

令和 6 年 6 月 13 日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2023

課題番号：18K03523

研究課題名(和文) コンプトン散乱測定による重い電子系Ce化合物における電子構造の研究

研究課題名(英文) Study of electronic structure in heavy fermion Ce compounds through Compton scattering experiment

研究代表者

小泉 昭久 (Koizumi, Akihisa)

兵庫県立大学・理学研究科・准教授

研究者番号：00244682

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円

研究成果の概要(和文)：Ce系重い電子化合物であるCeIn3および擬二次元系層状物質CeTIn5 (T = Co, Rh)を対象試料として、これらの系が示す「f電子の遍歴・局在」、「磁性・非磁性」、「重い電子状態・超伝導」の変化に伴う電子構造の移り変わりを明らかにするため、高エネルギー放射光X線を利用した高分解能コンプトン散乱の2次元再構成測定・解析を実施した。

特に、CeIn3においては、「f電子の遍歴・局在」、「磁性・非磁性」を反映した電子構造の変化を観測し、CeCoIn5においては、非フェルミ液体状態における反強磁性揺らぎ構造や超伝導転移に伴う電子構造の変化の観測に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

物性研究において重要な情報であるフェルミ面構造は、従来、ドハース・ファンアルフェン効果や光電子分光の測定で調べられてきた。これらの手法の有効性は良く知られているが、その一方で、温度や磁場の有無、試料の純度や表面状態など、測定条件については制約があり、また、得られる結果も、フェルミ面の一部や表面状態を反映した情報である。

本研究で、コンプトン散乱実験により得られたCeIn3やCeCoIn5の電子占有数密度は、f電子の遍歴・局在状態や反強磁性状態、超伝導状態におけるバルクのフェルミ面構造を反映しており、温度や試料状態についての制約を受けることなく観測可能であることを示した例として意義がある。

研究成果の概要(英文)：We have obtained two-dimensional electron occupation number densities through a reconstruction analysis of high-resolution Compton profiles measured with high-energy synchrotron radiation X-rays in heavy fermion systems CeIn3 and CeTIn5 (T=Co and Rh) to reveal the change in electronic structure associated with the transition of f-electron between itinerant and localized states, between magnetic and non-magnetic states, and between non-Fermi liquid and superconducting states.

Specifically, in CeIn3, we have observed the change in electronic structure between itinerant and localized states and between magnetic and non-magnetic states. Particularly, in CeCoIn5, we have successfully observed the electronic structures related to the antiferromagnetic fluctuations in non-Fermi liquid and the superconducting state to arise after that.

研究分野：放射光物性

キーワード：重い電子系 セリウム化合物 超伝導 反強磁性揺らぎ 放射光 コンプトン散乱 フェルミ面 運動量密度分布

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

Ce 元素を含む金属間化合物には「重い電子」状態を示すものが多く発見されており、強相関電子系の大きな研究分野を形成している。重い電子の形成には、Ce 4f 電子が関わっており、f 電子の遍歴 局在や、この系における磁性 非磁性の変化は、伝導電子と f 電子の混成 (c-f 混成) の大小関係によって決まると考えられている。低温 (絶対零度) において c-f 混成を大きくしていくと、磁性が消える点が現れるが、この点は量子臨界点と呼ばれており、この近辺では超伝導など未だ十分には解明されていない物理現象が観測されている。これまでに、量子臨界状態に至るシナリオとして、主に 2 つの考えが提案されており、その 1 つは、スピン密度波模型で、この場合には、重い電子を形成したままで磁性を示す。一方、もう 1 つの近藤崩壊模型では、磁性相において重い電子は消失する。重い電子系における f 電子の遍歴 局在 や 磁性 非磁性、さらに、量子臨界点の近辺に見られる 超伝導 などの物理現象を理解するためには、それぞれの電子状態を知ることが重要と考えられるが、これまで、上記の各状態における電子構造を直接的に観測し、電子構造の変化に伴って c-f 混成が どのように変わるかを系統的に求める研究は行われていなかった。

### 2. 研究の目的

本課題では、Ce 系重い電子化合物である  $\text{CeIn}_3$  および  $\text{CeTIn}_5$  (T= Co, Rh) を研究対象とし、これらの系が示す f 電子の遍歴 局在の変化、磁性相における重い電子状態の存否、超伝導状態について、コンプトン散乱測定を用いて 実験的に電子構造を明らかにするとともに、実験結果に対応する理論的な電子構造と比較を行い、各電子状態における c-f 混成の大きさを推定し、この系の物性に対する Ce 4f 電子の寄与を解明することを目的とした。

### 3. 研究の方法

研究対象となる単結晶試料は、フラックス法を用いて作成された  $\text{CeIn}_3$ 、 $\text{LaIn}_3$  および  $\text{CeTIn}_5$  (T= Co, Rh) である。結晶方位を同定した試料について、SPring-8 における高エネルギー放射光 X 線を用いた高分解能コンプトン散乱の角度依存性測定を行った。図 1 に、コンプトン散乱の実験配置を示す。入射 X 線のエネルギーは 115.6 keV で、試料によりコンプトン散乱された X 線をアナライザー結晶で分光することにより高分解能を得ることができる。散乱 X 線は、ローランド円上に設置された 2 次元検出器によって測定される。各試料において、[100]軸から[110]軸の間で等間隔に 5 方位のコンプトン・プロファイルを測定し、2 次元運動量密度の再構成解析を行った。この解析で用いた方法は直接フーリエ変換法で、先ず、各方位のコンプトン・プロファイルをフーリエ変換し、実空間の関数 ( $B(r)$ 関数) を求める。次に、各方位の  $B(r)$ 関数の間を補間することにより 2 次元  $B(r)$ 関数を導出し、これを逆フーリエ変換すれば、3 次元の運動量密度分布を観測面に射影した 2 次元運動量密度分布が得られる。更に、2 次元運動量密度分布をブリルアンゾーンの大きさを分割し、一つのブリルアンゾーンに重ね合わせるにより 2 次元電子占有数密度を求めた。これは、3 次元のフェルミ体積を 2 次元的なブリルアンゾーンに射影したものに相当している。

上記のような測定・解析を、 $\text{CeIn}_3$  については、室温の f 電子局在状態と低温 (20K) の遍歴状態、更に低温 (7K) の反強磁性状態において行った。f 電子を持たない  $\text{LaIn}_3$  については、 $\text{CeIn}_3$  との比較のため、室温での測定を行った。また、 $\text{CeCoIn}_5$  においては、室温の f 電子局在状態、低温 (8 K) の非フェルミ液体状態、および、超伝導転移温度 ( $T_c = 2.3$  K) 以下の  $T = 2$  K で、 $\text{CeRhIn}_5$  については、比較のため室温で測定を行った。

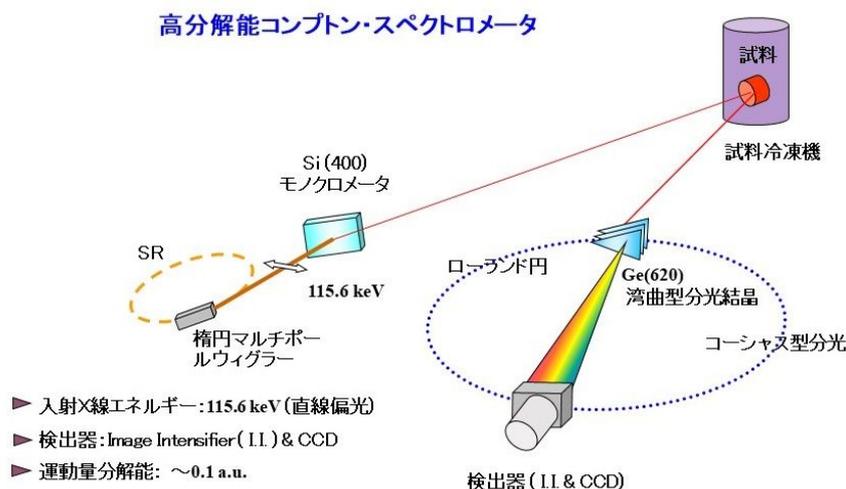


図1 コンプトン散乱の実験配置 (SPring-8 BL08W)

#### 4. 研究成果

##### (1) CeIn<sub>3</sub>における遍歴・局在状態および反強磁性状態の電子構造

CeIn<sub>3</sub>は、重い電子系化合物においては、まれである立方晶(Cu<sub>3</sub>Au-type)の構造をもち、転移温度： $T_N=10$  K で反強磁性を示す[1]。外部圧力を印加すると $T_N$ は徐々に低下してゆき、 $P_c \approx 2.6$  GPa で反強磁性秩序が消失する[2]。興味深いことに、この臨界圧力の近傍において超伝導が発現する。一方、伝導電子と $f$ 電子の混成( $c-f$ 混成)が始まるとされる特性温度： $T^*$ は、圧力の増加とともに上昇することが報告されている[3]。反強磁性状態から量子臨界点へ、また、超伝導状態へと変化していくことを理解するには、反強磁性相において、 $c-f$ 混成が生き残っているのかがわかることが重要と考えられる。

そのような試みとして、少量のSnがドーパされたCeIn<sub>3</sub>において、電気抵抗と比熱の温度-磁場依存性の測定が行われ、 $T^*$ が反強磁性相に伸びていることを示す温度-磁気相図が得られている[4]。これは、反強磁性相において、 $c-f$ 混成が残っていることを示唆するものであるが、より直接的な情報を得るためには、フェルミ面構造を確認する必要がある。

これまでも、CeIn<sub>3</sub>のフェルミ面については、ドハ-ス・ファンアルフェン効果や角度分解光電子分光、陽電子対消滅などによる研究が行われており、各測定法の有効性は良く知られているが、一方で、いずれの場合にも、測定条件については、何らかの制約がある。ドハ-ス・ファンアルフェン効果の測定は、純良な単結晶試料を用いて、非常に低温において、印加磁場を変化させながら行う必要がある。角度分解光電子分光測定は、用いるX線のエネルギーによって、試料表面に敏感な方法であり、バルクの電子状態を観測していない場合が考えられる。陽電子対消滅の測定では、コンプトン散乱実験と同様に、電子の運動量密度分布や占有数密度を得ることができるが、陽電子は試料中の欠陥に捕らわれやすく、また、全電子を観測するわけではないため、データの規格化が難しい。これらの測定を用いた研究報告について、得られたフェルミ面構造の測定温度を比較しても、それぞれの測定条件において可能な範囲で行われたものであり、同一の測定手法による系統的な実験にはなっていない。そこで、本研究では、ゼロ磁場下で、温度による電子状態の変化を系統的に観測・比較するため、高分解能コンプトン散乱測定を実施した。

解析結果の例として、図2(a)(b)に、CeIn<sub>3</sub>の300 Kと20 Kにおける2次元電子占有数密度を示す。図中の $\Gamma(X)$ 、 $M(R)$ 、 $X$ は、ブリルアンゾーンにおける各対称点が、2次元面に射影されたときの位置を表している。これらの比較から分かるように、電子構造には明らかな違いが見られ、 $f$ 電子の局在状態(300 K)から遍歴状態(20 K)への変化を反映しているものと考えられる。図2(a)300 Kの占有数密度にはX点周りに、赤色で示された電子面による構造が現れているが、このような構造は実験的に報告されていない。一方、動的平均場理論に基づく第一原理バンド計算から求められたCeIn<sub>3</sub>の局在状態におけるフェルミ面構造を見ると、M点から伸びた電子面がX点で繋がった構造になっており、今回の実験結果との関連が示唆された[5]。300 KのX点に見られる構造は島状であり、繋がった構造に見えないが、これは、2次元の電子占有数密度であるためである。理論計算によるフェルミ面構造には、 $\Gamma$ 点周辺からX点の近くに向かって伸びるホール面があり、2次元占有数密度では、このホール面による構造が重なり、打ち消しあった結果として島状構造になっていると理解できる。

次に、図2(b)20 Kの占有数密度を見ると、M点周りの構造が、 $\Gamma$ 点に向かう対角方向で凹んでいることが分かる。このような構造も、他の実験では観測されていないが、同様に理論計算の結果と比較することで理解できる。遍歴状態のフェルミ面には、 $\Gamma$ 点からM点方向に伸びる細い腕状のホール面があると考えられ、2次元電子占有数密度では、このホール面構造の射影がM点周りの球状の電子面構造の射影と重なり、打ち消しあうことで、対角方向の凹み構造に見えるものと考えられる。更に、CeIn<sub>3</sub>においては、反強磁性相(7 K)における2次元電子占有数密度も得られており、反強磁性相で $c-f$ 混成が存在しているモデルで説明される。従って、反強磁性状態から量子臨界点や超伝導状態へ至るシナリオとしては、スピン密度波模型が妥当であると考えられる。

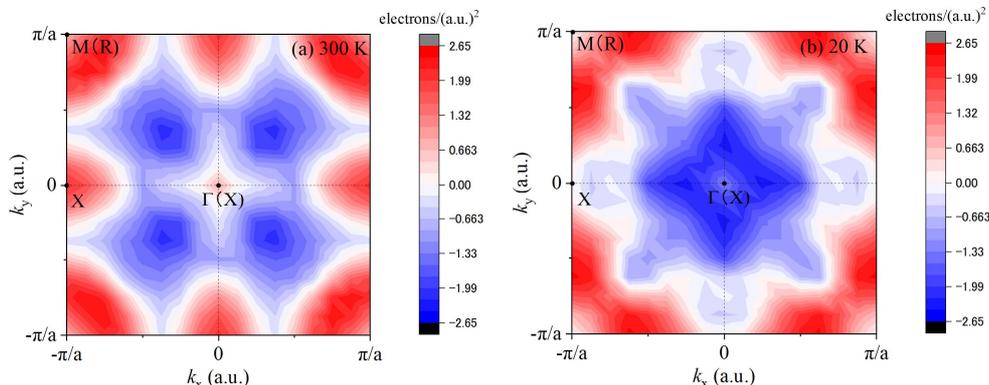


図2 CeIn<sub>3</sub>における2次元電子占有数密度

## (2) CeCoIn<sub>5</sub> の非フェルミ液体状態における反強磁性揺らぎ および 超伝導状態の観測

Ce 系重い電子化合物の 1 つである CeCoIn<sub>5</sub> は、母物質に相当する上記の CeIn<sub>3</sub> を CoIn<sub>2</sub> 層で挟んだ構造をもつ擬二次元系層状物質である。この物質は、温度:  $T^* \sim 40$  K 以上の領域で  $4f$  電子は局在状態にあるが、この温度以下では、徐々に遍歴性を獲得し重い電子状態に移行すると考えられている。しかし、電気抵抗や磁気抵抗、ホール効果などの測定結果から、 $T^*/2 (\sim 20$  K) 以下の温度領域において非フェルミ液体的挙動が観測されており、強い反強磁性揺らぎと強相関電子系のバックフロー効果に起因した準粒子によるホット・スポット/コールド・スポットの存在が示唆されている[6]。さらに、 $T_c = 2.3$  K 以下で超伝導を示すが、上述のように、CeCoIn<sub>5</sub> は、CeIn<sub>3</sub> が CoIn<sub>2</sub> で挟まれた構造をもち、CeIn<sub>3</sub> 層に正の有効圧力を加えていると見なすことができることから、常圧下においても非常に高い  $T_c$  をもつ重い電子系超伝導体となっている。

図 3 (a) (b) に CeCoIn<sub>5</sub> の 8 K と 2 K で得られた 2 次元電子占有数密度を示す。温度: 8 K は、非フェルミ液体状態であり、図 3 (a) 中で示されている所は、反強磁性秩序が発生した場合の磁気ブリルアンゾーンを表している。理論的に指摘されている反強磁性揺らぎによる準粒子構造は、この磁気ブリルアンゾーン上に現れると考えられているが、実際に、対応する位置に構造が観測されており、反強磁性揺らぎの観測に成功したものと考えられる。さらに低温の超伝導状態(図 3 (b))では、この反強磁性揺らぎによる構造が消えていることが分かる。これは、超伝導転移に伴い超伝導ギャップが開いたために、揺らぎによる準粒子構造が消えたことによる変化と考えられる。

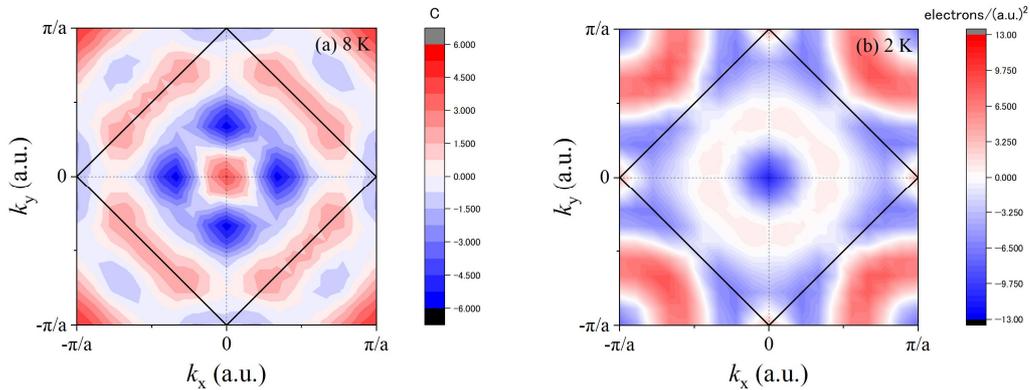


図 3 CeCoIn<sub>5</sub> における 2 次元電子占有数密度

### < 参考文献 >

- [1] K. H. Buschow, H.W. de Wijn, and A. M. van Diepen, *J. Chem. Phys.* **50**,137(1969).
- [2] R. Settai, T. Kubo, T. Shiromoto, D. Honda, H. Shishido, K. Sugiyama, Y. Haga, T. D. Matsuda, K. Betsuyaku, H. Harima, T. C. Kobayashi, and Y. Ōnuki, *J. Phys. Soc. Jpn.* **74**, 3016(2005).
- [3] G. Knebel, D. Braithwaite, P. C. Canfield, G. Lapertot, and J. Flouquet, *Phys. Rev. B* **65**, 024425 (2001).
- [4] A. V. Silhanek, T. Ebihara, N. Harrison, M. Jaime, K. Tezuka, V. Fanelli, and C. D. Batista, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 206401 (2006).
- [5] O. Sakai, and H. Harima, *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, SA127 (2011).
- [6] Y. Nakajima, H. Shishido, H. Nakai, T. Shibauchi, K. Behnia, K. Izawa, M. Hedo, Y. Uwatoko, T. Matsumoto, R. Settai, Y. Ōnuki, H. Kontani, and Y. Matsuda, *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**(2007)024703.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 1件）

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 小泉昭久
2. 発表標題 Review, 高分解能コンプトン散乱および磁気コンプトン散乱を用いた研究
3. 学会等名 日本物理学会 第78回年次大会（東北大学）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小泉昭久, 筒井智嗣, 辻 成希, 海老原孝雄
2. 発表標題 コンプトン散乱測定による重い電子系化合物CeCoIn5の 超伝導状態における電子構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会 オンライン開催
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小泉昭久, 大森涼平, 小林寿夫, 辻 成希, 筒井智嗣, 海老原孝雄
2. 発表標題 コンプトン散乱測定による重い電子系化合物CeCoIn5 の非フェルミ液体状態における電子構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会（岡山大学）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小泉昭久, 大森涼平, 小林寿夫, 辻 成希, 筒井智嗣, 海老原孝雄
2. 発表標題 コンプトン散乱測定による重い電子系化合物CeCoIn5 の非フェルミ液体状態における電子構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会（岡山大学）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小泉昭久, 片山大地, Jumaeda Jatmica, 松本 紳, 時井真紀, 小林寿夫, 辻 成希, 筒井智嗣, 海老原孝雄
2. 発表標題 コンプトン散乱測定による重い電子系化合物CeIn3の反強磁性相における電子構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 片山大地, Jumaeda Jatmica, 海老原孝雄, 松本紳, 時井真紀, 小林寿夫, 辻成希, 小泉昭久
2. 発表標題 コンプトン散乱測定による重い電子系化合物CeIn3 の電子構造の研究
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会 九州大学伊都キャンパス(福岡県)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	海老原 孝雄  (Ebihara Takao)		
研究協力者	松本 紳  (Matsumoto Makoto)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------