

氏 名 Hojun Im

学位（専攻分野） 博士（理学）

学位記番号 総研大甲第 982 号

学位授与の日付 平成 18 年 9 月 29 日

学位授与の要件 物理科学研究科 構造分子科学専攻  
学位規則第 6 条第 1 項該当

学位論文題目 Electronic Structure of Heavy Fermion Ce Compounds  
Studied by Photoemission Spectroscopy

論文審査委員 主 査 教授 小杉 信博  
助教授 木村 真一  
助教授 中村 敏和  
助教授 米満 賢治  
教授 菅 滋正（大阪大学）

## 論文内容の要旨

Heavy fermions, one of the strongly correlated electrons systems (SCES), have attracted much attention due to the wide ground states from magnetism to non-magnetism through a quantum critical point (QCP). This phase variation shows the similar tendency with the others of SCES, i.e. the High-Tc cuprate superconductors and organic conductors, despite of a lack evidence of connection among them. Therefore, the explicit understanding of the phase variation in heavy fermion will provide the clues to resolve the problems of SCES. In heavy fermion system, the ground state varies as a function of the cf-hybridization strength, responsible for Kondo effects, between the local 4f electrons and the itinerant conduction electrons in the Doniach phase diagram. In spite of the numerous research for the heavy fermions, the role of the cf-hybridization through the QCP remains poorly understood in the view of the electronic structure, because of the difficulty of a systematic experiments and the direct observation of the cf-hybridization band.

In his thesis, the two heavy fermion systems,  $\text{CeNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{Ge}_2$  and  $\text{CeCoGe}_{1.75}\text{Si}_{1.25}$ , are mainly studied by several kinds of photoemission (PE) spectroscopies.

First, in order to investigate Ce 4f characters across the QCP, he has performed the resonant, hard X-ray and high-resolution PE on the isostructural heavy fermion  $\text{CeNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{Ge}_2$  system, where the ground state changes from an antiferromagnetic ( $0 \leq x \leq 0.2$ ) to a non-magnetic regime ( $0.4 \leq x \leq 1$ ) through the QCP ( $x = 0.3$ ). In the resonant PE, the bulk properties of Ce 4f electrons are obtained from the quantitative analysis of the non-crossing approximation (NCA) with considering the surface sensitivity of Ce 4d-4f and 3d-4f resonant PE spectra, respectively. The obtained bulk properties reveals the detail electronic structure, e.g. crystalline electric field (CEF) effects, and firstly shows that the Ce 4f electronic structure continuously develops across the QCP with increasing cf-hybridization intensity.

In the hard X-ray PE, Ce 3d core-level was measured at photon energy,  $h\nu = 7941.5$  eV, where the obtained spectra almost reflect the bulk properties due to the large escape depth,  $\lambda \sim 200$  Å. Analysis of Ce  $3d_{5/2}$  peaks also shows the continuity of Ce 4f electronic structure across the QCP in agreement with the results of the resonant PE. Multiplet structures are clearly observed in Ce  $3d_{3/2}$  peaks. And it is first found in the X-ray PE experiment that these multiplet structures are strongly related to CEF effects.

Moreover, the quasi-particle peak due to cf-hybridization and the detail electronic structure due to CEF effects is directly observed in the high-resolution PE, showing the consistency with the results of both resonant and hard X-ray PE.

Secondly, the angle resolved photoemission (ARPES) study on a heavy fermion  $\text{CeCoGe}_{1.75}\text{Si}_{1.25}$  has been performed to explicitly understand cf-hybridization band in a momentum space. Even though the single impurity Anderson model (SIAM) well explains the spectra of the angle-integrated photoemission, Ce 4f electrons are actually affected by

the periodic potential in the solids. It surely makes the cf-hybridization bands. ARPES data show that  $\text{CeCoGe}_{1.75}\text{Si}_{1.25}$  system is the quasi two-dimensional system: there is small dispersion along the c-axis. Here, he presents the first observation of both the renormalized Ce 4f band and conduction band due to cf-hybridization by using Ce 4d-4f resonant ARPES. The quasi-particle peak, the so-called tail of the Kondo resonance, is strongly enhanced across the intersected place of Ce 4f band and Co 3d conduction band in contrast to the SIAM expectation. This may be a reason why SIAM model well explains the angle-integrated PE. Furthermore, the cf-hybridization band is scaled by using the simple periodic Anderson model (PAM). Surprisingly, the cf-hybridization strength exhibits the anisotropy in the momentum space, which can not be expected in SIAM and simple PAM where the cf-hybridization strength is isotropic. This reveals that in heavy fermion system, cf-hybridization takes place in a lattice and the anisotropy of Kondo coupling should be considered.

## 論文審査結果の要旨

強相関電子系の代表物質の1つであるセリウム化合物は、局在電子スピン(セリウム 4f 電子)と伝導電子との混成度を変化させることで、反強磁性局在状態から量子臨界点を經由して重い電子状態とよばれる常磁性遍歴状態へ転移することが知られている。その量子臨界点近傍では、基本的な BCS 理論からは説明できない超伝導や非フェルミ液体状態などが出現する。これらの起源は、局在電子スピンと伝導電子との相互作用によって発生していると考えられているが、明確な結論は得られていない。そこで Im 君は同一の結晶構造で局在から量子臨界点を經由して遍歴状態へ移行する数少ない系として知られているセリウム化合物  $\text{CeNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{Ge}_2$  ( $x = 0\sim 1$ ) および  $\text{CeCoGe}_{3-x}\text{Si}_x$  ( $x = 0\sim 3$ ) に注目し、光電子分光法によってこれらの物質の研究を進めた。この研究の特徴は、これまで行われていない混成度を制御したセリウム化合物に対して、光電子分光法を使って電子の占有状態の状態密度、電子軌道を特定した部分状態密度、および運動量とエネルギー固有値の関数 ( $E$ - $k$  曲線) およびフェルミ面の構造を測定することにより、量子臨界点での電子状態を明確にし、遍歴描像が適切であることを示したことである。

博士論文は5章から構成されている。第1章では、物質の基本的な概念が電子状態密度の観点から記述され、物質の伝導に関するデータとこれまでの類似実験について概観している。第2章では、光電子分光法の原理と内殻共鳴条件や角度分解測定による光電子分光法によって得られた結果とその解析のための理論、装置の構成と性能が記されている。第3章では、 $\text{CeNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{Ge}_2$  ( $x = 0\sim 1$ ) の量子臨界点前後での電子状態の変化について記されている。特に、4d-4f、3d-4f 共鳴光電子分光による Ce 4f スペクトルおよび 3d 内殻光電子スペクトルから、混成度が量子臨界点で連続的に変化していることを示した。また、光電子スペクトルを不純物アンダーソンモデルで解析し、量子臨界点での特徴である電子比熱係数の発散は電荷の状態によるものではなく電子スピンのゆらぎによるものであることを明らかにした。さらに、フェルミ準位近傍の高分解能光電子測定および関連物質である  $\text{CeNiGe}_{2-x}\text{Si}_x$  ( $x = 0\sim 1$ ) の共鳴光電子分光測定においても、混成度の連続的な変化を明確にした。これらの結果は、量子臨界点で伝導帯と Ce 4f 準位との混成度が不連続に変わるという局在描像とは合わず、連続的に変化するというスピン密度波が存在する遍歴描像でよく説明できることをはっきり示している。第4章では、 $\text{CeCoGe}_{3-x}\text{Si}_x$  ( $x = 0\sim 3$ ) の中で量子臨界点に位置する  $\text{CeCoGe}_{1.75}\text{Si}_{1.25}$  の三次元角度分解光電子分光測定によって、三次元バンド分散を決定した。また、4d-4f 共鳴角度分解光電子分光によって Co 3d および Ce 4f の成分を分離したフェルミ面を決定した。さらに、高分解能測定によって、Co 3d-Ce 4f 混成バンドの存在を示した。この混成バンドの存在は、量子臨界点では Ce 4f は完全に局在しているというモデルでは説明できず、伝導帯と混成しているというスピン密度波の考え方に一致する。また、周期的アンダーソンモデルを用いてフェルミ面上の混成度に異方性があることを発見した。第5章にはまとめと将来展望が記されている。

以上のように、本論文は、混成度を制御したセリウム化合物に対して光電子分光法を駆使することで、量子臨界点での電子状態を初めて明確にし、遍歴描像が適切なモデルであることを示しており、独創的な博士論文と言える。よって、本論文は博士論文に値するものであると審査委員全員が結論した。