

# 磁性と「重い電子」は共存するか？ 低温・高圧下テラヘルツ分光による量子臨界点での電子状態の観測

木村真一<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup> 自然科学研究機構 分子科学研究所 極端紫外光研究施設

(Dated: July 17, 2012)

The pressure-dependent optical conductivity spectra of the heavy-fermion (HF) compound CeIn<sub>3</sub> is reported to investigate the existence of the HF state in the antiferromagnetic (AFM) phase. The obtained result suggests that *c-f* hybridization, as well as heavy fermions, exists even in the AFM phase of CeIn<sub>3</sub>.

PACS numbers:

## 序論

希土類やアクチノイド元素を使った金属間化合物は、一般に「重い電子」と呼ばれる磁性を持たず伝導電子の有効質量が大きい状態と、低温で磁気転移する2つの状態をとる。重い電子状態では、希土類の4*f*電子またはアクチノイドの5*f*電子のスピンの伝導電子のスピンの近藤効果によって遮蔽されることで磁性が現れず、代わりに伝導電子に4*f*電子の局在性が移ることによって、有効質量が増大すると考えられている。一方で、近藤効果が弱い領域では、4*f*電子スピンは伝導電子を媒介とした超交換相互作用、いわゆる Ruderman-Kittel-槽谷-芳田 (RKKY) 相互作用によって整列し、磁気秩序が現れる [1, 2]。この希土類化合物に現れる2面性は、*f*電子と伝導電子(*c*電子)との混成(*c-f*混成)の大小によって区別され、Doniachによって提唱された相図(Doniach相図)で一般的に説明される(図1) [3]。磁気秩序が絶対零度で消える点は量子臨界点と呼ばれており、その近傍で重い電子系の超伝導が出現する [4]。磁性と非磁性の移り変わりとその境界での超伝導や非フェルミ液体などの興味深い物性の出現は、銅氧化物や鉄系超伝導体などの遷移金属化合物や擬二次元有機伝導体など希土類金属間化合物と共通にくくられる強相関電子系物質でも観測されている。これらの強相関電子系の物理を統一的に理解するためには、磁性と非磁性の境界での電子構造の移り変わりをあきらかにすることが重要である。

現在、重い電子系の量子臨界点やその近くの磁性が現れる場合の電子状態については、主に2つの考え方が提唱されており、現在このどちらが実際に現れるか、活発な議論がなされている。1つはColemanやSiらによって提唱された近藤崩壊(KBD)模型 [5] と呼ばれているもので、Doniach相図の量子臨界点から左側の磁性が現れるところでは重い電子は消えるという考えであり、もう1つは、Moriya, Hertz, Millisらによる従来のスピン密度波(SDW)模型 [6-8] と呼ばれるもので、重い電子を形成したまま磁性が現れるという考えである [9]。これら2つの模型の大きな違いは、量子臨界点近くの磁気秩序を持った状態では、重い電子を形成するかどうか、つまり*c-f*混成を形成するかどうかである。SDW模型では、重い電子状態から*c-f*混成が連続的に磁気秩序相内まで残ることになり、一方でKBD模型では、磁性を持った状態では*c-f*混成が消える(図1の破線)。つまり、磁気秩序したところで*c-f*混成が

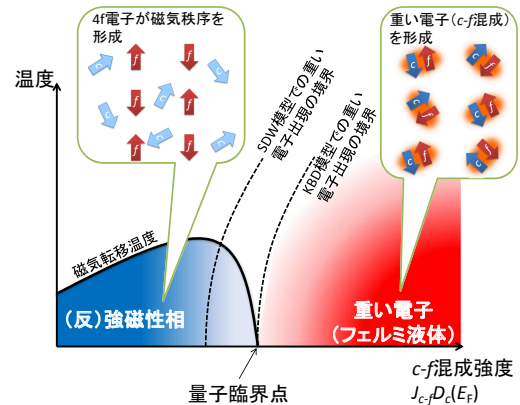


FIG. 1: 重い電子系希土類化合物の磁性を持った状態 [(反)強磁性相]と重い電子状態の関係を、*c-f*混成強度 [ $J_{c-f}D_c(E_F)$ ]と温度の関数で示したドニアク相図。近藤崩壊(KBD)模型では重い電子が量子臨界点より右側で出現するため(反)強磁性相では現れないのに対し、スピン密度波(SDW)模型では、重い電子が出現する境界が(反)強磁性相内に入り込んでいるところに違いがある。

あらわれるかがわかれば、これら2つの理論模型のどちらが正しいのか決定できると考えられる。

これまでに行われた実験では、YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>のホール係数の磁場依存性では、量子臨界点を境にキャリア密度がステップ上に変化しているのが観測されている [10, 11]。またCeRhIn<sub>5</sub> [12]やCeIn<sub>3</sub> [13]のドハースファンアルフェン効果の圧力依存性でも、量子臨界点を境にフェルミ面の断面積の大きな変化が観測されている。当初、これらはKBD模型の証拠とされた。しかしながら、前者は磁場によってフェルミ面のトポロジーが変わるリフシツツ転移の可能性が指摘されており [14]、一方で後者は、SDW模型でも価数転移で説明可能であるという理論 [15, 16]も提案されている。また一方で、YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>で量子三重点の可能性 [17]も指摘されているなど、統一的な見解は得られていない。

最近我々は、実際の重い電子系物質にこの2つのモデルのうちどちらが適用可能なのかを調べるため、外部から圧力を加えて混成強度を変化させることで反強磁性から非磁

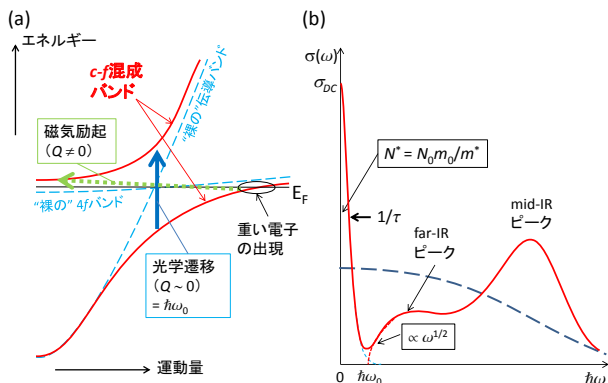


FIG. 2: (a)  $c$ - $f$  混成が働いている場合 ( $c$ - $f$  混成バンド, 実線) と働いていない場合 (“裸の”伝導バンドと  $4f$  バンド, 破線) の電子構造の模式図。 $c$ - $f$  混成が働いている場合は, 実線の矢印の電荷励起のピークと破線の矢印の磁気励起のピークが現れる。(b)  $c$ - $f$  混成が働いた場合と働かない場合の光学伝導度  $[\sigma(\omega)]$  スペクトル。 $c$ - $f$  混成が働かない場合は,  $4f$  電子 (ホール) は局在しているため光学伝導度に寄与せず, 通常の金属的なドルーデが現れる (破線) が,  $c$ - $f$  混成が働いた場合には, 重い電子による鋭いドルーデ構造と  $c$ - $f$  混成バンド間の電荷励起による構造が現れる。

性重い電子状態まで変化する典型物質の1つであるインジウム化セリウム ( $\text{CeIn}_3$ ) に対して低温・高圧下テラヘルツ反射分光を行った。その結果として, 反強磁性相内の電子構造に  $c$ - $f$  混成が現れていることを発見し, SDW 模型が適用可能であることを示した。本稿では, まず, 重い電子系の電子構造と光学測定で得られる情報の関係を示し, その後,  $\text{CeIn}_3$  に対して行った低温・高圧下テラヘルツ反射分光の結果について紹介する。

#### 重い電子系の電子構造と光学応答

重い電子の起源である  $c$ - $f$  混成は, 周期的アンダーソン模型 (PAM) によって定性的に説明される (図 2a) [18]。金属を特徴づけるフェルミ準位を横切った伝導帯に比較的局在した  $f$  準位が重なって置かれた場合, それらの間の混成が  $c$ - $f$  混成である (図 2a の実線)。PAM では, 重い電子の性質を表すフェルミ準位を横切ったバンド分散が水平に近いバンドが予測されるのに加えて, フェルミ準位近傍に  $c$ - $f$  混成で生じた結合・反結合軌道間にエネルギーギャップが生じる。これら両方の電子構造が観測できるのが光学測定である。

重い電子の起源であるフェルミ準位上のフラットなバンドの性質を表すものとして, 光学伝導度には  $0$  eV をピークとして急峻に落ちるドルーデ構造があらわれ (図 2b) [19, 20], 光電子分光にもフェルミ準位上にピークが出現する。このピークの幅は緩和時間の逆数 ( $1/\tau$ ; 散乱確率) に比例するため, きわめて緩和時間の長いことを表しており, 重い電子による伝導がコヒーレントであることに対応している。ドルーデピークの  $0$  eV への外挿値は電気抵抗率の逆数である直流伝導度に, 積分値はキャリア密度を有

効質量で割った値 (有効キャリア密度) に対応するため, 光学伝導度は電気抵抗率とホール係数を一緒に測定したものに对应し, スペクトル形状を古典的なドルーデ関数を使ったフィッティング等を行い分離することで (理想的には) 複数の性質を持ったキャリアそれぞれに対しての直流伝導度と有効キャリア密度を求めることができる。また, 光学伝導度を得る際に用いられる光反射スペクトルのクラマス・クローニヒ解析で得られる複素誘電関数を用いることで, エネルギーの関数としての有効質量と散乱確率を得ることができる [21] ため, 重い電子の幅の情報が得られるばかりでなく, 散乱確率のエネルギー依存性によるフェルミ液体・非フェルミ液体の性質の議論が行われている [22–24]。

一方で,  $c$ - $f$  混成による結合・反結合軌道のフェルミ準位以下のエネルギー分散は, 角度分解光電子分光で明確に観測されている [25]。また, PAM から予測されるものとして, 非弾性中性子散乱によってブリルアンゾーンの中心から境界へまたはその逆方向にスピングャップが現れ, 電子構造に対応する光学伝導度スペクトルには, 混成がおこる波数においてエネルギーギャップ (電荷ギャップ) による立ち上がり構造が出現するはずである (図 2b) [26]。

光学伝導度スペクトルは, 運動量が変化しない直接遷移に対応する結合状態密度と電気双極子遷移の選択則を合わせてブリルアンゾーン全体にわたって積分した量である。そのため, 三次元物質では,  $c$ - $f$  混成ギャップの光学伝導度の立ち上がりには van Hove 特異点 [27] が現れ, 理想的にはエネルギーの  $1/2$  乗に比例する (図 2b)。後に示すように, 実際多くの重い電子系物質で  $c$ - $f$  混成ギャップに対応するエネルギーに立ち上がりが観測されている。

それでは, この  $c$ - $f$  混成ギャップに対応する構造はどのエネルギーに現れるのだろうか? 光学伝導度スペクトルにおいて, 図 2b に示したように, 重い電子系に特有な構造は主に 2 つである。1 つは中赤外に現れる比較的大きなピーク (mid-IR ピーク) であり, もう 1 つはテラヘルツ (遠赤外) 領域に現れる小さい肩またはピーク構造 (far-IR ピーク) である。これらのうち, mid-IR ピークに関しては, 岡村らによって  $c$ - $f$  混成ギャップに関係していると報告された [28]。しかしながら, この mid-IR ピークは  $T_K$  より高い温度から成長を始めており, 重い電子の直接的な起源とは言いがたい [22, 23]。また, ほとんどの Ce 化合物では, mid-IR ピークは Ce  $4f$  のスピン軌道分裂の  $0.25$  eV 分離して 2 本観測され, 一方で Yb 化合物では, Yb  $4f_{7/2}$  に由来する 1 本だけ現れる。Yb  $4f_{7/2}$  と  $4f_{5/2}$  のスピン軌道分裂は  $1.4$  eV 程度であるため, Yb  $4f_{5/2}$  に由来するもう 1 本のピークは中赤外領域ではなく近赤外に現れるはず (しかし, 他のバンド間遷移も現れるため, 明確に区別できない) であるため, Ce, Yb 化合物それぞれの mid-IR ピークの数の違いは説明できる。実際に, 局所密度近似 (LDA) を用いたバンド計算から導出された重い電子系の光学伝導度スペクトルでは, この mid-IR ピークは, バンドのくりこみを考慮する必要があるが, Ce 化合物の場合は価電子帯から Ce  $4f_{5/2}$ ,  $4f_{7/2}$  準位への光学遷移, Yb 化合物では Yb  $4f_{7/2}$  から伝導帯への光学遷移として再現できる [29, 30]。一方, 最近の我々の研究で,  $c$ - $f$  混成が極端に弱いと考えられている希土類化合物では, この mid-IR ピークは観測されない [31]。よって, mid-IR ピー

クは、 $c$ - $f$  混成の大小を表している量であることは確かであり、 $c$ - $f$  混成のスペクトル秩序変数 (Spectroscopic order parameter) とみなすこともできる。

光学伝導度スペクトルのもう1つの特徴的な構造である far-IR ピークは  $T_K$  以下で現れ、かつ、そのエネルギー位置は  $T_K$  にスケールする [32] と共に、非弾性中性子散乱で観測されたスピギャップの大きさにも近い値である [33]。さらに、 $c$ - $f$  混成によって微小なエネルギーギャップが開くと考えられている近藤半導体でも同様な肩構造が観測されている [34–36]。重い電子系と近藤半導体の違いは、前者が  $c$ - $f$  混成バンド上にフェルミ準位があるのに対し、後者は  $c$ - $f$  混成によって開いたギャップ内にフェルミ準位があると考えると、PAM からの予想とも一致する。つまり、テラヘルツ領域に  $T_K$  以下で現れる far-IR ピークが、 $c$ - $f$  混成に対応すると考えられる。以上から、重い電子が存在するかどうか、つまり  $c$ - $f$  混成が現れるかどうかは、光学伝導度のテラヘルツ領域に far-IR ピークがあるかどうかを観測すれば良い。

このような光学測定や光電子分光は、通常は温度依存性の測定が行われている。図 1 の Doniach 相図上では、温度方向 (縦方向) にパラメータを変化させることに対応する。これまでに、光学伝導度の温度依存性の測定から量子臨界点へのアプローチも行われている。例えば量子臨界点の極近傍にいと考えられている  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  等では、1 K 以下から 10 K 程度の温度で有効質量の大きいキャリアが出現し、緩和時間の振動数依存性が温度と同じべき乗に載っていることを観測している [22, 23]。また、 $\text{CeCu}_6$  では、far-IR ピークの観測も行われており、鋭いピークの存在が示されている [37]。しかしながら、磁気秩序状態から非磁性の重い電子状態に移行した際に電子状態がどのように変化するかは、温度依存性の測定からでは知ることができないものであり、図 1 の Doniach 相図の横方向にパラメータを変化させる必要がある。つまり、伝導帯のフェルミ準位上の状態密度  $D_c(E_F)$  を変えるか、または、 $c$ - $f$  間の交換相互作用  $J_{c-f}$ 、つまり  $c$ - $f$  混成強度を変える必要がある。これらのうち、 $D_c(E_F)$  は、配位子を変えることによって変化させることができる。そのため、配位子の混合割合を連続的に変えた試料に対しての測定が行われている。しかしながら、この方法では混合によるランダムネスが排除できないため、厳密な議論は難しい。一方で  $c$ - $f$  混成強度は、希土類原子と配位子との距離を変える事によって変化させることができる。原子間距離を変えるためには、試料を外部から加圧するのが最も簡便で確実な方法である。そのため、高圧下におけるさまざまな物性研究が盛んに行われるようになってきた。高圧下の赤外・テラヘルツ分光も、最近になって世界的に行われ始めている。

#### 低温・高圧下テラヘルツ分光法

試料に高圧を加えるためには、高圧セル中に試料を封印する必要がある。その場合、高圧を発生させる事が出来る空間は極めて狭く、微小な試料のみ測定可能である。また、高圧セルを通り抜ける情報のみが観測できる。幸い、高圧セルの1つであるダイヤモンドアンビル型高圧セル (DAC) のダイヤモンド結晶は、可視ばかりでなく赤外・テ

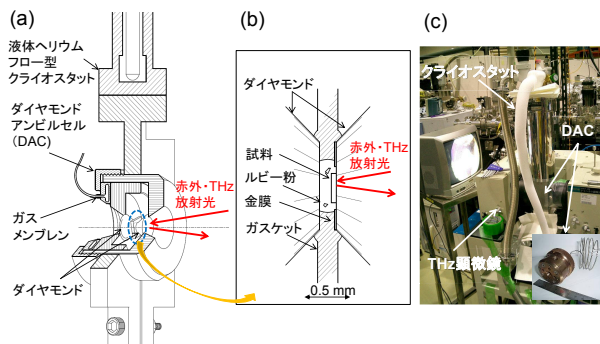


FIG. 3: (a) 極低温・高圧下赤外テラヘルツ反射分光をおこなうためのクライオスタットとダイヤモンドアンビル高圧セル (DAC) の図。赤外テラヘルツシンクロトロン光 (IR-SR) は、ダイヤモンドを通して試料に入射される。(b) DAC 内の試料等の図、および (c) UVSOR-II のテラヘルツ顕微ステーションでの実験の写真。

ラヘルツ領域は透過するため、高圧下のスペクトルの測定が可能である [38]。そのため、高圧下の赤外分光は世界的に活発に行われている。一方で、高圧下のテラヘルツ分光は、ほとんど行われていない。その理由は、DAC 内の微小空間にテラヘルツ光を集光するためには、高輝度な光源が必要であるが、実験室で簡便に使える高輝度な光源がないためである。そこで我々は、世界最高輝度のテラヘルツシンクロトロン光が得られる分子科学研究所の放射光施設 UVSOR-II の赤外テラヘルツビームライン [39] を用いることにし、テラヘルツ顕微分光装置を開発した [40]。

本研究で用いた DAC (英国 easyLab Technology 社製, WCM-7(B) Diacell OptiDAC-LT) とそれを冷却するクライオスタット (米国 Janis Research 社製, ST-100) の概念図を図 3(a) に、DAC の試料空間内の配置図を図 3(b) に、テラヘルツシンクロトロン光を試料に集光するテラヘルツ顕微鏡とクライオスタットを配置した実際のビームライン実験装置の写真を図 3(c) に示す [41]。DAC はクライオスタットの先に接続され、液体ヘリウム温度であるクライオスタットからの熱伝導で 5 K 程度まで冷却される。DAC への加圧は、ステンレス製のうきわ状のガスマンブレンへ導入されたヘリウムガスの圧力で調整されるため、低温でも圧力がコントロールできるようになっている。圧力は、試料空間と一緒に導入されたルビー粉末の蛍光ラインのシフトで決定された。試料空間には、加圧のための圧力媒体として、試料と一緒にアピエゾン N グリースと臭化カリウム KBr 粉末が封入された。試料は入射光側のダイヤモンドに押し付けられるため、試料とダイヤモンドの間には圧媒体は入り込まないようにしている。また、低温では圧力の分布が出る事が懸念されるが、ルビーの蛍光ライン幅を見る限り、 $\pm 0.1$  GPa 以下の圧力分布と見積もられた。この装置を用いて、典型的な重い電子系反強磁性体  $\text{CeIn}_3$  の低温・高圧下テラヘルツ分光を行った。

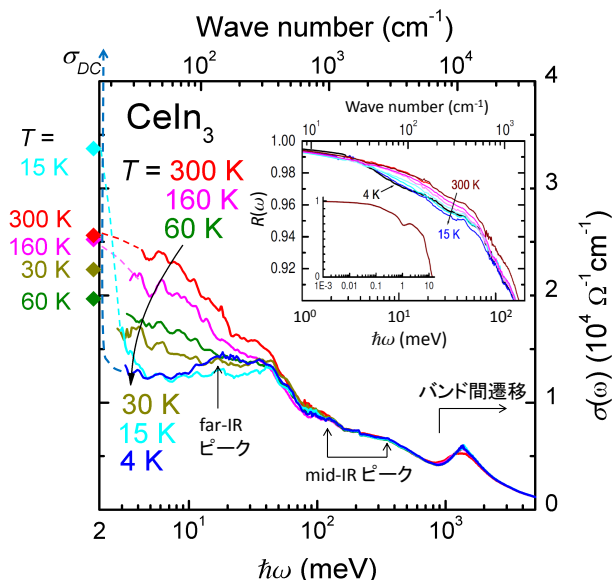


FIG. 4:  $\text{CeIn}_3$  の光学伝導度  $[\sigma(\omega)]$  スペクトルの温度依存性。電気抵抗率から求めた直流伝導度 ( $\sigma_{DC}$ ) が左に示されている。挿入図は、反射スペクトル  $[R(\omega)]$  の温度依存性。

#### $\text{CeIn}_3$ の低温・高圧下テラヘルツ分光による反強磁性相内の電子構造 [42]

$\text{CeIn}_3$  は、圧力をかけない状態ではネール温度 ( $T_N$ ) が約 10 K の反強磁性状態であるが、臨界圧力 (2.6 GPa, 2 万 6 千気圧) に達すると絶対温度 0.2 K 以下で超伝導が出現し、更に高い圧力では重い電子で磁性を持たない状態になることが知られている [43]。本研究では、液体ヘリウムを使った通常のクライオスタットで十分到達可能な温度で反強磁性相に達することができるこの  $\text{CeIn}_3$  を測定試料とし、 $T_N$  以下の温度で光反射 (光学伝導度) スペクトルの圧力依存性を測定し、 $c$ - $f$  混成ギャップが磁気転移圧力を超えることでどのように変化するかを調べた。

最初に、 $\text{CeIn}_3$  の光学伝導度スペクトルの温度依存性を図 4 に示す。図の左端に電気抵抗率 [44] の逆数である直流電気伝導度 ( $\sigma_{DC}$ ) も同時に示されている。光学伝導度は交流伝導度であり、そのゼロエネルギー (振動数がゼロ) への外挿値は  $\sigma_{DC}$  に一致するはずである。図 4 を見ると、60 K 以上ではこの傾向が現れているが、30 K 以下になると、光学伝導度の最下限のエネルギーでの光学伝導度の値は減少するのに対し、 $\sigma_{DC}$  は増加する。このことは、測定限界以下に幅の狭いピーク構造が現れていることを暗示している。実際に Scheffler らによる  $\text{UPd}_2\text{Al}_3$  のマイクロ波伝導の測定では、重い電子によるドルーデ構造が観測されている [45]。幅が狭いことは電子の緩和時間が長いことを表しており、高い伝導度と合わせて考えると、重い準粒子が現れていることを示している。ここで観測された光学伝導度と  $\sigma_{DC}$  の乖離が 60 K では現れず 30 K 以下になって初めて現れたことは、電気抵抗率のピークが約 50 K に現れていることとコンシステントである。つまり、電気抵抗率のピークより高温側 (50 K 以上) では、伝導電子は

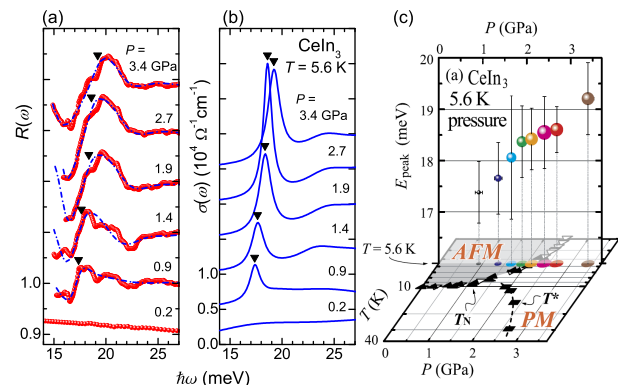


FIG. 5: (a) 温度 5.6 K での  $\text{CeIn}_3$  の反射  $[R(\omega)]$  スペクトル (印) の圧力依存性とドルーデ・ローレンツ模型によるフィッティング結果 (一点差線)。この反射スペクトルは DAC のダイヤモンド窓を通して測定しているため、構造が強調されている。それぞれのスペクトルは見やすくするために反射率を 0.1 ずつずらしている。(b) フィッティングの結果得られたパラメータを使って得られた光学伝導度  $[\sigma(\omega)]$  スペクトルの圧力依存性。ドルーデ成分は差し引かれている。また、それぞれのスペクトルは、 $5 \times 10^3 \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$  ずつずらしている。印はピークのエネルギー位置を表す。(c) ピークのエネルギー位置 ( $E_{peak}$ ) と強度 (マークの大きさ) を圧力に対してプロットした図。NQR で決定された相図も同様に示す。

近藤効果によって散乱されて短い緩和時間になるが、低温側 (50 K 以下) では重い電子の生成によってコヒーレントな伝導が成長し、緩和時間の長い伝導に移行したためと考えられる。

この重い電子の伝導の成長にあわせて、 $c$ - $f$  混成ギャップ間の吸収も現れる。 $\text{CeIn}_3$  では 4 K で約 20 meV に観測される肩構造 (far-IR ピーク) に対応する (図 4)。中性子非弾性散乱 [46] から、この構造は図 1(c) に表されている  $c$ - $f$  混成によって生じた結合軌道・反結合軌道間の電子遷移によるものであることが推察される。典型的な重い電子系 [23, 47] や近藤半導体 [32, 35] では、この far-IR ピークが明確に見えるものが多いが、 $\text{CeIn}_3$  ではわずかに折れ曲がりが見られるのみである。このことは  $c$ - $f$  混成が弱いことに対応すると考えられる。この far-IR ピークの圧力依存性を測定することによって、 $c$ - $f$  混成バンドが圧力によってどのように成長するのか明確にできるものと考えられる。

$\text{CeIn}_3$  の 5.6 K におけるテラヘルツ光反射スペクトルの圧力依存性を図 5(a) に示す。このスペクトルは DAC のダイヤモンド窓を通して観測されたものであり、ダイヤモンド窓の屈折率 ( $n \sim 2.4$ ) によって構造が強調して観測されている。 $\text{CeIn}_3$  の 5.6 K での反強磁性性と常磁性の臨界圧力は約 2.2 GPa である。圧力が 0.2 GPa の際には僅かに上に凸のほぼフラットな反射スペクトルが得られているが、加圧することで大きく変化し、0.9 GPa では 18 meV 付近に明確な構造が現れ、さらに圧力を上げることで構造が明確になってくる。

この変化は、光学伝導度スペクトルにはピークになって現れる。図 5(a) のスペクトルを古典的な光学スペクトルのフィッティング関数であるドルーデ・ローレンツ模型 [48]

でフィッティングした結果を一点差線で示す。また、そのフィッティングパラメータを用いて、ドルーで成分を除いた光学伝導度スペクトルを図 5(b) に示す。フィッティングによって得られたローレンツ関数のピークのエネルギー、すなわち far-IR ピークのエネルギー（光吸収のピーク位置）が  $\omega_{\text{peak}}$  であり、圧力の増加に伴い、高エネルギー側に移動し、同時にピーク強度が増加する。この 2 つの観測結果は、どちらも  $c$ - $f$  混成強度が圧力によって増加することを意味している。詳細に見ると、0.9 GPa ではわずかに far-IR ピークが現れ、1.4 GPa, 1.9 GPa と圧力が高くなるにつれてピークの大きさが増加し、2.7 GPa 以上では大きさはほぼ一定になる一方で、光吸収ピークのエネルギー位置は高エネルギー側にシフトする。その結果を核四重極共鳴 (NQR) [49] で決定された圧力・温度相図上に示したものが図 5(c) である。この図で、丸のエネルギーはピーク的位置であり、大きさはピークの積分強度を表している。この図で、far-IR ピークは、臨界圧力 2.2 GPa 以下の反強磁性状態でも現れていること、つまり、 $c$ - $f$  混成バンド間の光吸収があらわれることが重要である。このことは、 $c$ - $f$  混成は反強磁性相内でもすでに現れていることを示しており、CeIn<sub>3</sub> は重い電子を形成したまま磁性を持つという考えである SDW 模型によく合っていることを示している。NQR 測定では常磁性相で  $4f$  電子の局在と遍歴のクロスオーバーが観測されており、それが図 5(c) の  $T^*$  の線にあたる。この  $T^*$  の線より低圧側では  $c$ - $f$  混成は起こっておらず、高圧側では  $c$ - $f$  混成が現れるとみなすことができる。今回、5.6 K において我々が観測した  $c$ - $f$  混成が明確に現れ始める圧力は約 1.6 GPa であり、反強磁性相内である。この温度・圧力は、NQR の  $T^*$  クロスオーバーラインの延長上に位置しており、局在・遍歴の境界は KBD 模型のように QCP に外挿されるのではなく、反強磁性相に入っていることになる。この結果は、SDW 模型から予測されるものと完全に一致し、反強磁性相内で重い電子を作る  $c$ - $f$  混成が現れていることを示している。

#### まとめ

本稿は、CeIn<sub>3</sub> の反強磁性相内で重い電子の起源となる  $c$ - $f$  混成バンドが現れるかどうかを、低温・高圧下テラヘルツ分光によって調べた結果を中心として議論したものである。結論として、CeIn<sub>3</sub> では  $c$ - $f$  混成バンドが反強磁性相内に現われており、SDW 模型を支持していることを示した。この解析に必要な、重い電子系の典型的な電子構造と光学伝導度スペクトルとの関係および光学伝導度でのみ得られる情報についても紹介した。光学伝導度スペクトルは、同じように電子構造を観測する手段である角度分解光電子分光に比べてスペクトルが直感的でないためにわかりづらい面もあるが、LDA バンド計算や動的平均場を導入した計算 LDA+DMFT [50] から導かれる光学伝導度と比較することで、更に詳細な情報が得られる。また、光電子分光と異なり、高圧・高磁場・高電圧の環境下でも測定可能であるため、それらの環境下の電子構造変化を調べるのに最適な方法と認識され、多くの研究が進められている。本稿によって、赤外・テラヘルツ分光が重い電子系の電子構造を調べる強力な手段であることを知ってもらえれば幸

いである。

#### 謝辞

この研究は、ドイツ・シュツットガルト大学の飯塚拓也博士（当時は総合研究大学院大学物理科学研究科大学院生）、韓国・大邱慶北科学技術院 (DGIST) の権容聖教授との共同研究の成果である。また、科学研究費補助金・基盤研究 (B) (課題番号 18340110, 22340107) の支援を受け、分子科学研究所国際共同研究・分子科学研究所 UVSOR 施設利用研究の研究課題 (2007-2009) の一環として行われた。

\* Electronic address: kimura@ims.ac.jp

- [1] 大貫惺暁, 上田和夫:「重い電子系の物理」(裳華房, 1998 年).
- [2] Y. Ōnuki, R. Settai, K. Sugiyama, T. Takeuchi, T. C. Kobayashi, Y. Haga, and E. Yamamoto: J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 769.
- [3] S. Doniach: Physica B **91** (1977) 231.
- [4] S. Stockert, F. Kirchner, F. Steglich, and Q. Si, J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 011001.
- [5] P. Coleman, C. Pépin, Q. Si, and R. Ramazashvili: J. Phys.: Condens. Matter **13** (2001) R723.
- [6] T. Moriya and J. Kawabata: J. Phys. Soc. Jpn. **34** (1973) 639; *ibid* **35** (1973) 669.
- [7] J. A. Hertz: Phys. Rev. B **14** (1976) 1165.
- [8] J. Millis and P. A. Lee: Phys. Rev. B **35** (1987) 3394.
- [9] P. Gegenwart, Q. Si, and F. Steglich: Nat. Phys. **4** (2008) 186.
- [10] S. Paschen, T. Lühmann, S. Wirth, P. Gegenwart, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman, and Q. Si: Nature (London) **432** (2004) 881.
- [11] S. Friedemann, N. Oeschler, S. Wirth, C. Krellner, C. Geibel, F. Steglich, S. Paschen, S. Kirchner, and Q. Si: Proc. Natl. Acad. Sci. USA **107** (2010) 14547.
- [12] H. Shishido, R. Settai, H. Harima, and Y. Ōnuki: J. Phys. Soc. Jpn. **74** (2005) 1103.
- [13] R. Settai, T. Kubo, T. Shiromoto, D. Honda, H. Shishido, K. Sugiyama, Y. Haga, T. D. Matsuda, K. Betsuyaku, H. Harima, T. C. Kobayashi, and Y. Ōnuki: J. Phys. Soc. Jpn. **74** (2005) 3016.
- [14] P. M. C. Rourke, A. McCollam, G. Lapertot, G. Knebel, J. Flouquet, and S. R. Julian: Phys. Rev. Lett. **101** (2008) 237205.
- [15] S. Watanabe, A. Tsuruta, K. Miyake, and J. Flouquet: Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 236401.
- [16] S. Watanabe and K. Miyake: J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 033707.
- [17] T. Misawa, Y. Yamaji, and M. Imada: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) 093712.
- [18] A. C. Hewson: *The Kondo Problem to Heavy Fermions* (Cambridge University Press, Cambridge, U.K., 1993).
- [19] A. M. Awasthi, L. Degiorgi, G. Gruner, Y. Dalichaouch, and M.B. Maple: Phys. Rev. B **48** (1993) 10692.
- [20] B. C. Webb, A. J. Sievers, and T. Mihalisin: Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 1951.
- [21] M. Dressel and G. Grüner: *Electrodynamics of Solids* (Cambridge University Press, Cambridge, U.K., 2002).

- [22] S. Kimura, J. Sichelschmidt, J. Ferstl, C. Krellner, C. Geibel, and F. Steglich: Phys. Rev. B **74** (2006) 132408.
- [23] T. Iizuka, S. Kimura, A. Herzog, J. Sichelschmidt, C. Krellner, C. Geibel, and F. Steglich: J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 123703.
- [24] S. Kimura, T. Mizuno, H.J. Im, K. Hayashi, E. Matsuoka, T. Takabatake: Phys. Rev. B **73** (2006) 214416.
- [25] H. J. Im, T. Ito, H.-D. Kim, S. Kimura, K. E. Lee, J. B. Hong, Y. S. Kwon, A. Yasui, and H. Yamagami: Phys. Rev. Lett. **100** (2008) 176402.
- [26] P. S. Riseborough: Phys. Rev. B **45** (1992) 13984.
- [27] L. van Hove: Phys. Rev. **89** (1953) 1189.
- [28] H. Okamura, T. Watanabe, M. Matsunami, T. Nishihara, N. Tsujii, T. Ebihara, H. Sugawara, H. Sato, Y. Ōnuki, Y. Isikawa, T. Takabatake, and T. Nanba: J. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007) 023703.
- [29] S. Kimura, T. Iizuka, and Y. S. Kwon: J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 013710.
- [30] S. Kimura: Phys. Rev. B **80** (2009) 073103.
- [31] S. Kimura and Y. S. Kwon: unpublished.
- [32] S. Kimura, Y. Muro, and T. Takabatake: J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) 033702.
- [33] D. T. Adroja, J.-G. Park, K. A. McEwen, N. Takeda, M. Ishikawa, and J.-Y. So: Phys. Rev. B **68** (2003) 094425.
- [34] S. Kimura, T. Nanba, S. Kunii, and T. Kasuya: Phys. Rev. B **50** (1994) 1406.
- [35] H. Okamura, T. Michizawa, T. Nanba, S. Kimura, F. Iga, and T. Takabatake: J. Phys. Soc. Jpn. **74** (2005) 1954.
- [36] B. Bucher, Z. Schlesinger, P. C. Canfield, and Z. Fisk: Phys. Rev. Lett. **72** (1994) 522.
- [37] F. Marabelli and P. Wachter: Phys. Rev. B **42** (1990) 3307.
- [38] 岡村英一, 難波孝夫, 松波雅治, 森脇太郎, 池本夕佳: 放射光 **24** (2011) 302.
- [39] S. Kimura, E. Nakamura, T. Nishi, Y. Sakurai, K. Hayashi, J. Yamazaki, and M. Katoh: Infrared Phys. Technol. **49** (2006) 147.
- [40] S. Kimura, Y. Sakurai, E. Nakamura, and T. Mizuno: AIP Conf. Proc. **879** (2007) 595.
- [41] S. Kimura: *Frontiers in Optical Methods; Nanocharacterization and Coherent Control*, K. Shudo and I. Katayama eds. (Springer Monograph, 20xx), in press.
- [42] T. Iizuka, T. Mizuno, B. H. Min, Y. S. Kwon, and S. Kimura: J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 043703.
- [43] N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, D. M. Freye, R. K. W. Haselwimmer, and G. G. Lonzarich: Nature (London) **394** (1998) 39.
- [44] G. Knebel, D. Braithwaite, P. C. Canfield, G. Lapertot, and J. Flouquet: Phys. Rev. B. **65** (2001) 024425.
- [45] M. Scheffler, M. Dressel, M. Jourdan, and H. Adrian: Nature **438** (2005) 1135.
- [46] J. M. Lawrence and S. M. Shapiro: Phys. Rev. B **22** (1980) 4379.
- [47] S. Kimura, H. Iwata, K. Kanai, S. Shin, G. Schmerber, J. P. Kappler, and J. C. Parlebas: Acta Phys. Pol. B **34** (2003) 975.
- [48] F. Wooten: *Optical Properties of Solids* (Academic Press, New York, 1972).
- [49] S. Kawasaki, T. Mito, G. -q. Zheng, C. Thessieu, Y. Kawasaki, K. Ishida, Y. Kitaoka, T. Muramatsu, T. C. Kobayashi, D. Aoki, S. Araki, Y. Haga, R. Settai, and Y. Ōnuki: Phys. Rev. B **65** (2001) 020504.
- [50] P. Wissgott, J. Kuneš, A. Toschi, and K. Held: Phys. Rev. B **85** (2012) 205133.