

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 12 日現在

機関番号：16101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400358

研究課題名(和文) 重い電子状態における電子正孔対称性：高圧での分光実験による検証

研究課題名(英文) Electron-hole symmetry in the heavy fermion states studied by high pressure infrared spectroscopy

研究代表者

岡村 英一 (Okamura, Hidekazu)

徳島大学・大学院理工学研究部・教授

研究者番号：00273756

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：CeCoIn<sub>5</sub>, CeRhIn<sub>5</sub>, YbNi<sub>3</sub>Ga<sub>9</sub>, YbAl<sub>2</sub>, YbCu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>などについて、高圧下の赤外分光実験を行った。その結果、光学伝導度に現れる特徴的な中赤外ピークのエネルギーに関して、Ce系とYb系で反対の圧力シフトが観測された。一方ピーク幅についてはどちらも圧力と共に広がった。つまり光学伝導度から得られる電子状態には、Ce系とYb系で反対の圧力応答を示す部分と、同様の圧力応答を示す部分があることがわかった。電子正孔対称性も考慮した詳細な電子状態の解析を、理論家の助けも借りて今後進める。

研究成果の概要(英文)：Infrared studies at high pressures were performed on CeCoIn<sub>5</sub>, CeRhIn<sub>5</sub>, YbNi<sub>3</sub>Ga<sub>9</sub>, YbAl<sub>2</sub>, YbCu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>. The obtained optical conductivity spectra showed a characteristic mid-infrared peak. The peak showed opposite pressure-induced shifts between Ce and Yb compounds. On the other hand, the peak width increased with pressure for both Ce and Yb compounds. Namely, the electronic structures of Ce and Yb compounds implied by their optical conductivity showed both opposite and same responses against applied pressure. More detailed analysis based on electron-hole symmetry is under way.

研究分野：光物性

キーワード：重い電子系 光物性 高圧力 シンクロトロン放射光

### 1. 研究開始当初の背景

Ce<sup>3+</sup>とYb<sup>3+</sup>はf殻に電子1個(f<sup>1</sup>)および正孔1個(f<sup>13</sup>)を持ち、単純に考えると電子正孔対称性が存在する。事実Ce化合物とYb化合物は共に重い電子状態を示すが、一方で両者の物性には多くの違いもある。即ち物性物理の基本概念である電子正孔対称性が、強い電子間相互作用をもつ重い電子系でどの程度成立するか、未だ完全には理解されていない。

### 2. 研究の目的

本研究ではCe化合物およびYb化合物で発現する「重い電子状態」で、電子と正孔の対称性がどの程度成り立つのか、申請者が発展させてきた「高压下の赤外分光による電子構造の測定手法」により、フェルミ準位のミクロな電子構造の立場から調べる。

### 3. 研究の方法

本研究ではCeおよびYb化合物の重い電子状態における電子正孔対称性について、高压下の赤外分光実験により、フェルミ準位( $E_F$ )付近のミクロな電子構造の立場から調べる。測定対象は、加圧によって電子状態が局在から遍歴へ大きく変化するCeAl<sub>2</sub>、CeRhIn<sub>5</sub>及び遍歴から局在へ大きく変化するYbCu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>、YbNi<sub>3</sub>Ga<sub>9</sub>とする。これら物質について、大型放射光施設SPring-8の高輝度赤外線と、高压発生装置ダイヤモンド・アンビル・セル(DAC)を用いて、試料の中赤外・遠赤外反射スペクトル $R(\omega)$ を、常圧から20 GPaの圧力範囲、室温から6 Kの温度範囲で測定する。得られた $R(\omega)$ データの解析から電荷励起スペクトル(光学伝導度) $\sigma(\omega)$ を導く。そして加圧に対する $\sigma(\omega)$ の応答をCe系とYb系で詳しく比較する。そして2つの物質系の電子状態で、電子正孔対称性がどの程度成り立つか、ミクロ電子構造の立場から詳しく調べる。

### 4. 研究成果

(1) 当初の研究目的通り、Ce化合物とYb化合物で高压赤外分光を行い、電子状態を比較検討した。測定した物質はCeCoIn<sub>5</sub>、CeRhIn<sub>5</sub>、YbNi<sub>3</sub>Ga<sub>9</sub>、YbAl<sub>2</sub>、YbCu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>などである。これらの物質はいずれも、電気抵抗や、X線吸収で見積もった平均価数などが大きな圧力変化を示す物質であり、電子状態の圧力変化が特に大きいと考えられる物質である。SPring-8の赤外ビームラインにおいて、常圧から10 GPaまでの圧力範囲、室温から6 Kまでの温度範囲、遠赤外および中赤外領域で測定を行い、光学伝導度 $\sigma(\omega)$ を得た。

CeCoIn<sub>5</sub>では、常圧で $\sigma(\omega)$ に強い中赤外ピークが観測され、これはフェルミ準位近傍の大きなf電子状態密度(DOS)による光吸収と考えられ、これまでf電子の混成が強い多くの価数揺動物質で観測されている。こ

のピークは加圧と共に高エネルギー側へシフトし、またブロード化した。一方CeRhIn<sub>5</sub>は常圧ではほとんど中赤外ピークを示さないが、高压下ではCeCoIn<sub>5</sub>と同様にピークが現れ、やはり高エネルギーシフトとブロード化を示した。以上の結果は、加圧によってf電子の混成が強まりバンド幅も増加した結果であると考えられる。

一方YbNi<sub>3</sub>Ga<sub>9</sub>、YbAl<sub>2</sub>、YbCu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>では常圧で強い中赤外ピークが観測され、加圧と共に低エネルギー側へシフトする様子が観測された。これはCe115での結果と反対の振る舞いであり、CeとYbの電子配置の対称性を反映したものと考えられる。一方ピーク幅に着目すると、これらYb化合物でも加圧と共にブロード化する結果が得られた。この結果はCe115での結果と同じ傾向であり、フェルミ準位近傍のf電子DOSのピーク幅が、加圧と共に広がることを示している。以上の結果より、 $\sigma(\omega)$ から得られる電子状態には、Ce系とYb系で反対の圧力応答を示す部分と、同様の圧力応答を示す部分があることがわかった。電子正孔対称性も考慮した詳細な電子状態の解析を、理論家の助けも借りて今後進める予定である。

### 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5件)

H. Okamura, Y. Ikemoto, T. Moriwaki, T. Nanba, "Infrared spectroscopy techniques for studying the electronic structures of materials under high-pressure", 査読有、Japanese Journal of Applied Physics. Vol. 56, 2017, 05FA11. DOI: 10.7567/JJAP.56.05FA11

T. Go, H. Okamura, G. Ohhara, T. Nagata, T. Moriwaki, Y. Ikemoto, S. Mori, N. Ikeda, K. Mizoguchi, "Pressure dependence of far-infrared spectra in layered iron oxide LuFeO<sub>4</sub>", 査読有、Transaction of the Materials Society of Japan, Vol. 41, 2016, 109-112. DOI: 10.14723/tmrsj.41.109

岡村英一、「赤外分光で探る高圧力下の物質の電子状態」、査読有、高圧力の科学と技術、25巻、2015、p11. DOI: 10.4131/jshpreview.25.11

H. Okamura, A. Takigawa, E. D. Bauer, T. Moriwaki, Y. Ikemoto, "Pressure Evolution of f electron hybridized state in CeCoIn<sub>5</sub> studied by optical conductivity", 査読有、Journal of Physics Conference Series, Vol. 592, 2015, 012001. DOI:10.1088/1742-6596/592/1/012001

K. Hashimoto, R. Kobayashi, H. Okamura, H.

Taniguchi, Y. Ikemoto, T. Moriwaki, "Emergence of charge degrees of freedom under high pressure in the organic dimer-Mott insulator  $\beta'$ -(BEDT-TTF) $_2$ ICl $_2$ ", 査読有、Physical Review B, Vol. 92, 2015, 085149. DOI: 10.1103/PhysRevB.92.085149

〔学会発表〕(計 31件)

1. 岡村英一、「赤外放射光を用いた高圧下の電子状態研究」、高圧力と量子ビームのマリアージュによる新規物性分野開拓の物質科学研究会(2017.3.24 茨城大学水戸キャンパス)。
2. 岡村英一、後藤貴之、坪内厚志、岩本賢尚、赤浜裕一、森脇太郎、池本夕佳、「黒リンの高圧下における赤外スペクトルと電子状態」、放射光学会年会(2017.1.8 神戸芸術センター)。
3. 後藤貴之、坪内厚志、赤浜裕一、岡村英二、「高圧下における黒リンの赤外分光」、第27回光物性研究会(2016.12.2 神戸大学百年記念館)。
4. 坪内厚志、後藤貴之、片山尚幸、澤博、岡村英一、「高圧下におけるTiSe $_2$ の赤外分光」、第27回光物性研究会(2016.12.2 神戸大学百年記念館)。
5. 岡村英一・後藤貴之・坪内厚志・岩本賢尚・赤浜裕一・森脇太郎・池本夕佳、「黒リンの高圧下における赤外分光と電子状態」、日本赤外線学会研究発表会(2016.11.18 国立天文台三鷹キャンパス)。
6. 岡村英一・後藤貴之・坪内厚志・岩本賢尚・赤浜裕一・森脇太郎・池本夕佳、「黒リンの高圧下における光学スペクトルと電子状態」、第57回高圧討論会(2016.10.28 筑波大学)。
7. 岡村英一、永田信、松本光亮、坪内厚志、大貫惇睦、小坂昌史、辻井直人、池本夕佳、森脇太郎、「YbCu $_2$ Ge $_2$ およびYbAl $_2$ の高圧下における光学伝導度と電子状態」、日本物理学会秋季大会(2016.9.14 金沢大学)。
8. Hidekazu Okamura, "Infrared study of black phosphorus under high pressure", High Pressure in Semiconductor Physics, (2016.8.10 東京大学山上会館)。
9. Hidekazu Okamura, "Optical study of excitonic insulator Ta $_2$ NiSe $_5$  under high pressure", High Pressure in Semiconductor Physics, (2016.8.9 東京大学山上会館)。
10. Hidekazu Okamura, "Optical conductivity of

excitonic insulator Ta $_2$ NiSe $_5$  under high pressure", International Conference on Low Energy Electrodynamics of Solids(2016.6.2 ラフォーレ琵琶湖ホテル)

11. 岡村英一、「赤外放射光を利用した高圧での光物性」、分子研研究会「高輝度・高強度赤外光源の現状と展望」(2016.2.11 分子科学研究所)。
12. 岡村英一、溝川貴司、片山尚幸、野原実、高木英典、森脇太郎、池本夕佳、「エキシトニック絶縁体 Ta $_2$ NiSe $_5$  の高圧下赤外分光」、放射光学会年会(2016.1.11 東大・柏の葉キャンパス駅前サテライト)。
13. 岡村英一・溝川貴司・片山尚幸・野原実・高木英典・森脇太郎・池本夕佳、「Ta $_2$ NiSe $_5$  の高圧下における光学伝導度と電子状態」、物性研短期研究会「低次元電子系におけるエキシトニック相の新展開」(2015.11.26 東京大学物性研究所)。
14. 岡村英一・溝川貴司・片山尚幸・野原実・高木英典・森脇太郎・池本夕佳、「エキシトニック絶縁体 Ta $_2$ NiSe $_5$  の高圧下赤外分光」、高圧討論会(2015.11.10 広島JSMアステールプラザ)。
15. Hidekazu Okamura, "Pressure Evolution of an Excitonic Insulator Studied by Synchrotron Infrared Spectroscopy", International Workshop on Infrared Microscopy and Spectroscopy with Accelerator Based Sources (2015.10.13 Lomg Island, USA)
16. 平田靖透、岡村英一、大槻太毅、千葉優、池本夕佳、森脇太郎、溝川貴司、大串研也、「梯子型鉄系化合物 BaFe $_2$ S $_3$  の高圧下赤外分光」、日本物理学会年次大会(2015.3.22 早稲田大学早稲田キャンパス)。
17. 岡村英一、「高圧下 Ta $_2$ NiSe $_5$  の光学伝導度と電子状態」、日本物理学会年次大会(2015.3.22 早稲田大学早稲田キャンパス)。
18. 橋本顕一郎、小林亮太、井口敏、岡村英二、谷口弘三、森脇太郎、池本夕佳、中惇、石原純夫、佐々木孝彦、「光学伝導度スペクトルからみたダイマーモット絶縁体  $\beta'$ -(BEDT-TTF) $_2$ ICl $_2$  の圧力下超伝導に対する磁気・電荷揺らぎの効果」、日本物理学会年次大会(2015.3.24 早稲田大学早稲田キャンパス)。
19. 呉剛志、岡村英一、大島悟郎、永田知子、森茂生、池田直、溝口幸司、「高圧下における層状鉄酸化物 LuFe $_2$ O $_4$  の近赤外反射スペクトル」、日本放射光学会年次大会(2015.1.12

立命館大学びわこキャンパス)。

20. 平田靖透, 岡村英一, 大槻太毅, 池本夕佳, 森脇太郎, 溝川 貴司, 大串研也、「梯子型鉄系化合物  $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  の高圧下赤外分光」, 日本放射光学会年次大会(2015.1.12 立命館大学びわこキャンパス)。

21. 岡村英一, 瀧川陽, 山崎大輝, 大原繁男, E. D. Bauer, 森脇太郎, 池本夕佳、「高圧下 Ce および Yb 化合物の光学伝導度と電子正孔対称性」, 日本放射光学会年次大会(2015.1.12 立命館大学びわこキャンパス)。

22. 橋本顕一郎, 小林亮太, 井口敏, 佐々木孝彦, 岡村英一, 谷口弘三, 池本夕佳, 森脇太郎、「高圧下におけるダイマーマット絶縁体  $\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{ICl}_2$  の光学伝導度スペクトル」, 日本放射光学会年次大会(2015.1.12 立命館大学びわこキャンパス)。

23. 岡村英一, 山崎大輝, 瀧川陽, 森脇太郎, 池本夕佳, 大原繁男, E. D. Bauer, 「高圧下の赤外分光による希土類重い電子系の研究」, 赤外線学会研究発表会(2014.11.28 大阪府立大学)。

24. 平田靖透, 岡村英一, 池本夕佳, 森脇太郎, 大串研也, 「梯子型鉄系化合物  $\text{BaFe}_2\text{S}_3$  に対する圧力効果」, 高圧討論会(2014.11.24 徳島大学常三島キャンパス)。

25. 岡村英一, 山崎大輝, 瀧川陽, 大原繁男, E. D. Bauer, 池本夕佳, 森脇太郎, 「高圧下 Ce および Yb 化合物の光学伝導度と電子正孔対称性」, 高圧討論会(2014.11.22 徳島大学常三島キャンパス)。

26. 岡村英一, 山崎大輝, 瀧川陽, 大原繁男, E. D. Bauer, 池本夕佳, 森脇太郎, 「高圧下 Yb および Ce 化合物の光学伝導度と電子正孔対称性」, 日本物理学会秋季大会(2014.9.10 中部大学)。

27. 平田靖透, 大串研也, 岡村英一, 池本夕佳, 森脇太郎, 「梯子型鉄系超伝導体類縁物質の電子物性」, 日本物理学会秋季大会(2014.9.7 中部大学)。

28. 呉剛志, 岡村英一, 大島悟郎, 永田知子, 森茂生, 池田直, 溝口幸司, 「層状鉄酸化物  $\text{LuFe}_2\text{O}_4$  における赤外反射スペクトルの圧力特性 II」, 日本物理学会秋季大会(2014.9.7 中部大学)。

29. Hidekazu Okamura, Electron-Hole Symmetry

in the Electronic Structures of Ce and Yb Compounds Examined by Optical Study under High Pressure”, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (2014.7.10, Grenoble, France).

30. Hidekazu Okamura, Electron-Hole Symmetry in the Electronic Structures of Ce and Yb Compounds Examined by Optical Study under High Pressure”, International Conference on Low Energy Electrodynamics of Solids (2014.7.4, Amboise, France).

31. 岡村英一, 「 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ における高圧下の光学伝導度と電子状態」, ミニ研究会「励起子絶縁体の物性」(2014.5.26, 東京大学本郷キャンパス)。

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕  
ホームページ等 なし

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

岡村 英一 (OKAMURA, Hidekazu)  
徳島大学・大学院理工学研究部・教授  
研究者番号: 0 0 2 7 3 7 5 6

##### (2) 研究分担者 なし

##### (3) 連携研究者

池本 夕佳 (IKEMOTO, Yuka)  
高輝度光科学研究センター・主幹研究員  
研究者番号: 7 0 3 4 4 3 9 8

##### (4) 研究協力者 なし