



Universiteit  
Leiden  
The Netherlands

## Resonant inelastic x-ray scattering studies of elementary excitations

Ament, L.J.P.

### Citation

Ament, L. J. P. (2010, November 11). *Resonant inelastic x-ray scattering studies of elementary excitations*. *Casimir PhD Series*. Retrieved from <https://hdl.handle.net/1887/16138>

Version: Not Applicable (or Unknown)  
License: [Leiden University Non-exclusive license](#)  
Downloaded from: <https://hdl.handle.net/1887/16138>

**Note:** To cite this publication please use the final published version (if applicable).

---

# SAMENVATTING

---

Dit proefschrift gaat over resonante inelastische Röntgenverstrooiing ('RIXS', voor het Engelse *Resonant Inelastic X-ray Scattering*). RIXS is een techniek waarmee men, onder andere, de eigenschappen van materialen kan onderzoeken. Dit gebeurt door een soort Röntgenfoto te maken in een synchrotron. Dat is een gigantische, ringvormige deeltjesversneller met een omtrek van honderden meters die zeer intense Röntgenstraling produceert. Deze Röntgenfoto wordt vervolgens vergeleken met berekeningen op basis van verschillende modellen van het materiaal. Zo kan men modellen voor een materiaal falsificeren.

Een belangrijke categorie materialen die vaak onderzocht wordt met RIXS is die van de sterk gecorreleerde elektronmaterialen. Een voorbeeld hiervan zijn de supergeleiders met een hoge kritische temperatuur, zoals  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , die een stroom geleiden zonder weerstand als ze worden gekoeld beneden de zogenaamde kritische temperatuur, ver onder nul graden Celsius. In dit proefschrift komen een aantal sterk gecorreleerde elektronmaterialen aan bod, elk met zijn eigen bijzondere eigenschappen.

## RIXS

RIXS is een 'foton in - foton uit' techniek, wat betekent dat men het materiaal bestookt met Röntgenstralingsfotonen, die vervolgens verstrooien en gemeten worden. Meer specifiek meet men de energie en impuls van de fotonen. De energie en impuls die het foton verloren heeft, zijn overgedragen aan het materiaal. Met RIXS kan men dus excitaties maken in het materiaal met een bepaalde energie en impuls. Daarom heet RIXS *inelastisch*.

Wat RIXS onderscheid van gewone inelastische Röntgenverstrooiing is het verstrooiingsproces. In RIXS wordt het inkomende foton geabsorbeerd door een elektron in een van de binnenste schillen van een atoom. Het elektron wordt daardoor in een lege baan (a) boven het Fermi-niveau geschoten, een gat in een kernschil (kerngat) achterlatend. Daarom heet RIXS 'resonant': de energie van het inkomende foton moet precies genoeg zijn om een elektron uit de kernschil in baan a te schieten. Nu kunnen er twee dingen gebeuren. Bij *directe* RIXS valt een ander elektron uit de valentieband (baan b) terug naar het kerngat. Deze

transitie produceert een nieuw, uitgaand Röntgenfoton. Er blijft in de valentieband een excitatie achter: effectief gaat er een elektron van baan b naar baan a. Bij *indirecte* RIXS valt hetzelfde elektron (uit baan a) terug in het kerngat. Er kunnen echter op een indirecte manier excitaties ontstaan omdat het kerngat (eventueel in samenwerking met het elektron in baan a) de valentieelektronen opschudt. Deze interactie is meestal het resultaat van de Coulombkracht, maar kan ook ontstaan doordat het elektron in baan a de beweging van de valentieelektronen blokkeert. De resonantie zorgt ervoor dat RIXS zeer efficiënt is: er worden veel meer fotonen geabsorbeerd (en vervolgens verstrooid) dan in niet-resonante inelastische Röntgenverstrooiing.

Een voorbeeld van directe RIXS op  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  is als men de inkomende fotonen een energie van 931 eV geeft. Dit correspondeert met de overgang van een 2p elektron van het koper ion naar de 3d schil. Het  $\text{Cu}^{2+}$  ion heeft maar één vrij 3d orbitaal:  $3d_{x^2-y^2}$ . Dit orbitaal wordt gevuld door het elektron. Nu kan een ander 3d elektron, bijvoorbeeld  $3d_{3z^2-r^2}$  terugvallen naar het 2p kerngat. Als men de energie van de inkomende fotonen verhoogt tot 8993 eV, wordt een 1s elektron naar een 4p orbitaal geschoten, ver boven het Fermiverniveau. Dit is indirecte RIXS: het 1s kerngat schudt de valentieelektronen op en wordt vervolgens gevuld door het 4p elektron. Natuurlijk kan er ook een ander elektron terugvallen (bijvoorbeeld een 3p elektron), maar deze transitie heeft een veel lagere energie. Door alleen te kijken naar energieën rond de 8993 eV kijkt men alleen naar  $4p \rightarrow 1s$  transities.

Het kerngat speelt een belangrijke rol in RIXS: het bepaalt het welke transities toegestaan zijn en dus welke excitaties gemaakt kunnen worden. Door het kerngat is de theorie van RIXS bijzonder ingewikkeld. Het kerngat heeft een ingewikkeld effect op de valentieelektronen en de eigentoestanden van dit systeem zijn niet exact te berekenen. In dit proefschrift wordt vaak gebruik gemaakt van een benadering van de dwarsdoorsnede van RIXS die gebruik maakt van de zeer korte levensduur van het kerngat. Het kerngat bestaat maar voor een heel korte tijd omdat het door vele elektronen gevuld kan worden. Omdat het kerngat maar een korte tijd bestaat, hebben de valentieelektronen niet veel tijd om te reageren op de aanwezigheid ervan. De reeksontwikkeling in de levensduur van het kerngat (de zogenaamde UCL reeksontwikkeling) versimpelt de formules voor de dwarsdoorsnede (de Kramers-Heisenbergvergelijking) aanzienlijk.

## Excitatie

De meeste materialen die in dit proefschrift worden bestudeerd zijn Mott-isolatoren. Dit zijn materialen waar de elektronen elkaar zeer sterk afstoten via de Coulombkracht. Daardoor ontstaat er de zogenaamde Mott-isolatortoestand waarin elk elektron zijn eigen plaats heeft: een elektron kan niet naar een naburige plaats bewegen omdat daar al een ander elektron is. De gelokaliseerde elektronen zorgen in deze toestand voor lokale vrijheidsgraden: de spin van het

elektron en de orbitaal die het bezet.

Hoofdstuk 3 gaat over ladingsexcitaties: het verplaatsen van een elektron van een ion naar een andere. In Mott-isolatoren moet het elektron in kwestie de Coulombafstoting overwinnen van een naburig elektron. Dit kost veel energie: typisch een paar eV. Wanneer een Mott-isolator gedoteerd wordt, ontstaat een situatie waarin niet alle ionen bezet zijn. De elektronen kunnen dus beperkt bewegen. Het resultaat van hoofdstuk 3 voor een Hubbard model met fermionen zonder spin in één band is dat RIXS de dynamische structuurfactor  $S(\mathbf{q}, \omega)$  meet van de ladingsdragers. Dit is met name interessant voor de hoge kritische temperatuur supergeleider  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  omdat zijn ladingsdragers maar één orbitaal bezetten (de  $x^2-y^2$  orbitaal van koper, gehybridiseerd met de zuurstof-ionen). De spin van de elektronen is irrelevant als dubbele bezetting van ionen niet voorkomt.

In ongedoteerde Mott-isolatoren kost een ladingsexcitatie een energie  $U$  voor het dubbel bezetten van een orbitaal. Onder deze energie  $U$  zijn er meestal ook excitaties mogelijk. Een elektron kan bijvoorbeeld zijn spin draaien, zonder bij een ander elektron in de buurt te komen. In hoofdstuk 4 worden de magnetische excitaties beschouwd van  $\text{La}_2\text{CuO}_4$ . Dit materiaal is een tweedimensionale Heisenberg antiferromagneet. Met directe RIXS kan men een elektronspin omdraaien, wat in de antiferromagnetische achtergrond een excitatie met een energie tot 350 meV is. De omgedraaide spin beïnvloedt de naburige spins via de superexchange interactie, en hierdoor verspreidt de excitatie zich als een golf door het materiaal. Het kwantum van een spingolf wordt een magnon genoemd. Directe RIXS kan de dispersie van magnonen in kaart brengen. Bij indirecte RIXS is het omdraaien van een enkele spin verboden. Wel kunnen twee elektronen met tegengestelde spin van plaats wisselen, wat voor een dubbele magnonexcitatie zorgt.

Naast magnetische excitaties kan RIXS ook orbitaalexcitaties creëren met een energie kleiner dan  $U$ : een elektron gaat naar een andere orbitaal op hetzelfde ion. De energie die hiermee gemoeid is, wordt bepaald door het kristalveld of door superexchange processen. Zowel directe als indirecte RIXS kan een elektron (effectief) van baan doen veranderen. In hoofdstuk 5 wordt het RIXS-spectrum van  $\text{YTiO}_3$  bestudeerd. Dit materiaal heeft 1 elektron in de Ti 3d schil. RIXS kan dit elektron naar een andere orbitaal exciteren. In hoofdstuk 5 rekenen we twee verschillende modellen door die de wisselwerking van de orbitalen van naburige ionen beschrijven. We concluderen dat experimentele data van Ramanverstrooiing en RIXS aan  $\text{YTiO}_3$  het best beschreven worden door een superexchangemodel.

In hoofdstukken 4 en 5 keken we naar materialen waar de spin- en orbitaal-vrijheidsgraden gescheiden zijn – ze wisselwerken niet met elkaar. Zwaardere ionen zoals iridium hebben wel een sterke spin-orbitaalkoppeling. We bestuderen dit soort materialen ( $\text{Sr}_2\text{IrO}_4$  in het bijzonder) in hoofdstuk 6. In dit geval maakt RIXS gecombineerde spin-orbitaalexcitaties. Deze aangeslagen toestanden kunnen door superexchange-interacties collectief gedrag ontwikkelen, net als de spingolven en orbitaalgolven van de voorgaande hoofdstukken.

Naast spin- en orbitaalvrijheidsgraden zijn er nog meer excitaties mogelijk bij energiën onder  $U$ . Het rooster kan bijvoorbeeld gaan trillen. De kwanta van een dergelijke trilling zijn fononen. RIXS kan fononen creëren door de verandering in de ladingsstructuur in de korte tijd tussen de absorptie en emissie van het Röntgenfoton. De ionen van het rooster reageren op deze ladingsverandering door te gaan trillen. Hoofdstuk 7 onderzoekt hoe het RIXS-spectrum van verschillende typen fononen eruitziet. Niet alleen kan RIXS de dispersie van fononen meten, het is ook mogelijk om de elektron-fononkoppeling te meten door de intensiteit te vergelijken van de 1- en 2-fononpieken. Ook is de impulsafhankelijkheid van de elektron-fononkoppeling uit RIXS-spectra af te leiden.

Als de snelle vooruitgang die RIXS de laatste paar jaar geboekt heeft, doorzet, zal het in de nabije toekomst mogelijk worden om excitaties bij zeer lage energie waar te nemen, zoals excitaties op de schaal van de *gap* in supergeleiders. Ook komen er nu nieuwe Röntgenstralingsbronnen in werking: de zogenaamde *X-ray Free Electron Lasers* die Röntgenstraling met een extreem hoge intensiteit produceren. XFEL's maken nieuwe processen mogelijk die met de huidige synchrotrons ondenkbaar zijn, zoals 2-fotonabsorptie.