

X線ラマン散乱：共鳴と非共鳴

(東北大多元研・大学院環境科学研究科) 宇田川康夫

【序】 X線によっても可視光によると同様、入射波とは異なるエネルギーの電磁波が放出される現象、すなわち非弾性散乱が起こる。散乱を引き起こす電子を自由電子とみなせる場合が科学史上有名なコンプトン散乱であり、そうでない場合を本講演では一括してX線ラマン散乱と呼ぶことにする。非相対論の下では電子と電磁波の相互作用は次のハミルトニアンで記述される。

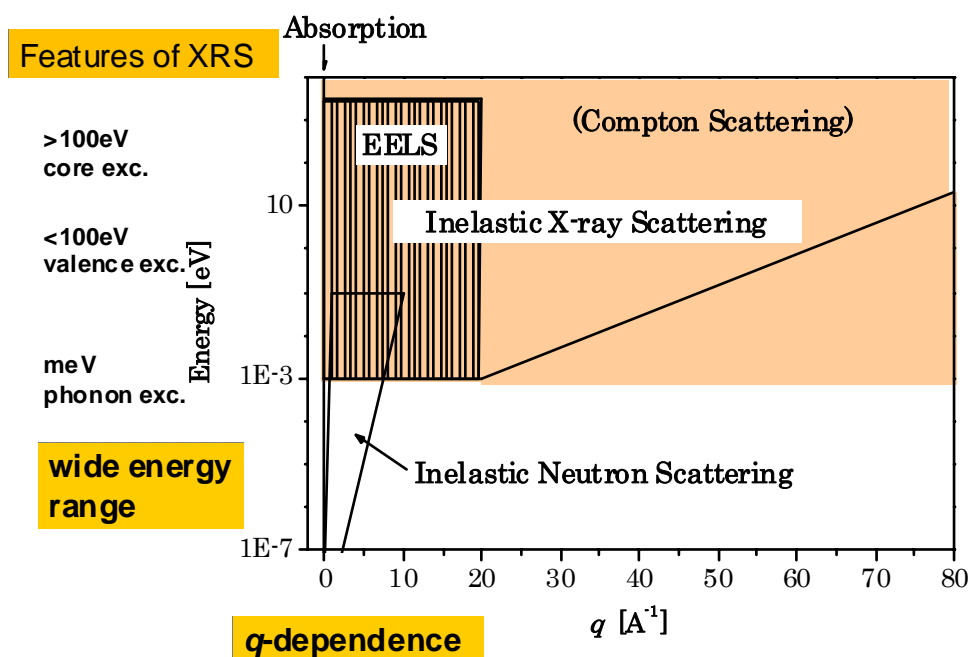
$$H' = \sum_j \frac{e}{mc} p_j \mathbf{A}_j + \sum_j \frac{e^2}{2mc} \mathbf{A}_j^2$$

ここで \mathbf{A} は電磁波のベクトルポテンシャルであり、 \mathbf{p} は電子に対する運動量演算子である。可視光のラマン散乱はこの第一項で記述され、共鳴効果を示すことはよく知られており、それはX線領域においても同様である。第二項は可視光の場合波長が電子の拡がりよりずっと長いので無視できるが波長の短いX線ではこの項から非共鳴X線ラマン散乱がおきる。X線ラマン散乱の存在については古くから論争があり、上記のような理解に到る過程では我国の研究者が大きな役割を果たしたことは特筆に値する[1, 2]。しかし、散乱強度の弱さから物性研究への応用は遅れ、共鳴[3]・非共鳴[4]散乱ともにエネルギー可変で強力な放射光の利用によってはじめて可能となった。

X線ラマン散乱の特徴は 1. 広いエネルギー領域(0-数百eV)にわたって 2. エネルギー移行と運動量移行の2つをパラメータとした分光ができることである。たとえば

1meV以下の分解能で数十 nm^{-1} の移行運動量範囲でフォノンの分散を測定する、あるいは数eVの分解能で数百eVの範囲のEXAFS振動を測定する等が可能である。他の非弾性散乱分光との比較を右図に示す。

実験上の利点

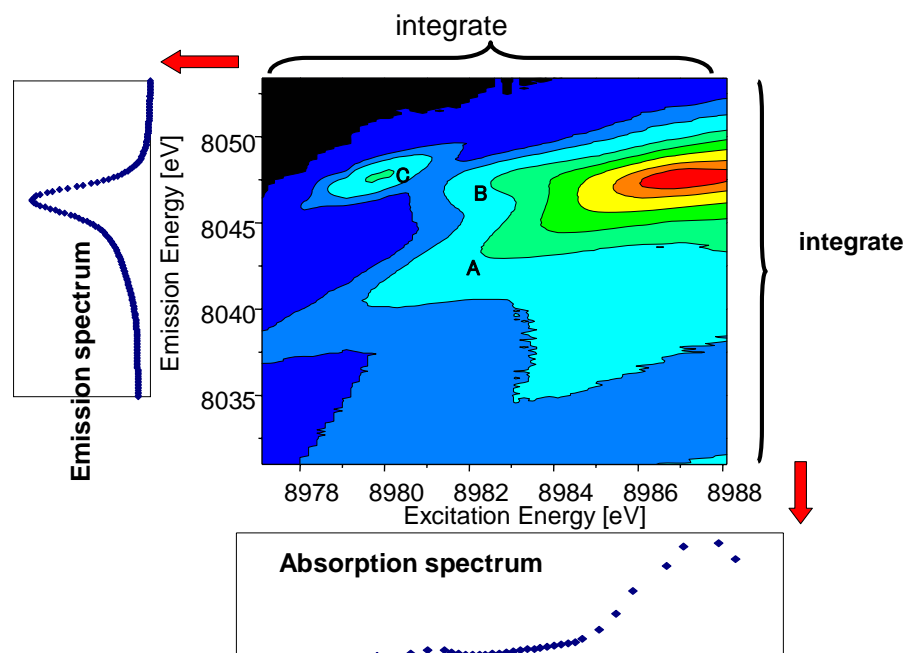


としては硬X線を使用するため試料に対する制限が少ないことがあげられるがその一方、試料との相互作用が弱い、すなわち散乱強度が小さいことが弱点である。

【実験】微弱なX線ラマン散乱の測定のため、励起には放射光を用いる必要があり、また、分光器および検出器には感度・分解能をあげるために様々な試みがなされている。本講演ではそのいくつかの例を紹介する。

【結果】下図に示すものは共鳴X線ラマン散乱の例として、CuOからの散乱強度を励起エネルギーおよび散乱光エネルギーをx,y軸として等高線表示したものである[5]。対角線方向に走る成分とx軸に平行な成分の存在が明らかである。この図が表わす強度をy軸に沿って積分してx軸に投影したものが通常的吸收(励起)スペクトルであり、x軸に沿って

積分したものをy軸に投影したものが発光スペクトルであるから、その両者に比してこの図がより多い情報を持つことは明らかであろう。当日は、こうした共鳴および非共鳴X線ラマン散乱スペクトルが包含する情報について述べる。



【謝辞】本研究は分子科学研究所においての田路和幸現東北大教授との共同研究から始まり、東北大科研-多元研において林久史現日本女子大准教授によって大きく発展したものである。この研究に参画した多くの大学院生および測定が行われた Photon Factory, SPring-8 および NSLS (米国) の関係の方々に深く感謝したい。

[1] T.Suzuki, J.Phys.Soc.Jpn. (1966) 21,2087, ibid, (1967)22,1139.
[2] Y.Mizuno and Y.Ohmura, J.Phys.Soc.Jpn. (1967)22, 445.
[3] P.Eisenberger, P.M.Platzman, and H.Winick, Phys.Rev.B (1976) 13, 2377, Phys.Rev.Lett. 36, 623.
[4] Tohji and Y.Udagawa, Phys.Rev.B (1987) 36, 9410, ibid,(1989) 39, 7590.
[5] H.Hayashi et al. Phys.Rev.B (2003) 68, 045122(2003).