

メタ磁性転移と f 電子の遍歴と局在 - $Ce_xLa_{1-x}Ru_2Si_2$ 及び $CeRu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$ 混晶を用いた dHvA 効果による研究

大学院理学研究科
大学院理学研究科
大学院理学研究科、極低温科学センター
大学院理学研究科、極低温科学センター
大学院理学研究科、極低温科学センター

松本裕司 (y.mats@mail.clts.tohoku.ac.jp)
杉基紀
木村憲彰
小松原武美
青木晴善

1. はじめに

強相関 f 電子系物質の f 電子がどこで、どのように局在状態から遍歴に変化するかは古くからの未解決な基本問題である。 $CeRu_2Si_2$ のメタ磁性転移に伴うフェルミ面の変化もそのような問題のひとつである。図 1 (a) および (b) は $CeRu_2Si_2$ および $LaRu_2Si_2$ [1, 2] のバンド計算によるフェルミ面を示している。2つの化合物の結晶構造は $ThCr_2Si_2$ 型である。(a) の計算では f 電子は遍歴しているとしている。 $CeRu_2Si_2$ で f 電子が局在している場合では、そのフェルミ面は $LaRu_2Si_2$ のフェルミ面によく似ていると考えることができる。 $CeRu_2Si_2$ の [001] 方向に磁場を加えると、約 7.7T でメタ磁性転移を起こす。メタ磁性転移とは、磁化がある磁場で急激に増大する現象のことである。 $CeRu_2Si_2$ のメタ磁性転移は相転移ではなく、クロスオーバーとされている。メタ磁性転移磁場 (B_m) を境にして、フェルミ面が急激に変化する。 β 、 γ 、 κ 、 μ のド・ハースーフアン・アルフェン (dHvA) 振動が B_m 以下の磁場で、また、 β' 、 γ' 、 δ 、 ω 振動が B_m 以上の磁場で観測される。 B_m 以下での dHvA 振動に対応する軌道が図 1 (a) に示されている。 B_m 以上の磁場では dHvA 振動の周波数の大きさおよびその角度依存性が $LaRu_2Si_2$ で観測される dHvA 振動のそれらとよく似ているので、 B_m 以上の磁

場でのフェルミ面は図 1 (b) と良く似たものである。したがって、 B_m を挟んだ急激なフェルミ面の変化は f 電子が遍歴から局在へと性質を変えるためであると解釈できる。 B_m 以上で観測された dHvA 振動に対応する軌道を図 1 (b) に示す。() 内に書いてある名前は $LaRu_2Si_2$ で観測される dHvA 振動および対応する軌道を示す。一方、メタ磁性転移は相転移ではなくクロスオーバーであり、また、 B_m において非常に低温にすると、フェルミ液体の性質を保っていることが報告されている。したがって、f 電子は B_m 以上でも遍歴的な性質を保っているかもしれないので、実験結果の解釈については、いまだに論争がある。本研究では、 $Ce_xLa_{1-x}Ru_2Si_2$ のメタ磁性転移磁場より高い磁場領域で、フェルミ面、およびフェルミ面上での電子の有効質量、散乱が Ce の濃度が薄いところから、 $CeRu_2Si_2$ までどのように変化していくかを調べ、f 電子状態がどのようなになっているかを明らかにした [3]。

2. 実験方法

テトラアーク炉を用いたチョークラススキー引き上げ法により単結晶試料を作製した。試料はその後 900 度で 1 週間アニールを行った。磁化・帯磁率測定は、SQUID、AC 帯磁率を用いた。dHvA 効果測定は、磁場変調法を用いた。

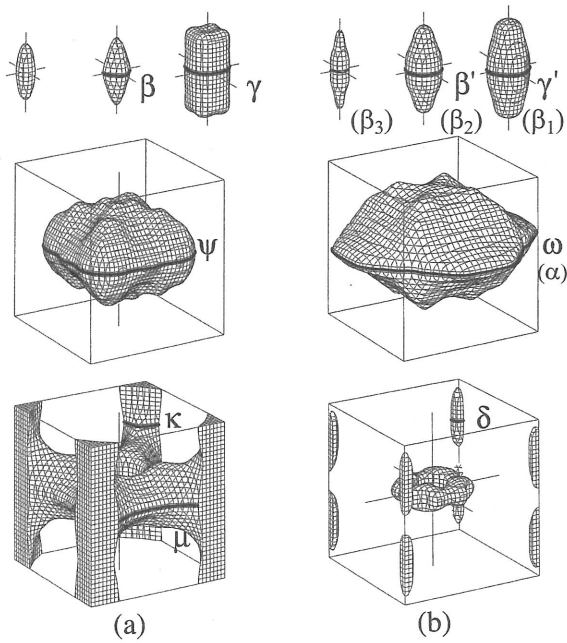


図1. (a)が CeRu_2Si_2 、(b)が LaRu_2Si_2 のバンド計算により求められたフェルミ面。上図は、楕円体ホール面、中図は主要ホール面、下図は電子面。[1, 2]

3. 実験結果

図2に、 $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ の [001] 方向に磁場を印加したときの磁気相図を示す。まず、(a)の転移温度—Ce濃度相図についてみる。 LaRu_2Si_2 から、Laを少しCeに置換するとすぐに磁気秩序が生じる。反強磁性転移温度 T_N は、Ceの増大とともに増加し、 $x \sim 0.7$ で極大をとる。さらにCeを増大させると T_N は減少し、臨界濃度 $x_c \sim 0.91$ の近傍で磁気秩序は消失する。 T_m は、帯磁率の極大となる温度で、近藤温度 T_K の約1/2に対応する。 T_m はCe濃度の増大とともに増加し、 CeRu_2Si_2 では、約11Kとなる。

次に、(b)の転移磁場—Ce濃度相図についてみる。磁気秩序状態で、磁場を印加すると1次の2段のメタ磁性転移を起こす。低磁場側のメタ磁性転移磁場を B_a 、高磁場側を B_c とする。 B_a, B_c はCe濃度の増大とともに増加する。この1次転移は、 x_c の近傍でクロスオーバーに変化する。また、 x_c で B_c とクロスオーバーメタ磁性転移磁場 B_m は一致する。これは、 x_c の近傍で1次転移が

弱くなっていき連続的にクロスオーバーにメタ磁性転移が変化することを示唆している。 B_m はCe濃度の増大とともに増加し、 CeRu_2Si_2 で約7.7Tとなる。

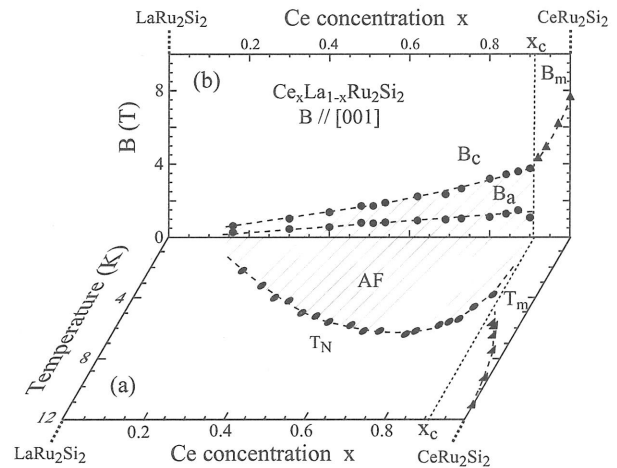


図2. (a)が転移温度—Ce濃度相図、(b)が転移磁場—Ce濃度相図。

$\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Ru}_2\text{Si}_2$ 混晶系において、 B_c, B_m より高磁場領域で、全濃度領域にわたってdHvA信号の観測に成功した。 $x = 0.97, 1.0$ の試料では、 B_m より低磁場領域でも観測できた。通常dHvA効果は、純良単結晶でしか観測されないと考えられており、結晶性を乱す混晶においても観測できたことは、驚くべき結果である。図3に、 $x = 0.97$ の試料における B_m の前後、および $x = 0.73, 0.30$ の試料における B_c より高磁場領域での、dHvA信号とそのフーリエスペクトルを示す。 $\beta'(\beta_2), \gamma'(\beta_1)$ は、図1(b)の楕円体ホール面からの信号、 δ は電子面からの信号である。 β, γ は図1(a)の楕円体ホール面からの信号である。

図4に、 $\beta'(\beta_2), \gamma'(\beta_1), \delta$ 信号のdHvA周波数のCe濃度依存性を示す。 $\alpha(\omega)$ は、 $x = 0.0, 0.04, 1.0$ の試料でしか観測できなかった。 $\beta'(\beta_2), \gamma'(\beta_1), \delta$ 信号は、全て連続的に $x = 0.0$ から1.0に変化している。このことは、メタ磁性転移磁場より高い磁場領域では、フェルミ面は LaRu_2Si_2 から CeRu_2Si_2 のメタ磁性転移より高磁場領域まで、連続的に変

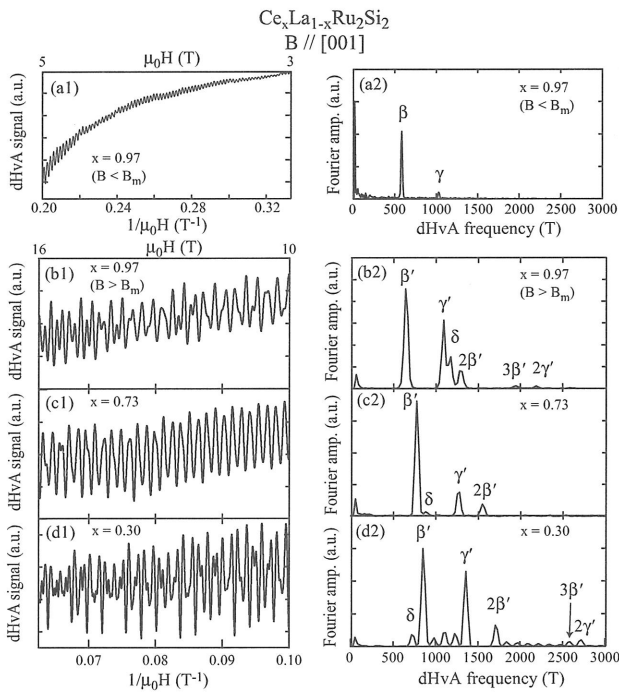


図3. (a1), (a2) は $x = 0.97$ の B_m より低磁場領域の dHvA 信号とそのフーリエスペクトル。(b1), (b2) は $x = 0.97$ 、(c1), (c2) は $x = 0.73$ 、(d1), (d2) は $x = 0.30$ の B_m より高磁場領域のそれぞれ dHvA 信号とそのフーリエスペクトル。

化していることを示している。

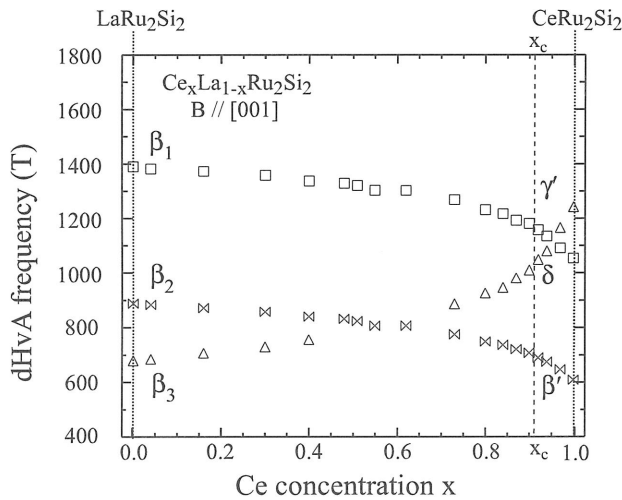


図4. $\beta_1(\gamma')$, $\beta_2(\beta')$, $\beta_3(\delta)$ 振動の dHvA 振動数の Ce 濃度依存性。

図5に、 $\beta'(\beta_2)$, $\gamma'(\beta_1)$, δ 信号の有効質量の Ce 濃度依存性を示す。いくつかの Ce 濃度で δ 信号が、観測できていない。 δ の信号強度が小さく、かつ、 δ の周波数がより信号強度の大きい $\beta'(\beta_2)$ 信

号の dHvA 周波数に近かったため、スペクトルを分離して解析できなかったためである。全ての信号の有効質量は、Ce 濃度の増大とともに単調に増大し、 x_c では異常を示さない。本測定で異常が観測されないのは、メタ磁性転移より高い磁場領域では相転移線がなく、電子状態が連続的に変化しているためである。

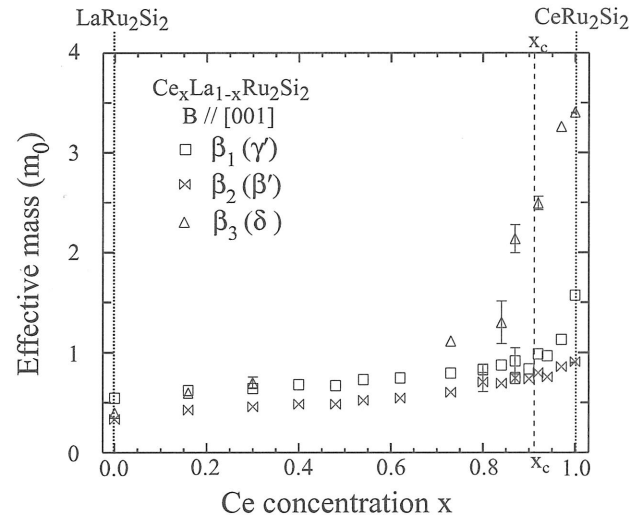


図5. $\beta_1(\gamma')$, $\beta_2(\beta')$, $\beta_3(\delta)$ 振動の有効質量の Ce 濃度依存性。

図6に、 $\beta'(\beta_2)$, $\gamma'(\beta_1)$ 信号の信号強度の Ce 濃度依存性を示す。各 Ce 濃度で、100mK において、16T から 10T までの磁場範囲で dHvA 効果測定を行い、信号強度を求めた。図には $\beta'(\beta_2)$ は LaRu_2Si_2 の信号強度を 1、 $\gamma'(\beta_1)$ は LaRu_2Si_2 の信号強度を 1/10 として規格化して示してある。 \times , $+$ は、信号強度が有効質量、dHvA 周波数のみに依存するとして計算した結果である。信号強度は、 $\beta'(\beta_2)$, $\gamma'(\beta_1)$ とともに、全濃度領域で 1 桁のオーダーの変化である。この結果は、伝導電子から見ると Ce と La との違いがわからない、つまり f 電子が良く局在していることを示唆している。

4. 考察とまとめ

dHvA 周波数、有効質量、dHvA 信号強度の振る舞いは、 $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ などの局在 f 電子系の変化過程と類似している [6]。また、 B_c , B_m より高い磁場

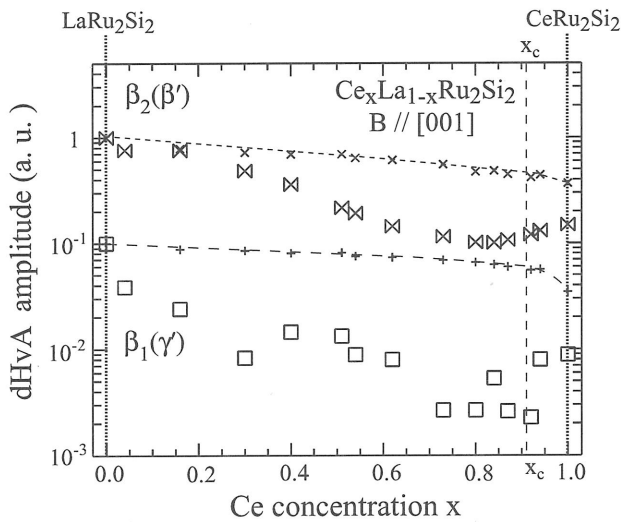


図6. $\beta_1(\gamma')$, $\beta_2(\beta')$, 振動の dHvA 信号強度の Ce 濃度依存性。

領域は、磁気相図を見てわかるように相転移がなく、dHvA 効果で観測された連続的な電子状態の変化と矛盾がない。したがって、 $Ce_xLa_{1-x}Ru_2Si_2$ のメタ磁性転移磁場より高い磁場領域では、フェルミ面は図 1 (b) のような f 電子が局在した時と同じフェルミ面であり、f 電子は局在的な性質を保ったままであると考えることができる。これらの結果は以前の $CeRu_2Si_2$ における dHvA 効果の結果とその解釈 [4] と矛盾がない。一方、 B_m における転移はクロスオーバーなので、局在的なフェルミ面への変化は連続的な変化でなければならない。磁場により、アップおよびダウンスピンバンドがゼーマン分裂し、Ce あたりほぼ 1 個分の f 電子状態がフェルミレベル以下に下がったとすると、連続的かつ大きなフェルミ面の変化を説明することが可能である。しかし、 B_m でのフェルミ面の変化や局在的な f 電子状態への変化はリジッドバンドの連続的なゼーマン分裂だけでは説明ができない。 B_m においては、急激に大きな磁気モーメントが生じ、かつ大きな磁気体積効果が起こるので、近藤効果の大きさも同時に急激に減少する。したがって、電子状態の変化は多体的な相互作用を取り入れて考える必要がある。このような磁場中の f 電子状態は、無磁場での”局在”、”遍歴”状態と

は異なり、定義の仕方によって”局在”とも”遍歴”とも解釈できる状態である。そのため、 $CeRu_2Si_2$ における dHvA 効果の結果とその解釈に関する混乱もそのようなところから生じたと考えられる。同様な結論は $CeRu_2Si_2$ において Si を Ge に置換して、f 電子が完全に局在している $CeRu_2Ge_2$ [7] への電子状態の変化を調べることによって得ることができた。

謝辞

本研究は東北大学金属材料研究所の佐藤伊佐務氏、物質材料研究機構の寺嶋太一氏、宇治進也氏との共同研究である。また、低温生成のためにご助力をいただいた極低温科学センターの鈴木三千郎氏、菊地将史氏に謝意を表したい。

参考文献

- [1] H. Yamagami, A. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. **62**, 592 (1993).
- [2] H. Yamagami, A. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. **61**, 2333 (1992).
- [3] Y. Matsumoto, M. Sugi, N. Kimura, T. Komatsubara, H. Aoki, I. Satoh, T. Terashima, S. Uji, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 053703 (2008).
- [4] H. Aoki, S. Uji, A. K. Albessard, Y. Onuki, Phys. Rev. Lett. **71**, 2110 (1993).
- [5] R. Daou, C. Bergemann, S. R. Julian, Phys. Rev. Lett. **96**, 026401 (2006).
- [6] M. Endo, S. Nakamura, T. Isshiki, N. Kimura, T. Nojima, H. Aoki, H. Harima, S. Kunui, J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 114704 (2006).
- [7] M. Sugi, Y. Matsumoto, N. Kimura, T. Komatsubara, H. Aoki, T. Terashima, S. Uji, Phys. Rev. Lett. **101**, 056401 (2008).