

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 3 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24560809

研究課題名(和文) RKKY相互作用の崩壊的減少及びニッケルの磁気モーメント消失と近藤効果との相関

研究課題名(英文) Collapse-like decrease of RKKY interaction and relationship between disappearance of Ni magnetic moment and Kondo effect

研究代表者

矢野 一雄 (YANO, kazuo)

日本大学・理工学部・准教授

研究者番号：20256803

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、40年以上の精力的な研究にも関わらず現在でも理解する糸口が得られていない重い電子系物質に注目し、その中のCeNiの電子状態を理解する糸口を得ることを目的に微視・巨視的に攻究した。そのために(Ce-Gd)Niに注目し攻究したところ、Gd低濃度組成域(0.15 Gd 0.2)で発現する、RKKY相互作用の崩壊的な減少は”Ceに特有”な現象である可能性が高いこと、Gd高濃度組成域においてもRKKY相互作用は抑制されている可能性が高いことが判明した。更にGd濃度が0.8 0.5に減少すると、Ceの4f電子状態が磁場の影響を受けることが放射光により微視的に調べることで判明した。

研究成果の概要(英文)：A group of "heavy-fermion" materials have been investigating intensively over 40 years and nowadays, it remains to be interesting and a hard nut to crack. In this study, I have aimed to get some clues to understand the electronic states in CeNi by focusing on the famous heavy-fermion compound CeNi by employing the (Ce-Gd)Ni systems combined with ferri-magnet GdNi and the CeNi. Through these 3 years study, I have obtained some clues for reaching to the aim. These were summarized as follows; (1)collapse-like decrease in RKKY interaction at Gd-poor region (0.15 Gd 0.20) can be charactic of Ce element only, (2)the RKKY interaction can be suppressed even in Gd-rich regions, (3)micro-sopic XMCD (soft X-ray magnetic circular dichorism) measurement had it clear that the 4f electron of Ce can be affected by relatively small intensity of magnetic field (2-10 Tesla) with decreasing of Gd content from 0.8 to 0.5.

研究分野：遷移金属・希土類及び強相関係物質の磁性

キーワード：重い電子系 RKKY相互作用の崩壊 CeNi GdNi (Ce-Gd)Ni 近藤効果 分子場近似

1. 研究開始当初の背景

(1) CeNi は、本来は希土類(RE) 遷移金属(TM)に属する化合物でありながら磁気的な秩序を持たないことが広く知られ、重い電子系あるいは強相関物質という分野を形成している。ところが、RE-TM系の磁性の常識からはCe,Niともに磁性を有していることが期待され、両者は大きく乖離しているが、このような認識は殆どなかった。

(2) CeNiと同じ結晶構造を持ち、やはりRE-TM系に属するGdNiは、GdのみならずNiも磁気モーメントを有していることを、研究代表者のグループは実験的に検証しており、CeNi中のNiが磁気モーメントを消失していることは自明ではなく、新たな有意な視点・課題であり、CeNiの電子状態を理解するために重要な糸口になり得るという問題意識を我々は有していた。

(3) 上述したことから、CeNi+GdNiの混晶系(Ce_{1-x}Gd_x)Niは、Gd濃度の変化に伴ないNiのみならずCeの電子状態も変化することが期待できるが(Gd=0の場合にNiは非磁性体であり、Gd=1の場合は明確な磁性体)、前回採択された科研費の課題の遂行により、Gdが低濃度領域(0.15 Gd 0.2)において、磁化の温度依存性が従来殆ど報告例のない直線になり、これはGd-Gd間の交換相互作用、即ちRKKY交換相互作用が崩壊的に減少していることで発現していることを分子場近似解析から検証した。

(4) 前回科研費に採択された課題の遂行により、Gd+Ni(合計)の磁気モーメントの大きさは、Gd濃度X=0.8, 0.5から0.2, 0.15へ減少すると、0.4 μ_B 0.2 μ_B へ、ほぼ半減することが判明した。

2. 研究の目的

(1) 1.(3)に記載した、(Ce_{1-x}Gd_x)Ni系試料のGd低濃度領域で発現するRKKY相互作用が崩壊的に減少する要因は、Ceに特異な現象であるか否かを実験的に検証することはCeNiあるいはCeの特異性を理解する上で極めて重要であると考えられる。そこで、Ceを他の希土類元素であり、かつ磁性を有していないY, Lu, Laで置換し、それらの場合のRKKY相互作用が、やはり崩壊的に減少するの否かを実験的に検証することが、最初の目的である。

(2) 前回採択された課題の遂行により、CeはGd=0.8の高濃度の組成においては磁性を担う4f電子に起因する磁気モーメントを有しており、かつ、H=2 Tesla程度の比較的(かなり)小さい磁場でCeの磁気モーメントが減少し始めることが判明した。この現象は巨視

的な磁化測定の結果にも反映する筈であり、これを明確にすること、および、Gd濃度が低濃度へ減少するにつれて、Ceの電子状態がどのように変化していくのかを微視的手法のXMCDのみならず、磁気コンプトン散乱MCPという手法でも実験的に調べ、新たな知見・情報を入手することは、極めて大きな前進をもたらす。これが2番目の目的である。

(3)これと平行して、1.(2)のNiの磁気モーメントの発現・消失は強相関系の分野のみならず、磁性の分野でも極めて意義が大きい。微視的な手法では、Niの3d電子の情報を直接的に入手可能であり、Gd濃度を高濃度から低濃度まで変化させ、それに応じた電子状態の変化を調べ、知見・情報を入手する。これも本研究の大きな、重要な目的である。

3. 研究の方法

(1)測定する試料は、基本的には単結晶試料とし、Gd=0.10以上の濃度ではブリッジマン法を主として採用し、Gd=0.10以下のGd低濃度域では、チョクラルスキー法を主として採用する。2.(1)に記載した、(Y-Gd)Ni, (Lu-Gd)Niは単結晶試料の作成が難しいと推測されるが、その場合も、ブリッジマン法での多結晶試料を作成する。

(2) 巨視的な磁化測定は、測定温度2K~キュリー温度T_c+50Kを基本とし、印加磁場は0~2Teslaとして、必要に応じて、5 Teslaまでの磁場を使用する。磁化測定としては、M-H特性と磁化の温度依存性を磁場を変化させながら測定する。その結果から、飽和磁化の値を求め、逆帯磁率の温度依存性から、磁気構造等についての情報を入手する。

また、得られた磁化の温度依存性を分子場近似により解析し、構成元素間の交換相互作用定数(エネルギー)等を導出し、これによりRKKY相互作用についての情報も入手する。

(3) 微視的な、放射光を使用した測定は、磁気コンプトン散乱プロファイル(MCP)と軟X線MCD(磁気円二色性)を利用し、磁気的な性質に關与する電子状態に対する情報を入手する。

4. 研究成果

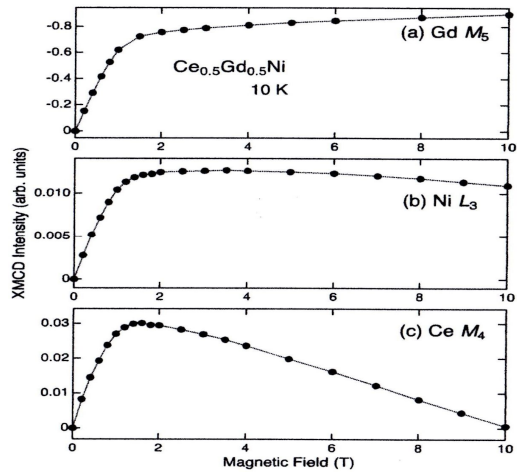
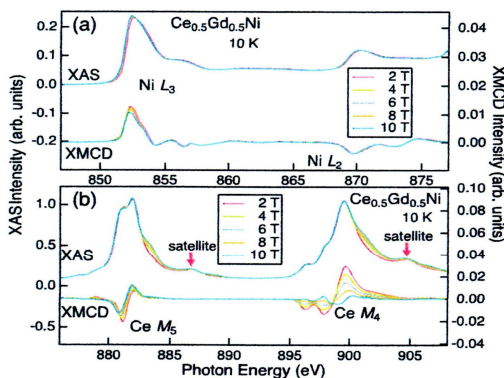
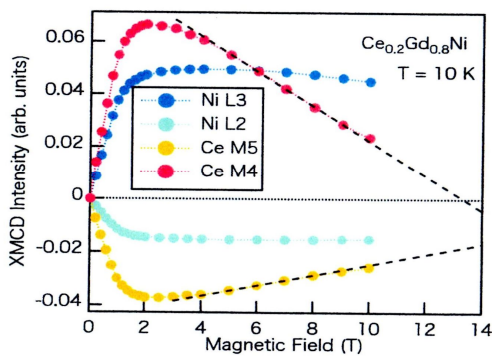
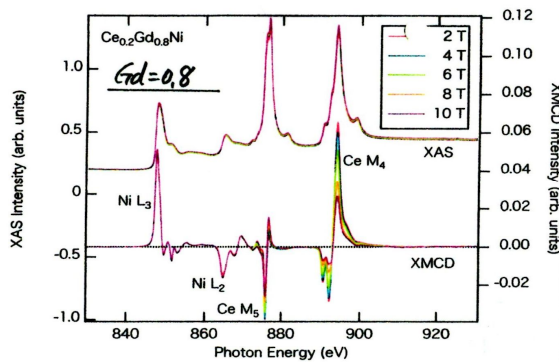
上記2., 3. に記したように、

- ・ 微視的な実験手法により、知りたい電子状態を直接的に入手できるXMCD(軟X線磁気円二色性)により得られた結果と、
- ・ 巨視的な磁化測定結果とそれを解析することにより得られた情報とに分けて記載する。

< XMCD (軟X線磁気円二色性)により得られた結果 >

(Ce_{1-x}Gd_x)Ni 単結晶試料のうち、Gd 濃度 X=0.8 と 0.5 の Gd 高濃度組成試料について、スプリング 8 の SPring-8_BL-23SU (原研ライン) にて XMCD の測定を行い、構成元素のうち、Ce_{4f}, Ni_{3d}, Gd_{4f} 電子について磁場 H を変化させて測定を行った。測定温度は 10 K である。

Gd_{4f} 電子は、周りの環境に殆ど依存しないことが磁化測定からも知られており、今回の実験でも X=0.8 と 0.5 との X 線吸収スペクトルの相違は殆ど見られず、Ni_{3d} についても同様に、殆ど相違は観測できない。そのため、ここでは、Ce_{4f} について、Ce_{3d} 電子を Ce_{4f} 電子レベルに励起し、吸収されたスペクトル M_{4,5} についての測定結果と、磁化の値に相当する XMCD のピーク値を、それぞれ下に示す。



この図から、以下のことが分かる：

- Ce, Gd, Ni の磁気モーメント (=磁化、磁石の強さ) を担っているそれぞれの電子である Ce_{4f}, Gd_{4f}, Ni_{3d} は、X=0.8, 0.5 の高濃度域では明確な XMCD のシグナルを有しており、その結果、Gd 以外の Ni, Ce も、この組成域では明確な磁性を有している (Ce も磁性元素である)。
- Ce_{4f} 電子は明確な磁性を有しているが、CeRu₂Si₂, CeRu₂Ge₂ の Ce 4f 電子に比べ局在性が異なり、遍歴性が相対的に大きいと考えられる。
- 磁場 H の増加に伴ない Gd_{4f}, Ni_{3d}, Ce_{4f} の各々の XMCD のシグナルは増加し、磁気モーメントは増加するが、H=2 Tesla 近傍で前 2 者は飽和するが、これは巨視的な磁化測定 (M-H) の結果、磁化の飽和に対応するもので、極めて自然な結果である。ところが、Ce_{4f} のシグナルのみ H < 2 Tesla で減少し始めるが、これは、Ce の磁気モーメントが Gd のそれと反平行状態で飽和した後、Gd と平行な方向へ回転し始めた可能性が高い (スピン・フロップ)。

これは、Ce に働く交換相互作用が通常に比べてかなり小さいことを示唆する。

このスピン・フロップは、M-H 曲線では不連続性を示さず、連続的に増加することが特徴である。

更に、この 2 つの図から得られる情報で、極めて示唆に富むと考えられるのは、Gd=0.8 では見られず、Gd=0.5 の X 線吸収 XAS に明確に見られる “顕著な” 磁場依存性である。

これは、Gd=0.8 0.5 に減少することにより、Ce_{4f} が周囲から感じる “内部” 磁場が減少し、その結果、Ce_{4f} の電子状態が一部、変化したことを示唆するが、更 Gd 濃度が減少することにより Ce_{4f} 電子が受ける内部磁場が減少すると、更に顕著な Ce_{4f} 電子の XAS が磁場依存性を示すことが想定される。

<磁気特性（巨視的な測定結果と分子場近似解析）>

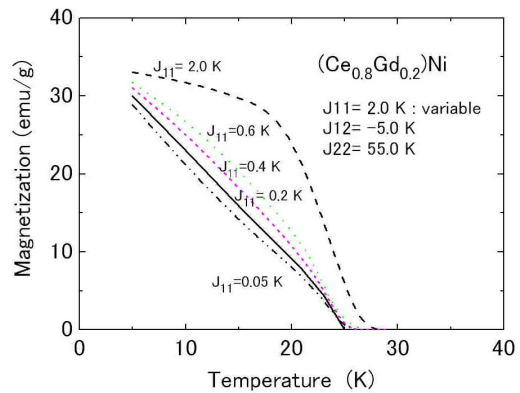
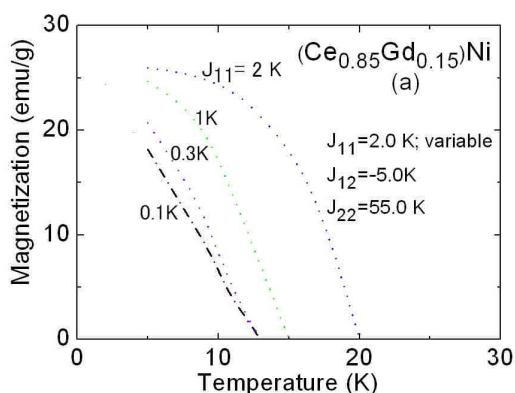
4.の最初と2.(1)に記載したように、本研究の大きな目的の1つが、 $(\text{Ce}_{1-x}\text{Gd}_x)\text{Ni}$ 系化合物のうち、 $\text{Gd}=0.20-0.15$ のGd低濃度組成域で発現する、磁化の温度依存性が直線的に変化する特異な挙動が、Ceに固有の現象か否かを実験的に検証することにある。前回採択された科研費による研究により、この直線的な磁化の温度依存性は、Gd-Gd間の交換相互作用、即ちRKKY相互作用の“崩壊的”減少に起因することが判明した。したがって、この特異な直線的な磁化の温度変化が、Ce Y, Lu, Laに置換した試料の磁化の温度依存性を調べ、それらが直線的に変化するか否かを調べれば良いことになる。

このようなシナリオに基づいて、 $(\text{Y-Gd})\text{Ni}$ 系、 $(\text{Lu-Gd})\text{Ni}$ 系、更には $(\text{La-Gd})\text{Ni}$ 系の試料を作成し、それらの磁化の温度依存性を調べた。Y, Lu, Laの濃度は、 $(\text{Ce-Gd})\text{Ni}$ 系の結果を踏まえ、 $\text{Gd}=0.2, 0.15$ としたため、 $\text{Y}(\text{Lu}, \text{La})=0.80-0.85$ とした。

(1) 分子場近似解析から $M(T)$ 直線となる条件；

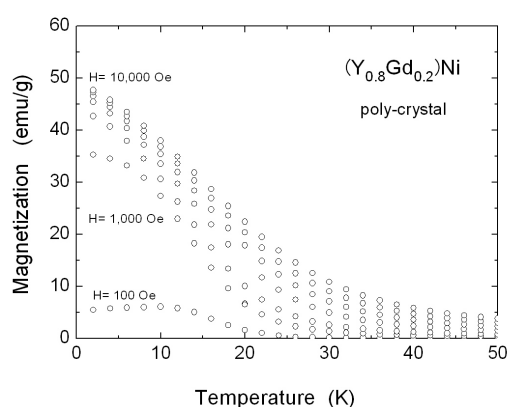
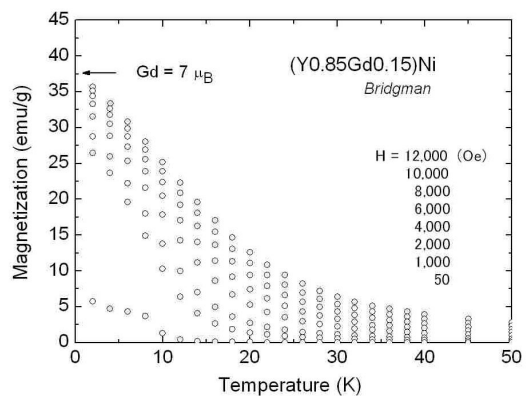
前回採択された科研費の期間中に実施したことであるが、極めて重要な結果であるため、以下に、計算結果を示す。

計算の詳細は、参考文献を参照してもらうこととし、実際の計算は、 $J_{11}=J_{\text{Gd-Gd}}$ のみならず、 $J_{12}=J_{\text{Gd-Ni}}$ と $J_{22}=J_{\text{Ni-Ni}}$ についても計算しているが、 $J_{11}=J_{\text{Gd-Gd}}$ の以外のパラメータを変化させることで磁化 M が温度に対して直線になることは困難であることを確認している。したがって、磁化 M の温度依存性 $M(T)$ が直線になるための条件は、 $J_{11}=J_{\text{Gd-Gd}}$ が崩壊的に小さくなることであり、その条件が達成されている場合に、磁化 M は直線になることが分かる。



計算の詳細は、参考文献を参照してもらうこととし、実際の計算は、 $J_{11}=J_{\text{Gd-Gd}}$ のみならず、 $J_{12}=J_{\text{Gd-Ni}}$ と $J_{22}=J_{\text{Ni-Ni}}$ についても計算しているが、 $J_{11}=J_{\text{Gd-Gd}}$ の以外のパラメータを変化させることで磁化 M が温度に対して直線になることは困難であることを確認している。したがって、磁化 M の温度依存性 $M(T)$ が直線になるための条件は、 $J_{11}=J_{\text{Gd-Gd}}$ が崩壊的に小さくなることであり、その条件が達成されている場合に、磁化 M は直線になることが分かる。

(2) Yで置換した系； $\text{Gd}=0.15, 0.20$ の場合
YでGdを置換した試料についての磁化 M の温度依存性を下図に示す。

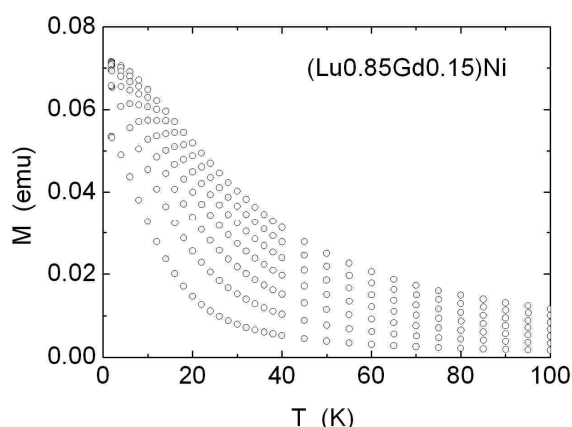


上記の2つの図について、磁化の値(絶対値)についての議論も必要であるが、磁化の温度依存性の形に注目し、それから RKKY 相互作用の崩壊的な減少が Y で置換した系についても発現しているか否かについて言及すると、図から、磁化の温度依存性は直線的ではなくなり、したがって、Y で置換した系では、RKKY 相互作用($J_{11}=J_{Gd-Gd}$)は生き返りつつあることが読取れる。

すなわち、この2つの結果からは、RKKY 相互作用の崩壊的な減少は、Ce のある種の特異性に起因しているものと推測される。

(3) Lu で置換した系 ; Gd=0.15 の場合

Gd を Ce を僅か 3 at% 置換しただけで、磁気的な秩序が発現する。(これは驚きである)。測定した、磁化の温度変化を下に示す。



この図から、やはり、Y で置換した系と同様に、磁化 M の直線的な変化は観測できない。したがって、Lu で置換した系においても、RKKY 相互作用は、Ce 系に比べて、ある程度大きくなっており、生き返っていることが推測される。

ただし、ここに記載すべきことは、(Y-Gd)Ni 系と (Lu-Gd)Ni 系の結晶構造は FeB 系に属しており、(Ce-Gd)Ni 系の結晶構造は CrB 系であり、多少、異なることである。

現在、試料の作成が完了し、磁化測定を行う準備中の、(La-Gd)Ni は (Ce-Gd)Ni と同じ結晶構造を有しており、最終的には、この試料の測定結果を見て、最終的な結論を引き出したい。

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)

Kazuo Yano, Katsuhiko Nishimura, Takahiro Namiki, Eiji Kita, Tsuyoshi Ohta and Kiyoo Sato, Behaviors of RKKY

interaction in Ce-based $(Ce_{1-x}Gd_x)Ni$ compounds (RE=Ce, Y) JPS.Conf. Proc.3 (2014) J. Phys., Conference Series, 査読有、vol.3, 2014, pp, 011092-1~011092-6.

Tetsuo Okane, Yukiharu Takeda, Kazuo Yano, Atsushi Fujimori, Hiroshi Yamagami, Katsuhiko Nishimura, Yoshikazu Isikawa, and Kiyoo Sato, X-ray Magnetic Circular Dichroism Study of $Ce_{0.5}Gd_{0.5}Ni$, J. Phys., J. Phys., Conference Series, 査読有、vol.3, 2014, pp, 011028-1~011028-6.

[学会発表](計16件)

Kazuo Yano, Katsuhiko Nishimura, Takahiro Namiki, Tsuyoshi Ohta, Relationship between onset of RKKY interaction and Ce element in Ce-based (RE-Gd)Ni; (RE=Ce, Y, Lu) compounds, ICM2015 (International Conference on Magnetism 2015), 2015/7/07, Barcelona, Spain

矢野一雄、西村克彦、並木孝洋、大田剛司、CeNi と GdNi との混晶系化合物 $(Ce_{1-x}Gd_x)Ni$ における RKKY 相互作用の崩壊的な減少と Ce Lu, Y 置換効果, 日本物理学会第 70 回年次大会、平成 27 年 3 月 22 日、早稲田大学(東京都、新宿区)

矢野一雄、西村克彦、並木孝洋、大田剛司、佐藤清雄、(RE-Gd)Ni; (RE=Ce, Y, Lu) における RKKY 相互作用の希土類依存性、日本物理学会 2014 年秋季大会、平成 26 年 9 月 08 日、中部大学(愛知県、春日井市)

矢野一雄、西村克彦、大田剛司、佐藤清雄、CeNi における常磁性的挙動と Gd 置換による磁性の変化、日本物理学会 2014 年秋季大会、平成 26 年 9 月 08 日、中部大学(愛知県、春日井市)

Kazuo Yano, Katsuhiko Nishimura, Takahiro Namiki, Tsuyoshi Ohta, Kiyoo Sato, Relationship between RKKY interaction and Rare earth elements in Ce-based (RE-Gd)Ni; compounds, LT27 (Low Temperature 27), 2014/8/07, Buenos Aires, Argentina

矢野一雄、西村克彦、並木孝洋、大田剛司、佐藤清雄、Ce-Ni 系化合物 (RE-Gd)Ni; (RE=Ce, Y, Lu) の RKKY 相互作用と希土類 RE との相関、日本物理学会第 69 回年次大会、平成 26 年 3 月 28 日、東海大学(神奈川県、平塚市)

矢野一雄、西村克彦、並木孝洋、喜多英治、大田剛司、佐藤清雄、Ce 系重い電子系化合物 (RE-Gd)Ni (RE=Ce, Y) における Ce と RKKY

相互作用, 日本物理学会 2013 年秋季大会、平成 25 年 9 月 25 日、徳島大学(徳島県、徳島市)

矢野一雄、西村克彦、大田剛司、佐藤清雄、重い電子系化合物(Ce-Gd)Ni における Ce の磁気モーメントと $1/H$ プロット, 日本物理学会 2013 年秋季大会、平成 25 年 9 月 25 日、徳島大学(徳島県、徳島市)

Kazuo Yano, Katsuhiko Nishimura, Takahiro Namiki, Eiji Kita, Tsuyoshi Ohta, Kiyoo Sato, Behaviors of RKKY interaction in Ce-based (RE-Gd)Ni compounds (RE=Ce, Y), SCES13 (Strongly Correlated Electron Systems 2013), 2013/8/07, Tokyo, Japan

Tetsuo Okane, Yukiharu Takeda, Kazuo Yano, Atsushi Fujimori, Hiroshi Yamagami, Katsuhiko Nishimura, Yoshikazu Isikawa, and Kiyoo Sato, X-ray Magnetic Circular Dichroism Study of $Ce_{0.5}Gd_{0.5}Ni$, SCES13 (Strongly Correlated Electron Systems 2013), 2013/8/06, Tokyo, Japan

矢野一雄、西村克彦、並木孝洋、喜多英治、大田剛司、佐藤清雄、(RE-Gd)Ni (RE=Ce, Y) 系化合物における RKKY 相互作用と磁気モーメント, 日本物理学会第 68 回年次大会、平成 25 年 3 月 27 日、広島大学(広島県、東広島市)

矢野一雄、西村克彦、石川義和、大田剛司、佐藤清雄、Ce 系重い電子系化合物 $(Ce_{1-x}Gd_x)Ni$ ($0 < x < 0.3$) の RKKY 相互作用と磁気モーメント, 日本物理学会 2012 年秋季大会、平成 24 年 9 月 20 日、横浜国立大学(神奈川県、横浜市)

矢野一雄、西村克彦、石川義和、大田剛司、佐藤清雄、Ce 系重い電子系化合物 $(Ce_{1-x}Gd_x)Ni$ ($0 < x < 0.3$) の RKKY 相互作用と磁気モーメント, 日本物理学会 2012 年秋季大会、平成 24 年 9 月 20 日、横浜国立大学(神奈川県、横浜市)

岡根哲夫、矢野一雄、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、平成 24 年 9 月 20 日、横浜国立大学(神奈川県、横浜市)

矢野一雄、西村克彦、喜多英治、大田剛司、佐藤清雄、 $(Y_{1-x}Gd_x)Ni$ ($0 < x < 0.3$) 化合物の RKKY 相互作用の組成依存性と磁気特性, 日本物理学会 2012 年秋季大会、平成 24 年 9 月 18 日、横浜国立大学(神奈川県、横浜市)

Kazuo Yano, Katsuhiko Nishimura, Eiji Kita, Tsuyoshi Ohta, Kiyoo Sato, RKKY interaction and magnetic properties in (Y-Gd)Ni compounds, ICM 2012 (International Conference on Magnetism 2012), 2012/7/11, Busan, Korea

[その他]
ホームページ等(現在作成中)
<http://www.cis-trans.org./nihon-y/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

矢野 一雄 (YANO, kazuo)
日本大学・理工学部・准教授
研究者番号: 20256803

(3) 連携研究者

西村 克彦 (NISHIMURA, katsuhiko)
富山大学・大学院理工学研究部・教授
研究者番号: 70218189