

CeNi_{1-x}Co_xSn 化合物の L_{III} edge での X 線共鳴非弾性散乱 Resonant inelastic x-ray scattering of CeNi_{1-x}Co_xSn compounds at L_{III} edge

山岡人志¹、Aurel Mihai Vlaicu²、大橋浩史³、柄尾達紀³、
堀口大輔³、伊藤嘉昭³、国谷健太⁴、魚谷 健⁴、辻井直人²
Hitoshi Yamaoka¹、Aurel Mihai Vlaicu²、Hirofumi Oohashi³、Tatsuki Tochio³、
Daisuke Horiguchi³、Yoshiaki Ito³、Kenta Kunitani⁴、Tsuyoshi Uotani⁴、Naohito Tsujii²

¹ 理研播磨研、² 物材機構、³ 京大化研、⁴ 岡山大

¹ RIKEN SPring-8 Center, ² National Institute for Materials Science,

³ Institute of Chemical Research, Kyoto University, ⁴ Okayama University

CeNi_{1-x}Co_xSn 化合物の Ce L_{III} 吸収端付近での共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) 測定、および高分解能吸収スペクトル (PFY) 測定を行った。価数揺動が起きていると期待される x=0.33 の化合物に対し、Ce L_α 発光に対する RIXS の温度依存性が測定された。また、価数揺動がないと考えられる x=0.38 の化合物との比較も行われた。

We measured RIXS spectra for CeNi_{1-x}Co_xSn (x=0.33 and 0.38) together with partial fluorescence yield (PFY) at the SPring-8 BL15XU. Ce L_α 1 and L_α 2 were measured in the RIXS as a function of the incident photon energies and the temperature. From the measurement of magnetic susceptibility x=0.33 compound is expected to have the valence fluctuation at around 70-90 K, while x=0.38 compound will not have it. PFY spectra shows that the whole intensity decreases as the temperature decreases for x=0.33. In the RIXS spectra for x=0.33 compound we can see clearly the temperature dependence of the valence change, but for x=0.38 the change in the valence is little, suggesting the valence fluctuation for x=0.33 compound.

目的と背景

重い電子系の価数揺動に関する研究は物性物理の重要な分野のひとつとなっている。希土類などの 4f 電子化合物は、周囲の環境、格子間隔、温度、圧力、磁場などによって価数変化し、相転移を起こしてその物性を大きく変える。化合物内の価数状態は、XANES などの吸収分光によってもおおまかな情報は得られる。しか

し、近年、特に希土類化合物に置いて、L_{III} edge 付近で共鳴非弾性散乱 (resonant inelastic x-ray scattering; RIXS) が行われ、高分解能の発光分光を通してより詳しい価数状態や電子状態が議論がされるようになってきた。

ここでは、CeNi_{1-x}Co_xSn に対して、Ce L_{III} edge 近傍で L_α 線の高分解能 RIXS 測定、及び Partial fluorescence yields (PFY、高分解能吸収

スペクトル) の測定を行い、これから、その価数状態の、化合比変化及び温度変化をみることを目的としている。近藤半導体として有名な CeNiSn の Ni サイトを Co で約 40%置き換えたものは、シャープな価数転移が出現する[1]。Co 組成の変化により、転移温度と低温相電子状態が系統的に変化するとされており興味深い。この系に関しては、これまで X 線による測定例はない。本実験では、これを RIXS 測定を通して見ることにより、価数揺動系物質のより詳しい物理を議論する。RIXS 測定は、硬 X 線を使うため、本質的に bulk sensitive であり、高エネルギーの光電子分光と相補的な役割を果たす。我々は、この X 線測定以外に光電子の測定も行っており、互いに相補的な情報を得る事が可能である。

実験

実験は、高分解能 2 結晶分光器を使って行われた。Fig. 1 に測定系の概略図を示す。分光結晶は、Ge 111 で、(+, +) 配置をとることにより分解能をあげている。この装置は、2004B の時期より立ち上げられた。今回、新たに、サンプルを低温にする冷凍機を導入し、組成変化だけでなく、温度変化も見られるような開発を行った。物質の温度変化を追えるようにすることで、ターゲットの範囲が広がり、今後、研究の幅も大きく広がるものと期待される。

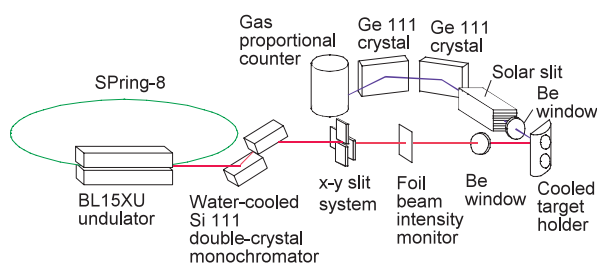


Fig.1 Schematic diagram of the experimental setup

測定は、CeNi_{1-x}Co_xSn の Ce をターゲットとして、Ce の L_{III} 吸収端付近のエネルギーで行われた。Ce L α 線の測定を行い、アナライザーを Ce L α 線のピーク位置に合わせた状態で、入射エネルギー依存性の測定 (partial fluorescence yields, PFY) を行った。これにより高分解能の吸収スペクトルに相当するものが得られる。さらに、吸収端付近で、入射エネルギーを変えながら、Ce L α 線の測定を行った (Resonant Inelastic X-ray Scattering, RIXS)。特に、吸収端より下の入射エネルギーの領域では、Raman 散乱を測定することができ、これにより、価数や電子状態の情報を得ることができる。

結果

Fig. 2 に x=0.33 の場合に対する吸収スペクトルの例を示す。強度は、入射光強度で規格化しており、これにより相対的な強度比較が可能である。温度により強度が変化しているのがわかる。Fig. 3 に入射光のエネルギーが 5717 eV に対する RIXS の温度変化の例を示す。この入射エネルギーは、吸収端より下で離れているために、蛍光成分が少なく、ラマン散乱成分が主と考えられる。Fig. 3 (a)は、価数揺動が期待される x=0.33 の場合であり、(b)は、価数揺動がな

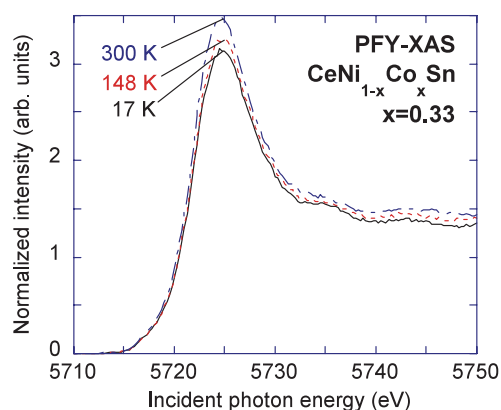


Fig.2 Example of the PFY spectra for x=0.33 as a function of the temperature.

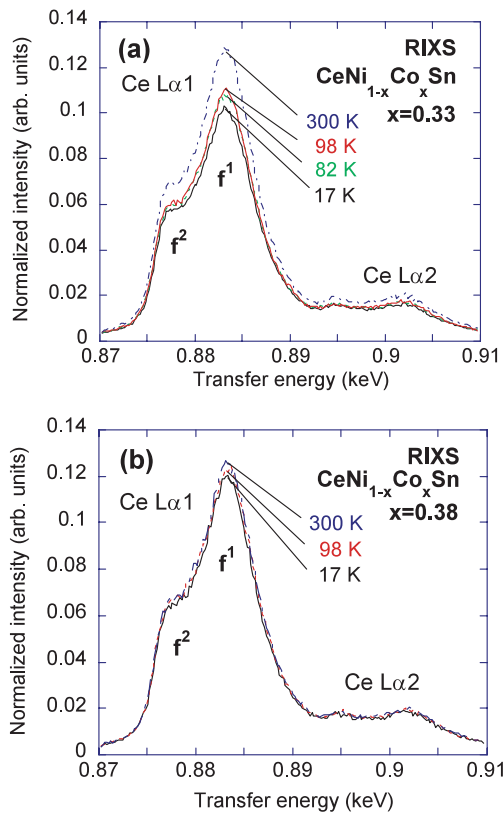


Fig.3 Example of the RIXE spectra for (a) $x=0.33$ and (b) $x=0.38$ as a function of the temperature at the incident photon energy of 5717 eV.

と思われる $x=0.38$ の場合である。X=0.33 の化合物の場合は、4f 電子の f^1 及び f^2 に相当する部分の強度がそれぞれ温度により大きく変化しており、磁化率測定で予想された価数揺動を裏付ける結果が得られているのがわかる。一方、 $x=0.38$ の場合は、温度の違いによる強度変化がほとんどみられず、価数揺動系でないことがわかる。結果のより詳細な解析を現在行っている。

今後の課題

この物質に関しては、光電子分光測定も行った。光電子測定の結果も現在解析中である。ここで行った X 線非弾性散乱測定の結果と合わせて見ることにより、価数揺動に関するより深い理解を得る予定である。価数揺動のメカニズ

ムはまだわかってはいない。様々な価数揺動系に対して実験結果を積み重ねる事により、理解を深めていく必要がある。

参考文献

- [1] D. T. Adroja *et al.*, Phys. Rev. B **52**, 12790 (1995).