

角度分解光電子分光による原子層近藤格子における二次元重い電子状態観測

中村 拓人 大阪大学大学院生命機能研究科 助教

木村 真一 大阪大学大学院生命機能研究科・分子科学研究所 特別研究部門 教授

固体中の電子の局在性・遍歴性の織り成す強相関物性は、物性物理学の分野で多くの研究者を魅了してきた研究テーマである。希土類元素が周期的に配列した近藤格子はその性質を示す代表例な物質群であり、局在的な希土類 $4f$ 軌道と伝導電子との混成により基本的な物性が決まる。局在 $4f$ 電子と遍歴電子間の混成が小さな場合は、伝導電子を介した超交換相互作用である Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida 相互作用が支配的となり磁気秩序が生じる一方で、大きな場合は近藤効果が支配的となり $4f$ 電子の局在スピンの伝導電子との近藤一重項の形成により遮蔽されるため、パウリ常磁性を示す。この際、伝導電子は混成により獲得した局在性を反映して、有効質量が自由電子の数百倍から一万倍にも及ぶ重いフェルミ液体 (HF) 状態となる^[1]。これらの競合する境界では反強磁性的な量子臨界点が存在し、非フェルミ液体や非従来型超伝導などの量子臨界現象が発現する^[2]。磁場や圧力を外部から印加することで混成の強さを制御し、量子臨界点近傍へと系を近づけることで、非BCS超伝導などの多彩な量子臨界現象が研究されている。

近藤格子の研究はバルク三次元物質において盛んに行われているが、近年ではより低次元系である二次元近藤格子における近藤効果が注目されている。低次元系では、次元性の低下に伴う磁気揺らぎや電子相関の増大により外場に対して敏感になる^[3]。加えて、二次元物質では電界効果トランジスタ型の

デバイスに組み込むことで容易に外部から伝導電子数を制御可能であるため、三次元物質に比べて豊富な手法から量子臨界現象へ迫れると期待される。

二次元近藤格子を用いて強相関物性を詳細に調べるには、厚さが原子層から構成される単原子層物質を利用した研究が有効である。しかし、単原子層物質における二次元的な HF の報告はこれまでほとんどなかった。そこで筆者らは、完全な単原子層近藤格子を実現するために、ボトムアップ的に作製できる貴金属単結晶 (111) 表面上の単原子層合金に着目した。基板として貴金属 Cu(111) 単結晶、吸着元素として 13~14 個の $4f$ 電子 (0~1 個の $4f$ ホール) を持つ Yb を選び、二次元的

な重い電子状態を示す単原子層近藤格子の作製を目指した。実験は、UVSOR BL7U の高分解能角度分解光電子分光装置を用いて^[4]、電子状態の観点から研究を行った^[5]。

図 1 (a, b) に ARPES により観測した YbCu₂/Cu(111) の電子状態を示す。フェルミ準位 (結合エネルギー 0 eV) のごく近傍に分散の小さい平坦なバンドと、 Γ 点を対称としたホール分散が観測されている。両者のバンド交差する点の近傍では光電子強度が変化しており、バンド間混成の存在を示唆する。低温において近藤効果によりこれら 2 つのバンド間が混成した場合、伝導電子の有効質量の増大に対応して、混成バンドのフェルミ波数が増大すること

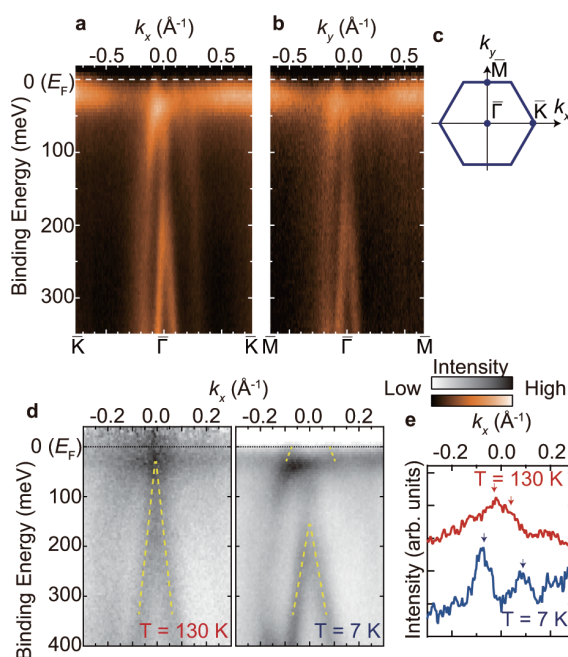


図 1. (a) YbCu₂/Cu(111) における Γ 点近傍の ARPES 強度プロット。 $h\nu = 37$ eV, $T = 7$ K の条件にて測定した。光電子強度は装置関数を量み込んだフェルミディラック分布関数を用いて強度を規格化している。(b) 表面 Brillouin zone。(c) 高分解能 ARPES イメージの温度依存性。点線はバンド分散のガイド。(d) フェルミ準位における運動量分散曲線の温度依存性。

が予想される。図1(d,e)は低温 (7 K) および高温 (130 K) におけるARPES強度プロットとフェルミ準位における運動量分散曲線である。高温では単一のブロードなピークであったフェルミ準位を横切る分散が、低温において明確に2つに分離していることがわかる。これは、バンド間混成の発達によるフェルミ波数の増大、すなわち重い電子状態の形成を示唆する。

重い電子系物質において、系が重いフェルミ液体となる温度 (コヒーレンス温度) を実験的に決定することが重要である。ARPESでは、このような特徴はフェルミ準位近傍に現れる近藤共鳴ピークの温度変化により決定することができる。図2(a)は、フェルミ準位近傍の光

電子スペクトルの温度依存性を示している。温度が下がるにつれて近藤共鳴ピークが発達し、低結合エネルギー側へと緩やかにシフトしている。より詳細な議論のために、近藤共鳴ピークをローレンツ関数でフィッティングして得られたピーク位置と強度の温度変化をプロットした結果が、図2(b, c)である。両パラメータの変化は、30K近傍を境に飽和している。これらの温度変化が飽和する温度は、重い準粒子フェルミ液体となるコヒーレンス温度と対応する^[6]。以上の結果は、YbCu₂が30Kのコヒーレンス温度を有する単原子層重い電子系物質であることを示している。

本研究のようにエネルギースケールの小さな多体相互作用を明確に観測する

には、低エネルギー放射光を用いた電子状態解析が有効であり、高エネルギー分解能かつ極低温まで測定可能なARPESの利用が重要である。まさに低エネルギー高輝度光源であるUVSORに合致する。最近では、エンドステーションに筆者らのように“その場”で薄膜作製からARPES計測までを行うユーザーに汎用的でユーザーフレンドリーな、試料準備環境が整備されつつある。一方で、電子状態の精密計測には、装置の安定性が極めて重要であり、ユーザー目線では高輝度かつ安定的な運用が大変好ましい。さらには、近年世界中のARPESエンドステーションに導入されているマイクロフォーカスビームが低エネルギー放射光で利用できれば、高い運動量分解能との両立が可能となり、高精度な電子状態計測が可能となるため、UVSORでの導入も有効であろう。今後もUVSORの特色を生かした電子物性研究がますます発展することを期待したい。

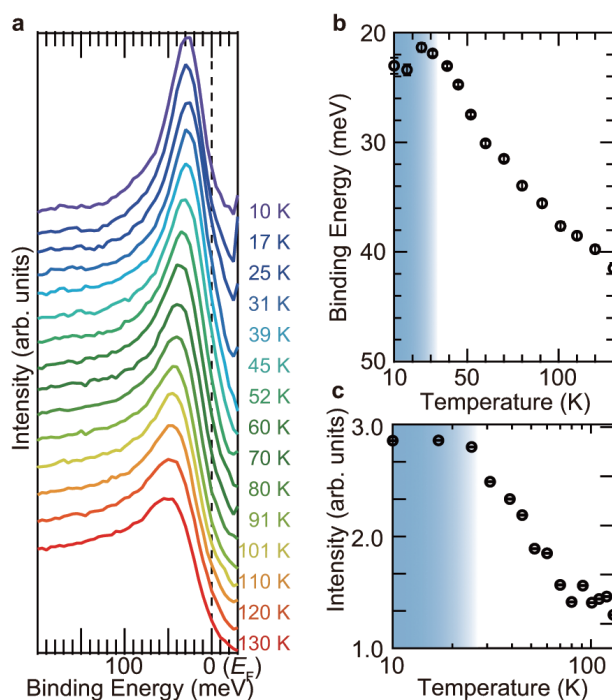
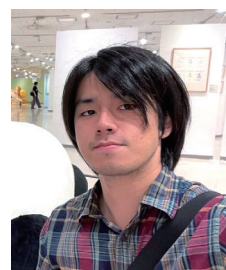


図2. (a) ARPESにより観測した近藤共鳴ピークの温度依存性。装置関数を畳み込んだフェルミディラック分布関数を用いて強度を規格化している。(b) 近藤共鳴ピークのピーク位置の温度依存性。(c) 近藤共鳴ピークのピーク強度の温度依存性。

参考文献

- [1] P. Coleman et al., *J. Phys. Condens. Matter* **13** (2001) R723.
- [2] C. Pfleiderer, *Rev. Mod. Phys.* **81** (2009) 1551.
- [3] S. Sachdev, *Science* **288** (2000) 475.
- [4] S. Kimura et al., *Rev. Sci. Instrum.* **81** (2010) 053104.
- [5] T. Nakamura et al., *Nat. Commun.* **14** (2023) 7850.
- [6] H. Anzai et al., *Phys. Rev. B* **101** (2020) 235160.



なかむら・たくと

2021年大阪大学大学院理学研究科博士課程修了、2021年大阪大学大学院生命機能研究科助教。最近の研究は、固体表面における新規希土類原子層化合物の作製と放射光を用いた強相関電子物性研究。趣味は、華道とアウトドア全般。特に釣り。



きむら・しんいち

1991年 東北大学理学研究科博士課程修了、理学博士、2013年 大阪大学 教授、2020年 分子科学研究所 教授(クロスアポイントメント)、最近の研究は、強相関電子系のプランクスケリングと新規分光法開発。趣味は、ボタリング、料理。