課題番号　2013B — E30

量子臨界点近傍に位置する$CeNi_2Ge_2$と関連物質の軟X線角度分解光電子分光による重い電子系形成過程とスペクトル円二色性の観測

Observation of formation of heavy Fermion as well as circular dichroism by soft x-ray angle-resolved photoemission spectroscopy for $CeNi_2Ge_2$ and a related compound

関山　明[1)]　中谷　泰博[1)]　竹内　啓[1)]　矢野　昴平[1)]　森　健雄[1)]

Akira SEKIYAMA　Yasuhiro NAKATANI　Kei TAKEUCHI　Kohei YANO　Takeo MORI

山口　貴司[1)]　渕本　寛人[1)]　齋藤　祐児[2)]　保井　晃[2,3)]　山上　浩志[2,4)]

Takashi YAMAGUCHI　Hiroto FUCHIMOTO　Yuji SAITOH　Akira YASUI　Hiroshi YAMAGAMI

海老原　孝雄[5)]

Takao EBIHARA

[1)]阪大基礎工　[2)]原子力機構　[3)]JASRI　[4)]京産大理　[5)]静岡大理

常圧低温下で超伝導を示し、かつ重い電子状態が報告されていることから量子臨界点近傍に位置すると思われる$CeNi_2Ge_2$の電子構造を解明するために、$CeNi_2Ge_2$及びLa置換系で4f電子のない$LaNi_2Ge_2$の両物質についてバルク敏感かつ３次元電子構造観測が可能な軟Ｘ線角度分解光電子分光をSPring-8 BL23SUで行い、$CeNi_2Ge_2$におけるCe 4f電子と価電子との混成によるフェルミ準位近傍の電子状態の変化の有無を探求した。両者のフェルミ面や電子構造は定性的には類似しているが、逆格子空間における特定の方向の角度分解光電子スペクトルを両者で直接的に比較したところ、通常金属的な特徴をもつ$LaNi_2Ge_2$と異なり$CeNi_2Ge_2$ではフェルミ準位ごく近傍でのスペクトルピークがフェルミ波数近傍のやや広い波数領域で観測され、準粒子分散において電子速度が遅くなるという重い電子系としての特徴を捉えることに成功した。

キーワード：強相関電子系，角度分解光電子分光，希土類化合物

１．目的

強相関Ce化合物においては局在的なCe 4f軌道と価電子帯の混成(c-f混成)から多彩な電子状態が観測されるなか、4f遍歴性と局在性の中間つまり量子臨界点近傍に位置する$CeNi_2Ge_2$では低温で超伝導が観測される[1]と共に非フェルミ液体的振舞い[2]も報告されている。また電子比熱係数も350 mJ/[K^2mol]と通常の金属と比べても２桁大きく低温で重い電子状態になっていることが知られている[2]。このように4f電子の遍歴性と局在性の両面を持ち合わせた系の電子構造をナノスケールのレベルで解明することは、その超伝導の起源解明をはじめとする強相関電子系で残された課題解決への鍵となる。特にCe化合物の超伝導については、銅酸化物高温超伝導で広く提唱されている反強磁性磁気揺らぎ機構以外に近年いわゆる価数ゆらぎ機構ともいうべきCeイオンの価数(4f電子数)が3+から揺らぐことが超伝導に本質的に寄与するという理論[3]も提唱されており、$CeNi_2Ge_2$の電子構造にどの程度Ce 4f電子が関与しているのか、また関与しているとして温度変化によってどう重い電子系が形成されていくのかを実験的に明らかにする必要がある。

２．方法

シンクロトロン放射光を用いた軟X線角度分解光電子分光はバルク敏感性に優れるとともに波長可変性による３次元電子構造の直接観測が可能という利点がある。そこで我々は、上記目的を達成するために$CeNi_2Ge_2$単結晶の軟X線角度分解光電子分光を行うとともに4f電子のない$LaNi_2Ge_2$単結晶の軟X線角度分解光電子分光も参照実験として合わせて行い、強相関4f軌道と混成しうる価電子バンドがどのように変化するかを観測した。このような手法は量子振動測定やマクロ測定では当たり前のように行われているものの、角度分解光電子分光ではこれまで意外なほどにあまり遂行されておらず、とりわけ重い電子系超伝導体に対しては殆ど前例がない。実験はSPring-8 BL23SUで行った。励起光エネルギーは630-850 eVの範囲で変化させ、エネルギー分解能は約120 meV、角度分解能は0.3°に設定した。測定温度は約10 Kで軟X線角度分解光電子分光に不可欠な清浄試料表面は測定温度にて超高真空中で試料を(001)面でヘキかいすることで得た。

３．結果及び考察

試料表面に垂直な運動量方向のバンド分散を測定できるスペクトルの励起エネルギー依存性測定から$LaNi_2Ge_2$については705 eV、$CeNi_2Ge_2$については720 eVでそれぞれ測定するとΓ点（運動量に対応した逆格子空間で(0,0,0)点）に対応した角度分解光電子スペクトルを得られることが判明した。そこでこれらの励起エネルギーで両者について(001)面に対応するフェルミ面マッピングを行ったところ複数のフェルミ面断面と思われる運動量分布を得た。これらの形状は一見すると両物質で類似しており、電子構造がそう大きくは変化していないことを示している。一方でCe 4f電子を遍歴的に扱った$CeNi_2Ge_2$のバンド計算と$LaNi_2Ge_2$のバンド計算も両者で定性的には類似のバンド構造を示唆しており[4]、理論計算とも矛盾していない。またΓ-X方向（X点は逆格子空間では(π/a, π/a, 0)点及び(π/a, π/a, 2π/c)点に対応し、ここでa, cは対象とする物質の格子定数）においてはX点をバンド端（底）としてΓ点方向に向かって１本のバンドだけがフェルミ準位を横切り円筒状のフェルミ面を構成することが計算および我々の実験から示唆された。そこでΓ-X方向の角度分解光電子スペクトルを精度よく測定したところ図１のような結果を得た。X点では僅かではあるが$CeNi_2Ge_2$の方がバンドの底がフェルミ準位E_Fに近づくことで占有側バンド端-フェルミ準位E_F間のバンド幅が約20%狭くなった。もしも$CeNi_2Ge_2$のCe 4f電子が局在的でフェルミ面形成に寄与しなければバンド幅の減少はなく、バンド端の結合エネルギーは$LaNi_2Ge_2$と変わらないはずである。よって我々が観測したバンド幅の減少はCe 4f電子が混成によってこのバンドに寄与したことによる本質的な強相関効果を反映していると考えられる。さらに、Γ点方向に向かうとX点で見られたピークで表されるバンドは両物質においてE_Fに近づいて横切り、バンドが非占有側に移ったΓ点側ではこのピークは現れない。我々はE_Fにおける運動量分布のピーク位置で定義したフェルミ波数k_F近傍でのスペクトル形状に大きな差異が生じていることを観測した。図１中k_Fと記した付近の赤色で示したスペクトルがフェルミ波数k_Fでのスペクトルになるが、$LaNi_2Ge_2$の場合k_Fから（バンドが非占有状態に移行したと考えられる）Γ点に向かったスペクトルではE_F直下のピーク強度が急に減衰するという通常の金属的な振る舞いをみせることを確認した。一方$CeNi_2Ge_2$では運動量分布から定義したk_FよりΓ点に向かってもピークが残り、$LaNi_2Ge_2$ではピークが消失した波数においても明確にピークが観測されピークエネルギーもk_FよりもΓ点よりでは若干E_Fに近づいているようにみえる。この結果は、$CeNi_2Ge_2$のバンド分散が、$LaNi_2Ge_2$と比較してバンド端X点近傍ではピークシフトとしてのみ現れるが、k_F近傍になるとピーク位置を波数-エネルギー軸でプロットしたときに得られる傾き|dE/dk|が急激に小さくなっていることを示す。傾きが小さいことはフェルミ準位E_Fでの電子の速さが遅くなることを意味し、正に重い電子状態を直接反映していると考えられる。

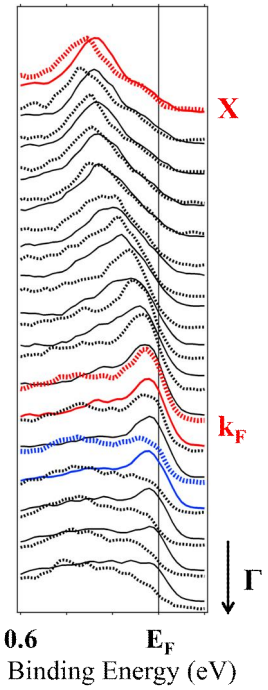

図１：$LaNi_2Ge_2$（破線）及び$CeNi_2Ge_2$（実線）のΓ-X方向における角度分解光電子スペクトル

今後、Γ-X方向で見られた$CeNi_2Ge_2$の重い電子状態を反映したスペクトル変化が他の方向やバンドでも観測されているか、また温度変化測定から4f電子が局在的に振舞うとされる高温でバンド構やスペクトル構造がどのように変化していくか研究を進めて行く予定である。

４．引用(参照)文献等

[1] F. M. Grosche et al., J. Phys.: Condens. Matter **12**, 1533 (2000).
[2] F. Steglich et al., J. Phys.: Condens. Matter **8**, 9909 (1996).
[3] S. Watanabe and K. Miyake, Phys. Rev. Lett. **105**, 186403 (2010).
[4] H. Yamagami, J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 6 (1999).