a) 第14バンド、(b) 第15バンドおよび (c) フェルミ面の構造に関するバンドの和、それぞれについて求めた2次元電子占有数密度を示す。第14バンドの占有数密度に見られる凹みは、Z点周りのホール・フェルミ面由来の構造であり、第15バンドにおいてブリルアンゾーンの角に現れている柱状の構造は、X点を縦につなぐ方向に沿って伸びる電子・フェルミ面による寄与である。Fig. 10(c)の構造の大部分が、この2つのバンドによって説明され、Fig. 9(a)に示した低温の電子占有数密度に見られる構造をよく再現していることが分かる。バンド計算の結果によると、ブリルアンゾーン内の対称点のうちX点、P点では f 状態 ($l=3$) の電子の占有率が高い。これらの対称点の電子占有数密度は、2次元ブリルアンゾーンの角の位置に射影されることから、Fig. 9(a)のピーク構造は、第15バンドのCe- $4f$ 電子の遍歴状態を観測したものであり、室温においてこの構造

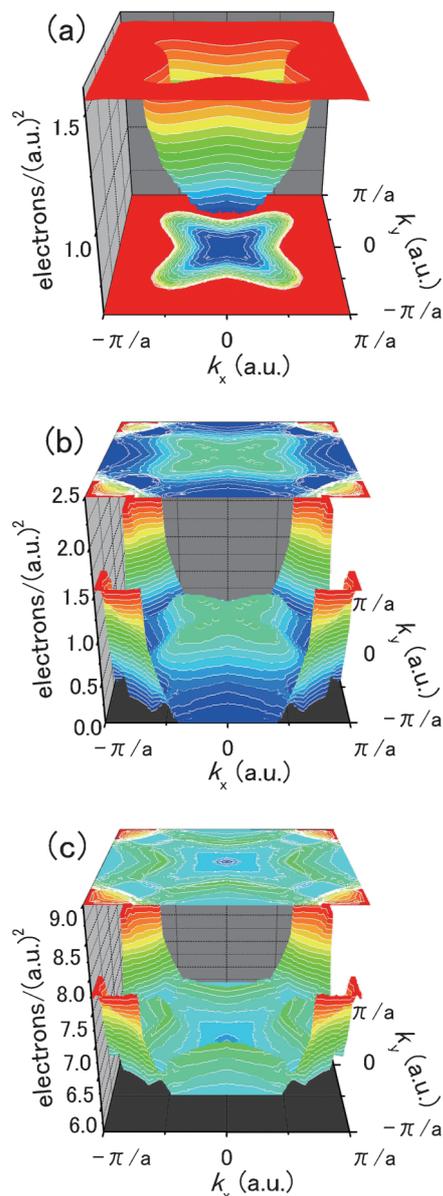


Fig. 10 (Color online) Two-dimensional electron occupation number densities of (a) the 14th, (b) the 15th, and (c) the sum total of relevant bands in CeRu₂Si₂ derived from the result of band calculation with a f electron itinerant model.

が縮小したことは、高温における f 電子の局在化を反映したものと説明される。

5.2 銅酸化物高温超伝導体におけるホール状態

超伝導は、物質を冷やしたときにある温度(超伝導転移温度)で電気抵抗が消失する現象である。1986年に発見された銅酸化物高温超伝導体は合金系超伝導体 Nb₃Ge の 23 K を大きく超える超伝導転移温度を示し、その後の物質開発の進展により、135 K の超伝導転移温度を示す物質が報告されている。合金系超伝導体の場合、その超伝導機構は BCS (Bardeen-Cooper-Schrieffer) 理論で説明できるが、100 K を超える転移温度は従来の BCS 理論で説明す

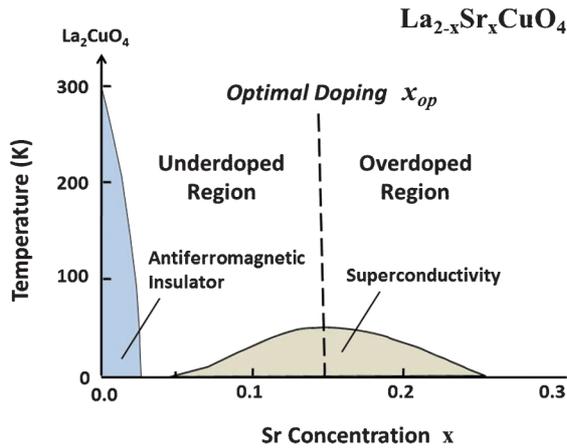


Fig. 11 (Color online) Phase diagram of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

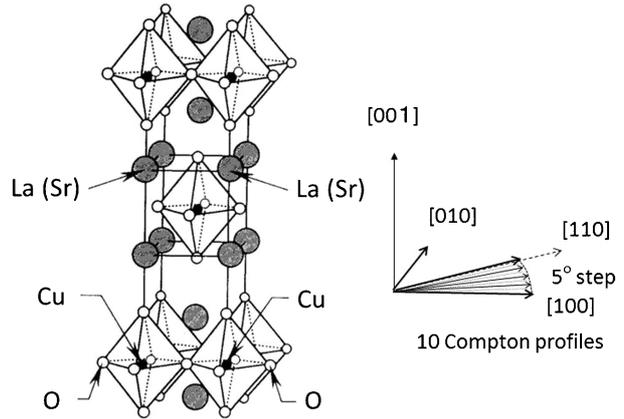


Fig. 12 Crystal structure of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

ることは難しいとされ、銅酸化物高温超伝導体は合金系超伝導体とは異なる機構で超伝導を発現していると考えられている。

銅酸化物高温超伝導体の謎のひとつは、相図上に現れるドーム型の形状をもつ超伝導領域である (Fig. 11)。 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (LSCO) は、絶縁体の La_2CuO_4 の La を Sr で置換することで超伝導になる。La と Sr の価電子数の違いを反映して、Sr 置換により平均価電子数が減少する。これは、ホールをドープすることと同じなので、Sr 置換のことをホール・ドープとよぶ。Fig. 11 にあるように、ホール・ドープ量と超伝導転移温度の関係はドーム型の形状をしており、37 K の最高転移温度を示す最適ドープ量 $x = 0.15$ を境にして、 $x < 0.15$ の領域をアンダー・ドープ領域、 $x > 0.15$ の領域をオーバー・ドープ領域とよぶ。高温超伝導機構を理解する上で、このドーム形状を説明できるモデルの構築が不可欠である。

LSCO の原子構造を Fig. 12 に示す。[001] に長い単位胞であるが、体心位置と 8 つの隅に、1 個の Cu 原子と 6 個の O 原子からなる八面体構造がある。この八面体の Cu 3d 軌道と O 2p 軌道がフェルミ準位近傍にあり、超伝導に関係していると考えられている。Cu 3d 軌道は上下に分裂し、その分裂した Cu 3d 軌道状態の間に O 2p バンドが位置している。上部の Cu 3d 軌道状態には電子は無く、下部の状態は電子が詰まっている。 $x = 0$ の La_2CuO_4 では、O 2p バンドは電子で詰まっているため、絶縁体である。Sr 置換するとホールがドープされ、ホールは八面体の水平面内にある O 2p 軌道に入る。その結果、Fig. 13 のように O 2p バンドの上端に電子が抜けた状態ができて金属的になる。アンダー・ドープ領域から最適ドープにかけて、O 2p バンドに入ったホールが超伝導を引き起こすことが解っているが、超伝導転移温度が降下し最終的には超伝導状態が消失するオーバー・ドープ領域ではどうなっているのかは解っていない。オーバー・ドープ領域では、ドープされたホール状態が超伝導状態を壊していると考えられる

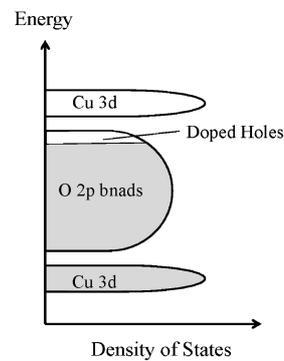


Fig. 13 Schematic view of electronic structure of $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.

ので、より高温での超伝導を実現するうえで、オーバー・ドープ領域でのホール状態の解明は重要になる。

実験では、LSCO ($x = 0.0, 0.08, 0.15, 0.30$) のそれぞれの単結晶試料について、[100] と [110] の間を等間隔に分割した計 10 方位のコンプトン・プロファイルを測定し (Fig. 12)、直接フーリエ法によって、[001] に沿って電子運動量密度を射影積分した 2 次元電子運動量密度分布を実験的に求めた。LSCO は 2 次元性が強いので、[001] に沿って射影積分しても電子構造の特徴は失われない。ホール・ドープ量 (x) が異なる 2 つの電子運動量密度分布の差をとることで、各領域においてドープされたホールの運動量密度分布を求めた。Fig. 14 にアンダー・ドープ領域 ($(x = 0.0) - (x = 0.15)$) とオーバー・ドープ領域 ($(x = 0.15) - (x = 0.30)$) におけるホールの運動量密度分布を示す⁴⁸⁾。アンダー・ドープ領域とオーバー・ドープ領域で分布が異なり、両領域間でホール状態が異なることを示している。原子軌道や分子軌道はそれぞれの軌道に固有の方位依存性を持っているので、ホールの運動量密度分布の特徴を [100]/[010] 方向と [110] 方向に分解し、2 つのタイプ (A-type と B-type) に分けることにしよう。A-type は [100]/[010] 方向、B-type は [110] 方向に沿って現れる運動量分布を与える (Fig. 15)。両タイプとも、オーバー・

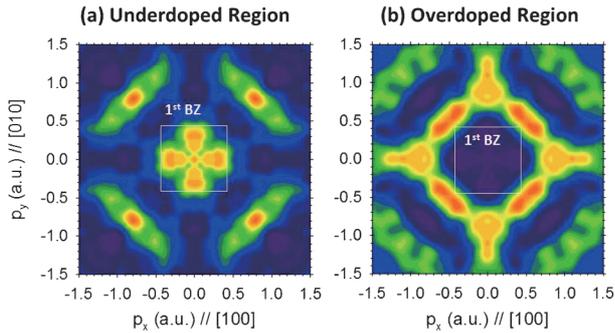


Fig. 14 (Color online) Momentum density distributions of doped holes in (a) underdoped region and (b) overdoped region. The square is the first Brillouin zone.

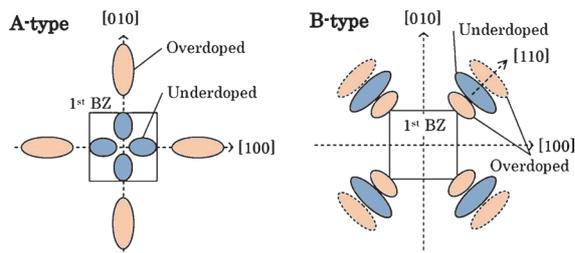


Fig. 15 (Color online) Schematic view of the A-type and the B-type features observed in Fig. 14.

ドーピング領域でドーピングされたホールは高運動量領域に入る。
 2つのタイプの電子運動量密度分布の特徴は分子軌道で説明できる。この2つの分子軌道を **Fig. 16** に示す。A-type は2つの $O\ 2p_x$ と2つの $O\ 2p_y$ からなる Zhang-Rice 状態⁴⁹⁾ と $Cu\ 3dx^2-y^2$ で作られる分子軌道で、B-type は2つの $O\ 2p_x$ と2つの $O\ 2p_y$ からなる Node-less 状態と $Cu\ 3dz^2$ からなる分子軌道である。Zhang-Rice 状態と Node-less 状態の違いは、 $O\ 2p$ 波動関数の位相 (+, -) にある (**Fig. 15** の下図)。Zhang-Rice 状態には、 $[110]$ 方向に沿って波動関数が0となる節 (node) があるが、Node-less 状態には同方向に沿って節はない。**Fig. 17** のAは Zhang-Rice 状態のみ、同Bは Zhang-Rice 状態と $Cu\ 3dx^2-y^2$ 軌道の混成状態の運動量密度分布を示し、**Fig. 17** のCは Node-less 状態のみ、同Dは Node-less 状態と $Cu\ 3dz^2$ 軌道の混成状態の運動量密度を示している。A-type、B-type とも、 $Cu\ 3d$ 軌道との混成により高運動量領域に重み移行し、実験結果を再現している。すなわち、ホールは、アンダー・ドーピング領域では $O\ 2p$ 軌道に入るが、オーバー・ドーピング領域では $Cu\ 3d$ 軌道に入ることを示している。

分子軌道計算は実験結果の全体的な特徴を説明しているが、詳細を再現できていない。一方、第1原理バンド理論計算はフェルミ準位近傍に x^2-y^2 と z^2 の両状態があることを示唆し、A-type と B-type の特徴を再現しているが、リジッド・バンド・モデルでは実験結果を再現できない。

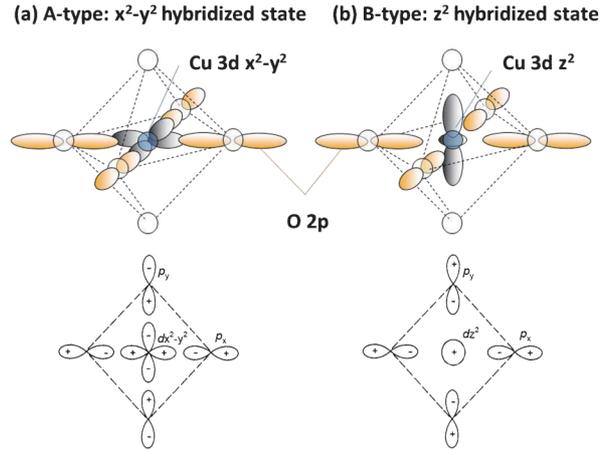


Fig. 16 (Color online) Molecular orbitals for A-type and B-type features: (a) A-type feature is associated with predominantly $Cu\ 3dx^2-y^2$ state, coupled with the molecular orbital of four $O\ 2p$'s to form the Zhang-Rice singlet; (b) B-type feature is assigned to $Cu\ 3dz^2$ state hybridized with the node-less molecular orbital of four $O\ 2p$'s.

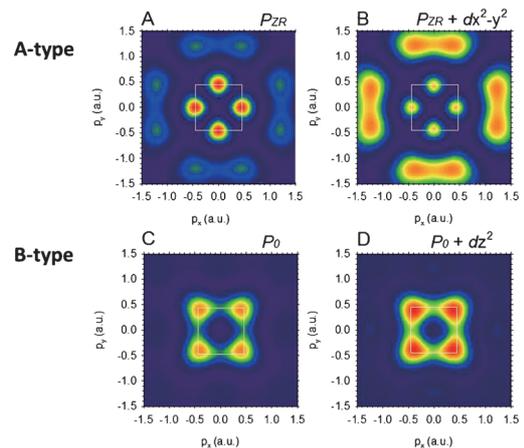


Fig. 17 (Color online) Directional symmetry of Cu-O octahedral molecular orbitals. Momentum density distributions of the molecular orbitals: (A) Zhang-Rice state formed by only $O\ 2p$ orbitals; (B) Zhang-Rice state hybridized with $Cu\ 3dx^2-y^2$; (C) Node-less state formed by only $O\ 2p$ orbitals; (D) Node-less state hybridized with $Cu\ 3dz^2$.

この理由は、分子軌道計算では5つの原子 ($Cu\ 1$ 個と $O\ 4$ 個) の軌道のみから電子構造変化を再現しようとしているため、第1原理バンド計算では結晶全体の原子を考慮するものの電子相関効果が適切に取り込まれていないためである。実験結果を詳細に説明するには、Zhang-Rice 1重項の形成を電子相関効果として取り込める第1原理バンド理論計算手法の開発が必要である。また、今回の解釈では取り入れていない Jahn-Teller 歪の影響やポーラロン・モデルの検討は今後の課題である。

6. おわりに

本稿では、コンプトン散乱と電子運動量密度について説明した後、最近の研究成果について解説した。第1節で述べたように、高分解能コンプトン散乱手法は入射 X 線の高エネルギー化路線に沿って発展し、SPring-8 と ESRF において、重元素を含む物質の測定が実現した。第5節で紹介した研究は、100 keV 以上の高エネルギー X 線を用いることで初めて可能になった実験例であり、今後、フェルミ面や軌道状態のイメージングによる重元素系物質の物性理解と制御に関する研究が進展するものと期待される。特に、コンプトン散乱は温度可変や電磁場下の測定が可能であり、パラメータを変える実験が多い物性研究と相性がよい実験手法であると言える。また、高エネルギー X 線を用いているため、容器中でのみ実現される極端条件下の測定が可能であり、既に、幾つかの研究が進行している。

今後の測定技術開発の方向性は、100 keV 以上の X 線利用を堅持しつつ、測定分解能を向上することである。現在稼働している Cauchois 型分光器において、現状を大きく越える高分解能化は難しいと思われる。一方、極低温超伝導検出器において大きな進展があり、超伝導転移端カロリメータ検出器において、25 eV@103 keV ($\Delta\hbar\omega_2$) の分解能が報告されている⁵⁰⁾。入射 X 線のエネルギー分解能 ($\Delta\hbar\omega_1$) 向上も同時に必要であるが、極低温超伝導検出器の開発により約3倍かそれ以上の分解能向上が期待できる。

第3節では、電子相関を十分に取込んでいない独立粒子モデルで電子運動量密度 $\rho(\mathbf{r})$ と電子占有数密度 $n_b(\mathbf{k})$ を説明した。このモデルでは $n_b(\mathbf{k}) = 1$ または $n_b(\mathbf{k}) = 0$ であるが、現実の電子系、特に電子相関の強い系では $n_b(\mathbf{k})$ は 0~1 の間の値をとる。この場合、

$$n_b(\mathbf{k}) = \int_{-\infty}^{E_F} A(\mathbf{k}, \omega) d\omega$$

となり、スペクトル関数 $A(\mathbf{k}, \omega)$ は電子相関を取り入れた電子構造モデルにより計算される。本稿で示したように、 $n_b(\mathbf{k})$ はコンプトン散乱実験により定量的に導き出せる。今後、電子相関モデルの検証に新たな進展がみられることに期待したい。

謝辞

本稿で取り上げた高分解能コンプトン散乱装置と研究成果は、塩谷亘弘、坂井信彦、伊藤文武、河田洋の各先生をはじめ、数多くの放射光研究者の努力と研究成果の上に成り立っている。特に、世界で最も安定な高エネルギー放射光 X 線を利用できる SPring-8 無くして、コンプトン散乱を語ることはできない。また、CeRu₂Si₂ の研究は兵庫県

立大の本山岳先生と日大の久保康則先生のグループとの共同研究として行われ、LSCO の研究は Northeastern 大学の ArunBainsl 教授、Bernardo. Barniellini 研究員のグループ、Ecole Centrale Paris の J.-M. Gillet 教授、東北大学の山田和芳先生のグループとの共同研究として行われた。また、本研究の一部は科学研究費補助金の助成を受けて行われた。

参考文献

- 1) P. A. M. Dirac: The Principles of Quantum Mechanics (Oxford University Press, 1958).
- 2) J. J. Sakurai: Modern Quantum Mechanics (Addison-Wesley, 1994).
- 3) A. H. Compton: Phys. Rev. **21**, 483 (1923).
- 4) P. Debye: Phys. Zeit. **24**, 165 (1923).
- 5) A. H. Compton: Phys. Rev. **22**, 409 (1923).
- 6) J. W. M. Du Mond: Phys. Rev. **33**, 643 (1929).
- 7) G. Loupiau and J. Petiau: J. Physique **41**, 265 (1980).
- 8) N. Shiotani, N. Sakai, F. Itoh, M. Sakurai, H. Kawata, Y. Amemiya and M. Ando: Nucl. Instrum. Methods **A275**, 447 (1989).
- 9) J. A. Berthold, J. Degenhardt, S. Mourikis, J. R. Schmitz, W. Schülke, H. Schulte-Schrepping, F. Wohlert, A. Hamacher, D. Protic and G. Riepe: Nucl. Instrum. Methods **A320**, 375 (1989).
- 10) 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).
- 11) P. Suortti, T. Buslaps, M. DiMichiel, V. Honkimäki, U. Lienert, J. McCarthy, J. Merino and A. Shukla: Nucl. Instrum. Methods **A 467/468**, 1541 (2001).
- 12) N. Hiraoka, T. Buslaps, V. Honkimäki and P. Suortti: J. Synchrotron Rad. **12**, 670 (2005).
- 13) N. Hiraoka, M. Itou, T. Ohata, M. Mizumaki, Y. Sakurai and N. Sakai: J. Synchrotron Rad. **8**, 26 (2001).
- 14) M. Itou and Y. Sakurai: AIP Conf. Proc. **705**, 901 (2004).
- 15) B. G. Williams (ed.): Compton Scattering, McGraw-Hill, New York, 1977.
- 16) M. J. Cooper, P. E. Mijnarends, N. Shiotani, N. Sakai and A. Bansil (eds): X-ray Compton Scattering, Oxford University Press, 2004.
- 17) W. Schülke: Electron Dynamics by Inelastic X-ray Scattering, Oxford University Press, 2007.
- 18) M. J. Cooper: Adv. Phys. **20**, 453 (1971).
- 19) I. R. Epstein: MTP International Review of Science, Physical Chemistry, Series II, Theoretical Chemistry, 107 (1975).
- 20) M. J. Cooper: Rep. Prog. Phys. **48**, 415 (1985).
- 21) J. J. Sakurai: Advanced Quantum Mechanics (Addison-Wesley, 1967).
- 22) P. Eisenberger and P. M. Platzman: Phys. Rev. B **2**, 415 (1970).
- 23) G. F. Chew and G. C. Wick: Phys. Rev. **85**, 636 (1952).
- 24) R. Ribberfors: Phys. Rev. B **12**, 2067 (1975); 3136 (1975).
- 25) P. Holm: Phys. Rev. A **37**, 3706 (1988).
- 26) P. E. Mijnarends: Phys. Rev. **160**, 512 (1967).
- 27) W. Schülke, G. Stutz, F. Wohlert and A. Kaprolat: Phys. Rev. **B54**, 14381 (1996).
- 28) N. K. Hansen: Reports of the Hahn-Meitner-Institut HMI B342 (1980).
- 29) A. M. Coramck: J. Appl. Phys. **34**, 2722 (1963); **35**, 2908 (1964).

- 30) G. Kontrym-Sznajd, R. N. West and S. B. Dugdale: Mater. Sci. Forum **255-257**, 796 (1997).
- 31) R. Suzuki, M. Osawa, S. Tanigawa, M. Matsumoto and N. Shiotani: J. Phys. Soc. Jpn. **58**, 3251 (1989).
- 32) Y. Tanaka, Y. Sakurai, A. T. Stewart, N. Shiotani, P. E. Mijnders, S. Kaprzyk and A. Bansil: Phys. Rev. B **63**, 045120 (2001).
- 33) Ch. Bellin, L. Dobrzyński, H. Kouba, G. Loupias and T. Buslaps: Z. Phys. Chem. **215**, 1367 (2001).
- 34) L. Dobrzyński and J. Waliszewski: J. Phys. Soc. Jpn. **72**, 2203 (2003).
- 35) P. Pattison, W. Weyrich and B. G. Williams: Solid State Commun. **21**, 967 (1977).
- 36) W. Weyrich, P. Pattison and B. G. Williams: Chem. Phys. **41**, 271 (1979).
- 37) D. G. Lock, V. H. C. Crisp and R. N. West: J. Phys. F **3**, 561 (1973).
- 38) A. Koizumi, A. Miyaki, Y. Kakutani, H. Koizumi, N. Hirao-ka, K. Hirota and Y. Murakami: Phys. Rev. Lett. **86**, 5589 (2001).
- 39) A. Koizumi, T. Nagao, N. Sakai, K. Hirota and Y. Murakami: Phys. Rev. B **74**, 012408 (2006).
- 40) S. Huotari, C. Sternemann, M. Volmer, J. A. Soininen, G. Monaco and W. Schülke: Phys. Rev. B **76**, 235106 (2007).
- 41) Y. Sakurai and M. Itou: J. Phys. Chem. Solids **65**, 2061 (2004).
- 42) A. Koizumi, G. Motoyama, Y. Kubo, T. Tanaka, M. Itou and Y. Sakurai: Phys. Rev. Lett. **106**, 136401 (2011).
- 43) Y. Ōnuki, I. Umehara, A. K. Albessard, T. Ebihara and K. Satoh: J. Phys. Soc. Jpn. **61**, 960 (1992).
- 44) H. Yamagami and A. Hasegawa: J. Phys. Soc. Jpn. **62**, 592 (1993).
- 45) M. Yano, A. Sekiyama, H. Fujiwara, Y. Amano, S. Imada, T. Muro, M. Yabashi, K. Tamasaku, A. Higashiya, T. Ishikawa, Y. Ōnuki and S. Suga: Phys. Rev. B **77**, 035118 (2008).
- 46) T. Okane, T. Ohkochi, Y. Takeda, S.-I. Fujimori, A. Yasui, Y. Saitoh, H. Yamagami, A. Fujimori, Y. Matsumoto, M. Sugi, N. Kimura, T. Komatsubara and H. Aoki: Phys. Rev. Lett. **102**, 216401 (2009).
- 47) J. G. Bednorz and K. A. Müller: Z. Physik B **64**, 189 (1986).
- 48) Y. Sakurai, M. Itou, B. Barbiellini, P. E. Mijnders, R. S. Markiewicz, S. Kaprzyk, J.-M. Gillet, S. Wakimoto, M. Fujita, S. Basak, Yung Jui Wang, W. Al-Sawai, H. Lin, A. Bansil and K. Yamada: Science **332**, 698 (2011).
- 49) F. C. Zhang and T. M. Rice: Phys. Rev. B **37**, 3759 (1988).
- 50) W. B. Doriese, J. N. Ullom, J. A. Beall, W. D. Duncan, L. Ferreira, G. C. Hilton, R. D. Horansky, K. D. Irwin, J. A. B. Mates, C. D. Reintsema, L. R. Vale, Y. Xu and B. L. Zink: Appl. Phys. Lett. **90**, 193508 (2007).

著者紹介



小泉昭久

兵庫県立大学大学院物質理学研究科・准教授

E-mail: akihisa@sci.u-hyogo.ac.jp

専門：放射光物性

【略歴】

1992年岡山大学大学院自然科学研究科物質科学専攻博士課程終了，博士（理学），姫路工業大学理学部助手，兵庫県立大学助手を経て2007年より現職。2003年より高輝度光科学研究センター外来研究員兼務。



櫻井吉晴

高輝度光科学研究センター利用研究促進部門・副主席研究員

E-mail: sakurai@spring8.or.jp

専門：非弾性 X 線散乱，物性物理

【略歴】

1988年東京大学大学院工学系研究科金属工学専攻博士課程修了，工学博士，東京大学生産技術研究所助手，理化学研究所研究員，高輝度光科学研究センター主幹研究員を経て2006年より現職。



伊藤真義

高輝度光科学研究センター利用研究促進部門・副主席研究員

E-mail: mito@spring8.or.jp

専門：非弾性 X 線散乱，X 線計測

【略歴】

1998年総合研究大学院大学数物科学研究科博士課程修了，博士（理学），同年，高輝度光科学研究センター協力研究員を経て，2000年より現職。

Recent progress in the study of electronic states by means of Compton scattering

Akihisa KOIZUMI Graduate School of Material Science, University of Hyogo,
Hyogo 678-1297, Japan

Masayoshi ITOU Japan Synchrotron Radiation Research Institute and SPring-8,
Hyogo 679-5198, Japan

Yoshiharu SAKURAI Japan Synchrotron Radiation Research Institute and SPring-8,
Hyogo 679-5198, Japan

Abstract Electrons in materials are moving. Since Compton scattering is elastic collision between an X-ray photon and an electron, one can obtain information about electron motion by the analysis of Compton scattered x-rays. Therefore, Compton scattering is used as a tool for investigating the electronic state of materials. In this article, we explain how to derive electron momentum density and Fermi surface from Compton profile measurement and its analysis, and subsequently introduce the recent findings on heavy fermion material CeRu_2Si_2 and cuprate superconductor $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$.