

X線吸収、X線共鳴ラマン散乱と Kramers-Heisenberg 式

(東北大・多元研)○林 久史・武田 留美・川田 雅輝・宇田川 康夫

【非弾性散乱と Kramers-Heisenberg の式】光子の非弾性散乱としては可視・紫外光のラマン散乱が有名だが、X線領域にも共鳴・非共鳴の非弾性散乱が存在する。X線の非共鳴非弾性散乱は、光学的ラマン散乱にはほとんど寄与しない、ベクトルポテンシャルの二乗の一次摂動による。一方、共鳴X線非弾性散乱 (Resonant inelastic x-ray scattering: RIXS) は、光学的ラマン散乱同様、運動量とベクトルポテンシャルの積の二次摂動によるもので、その散乱強度 I は基本的に Kramers-Heisenberg 式:

$$I(\omega_1, \omega_2) \propto \sum_f \left| \sum_m \frac{\langle f | H_{PA} | m \rangle \langle m | H_{PA} | i \rangle}{\hbar\omega_1 + E_i - E_m - i\left(\Gamma_m/2\right)} \right|^2 \times \delta(\hbar\omega_1 - \hbar\omega_2 + E_i - E_f) \quad (1)$$

で記述される。ここで $\hbar\omega_1$ と $\hbar\omega_2$ は入射X線と散乱X線のエネルギー、 E_i, E_m, E_f はそれぞれ始状態 $|i\rangle$ 、中間状態 $|m\rangle$ 、終状態 $|f\rangle$ のエネルギー、 H_{PA} は系とX線の相互作用ハミルトニアン、 Γ_m は中間状態の寿命幅である。ここでは簡単のため、終状態の寿命幅は無視している。(1)式による散乱は、定性的には「光吸収による始状態から中間状態への励起」と、それに続く「発光を伴う中間状態から終状態への遷移」と解釈できる。

基本式は同じだが、光学的共鳴ラマン散乱と RIXS では、励起準位のエネルギー幅に大きな違いがある。RIXS が関与する電子準位の幅は広く、中間状態の寿命が短いため、状態間の干渉の影響が小さい。また図 1 に模式的に示した、「 $1s \rightarrow$ 空準位(吸収) + $2p \rightarrow 1s$ ($K\alpha$ 発光)」のような RIXS では、終状態の空孔($2p^{-1}$)と空準位とのエネルギー差は大きく(後述の Cu では 1keV 近い)、両者の強い相互作用は考えにくい。このような $1s2p(K\alpha)$ -RIXS については、(1)式は以下のような、見通しのよい式に近似できる:¹⁾

$$I(\omega_1, \omega_2) \propto \frac{(dg_{1s}/d\omega)_{\omega=\omega_{K\alpha}+\omega_1-\omega_2}}{(\omega_2 - \omega_{K\alpha})^2 + \Gamma_{1s}^2/4\hbar^2} \quad (2)$$

ここで、 $\hbar\omega_{K\alpha}$ は $K\alpha$ 線のエネルギー、 $dg_{1s}/d\omega$ は $1s$ 電子の空準位への遷移に関する振動子強度分布、 Γ_{1s} は $1s$ 空孔の寿命幅である。(2)式で記述される RIXS スペクトルは、 $dg_{1s}/d\omega$ とローレンツ関数 $\left((\omega_2 - \omega_{K\alpha})^2 + \Gamma_{1s}^2/4\hbar^2\right)^{-1}$ の単なる積であり、「散乱」と「吸収」間に 1 対 1 の対応がある。よって吸収スペクトルから散乱スペクトルを、逆に散乱スペクトルから吸収スペクトルを構築することが

できる。ここで重要なのは、(2)式を通じて得られる吸収スペクトル(=振動子強度)は、通常の吸収実験では不可避の分解能制限因子 Γ_{1s} でコンボリュートされていないことである。つまり(2)式が成立すれば、1s2p(K α)-RIXSを利用して、寿命幅による分解能制限のない、高分解能吸収スペクトルが得られるわけである。

【CuOの1s2p-RIXSと寿命幅フリー1s吸収スペクトル】図2にCuOの1s2p-RIXSスペクトルと、これら実験値から(2)式を用いて導出した $dg_{1s}/d\omega$ を示す。²⁾1s2p-RIXSは、図中に示した励起エネルギーに応じて複雑な変化をしているが、それぞれのRIXSから得られた $dg_{1s}/d\omega$ はほぼ完全に重なっている。またそのプロファイルは、通常の1s吸収より明らかにシャープである。図には示していないが、この逆、すなわちあるひとつの $dg_{1s}/d\omega$ を仮定して、RIXSの励起エネルギー依存性を全て再現することもできる。²⁾この結果は、少なくともCuOの1s2p-RIXSについては、(2)式の近似が大変よく成り立っていること、従ってそこから「寿命幅フリー吸収」が導出できることを明示している。講演では、他のCu化合物についての結果や、ランタノイドの2p3d(L α)-RIXSについても述べる予定である。

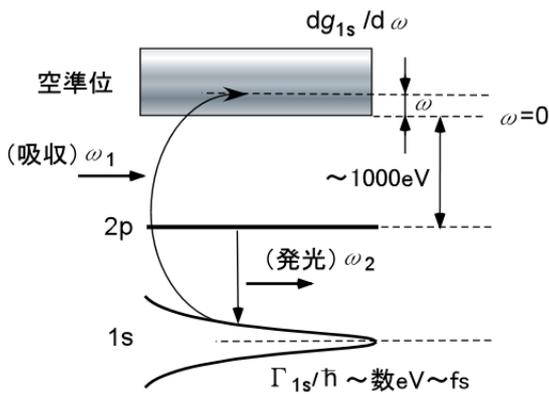


図1 1s2p-RIXS過程

文献

- 1) J. Tulkki and T.Åberg, J. Phys. B **15**, L435 (1982).
- 2) H. Hayashi, R. Takeda, Y. Udagawa, T. Nakamura., H. Miyagawa, H. Shoji, S. Nanao and N. Kawamura, Phys. Rev. B (2003) in press.

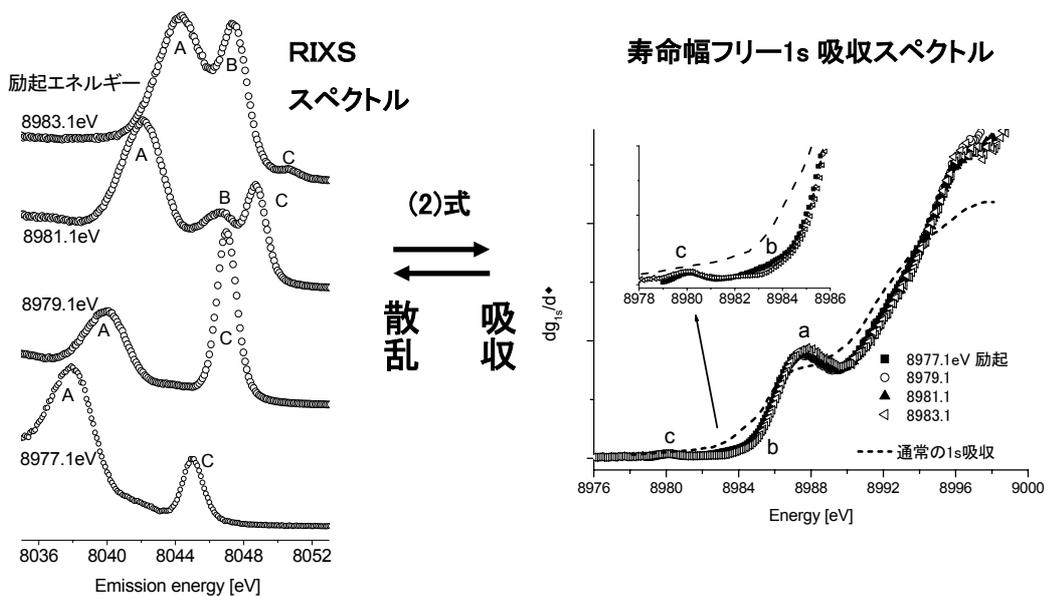


図2 CuOのRIXSと寿命幅フリー1s吸収スペクトル