

2012 年 3 月

パルス強磁場 X 線分光による重い電子系の磁場中電子状態の研究

物質系専攻 47-106032 中村 俊幸

指導教員：松田 康弘（准教授）

キーワード：重い電子系、価数揺動、メタ磁性、パルス磁場、放射光 X 線分光

【背景と目的】

Ce や Yb などの希土類元素を含む化合物の中には、低温において伝導電子の有効質量が数百倍になる重い電子状態を形成するものがある。元々局在性の強い f 電子が伝導電子との混成によって遍歴性を獲得し、強い電子相関によって重い電子状態が実現する。重い電子系では非従来型超伝導現象の発現や非フェルミ液体的挙動など多様な物性に興味向けられており、磁氣的にも様々な異常を示す物質が多い。例えば、磁場中で磁化が急激に増大する現象を総称してメタ磁性と呼ぶが、重い電子系におけるメタ磁性は、重い電子状態の磁場による抑制と深く関連していると考えられている。重い電子系の理解においてメタ磁性は最も重要な研究対象の 1 つと言えるが、微視的測定手法による研究はこれまでにあまり行われておらず、その起源は十分明らかにされていない。

そこで本研究では、低温でメタ磁性を示す重い電子系物質 YbAgCu₄[1] と CeRu₂Si₂[2] に注目した。YbAgCu₄ は価数揺動物質としての特徴も持ち、メタ磁性と Yb 価数変化の関連が示唆されているが[3] 磁場中の価数状態は明らかでなかった。CeRu₂Si₂ は典型的な重い電子系物質の 1 つとして知られており、ドハースファンアルフェン効果からメタ磁性の前後でフェルミ面形状が遍歴的なものから局在的なものへと変化することがわかっている[4]。重い電子状態では f 電子の遍歴性の獲得に対応して f 殻の電子の占有数は整数値から僅かにずれるため、希土類イオンの価数状態は相互作用の大きさを直接的に反映する。本研究では、YbAgCu₄ と CeRu₂Si₂ の磁場中電子状態を理解するため、放射光 X 線を用いたパルス磁場中での X 線吸収スペクトル測定を行い、40 T までの強磁場下での Yb および Ce の価数の磁場依存性の決定を行った。

【実験】

実験は SPring-8 の BL22XU 及び BL39XU において行った。試料は粉碎し、エポキシ系接着剤であるスタイキャスト 1266 と混ぜて希釈し、適正な X 線の吸収量となるように実行的な厚みを 8 ~ 10 μm 程度となるよう調整した。その際、CeRu₂Si₂ は Quantum Design 社の PPMS を用いて 14 T の定常磁場中でゆっくりとスタイキャストを硬化させ、結晶方位を配向させた。

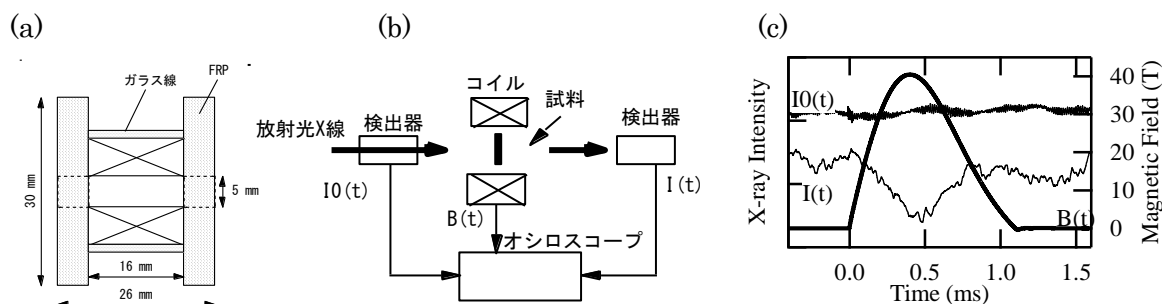


図 1 (a)コイルの断面図、(b)強磁場下 X 線吸収分光測定概念図、(c)測定データの時間依存性

パルス磁場は、高強度の CuAg 合金線（直径 0.7 mm）を用いて直径 3 cm ほどの図 1(a)に示した小さなコイルを作成し、コンデンサ電源に蓄えたエネルギーを一挙に放電することによって得た。磁場発生空間はコイルの内直径 5 mm で、最大磁場は 40 T、パルス時間幅は約 1ms となっている。測定は図 1(b)に示すように入射光強度 $I_0(t)$ 、透過光強度 $I(t)$ 、磁場 $B(t)$ をオシロスコープで時間の関数として記録する。図 1(c)に測定結果の一例を示した。1 回のパルス磁場測定では X 線のエネルギーは単色化されているため固定であるが、さらに、X 線のエネルギーを分光器で変化させ同様の測定を繰り返した後、磁場の値毎に X 線吸収強度をエネルギー依存性としてプロットすることによって一定磁場下での X 線吸収スペクトルを得る。また、磁場中の X 線吸収スペクトルの実験結果について磁気状態との対応を議論するため、パルス磁場中での磁化測定も行った。磁化測定は物性研究所、金道研究室のパルスマグネットを使用し、ピックアップコイルによる誘導法によって測定した。

【結果と考察】

(1) YbAgCu₄

図 2(a)、(b)、(c)にそれぞれ、磁場中及びゼロ磁場での X 線吸収スペクトル、そこから得られた価数の磁場依存性、磁化曲線を示す。X 線吸収スペクトルはフィッティングを行い、Yb の 2 価成分と 3 価成分に分解し、 $v=2+I(3)/(I(2)+I(3))$ から価数 v を求めた。ここで、 $I(2)$ 、 $I(3)$ はフィッティングから得られた Yb の 2 価成分、3 価成分のそれぞれの吸収強度である。図 2 (b)から価数は 10 T 以上で 3 価方向に増大することが分かり、また、図 2 (c)の磁化曲線で見られるメタ磁性に対応して価数の増大が 30 T 付近で急激になっていることが明らかになった。さらに Yb 価数の磁場依存性についていくつかの温度で測定した結果を図 3 に示す。温度が上昇するにつれ価数の変化が小さくなっていることがわかったとともに、60 K まで温度を上げても価数の増大が起きていることがわかる。磁化測定の結果から、メタ磁性は約 40 K を境に明瞭に観測できなくなることが分かっているが、それ以上の温度でも価数が変化していることが X 線吸収スペクトルの結果から明らかになった。

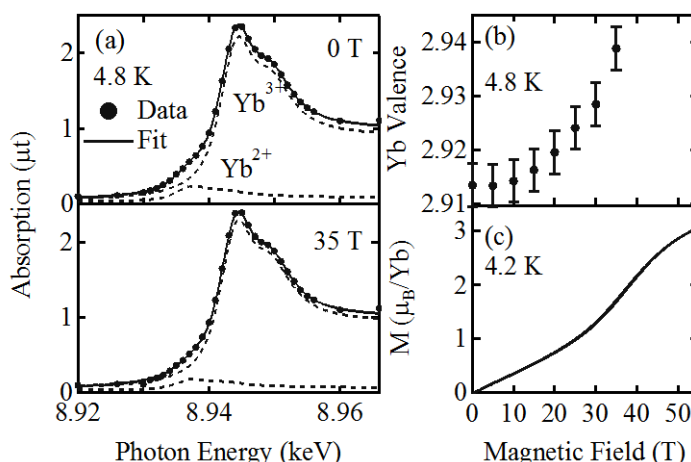


図 2 YbAgCu₄ の(a)吸収スペクトル、(b)Yb 価数の磁場依存性、(c)磁化曲線

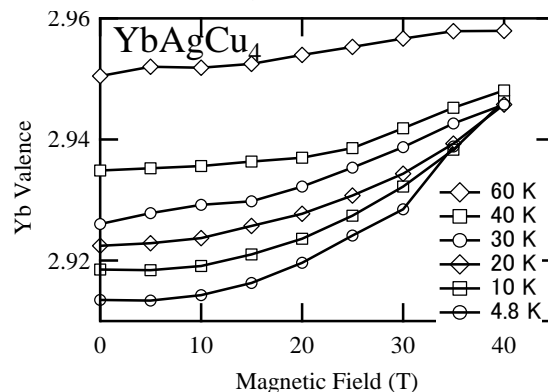


図 3 YbAgCu₄ の Yb 価数の磁場依存性

(2) CeRu₂Si₂

図 3(a)、(b)、(c)にそれぞれ、磁場中及びゼロ磁場での X 線吸収スペクトル、そこから得られた価数の磁場依存性、磁化曲線を示す。YbAgCu₄ と同様に、スペクトルを Ce の 3 価及び 4 価成分に

分解して解析した。図 3(b)から、価数の変化はメタ磁性の観測されている約 8 T で大きく 3 価の方向に変化しはじめ、その後も磁場とともにゆっくりと減少している。メタ磁性転移磁場よりも十分強磁場と考えられる 40 T においても価数の磁場による変化は続いていることから、この磁場領域においても Ce の f 電子は遍歴性を有し、重い電子状態であると期待される。

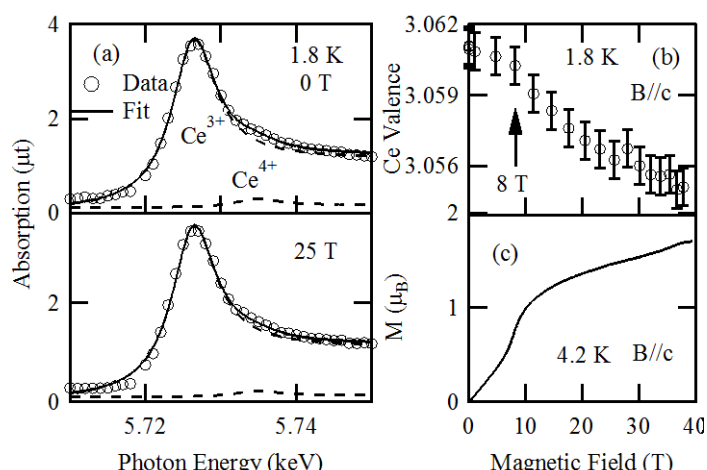


図 4 CeRu_2Si_2 の(a)吸収スペクトル、
(b)Ce 価数の磁場依存性、(c)磁化曲線

【まとめ】

重い電子系物質である YbAgCu_4 と CeRu_2Si_2 の磁場中での電子状態を明らかにするため、40 T までのパルス磁場中での X 線分光実験を SPring-8 において行った。 YbAgCu_4 、 CeRu_2Si_2 はそれぞれ 30 T 近傍、8 T 近傍でメタ磁性を示すが、いずれの物質もメタ磁性に対応した価数変化を観測することができた。 YbAgCu_4 については、メタ磁性が価数転移であることが実験的に証明された。また、価数の磁場依存性について異なる温度において詳細に決定することができ、メタ磁性が明瞭に観測できない高温でも価数の変化が磁場によって引き起こされていることがわかった。また、 CeRu_2Si_2 は、 YbAgCu_4 に比べて価数の磁場変化は $1/5$ 程度と小さく、メタ磁性の後も価数が変化し続けていることから、メタ磁性の起源が価数転移であるとは考えにくい。強磁場領域においても伝導電子と f 電子の混成がある程度残っていることが示唆され、重い電子状態が維持されていると期待される。これは、最近提唱されているスピン分裂したフェルミ面の連続的な変形によるメタ磁性の説明[5]と矛盾せず、メタ磁性以上の強磁場領域でミクロな視点から 4f 電子の遍歴性を確認した初めての結果であると考えている。

【参考文献】

- [1] C. Rossel *et al.*, Phys. Rev. B. **35**,1914 (1987).
- [2] P. Haen *et al.*, J.Low Temp. Phys. **67**,391(1987).
- [3] K. Yoshimura *et al.*, Phys. Rev. Lett. **60**,851(1988).
- [4] H. Aoki *et al.*, Phys. Rev. Lett. **71**,2110 (1993).
- [5] R. Daou *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 026401 (2006).

【論文・学会発表】

1. Y. H. Matsuda, T. Nakamura, J. L. Her, K. Kindo, S. Michimura, T. Inami, M. Mizuaki, N. Kawamura, M. Suzuki, B. Chen, H. Ohta, and K. Yoshimura, J. Phys. Soc. Jpn.**81** (2012) 015002
2. 日本物理学会 2010 年秋季大会 「 YbAgCu_4 の強磁場磁化と価数」
3. 日本物理学会 第 66 回年次大会 「 YbAgCu_4 の磁場誘起価数転移」
4. 日本物理学会 2011 年秋季大会 「 CeRu_2Si_2 の強磁場磁化と価数」
5. 日本物理学会 第 67 回年次大会 「強磁場 X 線分光実験のための小型パルスマグネット冷却方式の改善」