

## 新博士紹介

1. 氏名 金井 要 (現在: 理化学研究所 播磨研究所)
2. 提出論文大学 東京大学
3. 学位種類 博士 (工学)
4. 取得年月日 2000年3月
5. 題目 共鳴逆光電子分光による Ce 化合物の研究

### 6. 要旨

#### はじめに

強相関電子系の電子状態の研究において、フェルミ準位近傍の非占有準位を調べる事は大変重要である。特に Ce 化合物等の高濃度近藤系の低温物性を支配するいわゆる近藤共鳴はフェルミ準位直上に位置する事が知られている。逆光電子分光は物質の非占有状態を調べる最も有力な方法である。しかし、その発光強度は原理的に極めて弱く、実験的な困難が伴う。そこで本研究では軟 X 線発光分光のテクニックを応用した逆光電子分光測定システムを用いて 30~1000 eV までの広いエネルギー範囲において共鳴逆光電子分光を行った。このシステムにより遷移金属の 3*d* 内殻から希土類の 3*d* 内殻までのエネルギーをカバーし、多くの強相関系物質の共鳴逆光電子分光による研究が可能になった。

本研究では(1)新しい分光法である共鳴逆光電子分光の共鳴効果についての分光学的側面からの研究と、(2)比較的近藤温度の高い幾つかの金属間 Ce 化合物に対する共鳴逆光電子分光と超高分解能光電子分光、及び共鳴光電子分光による電子構造の研究を行った。ここでは(1)について紹介したい。

#### 装置について

測定には斜入射型軟 X 線発光分光器を用いた。この装置は R=4, 5, 7, 10 m の球面回折格子を用いたローランドマウント型であり、検出器は 3 段 MCP を使用した一次元半導体位置検出器を用いている。励起電子源は BaO カソードを用いた傍熱型電子銃を使用した。システムの分解能は  $E_{ex}=100$  eV 程度で約 0.5 eV であった。

#### 実験結果

図 1 に近藤温度が 1000 K 以上と極めて遍歴性の強い系 CeRh<sub>3</sub> の Ce  $N_{4,5}$  吸収端における共鳴逆光電子分光スペクトルを示した。図 2 には  $f$  ピーク積分強度の励起エネルギー依存性を表した CFS スペクトルを示した。これから約 120 eV 付近でフェルミ準位直上の 4*f* スペクトルが強く共鳴増大しているのが分かる。また図 1 に見る様に、4*f* スペクトルの形状 (特に 4*f*<sup>2</sup> 終状態に対応する  $f^2$  ピーク) は終状態の選択則によって著しい励起エネルギー依存性を持つ<sup>1)</sup>。次に図 3 に典型的な価数揺動系である CePd<sub>3</sub> の  $N_{4,5}$  端の pre-threshold 域における RIPES を示した。pre-threshold 域での共鳴の振る舞いは図 1 の巨大吸収帯のそれとは著しく異なることが分かる。例えばフェルミ準位直上の  $f^1$  ピークは約  $E_{ex}=105$  eV 程度と 110 eV 付近の狭い

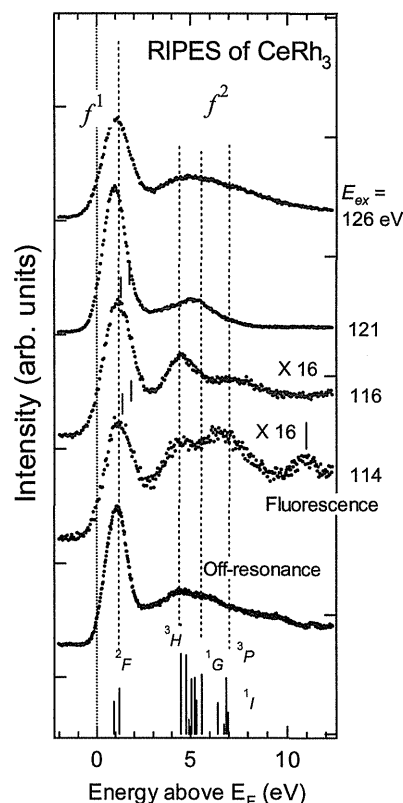


図 1 CeRh<sub>3</sub> の  $N_{4,5}$  端における RIPES。  $E_{ex}=116$  eV は本格的な共鳴の直前に位置する。

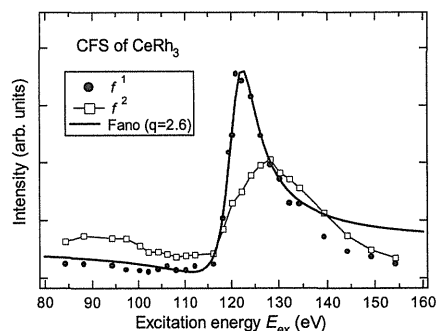


図 2 CeRh<sub>3</sub> の CFS。  $f^1, f^2$  はそれぞれ RIPES の  $f^1, f^2$  ピークの積分強度を表している。

エネルギー範囲でそれぞれ鋭い共鳴増大を見せる。これは pre-threshold 域における RIPES の中間状態が巨大吸収帯のそれに比べて比較的安定である事に起因している。図 4 は不純物アンダーソンモデルによる RIPES 過程の中間状態の励起確率の計算結果である (A. Kotani, T. Uozumi との共同研究による)。Total のスペクトルを見ると約 105 eV において  $^4G_{9/2, 7/2}$  中間状態が強く現われているのが分かる。この中間状態は巨大吸収帯における  $^2G$  とスピン・軌道相互作用を通して混じる。 $^2G$  は  $^2F$  終状態に強い遷移確率を持つために、これは 105 eV での RIPES スペクトルの  $f^1$  ピークの強い共鳴増大を説明する事が分かる。こ

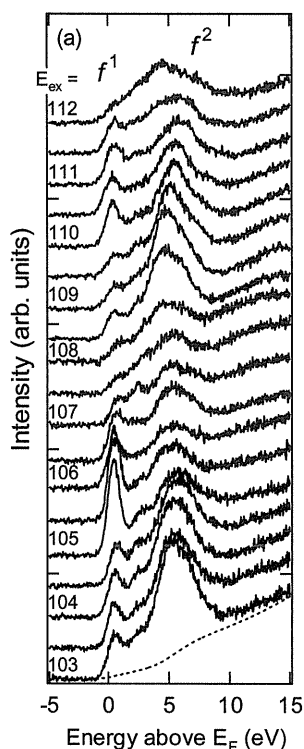


図3 CePd<sub>3</sub>の pre-threshold 域における RIPES。

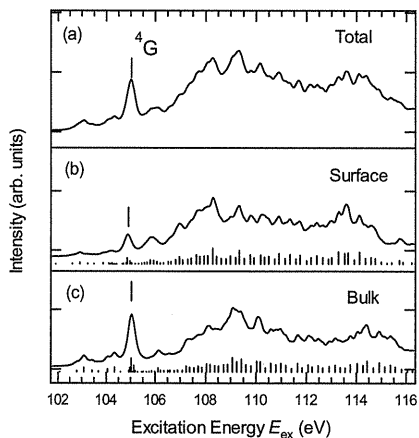


図4 (a) RIPES 過程の中間状態の励起確率の計算結果。(b)は表面、(c)はバルクに対する計算結果。パラメータは3d-XPS, XBIS, 3d-RIPES, 4d-RIPES スペクトルの解析にコンシステントに選んでいる。

ここで、興味深いのは図4のバルクのスペクトルでは4Gが強く現われているのに対して、表面ではあまり強くない事が分かる。これは表面の4f電子が比較的良く局在しているために4d<sup>9</sup>4f<sup>2</sup>中間状態があまり励起されない為による。

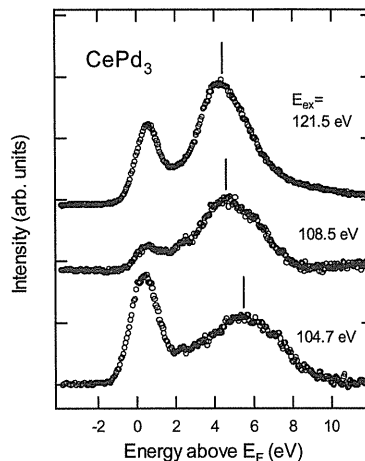


図5 CePd<sub>3</sub>の N<sub>4,5</sub> 端の近傍における RIPES。

すなわち、105 eVで励起されている中間状態は比較的バルクのものが多い事になる。結果的に105 eVのRIPESは比較的良くバルクの情報を含む事になる。実際に計算から求められた全体のスペクトルに対するバルクのスペクトル強度比は約70%まで増大している事が分かった (off-resonanceでは約40~50%)。同様にして、約108.5 eVでは逆に表面のスペクトルが強く励起される事が分かった。図5に示した104.7, 108.5 eVでのスペクトルは著しく異なり、特にf<sup>2</sup>ピークの位置に大きな違いがある。104.7 eVは比較的バルクを、108.5 eVは表面のスペクトルを強く見ている事になる。この様な現象が巨大吸収帯では見られず、pre-threshold域で見られる要因は、(1)バルクと表面での4f電子数が異なる(と言っても10-20%)のために、強く励起される中間状態多重項の分布が両者で異なっている事、(2)それらの多重項が比較的長い寿命のためにぼけて完全に重なってしまわず、上の分布がある程度保持されること。その結果、特徴的な4Gの様な中間状態を選択的に励起できる事によっている(実験的には多重項間の広がりに対して、電子銃の分解能が同程度か、それ以下である事が必要)。この現象を他の価数揺動系に應用することでバルクと表面の非占有構造を効果的に調べる方法を与える可能性がある事を指摘したい。今後、より系統的な研究が必要である。

#### 参考文献

- 1) A. Tanaka and T. Jo: J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 615 (1996).

(受付番号00057)