

機関番号 : 82041

研究種目 : 基盤研究 (c)

研究期間 : 2010~2012

課題番号 : 22540343

研究課題名 (和文) 重い電子系における価数揺動と量子臨界現象及び超伝導との
関係に関する研究研究課題名 (英文) Study of valence fluctuation, quantum critical phenomena, and
superconductivity in heavy fermion systems研究代表者 山岡人志
(YAMAOKA HOTOSHI)

独立行政法人 理化学研究所・石川 X 線干涉光学研究室・専任研究員

研究者番号 : 30239850

研究成果の概要 (和文) :

希土類化合物では、近藤効果と RKKY 相互作用の拮抗する量子臨界点付近で、超伝導を含め、異常な物性が発現する。本研究では、これら重い電子系の電子状態を共鳴 X 線非弾性散乱、光電子分光の手法により調べ、価数揺動と超伝導を含む物性発現の関係を調べた。特に、系に圧力をかけて近藤温度を制御することにより、系の混成状態を変化させ、量子臨界点近傍、超伝導が起きる近傍付近での電子状態を明らかにした。Yb 系化合物においては、異常な価数転移を発見した。

研究成果の概要 (英文) :

In rare-earth compounds f electrons have local nature, but interesting physical properties are realized via hybridization between f and conduction electrons, which has been understood due to the interplay between the RKKY interaction and the Kondo effect. Here we have studied the electronic structure around quantum critical point by using resonant x-ray emission spectroscopy (RXES). We also used photoelectron spectroscopy complementarily at ambient pressure. In the RXES studies we control the Kondo temperature by applying pressure. We newly found anomalies in Yb valence of skutterudite $\text{Yb}_x\text{Fe}_4\text{Sb}_{12}$ in the temperature dependence.

交付決定額

(金額単位 : 円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	0	0	0
2009年度	0	0	0
2010年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
2012年度	100,000	30,000	130,000
総計	1,900,000	570,000	2,470,000

研究分野 : 数物系科学

科研費の分科・細目 : 物理学・物性 I

キーワード : 強相関係、物性実験、放射線・X 線・粒子線、量子ビーム、量子臨界、超伝導、
高圧、共鳴 X 線発光分光

1. 研究開始当初の背景

量子臨界点近傍では、一般に、価数揺動がなくなるのか、あるいは、残っているのかがまだクリアではなかった。また、価数揺動は超伝導性を損なうのか、あるいは、 $\text{CeCu}_2\text{Si}_2/\text{Ge}_2$ の系において逆に理論が予測するように価数揺動が超伝導に関係しているのか実験的にはまだ明らかではなかった。さらに、量子臨界性は低温高圧下で起こることが多いため、極低温かつ高圧下での高分解能の X 線分光的手法の開発が必要であった。

2. 研究の目的

本研究は、放射光を利用して、重い電子系超伝導体、あるいは、量子臨界現象を示す Ce 系、Yb 系を主とした化合物に対し、バルク敏感な高分解能共鳴 X 線非弾性散乱法による測定を通して電子構造及び価数揺動を明らかにし、電子構造及び価数揺動が、超伝導性や量子臨界点での物性にどのように関わるのかを実験的に調べることを目的とした。そして、このために、極低温高圧下での共鳴 X 線非弾性散乱の手法を確立することを目的とした。

3. 研究の方法

次に述べる(1)~(3)の課題に取り組んだ。

(1)希土類元素 L_3 吸収端付近において、共鳴 X 線非弾性散乱(高分解能共鳴発光分光)法により価数揺動を示す希土類化合物の量子臨界点近傍の希土類元素の価数を明らかにする。さらに、超伝導と価数揺動の関係を明らかにする。

(2)常圧状態における電子状態を明らかにするために、相補的や役割をもつ X 線発光分光と光電子分光を同じ化合物に対して行う。

(3)ダイヤモンドアンビルセルを用いた極低温かつ高圧下での実験手法を確立し、これを実際の系に応用する。

4. 研究成果

主に以下の成果を得た。

(1)Ce 系超伝導体に対して Ce 価数の圧力依存性を測定し、超伝導との関係を調べた。

① Ce 系鉄プニクタイト超伝導体 $\text{CeFeAsO}_{1.8}$ においては、価数揺動が大きくなると超伝導性を損なっている可能性が高いことが示唆された。一方、 CeCu_2Ge_2 においては、逆に、価数揺動を媒体とした超伝導性の可能性が示唆された。

② Ce 系、Yb 系の量子臨界点においては、価数揺動が起きている系が多いことが確認された。

(2)Yb 系、及び、Sm 系に対して、SPring-8 において X 線発光分光、HiSOR (広島大学放射光実験施設)において高分解能の光電子分光測定を行い、両方の結果から電子状態、特に、温度変化と Fermi 端付近の電子状態を明らかにすることができた。このように、光電子分光と X 線発光分光の両方の手法により相補的に電子状態を調べているグループは世界でもほとんど例がない。

① 2008 年に新たに発見された YbGaSi 系の超伝導体に対して、光電子分光と発光分光測定と行ない電子構造を明らかにした。

② SmSn_3 系に対する光電子分光測定において、Fermi 端付近の微細構造を発見し、その由来を理論計算との比較により明らかにした。

③ $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ に対して光電子分光と発光分光測定と行ない電子構造を明らかにした。また、低温高圧下での発光分光測定から、高圧下で起きる異常な振る舞いに関してあったふたつのシナリオのうち、ひとつを否定することができた。

(3)SPring-8 BL12XU において、ビームライン側の協力を得て、gas-membrane でコントロールしたダイヤモンドアンビルセルの系を立ち上げ、低温下での高圧実験をスタートさせることができた。

① 低温では圧力の指標となる ruby の R_1 ラインの蛍光強度が落ちる。これに変わって N_2 ラインが低温高圧下で圧力モニターとして使えることを新たに示した。

② 低温高圧実験は 10 数 GPa までは問題なくできるようになった。低温で Be gasket の脆弱性が強くなるため、約 20 K, 18 GPa までが現在の到達点となっている。

③ CePd_2Si_2 において 19 K, 12 GPa までの実験が行われた。Ce 価数は、近藤効果が支配的な領域から価数揺動領域へ移行することが確認された。不純物アンダーソンモデルによる理論計算と比較され、理論と実験結果が良い一致を示した。

(4) これらの実験を通して、今後の研究の進展につながる下記の重要な発見をすることができた。

① スクッテルダイト $\text{Yb}_x\text{Fe}_4\text{Sb}_{12}$ の価数の温度依存性において、アンダーソンモデルでは説明できない低温で異常な価数の上昇を初めて発見した。

② Cubic YbCu_5 の Yb 価数の圧力依存性において、やはり、アンダーソンモデルでは説明できない価数の減少を初めて観測した。

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 10 件)

1) H. Yamaoka, N. Tsujii, Y. Utsumi, H. Sato, I. Jarrige, Y. Yamamoto, J.-F. Lin, N. Hiraoka, H. Ishii, K.-D. Tsuei, and J. Mizuki, “Valence transitions in the heavy fermion compound YbCuAl as a function of temperature and pressure” Phys. Rev. B **87**, 205120 (2013).
(査読あり)

2) H. Yamaoka, Y. Zekko, A. Kotani, I. Jarrige, N. Tsujii, J.-F. Lin, J. Mizuki, N. Hiraoka, H. Ishii, K.-D. Tsuei, and J. Mizuki, “Electronic transition in high-pressure low temperature CePd₂Si₂ studied by resonant x-ray emission spectroscopy”, Phys. Rev. B **86**, 235131 (2012).
(査読あり)

3) H. Yamaoka, Y. Zekko, I. Jarrige, J.-F. Lin, N. Hiraoka, H. Ishii, K.-D. Tsuei, and J. Mizuki, “Ruby pressure scale in a low-temperature diamond anvil cell”, J. Appl. Phys. **112**, 1124503 (2012).
(査読あり)

4) H. Yamaoka, P. Thunström, I. Jarrige, K. Shimada, N. Tsujii, M. Arita, H. Iwasawa, H. Hayashi, J. Jiang, H. Namatame, M. Taniguchi, N. Hiraoka, H. Ishii and K.-D. Tsuei, “The electronic structure and the valence state of Yb₂Pd₂Sn and YbPd₂Sn studied by photoelectron and resonant x-ray emission spectroscopies”, Phys. Rev. B **86**, 085137 (2012).
(査読あり)

5) H. Yamaoka, P. Thunström, N. Tsujii, I. Jarrige, K. Shimada, M. Arita, H. Iwasawa, H. Hayashi, J. Jiang, T. Habuchi, D. Hirayama, H. Namatame, M. Taniguchi, U. Murao, S. Hosoya, A. Tamaki, and H. Kitazawa, “High-resolution photoelectron spectroscopy study of Kondo metals: SmSn₃ and Sm_{0.9}La_{0.1}Sn₃”, Phys. Rev. B **85**, 115120 (2012).
(査読あり)

6) 山岡人志, Ignace Jarrige
“X 線共鳴発光分光法による高圧下での 4f 電子系化合物の物性研究”
日本放射光学会誌 放射光 第 24 巻 2 号、(2011) 53-63. (解説)

7) H. Yamaoka, I. Jarrige, N. Tsujii, M. Imai, J.-F. Lin, M. Matsunami, R. Eguchi, M. Arita, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, M. Taguchi, Y. Senba, H. Ohashi, N. Hiraoka, H. Ishii, and K.-D. Tsuei, “Electronic structure of YbGa_{1.15}Si_{0.85} and YbGa_xGe_{2-x} probed by resonant x-ray emission and photoelectron spectroscopies”, Phys. Rev. B **83**, 104525 (2011).
(査読あり)

8) H. Yamaoka, I. Jarrige, N. Tsujii, J.-F. Lin, T. Ikeno, Y. Isikawa, K. Nishimura, R. Higashinaka, H. Sato, N. Hiraoka, H. Ishii, and K.-D. Tsuei, “Strong coupling between 4f valence instability and 3d ferromagnetism in Yb_xFe₄Sb₁₂ studied by resonant X-ray emission spectroscopy”, Phys. Rev. Lett. **107**, 177203 (2011).
(査読あり)

9) H. Yamaoka, I. Jarrige, N. Tsujii, A. Kotani, J.-F. Lin, F. Honda, R. Settai, Y. Onuki, N. Hiraoka, H. Ishii and K.-D. Tsuei, “Pressure and temperature dependences of the electronic structure of CeIrSi₃ probed by resonant x-ray emission spectroscopy”, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 124701 (2011).
(査読あり)

10) H. Yamaoka, I. Jarrige, A. Ikeda-Ohno, S. Tsutsui, J.-F. Lin, N. Takeshita, K. Miyazawa, A. Iyo, H. Kito, H. Eisaki, N. Hiraoka, H. Ishii, and K.-D. Tsuei
“Hybridization and suppression of superconductivity in CeFeAsO_{1-y}: Pressure and temperature dependence of the electronic structure”
Phys. Rev. B **82**, 125123 (2010).
(査読あり)

[学会発表] (計 9 件)

1) 舌古裕美子, 山岡人志, 山本義哉, Fabio Strigari, 西岡 孝, Jung-Fu Lin, 平岡 望, 石井啓文, Ku-Ding Tsuei, 水木純一郎
“Ce(Ru_{1-x}Fe_x)₂Al₁₀ の X 線非弾性散乱測定 : Ce 価数の組成・圧力依存性”
日本物理学会第 68 回年次大会、
29aPXZE-7, 広島大学東広島キャンパス 2013 年 3 月 26 日(火)-29 日(金)

2) 山岡人志, 舌古裕美子, 小谷章雄, Ignace Jarrige, 辻井直人, Jung-Fu Lin, 水木純一郎, 阿部英樹、北澤英明、平岡 望, 石井啓文, Ku-Ding Tsuei,
“CePd₂Si₂ 及び CeRh₂Si₂ の共鳴 X 線発光分光測定”

日本物理学会第 68 回年次大会、27aPS22、
広島大学東広島キャンパス 2013 年 3
月 26 日(火)-29 日(金)

3) 舌古裕美子, 山岡人志, Ignace Jarrige,
Jung-Fu Lin, 平岡望, 石井啓文, Ku-Ding Tsuei,
水木純一郎

“高圧低温下共鳴 X 線非弾性散乱実験～高圧
低温下でのルビー圧力スケール”

第 26 回日本放射光学会年会・放射光科学合
同シンポジウム、14P076S、名古屋大学、2013
年 1 月 12 日-14 日

4) 山岡人志, Patrik Thunström, 辻井直人,
Ignace Jarrige, 島田賢也, 有田将司, 岩澤英明, 林
博和, 姜 健, 生天目博文, 谷口雅樹, 平岡
望, 石井啓文, Ku-Ding Tsuei, M. Giovannini, E.
Bauer

“ $\text{Yb}_2\text{Pd}_2\text{Sn}$ 及び YbPd_2Sn の高分解能光電子・
発光分光測定”

日本物理学会 2012 年秋期大会、20a-PSB-13、
横浜国立大学 2012 年 9 月 18 日(火)-21 日(金)

5) 山岡人志, Patrik Thunström, Ignace Jarrige, 島
田賢也, 辻井直人, 有田将司, 岩澤英明, 林
博和, 姜健, 羽瀨隆文, 平山大裕, 生天目博
文, 谷口雅樹, 村尾麗, 細矢信吾, 田巻明, 北
澤英明

“ SmSn_3 及び $\text{Sm}_{0.9}\text{La}_{0.1}\text{Sn}_3$ の高分解能光電子分
光測定”

日本物理学会第 67 回年次大会、25p-PSB-59、
関西学院大学西宮上が原キャンパス 2012
年 3 月 24 日(土)-27 日(月)

6) 山岡人志, I. Jarrige, 辻井直人, Jung-Fu Lin,
池生剛、石川義和、西村克彦、東中良司、佐
藤英行、平岡 望、石井啓文、Ku-Ding Tsuei
“ $\text{Yb}_x\text{Fe}_4\text{Sb}_{12}$ スクッテルダイトにおける異常
価数転移”

日本物理学会 2011 年秋期大会、富山大学
2011 年 9 月 21 日(水)-24 日(土).

7) 山岡人志, Ignace Jarrige, 辻井直人, 今井基
晴, Jung-Fu Lin, 松波雅治⁵ 江口律子, 有田将
司, 島田賢也, 生天目博文, 谷口雅樹, 田口
宗孝, 仙波泰徳, 大橋治彦, 平岡 望、石井啓
文、Ku-Ding Tsuei

“ $\text{YbGa}_{1.15}\text{Si}_{0.85}$ 及び $\text{YbGa}_x\text{Ge}_{2-x}$ の共鳴 X 線発
光分光・光電子分光測定”

日本物理学会第 66 回年次大会、25aPS-77、新
潟大学 2011 年 3 月 25 日(金)-28 日(月)

8) H. Yamaoka, I. Jarrige, N. Tsujii, S. Tsutsui,
J.-F. Lin, N. Takeshita, K. Miyazawa, A. Iyo, H.

Kito, H. Eisaki, F. Honda, R. Settai, Y. Ōnuki, N.
Hiraoka, H. Ishii, and K.-D. Tsuei,

“Valence transitions in Ce and Yb systems under
high pressure probed by resonant x-ray emission
spectroscopy”

7th International Conference on Inelastic X-ray
Scattering (IXS2010), 2010 年 10 月 11-14 日,
World Trade Center, Grenoble, France

9) H. Yamaoka, I. Jarrige, S. Tsutsui, J.-F. Lin, F.
Honda, R. Settai, Y. Onuki, N. Tsujii, N. Hiraoka,
H. Ishii, and K.-D. Tsuei,

“Pressure and temperature dependences of the
electronic structure in CeIrSi_3 investigated by
resonant x-ray emission spectroscopy”

International Conference on Heavy Electrons
2010 , 首都大学東京南大沢キャンパス
2010 年 9 月 17-20 日

[その他]

ホームページ等

研究成果が、理研及び SPring-8 のホームペ
ージで発表された。

1) SPring-8 Press Release

“New Model for Charge Transfer of Magnetic
Organic Molecule, TDAE- C_{60} ”

SPring-8: http://www.spring8.or.jp/en/news_publications/press_release/2011/111025

2) SPring-8 Press Release

“Clarifying the Mechanism behind the Induction
of Ferromagnetism in the Partial Absence of a
Rare-Earth Element”

http://www.spring8.or.jp/en/news_publications/press_release/2011/111102

3) RIKEN Research highlight

“The origin of organic magnets”

<http://www.rikenresearch.riken.jp/eng/research/6866>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山岡 人志 (YAMAOKA HITOSHI)

独立行政法人理化学研究所・石川 X 線干渉
光学研究室・専任研究員

研究者番号：30239850

(2) 研究分担者

ジャッリッジ イニヤス (JARRIGE IGNACE)

独立行政法人日本原子力開発機構・放射光
科学研究ユニット・研究員

(2012 年 5 月より米国 Brookhaven National
Laboratory NSLS II 研究員として異動)

研究者番号：00455289