

X線コンプトン散乱で観る銅酸化物高温超伝導体：指向性を持って運動する電子

山瀬 博之*¹
Yamase Hiroyuki

櫻井 吉晴*²
Sakurai Yoshiharu

はじめに

X線は、胸部レントゲン写真をはじめとする医療分野、空港での手荷物検査等に広く活用されている。これらはX線の透過性を利用したものである。結晶構造解析にもX線が用いられているが、それはX線の回折現象を利用したものである。また蛍光X線は元素分析で広く利用されている。ところで、X線は物質内の電子によって散乱されエネルギーが変化することもある。これはコンプトン散乱と言われるが、爆薬や麻薬等の有機物の検出に威力を発揮し、空港での手荷物検査で利用されている¹⁾。本稿ではコンプトン散乱を用いた物性測定の例を紹介したい。

1. X線コンプトン散乱とフェルミ面

図1(a)に示すように、X線と電子との散乱によっ

て、それらのエネルギーと運動量が共に変化する。散乱されたX線には、元々の電子が持っていた運動量の情報が反映されている。その情報はコンプトンプロファイルという量で与えられ、物質中の電子の運動量分布 $n(\mathbf{k})$ で記述される。多くの金属での典型的な $n(\mathbf{k})$ を図1(b)に示した。 $n(\mathbf{k})$ はある波数 k_F を境にして急激に変化する特徴がある。この k_F が波数ベクトル空間内で描く曲面をフェルミ面と呼ぶ。その形状は、物質中の電子の運動を反映するため電子という微視的なレベルで物質を理解する上で非常に重要なものとして認識されており、固体物理学の教科書の始めに出てくる基礎概念である²⁾。このようなフェルミ面をコンプトン散乱によって観測できる訳である。しかし、コンプトン散乱では物質中のすべての電子からの寄与を測定する。フェルミ面を形成しない電子はすべての \mathbf{k} でほぼ同じ $n(\mathbf{k})$ を与え、フェルミ面を形成する電子の

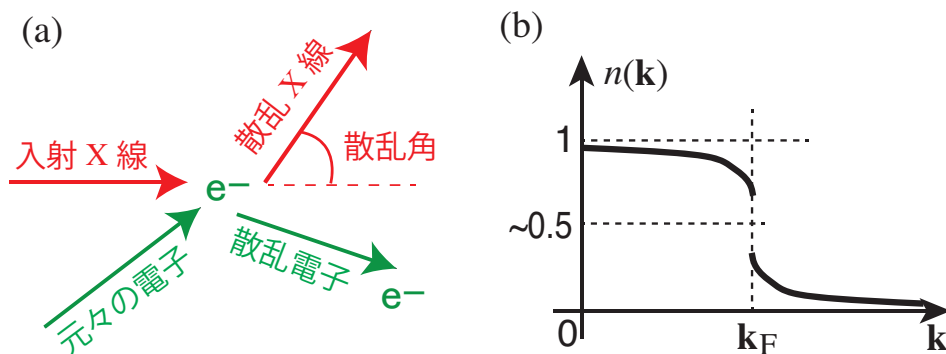


図1 (a) コンプトン散乱。X線が電子によって散乱される過程。(b) 典型的な金属での電子運動量分布 $n(\mathbf{k})$ 。銅酸化物高温超伝導体では、 k_F 近傍で $n(\mathbf{k}) \sim 0.5$ であると期待されるが、 k_F から離れた時に実際に $n(\mathbf{k})$ の値がどの程度、1又は0に近づくのかは不明である。更に、 k_F で $n(\mathbf{k})$ がジャンプを示すか否かも不明である

みが図1(b)のような振る舞いを示す。したがって、 $n(\mathbf{k})$ のわずかな変化を検出する必要がある。そのためには、高強度高エネルギーの単色X線が必要になり、高い技術と特別な実験施設が要求される。現在、そのようなスペックを満たす施設は、世界的にも我が国の大型放射光施設 SPring-8 に限られる。

2. 銅酸化物高温超伝導体

銅酸化物高温超伝導体は1986年に発見され、その高い超伝導転移温度(大気圧下では135 Kが最高)の起源の解明に向けて現在まで継続的に研究が行われている^{3,4)}。銅酸化物高温超伝導体は、銅と酸素からなる平面(CuO₂面と呼ばれる)がxy方向に広がり、それが他の元素からなる層を介してz方向に積層した層状構造物質である。超伝導はCuO₂面内の電子によって引き起こされる。したがって、この電子が形成するフェルミ面は2次元であることが容易に想像できるが、実際に過去35年間に蓄えられた膨大なデータによって支持されていると信じられてきた(図2(a)を参照)。銅酸化物高温超伝導体の転移温度はキャリア濃度によって制御されるが、実際、キャリア濃度が大きい領域において2次元なフェルミ面が実現していることは確かであ

る⁵⁾。しかし、最高の超伝導転移温度を実現するキャリア濃度を含めて、より低キャリア濃度領域では、フェルミ面の一部しか明確に観測されていなかった。そして、それらの断片は背後にあるであろう2次元なフェルミ面の一部として解釈されてきた。

既に述べたようにコンプトン散乱を用いれば、原理上、すべての波数ベクトル領域でフェルミ面を観測できる。そこで、比較的単純な結晶構造であるLa系銅酸化物La_{2-x}Sr_xCuO₄を選び、 $x = 0.08$ の低キャリア濃度試料に対してコンプトン散乱実験を行い、運動量分布を測定した⁶⁾。その結果が図3である。結晶中の1個の電子の量子状態を指定する波数ベクトル \mathbf{k} の領域は、 $-\pi \leq k_x, k_y \leq \pi$ で与えられ、 $\mathbf{k} = (0, 0)$ 近傍は精度が悪いので除いてある。一見すると2次元的な分布に見えるが、果たしてどうであろうか。

3. 従来の考え方に基づく解析

図1(b)に示したように、フェルミ面上に沿って $n(\mathbf{k})$ の値はだいたい一定(通常は0.5程度)になる。波数ベクトル領域の第一象限に着目して、確からしいと信じられているフェルミ面を重ねたものが図2(c)である。 $\mathbf{k} \approx (0.45\pi, 0.45\pi)$ 近傍では、フェルミ面に沿って $n(\mathbf{k})$ の値はほぼ一定(黄色)であ

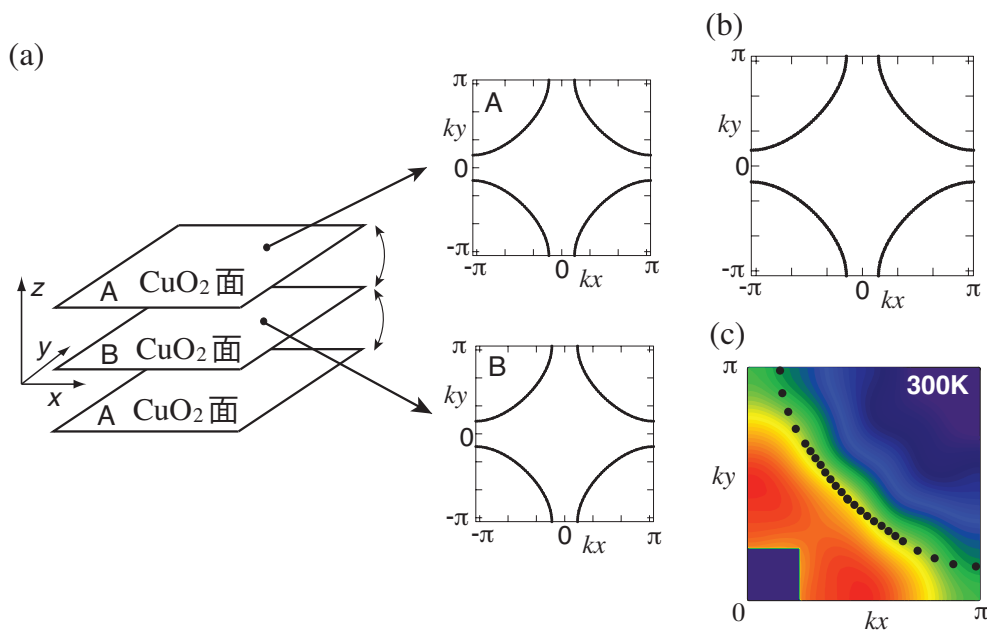


図2 従来の考え方。(a) 各CuO₂では2次元なフェルミ面が実現し、それがz方向に積層した電子構造。(b) 面間の電子運動も考慮した時のフェルミ面。(c) 観測した運動量分布とフェルミ面の比較

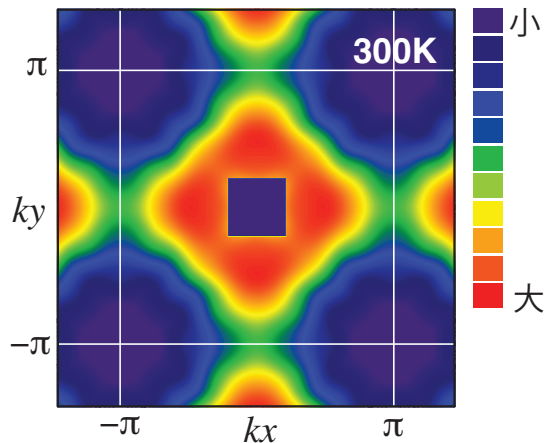


図3 室温 300 K で観測した電子の運動量分布。キャリア濃度は $x=0.08$ ，つまり 8% である

り期待どおりである。しかし、 $\mathbf{k} \approx (0.2\pi, 0.7\pi) - (0.1\pi, \pi)$ の領域では、フェルミ面上に沿って $n(\mathbf{k})$ の値は黄色から緑色へと変化している。一方、図 1(b) に示したように、フェルミ面近傍では $n(\mathbf{k})$ の微係数は大きくなる。そこで、図 3 の微分のデータとの比較も行った。すると、そもそも従来のフェルミ面とは異なる曲率を持つフェルミ面の存在が示唆されてしまうことが分かった。更に、同じ測定を温度 150 K でも行ったが、 $\mathbf{k} \approx (0.45\pi, 0.45\pi)$ 近傍を除いて、従来信じられてきた 2 次元的なフェルミ面では $n(\mathbf{k})$ を理解することは難しいことが分かった。

フェルミ面の形状が理解できないことは根源的なレベルの問題である。従来のフェルミ面の形状は、角度分解光電子分光で決定されたものである⁵⁾。 $\mathbf{k} \approx (0.45\pi, 0.45\pi)$ 近傍ではシグナルが明瞭であったので、その近傍でのフェルミ面は正しいはずである。実際、それは本コンプトン散乱実験でも支持される。しかし、 $\mathbf{k} \sim (0, \pi), (\pi, 0)$ 近傍では、角度分解光電子分光のスペクトラムが非常にブロードになり、フェルミ面の位置の決定は容易ではなかった。そこで、ブロードなスペクトラムデータと矛盾しないように、 $\mathbf{k} \approx (0.45\pi, 0.45\pi)$ 近傍で決めたフェルミ面の一部を $\mathbf{k} \sim (0, \pi), (\pi, 0)$ 方向へとスムーズに繋げたものを全体のフェルミ面として提案したのであった。2 次元的なフェルミ面を信じる限り、非常に妥当な提案であり、それがゆえに過去 35 年間に渡って多くの研究者によって信じられてきたと

言える。しかし、それでは図 2(c) に示したようにコンプトン散乱の実験結果と整合しないのである。

4 電子ネマティック不安定性に基づく解析

銅酸化物高温超伝導体の電子状態は、特に低キャリア濃度領域で、 x 又は y 方向への指向性を持つ傾向が強くなる（電子ネマティック不安定性という）、という可能性が 2000 年に理論的に提案されていた。また、近年、Y 系、Bi 系という他の銅酸化物で 1 次元的な電子運動の可能性が実験的に示唆されるようになってきた⁷⁾。特に、La 系銅酸化物では、結晶構造との結合を通じて、図 4(a) に示すように k_x 又は k_y 方向に大きく引き伸ばされたフェルミ面が面間に沿って交互に積層することが期待される。面間にも弱いながらも電子の運動は存在するので、最終的なフェルミ面は、図 4(b) に示したように、それらのフェルミ面を重ね合わせたもので形成される。したがって、黒色と紫色で示した 2 つのフェルミ面が存在する。このフェルミ面をコンプトン散乱で観測した運動量分布に重ね合わせたのが図 4(c) である。内側のフェルミ面に沿って、 $n(\mathbf{k})$ は一定(図中黄色)となりよく一致する。外側のフェルミ面は、ほぼ緑色の領域に位置している。 $\mathbf{k} = (0.3\pi, 0.9\pi), (0.9\pi, 0.3\pi)$ 近傍でフェルミ面上に沿って緑色から青色に変化しているように見えるが、 $n(\mathbf{k})$ の微係数の大きさはそこでは非常に小さいことが確かめられるので、図 1(b) で説明したように、フェルミ

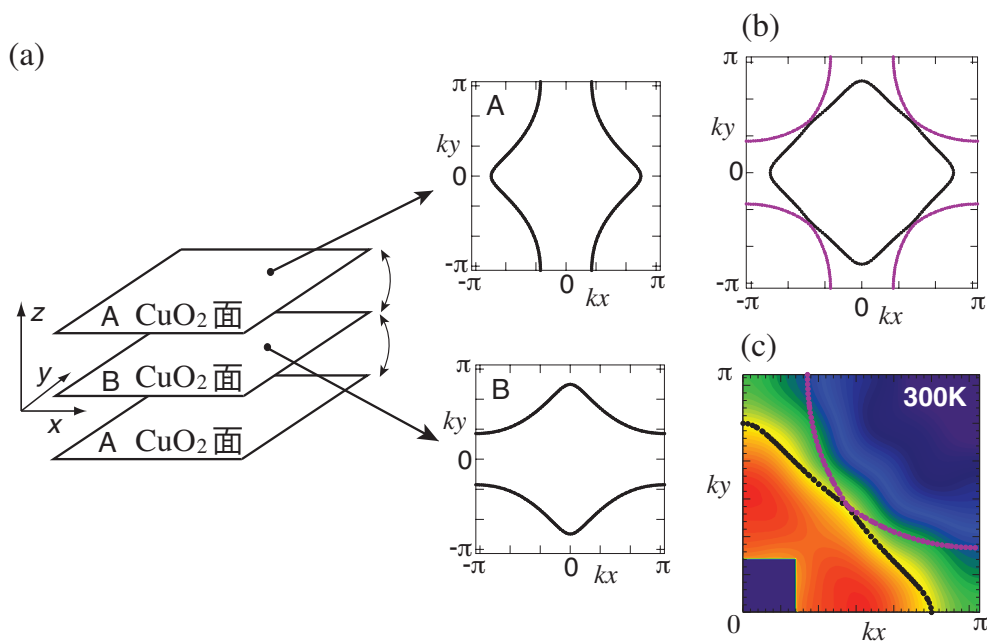


図4 電子ネマティックシナリオの場合。(a) 電子運動の指向性が面間で90度異なる状態が実現した時のフェルミ面。(b) 面間の電子運動を考慮した時のフェルミ面。(c) 測定した運動量分布とフェルミ面の比較

面上に沿って $n(\mathbf{k})$ はほぼ一定であるという基礎的な性質を満たしていると言える。同様な解析を温度 150 K でも行い、図4に示した1次元的な電子運動で、温度依存性も含めて、正しく $n(\mathbf{k})$ のデータを理解できることが確かめられた。更に、Sr 濃度 x を大きくしてキャリア濃度を大きくすると、既に確立した従来の2次元的なフェルミ面に近づくことが期待されるが、それも $x = 0.15$ と 0.30 で同様な実験を行うことで確かめられた。

5. まとめ

1986年の発見以来、2次元的な電子運動をしていると信じられてきた銅酸化物高温超伝導体の電子状態であるが、キャリア濃度が比較的低い領域では1次元的な電子の運動が生じていることをX線コンプトン散乱によって観測した。コンプトン散乱の活用例は、物質科学研究の中では決して多くない。しかし、今回の実験で示されたように、他の測定手段では長い間、明確にできなかったことを明らかにできることもある。実際、火炎の温度測定⁸⁾、コイン電池内部の可視化⁹⁾等でも威力を発揮しつつある。コンプトン散乱の今後の活用を期待したい。

謝辞

本研究は、東北大学金属材料研究所の藤田全基先生、日本原子力研究開発機構の脇本秀一先生、高エネルギー加速器研究機構の山田和芳先生と共同で実施しました。山瀬は、JSPS 科研費 JP20H01856 及び JST 未来社会創造事業 JPMJMI18A3 による支援によって本研究を進めることができました。

参考文献

- 1) 松田順, *Isotope News*, **707**, 49(2013)
- 2) アシユクロフト, マーミン, 固体物理の基礎 (上・I), 吉岡書店 (1981)
- 3) 内野倉國光他, 高温超伝導体の物性, 培風館 (1995)
- 4) B. Keimer, *et al.*, *Nature*, **518**, 179(2015)
- 5) T. Yoshida, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 011006(2012)
- 6) H. Yamase, *et al.*, *Nat. Commun.*, **12**, 2223(2021)
- 7) H. Yamase, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **90**, 111011(2021)
- 8) H. Sakurai, *et al.*, *J. Synchrotron Radiat.*, **23**, 617(2016)
- 9) N. Tsuji, *et al.*, *J. Synchrotron Radiat.*, **28**, 1174(2021)

(*¹(国研)物質・材料研究機構, *²(公財)高輝度光科学研究センター)