

共鳴 X 線散乱による $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$ の秩序相の電子状態の研究

Resonant x-ray scattering study on electronic hybridization in unconventional ordered phase of $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$

中尾裕則^{1,*}, 田端千紘¹, 岩佐和晃²

¹ 高エネルギー加速器研究機構, 物質構造科学研究所, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

² 茨城大フロンティアセンター, 〒319-1106 東海村白方 162-1

Hironori Nakao^{1,*}, Chihiro Tabata¹, and Kazuaki Iwasa²

¹ Condensed Matter Research Center and Photon Factory, Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

² Frontier Research Center for Applied Atomic Sciences & Institute of Quantum Beam Science, Ibaraki University, Tokai, 319-1106, Japan

1 はじめに

充填スクッテルダイト MT_4X_{12} (希土類 M 、遷移金属 T 、プニクトゲン X) は、重い電子状態、金属・絶縁体 (MI) 転移、多極子秩序、超伝導といった多彩な物性を示すことで盛んに研究されてきた。結晶構造は X_{12} の 20 面体の中の空間に M が充填されたカゴ状構造をもち、カゴを形成している X の p 軌道からなる分子軌道とカゴの中の f 電子が強い混成を示すのが特徴である。この p - f 混成の強さが 1 つのパラメータとなり、スクッテルダイトにおける多彩な物性が発現すると考えられている。

$\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$ は、 $T_M \sim 63$ K という比較的高温で MI 転移[1,2]を示し、相転移の起源として反強多極子秩序[3,4]、電荷密度波[5]などが提案されている。また、中性子非弾性散乱[6]により非常に強い p - f 混成状態が観測され、電気伝導度と混成状態の変化との間の相関が注目された。しかしながら秩序状態に寄与する p 電子状態の直接的な観測は、これまで行われていない。

共鳴 X 線散乱は原子散乱因子の異常分散項を利用した手法で、物性発現機構を理解する上で重要な電荷・軌道・スピンの秩序状態を解明することで、これまでに多くの実験が行われてきた[7]。本研究では、共鳴 X 線散乱手法が吸収端を選択することで元素選択的な電子状態の観測が可能なる点に着目した。具体的には、 $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$ の $\text{P } 3p$ と $\text{Pr } 4f$ の電子状態を共鳴 X 線散乱により直接的に観測し、 p - f 混成状態と秩序相の関係を解明することを目指している。これまでに、 $\text{P } K$ 吸収端、 $\text{Pr } L_3$ 吸収端、 $\text{Ru } L_3$ 吸収端での共鳴 X 線散乱実験を実施した[8]。

2 実験

Sn フラックス法により作成された良質な単結晶試料を実験に用いた。結晶構造は立方晶に属し、格子定数は $a = 8.042 \text{ \AA}$ である。共鳴 X 線散乱には、as-grown 試料の 111 面を利用し、反射配置での実験を

実施した。硬 X 線領域 ($> 5 \text{ keV}$) での回折実験は、BL-4C, 3A において 4 軸回折計に He 循環型冷凍機を搭載して行った。一方 5 keV 以下での実験には、開発してきた 2 軸回折計[9]を用い、 π 配置で回折実験を実施した。

3 結果および考察

$\text{P } 3p$ の電子状態を直接的に観測するため、 $\text{P } K$ 吸収端 ($1s \rightarrow 3p$ 遷移) において共鳴 X 線散乱実験を行った。図 1 に $\text{P } K$ 吸収端近傍で観測した 111 反射強度のエネルギー依存性を示す。 $\text{P } K$ 吸収端直上の 2142 eV における信号は、 $\text{Pr } 4f$ 軌道と混成している電子状態を反映していると期待される。また信号強

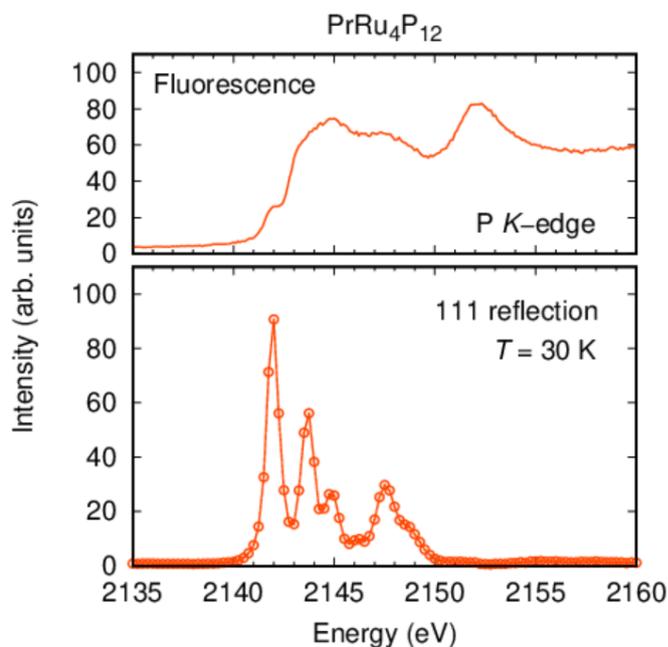


図 1: (上) $\text{P } K$ 吸収端での蛍光スペクトル。
(下) 111 反射強度のエネルギー依存性。

度は、非共鳴信号の約 100 倍もあり、極めて強い共鳴信号である。この結果は秩序相が、 p - f 混成状態に支配されていることを示唆している。また、共鳴 X 線散乱の特徴である元素選択的な電子状態の観測として、Pr L_3 吸収端($2p \rightarrow 5d$ 遷移)、Ru L_3 吸収端($2p \rightarrow 4d$ 遷移)においても、111 反射強度のエネルギー依存性を観測した。今後、軌道混成に関与している Pr $4f$ の電子状態の直接観測を目指した実験を行う予定である。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 21224008, 25286090, JP15H05885 (J-Physics), JP17K05130 の助成を受けたものです。

参考文献

- [1] C. Sekine et al., *Phys. Rev. Lett.* **79**, 3218 (1997).
- [2] C. H. Lee et al., *Phys. Rev. B* **70**, 153105 (2004).
- [3] T. Takimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 034714 (2006).
- [4] Y. Kuramoto, *Prog. Theo. Phys. Suppl.* **176**, 77 (2008).
- [5] H. Harima et al., *Physica B* **312-313**, 843 (2002).
- [6] K. Iwasa et al., *Phys. Rev. B* **72**, 024414 (2005); *J. Phys. Soc. Jpn.* **74**, 1930 (2005).
- [7] T. Matsumura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **82**, 021007 (2013).
- [8] H. Nakao et al., *J. Phys.: Conf. Ser.* **969**, 012118 (2018).
- [9] H. Nakao et al., *J. Phys. Conf. Ser.* **502**, 012015 (2014).

* hironori.nakao@kek.jp