

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 10 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540430

研究課題名(和文) 重い電子系化合物の量子臨界点近傍でのフェルミ面変化の実験的検証

研究課題名(英文) Experimental examination of the variation in Fermi surfaces of heavy-electron compounds around quantum critical points

研究代表者

岡根 哲夫 (OKANE, TETSUO)

独立行政法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門・量子ビーム応用研究センター・研究主幹

研究者番号：10391278

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円、(間接経費) 1,110,000円

研究成果の概要(和文)：重い電子系セリウム化合物におけるセリウム4f電子の遍歴 局在転移を具体的に理解することを目的として、大型放射光施設SPring-8を利用した軟X線分光実験によりセリウム化合物の磁性発現境界近傍での電子状態変化を調べる研究を展開した。CeRu₂(Si,Ge)₂系に対する軟X線吸収磁気円二色性測定実験では、この系が常磁性状態から磁気秩序状態に移行する際のセリウム4f電子状態の変化傾向を明らかにした。また、(Ce,Gd)Ni系に対する軟X線吸収磁気円二色性測定実験では、元素ごとの磁性状態を分離して観測し、特にCe 4f電子の磁性に特異な磁場依存性と温度依存性があることを発見した。

研究成果の概要(英文)：To understand the transition of 4f electrons of heavy-Fermion Ce compounds from the itinerant to the localized natures, we have performed soft X-ray spectroscopy experiments for the study of electronic structure variation near the boundary of magnetic ordering, by using the synchrotron radiation facility SPring-8. The soft X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) experiments for the CeRu₂(Si,Ge)₂ system have revealed the tendency of variation in the Ce 4f electronic states on going from the paramagnetic states to the magnetically ordered states. The XMCD experiments for the (Ce,Gd)Ni system have discovered anomalous magnetic behaviors of Ce 4f electrons by element specific observations.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：強相関系 重い電子系 量子臨界点 希土類金属 光電子分光 X線吸収 放射光

1. 研究開始当初の背景

セリウム (Ce) 化合物に代表される重い電子系化合物では、圧力や化学組成の制御によって磁性基底状態が発現し、この磁性発現境界が量子臨界点 (Quantum Critical Point; 以下 QCP) とされる。重い電子系化合物の超伝導は QCP の近傍で発現すると考えられており、QCP 近傍での Ce 4f 電子の状態の解明は重要な課題である。重い電子系の量子臨界性については、二つの立場の理論モデルが提案されており、4f 電子の遍歴 局在転移に伴うフェルミ面の变化等の電子状態変化が量子臨界点近傍において生じるかどうか議論の焦点となっていた。

フェルミ面変化を初めとする Ce 4f 電子状態の変化を実験的に調べる上で、軟 X 線放射光を利用した角度分解光電子分光と X 線吸収磁気円二色性 (XMCD) 測定は非常に有力な実験手法である。我々のグループでは、大型放射光施設 SPring-8 の原子力機構専用ビームライン BL23SU に角度分解光電子分光装置と XMCD 測定装置を設置して実験を進めてきており、当研究を実施するための実験環境が概ね整った状況にあった。

2. 研究の目的

重い電子系 Ce 化合物の代表的物質である $CeRu_2(Si,Ge)_2$ 置換系等に対して角度分解光電子分光実験並びに XMCD 測定実験を行うことによって、化学組成や磁場、温度を変化させたときのフェルミ面形状を初めとする Ce 4f 電子状態の変化を実験的に検証することにより、重い電子系 Ce 化合物の量子臨界点近傍において 4f 電子の遍歴 局在転移が存在するか、存在するとすればどのような変化により移行するのかを明らかにする。また、磁性 Ce 化合物において Ce 4f 電子が形成する磁気秩序の性質の詳細を明らかにすることで、磁性発現境界における Ce 4f 電子状態変化の理解につながる知見を求める。

3. 研究の方法

(1) 大型放射光施設 SPring-8 の軟 X 線ビームライン BL23SU に常設されている光電子分光測定装置において、2 台の液体ヘリウムデューワー間で液体ヘリウムを移送して液体ヘリウムの安定供給を継続するための液体ヘリウムトランスファーチューブを導入し、10 K 以下の低温で安定して長時間 (3 日間以上) に渡って角度分解光電子分光実験を継続的に実施できるように試料冷却システムを改良した。

(2) 重い電子系 Ce 化合物の典型物質である $CeRu_2(Si,Ge)_2$ 置換型化合物における磁気量子臨界点近傍における磁場下での電子状態変化の理解につながる知見を得るために、エンド組成である常磁性体 $CeRu_2Si_2$ と強磁性体 $CeRu_2Ge_2$ に対する Ce $M_{4,5}$ 吸収端での XMCD 測定実験を SPring-8 BL23SU を利用して実施した。

(3) 重い電子の形成に伴う Ce 4f 電子の磁性状態の変化とリガンド元素の電子状態との関係性を調べるため、組成によりフェリ磁性から常磁性へと変化する $(Ce,Gd)Ni$ 置換型化合物に対する Ce $M_{4,5}$ 吸収端、Gd $M_{4,5}$ 吸収端、並びに Ni $L_{2,3}$ 吸収端での XMCD 測定実験を SPring-8 BL23SU を利用して実施した。

(4) $CeRu_2(Si,Ge)_2$ 置換型化合物において、元素置換による化学圧力効果によって強磁性-反強磁性境界をまたいだ時にフェルミ面形状に変化がある否かを検証するために、基底状態で強磁性秩序を持つ $CeRu_2(Si_{0.1}Ge_{0.9})_2$ に対する Ce 3d 4f 共鳴領域のエネルギーを使った角度分解光電子分光実験を SPring-8 BL23SU を利用して実施した。

4. 研究成果

(1) 重い電子系常磁性体 $CeRu_2Si_2$ 並びに強磁性体 $CeRu_2Ge_2$ に対する Ce $M_{4,5}$ 吸収端での XMCD 測定実験からは、化学組成や外部磁場強度、温度等を制御して系を磁気秩序状態に変化させると、Ce 4f 電子の占有数の減少や 4f 電子と伝導電子との軌道混成強度の減少といった電子状態の変化傾向として Ce 4f 電子の局在化が観測されることを明らかにした。図 1 は $CeRu_2Si_2$ 並びに $CeRu_2Ge_2$ について測定した Ce $M_{4,5}$ 吸収端での X 線吸収 (XAS) スペクトル及び XMCD スペクトルを比較したものであり、Ce 4f 電子の局在化が XAS スペクトルにおける shoulder 構造や f^0 satellite 構造の強度変化として特徴的に観測されている。ここで見られている Ce 4f 電子の局在化に伴う電子状態の変化は、Ce 4f 電子の磁気モーメントの軌道成分とスピン成分の比の系統的变化として現れることを定量的に示した。以上の成果をまとめた論文を Physical Review B 誌において発表した。

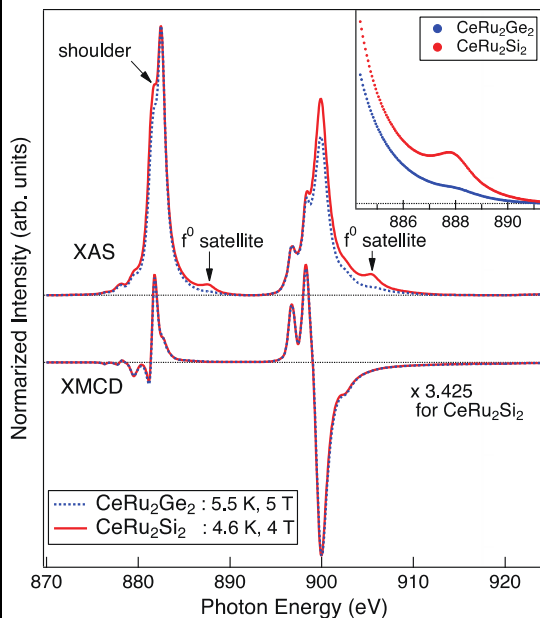


図 1 $CeRu_2Si_2$ と $CeRu_2Ge_2$ の Ce $M_{4,5}$ 吸収端での XAS 及び XMCD スペクトル

(2) (Ce,Gd)Ni 置換型化合物に対する Ce $M_{4,5}$ 吸収端、Gd $M_{4,5}$ 吸収端、並びに Ni $L_{2,3}$ 吸収端での XMCD 測定実験からは、Ce $4f$ 電子、Gd $4f$ 電子、Ni $3d$ 電子の磁性状態を分離して観測することにより、この系の磁気秩序が主成分である Gd $4f$ 電子の磁気モーメントに対して Ce $4f$ 電子と、Ni $3d$ 電子の磁気モーメントが反平行の関係にある形で形成されていることを明らかにした。また、図2に示すように、Gd $4f$ 電子と Ni $3d$ 電子の磁気モーメントは強磁性的に飽和するのに対して、Ce $4f$ 電子の磁気モーメントはいったん極大値に達した後、磁場の増加とともに減少するという特異な磁場依存性を持つことを発見した。以上の成果をまとめた論文を Journal of the Physical Society of Japan 誌に投稿し、掲載受理された。

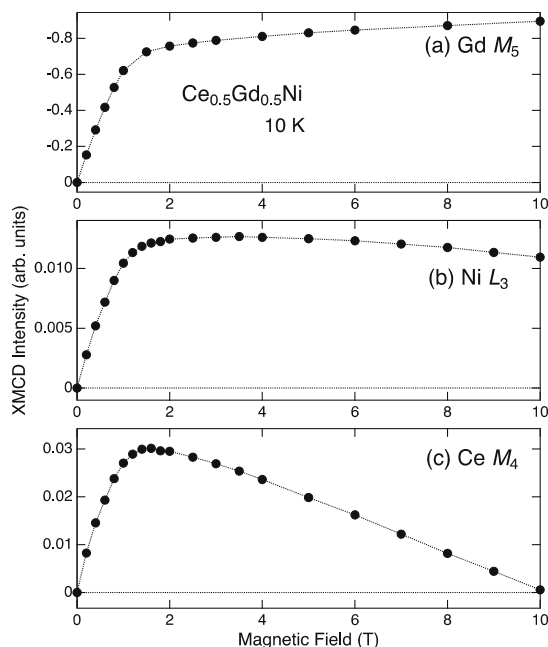


図2 Ce_{0.5}Gd_{0.5}Ni の(a) Gd M_5 吸収端、(b) Ni L_3 吸収端、(c) Ce M_4 吸収端での XMCD 強度の磁場依存性

(3) CeRu₂(Si,Ge)₂ 置換型化合物において強磁性-反強磁性境界をまたいだ場合のフェルミ面変化の有無を検証するために、基底状態で強磁性秩序を持つ CeRu₂(Si_{0.1}Ge_{0.9})₂ について共鳴角度分解光電子分光を測定してバンド分散並びにフェルミ面形状についての実験データを取得し、基底状態が反強磁性である CeRu₂(Si_{0.82}Ge_{0.18})₂ との比較を試みた。実験結果は現在解析中である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計2件)

T. Okane, Y. Takeda, H. Yamagami, A. Fujimori, Y. Matsumoto, N. Kimura, T. Komatsubara, and H. Aoki, 'Magnetic behavior near the boundary of $4f$ delocalization in ferromagnetic CeRu₂Ge₂

and paramagnetic CeRu₂Si₂ observed by Ce $M_{4,5}$ XAS and XMCD', Physical Review B, 査読有 vol. **86** (2012) 125138-125148.

DOI: 10.1103/PhysRevB.86.125138

T. Okane, K. Yano, Y. Takeda, H. Yamagami, A. Fujimori, K. Nishimura, Y. Isikawa, and K. Sato, 'X-ray Magnetic Circular Dichroism Study of Ce_{0.5}Gd_{0.5}Ni', Journal of the Physical Society of Japan, 査読有, 掲載受理

〔学会発表〕(計3件)

岡根哲夫, 竹田幸治, 山上浩志, 藤森淳, 松本裕司, 木村憲彰, 小松原武美, 青木晴善, 'CeRu₂Si₂ 並びに CeRu₂Ge₂ の Ce $M_{4,5}$ 吸収端での X 線吸収磁気円二色性測定', 日本物理学会第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 24 日, 関西学院大学

岡根哲夫, 矢野一雄, 竹田幸治, 山上浩志, 藤森淳, 西村克彦, 石川義和, 佐藤清雄, 'Ce_xGd_{1-x}Ni の軟 X 線吸収磁気円二色性測定', 日本物理学会 2012 年秋季大会, 2012 年 9 月 20 日, 横浜国立大学

T. Okane, K. Yano, Y. Takeda, H. Yamagami, A. Fujimori, K. Nishimura, Y. Isikawa, and K. Sato, 'X-ray Magnetic Circular Dichroism Study of Ce_{0.5}Gd_{0.5}Ni', The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013), 2013 年 8 月 6 日, 東京大学

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕
出願状況 (計 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

取得状況 (計 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織
(1) 研究代表者

岡根 哲夫 (OKANE TETSUO)
独立行政法人 日本原子力研究開発機構・
原子力科学研究部門・量子ビーム応用研究
センター・研究主幹
研究者番号：10391278

(2)研究分担者
()

研究者番号：

(3)連携研究者
()

研究者番号：