

平成21年6月26日現在

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2007 ~ 2008

課題番号：19740221

研究課題名 (和文) 重い電子一価数揺動転移に伴う物性の変化

研究課題名 (英文) Evolution of physical properties by the transition from intermediate valence to heavy fermion state

研究代表者

辻井 直人 (TSUJII NAOHITO)

独立行政法人物質・材料研究機構・量子ビームセンター・主任研究員

研究者番号：90354365

研究成果の概要：

価数揺動は f 電子系の重要課題であるが、近藤温度が低い物質においては、この効果はほとんど無視されてきた。本研究では量子臨界点に近い $\text{YbCu}_{3.5}\text{Al}_{1.5}$ や磁気秩序を示す YbCu_3Al_2 においても価数揺動が起きていることを、試料作成と物性測定により明らかにした。また半導体 FeGa_3 や FeSi は価数揺動によってバンドギャップが開いている可能性が議論されていたが、本研究により古典的バンド半導体であることが示された。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,300,000	0	2,300,000
2008年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	300,000	3,600,000

研究分野：数理系科学

科研費の分科・細目：物性 II

キーワード：強相関係、価数揺動、重い電子系、非フェルミ液体

1. 研究開始当初の背景

f 電子が伝導電子と強く混成することにより f 殻の平均占有数が整数からずれる現象を価数揺動と呼ぶ。この現象は古くから研究されてきたが、f 電子同士の相関が強い「重い電子系」においてはあまり重要視されてこなかった。しかし近年、重い電子系から価数揺動系への過程において超伝導転移温

度が増大する現象が CeCu_2Si_2 で発見され、価数揺動の効果が指摘されている。

2. 研究の目的

本研究では、f 電子同士の相関が強い「重い電子系」と、f 電子の遍歴性が強く相関が弱い「価数揺動系」において、価数揺動がどのように影響するかを様々な化合物で調べ

た。特に、以下の点に注目した。①重い電子系と価数揺動系の中間に位置すると考えられる物質ではどのような物性が発現するのか②重い電子系や量子臨界点近傍の物質において、価数揺動が起こっているのか③その場合、価数揺動は既存のモデルで記述できるのか。

また価数揺動の効果によってエネルギーギャップが開き半導体となる、いわゆる近藤半導体が注目されているが、最近、FeSi などいくつかのFe化合物においても同様のメカニズムが起こりえることが理論的に指摘されている。そこでFeSi_{1-x}Ge_xにおいて、実際に温度と組成によって価数の変化が起きているのかを調べた。また、半導体的振る舞いが観測されているFeGa₃について、実際にエネルギーギャップが開いているかどうかを調べ、近藤半導体の可能性を議論した。

3. 研究の方法

価数揺動領域から反強磁性秩序まで幅広くエネルギースケールが変化する物質六方晶YbCu_{5-x}Al_xの試料作成を行い、磁化率測定、格子定数決定、放射光X線による発光分光等を行い価数を決定した。また価数揺動臨界点近傍にあると考えられる物質として、YbCu₂Si₂, YbNi₂Ge₂, YbPd₂Si₂, 立方晶YbCu₅等があり、これらの純良単結晶や良質試料を作成し、物性測定を行った。FeSi_{1-x}Ge_xについては多結晶試料を作成し、放射光X線発光分光により価数の温度変化・組成変化を調べた。FeGa₃については、Gaフラックスにより単結晶を育成し、磁化率を高温(800K)まで測定し、光電子分光によってエネルギーギャップの観測を試みた。

4. 研究成果

YbCu_{5-x}Al_xについては、全ての領域において価数揺動が起こっていることが明らかとなり、量子臨界点や反強磁性秩序の場合にも、価数揺動が共存していることが判明した。また価数の温度変化は不純物アンダーソンモデルで記述可能であることがわかった。この事実は、量子臨界点の異常物性に価数揺らぎが何らかの影響を与えている可能性を示唆するため、より詳細な研究が望まれる。また基

底状態がフェルミ液体でないにもかかわらず、アンダーソンモデルによって価数の温度変化が記述できたことは興味深い。

価数揺動臨界点近傍にあると考えられる物質YbCu₂Si₂は、申請者のこれまでの研究で1.8K以上で非フェルミ液体的であることが示されていたが、詳細な研究の結果、さらなる極低温(<1K)でフェルミ液体となることが判明した。立方晶YbCu₅については、価数の温度変化と χT (χ は磁化率、Tは絶対温度)がスケールすることがわかった。YbPd₂Si₂およびYbNi₂Ge₂については圧力下で価数が大きく変化する可能性が示唆されており、現在も研究を継続中である。

さらに、超伝導体YbGa_xSi_{2-x}が組成xの増加によって超伝導転移温度が単調に減少することを見出した。このとき、Ybはほぼ2価の状態から価数揺動状態へゆるやかに変化していることが放射光X線を用いた測定により明らかとなった。この結果は価数揺動によって伝導電子の有効質量が増加し、超伝導の抑制を引き起こしたと考えられる。

FeSi_{1-x}Ge_xについては、Fe価数はほぼ2価であり、組成と温度による変化は全く観測されなかった。これはバンド計算の結果とも一致しており、FeSiが古典的なバンド半導体であるとする理論を支持する。FeGa₃に関しては、基底状態が全くスピン磁化率を持たない非磁性状態にあり、約0.3eVのエネルギーギャップを持つことが磁化率の温度変化および光電子分光により明らかとなった。これはバンド計算ともよく一致しており、FeGa₃も古典的なバンド半導体であると考えられる。

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4件)

- ① N. Tsujii, H. Yamaoka, M. Matsunami, R. Eguchi, Y. Ishida, Y. Senba, H. Ohashi, S. Shin, T. Furubayashi, H. Abe, H. Kitazawa.
“Observation of Energy Gap in FeGa₃”
Journal of the Physical Society of Japan
vol. 77 (2008) p. 024705(1)-(5).

- ② N. Tsujii, H. Yamaoka, H. Oohashi, I. Jarrige, D. Nomoto, K. Takahiro, K. Ozaki, K. Kawatsura.
 “The semiconductor to metal transition in $\text{FeSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ probed by high resolution x-ray absorption spectroscopy”
 Physica B vol. 403 (2008) p. 922-924.
- ③ H. Yamaoka, N. Tsujii, K. Yamamoto, A. M. Vlaicu, H. Oohashi, H. Yoshikawa, T. Tochio, Y. Ito, A. Chainani, S. Shin.
 “Bulk sensitive spectroscopy for the valence transition in YbInCu_4 -based compounds.”
 Physical Review B 78 (2008)045127.
- ④ K. Yamamoto, H. Yamaoka, N. Tsujii, A. M. Vlaicu, H. Oohashi, S. Sakakura, T. Tochio, Y. Ito, A. Chainani, S. Shin.
 “Intermediate-valence behavior of $\text{YbCu}_{5-x}\text{Al}_x$ around quantum critical point measured by resonant inelastic x-ray scattering at Yb L3 absorption edge”
 Journal of the Physical Society of Japan
 vol. 76 (2007) 124705(1)-(7).

[学会発表] (計4件)

- ① 辻井直人 他
 「超伝導体 $\text{YbGa}_x\text{Si}_{2-x}$ の組成依存性」
 粉体粉末冶金協会
 2008年5月28日、早稲田大学
- ② 辻井直人 他
 「超伝導体 $\text{YbGa}_x\text{Si}_{2-x}$ の作成と物性」
 日本物理学会
 2008年3月23日、近畿大学
- ③ 辻井直人 他
 「 FeGa_3 におけるエネルギーギャップの観測」
 日本物理学会
 2008年3月23日、近畿大学
- ④ 辻井直人 他
 “Superconductivity in $\text{YbGa}_x\text{Si}_{2-x}$ with the AlB_2 -type structure”
 アメリカ物理学会
 2008年3月12日
 ニューオーリンズコンベンションセンター

6. 研究組織

(1) 研究代表者

辻井 直人 (TSUJII NAOHITO)
 独立行政法人物質・材料研究機構・量子ビームセンター・主任研究員
 研究者番号：90354365

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし